

Optische Spektroskopie an Fermium ($Z=100$)

Dissertation
zur Erlangung des Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“
am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

vorgelegt von
Michael Sewtz
geboren in Thuine/Lingen

Mainz 2003

Tag der mündlichen Prüfung: 3.11.2003

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde erstmals Laser-Atomspektroskopie an einem Element durchgeführt, für das bisher keine atomaren Niveaus bekannt waren.

Die Experimente wurden am Element Fermium mit der Ordnungszahl $Z=100$ mit der Resonanzionisationsspektroskopie (RIS) in einer Puffergaszelle durchgeführt. Verwendet wurde das Isotop ^{255}Fm mit einer Halbwertszeit von 20.1 h, das im Hochflusskernreaktor des ORNL, Oak Ridge, USA, hergestellt wurde. Die von einem elektrochemischen Filament in das Argon-Puffergas bei einer Temperatur von $960(20)^\circ\text{C}$ abgedampften Fm-Atome wurden mit Lasern in einem Zweistufenprozess resonant ionisiert. Dazu wurde das Licht eines Excimerlaser gepumpten Farbstofflasers für den ersten Anregungsschritt um die Wellenlänge 400 nm durchgestimmt. Ein Teil des Excimer (XeF) Laser Pumplichtes mit den Wellenlänge 351/353 nm wurde für die nicht-resonante Ionisation verwendet. Die Ionen wurden mit Hilfe elektrischer Felder aus der optischen Zelle extrahiert und nach einem Quadrupol Massenfilter mit einem Channeltron-Detektor massenselektiv nachgewiesen.

Trotz der geringen Probenmenge von $2.7 \cdot 10^{10}$ eingesetzten Atomen wurden zwei atomare Resonanzen bei Energien von $25099.8(2) \text{ cm}^{-1}$ und $25111.8(2) \text{ cm}^{-1}$ gefunden und das Sättigungsverhalten dieser Linien gemessen. Es wurde ein theoretisches Modell entwickelt, das sowohl das spektrale Profil der sättigungsverbreiterten Linien als auch die Sättigungskurven beschreibt. Durch Anpassung an die Messdaten konnten die partiellen Übergangsraten in den $^3\text{H}_6^e$ Grundzustand $A_{ki} = 3.6(7) \cdot 10^6/\text{s}$ und $A_{ki} = 3.6(6) \cdot 10^6/\text{s}$ bestimmt werden. Der Vergleich der Niveauenergien und Übergangsraten mit Multikonfigurations Dirac-Fock Rechnungen legt die spektroskopische Klassifizierung der beobachteten Niveaus als $5f^{12}7s7p \ ^5I_6^o$ und $^5G_6^o$ Terme nahe.

Weiterhin wurde ein Übergang bei 25740 cm^{-1} gefunden, der aufgrund der beobachteten Linienbreite von 1000 GHz als Rydbergzustand Zustand mit der Niveauenergie $\bar{\nu} = 51480 \text{ cm}^{-1}$ interpretiert wurde und über einen Zweiphotonen Prozess angeregt werden kann. Basierend auf dieser Annahme wurde die Obergrenze für die Ionisationsenergie $IP \leq 52140 \text{ cm}^{-1} \hat{=} 6.5 \text{ eV}$ abgeschätzt.

In den Messungen wurden Verschiebungen in den Zeitverteilungsspektren zwischen den mono-atomaren Ionen Fm^+ und Cf^+ und dem Molekül-Ion UO^+ festgestellt und auf Driftzeitunterschiede im elektrischen Feld der gasgefüllten optischen Zelle zurückgeführt. Unter einfachen Modellannahmen wurde daraus auf die relativen Unterschiede $\Delta r^{\text{Fm}^+, \text{Cf}^+}/r_{\text{Cf}^+} \approx -2\%$ und $\Delta r^{\text{UO}^+, \text{Cf}^+}/r_{\text{Cf}^+} \approx 20\%$ in den Ionenradien geschlossen.

Über die Bestimmung der Abnahme der Fm- α Aktivität des Filamentes auf der einen Seite und die Messung der Resonanzzählrate auf der anderen Seite, wurde die Nachweiseffizienz der Apparatur zu $4.5(3) \cdot 10^{-4}$ bestimmt.

Die Nachweisapparatur wurde mit dem Ziel weiterentwickelt, Laserspektroskopie am Isotop ^{251}Fm durchzuführen, das über die Reaktion $^{249}\text{Cf}(\alpha, 2n)^{251}\text{Fm}$ direkt in der optischen Zelle erzeugt werden soll. Das Verfahren wurde am chemischen Homolog Erbium getestet. Dabei wurde das Isotop ^{163}Er über die Reaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha, 2n)^{163}\text{Er}$ erzeugt und nach Resonanzionisation nachgewiesen. Die Nachweiseffizienz der Methode wurde zu $1 \cdot 10^{-4}$ bestimmt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Vorüberlegungen	5
2.1	Die experimentelle Methode	6
2.1.1	Off-line Laserspektroskopie	9
2.1.2	On-line Laserspektroskopie	9
2.1.3	Auswahl der experimentellen Methode	10
2.2	Verfügbare Probenmengen der Isotope $^{255,257}\text{Fm}$	12
2.3	Niveausuche mit der RIS	14
2.3.1	Theoretische Niveauenergerechnungen	17
2.3.2	Experimentelle Verfahren für die Niveausuche	19
3	Der experimentelle Aufbau	21
3.1	Die Apparatur zur Resonanzionisationsspektroskopie	21
3.1.1	Die optische Zelle	23
3.1.2	Die lineare Paul-Falle für den Ionentransport	24
3.2	Die Lasersysteme	26
3.2.1	Das Excimerlaser gepumpte Farbstofflasersystem	26
3.2.2	Das Nd:YAG-Laser gepumpte Farbstofflasersystem	27
3.3	Das Spektrometer zur Wellenlängenbestimmung	29
3.4	Datenaufnahme	29
3.5	Experimentsteuerung	31

4	Vorexperimente	33
4.1	Testmessungen mit der linearen Paul-Falle	33
4.2	Testmessungen mit der segmentierten Paul-Falle	35
4.3	Synchronisation der Lasersysteme	37
4.4	Abschätzung der Nachweiseffizienz	39
5	Durchführung der Messungen	41
5.1	Herstellung der Fm-Probe	41
5.2	Bestimmung der Freisetzungstemperatur	44
5.3	Linienuche	47
5.4	Isotop- und Elementzuordnung	50
5.4.1	Eichung des Massenfilters	50
5.4.2	Zuordnung zum Element Fermium	54
5.5	Messung des Sättigungsverhaltens	58
5.5.1	Eichung der Photodiode	59
5.5.2	Bestimmung der Photonenflussdichte	59
5.5.3	Messung der Sättigung des ersten Anregungsschrittes	61
5.5.4	Messung der Sättigung des zweiten Anregungsschrittes	63
5.5.5	Messung der Linienformen	64
5.6	Driftzeitmessungen	65
6	Bestimmung der Übergangsraten	67
6.1	Beschreibung des Sättigungsverhaltens und der Linienform	68
6.2	Das spektrale Intensitätsprofil des Lasers	68
6.2.1	Die Einhüllende \mathcal{G}^I des spektralen Profils	68
6.2.2	Die Modenstruktur des Farbstofflasers	69
6.3	Analyse unter Modellannahmen für $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$	70
6.4	Diskussion der Modellrechnungen	78
7	Ergebnisse und Diskussion	81
7.1	Optische Übergänge in Fermium	81
7.1.1	Ergebnisse	81
7.1.2	Vorschlag einer Termklassifizierung	82
7.1.3	Abschätzung der Ionisationsenergie	83
7.2	Bestimmung von Ionenradien aus den Driftzeitmessungen	85

8	Ausblick	89
8.1	Fortsetzung der Spektroskopie an Fm	89
8.1.1	Fortsetzung der Niveausuche an ^{255}Fm	89
8.1.2	Bestimmung der Ionisationsenergie von Fermium	90
8.1.3	Bestimmung der Isotopieverschiebung $\Delta T^{257,255}$	91
8.2	Apparative Verbesserungen	91
8.2.1	Gepulste Filamentheizung	91
8.2.2	Optischer Resonator	92
8.3	RIS an Mendeleevium ($Z=101$)	94
A	Berechnung des ^{255}Es-Brutprozesses	95
B	On-line Laserspektroskopie an ^{251}Fm	97
B.1	RIS an Er aus einem 50 MeV Schwerionenstrahl	99
B.2	RIS an Er aus einer Fusionsreaktion	104
C	Analyse der α-Detektorsignale	111
D	Radiochemische Analyse der ^{255}Fm Probe	117
E	Sättigungsmodell	119
E.1	Die optischen Bloch-Gleichungen für ein Zwei-Niveau-System	119
E.2	Verallgemeinerung für beliebige Leistungsverteilungen	120
E.3	Lösung unter der Annahme stationärer Kohärenz	121
E.4	Erweiterung auf ein Drei-Niveau-System	123
F	Die Anpassungsroutine	125
G	Die Odyssee des ^{255}Fm	129

Kapitel 1

Einleitung

Die Untersuchung der atomaren, chemischen und nuklearen Eigenschaften der schwersten Elemente mit Kernladungszahlen $Z \geq 100$ ist eine große Herausforderung. Diese Elemente werden in Kernfusionsreaktionen oftmals mit Produktionsraten von nur wenigen Atomen pro Woche [1] erzeugt. Ihre Lebensdauern sind kurz, gelegentlich nur in der Größenordnung von Millisekunden.

Die zur Zeit am weitesten fortgeschrittene Methode zur Untersuchung der Eigenschaften dieser schwersten Elemente, ist die Chemie an einzelnen Atomen in wässriger Lösung [2, 3] und in der Gasphase [4]. Mit Hilfe dieser Techniken konnte bereits auf die Valenzelektronenstruktur der Elemente 105 [5], 106 [6], 107 [7] und seit neuestem auch von Element 108 [8] geschlossen werden. Diese Experimente zielen auf die Untersuchung relativistischer Effekte ab, die bei den schwersten Elementen zu Abweichungen von der Periodizität beim Aufbau der Atomhülle führen können. Deutlich werden diese Effekte beim Vergleich der chemischen Eigenschaften mit den chemischen Homologen. Relativistische Effekte werden, grob gesprochen, von einer Kontraktion der Wellenfunktionen der inneren Elektronenschalen hervorgerufen, die über die Abschirmung des Kernpotentials indirekt die Bindungsenergie der Valenzelektronen und damit die chemischen Eigenschaften beeinflussen. In der Reihe der Aktinoiden sind die Energien der 5f-, 6d-, 7p- und 7s-Elektronen nahezu entartet, so dass schon kleine Effekte zu einer Umkehrung der Besetzungsreihenfolge dieser Orbitale führen können.

Einen weiteren Zugang zur Untersuchung relativistischer Effekte stellt die Bestimmung der ersten Ionisationsenergie (IP), sowohl experimentell als auch mit Hilfe relativistischer ab-initio Multikonfigurations Dirac-Fock (MCDF) Rechnungen oder anderer Methoden [9, 10, 11], dar. Experimentell wurde die atomare Struktur der Elemente bis Einsteinium ($Z=99$) zunächst in Gasentladungsexperimenten [12] untersucht. Dieses Verfahren erfordert Probenmengen von $\geq 10 \mu\text{g}$ und kann daher nur für Elemente angewendet werden, die in ausreichenden Mengen in Reaktoren erbrütet werden können. Basierend auf den beobachteten Niveaus konnten dann laserspektroskopische Experimente zur Bestimmung der Ionisationsenergie mit der Resonanzionisations-Massenspektrometrie (RIMS) Methode [13, 14, 15] durchgeführt werden.

Für die Elemente mit $Z \geq 100$ sind hingegen keinerlei atomspektroskopische Daten bekannt. Aufgrund der geringen Probenmengen und der kurzen Halbwertzeiten der

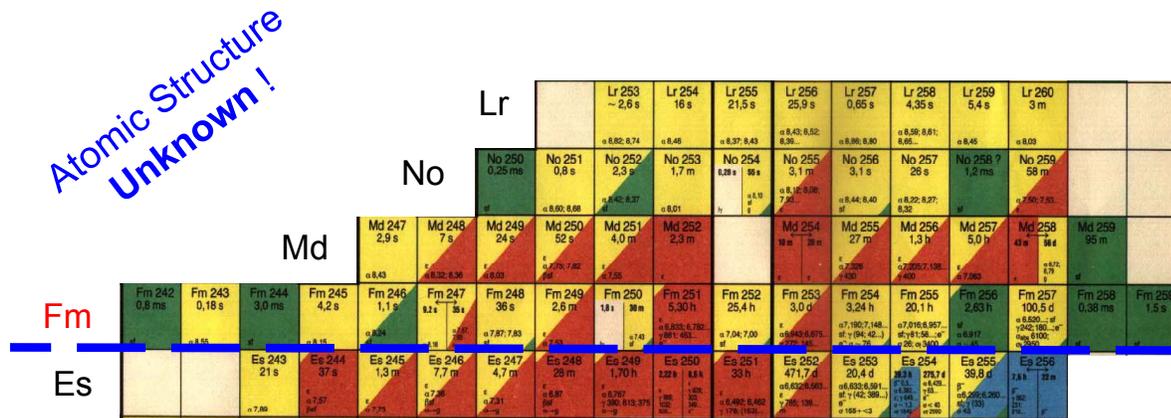


Abbildung 1.1: Eigenschaften der Elemente um $Z=100$. Entnommen aus Referenz [18].

Elemente, s. Abb. 1.1, ist die Beobachtung von Fluoreszenzlinien nach Elektronenstoßbreitbandanregung [12] nicht mehr anwendbar. Selbst mit den empfindlichsten laserspektroskopischen Methoden erscheint unter diesen Umständen eine Breitbandsuche nach atomaren Niveaus hoffnungslos, sofern die Wellenlängenbereiche für die Niveausuche nicht eingengt werden können. Daher wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit ein völlig neuer Zugang entwickelt und eine ultra-sensitiv laserspektroskopische Nachweismethode mit modernen MCDF Rechnungen [16, 17] kombiniert.

In dieser Arbeit wird die erste erfolgreiche Laserspektroskopie an einem Element beschrieben, für das zuvor keinerlei atomare Daten bekannt waren. Es handelt sich um Fermium mit der Ordnungszahl $Z=100$. Dies ist das schwerste Element, das über sukzessiven Neutroneneinfang und β^- -Zerfall in Kernreaktoren in Probenmengen von noch einigen ng hergestellt werden kann, s. Abb. 1.1. In diesem Experiment wurde gezielt nach zwei atomaren Niveaus gesucht, die mit MCDF Rechnungen vorhergesagt worden waren.

Für die Suche nach atomaren Niveaus an Elementen mit völlig unbekanntem Niveauschemata sind sehr empfindliche experimentelle Methoden erforderlich. Für Produktionsraten von etwa $10/s$ kann die Radiation Detected Resonance Ionization Spectroscopy (RADRIS) Methode [19, 20] in einer Puffergaszelle angewendet werden um radioaktive Nuklide mit Halbwertszeiten von bis zu 1 ms zu untersuchen, wie in Isotopieverschiebungsmessungen an den 240f,242f,244f Am Spaltisomeren [21, 22, 23, 24, 25] gezeigt wurde. Durch den radioaktiven Zerfallsnachweis bleibt die Anwendung dieser Methode jedoch auf Nuklide mit Halbwertszeiten von weniger als einigen Minuten beschränkt. Daher ist diese Methode zur Ion Guide-detected Resonance Ionization Spectroscopy (IGRIS) Methode [26, 27] weiterentwickelt worden. Der radioaktive Zerfallsnachweis wurde durch einen direkten, massenselektiven Nachweis der Ionen, ähnlich der Ion Guide Isotope Separation On Line (IGISOL) Methode [28], ersetzt. Dabei werden die Ionen, die die Puffergaszelle verlassen, vom Gasjet getrennt und mit einem Sektormagneten oder einem Quadrupol Massenspektrometer [29] massenselektiv nachgewiesen. Die Kombination von Resonanzionisation und Massenselektion liefert sowohl die Information über die Kernladungszahl Z der zu untersuchenden Elemente, als auch über deren Masse A . Daher wurde diese Methode zur Spektroskopie am Isotop ^{255}Fm mit

einer Halbwertszeit von 20.1 h gewählt.

Die Arbeit gliedert sich in 8 Kapitel. Zunächst werden Vorüberlegungen zu den verschiedenen Produktionsverfahren und den Möglichkeiten zur Atomspektroskopie am Element Fermium in Kapitel 2 diskutiert. In Kapitel 3 wird der experimentelle Aufbau erläutert und in Kapitel 4 werden Vorexperimente zur optischen Spektroskopie an Fermium dargestellt. Das Experiment mit einer Teilchenzahl von $2.7 \cdot 10^{10}$ Atomen des Isotops ^{255}Fm wird in Kapitel 5 beschrieben. Es wurde ein mathematisches Modell zur Beschreibung der Linienformen und des Sättigungsverhaltens atomarer Übergänge bei Verwendung eines gepulsten, breitbandigen Lasersystems entwickelt, s. Kapitel 6. Eine mögliche Klassifizierung der beobachteten Niveaus wird basierend auf den Niveauenergien und den Lebensdauern der Zustände in Kapitel 7 angegeben und eine Obergrenze für die Ionisationsenergie abgeschätzt. Darüber hinaus ermöglichte der zeitaufgelöste Nachweis der Ionen Driftzeiten verschiedener Ionenspezies aufzulösen. In Kapitel 7.2 wird die Bestimmung der Ionenradien aus diesen Driftzeitmessungen erläutert. Die Arbeit schließt mit einem Ausblick. Weiterhin wurde die IGRIS Apparatur für die Durchführung von on-line Experimenten ausgebaut, s. Anhang B.

Wesentliche Ergebnisse dieser Arbeit wurden zur Publikation in Fachzeitschriften angenommen [30, 31, 32].

Kapitel 2

Vorüberlegungen

Die Entdeckung vieler Transuranelemente war das Ergebnis sorgfältiger Planungen, die auf den Vorhersagen der chemischen und physikalischen Eigenschaften der Elemente basierten. Die Elemente Einsteinium ($Z=99$) und Fermium ($Z=100$) wurden hingegen zufällig in den Überresten der thermonuklearen Explosion „Mike“ gefunden, die am 1. November 1952 im Pazifik gezündet wurde [33]. Heutzutage sind 18 Isotope des Elements Fermium mit den Massenzahlen $A=242$ bis 259 und Halbwertszeiten von $t_{1/2} = 0.38$ ms (^{258}Fm) bis 100.5 d (^{257}Fm) bekannt [18]. In Experimenten sind die verfügbaren Isotope jedoch durch die Wahl des Herstellungsverfahrens eingeschränkt. Die Produktion über Brutreaktionen in Hochfluss-Kernreaktoren läuft entlang der „Talsohle des Massentals“ [34]. Die zur Stabilisierung der schweren Nuklide erforderliche, zunehmende Neutronenzahl wird durch mehrfachen Neutroneneinfang erreicht, so dass die relativ langlebigen Isotope ^{255}Fm und ^{257}Fm mit den Halbwertszeiten $t_{1/2} = 20.1$ h und 100.5 d erzeugt werden können. In Kernfusionreaktionen können hingegen prinzipiell nur neutronenarme Isotope erzeugt werden. Die größten Produktionswirkungsquerschnitte werden bei der Verwendung schwerer, instabiler Aktinoiden als Targetmaterial und leichter Projektile beobachtet. Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{249}\text{Cf}(\alpha, 2n)^{251}\text{Fm}$ beträgt z. B. 20 mb [35]. Weiterführende Konzepte für die Bestrahlung geeigneter, schwerer Targets mit neutronenreichen Spaltfragmenten sind in den Projekten „Production, Ionisation, Acceleration de Faisceaux Exotique“ (PIAFE) [36] am Hochflussreaktor des Institute Laue Langevin (ILL) in Grenoble und „Munich Accelerator for Fission Fragments“ (MAFF) [37] am ForschungsReaktor München II (FRM II) in München entwickelt aber bisher nicht realisiert worden.

Im folgenden Kapitel wird zunächst das experimentelle Verfahren zur optischen Spektroskopie an Fermium erläutert. Im Anschluss werden die verfügbaren Probenmengen abgeschätzt und Konzepte zur Niveausuche an Fermium, unter Berücksichtigung theoretischer Niveauenergieberechnungen, diskutiert.

2.1 Die experimentelle Methode

Eine nahezu universelle Methode zum Studium der atomaren Struktur der Elemente ist die Breitbandanregung der Elektronenhülle mittels Elektronenstoß in Gasentladungsröhren [38]. Über die Fourier-Transformationspektroskopie können dabei Fluoreszenzlinien über weite Wellenlängenbereiche praktisch gleichzeitig beobachtet werden. Aufgrund der erforderlichen Probenmengen von $1 \mu\text{g}$ [39] bis $100 \mu\text{g}$ [12] kann dieses experimentelle Verfahren jedoch nur bis zum Element Einsteinium ($Z=99$) angewendet [40] werden.

Mit der Entwicklung leistungsstarker Lasersysteme, wie Kupferdampfaser, Excimerlaser und in den vergangenen 10 Jahren insbesondere der Nd:YAG Festkörperlaser, gewannen laserspektroskopische Methoden, wie die Resonanzionisationsspektroskopie (RIS), in der Atomspektroskopie zunehmend an Bedeutung [41]. Bei der Bestimmung bzw. Vermessung der Ionisationsenergien aller Aktinoide bis zum Element Einsteinium ($Z=99$) wurde am Institut für Kernchemie der Universität Mainz die Sensitivität der RIMS Methode [14, 13, 15] demonstriert. Die Nachweiseffizienz dieser Atomstrahl Apparatur beträgt $\epsilon_{tot} \approx 10^{-5}$ und ist im wesentlichen durch die geringe zeitliche und räumliche Koinzidenz von Atomen und Lasersimpuls $\epsilon_k \approx 10^{-4}$ [42] limitiert¹.

Eine Alternative bietet die Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle [43, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 27]. Durch die Verwendung eines Edelgases als Speichermedium für die neutralen Atome, kann prinzipiell $\epsilon_k = 1$ erreicht werden². Die Sensitivität dieser Methode wurde bei Isotopieverschiebungsmessungen an den Americium Spaltisomeren $^{240f,242f,244f}\text{Am}$ gezeigt [25]. Die Spaltisomere besitzen Halbwertszeiten von wenigen ms und wurden bei Produktionsraten von 10/s erzeugt. Bei diesen Experimenten wurde der radioaktive Zerfall der resonant ionisierten Am-Atome mit Halbleiterdetektoren in der Puffergaszelle nachgewiesen (RADRIS [20]). Aufgrund der relativ langen Halbwertszeit der in ausreichenden Mengen herstellbaren Isotope ^{251}Fm ($t_{1/2}=5.3 \text{ h}$), ^{255}Fm ($t_{1/2}=20.1 \text{ h}$) und ^{257}Fm ($t_{1/2}=100.5 \text{ d}$) ist dieses Nachweisverfahren jedoch nicht anwendbar. Um die Effizienz der RIS in einer Puffergaszelle mit dem direkten, massenselektiven Nachweis der RIMS Methode zu verbinden, musste ein experimentell aufwändigeres Verfahren realisiert werden, bei dem die Ionen aus dem Gas extrahiert werden.

Im Rahmen einer Dissertation [26] wurde die RADRIS Methode zur Ion Guide Resonance Ionization Spectroscopy (IGRIS) Methode [27] weiterentwickelt. Das Prinzip des Nachweisverfahrens soll an Abb. 2.1 erläutert werden. Neutrale Fm-Atome werden z. B. durch elektrisches Heizen von einem Filament ins Argon-Puffergas freigesetzt und bleiben in einem Volumen, das von Lasern ausgeleuchtet werden kann, gespeichert. Die Speicherzeit wird durch Diffusion und thermische Konvektion der Atome aus diesem Volumen heraus beschränkt und beträgt bei einem Druck von 40 mbar etwa 40 ms [26]. Für die Resonanzionisation wird das Speichervolumen mit dem Licht eines Farbstofflasers ausgeleuchtet, das für die Suche nach atomaren Niveaus verstimmt wird.

¹ Die Repetitionsrate des verwendeten Kupferdampflasersystems beträgt $\nu_{rep} = 6.5 \text{ kHz}$

² Bei der maximalen Repetitionsrate $\nu_{rep} = 500 \text{ Hz}$ des verwendeten Excimerlasers beträgt $\epsilon_k = 0.1$ [26].

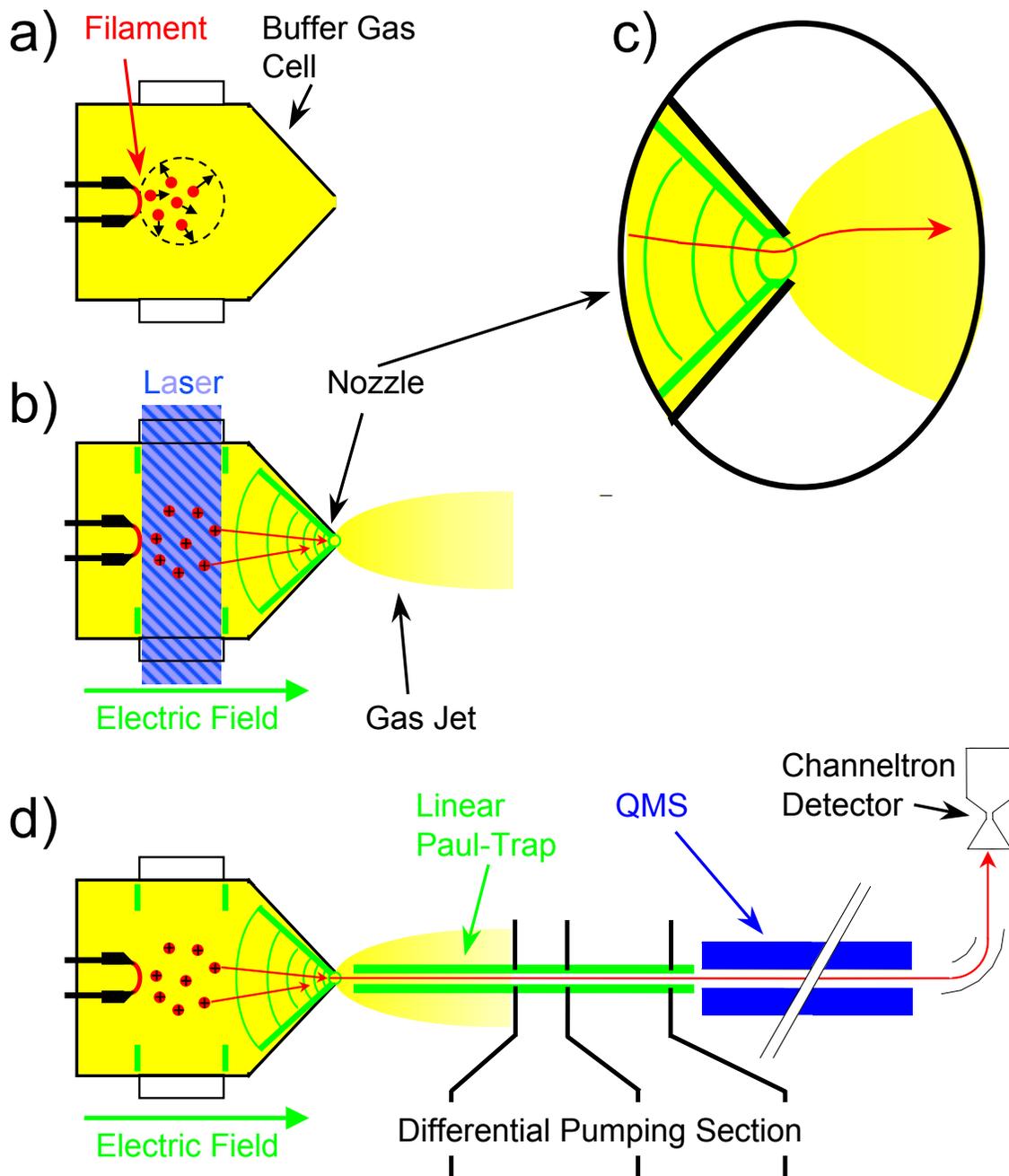


Abbildung 2.1: Prinzip der Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle mit direktem, masseselektivem Ionennachweis. Die vom Filament abgeheizten Atome bleiben im Puffergas gespeichert (a). Das Speichervolumen wird mit zwei Laserstrahlen zur Resonanzionisation ausgeleuchtet. Die erzeugten Ionen driften dann in einem fokussierenden, elektrischen Feld zu einer Austrittsdüse (b). In der Düse selbst, wo das elektrische Feld defokussierend wird, überwiegt die Reibungskraft im sich ausbildenden Gasstrahl und die Ionen werden aus der Zelle ausgespült (c). Hinter der Düse werden die Ionen im HF-Wechselfeld einer linearen Paul-Falle eingefangen und nach einem Quadrupolmassenfilter (QMS) masseselektiv nachgewiesen (d).

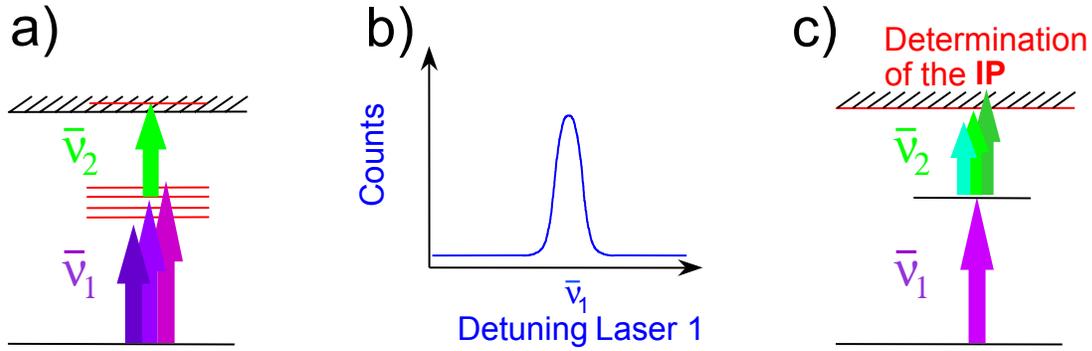


Abbildung 2.2: Prinzip der Niveausuche an Fm. a) Suche nach einem atomaren Übergang durch Variation der Anregungsenergie $\bar{\nu}_1$. Die Energie $\bar{\nu}_2$ bleibt dabei fest und erfüllt die Ionisationsbedingung $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 \geq IP$. b) Wellenlängenabhängiger Anstieg der Zählrate durch Auffinden eines atomaren Niveaus. c) Bestimmung des IP durch Variation von $\bar{\nu}_2$.

Zusätzlich werden etwa 10% der Laserintensität des Pumplasers für die nicht resonante Ionisation eingestrahlt. Das Verfahren ist in Abb. 2.2 (a) dargestellt. Beim Auffinden eines atomaren Niveaus werden die im Gas gespeicherten Fm-Atome resonant ionisiert, mit elektrischen Feldern zu einer Austrittsdüse geleitet und mit dem Gasstrom aus der Zelle ausgespült. Im Gegensatz zu herkömmlichen IGISOL-Apparaturen [28, 29] kann, durch Verwendung von elektrischen Feldern zum Ionentransport innerhalb der Zelle, der Gasfluss so klein gehalten werden, dass die Speicherzeit der Atome nicht reduziert wird. Hinter der Düse werden die Ionen in einer linearen Paulfalle eingefangen, vom Puffergas getrennt und in eine Hochvakuumsektion geleitet, wo sie massenselektiv nachgewiesen werden.

Prinzipiell kann mit dieser Methode jedes einzelne Ion in der Gasphase nachgewiesen werden. Das Auffinden einer atomaren Resonanz wird durch einen wellenlängenselektiven Anstieg der Ionenzählrate beobachtet, s. Abb. 2.2 (b). In einem zweiten Experiment kann, ausgehend von einem bekannten Niveau, die Energie des zweiten Anregungsschrittes $\bar{\nu}_2$ über die Ionisationsgrenze durchgestimmt werden. Dies ist in Abb. 2.2 (c) dargestellt. Durch Stöße der angeregten Atome mit Puffergasatomen können diese bereits bei Laseranregungsenergien $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 \geq IP - \bar{\nu}_{th}$ ionisiert werden. Daher ist die Genauigkeit dieser Methode durch die thermische Energie $\bar{\nu}_{th} \approx 660 \text{ cm}^{-1}$, die in Stößen übertragen werden kann, limitiert.

Abhängig von der Produktion der Fm-Atome können diese entweder in einem off-line Verfahren durch elektrisches Heizen von einem Filament in das Puffergas freigesetzt werden, s. Abb. 2.1, oder nach einer Kernfusionsreaktion im Puffergas abgestoppt werden. Beide Verfahren werden im Folgenden diskutiert.

2.1.1 Off-line Laserspektroskopie mit der IGRIS Methode

- a) Stehen ausreichende Probenmengen langlebiger³ Isotope z. B. durch Herstellung in Kernreaktoren zur Verfügung, können die Atome nach dem in Ref. [44] beschriebenen Verfahren elektrochemisch auf Ta-Trägerfolien aufgebracht werden. Da die zu untersuchenden Aktinoide in diesem Verfahren als Hydroxid abgeschieden werden, werden die Filamente mit einer 1 μm dicken Ti-Sputterschicht überzogen. Beim elektrischen Heizen der Filamente entsteht an der Grenzschicht zwischen Tantal und Titan ein Diffusionsgradient [45], so dass die Aktinoide bevorzugt durch die Titanschicht diffundieren und dabei in die atomare Form reduziert werden. Die IGRIS Methode wurde mit derartigen Filamenten an den Elementen Gadolinium und Americium getestet und die Nachweiseffizienz $\epsilon > 10^{-4}$ bestimmt [26].
- b) Kurzlebige Isotope mit Halbwertzeiten von wenigen Stunden können über Kernfusionsreaktionen an Schwerionenbeschleunigern erzeugt und in Ta-Trägerfolien implantiert werden. Bei der Implantation in die Metallfolie neutralisieren die Fusionsprodukte und können später in atomarer Form abgedampft werden.

2.1.2 On-line Laserspektroskopie mit der IGRIS Methode

- a) Anlehnend an die RADRIS Methode [19], kann die Resonanzionisationsspektroskopie auch in einem on-line Verfahren durchgeführt werden. Dabei wird an einem Schwerionenbeschleuniger das zu untersuchende Isotop in einer Kernfusionsreaktion erzeugt, vom Primärstrahl absepariert und in die Puffergaszelle geleitet. Beim Abstoppen im Ar-Puffergas neutralisieren etwa 13% der Fusionsprodukte [19] und stehen für laserspektroskopische Experimente zur Verfügung. Für dieses Konzept ist ein geeigneter Separator für Primär- und Sekundärionenstrahl erforderlich. Geben die Fusionsproduktkerne ihre Energie aus niedrig liegenden Kernzuständen bevorzugt über innere Konversion ab, kann der mittlere Ladungszustand bis zu $Q = 22^+$ [46] betragen. In diesem Fall kann zur Abtrennung von Primär- und Sekundärstrahl ein elektrostatisches Ablensystem [47, 48] verwendet werden, sofern die Rückstoßenergien ≤ 100 keV betragen, wie es bei der Kombination von Aktinoidentargets mit Massenzahlen $A \approx 240$ und p- und d-Projektilen mit Energien von 20-30 MeV der Fall ist. Bei der Verwendung von (α, xn)- Reaktionen sinkt die Effizienz des elektrostatischen Separators bereits auf 3% [49]. Werden die Produktkerne mit schweren Projektilen, wie ^{48}Ca erzeugt, erhalten die Rückstoßkerne Energien von etwa 40 MeV und können z. B. mit dem Geschwindigkeitsfilter SHIP (Separator for Heavy Ion Reaction Products) [50] an der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt vom primären UNILAC-Strahl separiert werden. Dieses Konzept wird für die Entwicklung einer Puffergaszelle zur Resonanzionisationsspektroskopie an Nobelium ($Z=102$) verfolgt [51].

³ Die Untergrenze der Halbwertzeit der zu untersuchenden Isotope ist durch die Transport- und Aufarbeitungszeit von typischerweise 24 h vorgegeben.

- b) Im Rahmen einer Diplomarbeit [49] wurde ein weiteres Konzept für die on-line Resonanzionisationsspektroskopie mit der IGRIS Methode entwickelt. Das zu untersuchende Isotop wird dabei in einer Kernfusionreaktion in der Puffergaszelle selbst erzeugt. Die optische Zelle wurde so erweitert, dass der primäre Schwerionenstrahl auf das Produktionstarget, das in der optischen Zelle angebracht ist, geleitet werden kann. Die Fusionsprodukte treten aufgrund ihres Rückstoßimpulses mit einer Energie von ≤ 500 keV aus dem Target aus und können im Argon Puffergas bei einem Druck von 40 mbar auf einer Länge von 5 mm abgestoppt werden [49].

2.1.3 Auswahl der experimentellen Methode

Da zu Beginn der vorliegenden Arbeit die Verfügbarkeit einer $^{255,257}\text{Fm}$ Probe nicht absehbar war, wurde zunächst die Herstellung des Elements Fermium über eine Kernfusionsreaktion verfolgt.

Das Isotop ^{251}Fm mit einer Halbwertszeit von 5.3 h kann, ausgehend von einem radioaktiven Californium Target, über die Kernreaktion $^{249}\text{Cf}(\alpha,2n)^{251}\text{Fm}$ erzeugt werden. Diese Reaktion hat bei einer α -Strahlenergie von 30 MeV den relativ großen Reaktionswirkungsquerschnitt von 20 mb [35]. Am Emperor-Tandembeschleuniger des Max-Planck Institut für Kernphysik in Heidelberg steht z. B. ein α -Teilchenstrahlstrom von 1 μA zur Verfügung. Bei Verwendung eines sättigungsdicken⁴ Targets der Massenbelegung $\rho d_{\text{satt}} = 26 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ [49] beträgt die ^{251}Fm Produktionsrate $10^4/\text{s}$.

Während einer Aufaktivierungszeit von 10 h kann ein Filament mit $2 \cdot 10^9$ Atomen ^{251}Fm hergestellt werden. Der Vorteil dieser Methode besteht zum einen darin, dass die Ionen bei der Implantation in eine Metalloberfläche vollständig neutralisieren. Zum anderen wird in diesem Verfahren die Untergrundzählrate vermieden, die von γ -Ereignissen aus der Aufaktivierung des Targets und des Strahlfängers durch den Primärstrahl im Channeltron-Detektor hervorgerufen wird. Aufgrund der geringen Anzahl der für die Niveausuche zur Verfügung stehenden Fm-Atome je Filament erschien der Erfolg der Methode jedoch fragwürdig und es wurde das Konzept der on-line Laserspektroskopie verfolgt.

Um Verluste in der Separation von Primär- und Sekundärionenstrahl zu vermeiden, wurde der Primärstrahl durch die Puffergaszelle geleitet, in der das ^{249}Cf Target angebracht werden sollte. Ein weiterer Vorteil dieses Verfahrens wurde in der vollständigen Neutralisation der Fusionsprodukte in dem vom Primärstrahl erzeugten Plasma gesehen, wie es z. B. aus Ref. [52] erwartet wurde. Das Verfahren soll an Abb. 2.3 erläutert werden. Um die Aufstreuung des Strahls und die Ionisation des Gases zu minimieren, werden geeignete Strahl Eintritts- und Austrittstrichter verwendet, auf denen 1.8 mg/cm^2 dicke Titan Folien angebracht sind, um das Vakuum der Strahlführung vom Puffergas zu trennen. Wie in Abb. 2.4 dargestellt ist, soll das Experiment in zwei Phasen durchgeführt werden. Während der Strahl-an Phase werden die Fm-Fusionsprodukte

⁴ Die Sättigungsdicke ρd_{satt} bezeichnet die Targetdicke, bei der 95% der erzeugten Rückstoßionen aus dem Target austreten [49].

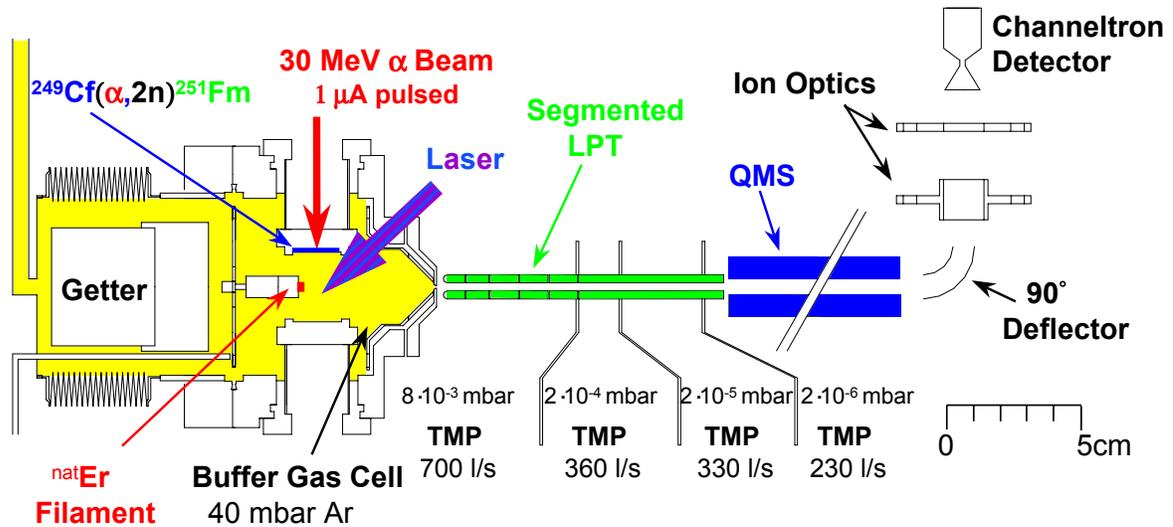


Abbildung 2.3: Prinzip der on-line Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle mit direktem, massenselektivem Ionennachweis. LPT ist die lineare Paul-Falle und QMS der Quadrupolmassenfilter. Das ^{nat}Er -Filament dient zur Eichung des Massenfilters und zur Kalibrierung der Wellenlänge des Farbstofflasers.

im Puffergas angesammelt. Mit Hilfe elektrischer Felder werden während der “Clean Up” Periode zunächst die geladenen Teilchen entfernt, so dass nur neutrale Fm-Atome im Gas gespeichert bleiben. Dieser Anteil steht für die Resonanzionisationsspektroskopie zur Verfügung. Zum Nachweis der Photoionen werden dann die Spannungen an den Zellenelektroden für die Extraktion umgeschaltet.

In Testexperimenten am Element Erbium, dem chemischen Homologen von Fermium in der Gruppe der Lanthanoide, wurde die Nachweiseffizienz des Verfahrens $\epsilon = 10^{-4}$ bestimmt, s. Anhang B. Weiterhin wurde für das geplante Fm-Experiment eine Resonanzzählrate von 0.1/s bei einem α -Strahlstrom von $\bar{I} = 160$ pA und ein Signal zu Untergrundverhältnis von 4/1 abgeschätzt. Ohne weitere experimentelle Verbesserungen erschien eine Breitbandsuche nach atomaren Niveaus in Fermium unter diesen Umständen als schwierig.

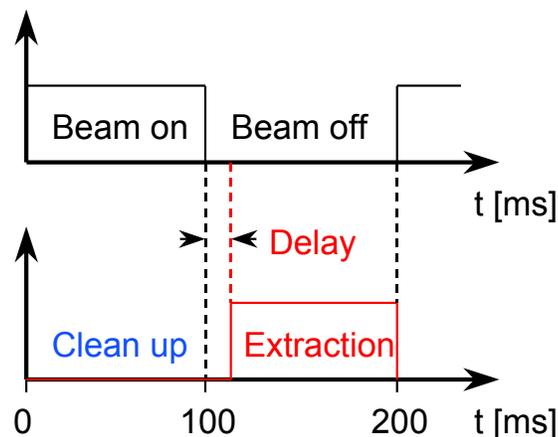


Abbildung 2.4: Zeitlicher Ablauf der Resonanzionisation von Fermium.

Als im Herbst 2000 am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) entschieden wurde, eine Fm-Probe für die Atomspektroskopie zur Verfügung zu stellen, wurde die Weiterentwicklung der on-line Methode unterbrochen und die in Kapitel 2.1.1 a) beschriebene Filament Methode verfolgt.

2.2 Verfügbare Probenmengen der Isotope $^{255,257}\text{Fm}$

Wie bereits erwähnt, können die Isotope $^{255,257}\text{Fm}$ durch aufeinanderfolgenden Neutroneneinfang und β^- -Zerfall in Kernreaktoren erbrütet werden. Im Folgenden werden die verfügbaren Probenmengen beider Isotope abgeschätzt. Am High Flux Isotope Reactor (HFIR) des ORNL stehen insgesamt 30 Neutronen-Bestrahlungsplätze zur Verfügung. Für die Produktion der schweren Aktinoide werden typischerweise 10 Produktionsstäbe mit einer Aufnahmekapazität von jeweils 10 g Targetmaterial eingesetzt [53]. Die Produktion der Isotope ^{255}Fm und ^{257}Fm geschieht in mehreren Schritten. Als Ausgangsprodukt wird das Isotop ^{244}Cm verwendet, das in Mengen von bis zu 100 g am HFIR verfügbar ist [33]. Da jedoch das Verhältnis von Neutroneneinfangquerschnitt σ zu Spaltwirkungsquerschnitt σ_f des ersten Folgeproduktes, ^{245}Cm , für thermische Neutronen $\sigma/\sigma_f = 1/6$ beträgt, s. Tab. A.1, wird zunächst das Isotop ^{246}Cm hergestellt. Aufgrund der unterschiedlichen Abbrandkonstanten $\lambda_A = (\sigma + \sigma_f) \cdot \Phi_n$ für ^{244}Cm von $\lambda_A = 16.1 \cdot \Phi_n$ und ^{246}Cm von $\lambda_A = 1.36 \cdot \Phi_n$ reichert sich das Atomzahlverhältnis dieser Isotope während eines Brennstoffzyklus von 22 d zu $N_{^{246}\text{Cm}}/N_{^{244}\text{Cm}} \approx 0.3$ an [53]. Der Neutronenfluss wurde mit Φ_n bezeichnet.

Im zweiten Schritt werden, ausgehend von 10 Komposit-Targets aus insgesamt etwa 74 g ^{244}Cm und 26 g ^{246}Cm , die schweren Aktinoide hergestellt. Nach einer Brutzeit von $t_b \approx 1$ a werden die Produkte chemisch aus den Produktionsstäben extrahiert. Das produzierte, schwere Curium, ^{246}Cm , wird dabei als Targetmaterial erneut dem Produktionszyklus zugeführt [54]. Für die Herstellung des Isotops ^{255}Fm wird das Isotop ^{255}Es über den in Abb. 2.5 dargestellten Prozess erzeugt. Die Atomzahl N_{Es} kann in Abhängigkeit der Brutzeit t_b und des Neutronenflusses Φ_n berechnet werden. Die numerische Lösung des resultierenden Differentialgleichungssystems, s. Anhang A, ist in Abb. 2.6 für zwei Neutronenflüsse Φ_n dargestellt. Bei einem Neutronenfluss von $\Phi_n = 2.6 \cdot 10^{15}$ n/(cm² · s) durchläuft die Anzahl der produzierten ^{255}Es Atome $N_{\text{Es}}(t_b)$ bei $t_b = 6.7$ a ein Maximum, das durch die Produktion des Isotops mit dem kleinsten

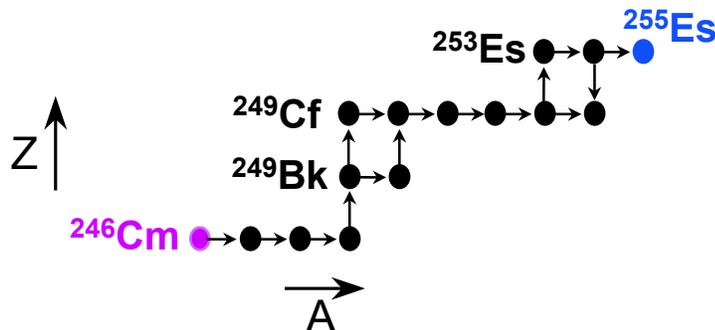


Abbildung 2.5: Produktion von ^{255}Es im Hochflussreaktor [33].

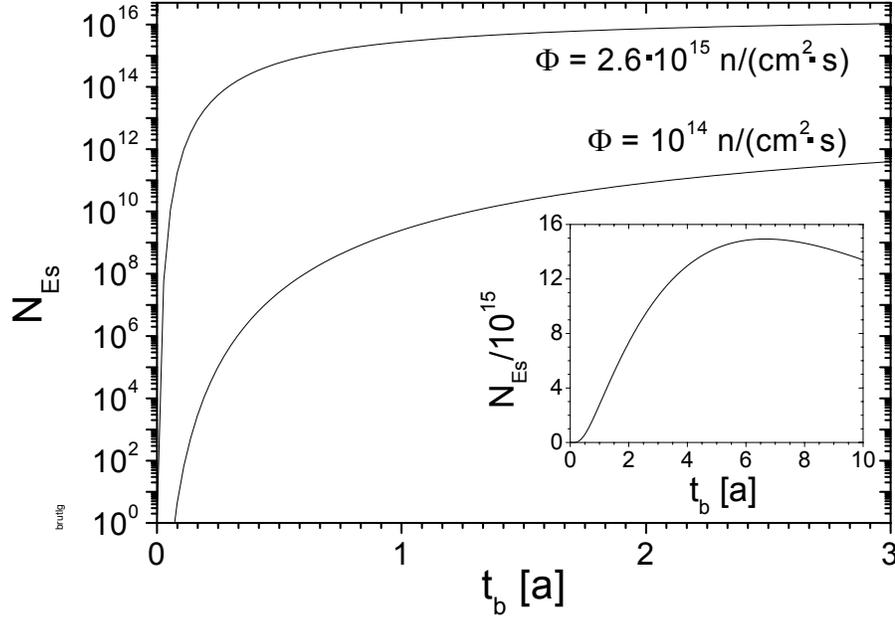


Abbildung 2.6: Atomzahl N_{Es} als Funktion der Brutzeit t_b für die Neutronenflüsse $\Phi_n = 2.6 \cdot 10^{15} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ und $\Phi_n = 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$. Eingefügt ist eine lineare Darstellung von $N_{Es}(t_b)$ bei $\Phi_n = 2.6 \cdot 10^{15} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$.

Produkt $t_{1/2} \cdot \sigma / \sigma_f$, das nicht über β^- -Zerfall zerfällt, bestimmt wird. Dies ist das Isotop ²⁵²Cf mit einer Halbwertszeit von 2.654 a. Der Abfall der Kurve bei großen Zeiten t_b ist auf den Verlust an ²⁴⁶Cm Targetmaterial mit der Abbrandkonstanten $\lambda_A \approx 3.5 \cdot 10^{-9} / \text{s}$ zurückzuführen.

Nach der chemischen Abtrennung des Isotops ²⁵⁵Es aus den Targetstäben, wird im letzten Schritt der Zerfall von ²⁵⁵Es in das Isotop ²⁵⁵Fm abgewartet. Die Elemente werden dann chemisch separiert [55]. Für die maximale Anzahl von Fm-Atomen erhält man

$$N_{Fm}^{max} = f_{Es} \cdot N_{Es} \frac{t_{1/2Fm}}{t_{1/2Es}} \approx 2 \cdot 10^{-2} \cdot N_{Es} , \quad (2.1)$$

mit dem Verhältnis $f_{Es} = 0.92$ von β^- -Zerfällen zur Summe aller Zerfallskanäle des Isotops ²⁵⁵Es. Der Neutronenfluss am Ort von Brutelementen in Kernkraftwerken beträgt typisch $\Phi_n \leq 10^{14} / (\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ [56], so dass nach einer Brutzeit von 1 a Probenmengen von maximal $N_{Fm}^{max} \approx 5 \cdot 10^7$ Atomen $\hat{=}$ 0.02 pg hergestellt werden können. Bei einem Neutronenfluss von $\Phi_n = 2.6 \cdot 10^{15} / (\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ hingegen können in derselben Zeit $N_{Fm}^{max} \approx 5 \cdot 10^{13}$ Atome $\hat{=}$ 24 ng produziert werden. Derartige Neutronenflüsse sind nur in Hochflussreaktoren, wie dem HFIR, verfügbar.

Bei der chemischen Extraktion des ²⁵⁵Es können am HFIR gleichzeitig etwa 1 pg $\hat{=}$ $2 \cdot 10^9$ Atome des 100.5 d Isotops ²⁵⁷Fm gewonnen werden [33]. Wird das Experiment direkt nach Abtrennung des ²⁵⁵Fm von der ²⁵⁵Es Mutter durchgeführt, steht im Vergleich zum Isotop ²⁵⁷Fm die 10^4 -fache Menge ²⁵⁵Fm zur Verfügung. Darüberhinaus können bis zum Zerfall der ²⁵⁵Es Mutter weitere Proben gewonnen werden. Daher wurde das Isotop ²⁵⁵Fm für die Resonanzionisationsspektroskopie gewählt.

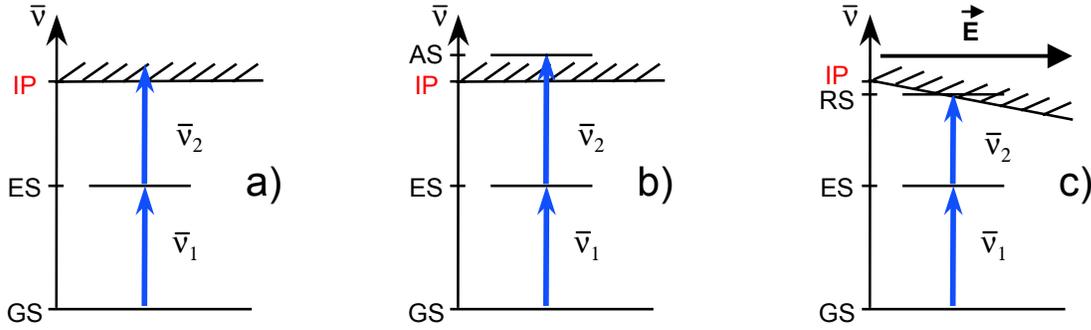


Abbildung 2.7: Prinzip der Resonanzionisation in einem 2 Stufen Prozess. I: Resonante Anregung eines Zustands (ES) aus dem Grundzustand (GS) mit einem Photon der Energie $\bar{\nu}_1$. II: Nichtresonante Ionisation (a), resonante Anregung eines autoionisierenden Zustands (AS) (b) und resonante Anregung eines Rydbergzustands mit Feldionisation in einem elektrischen Feld \vec{E} (c).

2.3 Niveausuche mit der Resonanzionisationspektroskopie

Bei der Resonanzionisationspektroskopie wird zunächst ein elektronischer Übergang eines Atoms durch ein Photon der Wellenlänge λ_1 und der Energie $\bar{\nu}_1 = 1/\lambda_1$ resonant angeregt. Mit einem zweiten Photon der Energie $\bar{\nu}_2$ kann dann das Atom ionisiert werden, sofern die Energiebilanz $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 \geq \text{IP}$ erfüllt ist, s. Abb. 2.7. Die Übergangsrate pro Absorberatom P_{ik} im ersten Anregungsschritt kann durch Faltung der räumlichen und spektralen Dichten der Absorberatome

$$\rho_A = \frac{d^2 N_A}{d\omega_{A'} dV} \quad (2.2)$$

und der Photonen

$$\rho_L = \frac{d^2 N_L}{d\omega_{L'} dV} \quad (2.3)$$

mit dem Resonanzwirkungsquerschnitt [57]

$$\sigma_r = \frac{\lambda_1^2}{4} \frac{g_k}{g_i} A_{ki} \frac{\Gamma/(2\pi)}{(\omega_{A'} - \omega_{L'})^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (2.4)$$

berechnet werden [58].

$$\begin{aligned} P_{ik} &= \frac{c}{N_0} \int_V \int_{\omega_{L'}} \int_{\omega_{A'}} \rho_A(\omega_{A'} - \omega_A) \rho_L(\omega_{L'} - \omega_L) \sigma_r(\omega_{A'}, \omega_{L'}) d\omega_{A'} d\omega_{L'} dV \\ &= \int_{\omega_{L'}} \int_{\omega_{A'}} \frac{dN_A}{d\omega_{A'}} \frac{dN_L}{d\omega_{L'}} \sigma_r(\omega_{A'}, \omega_{L'}) d\omega_{A'} d\omega_{L'} \int \frac{c}{N_0} \frac{dN_A}{dV} \frac{dN_L}{dV} dV \end{aligned} \quad (2.5)$$

Die statistischen Gewichte $g_{i,k}$ der Niveaus i und k sind über die Beziehung $g_{i,k} = 2J_{i,k} + 1$, mit dem Gesamtdrehimpuls $J_{i,k}$ der Niveaus i und k , bestimmt. Für die Linienbreite

Γ und die Lebensdauer τ des Übergangs gilt $\Gamma = 1/\tau = \sum_i A_{ki}$, mit dem Einstein-Koeffizient für spontane Emission des angeregten Niveaus A_{ki} . Die Lichtgeschwindigkeit wurde mit c und die Gesamtzahl der Absorberatome mit N_0 bezeichnet.

Die spektrale Verteilung der Absorberatome $dN_A/d\omega_{A'}$ um die Mittenfrequenz ω_A ist durch die Bewegung der Atome im Puffergas bestimmt und wird durch das inhomogen verbreiterte Doppler-Profil beschrieben :

$$\frac{dN_A}{d\omega_{A'}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_D} e^{-\frac{(\omega_{A'} - \omega_A)^2}{2\sigma_D^2}} \quad (2.6)$$

Bei 30°C und einer Anregungswellenlänge von $\lambda_1 \approx 400$ nm beträgt die Breite der Verteilung $\sigma_D \approx 0.5$ GHz [59] und ist schmal gegen die Breite σ_L des Anregungslasers⁵. Daher wird zur Abschätzung von P_{ik} im Folgenden

$$\frac{dN_A}{d\omega_{A'}} = \delta(\omega_{A'} - \omega_A) , \quad (2.7)$$

mit der Dirac Delta-Funktion $\delta(\omega_{A'} - \omega_A)$, verwendet. Dasselbe gilt für die natürliche Linienbreite eines atomaren Übergangs $\Gamma \leq 0.5$ GHz [62], so dass auch der Wirkungsquerschnitt σ_r im Folgenden nach Gl. (2.8) genähert wird :

$$\sigma_r = \frac{\lambda_1^2}{4} \frac{g_k}{g_i} A_{ki} \delta(\omega_{A'} - \omega_{L'}) . \quad (2.8)$$

Weiterhin wird für die spektrale Verteilung der Laserphotonen eine Gauß-Verteilung angenommen [58] :

$$\frac{dN_L}{d\omega_{L'}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_L} e^{-\frac{(\omega_{L'} - \omega_L)^2}{2\sigma_L^2}} \quad (2.9)$$

Mit diesen Annahmen kann die Faltung der spektralen Dichten $\frac{dN_A}{d\omega_{A'}}$ und $\frac{dN_L}{d\omega_{L'}}$ mit dem Resonanzwirkungsquerschnitt σ_r aus Gleichung 2.5 ausgeführt werden :

$$\int_{\omega_{L'}} \int_{\omega_{A'}} \frac{dN_A}{d\omega_{A'}} \frac{dN_L}{d\omega_{L'}} \sigma_r(\omega_{A'}, \omega_{L'}) d\omega_{A'} d\omega_{L'} = \frac{\lambda_1^2}{4} \frac{g_k}{g_i} A_{ki} \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_L} e^{-\frac{(\omega_A - \omega_L)^2}{2\sigma_L^2}} \quad (2.10)$$

Für die räumliche Verteilung der Photonen im Volumen V gilt näherungsweise $dN_L/dV = j_L/c = \text{const}$ [63], mit der Photonenflussdichte j_L , vergl. auch Kapitel 5.5.2. Das Raumintegral aus Gleichung 2.5 liefert somit :

$$\int \frac{c}{N_0} \frac{dN_A}{dV} \frac{dN_L}{dV} dV = \frac{1}{N_0} j_L \int \frac{dN_A}{dV} dV = j_L \quad (2.11)$$

Im letzten Schritt wurde die Normierung $\int \frac{dN_A}{dV} dV = N_0$ verwendet. Im Hinblick auf die Verwendung gepulster Lasersysteme wird im Folgenden die Impulsphotonenflussdichte

$$\Phi = \int_0^{t_0} j_l dt , \quad (2.12)$$

⁵Die Bandbreite z. B. eines gepulsten Farbstofflasers beträgt $\sigma_L = 8$ GHz [60] und die eines OPO-Lasers beträgt $\sigma_L = 200$ GHz [61].

mit der Zeitdauer t_0 eines Laserimpulses, eingeführt. In Resonanz, d. h. $\omega_L = \omega_A = \omega_1$ folgt mit Gl. (2.10) und Gl. (2.11) für die Übergangsrate $P_{ik}(\omega_1)$:

$$P_{ik}(\omega_1) = \frac{\lambda_1^2}{4} \frac{g_k}{g_i} A_{ki} \frac{\sqrt{\pi \ln 2}}{\pi^2 \Delta\nu_L} j_L \quad (2.13)$$

und für die Übergangsrate pro Absorberatom und Laserimpuls :

$$R_{ik}(\omega_1) = \frac{\lambda_1^2}{4} \frac{g_k}{g_i} A_{ki} \frac{\sqrt{\pi \ln 2}}{\pi^2 \Delta\nu_L} \Phi_1 . \quad (2.14)$$

Die volle, spektrale Halbwertsbreite des Lasers wurde mit $\Delta\nu_L$ bezeichnet. In Ref. [62] wird der optische Wirkungsquerschnitt⁶ für den ersten Anregungsschritt mit

$$\sigma_1 = \frac{\lambda_1^2}{4} \frac{g_k}{g_i} A_{ki} \frac{\sqrt{\pi \ln 2}}{\pi^2 \Delta\nu_L} \quad (2.15)$$

bei einer Bandbreite des Anregungslasers von $\Delta\nu_L = 15$ GHz bezeichnet. Nach Gl. (2.14) gilt

$$R_{ik}(\omega_1) = \sigma_1 \Phi_1 \quad (2.16)$$

Für eine resonante Anregung betragen die Wirkungsquerschnitte etwa $10^{-15} \text{ cm}^2 \leq \sigma_1 \leq 10^{-14} \text{ cm}^2$ [62]. Bei der Verwendung z. B. von kontinuierlich durchstimmbaren Farbstofflasern⁷ für die selektive Anregung sind die Impulsphotonenflüsse Φ_1 durch die Photonflüsse Φ_P der Pumplaser und die Konversionseffizienz der Farbstoffe von $\epsilon_k \leq 10\%$ [64, 60] beschränkt :

$$\Phi_1 = \epsilon_k \Phi_P . \quad (2.17)$$

Um den gesamten sichtbaren Wellenlängenbereich durchstimmen zu können, sind Pumpwellenlängen im ultravioletten Bereich erforderlich, die mit Excimerlasern (XeCl, 308 nm; XeF, 351/353 nm) oder der dritten Harmonischen von Nd:YAG-Lasern (355 nm) mit typischen Impulsphotonenflüssen von $\Phi_P = 10^{17}$ Photonen/($\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls}$) bei der Ausleuchtung einer Fläche von 1 cm^2 erzeugt werden können [60, 65], so dass die resonanten Übergänge bei Impulsphotonenflüssen von $\Phi_1 = 10^{16}$ Photonen/($\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls}$) gesättigt werden können. Knapp oberhalb der Ionisationsgrenze ist die Dichte autoionisierender Zustände so hoch, dass selbst die Wirkungsquerschnitte für nicht resonante Anregung $\sigma_2 \leq 10^{-17} \text{ cm}^2$ [62] betragen. Wird ein Teil des intensiven Pumplaserlichtes für die Ionisation verwendet, siehe Abb. 2.7 a), werden typische Ionisationseffizienzen von 10% beobachtet [26].

⁶Der Ansatz einen von der Bandbreite des Lasers abhängigen Wirkungsquerschnitt einzuführen wird auch von anderer Fachliteratur geteilt. In Ref [41] wird der optische Wirkungsquerschnitt mit $\sigma = 3 \frac{\lambda^2}{4} A_{ki} W(\omega_L)$ angegeben. Die spektrale Verteilung des Lasers wird hier mit $W(\omega_L)$ bezeichnet. Eine detaillierte Auswertung der Magnetquantenzustände m_J unter der Annahme, dass keine Mischung dieser Zustände durch Stöße stattfindet, führt dazu, dass der Term $\frac{g_k}{g_i}$ durch die Zahl 3 ersetzt wird, so dass diese Angabe mit der Definition aus Ref. [62] übereinstimmt.

⁷Die Bandbreite ohne Intra Cavity Etalon beträgt typisch $\Delta\nu_L = 8$ GHz [60].

Eine Resonanzionisationswahrscheinlichkeit von 100% kann dagegen sichergestellt werden, wenn der 2. Anregungsschritt in einen autoionisierenden Zustand führt [62], siehe Abb. 2.7 b). Ein weiteres Verfahren ist, wie in Abb. 2.7 c) dargestellt, die Anregung eines hochliegenden Rydbergzustands. Die Ionisation kann dann in einem geeigneten elektrischen Feld geschehen.

Da für das Element Fermium keine atomaren Daten bekannt waren und die limitierte Anzahl der zur Verfügung stehenden Atome eine zweidimensionale Suche ausschließt, wurde das in Abb. 2.7 a) dargestellte, einfach resonante Verfahren gewählt.

2.3.1 Theoretische Niveaurechnungen

Um den Suchbereich für ein resonantes Zwischenniveau einzuengen, wurden Niveaurechnungen mit der Multikonfigurations Dirac-Fock Methode [66] zugrunde gelegt. In den Referenzen [67, 68] wurden die 48 niedrigsten Niveaus des Elements Fermium mit dem Atomic Structure Code [17, 69, 16] berechnet und sind in Tab. 2.1 und Tab. 2.2 aufgeführt. Die Genauigkeit der berechneten Niveaurenergien wurde mit $\Delta\bar{\nu} \approx 2400 \text{ cm}^{-1}$ abgeschätzt.

Da die ab-initio Theorie, in Übereinstimmung mit spektroskopischen Extrapolationen [40], eine $5f^{12}7s^2 \ ^3H_6^e$ Konfiguration als spektroskopischen Grundzustand liefert, können nur Zustände mit Gesamtdrehimpuls $J = 5, 6, 7$ und ungerader Parität über erlaubte elektrische Dipolübergänge angeregt werden. Um die Übergangsraten pro Atom und Laserimpuls R_{ik} abzuschätzen, wurden in Ref. [68] die Einstein-Koeffizienten für spontane Emission A_{ki} nach dem in Referenz [70] beschriebenen Verfahren berechnet. Das Verhältnis der statistischen Gewichte beträgt bei Übergängen von $J_k = 5, 6, 7$ nach $J_i = 6$ $g_k/g_i \approx 1$. Weiterhin beträgt die Breite der spektralen Verteilung des Anregungslasers bei einer Wellenlänge von $\lambda = 400 \text{ nm}$ $\delta\nu_l = 10.6 \text{ GHz}$ (FWHM) [60]. Die Übergangsraten pro Atom und Laserimpuls R_{ik} lässt sich nach Gleichung (2.14) für einen Impulsphotonenfluss $\Phi_1 = 10^{16} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls})$ abschätzen zu

$$R_{ik} = 6 \cdot 10^{-5} \text{ s} \cdot A_{ki} . \quad (2.18)$$

Um Übergangsraten in der Größenordnung von 1 pro Atom und Laserimpuls zu erhalten, sind demnach Einstein-Koeffizienten $A_{ki} \geq 10^4/\text{s}$ erforderlich. Nach Tab. 2.1 und Tab. 2.2 werden die stärksten Übergänge bei den Niveaus 35, 36 und 37 erwartet. Dies sind die einzigen „optischen Übergänge“ mit partiellen Lebensdauern $\tau_{ki} \approx 1 \text{ ns}$, die in den Berechnungen im Energieintervall von 0 cm^{-1} bis 30000 cm^{-1} gefunden wurden. Nach der Abschätzung aus Gl. (2.18) eignen sich jedoch ebenfalls alle anderen in Tab. 2.1 und Tab. 2.2 aufgeführten, nach Spin- und Paritätsauswahlregeln erlaubten, Übergänge für die Resonanzionisation.

Tabelle 2.1: Niveau Energie $\bar{\nu}$, Gesamtdrehimpuls und Parität J^P und Einstein-Koeffizient für spontane Emission A_{ki} . Ebenfalls angegeben ist die Anregungswellenlänge λ_1 . Die Wellenlänge des 2. Schrittes λ_2 basiert auf der Annahme der Ionisationenergie $IP=52400 \text{ cm}^{-1}$ [71, 72]. Die Daten wurden aus den Referenzen [67, 30, 68] zusammengestellt.

No.	$\bar{\nu}$ [cm^{-1}]	J^P	A_{ki} [1/s]	λ_1 [nm]	λ_2 [nm]
1	0	6^+			
2	3992	4^+			
3	12963	5^+			
4	14033	2^+			
5	15145	6^-	$1.97 \cdot 10^5$	660.28	268.42
6	15220	3^-			
7	16023	3^-			
8	16654	6^-	$1.64 \cdot 10^6$	600.46	279.75
9	17010	4^+			
10	17053	8^-			
11	17398	7^-	$4.12 \cdot 10^6$	574.78	285.70
12	17492	5^-	$1.76 \cdot 10^6$	571.69	286.47
13	18108	3^+			
14	18121	4^-			
15	18961	4^-			
16	19058	2^-			
17	19381	3^-			
18	19765	4^-			
19	20236	4^-			
20	21038	5^-	$3.60 \cdot 10^5$	475.33	318.86
21	21291	6^-	$1.03 \cdot 10^5$	469.68	321.45
22	21812	6^-	$5.68 \cdot 10^5$	458.46	326.93
23	21833	7^-	$2.39 \cdot 10^4$	458.02	327.15
24	22137	5^-	$3.74 \cdot 10^5$	451.73	330.44
25	23098	7^-	$8.57 \cdot 10^4$	432.94	341.27
26	23376	4^-			
27	23771	2^-			
28	24513	9^-			
29	24997	8^-			
30	25226	6^-	$1.89 \cdot 10^6$	396.42	368.00
31	25471	5^-	$1.28 \cdot 10^6$	392.60	371.35
32	25506	3^-			
33	25689	2^-			
34	27190	3^-			
35	27394	6^-	$2.43 \cdot 10^8$	365.04	400.00
36	27633	5^-	$1.98 \cdot 10^8$	361.89	403.76
37	27802	7^-	$3.67 \cdot 10^8$	359.69	406.54

Tabelle 2.2: Fortsetzung.

No.	J^P	$\bar{\nu}$ [cm ⁻¹]	A_{ki} [1/s]	λ_1 [nm]	λ_2 [nm]
38	27942	9 ⁻			
39	27973	4 ⁻			
40	28095	3 ⁻			
41	28382	3 ⁻			
42	28422	2 ⁺			
43	28540	5 ⁻	$2.82 \cdot 10^5$	350.39	419.11
44	28566	3 ⁻			
45	28801	8 ⁻			
46	28974	3 ⁻			
47	29359	5 ⁻	$3.58 \cdot 10^7$	340.61	434.01
48	29467	4 ⁺			

Weiterhin wurden in Ref. [67] zwei mögliche Grundzustandskonfigurationen für das einfach ionisierten Fermium Fm II berechnet. Für den Zustand gerader Parität und Gesamtdrehimpuls $J = 13/2$ wurde die Energie 6.15(30) eV berechnet. Diesem Zustand wird die Konfiguration [Rn] 5f¹²7s zugeordnet. Für den Zustand ungerader Parität ergaben die Rechnungen den Gesamtdrehimpuls $J = 15/2$ und die höhere Ionisationsenergie 6.90(30) eV. Aufgrund der höheren Energie kann dieser Zustand, der aus einer Mischung der Konfigurationen [Rn] 5f¹³ und [Rn] 5f¹¹7s² hervorgeht, als Grundzustand des Fm II ausgeschlossen werden. Energetisch kommen beide möglichen Konfigurationen semiempirischen Rechnungen aus den Referenzen [71, 72] nahe, die eine Ionisationsenergie von $IP_{th} = 6.5 \text{ eV} \hat{=} 52400 \text{ cm}^{-1}$ vorhersagen.

2.3.2 Experimentelle Verfahren für die Niveausuche

Die Suche nach atomaren Niveaus kann gezielt nach den berechneten Niveauenergien, siehe Tab. 2.1 und Tab. 2.2, durchgeführt werden. Mit dem zur Verfügung stehenden Excimerlaser (XeF) gepumpten Farbstofflasersystem kann kontinuierlich durchstimmbares Licht für den 1. Anregungsschritt in einem Bereich von $370 \text{ nm} \leq \lambda_1 \leq 960 \text{ nm}$ [64] mit Impulsphotonenflüssen von $\Phi_1 \leq 10^{15}$ Photonen/(cm² · Impuls) erzeugt werden. Ein Teil des Excimerlaser Pumplichtes mit der Wellenlänge $\lambda_2 = 351/353 \text{ nm}$ kann für den zweiten Anregungsschritt verwendet werden. Aufgrund dieser technischen Randbedingungen kann nur nach den Niveaus 30 und 31 aus Tab. 2.1, für die jedoch reduzierte partielle Übergangsraten in den Grundzustand von $A_{ki} = 1.89 \cdot 10^6/\text{s}$ und $1.28 \cdot 10^6/\text{s}$ berechnet wurden, gesucht werden. Wie in Abb. 2.8 a) dargestellt ist, muss der 1. Anregungsschritt für dieses Experiment über einen Energiebereich um 25000 cm^{-1} durchgestimmt werden.

Alternativ dazu kann die Suche nach atomaren Niveaus in Fermium unabhängig von theoretischen Berechnungen, in einem Bereich hoher Niveaudichte durchgeführt werden. Diese nimmt systematisch mit der Hauptquantenzahl n zu. In Rydbergatomen,

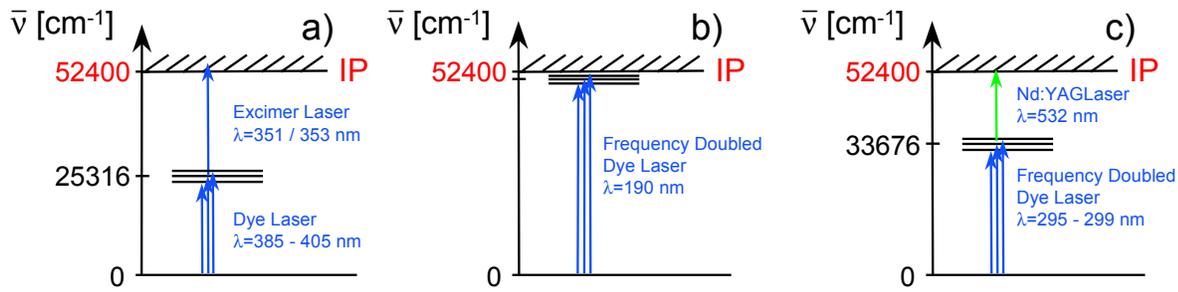


Abbildung 2.8: Anregungsschema zur RIS an Fm. Suche nach den Niveaus 30 und 31 bei den Energien 25226 cm^{-1} und 25471 cm^{-1} (a). Suche nach Rydbergzuständen (b) und Niveausuche im Anregungsenergiebereich um 34000 cm^{-1} (c).

d.h. bei Anregungen knapp unterhalb der Ionisationsgrenze, gilt für den Niveauabstand $dE/dn \propto n^{-3}$ [34]. Bei einem berechneten IP von 52400 cm^{-1} ist für eine einstufige Anregung, durchstimmbares UV-Licht mit einer Wellenlänge um 190 nm erforderlich, s. Abb. 2.8 b). Die Ionisation geschieht dann durch Stöße der hoch angeregten Atome mit Puffergasatomen [73]. Aufgrund der kleinen partiellen Übergangsraten in den Grundzustand A_{ki} dieser Zustände werden Impulsphotonenflüsse von etwa $\Phi_1 = 10^{15} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls})$ benötigt, um die Übergänge zu sättigen [73]. Mit den uns zur Verfügung stehenden Lasersystemen konnte diese Wellenlänge nur nach Frequenzverdopplung mit Impulsphotonenflüssen von $\Phi_1 \leq 5 \cdot 10^{13} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls})$ [74] erzeugt werden, so dass mit Übergangsraten pro Atom und Laserimpuls von $R_{ik} \leq 0.05$ gerechnet werden muss. Da die Nachweiseffizienz der Apparatur proportional zur Übergangsrate R_{ik} ist, wurde dieses Verfahren nicht durchgeführt.

Aus dem Vergleich mit den Lanthanoiden kann abgeschätzt werden, dass die Niveaudichten bereits bei Anregungsenergien um 34000 cm^{-1} gegenüber einer Anregung um 25000 cm^{-1} um einen Faktor zwei erhöht sind [75]. Bei Anregungen in diesen Energiebereich betragen die optischen Wirkungsquerschnitte etwa 10^{-15} cm^2 [76]. Diese Wellenlänge kann ebenfalls mit einem frequenzverdoppelten Farbstofflaser erzeugt werden. Bei der Verwendung der zweiten Harmonischen eines Nd:YAG-Lasers kann bei einem Impulsphotonenfluss von $\Phi \leq 3 \cdot 10^{16} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls})$ [65] UV-Licht mit einer Wellenlänge um 295 nm mit Impulsphotonenflüssen von $\Phi \leq 1 \cdot 10^{15} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \cdot \text{Impuls})$ [74] für den 1. Anregungsschritt erzeugt werden, so dass die Übergangsrate $R_{ik} \approx 1$ abgeschätzt werden kann. Wird ein Teil der Pumplaserwellenlänge von 532 nm für den 2. Schritt verwendet, wird die Energiebilanz $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 \geq \text{IP}$ genau erfüllt, s. Abb. 2.8 c).

Aufgrund der abgeschätzten Übergangsraten pro Atom und Laserimpuls von $R_{ik} \approx 1$ stellen die beiden in Abb. 2.8 a) und c) dargestellten Anregungsschemata erfolgversprechende Verfahren für die Niveausuche in Fermium dar.

Kapitel 3

Der experimentelle Aufbau

Im folgenden Kapitel wird der experimentelle Aufbau zur Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle, bestehend aus der Nachweisapparatur, zwei Lasersystemen, dem Datenaufnahmesystem und der Experimentsteuerung, beschrieben.

3.1 Die Apparatur zur Resonanzionisationsspektroskopie

Die Apparatur ist den Referenzen [26, 27] detailliert beschrieben und wurde für die Resonanzionisationsspektroskopie am Isotop ^{255}Fm erweitert. Der Aufbau ist in Abb. 3.1 dargestellt. Bei einem Druck von etwa 20 mbar bis 60 mbar in der Puffergaszelle können Atome von einem Filament durch elektrisches Heizen freigesetzt werden. Werden elektrochemisch hergestellte Filamente, s. Kapitel 5.1, eingesetzt, beträgt der Heizstrom für Filamenttemperaturen von 900 °C bis 1300 °C etwa 15 A bis 20 A. Die Atome bleiben für etwa 40 ms [26] im Puffergas gespeichert, bevor sie durch thermische Konvektion und Diffusion aus dem Speichervolumen verloren gehen. Dies ermöglicht den Einsatz eines gepulsten Lasersystems, bestehend aus einem Excimer Pumplaser (Lambda Physik EMG104) mit einer Repetitionsrate von < 500 Hz und einem verstimmbaren Farbstofflaser (Lambda Physik FL2002), zur Resonanzionisation. Das Speichervolumen kann mit dem Laserlicht durch zwei Quarzfenster ausgeleuchtet werden. Senkrecht zur in Abb 3.1 dargestellten Bildebene sind an der optischen Zelle zwei lichtdichte Titanfolien mit einer Massenbelegung von 1.8 mg/cm^2 angebracht. Vom Fm-Filament emittierte α -Teilchen können durch diese Austrittsfolien hindurchtreten und mit einem geometrischen Raumwinkelement von jeweils $\Omega/(4\pi) = 4.5 \cdot 10^{-3}$ von zwei Halbleiterzählern (Schlumberger LEC 500-4000) nachgewiesen werden. Da sowohl die Laserfenster, als auch die Austrittsfolien mit Vitonringen abgedichtet sind, darf die Zelltemperatur 180 °C nicht überschreiten. Dazu wurde eine Kühlung der Filamenthalterung mit Druckluft erforderlich. Von Außen an der Zelle angebrachte Temperaturfühler (PT100, Thermocouple K) ermöglichen die Bestimmung der Temperatur. Im Vergleich zu herkömmlichen IGISOL-Apparaturen, bei denen der Transport der Ionen aus der Zelle ausschließlich durch den Gasstrom bewirkt wird, driften die Ionen in dieser Zelle in elektrischen

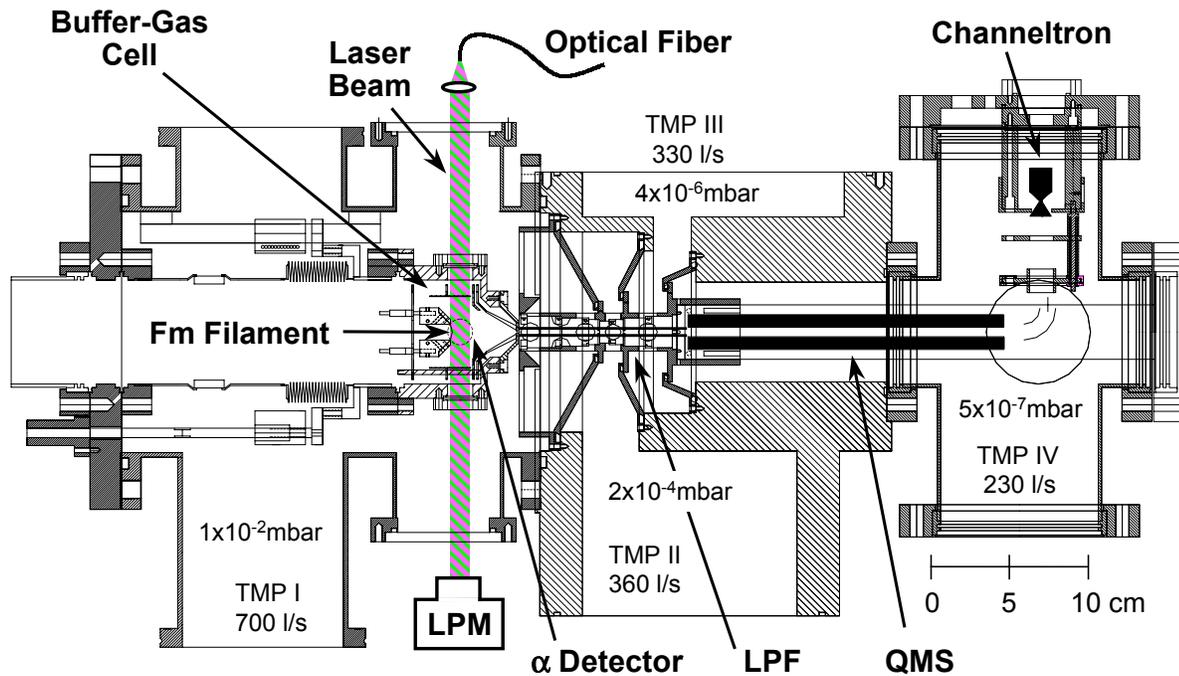


Abbildung 3.1: Apparatur zur Resonanzionisationsspektroskopie (RIS) an Fermium. Die vom Filament abgedampften Fm-Atome werden mit zwei Laserstrahlen resonant ionisiert, die Ionen mit elektrischen Feldern aus der Zelle ausgespült, über die differentielle Pumpstrecke mit einer linearen Paul-Falle (LPF) in das Quadrupol Massenspektrometer (QMS) geführt und danach mit einem Channeltron-Detektor nachgewiesen.

Feldern, die durch geeignete Elektrodensysteme erzeugt werden, s. Kapitel 3.1.1. Erst kurz vor der Austrittsdüse werden die Ionen vom Gasstrom erfasst und ausgespült. Mit Hilfe einer segmentierten linearen Paul-Falle (LPF) und Skimmern werden die Ionen vom Puffergas getrennt, in einem Quadrupol Massenspektrometer (Balzers QMG 311) massenselektiert und direkt mit einem Channeltron-Detektor nachgewiesen. Bei einem Düsendurchmesser von 1 mm und Argon als Puffergas können Pumpen mit relativ geringem Saugvermögen verwendet werden. Die Apparatur zeichnet sich somit durch ihre kompakte Bauweise aus. Um Molekülbildungen in der differentiellen Pumpstrecke zu vermeiden, wird die Apparatur von vier Turbomolekularpumpen (TMP I-IV) mit ölfreien Vorpumpen evakuiert. Die Weiterentwicklung der in einer Diplomarbeit [77] aufgebauten linearen Paul-Falle für den Transport der Ionen durch die differentielle Pumpstrecke wird in Kapitel 3.1.2 dargestellt.

Der experimentelle Aufbau wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit für die on-line Laserspektroskopie am Isotop ^{251}Fm , die in Anhang B dargestellt ist, ausgebaut.

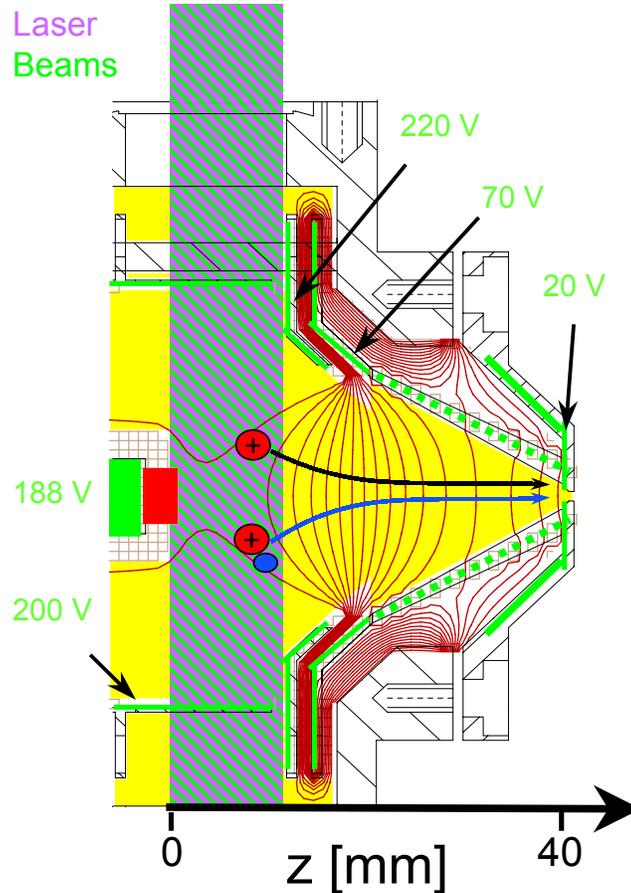


Abbildung 3.2: Die optische Zelle. Die vom Filament freigesetzten Atome werden in dem vom Laser ausgeleuchteten Bereich ionisiert und driften entlang der elektrischen Feldlinien zur Düse.

3.1.1 Die optische Zelle

Die optische Puffergaszelle für die Resonanzionisationsspektroskopie ist in Abb. 3.2 dargestellt. Die parallel eingestrahelten Laserstrahlen leuchten eine Fläche mit einem Durchmesser von 1.5 cm^2 vor dem Filament aus. Nach der Resonanzionisation driften die Ionen entlang elektrischer Feldlinien zur Düse und werden mit einer Verzögerung von rund 1 ms aus der Zelle extrahiert. Diese Zeit ist kurz im Vergleich zu der Zeit für den Gasaustausch der optischen Zelle von etwa 400 ms . Daher ermöglicht die Messung der Zeitverzögerung $T = \int_S ds/v_D(s) = \frac{1}{K} \int_S ds/E(s)$ prinzipiell die Bestimmung der Ionenmobilität K , sofern das Integral $\int_S ds/E(s)$ entlang der Trajektorie s bekannt ist. Die instantane Ionen-Driftgeschwindigkeit am Ort s der Trajektorie wird mit $v_D(s) = K \cdot E(s)$ bezeichnet. Um das elektrische Feld $E(s)$ zu bestimmen wurde der Potentialverlauf $\Phi(z)$ auf der Symmetrieachse der optischen Zelle mit dem Programm SIMION 7 [78] für die verwendete Elektrodengeometrie numerisch berechnet. Der Verlauf ist in Abb. 3.3 dargestellt. Über die Beziehung

$$\vec{E}(s) = -\frac{d\Phi(z)}{dz} \vec{e}_z \quad (3.1)$$

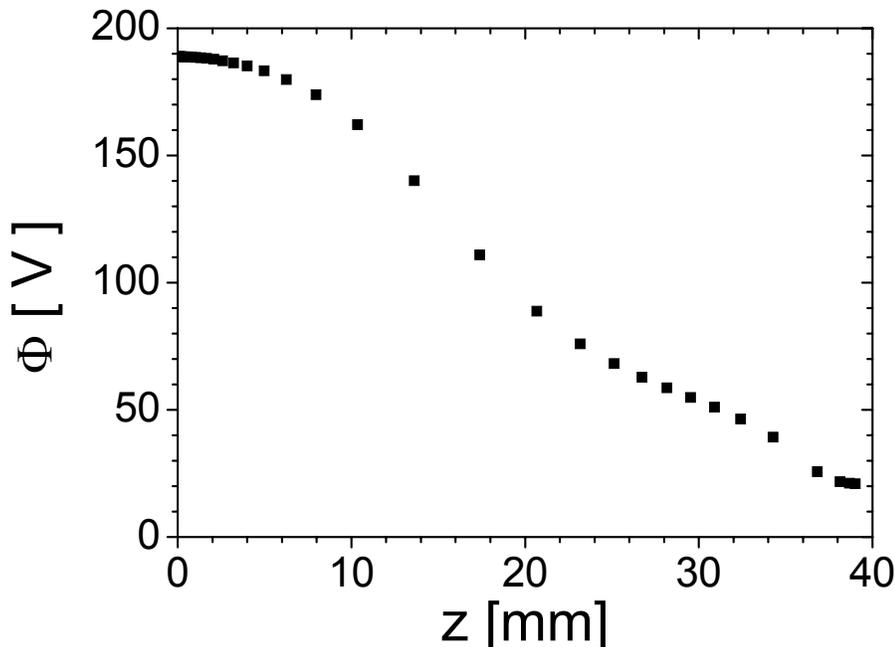


Abbildung 3.3: Potentialverlauf auf der Symmetrieachse der Puffergaszelle. Das Filament befindet sich bei $z = 0$ mm und die Düse bei $z = 39$ mm.

wurde dann die Größe $\int_S ds/E(s)$ bestimmt. Entlang der Strecke $S = 3.9$ cm vom Ionisationsort zur Düse beträgt die mittlere Feldstärke $\bar{E} = \frac{S}{\int_S ds/E(s)} = 25.6$ V/cm. Die Transportzeit von der Düse zum Channeltron-Detektor ist kleiner als $100 \mu\text{s}$ und kann vernachlässigt werden.

3.1.2 Die lineare Paul-Falle für den Ionentransport

Bei den in Kapitel 4.1 beschriebenen Testexperimenten mit der zum Ionentransport entwickelten linearen Paul-Falle [77] wurde eine große Anzahl von Ionenmassen beobachtet, die keinen mono-atomaren Ionen zugeordnet werden konnten. Die langen Transportzeiten dieser Massen durch die Paul-Falle, die bis zu 272 ms betragen, wurden auf Diffusion der Ionen durch das Restgas in der Falle zurückgeführt. Um diese Zeiten zu verkürzen wurde die Paul-Falle in 6 Segmente unterteilt und elektrische Felder zwischen zwei benachbarten Segmenten angelegt. Ein Schnitt durch einen der vier segmentierten Stäbe der Paul-Falle ist in Abb. 3.4 abgebildet.

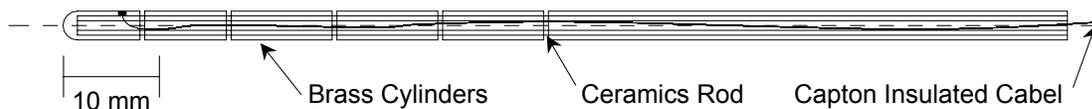


Abbildung 3.4: Segmentierter Stab der linearen Paul-Falle. Insgesamt 6 Messinghülsen mit einem Außendurchmesser von 3 mm sind auf einem Keramikröhrchen befestigt. Der Abstand zwischen zwei Segmenten beträgt 0.5 mm. Jedes Segment wird einzeln mit einem Capton isolierten Kabel elektrisch kontaktiert.

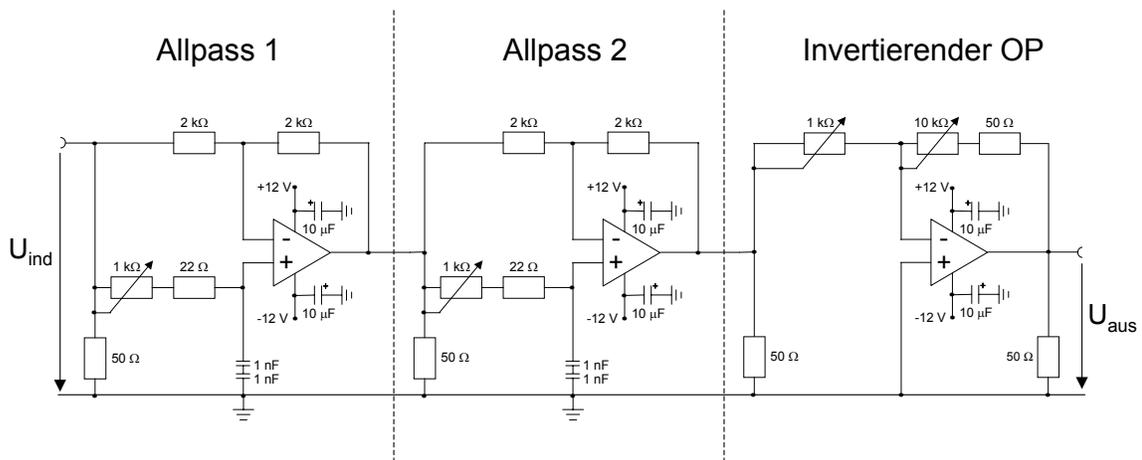


Abbildung 3.5: Phasenschieber. Das Eingangssignal U_{ind} wird über zwei Allpassfilter verzögert und in einer invertierenden Operationsverstärkerschaltung verstärkt. Das Ausgangssignal U_{aus} wird in einem Breitbandverstärker verstärkt und zur Erregung des Resonanzkreises, s. Abb. 3.6, verwendet.

Um Verluste beim Übergang der Ionen von Paul-Falle zum Massenfilter zu vermeiden, siehe z. B. Referenz [77], wird die hochfrequente Wechselspannung der Paul-Falle U_{HF} mit der des Massenfilters U_{QMS} phasengekoppelt. Dazu wird die Wechselspannung U_{ind} über einen induktiven Abgriff von der HF-Wechselspannung U_{QMS} erzeugt. Die Phase zwischen U_{QMS} und U_{HF} kann mit zwei Allpässen zwischen 0° und 350° eingestellt werden. Die Schaltung ist in Abb. 3.5 dargestellt. Über eine invertierende Operationsverstärker Schaltung kann die Ausgangsamplitude variiert werden bevor das Signal mit einem Breitbandverstärker (ENI 340L) verstärkt wird.

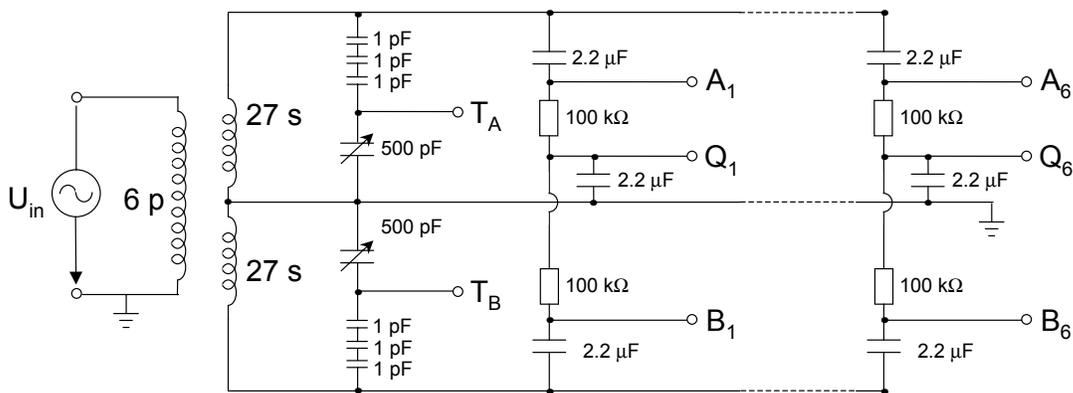


Abbildung 3.6: Resonanzkreises der linearen Paul-Falle. Die unipolare Eingangsspannung U_{in} wird mit einem Transformator in eine bipolare Wechselspannung umgewandelt und kapazitiv in das segmentierte Stabsystem der Paul-Falle eingekoppelt (A_{1-6} , B_{1-6}). Die Gleichspannungspotentiale werden über 6 Versorgungsspannungen Q_{1-6} eingestellt. Über einen kapazitiven Spannungsteiler wird die Amplitude der Ausgangsspannung U_{HF} auf $1/1000 U_{HF}$ reduziert (T_A , T_B) und mit einem Oszilloskop dargestellt.

Die resultierende Wechselspannung U_{in} dient zur Erregung eines Resonanzkreises, s. Abb. 3.6, in dem die einzelnen Segmente der linearen Paul-Falle die Kapazitäten darstellen. Die Gleichspannungspotentiale der Segmente können über 6 Spannungsversorgungen Q_{1-6} eingestellt werden. Die HF-Wechselspannung U_{HF} wird dabei den statischen Potentialen durch kapazitive Einkopplung überlagert.

3.2 Die Lasersysteme

Für die Resonanzionisation an Fermium wurden zwei durchstimmbare Lasersysteme eingesetzt. Für eine Grundzustandsanregung um 25000 cm^{-1} wurde ein Excimerlaser gepumpter Farbstofflaser verwendet. Gleichzeitig wurde mit einem frequenzverdoppelten, Nd:YAG-Laser gepumpten Farbstofflaser nach atomaren Niveaus im Energiebereich um 33500 cm^{-1} gesucht.

3.2.1 Das Excimerlaser gepumpte Farbstofflasersystem

Für die Resonanzionisationsspektroskopie im Wellenlängenbereich um 400 nm wurde ein Excimerlaser (Lambda Physik, EMG MSC 104) gepumpter Farbstofflaser (Lambda Physik, FL 2001) verwendet. Der Aufbau ist in Abb. 3.7 dargestellt. Der Excimerlaser wurde mit dem Gasgemisch XeF betrieben und erzeugt UV Licht mit den Wellenlängen 351 nm und 353 nm , ein Wellenlängenspektrum ist in Referenz [79] abgebildet. Die maximale Repetitionsrate des Lasers beträgt 500 Hz . Bei einer Wiederholfrequenz von 200 Hz beträgt die Energie in einem Impuls der Dauer $t_0 = 15 \text{ ns}$ etwa 50 mJ . Bei Wellenlängen um 400 nm hat der Farbstofflaser eine spektrale Linienbreite von 8 GHz . Das wellenlängenselektive Gitter des Farbstofflasers wurde über ein Schrittmotormodul (E-Labor, GDF-70216) von einem PC mit dem Programm "Laser" [80] angesteuert. Ein Schritt des Schrittmotors S_λ entspricht einer Wellenlängenänderung von $\Delta\lambda = \frac{0.0042 \text{ nm}}{O_g} S_\lambda$. Für die im Folgenden beschriebenen Experimente wurde das Gitter in der Ordnung $O_g = 7$ betrieben.

Beide Laserstrahlen für Grundzustandsanregung und Ionisation werden gemeinsam über eine optische Quarzglasfaser mit einem Durchmesser von $500 \mu\text{m}$ und einer Länge von 12 m zum Experiment geleitet. Aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindizes von Quarzglas für die Wellenlänge des 1. Anregungsschrittes von 400 nm , $n_{blau} = 1.47$ [81], und des 2. Anregungsschrittes von $351/353 \text{ nm}$, $n_{UV} = 1.48$ [81], ergibt sich ein Laufzeitunterschied in der optischen Faser von $\Delta t = t_{UV} - t_{blau} = 0.4 \text{ ns}$. Durch die Verzögerung des 2. Schrittes wird die Reihenfolge der Anregung definiert. Der zeitliche Überlapp der beiden Laserimpulse von etwa 14 ns ermöglicht eine Ionisationseffizienz von $\epsilon_i = 1$, sofern beide Übergänge gesättigt werden können.

Mit einer Linse der Brennweite $f = 2 \text{ cm}$ wird ein paralleler Lichtstrahl mit einem Durchmesser von 14 mm erzeugt, mit dem das Speichervolumen vor dem Filament ausgeleuchtet wird. Die Intensität des Farbstofflasers wurde mit Abschwächern, die in den Strahlengang gebracht werden können, variiert. Zur Intensitätsbestimmung wurde

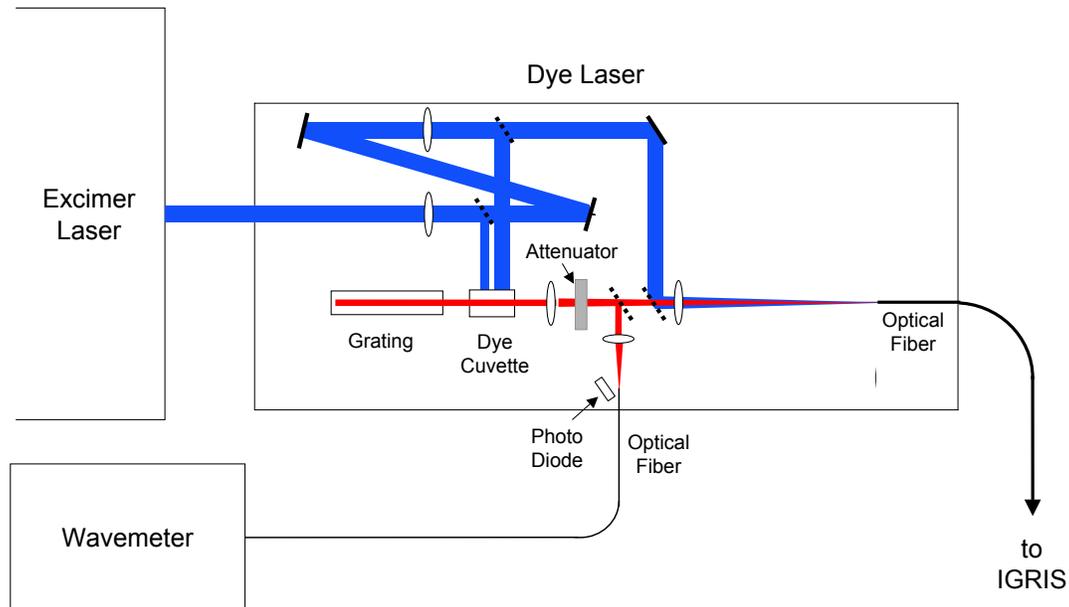


Abbildung 3.7: Excimerlasersystem zur RIS an Fm. Etwa 10% der Excimerlaserintensität (351/353 nm, 50 mJ/Impuls) wurden zusammen mit dem Farbstofflaserlicht (386 nm - 405 nm, 600 μ J/Impuls) in eine optische Faser mit dem Durchmesser 500 μ m eingekoppelt und zum Experiment transportiert. Zur Wellenlängenbestimmung wurde ein Teil des Farbstofflaserlichtes über ein Glasplättchen ausgekoppelt und mit einer zweiten optischen Faser mit dem Durchmesser 100 μ m zu einem Wavemeter (Atos, LM-007) geleitet.

eine Photodiode mit Streulicht des abgeschwächten Laserstrahls beleuchtet und das Signal über einen ADC (Ortec AD 413) in die Datenaufnahme eingelesen. Die absolute Laserleistung wurde am Experiment mit einem bolometrischen Messkopf (PEM 150) bestimmt. Der Detektor hat eine aktive Fläche von 3 cm² und erzeugt Spannungsimpulse mit einer Amplitude von 150 mV/mJ.

3.2.2 Das Nd:YAG-Laser gepumpte Farbstofflasersystem

Für die Resonanzionisationsspektroskopie im Wellenlängenbereich um 300 nm wurde ein Nd:YAG-Laser (Continuum, Powerlite 8050) gepumpter, frequenzverdoppelter Farbstofflaser (Lambda Physik, FL 2001) verwendet. Der Aufbau ist in Abb. 3.8 dargestellt. Die Repetitionsrate des Nd:YAG-Lasers beträgt 50 Hz. Das Laserlicht der zweiten Harmonischen (532 nm) mit einer Impulsenergie von 300 mJ/Impuls wurde zum Pumpen des Farbstofflasers verwendet. Mit dem Farbstoff Rhodamine 6G wurde Laserlicht mit einer Wellenlänge um 600 nm und einer Impulsenergie von 2 mJ/Impuls erzeugt. Das Licht wurde mit einem BBO-Kristall frequenzverdoppelt und zusammen mit einem Teil des Pumplichtes in die Apparatur geleitet. Über eine Verzögerungsstrecke wurde dabei das Pumplicht für den 2. Anregungsschritt um 5 ns gegenüber dem UV-Licht des 1. Schrittes verzögert um die Reihenfolge der Anregung zu definieren. Die Frequenzverdopplungseinheit wurde im Rahmen einer Diplomarbeit [74] aufgebaut. Zum Durch-

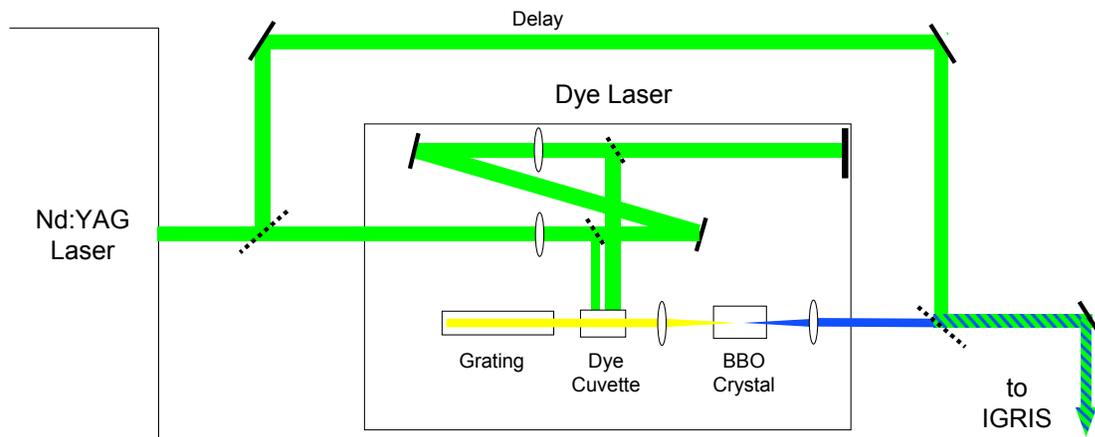


Abbildung 3.8: Lasersystem zur RIS an Fm. Etwa 3% der Nd:YAG-Laserintensität (532 nm, 8 mJ/Impuls) wurden mit einem Strahlteiler vor dem Farbstofflaser ausgekoppelt und über Spiegel zusammen mit dem frequenzverdoppelten Farbstofflaserlicht (290 nm-300 nm, 200 μ J/Impuls) zum Experiment gelenkt.

stimmen der Laserwellenlänge kann die Stellung des wellenlängenselektiven Gitters und des BBO Kristalls simultan verändert werden. Das System wird über ein Schrittmotormodul (E-Labor, GDF-70216) von einem PC mit dem Programm “Laser 6” [74] angesteuert. Ein Schritt des Schrittmotors S_λ entspricht einer Wellenlängenänderung von $\Delta\lambda = \frac{0.0042 \text{ nm}}{O_g} S_\lambda$. Für die im Folgenden beschriebenen Experimente wurde das Gitter in der Ordnung $O_g = 5$ betrieben.

Beide Lasersysteme wurden zeitlich so synchronisiert, dass auf jeden Nd:YAG-Laserimpuls vier Excimerlaserimpulse folgten. Aufgrund der zeitlichen Abfolge, die in Abb. 3.9 dargestellt ist, lassen sich die im Zähler nachgewiesenen Ereignisse eindeutig den einzelnen Laserimpulsen zuordnen, siehe Kapitel 4.

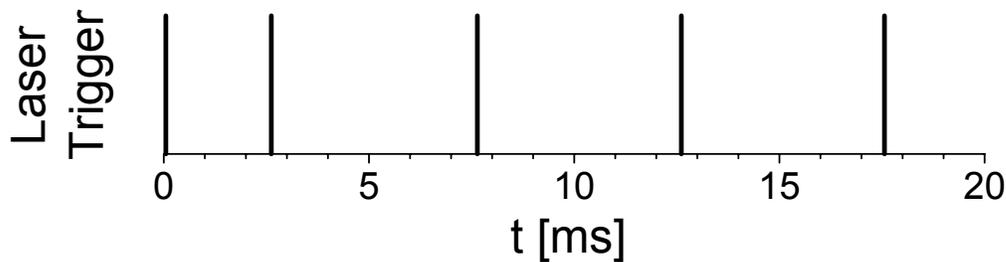


Abbildung 3.9: Zeitabfolge der Laserimpulse. Der Nd:YAG-Laserimpuls kommt bei $t=0$ ms und die Excimerlaserimpulse bei $t=2.62$ ms, 7.64 ms, 12.61 ms und 17.56 ms.

Tabelle 3.1: Technische Daten des Spektrometers (ATOS LM-007) [82].

No.	Freier Spektralbereich	Auflösung	Finesse
1	1000 cm^{-1}	33.3 cm^{-1}	15
2	50 cm^{-1}	2.5 cm^{-1}	10
3	2.7 cm^{-1}	0.14 cm^{-1}	10
4	0.127 cm^{-1}	0.01 cm^{-1}	10

3.3 Das Spektrometer zur Wellenlängenbestimmung

Zur Bestimmung der absoluten Wellenlänge der Farbstofflaser wurde ein kommerzielles Wellenlängenmessgerät (ATOS LM-007) [82] verwendet. Dieses optische Spektrometer besteht aus insgesamt vier Etalons, deren technische Daten in Tab. 3.1 aufgeführt sind. Werden alle vier Etalons ausgeleuchtet, beträgt die Genauigkeit 0.003 cm^{-1} . Da die Bandbreite der Farbstofflaser $\delta_l = 0.28 \text{ cm}^{-1}$ (FWHM) betrug, konnte Etalon 4 mit einem freien Spektralbereich von 0.127 cm^{-1} nicht verwendet werden. Die Genauigkeit des Spektrometers beträgt in diesem Fall etwa 0.042 cm^{-1} . Dieser Wert ist im Einklang mit beobachteten Fluktuationen von 0.04 cm^{-1} in der Anzeige des Messgerätes bei einer konstanten Wellenlänge von 400 nm. In den Experimenten an Erbium, s. Kapitel 4, wurde jedoch beobachtet, dass die vom Spektrometer angezeigte Anregungsenergie um etwa 0.2 cm^{-1} von den tabellierten Niveauenergien abweicht. Es wird angenommen, dass diese Abweichung auf eine mangelnde absolute Eichung des Wellenlängenmessgerätes zurückzuführen ist. Diese Unsicherheit in der Wellenlängenbestimmung wird im Folgenden als systematischer Fehler $\Delta\lambda_{\text{sys}} = \pm 0.2 \text{ cm}^{-1}$ berücksichtigt.

3.4 Datenaufnahme

Mit Hilfe eines Event-by-Event Datenaufnahmesystems des Typs CAMAC wird jedem registrierten Ion eine Masse m , eine Ankunftszeit t_a und die Schrittmotorposition S_λ des Wellenlängenselektiven Gitters des Farbstofflasers zugeordnet. Das Blockschaltbild der Datenaufnahme ist in Abb. 3.10 dargestellt.

Die Signale des Channeltron-Detektors, dessen Funktionsweise in Referenz [83] beschrieben ist, werden kapazitiv ausgekoppelt. Ein Linear Fan-in/Fan-out Modul dient als Impedanzwandler. In einem Diskriminator, der niederenergetische Störimpulse unterdrückt, wird das analoge Signal in einen NIM-Impuls mit einer Breite von $1 \mu\text{s}$ umgewandelt und verzweigt. Ein Zweig dient zur Darstellung der Zählrate mit einem Ratemeter. Ein anderer Zweig wird mit einem Delay/Gate Generator in einen $10 \mu\text{s}$ breiten TTL-Impuls konvertiert und als Gate-Signal für ein Linear Gate Stretcher Modul verwendet. Liegt ein Gate-Signal an, wandelt dieses Modul das Gleichspannungssignal des Quadrupolmassenfilters, dessen Amplitude proportional zur eingestellten Ionen Masse ist, in einen Spannungsimpuls gleicher Amplitude und $7 \mu\text{s}$ Breite um. Dieses Signal wird von einem ADC in das CAMAC System eingelesen. Ein ADC Kanal

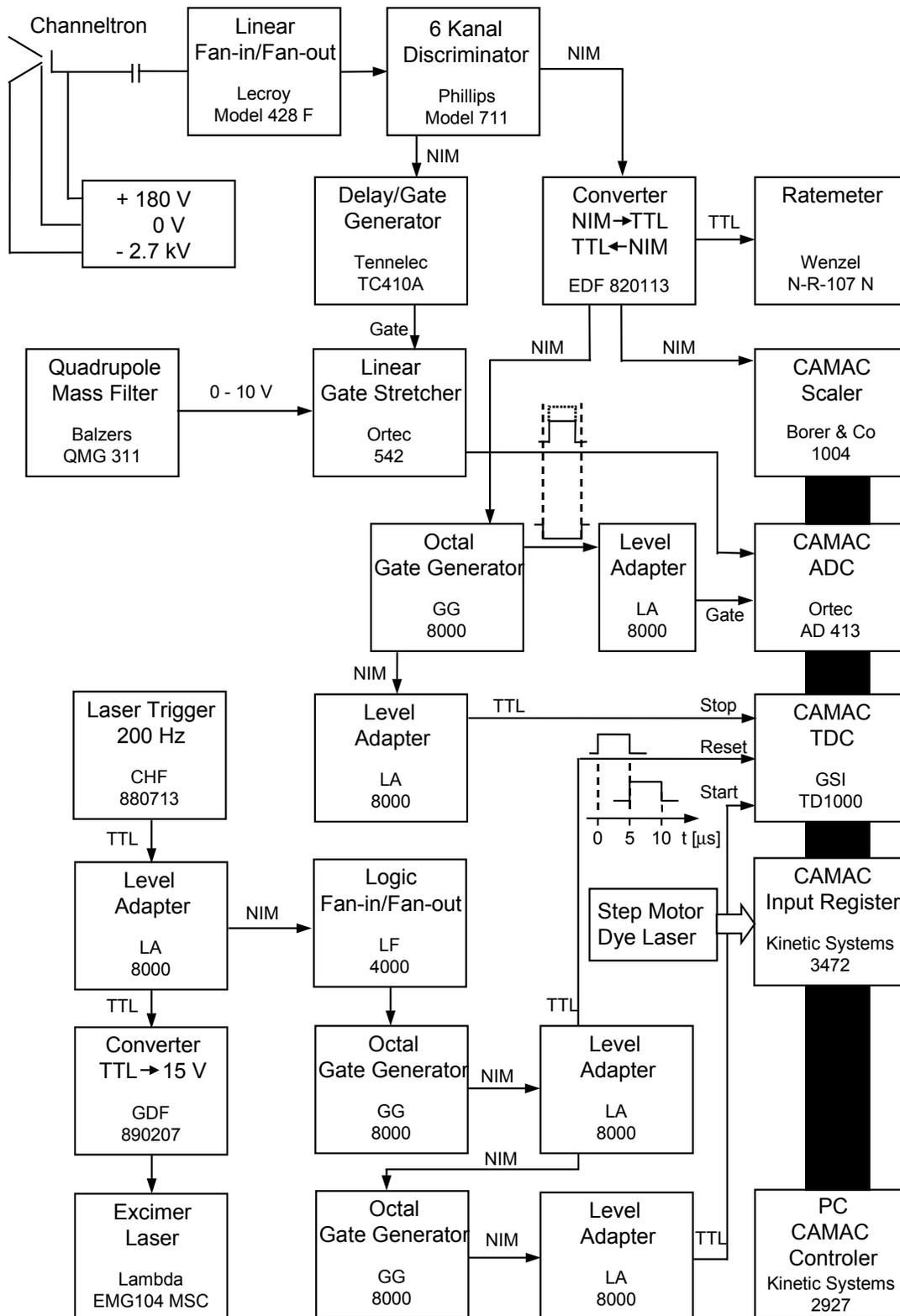


Abbildung 3.10: Blockschaltbild der Datenaufnahme, die mit der Software Routine *Besser Als CAMDA (BAC)* [84] ausgelesen wurde.

S_m entspricht einer Massendifferenz von $1/25$ u. Ein weiterer Zweig des ursprünglichen NIM-Signals wird dazu als Auslese-Gate (Look At Me-Signal) verwendet. Liegt das LAM-Signal an, werden alle CAMAC Module ausgelesen. Es wird in einem Gate-Generator in ein $9 \mu\text{s}$ breites Signal verwandelt und um etwa 500 ns verzögert, so dass dieses Signal in zeitlicher Überdeckung mit dem ADC-Eingangssignal ist.

Die ADC Konvertierungszeit von $10 \mu\text{s}$ limitiert die Datenaufnahmerate auf $\leq 10^5/\text{s}$. Daher wird ein weiterer Zweig des NIM-Signals von einem Zähler in das CAMAC System eingelesen. Die Zuordnung von m , t_a und S_λ zu diesen Ereignissen geschieht beim nachfolgenden LAM-Signal. Die Zeitaufösung der Zähler-Ereignisse ist dadurch auf $\Delta t_a = 10 \mu\text{s}$ beschränkt. Bei typischen Durchstimmgeschwindigkeiten des Lasers von 10 Kanäle/s und des Massenfilters von 2.3 Kanäle/s führt dies zu einer Ungenauigkeit der Zuordnung von S_m und S_λ , von $\Delta S_m = 2.3 \cdot 10^{-5} \text{ Kanäle}$ bzw. $\Delta S_\lambda = 10^{-4} \text{ Kanäle}$ und ist damit vernachlässigbar.

Die Repetitionsrate des Excimerlasers ist im Bereich von 0 Hz bis 500 Hz variable und beträgt typisch 200 Hz . Das TTL-Trigger-Signal wird in einem Impulsgenerator erzeugt und verzweigt. Ein Zweig wird in ein 15 V Signal umgewandelt, mit dem die Lasersteuerung angesprochen wird. Ein anderer Zweig dient zur Synchronisation der Zeitmessung mit einem TDC. Bei jedem Laserimpuls wird die Zeit zunächst auf Null gesetzt (Reset) und dann die Zeitmessung gestartet (Start). Die erforderliche Verzögerung dieser beiden Impulse wird mit zwei Gate-Generatoren eingestellt. Durch ein Signal des Channeltron-Detektors wird die Zeitmessung gestoppt (Stop) und der Inhalt des TDC-Registers beim nächsten LAM-Signal ausgelesen.

Die Position des Wellenlängenselektiven Gitters des Farbstofflasers liegt als parallele Zahl am Eingang eines Input Registers an und wird bei jedem LAM-Signal ausgelesen.

3.5 Experimentsteuerung

Der Aufbau der Apparatur am Tandembeschleuniger des MPI-K erforderte aufgrund des n- und γ -Strahlungsuntergrundes bei on-line Experimenten eine Fernsteuerung der Apparatur. Dafür wurden die Spannungsversorgungen (GAN 940539, GAN 920611) für die elektrostatischen Elektroden in der Zelle und die Paul-Fallen Segmente so umgebaut, dass die Ausgangsspannungen wahlweise über Potentiometer im Modulgehäuse oder über eine analoge Steuerspannung eingestellt werden können. Weiterhin musste der Quadrupolmassenfilter ferngesteuert werden. Das Steuergerät QMG 311 weist bereits herstellerseitig die Möglichkeit zur Ansteuerung mit einer analogen Steuerspannung von 0 V bis 10 V auf.

Über eine 16 Kanal DAC-Karte (National Instruments, PCI 6704) können Spannungen von -10 V bis $+10 \text{ V}$ in Schritten von etwa 0.3 mV (16 bit) von einem PC ausgegeben werden, der zur Unterdrückung von Störsignalen direkt an der Apparatur aufgebaut ist (Ausgaberechner). Von einem weiteren Computer (Eingaberechner), der im Kontrollraum des MPI-K aufgebaut ist, werden Befehle über ein Computernetzwerk (Ethernet) auf den Ausgaberechner übertragen.

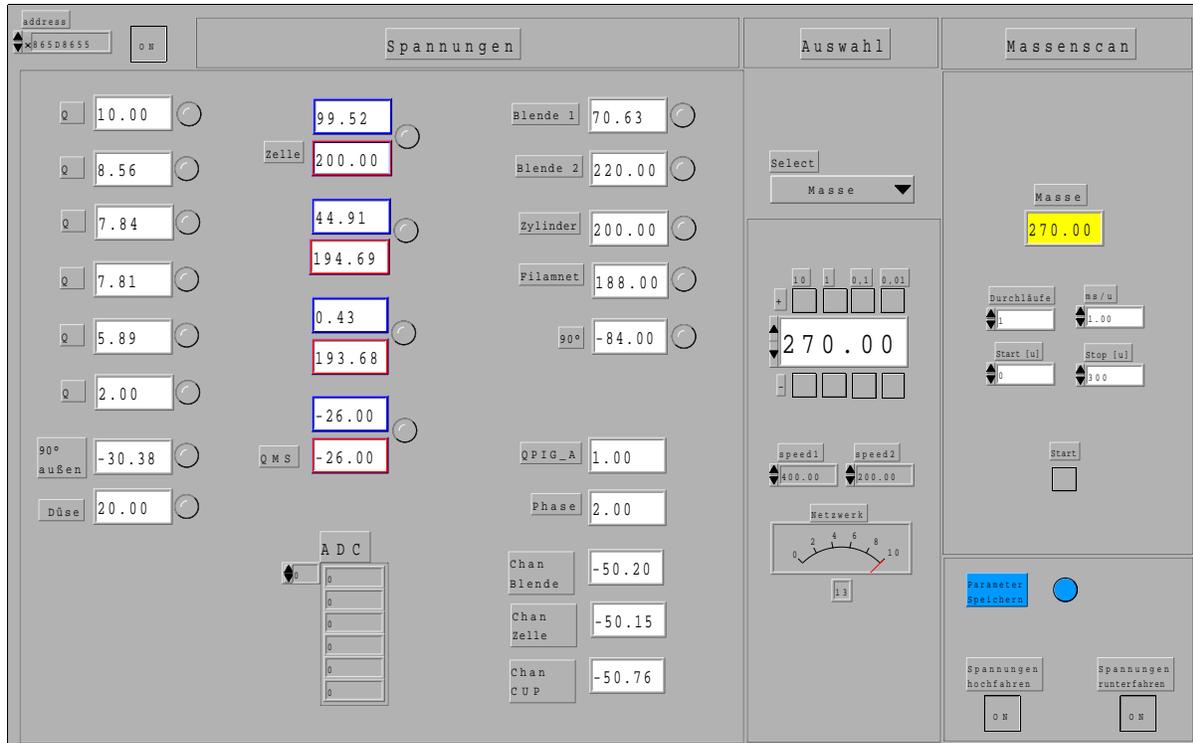


Abbildung 3.11: Benutzerschnittstelle der Experimentsteuerung.

Die Eingabe Routine zur Experimentsteuerung wurde mit dem Softwarepaket LabView (National Instruments) erstellt und ist in Abb. 3.11 dargestellt. Für die Optimierung von 16 Spannungen war eine schnelle Übermittlung der kodierten Befehle an den Ausgaberechner erforderlich. Dafür wurde ein TCP/IP ähnliches Netzwerkprotokoll entwickelt. Die Befehlseingabe geschieht wahlweise über Tastatur, Maus oder über zwei Drehknöpfe. Die Auslese dieser Knöpfe geschieht durch Inkrementalgeber (Hewlett Packard, HEDS-5700), die über eine Zählerkarte (Adidata, APCI 1710) in den Computer eingelesen werden.

Zum Empfang der Befehle und zur Ansteuerung der DAC-Karte wurde auf dem Ausgaberechner ebenfalls das Softwarepaket LabView verwendet. Um das Zünden von Gasentladungen beim Einstellen der Spannungen anzuzeigen, wurden optische Stromflusskontrollen der Spannungsversorgungen über digitale Eingaberegister in den Ausgaberechner eingelesen und an den Eingaberechner übertragen. Diese Kontrollen werden als runde Anzeigefelder neben jeder Spannung ausgegeben und leuchten rot auf, sobald ein Strom fließt. Da beim Zünden von Entladungen Material vom Target oder Filament durch abspattern verloren gehen kann, werden alle Spannungen von der Software Routine langsam hoch bzw. runter gefahren.

Kapitel 4

Vorexperimente

4.1 Testmessungen mit der linearen Paul-Falle

In einem Testexperiment wurde die Verweildauer von Ionen in der zum Ionentransport entwickelten, linearen Paul-Falle [77] bestimmt. Bei dem Experiment wurde die in Ref. [49] beschriebene, für on-line Experimente entwickelte Puffergaszelle verwendet. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 4.1 dargestellt. Dem Argon-Puffergas wurde bei einem Druck von 40 mbar 2 mbar Xe beigemischt. Zur Erzeugung von Ionen wurde eine ^{241}Am - α -Quelle so vor einer Ti-Eintrittsfolie mit der Massenbelegung 1.8 mg/cm^2 angebracht, dass ein Teil der α -Teilchen in die Zelle emittiert wurde.

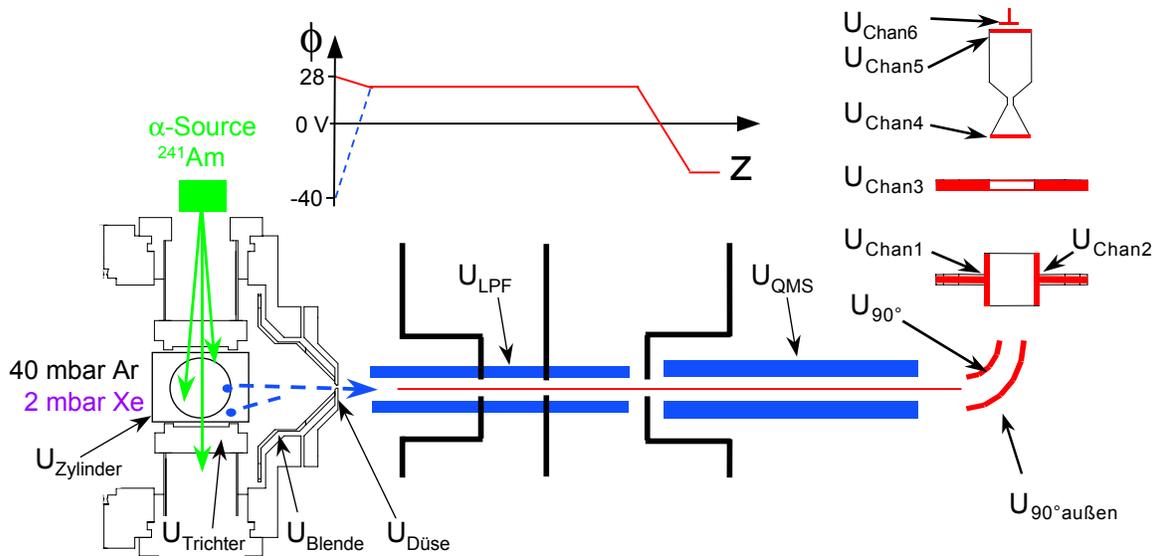


Abbildung 4.1: Aufbau zur Bestimmung der Transportzeit. Das Gleichspannungspotential der Düse U_D wurde mit einer Frequenz von 0.5 Hz zwischen 28 V zu t_1 und -40 V zu t_2 umgeschaltet.

Tabelle 4.1: Spannungen im Testexperiment mit Xenonionen. Die HF-Amplitude der Paul-Falle ist an die Amplitude des Massenfilters gekoppelt und beträgt 140 V bei 166 u.

U_{Zelle} 150.00 V	$U_{Trichter}$ 210.00 V	$U_{Zylinder}$ 210.00 V	U_{Blende} 200 V	U_{Duese} 28.00 V
U_{LPF} 20 V	U_{QMS} -26.00 V	U_{90° -84.00 V	$U_{90^\circ \text{au\ss}en}$ -30.38 V	U_{Chan1} -50.15 V
U_{Chan2} -50.76 V	U_{Chan3} -50.20 V	U_{Chan5} -2.70 kV	U_{Chan5} 0.00 V	U_{Chan6} -200.00 V

Die zum Transport der Ionen verwendeten Spannungen sind in Tab.4.1 aufgeföhrt. Im Massenspektrum, dass in Abb. 4.2 dargestellt ist, sind neben den Xe-Ionenmassen, die entsprechend ihrer natürlichen Häufigkeit nachgewiesen wurden, weitere Massen zu erkennen, die auf ionisierte Kohlenwasserstoffketten zurückgeföhrt wurden.

Für die Bestimmung der Transportzeit T der Ionen durch die Paul-Falle wurde ein Spannungsgradient zwischen Austrittsdüse und Paul-Falle so geschaltet, dass die Ionen nur zur Zeit t_1 in den HF-Quadrupol gelangten und zur Zeit t_2 auf die Düse geleitet wurden. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.3 dargestellt. Die Transportzeiten der Ionen steigen von 5 ms (Abb. 4.3 (c)) bis 272 ms (Abb. 4.3 (f)) mit Zunahme der Ionenmasse an. Eine Ausnahme bilden die Xe-Ionen (Abb. 4.3 (b)), die deutlich schneller transmittiert werden als die benachbarten Ionenmassen (Abb. 4.3 (d) und (e)). Zur Erklärung der langen Transmissionszeiten wurde die Hypothese aufgestellt, dass die Ionen ihre gesamte kinetische Energie in Stößen mit Puffergasatomen verlieren. Da im Innern der Paul-Falle keine elektrische Feldkomponente in Transportrichtung existiert, beruht die Transmission dann auf Diffusion. Die Unterschiede in den Transportzeiten lassen sich durch die unterschiedlichen Diffusionskoeffizienten monoatomarer Ionen und langkettiger Molekülionen erklären. Daher wurde die Paul-Falle in 6 Segmente unterteilt und elektrische Felder zwischen den einzelnen Segmenten erzeugt, s. Kapitel 3.1.2.

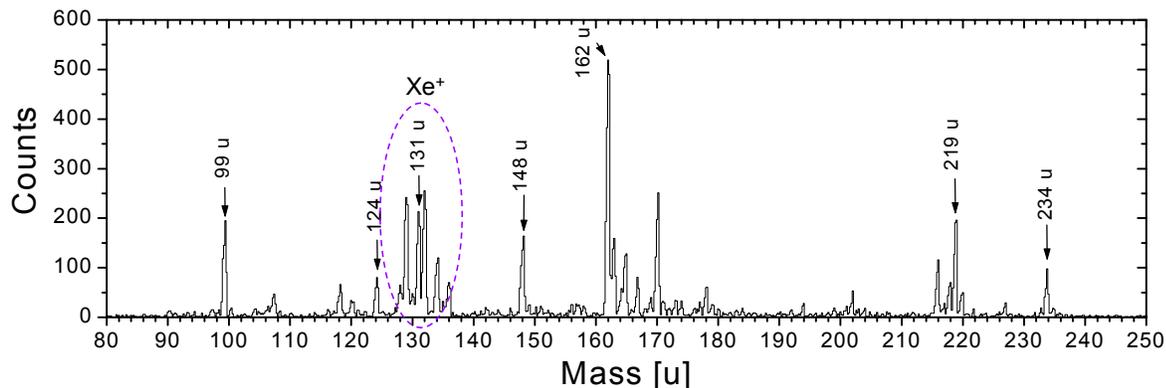


Abbildung 4.2: Massenspektrum mit einer α -Ionisationsquelle.

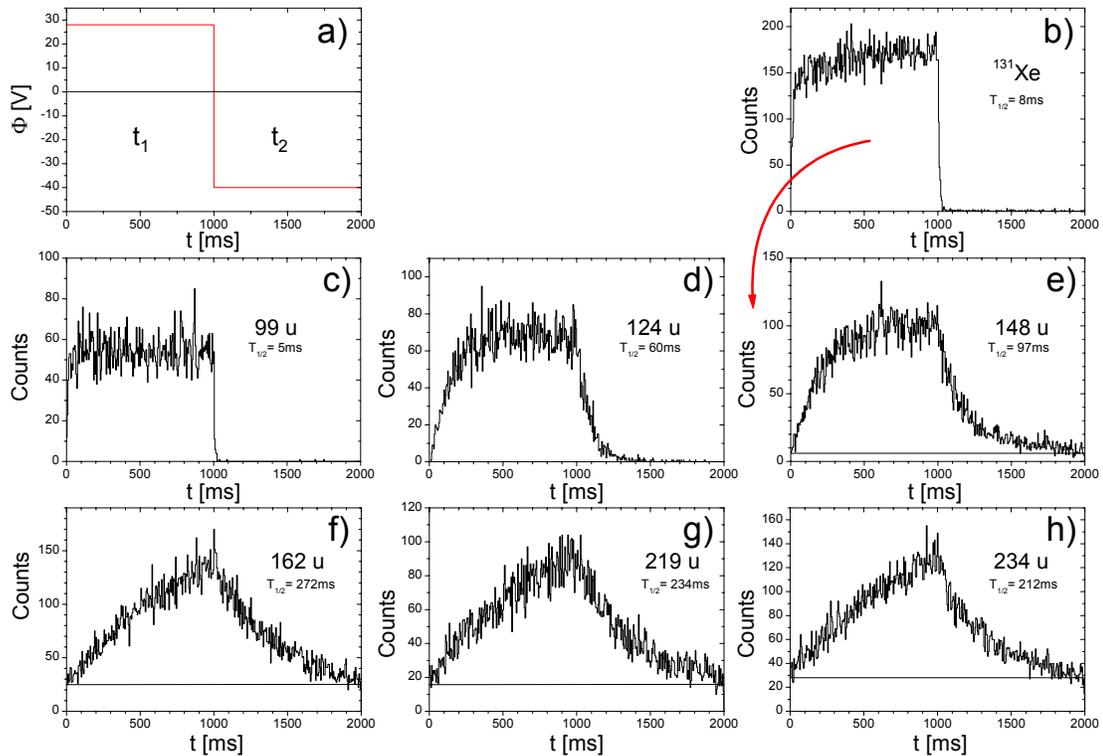


Abbildung 4.3: a) Pulsung der Düsenspannung. b)-h) Transportzeiten der in Abb. 4.2 markierten Ionenmassen. Die Zeit, in der das Ionensignal auf die Hälfte des maximalen Wertes gefallen ist, ist mit $T_{1/2}$ bezeichnet.

4.2 Testmessungen mit der segmentierten Paul-Falle

Zur Messung der Zeitverteilung der Ionen hinter der segmentierten Paul-Falle wurden Er-Atome von einem Filament in der Puffergaszelle freigesetzt und mit Lasern resonant ionisiert. Das Anregungsschema und ein Wellenzahlen-Scan um die tabellierte Er-Resonanz bei $\bar{\nu}_1 = 21168\text{ cm}^{-1}$ [75] sind in Abb. 4.4 dargestellt.

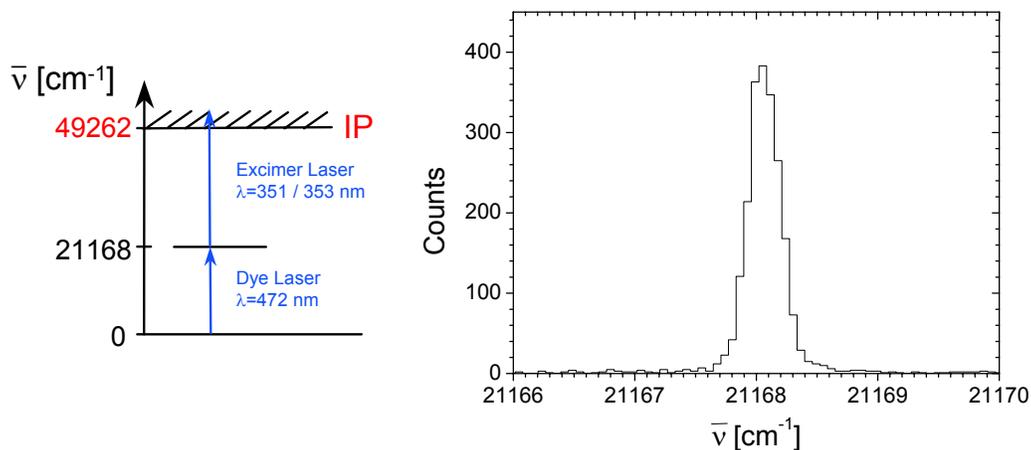


Abbildung 4.4: Anregungsschema und Wellenzahlen-Scan zur RIS an Erbium bei dem tabellierten Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 21168\text{ cm}^{-1}$ [75].

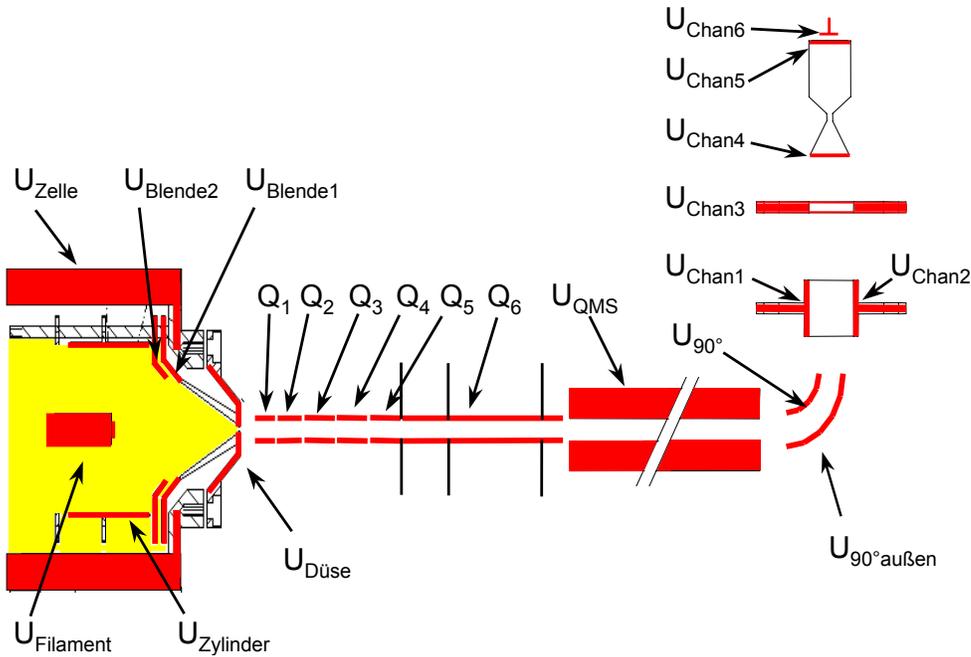


Abbildung 4.5: Prinzipzeichnung der Apparatur zur Benennung der Spannungen.

Zur Bestimmung der Transportzeit gab der Laserimpuls das Startsignal für die Zeitmessung und der Channeltron-Detektor das Stoppsignal. In Abb. 4.5 ist eine schematische Abbildung der Apparatur dargestellt.

Zunächst wurde die Breite der Verteilung durch Variation der Spannungen Q_1 bis Q_6 und U_{QMS} minimiert. Dabei blieb der Zeitpunkt, zu dem das Ionensignal einsetzt, unverändert. Dies deutet darauf hin, dass die Verzögerungszeit zwischen Laserimpuls und Schwerpunkt der Zeitverteilung im Wesentlichen von der Driftzeit der Ionen innerhalb der Puffergaszelle bestimmt wird, die durch Variation dieser Spannungen nicht beeinflusst wurde. Anschließend wurden die Spannungen in der Zelle für eine schnelle Extraktion optimiert. In Abb. 4.6 ist die resultierende Zeitverteilung dargestellt. Die hierfür verwendeten Spannungen sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst und wurden für alle weiteren Experimente eingestellt.

Tabelle 4.2: Spannungen zum Ionentransport. Die HF-Amplitude der Paul-Falle ist an die Amplitude des Massenfilters gekoppelt und beträgt 140 V bei 166 u.

$U_{Filament}$	U_{Zelle}	$U_{Zylinder}$	$U_{Blende2}$	$U_{Blende1}$	U_{Duese}
188.00 V	200.00 V	200.00 V	220.00 V	70.63 V	20.00 V
Q_1	Q_2	Q_3	Q_4	Q_5	Q_6
10.00 V	8.56 V	7.84 V	7.81 V	5.89 V	2.00 V
U_{QMS}		U_{90°	$U_{90^\circ \text{ außen}}$		
-26.00 V		-84.00 V	-30.38 V		
U_{Chan1}	U_{Chan2}	U_{Chan3}	U_{Chan4}	U_{Chan5}	U_{Chan6}
-50.15 V	-50.76 V	-50.20 V	-2.70 kV	0.00 V	-200.00 V

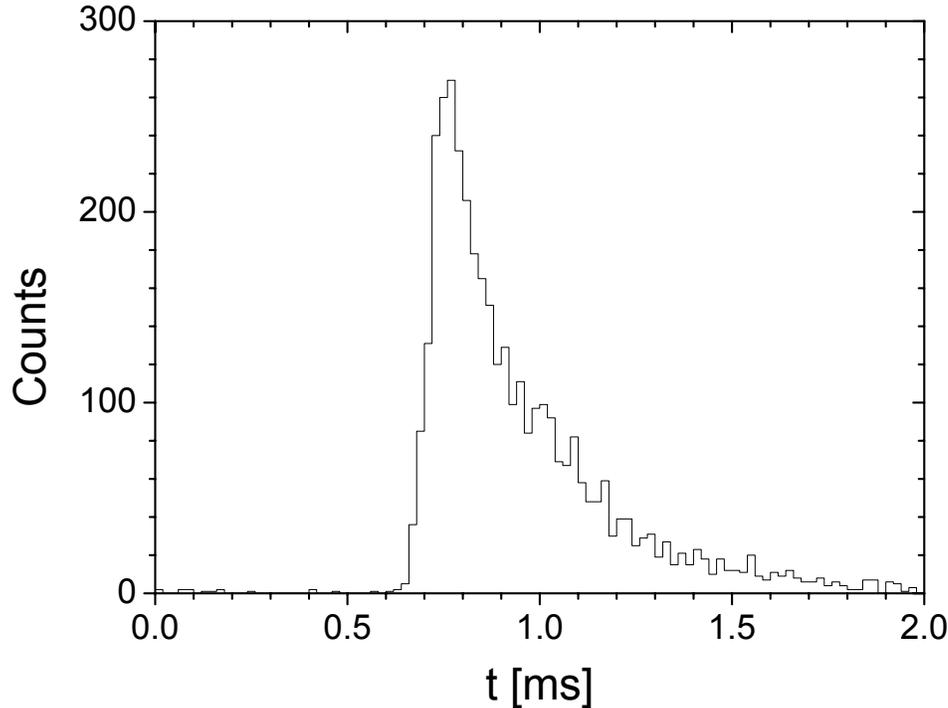


Abbildung 4.6: Zeitverteilung von Er-Ionen nach Resonanzionisation. Zur Zeit $t=0$ kommt der Laserimpuls.

Nach einer Verzögerungszeit von $t_d = 0.7$ ms, die -wie bereits erwähnt- auf die Driftzeit der Ionen innerhalb der Puffergaszelle zurückgeführt wird, ist ein steiler Anstieg in der Zeitverteilung der Ionen zu erkennen. Da die zeitliche Verteilung der Ionen vor Eintritt in die lineare Paul-Falle nicht bekannt ist, stellt die Breite der Verteilung $\Delta t = 0.2$ ms (FWHM) eine Obergrenze für die Transportzeit durch die Falle dar. Es wird tatsächlich davon ausgegangen, dass die relativ langen Ausläufer in der Verteilung die Dispersion der Ionenverteilung im inhomogenen elektrischen Feld in der Puffergaszelle widerspiegeln.

Unter der Annahme, dass die Ionenmobilität von Xe^+ und Er^+ -Ionen ähnlich ist, kann $\Delta t = 0.2$ ms für Er^+ -Ionen mit der Transportzeit von Xe^+ -Ionen $T_{1/2} = 8$ ms aus Kapitel 4.1 verglichen werden. Die Verweildauer der Ionen wurde durch die Segmentierung der Paul-Falle um mindestens einen Faktor 40 reduziert. Wie in Kapitel 5.6 erläutert wird, wurde dadurch die Zeitauflösung des Ionennachweises so verbessert, dass monoatomare Ionen und Molekülonen derselben Masse aufgrund ihrer unterschiedlichen Driftzeiten in der Puffergaszelle unterschieden werden können.

4.3 Synchronisation der Lasersysteme

Um beide in Kapitel 2.3.2 beschriebenen Suchverfahren zeitgleich durchführen zu können, wurden die beiden Lasersysteme so synchronisiert, dass auf jeden Nd:YAG-Laserimpuls

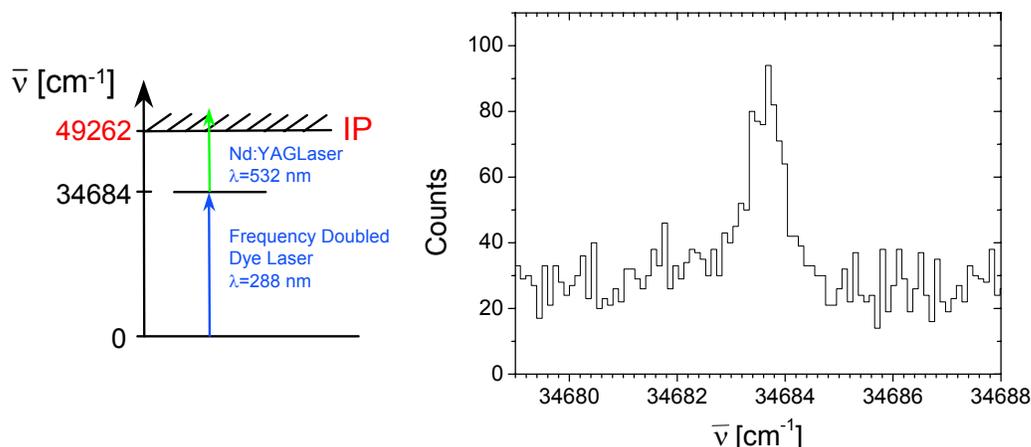


Abbildung 4.7: Anregungsschema und Wellenzahlen-Scan zur RIS an Erbium bei dem tabellierten Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 34684 \text{ cm}^{-1}$ [75].

vier Excimerlaserimpulse folgten. In einem Testexperiment mit einem Erbium Filament wurde mit dem Excimerlaser gepumpten Farbstofflaser die in Abb. 4.4 dargestellte Anregungsleiter realisiert. Mit dem Nd:YAG-Laser gepumpten, frequenzverdoppelten Farbstofflaser wurde der Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 34684 \text{ cm}^{-1}$ [75] angeregt. Für den zweiten Schritt wurden etwa 3% des Nd:YAG Pumplichtes für die nicht-resonante Ionisation verwendet. Anregungsschema und Wellenzahlen-Scan sind in Abb. 4.7 dargestellt. Aufgrund der zeitlichen Abfolge, s. Abb. 4.8 (a), lassen sich die in Abb. 4.8 (b) abgebildeten fünf Linien eindeutig den Anregungsleitern zuordnen.

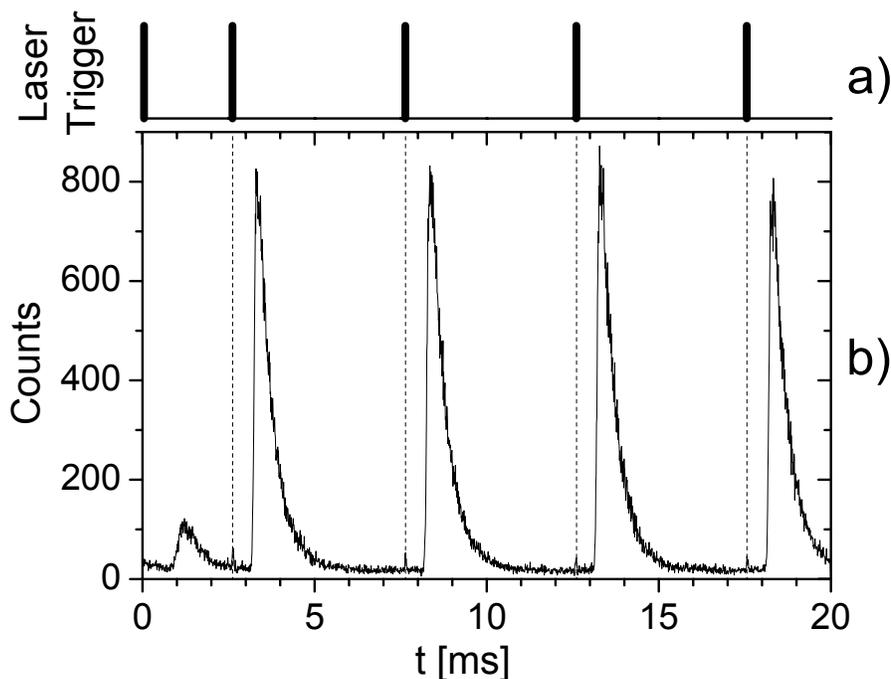


Abbildung 4.8: Zeitabfolge der Laserimpulse (a). Der Nd:YAG-Laserimpuls kommt bei $t=0 \text{ ms}$ und die Excimerlaserimpulse bei $t=2.62 \text{ ms}$, 7.64 ms , 12.61 ms und 17.56 ms . Zeitverteilung resonant ionisierter Er-Atome (b).

4.4 Abschätzung der Nachweiseffizienz

Die Nachweiseffizienz der Apparatur wird im Folgenden für das Fm-Experiment abgeschätzt. Die Gesamteffizienz ϵ setzt sich aus insgesamt 6 Komponenten zusammen :

$$\epsilon = \epsilon_{at} \cdot \epsilon_{co} \cdot \epsilon_{RIS} \cdot \epsilon_{cell} \cdot \epsilon_{LPF} \cdot \epsilon_{det} \quad (4.1)$$

ϵ : Gesamteffizienz für den Nachweis von Fm $\epsilon = 4.5(3) \cdot 10^{-4}$, siehe Kapitel 5.4.

ϵ_{at} : Anteil der nicht durch chemische Reaktionen verlorengegangenen Fm-Atome. In einem Experiment mit Americium wurde $\epsilon_{at} = 0.9$ [26] beobachtet. Dies stimmt mit Beobachtungen überein, die bei Experimenten mit Er, Dy, Am und Pu gemacht wurden [85] und zu der Abschätzung $\epsilon_{at} = 0.9(1)$ führen.

ϵ_{co} : Zeitliche ϵ_t und räumliche ϵ_r Koinzidenz der Atome mit dem Laserimpuls. Da das gesamte Volumen vor dem Filament vom Laser ausgeleuchtet wurde, wird $\epsilon_r = 1$ angenommen. Die zeitliche Koinzidenz wird durch die Konvektionsströmung der Atome aus dem Laserstrahldurchmesser $d = 14(1)$ mm bestimmt. Die Konvektionssgeschwindigkeit wird in Kapitel 5.5.2 auf $v_{conv} = 1.0(2) \cdot 10^5$ mm/s abgeschätzt. Dies entspricht der halben Schallgeschwindigkeit in Argon bei einem Druck von 40 mbar. Bei einer Repetitionsrate des Lasers von $\nu_{rep} = 200$ Hz lässt sich dann ϵ_t abschätzen [26]:

$$\epsilon_t = \frac{d}{v_{conv}} \cdot \nu_{rep} = 0.03(1) \quad (4.2)$$

Man erhält $\epsilon_{co} = \epsilon_t \cdot \epsilon_r = 0.03(1)$.

ϵ_{RIS} : Wahrscheinlichkeit für die Resonanzionisation $\epsilon_{RIS} \leq 0.2$, siehe Abschnitt 5.5.4.

ϵ_{cell} : Effizienz für die Extraktion der Ionen aus der Puffergaszelle $\epsilon_{cell} = 0.8(2)$ [26].

ϵ_{LPF} : Transporteffizienz der Ionen von der Düse zum Massenfilter. Aus Gl. 4.1 kann eine Untergrenze für ϵ_{LPF} abgeschätzt werden :

$$\epsilon_{LPF} \geq 0.7(3) \quad (4.3)$$

Demnach liegt die Effizienz des Ionentransportsystems im Bereich von $40\% \leq \epsilon_{LPF} \leq 100\%$.

ϵ_{det} : Effizienz des massenselektiven Nachweissystems, bestehend aus Quadrupol Massenfilter, 90° -Ablenker und Channeltron-Detektor $\epsilon_{det} = 0.17(6)$ [26].

Kapitel 5

Durchführung der Messungen

5.1 Herstellung der Fm-Probe

Am 21.08.2000 wurden $4.771\mu\text{g}$ ^{255}Es aus den Produktionsstäben des HFIR, s. Abb. 5.1 extrahiert. Etwa $1/7$ dieser Charge wurde für die ^{255}Fm Produktion verwendet. Am Montag, den 04.12.2000 um 1.19 Uhr Ortszeit (8.19 Uhr MEZ) wurden dann am ORNL von den verbleibenden 103 ng ^{255}Es insgesamt 1.718 ng ^{255}Fm in einem chromatographischen Verfahren abgetrennt und gereinigt. Das Verfahren, bei dem eine Gesamtdekontamination der Fm-Probe von Spaltprodukten um einen Faktor 10^3 erreicht wird, ist in Referenz [55] beschrieben. Die radiochemische Analyse der Probe, siehe Anhang D, zeigt, dass die Aktivität der Spaltprodukte nach der Reinigung tatsächlich unterhalb der Nachweisgrenze des Messsystems lag. Nach der Abscheidung liegt das Fm als Chlorid in HCl gelöst vor und wurde für den Transport nach Deutschland eingedampft.

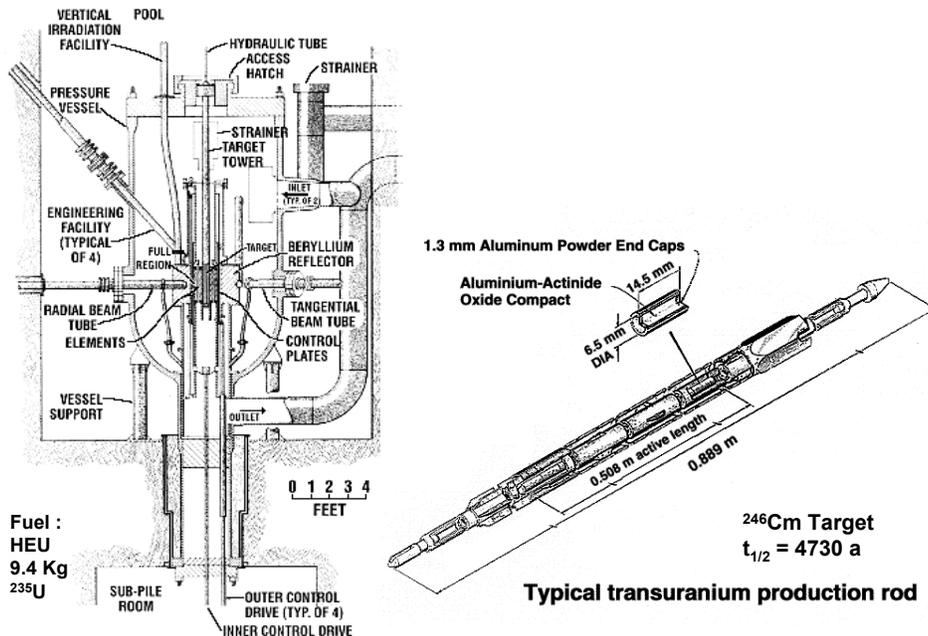


Abbildung 5.1: Hochflussreaktor. Entnommen aus den Referenzen [86, 53].

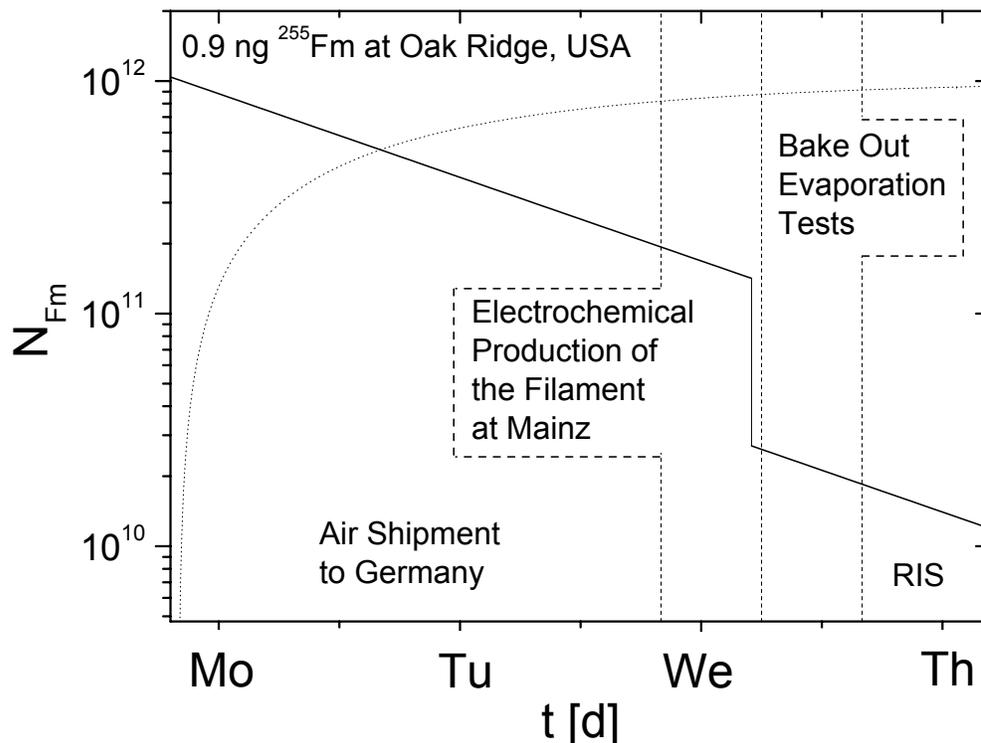


Abbildung 5.2: ^{255}Fm Teilchenzahl (durchgezogene Linie) und ^{249}Cf Teilchenzahl (gepunktete Linie) von Filament 1 als Funktion der Zeit.

Aufgrund hoher Sicherheitsauflagen beim Transport eines zu diesem Zeitpunkt als unbekanntes Isotop eingestuftes Aktinoids traf die Probe erst am 06.12.2000 in Mainz ein. Die Chronologie dieses ungewöhnlichen Transportes ist in Anhang G beschrieben und in Abb. 5.2 dargestellt.

Am Institut für Kernchemie der Universität Mainz wurden dann die Filamente nach dem in Referenz [44] beschriebenen Verfahren hergestellt. Dazu wurde die Probe in $400\ \mu\text{l}$ 0.5 molarer HCl gelöst. Für die Herstellung von Filament 1 wurden $100\ \mu\text{l}$ dieser Lösung eingesetzt. Da das Fm als Chlorid eingedampft worden war, wurde zunächst eine Lösung aus Ammoniumchlorid (NH_4Cl , 200 g/l, pH 1.82) als Elektrolytlösung gewählt [87]. Durch Anlegen einer Spannung von typischerweise 17 V fließt ein Strom von 600 mA durch die Lösung, die in NH_4^+ und Cl^- zersetzt wird. Über dem Filament entsteht dabei ein pH-Gradient, so dass Fm als $\text{Fm}(\text{OH})_3$ ausfällt. Nach der Abscheidung wurde über die Messung der spezifischen Fm- α -Aktivität von Filament A_F und Lösung A_L die Effizienz des Abscheideprozesses $\epsilon_{Ab} = A_F / (A_F + A_L) = 0.30$ bestimmt. Nach Abschluss des Experimentes wurde Restmaterial der Fm-Probe in H_2SO_4 gelöst und Ammoniumsulfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, 200g/l, pH 1.85) als Elektrolytlösung verwendet. In diesem Fall wurde eine Abscheideeffizienz von 84% erzielt [87].

Bei dem elektrochemischen Abscheideprozess wird Fermium als Hydroxid auf den Filamenten abgeschieden. Um das Element jedoch in atomarer Form freizusetzen, wurden

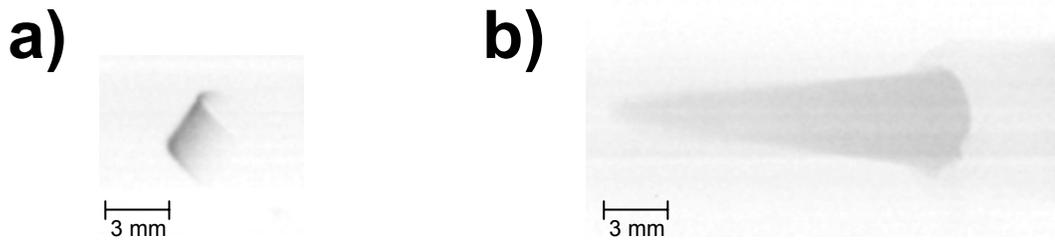


Abbildung 5.3: Infrarotbild des Fm-Filamentes bei einem Heizstrom von 8 A (a) und eines temperaturgeregelten LötKolbens bei der Temperatur 345 °C (b). Die Temperatur des LötKolbens wurde mit dem Temperaturfühler (Thermocouple K) eines Messinstruments (FLUKE 179) bestimmt. Für die Darstellung wurden die Graustufen invertiert, d.h. eine höhere Temperatur ist durch eine stärkere Schwärzung erkennbar.

die Filamente mit etwa $1\mu\text{m}$ Ti besputtert. Beim elektrischen Heizen diffundiert das Fm aufgrund eines Diffusionsgradienten vom Tantal Träger, der eine Dicke von $50\mu\text{m}$ besitzt, durch die Titanschicht und wird dabei in den atomaren Zustand reduziert [45].

Am 06.12.2000 um 17.00 Uhr wurde Filament 1 fertiggestellt und die spezifische Fm- α -Aktivität $A_{F1} = 2.6 \cdot 10^5$ Bq bestimmt. Dies entspricht einer Teilchenzahl von $2.7 \cdot 10^{10}$ Atomen des Isotops ^{255}Fm . Das Filament wurde nach Heidelberg transportiert und um 21.20 Uhr in der optischen Zelle der IGRIS Apparatur montiert. In Experimenten mit Erbium Filamenten, die nach demselben Verfahren hergestellt worden sind, wurde beim Heizen zunächst eine hohe Zählrate auch bei schweren Massen beobachtet, die mit der Dauer des Experimentes abnahm. Dieser Untergrund wird auf Oberflächenionisation von Kohlenwasserstoffketten aus Lösungsmittelresten zurückgeführt. Diese Verunreinigungen wurden bei etwa 300 °C vom Filament abgedampft. Bei diesen Temperaturen wird Strahlung im Infrarotbereich ausgesendet, die mit einer CCD-Kamera (Phytec VCAM 020) auf einem Monitor sichtbar gemacht wurde. Zur Temperaturbestimmung wurde die Helligkeit des Monitorbildes mit dem Abbild eines temperaturgeregelten LötKolbens verglichen, s. Abb. 5.3.

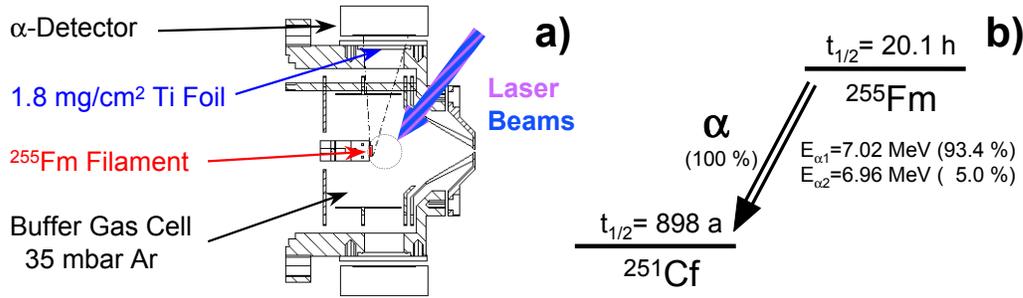


Abbildung 5.4: a) Puffergaszelle mit Halbleiterzählern. Unter einem Winkel von 90° zur Symmetrieachse sind zwei Halbleiterzähler außerhalb der optischen Zelle angebracht, die die beim Zerfall des ^{255}Fm emittierten α -Teilchen nachweisen. $4\ \mu\text{m}$ dicke Titan-Folien schützen die Detektoren vor dem Infrarotlicht des Filamentes und vor reflektiertem Laserlicht. b) Zerfallsschema von ^{255}Fm [88].

5.2 Bestimmung der Freisetzungstemperatur und der Freisetzungsrates

In einem ersten Schritt wurde die Freisetzungstemperatur T_{Fm} von Fm im Puffergas bestimmt. Um das Fm kontrolliert abdampfen zu können, wurde die α -Aktivität des Filamentes mit zwei Oberflächensperrschichtzählern (Schlumberger LEC 500-4000) mit einer aktiven Fläche von $4.9\ \text{cm}^2$ überwacht, siehe Abb. 5.4. Aufgrund des theoretischen Modells aus Ref. [45], das für die Freisetzungstemperatur von Fm $400\ ^\circ\text{C}$ berechnet, wurde der Filamentstrom während eines Zeitraums von 7 h von 7.6 A auf 15.6 A erhöht und gleichzeitig die Filament α -Aktivität überwacht. Am 7.12.2000 um 7.49 Uhr wurde dann bei $T_{\text{Fm}} = (960 \pm 20)\ ^\circ\text{C}$ eine Abnahme der Radioaktivität beobachtet. Die absolute Temperatur wurde mit einem Spektral-Glühfaden-Pyrometer (Keller, Mikro-Pyrometer PB 06) bestimmt, das über ein Prisma Sicht auf das Filament hatte. Wie in Anhang C erläutert wird, wurde ein linearer Zusammenhang zwischen Heizstrom und Filamenttemperatur beobachtet und eine Eichung vorgenommen. Messungen in einer dedizierten Hochvakuumapparatur, die $T_{\text{Fm}} = (970 \pm 30)\ ^\circ\text{C}$ [89] ergaben, deuten darauf hin, dass das Puffergas keinen signifikanten Einfluss auf die Freisetzungstemperatur hat. Über die Experimentierdauer von etwa 9 h für beide Filamente wurde die Temperatur schließlich auf $(1184 \pm 20)\ ^\circ\text{C}$ erhöht. In den Abbildungen 5.5 und 5.6 ist die registrierte Fm- α -Aktivität A_{det} als Funktion der Zeit für beide Filamente dargestellt. Aufgrund von Störimpulsen in der Datenaufnahme, mussten die Rohdaten korrigiert werden. Das Vorgehen dazu ist in Anhang C erläutert.

Die Fm- α -Aktivität $A_{\text{fil}}^{\text{Fm}}(t)$ des Filamentes ist gegeben durch $A_{\text{fil}}^{\text{Fm}}(t) = \lambda \cdot N_{\text{fil}}^{\text{Fm}}(t)$. Es bezeichnen $\lambda = \ln 2/t_{1/2} = 9.579 \cdot 10^{-6}/\text{s}$ die Zerfallskonstante für den α -Zerfall und $N_{\text{fil}}^{\text{Fm}}(t)$ die Fm-Atomzahl auf dem Filament. Für die Abnahme der Filamentaktivität mit der Zeit, ergibt sich daraus :

$$\dot{A}_{\text{fil}}^{\text{Fm}}(t) = \lambda \dot{N}_{\text{fil}}^{\text{Fm}}(t) . \quad (5.1)$$

Die Abnahme der Fm-Atomzahl setzt sich dabei aus der Abnahme durch α -Zerfall

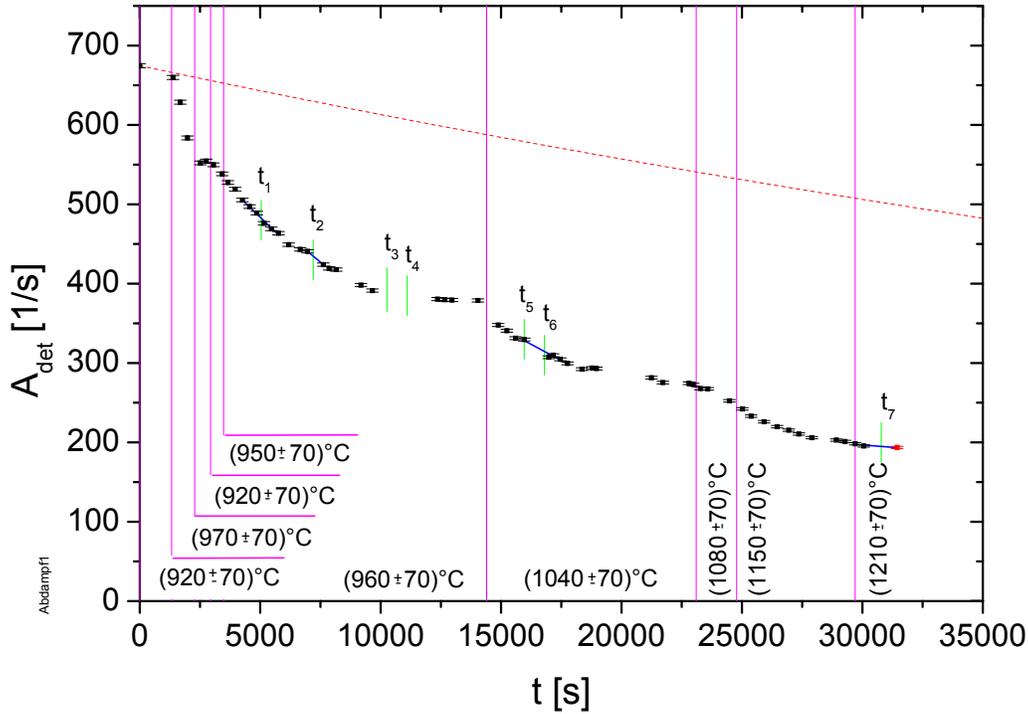


Abbildung 5.5: Registrierte Fm- α -Aktivität A_{det} von Filament 1 als Funktion der Zeit t . $t = 0$ entspricht dem 7.12.2000, 7.49 Uhr. An den markierten Zeiten wurde $A_{det}(t)$ durch lineare Regression bestimmt. Die Regressionsgeraden sind als durchgezogene Linien eingezeichnet. Die radioaktive Zerfallskurve $A_{det}(t) = \frac{\Omega}{4\pi} A_0 e^{-\lambda F_m t}$ ist als gestrichelte Kurve eingezeichnet, mit $A_0 = A(t = 0)$.

$\dot{N}_{rad}^{Fm}(t) = -A_{fil}^{Fm}(t)$ und Abheizen $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ zusammen :

$$\dot{N}_{fil}^{Fm}(t) = -A_{fil}^{Fm}(t) - \dot{N}_{rel}^{Fm}(t) . \quad (5.2)$$

Aufgrund des begrenzten Raumwinkелеlementes $\frac{\Omega}{4\pi} = 4.33(4) \cdot 10^{-3}$ für Filament 1 und $3.53(4) \cdot 10^{-3}$ für Filament 2, unter dem der Zähler die α -Teilchen nachweist, gilt für registrierte Aktivität $A_{det}(t) = \frac{\Omega}{4\pi} A_{fil}^{Fm}(t)$. Einsetzen in Gl. 5.1 und Auflösen nach $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ ergibt :

$$\dot{N}_{rel}^{Fm}(t) = -\frac{4\pi}{\Omega} \left(\frac{\dot{A}_{det}(t)}{\lambda} + A_{det}(t) \right) . \quad (5.3)$$

In Hinblick auf Kapitel 5.4 wurde $A_{det}(t)$ aus den Abbildungen 5.5 und 5.6 über die lineare Regression $A_{det}(t) = b + m \cdot t$ bestimmt und aus den Regressionsparametern m und b die freigesetzten Fm-Teilchenraten $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ berechnet :

$$\dot{N}_{rel}^{Fm}(t) = -\frac{4\pi}{\Omega} \left(\frac{m}{\lambda} + (b + m \cdot t) \right) . \quad (5.4)$$

In Tab. 5.1 sind diese zusammen mit den Regressionsparametern m_i und b_i aufgeführt.

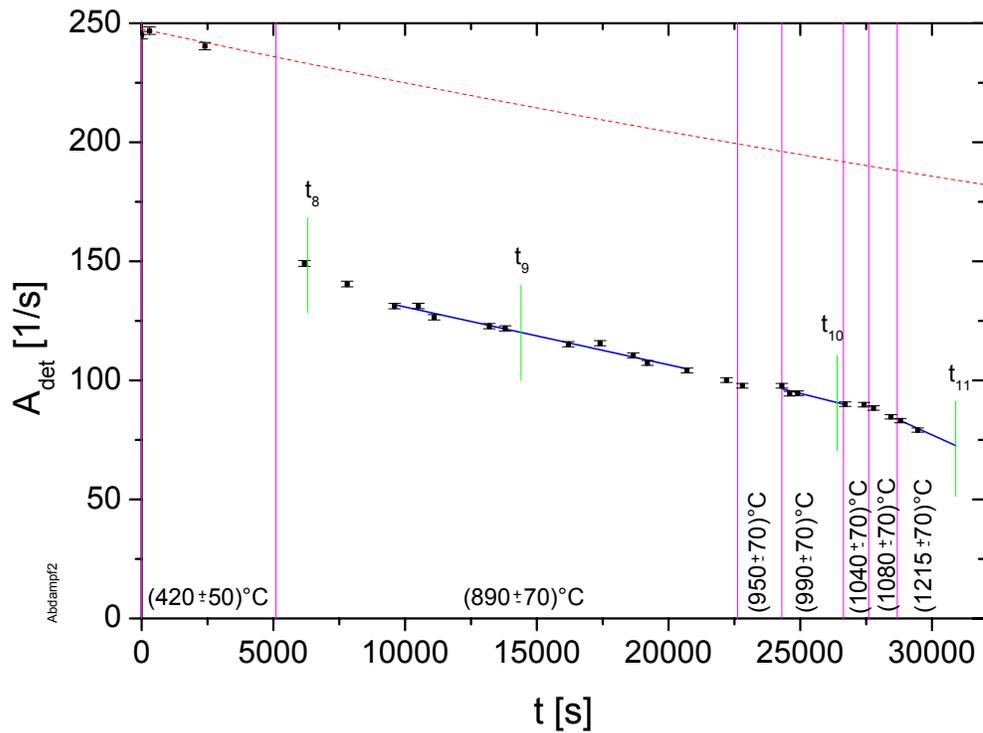


Abbildung 5.6: Registrierte $Fm\text{-}\alpha$ -Aktivität A_{det} von Filament 2 als Funktion der Zeit t . An den markierten Zeiten wurde $A_{det}(t)$ durch lineare Regression bestimmt. Die Regressionsgeraden sind als durchgezogene Linien eingezeichnet. Die radioaktive Zerfallskurve $A_{det}(t) = \frac{\Omega}{4\pi} A_0 e^{-\lambda_{Fm} t}$ ist als gestrichelte Kurve eingezeichnet, mit $A_0 = A(t = 0)$.

Tabelle 5.1: Freigesetzte Fm -Teilchenrate für Filament 1 ($i = 1 - 7$) und Filament 2 ($i = 8 - 11$).

i	t [s]	m [$1/s^2$]	b [$1/s$]	\dot{N}_{rel}^{Fm} [$1/s$]
1	5040	$-2.9(2) \cdot 10^{-2}$	629(8)	$5.9(4) \cdot 10^5$
2	7200	$-2.5(5) \cdot 10^{-2}$	618(33)	$5(1) \cdot 10^5$
3	10260	-	-	-
4	11100	-	-	-
5	15960	$-1.6(1) \cdot 10^{-2}$	589(22)	$3.2(4) \cdot 10^5$
6	16800	$-1.6(1) \cdot 10^{-2}$	589(22)	$3.2(4) \cdot 10^5$
7	30780	$-2(1) \cdot 10^{-3}$	266(33)	$1(4) \cdot 10^4$
8	6300	-	-	-
9	14400	$-2.4(1) \cdot 10^{-3}$	155(1)	$3.7(3) \cdot 10^4$
10	26400	$-2.8(5) \cdot 10^{-3}$	164(13)	$5(2) \cdot 10^4$
11	30900	$-6(2) \cdot 10^{-3}$	258(56)	$1.6(8) \cdot 10^5$

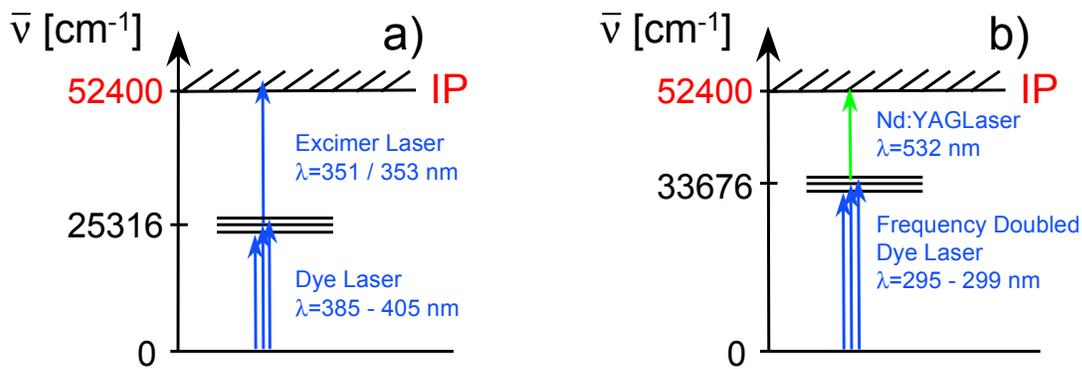


Abbildung 5.7: Anregungsschemata zur RIS an Fm. Suche nach den Niveaus 30 und 31 im Energiebereich um 25316 cm^{-1} (a). Niveausuche im Anregungsenergiebereich um 33676 cm^{-1} (b).

5.3 Liniensuche

Die Resonanzionisationspektroskopie an Fermium wurde simultan in zwei Anregungsenergiebereichen durchgeführt, siehe Kapitel 2.3.2. Die Anregungsschemata sind in Abb. 5.7 dargestellt. Ein Farbstofflaser wurde für die Suche nach den Niveaus 30 und 31 aus Tab. 2.1 zunächst über einem Energiebereich von $24700 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 25930 \text{ cm}^{-1}$ durchgestimmt. Dabei wurde der Farbstoff Exalite 398 eingesetzt, der in diesem Energiebereich eine Konversionseffizienz von 22% besitzt [64].

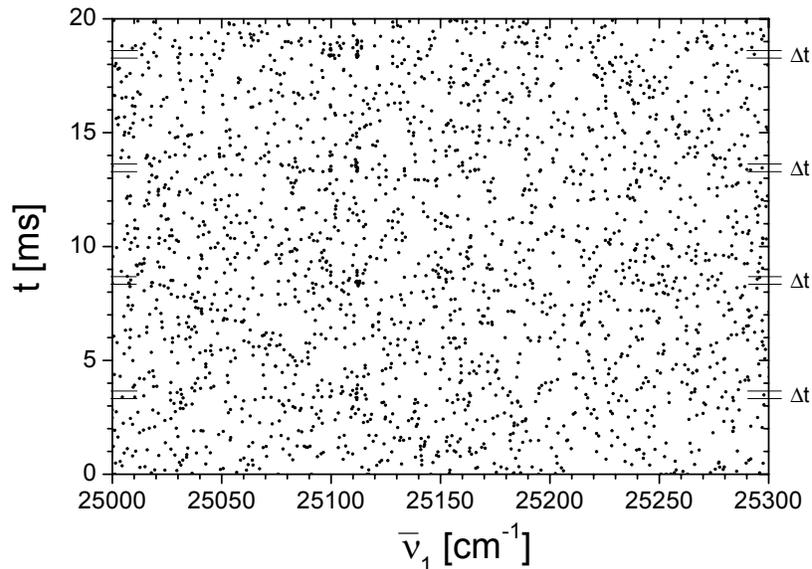


Abbildung 5.8: Ausschnitt aus dem Wellenzahlen-Scan Abb. 5.9. Dargestellt sind die registrierten Ereignisse als Funktion der Ankunftszeit t der nachgewiesenen Ionen im Detektor und der Wellenzahl $\bar{\nu}_1$. Es wurden 4 Laserimpulse zu den Zeiten $t = 2.50 \text{ ms}$, $t = 7.52 \text{ ms}$, $t = 12.46 \text{ ms}$ und $t = 17.45 \text{ ms}$ eingestrahlt. Bei $\bar{\nu}_1 = 25100 \text{ cm}^{-1}$ und 25110 cm^{-1} sind zwei Übergänge durch eine leicht erhöhte Punktdichte in den 4 markierten Zeitfenstern erkennbar.

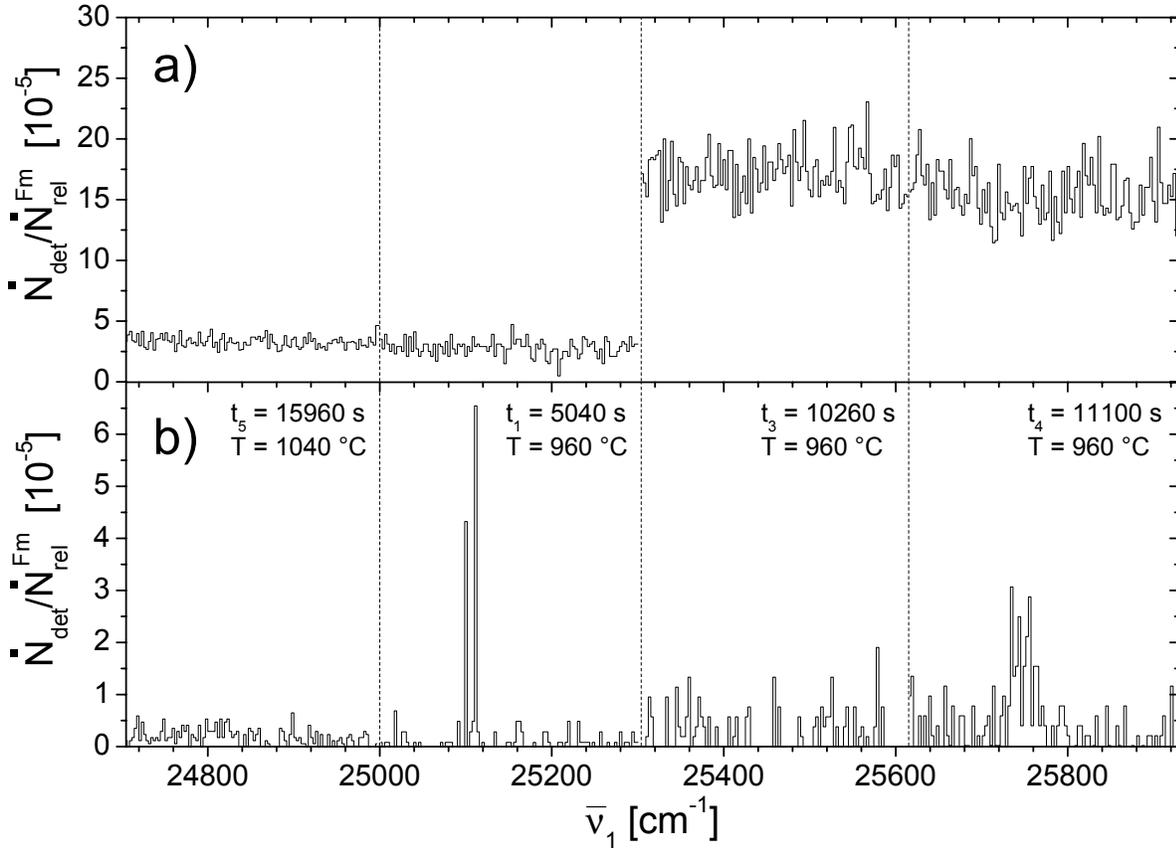


Abbildung 5.9: Wellenzahlen-Scan von $\bar{\nu}_1 = 24700 \text{ cm}^{-1}$ bis 25930 cm^{-1} außerhalb des in Abb. 5.8 markierten Zeitfensters Δt (a) und innerhalb des Zeitfensters (b). Die vier Einzelspektren, die zu den angegebenen Zeiten aufgenommen wurden, sind durch gestrichelte Linien markiert. Der erhöhte Untergrund in der Darstellung von $\dot{N}_{\text{det}}/\dot{N}_{\text{rel}}^{\text{Fm}}$ zu den Zeiten t_3 und t_4 ist auf den Rückgang der freigesetzten Fm-Teilchenrate $\dot{N}_{\text{rel}}^{\text{Fm}}$ um etwa einen Faktor 5, s. Abb. 5.5 und Tab. 5.1, zurückzuführen.

Für den zweiten Schritt wurden etwa 10% des Excimer Pump Laserlichtes mit der Energie $\bar{\nu}_2 = 28490/28329 \text{ cm}^{-1}$ eingekoppelt. Ein Teilspektrum ist in Abb. 5.8 als Punktdiagramm dargestellt. Die Ankunftszeit der nachgewiesenen Ionen ist als Funktion der Anregungsenergie aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass die laserinduzierten Ereignisse in einem schmalen Zeitfenster nachgewiesen werden. Für ein verbessertes Signal- zu Untergrundverhältnis wurden daher nur die Ereignisse in den markierten Zeitfenstern verwendet. Das auf diese Weise erzeugte Spektrum ist in Abb. 5.9 (b) dargestellt. Es sind deutlich zwei Linien bei den Wellenlängen 25100 cm^{-1} und 25110 cm^{-1} zu erkennen. Weiterhin ist eine breite Struktur im Bereich von 25720 cm^{-1} bis 25780 cm^{-1} erkennbar. In Kapitel 7.1.3 wird eine Interpretation dieser Struktur vorgenommen.

Anschließend wurde der Farbstofflaser langsam über den Wellenzahlenbereich von 25090 cm^{-1} bis 25116 cm^{-1} durchgestimmt, in dem die beiden Linien gefunden wurden. Das Spektrum ist in Abb. 5.10 dargestellt. Eine mögliche Zuordnung dieser Linien wird in Kapitel 5.4 vorgenommen.

Zuletzt wurde der Farbstofflaser über einen Energiebereich von $\bar{\nu}_1 = 23900 \text{ cm}^{-1}$ bis

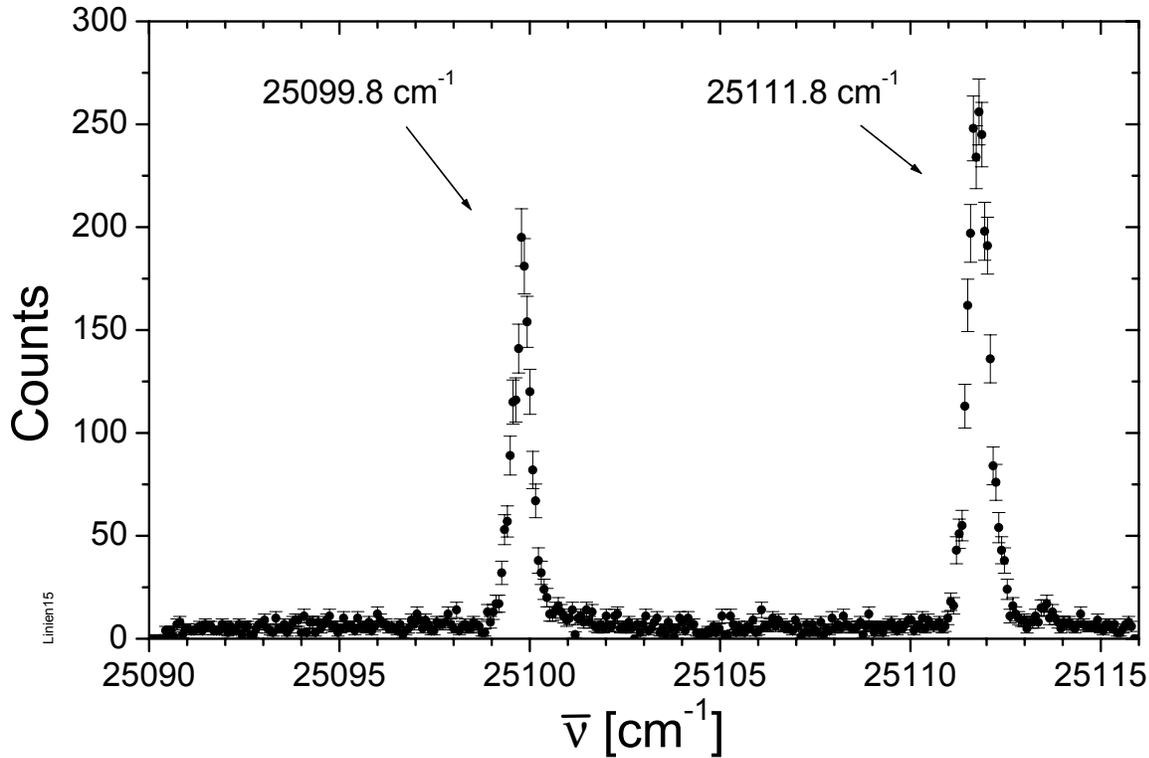


Abbildung 5.10: Wellenzahlen-Scan um die Resonanzen bei 25100 cm^{-1} und 25110 cm^{-1} . Die Durchstimmgeschwindigkeit des Farbstofflasers betrug $6.1 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}/\text{s}$ bei einer Schrittweite von $3.7 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. Für die Darstellung wurden jeweils 2 Schritte zusammengefasst und das in Abb. 5.8 erläuterte Zeitfenster gesetzt.

24080 cm^{-1} durchgestimmt. Dazu wurde der Farbstoff Stilbene 3 eingesetzt, der in diesem Energiebereich mit einer Konversionseffizienz von 17% spezifiziert ist [64]. Die registrierte Zählrate ist als Punktdiagramm in Abhängigkeit der Anregungswellenzahl $\bar{\nu}_1$ und der Ankunftszeit t der Ionen in Abb. 5.11 dargestellt. Im Energiebereich von 24040 cm^{-1} bis 24080 cm^{-1} ist eine breite, waagerechte Struktur erkennbar, die nicht völlig mit dem markierten Zeitfenster überlappt. Dies deutet auf die mögliche nicht-resonante Ionisation eines Moleküls hin, dass aufgrund seiner geringeren Mobilität verzögert nachgewiesen wird. In Kapitel 5.6 wird dieser Hypothese nachgegangen.

Das Licht eines zweiten, frequenzverdoppelten Farbstofflasers wurde über einen Energiebereich von $33438 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 33914 \text{ cm}^{-1}$ durchgestimmt. Dazu wurde mit dem Farbstoff Rhodamine B, der im Energiebereich 16530 cm^{-1} bis 16950 cm^{-1} eine Konversionseffizienz von 28% besitzt [64], Laserstrahlung mit der Energie $16720 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1/2 \leq 16960 \text{ cm}^{-1}$ erzeugt. Für den zweiten Schritt wurden etwa 3% des Nd:YAG Pumplaserlichtes mit der Energie $\bar{\nu}_2 = 18797 \text{ cm}^{-1}$ eingekoppelt. Bei dieser Wahl der Anregungsenergien wurde die Summenenergie $52253 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 \leq 52711 \text{ cm}^{-1}$ über die berechnete Ionisationsgrenze von 52400 cm^{-1} [72] durchgestimmt. Es wurden jedoch keine Linien gefunden. Aufgrund eines Defektes in der Laseransteuerung wurde das wellenlängenselektive Gitter nicht kontinuierlich verfahren, so dass diese Beobachtung die Existenz von atomaren Niveaus in diesem Energiebereich nicht ausschließt.

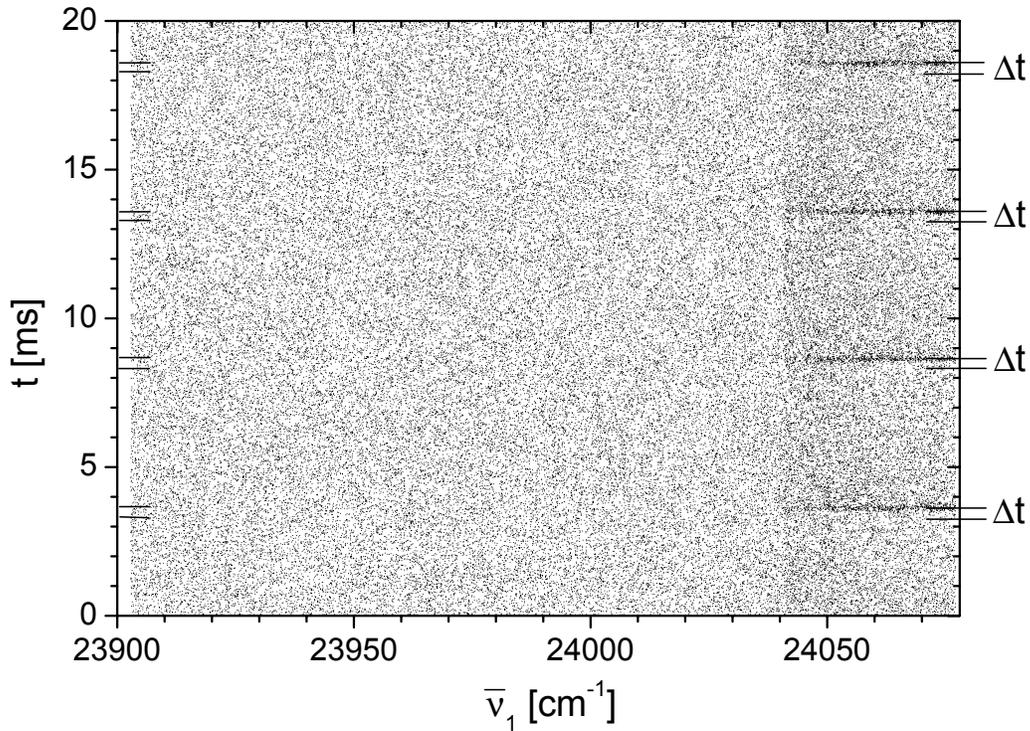


Abbildung 5.11: Wellenzahlen-Scan von $\bar{\nu}_1 = 23900 \text{ cm}^{-1}$ bis 24080 cm^{-1} . Der erhöhte Untergrund im Bereich von 24040 cm^{-1} bis 24080 cm^{-1} ist auf die Erhöhung der Filamenttemperatur von $1080 \pm 70^\circ \text{C}$ auf $1215 \pm 70^\circ \text{C}$ zurückzuführen.

5.4 Isotop- und Elementzuordnung der beobachteten optischen Übergänge

Die Zuordnung der beobachteten Linien bei 25099.8 cm^{-1} und 25111.8 cm^{-1} geschieht in zwei Schritten. In Kapitel 5.4.1 wird zunächst die Eichung des Massenfilters erläutert, über die die Übergänge einem Isotop mit der Massenzahl $A=255$ zugeordnet werden können. Anschließend wird in Kapitel 5.4.2 die Resonanzzahlrate auf der Masse $A=255$ $\dot{N}_{res}(t)$ als Funktion der Zeit t untersucht. Handelt es sich um ein Fm-Isotop, muss $\dot{N}_{res}(t)$ proportional zu der in Kapitel 5.2 bestimmten, freigesetzten Fm-Teilchenrate $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ sein. Abschließend wird untersucht, ob die Beobachtung dieser Proportionalität elementspezifisch und somit ein hinreichender Beweis ist. Dafür muss gezeigt werden, dass für eine möglicherweise freigesetzte Es-Teilchenrate $\dot{N}_{res}(t) \propto \dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ gilt.

5.4.1 Eichung des Massenfilters

Für eine Eichung des Massenfilters wurde zunächst der Laser fest auf dem Übergang bei 25111.80 cm^{-1} gehalten und ein Massenspektrum aufgenommen, siehe Abb. 5.12. Mit einem Zeitfilter, s. Abb. 5.13, kann der Untergrund, der keine Korrelation mit den Laserimpulsen aufweist unterdrückt werden. Dieser Untergrund beträgt im dargestellten Spektrum $0.7/\text{s}$ und setzt sich aus zwei Anteilen zusammen. Zum einen wird ein bei konstanter Temperatur mit der Experimentdauer abnehmender Untergrund be-

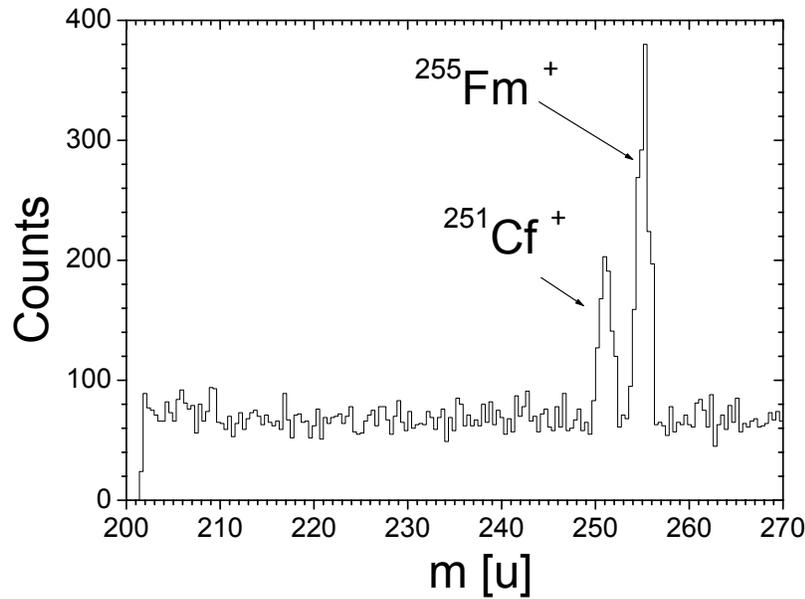


Abbildung 5.12: a) Massenspektrum der laserionisierten Atome bei der Energie 25111.80 cm^{-1} . Der Massenfilter wurde mit einer Geschwindigkeit von 0.09 u/s bei einer Schrittweite von 0.04 u durchgestimmt. Für die Darstellung wurden 10 Schritte zusammengefasst.

obachtet, der auf Oberflächen- und α -Ionisation von schweren Kohlenwasserstoffen zurückgeführt wird. Diese Molekülverbindungen stammen aus einer bei der Filamentherstellung verwendeten organischen Lösung. Zum anderen wird das Isotop ^{255}Fm im Channeltron-Detektor angesammelt und erzeugt beim Zerfall einen Untergrund, der auf etwa $0.03/\text{s}$ im dargestellten Spektrum abgeschätzt werden kann. Das gefilterte Massenspektrum ist in Abb. 5.14 dargestellt.

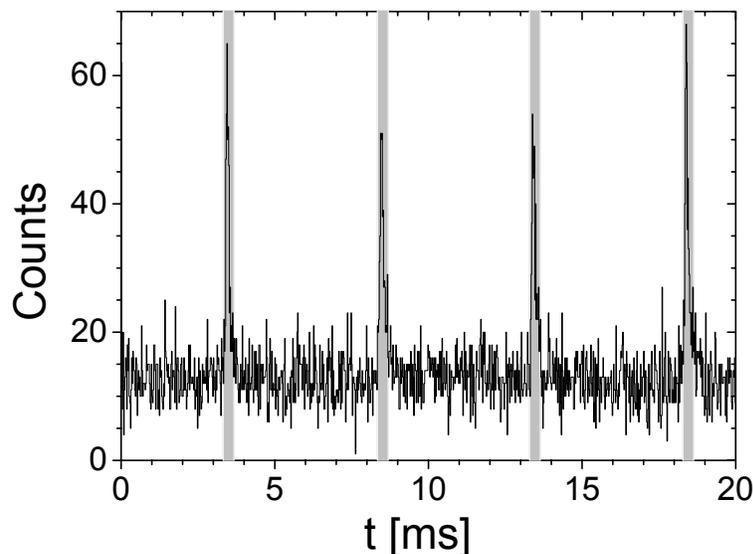


Abbildung 5.13: Im Zeitspektrum des in Abb. 5.12 dargestellten Massenspektrums sind vier Linien im Abstand von jeweils 5 ms zu erkennen, die auf Laserionisation zurückzuführen sind. Zur Untergrundunterdrückung wird ein Zeitfenster gesetzt (grau unterlegter Bereich).

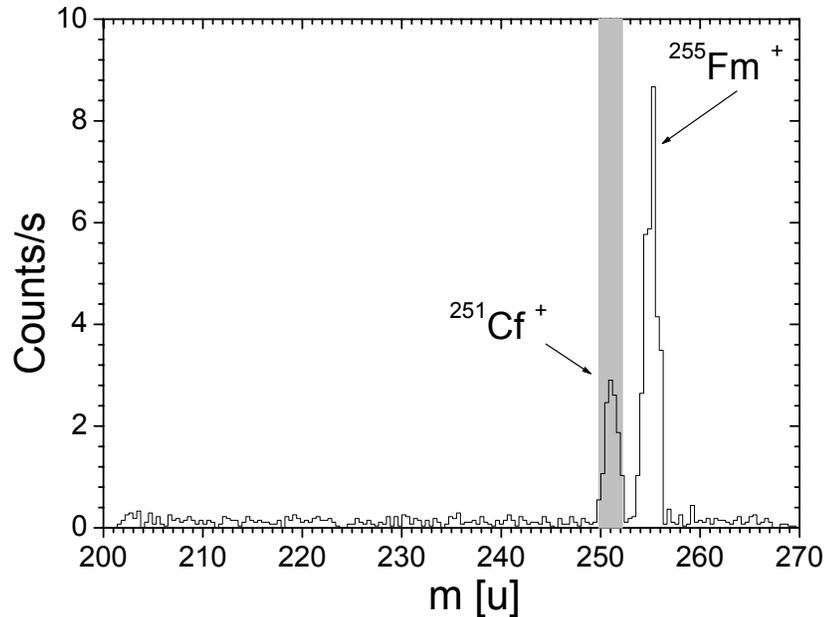


Abbildung 5.14: Gefiltertes Massenspektrum. Mit dem in Abb. 5.13 gesetzten Zeitfenster, wurde der Untergrund in dem in Abb. 5.12 dargestellten Massenspektrum unterdrückt, der keine Korrelation mit den Laserimpulsen aufweist. Die integrale Zählrate auf der Masse 251 (grau unterlegter Bereich) beträgt $\dot{N}_{Cf}^a = (12 \pm 1)/s$.

Es sind deutlich zwei Massenlinien mit einem Abstand von 4 u zu erkennen, die bereits nach einer groben Eichung des Massenfilters den Massenzahlen 251 und 255 zugeordnet werden konnten. Daher wurde der Hypothese nachgegangen, dass es sich bei der Linie bei $A=255$ um ^{255}Fm und bei $A=251$ um ^{251}Cf , der kontinuierlich produzierten α -Zerfallstochter von Fermium, handelt, die bereits bei niedrigen Temperaturen (730 °C [89]) freigesetzt wird.

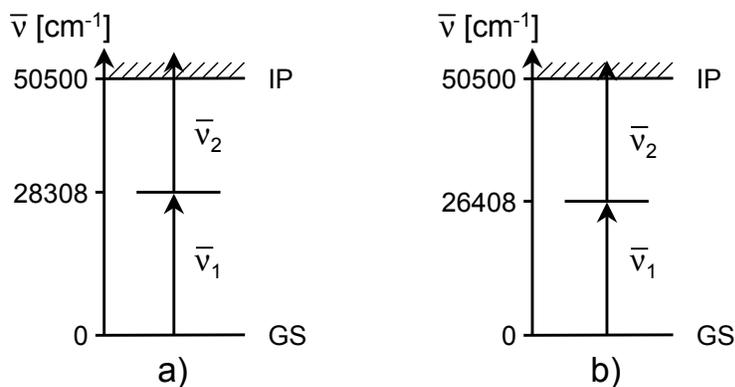


Abbildung 5.15: Anregungsschemata zur Resonanzionisation von Cf. a) Resonante Anregung des Cf-Niveaus bei $\bar{\nu} = 28308 \text{ cm}^{-1}$ und Ionisation mit zwei Excimerlaser Photonen ($\bar{\nu}_1 = \bar{\nu}_2$). b) Resonante Anregung des Cf-Niveaus bei $\bar{\nu} = 26408 \text{ cm}^{-1}$ mit dem Farbstofflaser ($\bar{\nu}_1$) und Ionisation mit dem Excimerlaser ($\bar{\nu}_2$).

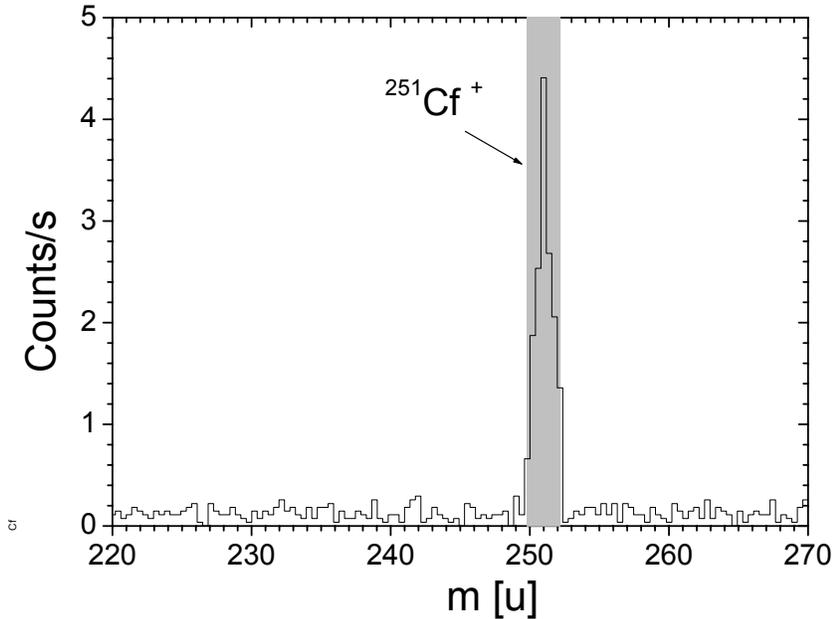


Abbildung 5.16: Massenspektrum der laserionisierten Atome bei der Energie 25105.00 cm^{-1} . Das Spektrum wurde wie für Abb. 5.14 erläutert aufgenommen und gefiltert. Die integrale Zählrate auf der Masse 251 (grau unterlegter Bereich) beträgt $\dot{N}_{\text{Cf}}^b = (15 \pm 1)/\text{s}$.

Da die Halbwertszeit von ^{251}Cf 898 a beträgt, ergibt sich für das Atomzahlverhältnis der Elemente Californium und Fermium zu Beginn des Experimentes 100:1. Die spektrale Verteilung des Excimerlaserlichtes, das für den 2. Schritt eingestrahlt wurde, besitzt zwei Maxima bei 28329 cm^{-1} und 28490 cm^{-1} . Die Verteilung ist in Ref. [79] dargestellt und überlappt mit einem Cf-Niveau bei 28308.60 cm^{-1} [40], so dass Cf mit zwei Excimerlaser Photonen zunächst resonant angeregt und dann ionisiert werden kann, siehe Abb. 5.15 a). Dies könnte die relativ hohe Zählrate von $\dot{N}_{\text{Cf}}^a = (12 \pm 1)/\text{s}$ in Abb. 5.14 erklären.

Um diese Hypothese zu beweisen, wurde der Farbstofflaser aus der Resonanz verstimmt und bei der Energie $\bar{\nu} = 25105.00 \text{ cm}^{-1}$ ein Massenspektrum aufgenommen. In dem Massenspektrum, welches in Abb. 5.16 dargestellt ist, wurde nur eine Massenlinie bei $A=251$ mit einer integralen Zählrate von $\dot{N}_{\text{Cf}}^b = (15 \pm 1)/\text{s}$ beobachtet. Innerhalb von 1.5σ stimmen die Zählraten \dot{N}_{Cf}^a und \dot{N}_{Cf}^b überein. Da in beiden Fällen nur genau einmal über den Massenbereich durchgestimmt wurde, ist aufgrund von Schwankungen in der Massenfiltersteuerung eine bessere Übereinstimmung nicht zu erwarten. Die Tatsache, dass die Cf-Zählrate demnach unabhängig von der Farbstofflaser Energie ist, untermauert die Hypothese einer Ionisation mit zwei Excimerlaser Photonen.

Dass Cf tatsächlich vom Filament freigesetzt wurde, konnte anhand des tabellierten Niveaus von Californium bei $\bar{\nu} = 26408.305 \text{ cm}^{-1}$ [90] nach dem in Abb. 5.15 b) dargestellten Anregungsschema nachgewiesen werden. Wie in Abb. 5.17 a) gezeigt, konnte dadurch die beobachtete Massenlinie bei $A=251$ eindeutig dem Element Cf zugeordnet werden. Damit wurde gleichzeitig eine genaue Eichung des Quadrupol Massenfilters vor-

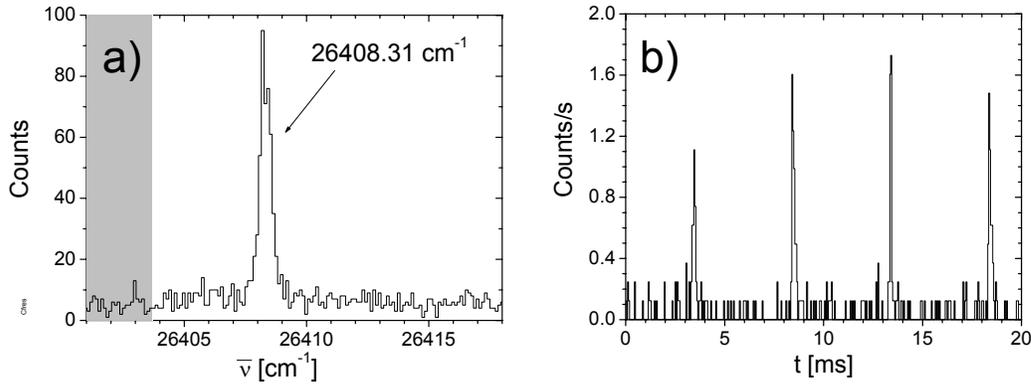


Abbildung 5.17: a) Wellenzahlen-Scan um die tabellierte Cf-Resonanz bei $\bar{\nu} = 26408.31 \text{ cm}^{-1}$. Die Durchstimmgeschwindigkeit betrug 10 Kanäle/s. Für die Darstellung wurden jeweils 3 Kanäle zusammengefasst und der in Abb. 5.13 dargestellte Zeitfilter verwandt. Der Massenfiter stand fest auf der Massenzahl $A=251$. b) Zeitstruktur der Ereignisse außerhalb der Resonanz. Die Zählrate beträgt $\dot{N}_{Cf}^c = (12 \pm 1)/s$. Der entsprechende Wellenzahlenbereich ist in Spektrum a) grau unterlegt.

genommen. In Abb. 5.17 b) ist die Zeitstruktur der Ereignisse außerhalb der Resonanz dargestellt. Obwohl der Farbstofflaser um 6 cm^{-1} verstimmt war, ist der Untergrund fast ausschließlich auf Laserionisation zurückzuführen. Diese Untergrundzählrate beträgt $\dot{N}_{Cf}^c = (12 \pm 1)/s$ und stimmt somit mit den Zählraten \dot{N}_{Cf}^a und \dot{N}_{Cf}^b überein. Dies untermauert nochmals die Hypothese, dass ein ständiger Untergrund durch eine resonante Ionisation von Cf mit zwei Excimerlaser Photonen beobachtet wurde.

Der am Isotop ^{251}Cf geeichte Massenfiter war bei dem in Abb. 5.10 dargestellten Wellenzahlen-Scan fest auf die Massenzahl $A=255$ eingestellt. Folglich gehören die beiden in diesem Scan beobachteten Übergänge bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ und $\bar{\nu}_2 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ zu einem Isotop mit der Massenzahl $A=255$.

5.4.2 Zuordnung zum Element Fermium

Aufgrund der Produktion der Isotope über Neutroneneinfang und β^- Zerfall kann es sich bei dem Isotop mit der Massenzahl $A=255$ nur um ein Isotop der Elemente Fm, Es, Cf oder um ein Molekülion handeln. Das Isotop ^{255}Cf hat eine Halbwertszeit von $\leq 2.5 \text{ h}$ und kann allein aufgrund dieser Tatsache ausgeschlossen werden. Wie in Abschnitt 5.6 erläutert wird, haben Molekülionen aufgrund ihrer gegenüber Atomen vergrößerten Radien eine geringere Ionenbeweglichkeit im Puffergas Argon und daher eine um ca. 20 % vergrößerte Driftzeit. Dass die Linien von Molekülionen stammen, kann daher aufgrund der Zeitspektren ausgeschlossen werden, siehe dazu auch Abb. 5.29. Basierend auf α - und γ -spektroskopischen Messungen der Probe am ORNL, wurde ein Atomzahlverhältnis $N_{255\text{Es}}/N_{255\text{Fm}} < 0.28$ zum Zeitpunkt des Experimentes berechnet, was die mögliche Beobachtung eines bisher unbekanntem atomaren Übergangs in Es nicht völlig ausschließt.

Tabelle 5.2: Korrelation der Resonanzzählrate $\dot{N}_{res}(t)$ mit der freigesetzten Fm-Teilchenrate $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ für Filament 1 ($i = 2, 6, 7$) und Filament 2 ($i = 9$).

i	t [s]	\dot{N}_{res} [1/s]	\dot{N}_{rel}^{Fm} [1/s]	$\dot{N}_{res}/\dot{N}_{rel}^{Fm}$
2	7200	237(1)	$5(1) \cdot 10^5$	$4(1) \cdot 10^{-4}$
6	16800	150(1)	$3.2(4) \cdot 10^5$	$4.7(6) \cdot 10^{-4}$
7	30780	16.0(4)	$1(4) \cdot 10^4$	$> 3.2 \cdot 10^{-4}$
9	14400	16.5(2)	$3.7(3) \cdot 10^4$	$4.5(4) \cdot 10^{-4}$

Daher wird im Folgenden die Zeitentwicklung der Resonanzzählrate auf der Massenzahl $A=255$, $\dot{N}_{res}(t)$, untersucht. Handelt es sich bei dem beobachteten Isotop um Fm, muss $\dot{N}_{res}(t)$ proportional zu der vom Filament freigesetzten Fm-Teilchenrate $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ sein:

$$\dot{N}_{res} = \epsilon \dot{N}_{rel}^{Fm} \quad (5.5)$$

Dabei wird die Annahme gemacht, dass die Effizienz ϵ der Nachweisapparatur über die Dauer des Experimentes konstant ist. Zu den vier Zeiten t_i , $i = 2, 6, 7, 9$ wurde $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t_i)$ gemessen. Die Messwerte sind in Tabelle 5.2 zusammen mit den in Kapitel 5.2 bestimmten Fm-Teilchenraten $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t_i)$ aufgeführt. In Abb. 5.18 ist das Verhältnis $\epsilon = \dot{N}_{res}(t)/\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ als Funktion der Zeit aufgetragen. Die Tatsache, dass ϵ über die gesamte Messdauer konstant ist stellt eine notwendige, aber nicht hinreichende Bedingung dafür dar, dass es sich bei dem nachgewiesenen Element um Fm handelt.

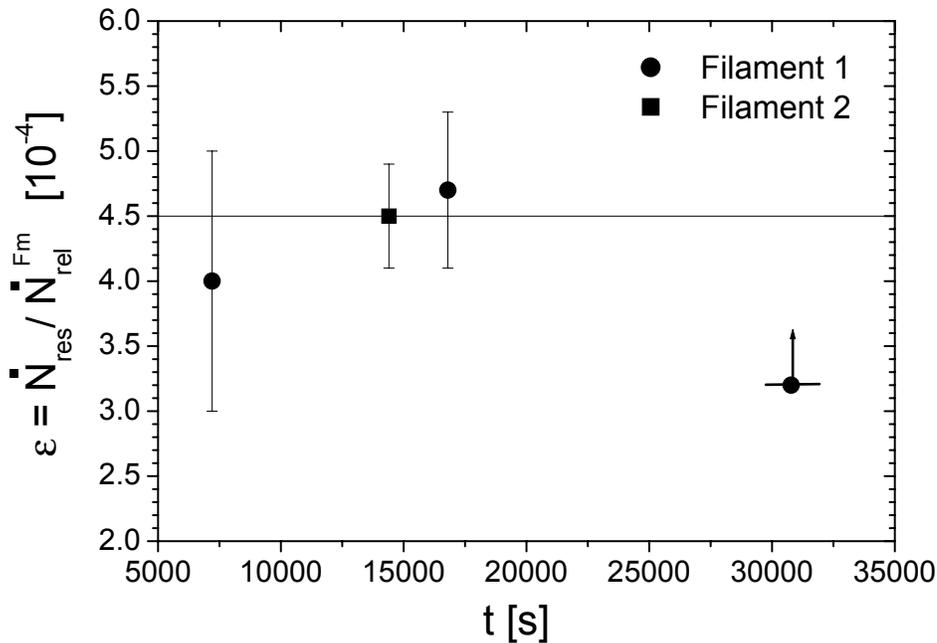


Abbildung 5.18: $\epsilon = \dot{N}_{res}(t)/\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ als Funktion der Zeit t . Die gestrichelte Linie bezeichnet den gewichteten Mittelwert der Werte $i = 2, 6, 9$ aus Tab. 5.2.

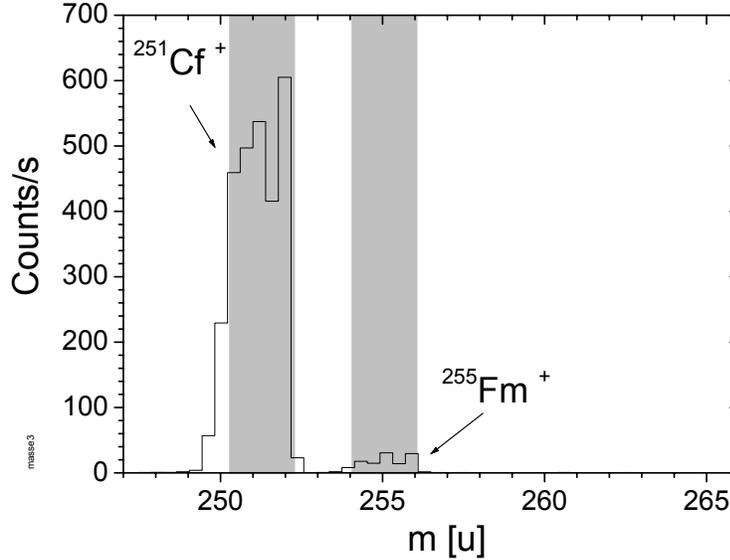


Abbildung 5.19: Massenspektrum bei der Energie 25111.80 cm^{-1} mit Filament 2 zur Zeit $t_8 = 6300 \text{ s}$. Die Massenbereiche, die für die Bestimmung der Zählraten $\dot{N}_{res}^{Cf}(t_8)$ und $\dot{N}_{res}(t_8)$ verwendet wurden, sind grau unterlegt.

Abschließend muss gezeigt werden, dass Es mit einer messbar unterschiedlichen Teilchenrate als Fm freigesetzt würde. Dies wird erwartet, da Es die deutlich niedrigere Freisetzungstemperatur $T_{Es} = 650(30) \text{ °C}$ [89] als Fm, $T_{Fm} = 960(20) \text{ °C}$ [89], besitzt. Aufgrund der Freisetzungstemperatur $T_{Cf} = 730(30) \text{ °C}$ [89] von Cf genügt es, einen Unterschied in der Zeitentwicklung der Cf-Resonanzzählrate $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)$ im Vergleich zu $\dot{N}_{res}(t)$ zu zeigen.

Die von der Wellenlänge des Farbstofflasers unabhängige, resonante Ionisation des Isotops ^{251}Cf ermöglicht $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)$ zu bestimmen. Zur Zeit $t_8 = 6300 \text{ s}$ wurde mit Filament 2 ein Massenspektrum aufgenommen und, wie in Abb. 5.19 erläutert, das Verhältnis $v_2 = \dot{N}_{res}^{Cf}(t_8)/\dot{N}_{res}(t_8) = 24(1)$ bestimmt. Nach derselben Methode wurde aus dem in Abb. 5.14 dargestellten Massenspektrum, dass mit Filament 1 zur Zeit $t_6 = 16800 \text{ s}$ aufgenommen wurde, $v_1 = \dot{N}_{res}^{Cf}(t_6)/\dot{N}_{res}(t_6) = 0.36(6)$ bestimmt. Die drastische Diskrepanz zwischen v_1 und v_2 zeigt bereits, dass die freigesetzte Teilchenrate eine empfindliche, elementspezifische Größe ist.

Tabelle 5.3: Korrelation der Cf-Zählrate $\dot{N}_{Cf}(t)$ mit dem Fm-Teilchenstrom $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ für Filament 2. Da $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t_8)$ nicht durch Interpolation bestimmt werden konnte, wurde der Wert nach Gl. 5.5 mit $\dot{N}_{res}(t_8) = 100(4)/\text{s}$ aus Abb. 5.19 und $\epsilon = 4.5(3) \cdot 10^{-4}$ berechnet.

i	t [s]	\dot{N}_{res}^{Cf} [1/s]	\dot{N}_{rel}^{Fm} [1/s]	$\dot{N}_{res}^{Cf}/\dot{N}_{rel}^{Fm}$
8	6300	2516(14)	$2.2(3) \cdot 10^5$	$1.1(2) \cdot 10^{-2}$
10	26400	199(7)	$5(2) \cdot 10^4$	$4(2) \cdot 10^{-3}$
11	30900	16(2)	$1.6(8) \cdot 10^5$	$1.0(5) \cdot 10^{-4}$

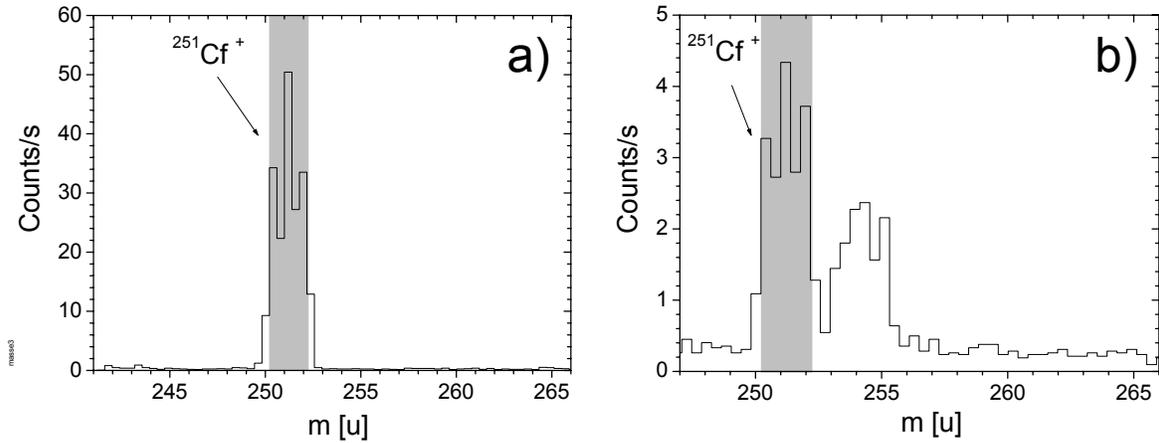


Abbildung 5.20: Massenspektrum mit Filament 2 zur Zeit $t_{10} = 26400$ s bei der Energie $\bar{\nu}_1 = 23990(1) \text{ cm}^{-1}$ (a) und zur Zeit $t_{11} = 30900$ s bei der Energie $\bar{\nu}_1 = 24052(1) \text{ cm}^{-1}$ (b). Beide Massenspektren wurden, wie in Abb. 5.12 erläutert, aufgenommen. Der Massenbereich, der für die Bestimmung der Zählraten $\dot{N}_{res}^{Cf}(t_{10})$ und $\dot{N}_{res}^{Cf}(t_{11})$ verwendet wurde, ist grau unterlegt.

Um auf die freigesetzte ^{255}Es -Teilchenrate schließen zu können, wurde $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)$ für Filament 2 als Funktion der Zeit bestimmt. Dazu wurden zu den Zeiten $t_{10} = 26400$ s und $t_{11} = 30900$ s zwei weitere Massenspektren aufgenommen, die in den Abbildungen 5.20 dargestellt sind.

Nach der für Abb. 5.14 erläuterten Methode wurden darin die Cf-Zählraten $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)$ bestimmt und sind in Tab. 5.3 aufgeführt. In Abb. 5.21 ist das Verhältnis der nachgewiesenen Cf-Resonanzzählrate zur freigesetzten Fm-Teilchenrate $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)/\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ als Funktion der Zeit t dargestellt. Es ist eine deutliche Abnahme des Verhältnisses mit der Zeit t zu erkennen, die darauf schließen lässt, dass Cf bei gleicher Temperatur mit einer höheren Teilchenrate als Fm freigesetzt wird. Dieses Verhalten wurde aufgrund der niedrigeren Cf-Freisetzungstemperatur erwartet. Die Freisetzungstemperatur von Es ist, wie bereits erwähnt, noch niedriger als T_{Cf} , so dass davon ausgegangen wird, dass die Elemente Fm und Es aufgrund der unterschiedlichen Zeitentwicklungen ihrer Freisetzungsraten unterschieden werden können.

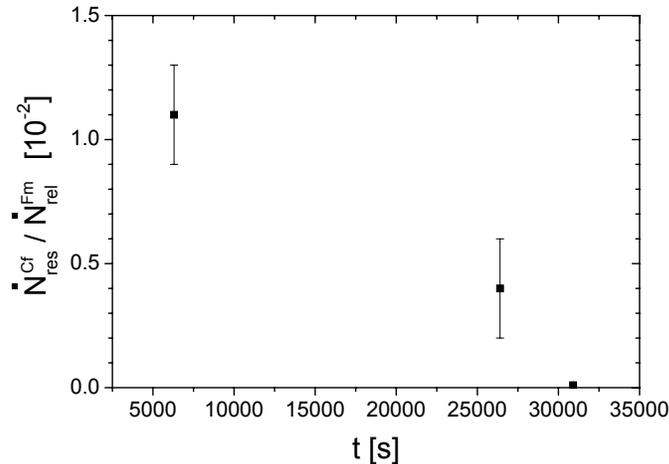


Abbildung 5.21: $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)/\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$ als Funktion der Zeit t . Der Fehler des Datenpunktes bei $t_{11} = 30900$ s ist kleiner als die dargestellte Punktgröße, siehe dazu auch Tab. 5.3.

Aus der beobachteten Proportionalität

$$\dot{N}_{res}(t)/\dot{N}_{rel}^{Fm}(t) = \epsilon = const. , \quad (5.6)$$

folgt daher dass die Resonanzzählrate $\dot{N}_{res}(t)$ und folglich der atomare Übergang bei 25111.8 cm^{-1} dem Isotop ^{255}Fm zugeordnet werden muss. Da das Verhältnis der Resonanzzählraten bei den Anregungsenergien von $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ und $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ in jeder Messung konstant war, muss der zweite Übergang ebenfalls dem Isotop ^{255}Fm zugeordnet werden. Die Proportionalitätskonstante ϵ bezeichnet demnach die Resonanzionisationseffizienz der Apparatur für den Nachweis des Isotops ^{255}Fm über das Zwischenniveau bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$. Aus den Messungen zu den Zeiten t_i , $i = 2, 6, 9$, s. Tab. 5.2, wurde $\epsilon = 4.5(3) \cdot 10^{-4}$ bestimmt. Eine Diskussion der Effizienz findet sich in Kapitel 4.4.

5.5 Messung des Sättigungsverhaltens

Um die Einsteinkoeffizienten für spontane Emission A_{ki} beider Linien zu bestimmen, wurde das Sättigungsverhalten gemessen. Dazu wurde die Wellenlänge des Farbstofflasers auf jeweils einer Resonanz festgehalten und die Photonenflussdichte Φ_1 mit Abschwächern der optischen Dichten 0.1 bis 3 variiert.

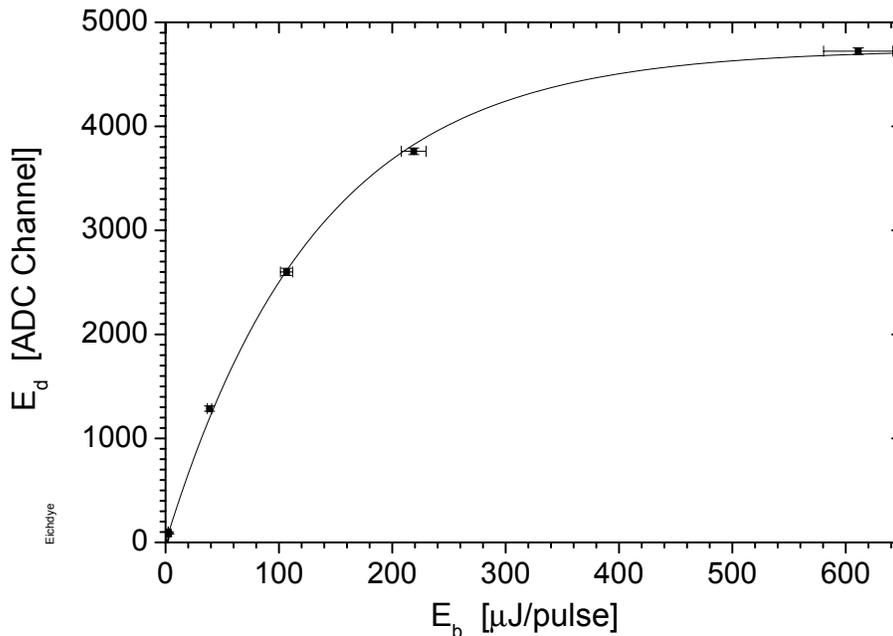


Abbildung 5.22: Eichung der Photodiode zur Impulsenergiemessung. Das digitalisierte Signal der Photodiode E_d ist als Funktion der mit einem bolometrischen Messkopf registrierten Impulsenergie E_b dargestellt. Eine Anpassung an die Datenpunkte mit Gl. (5.7) ist als durchgezogene Kurve mit den Parametern $a = 4.741(32) \cdot 10^3$ und $b = 7.5(1) \cdot 10^{-3}$ eingezeichnet.

5.5.1 Eichung der Photodiode

Zur Bestimmung der Photonenflussdichte Φ_1 im Wechselwirkungsvolumen, wurde ein Teil des Farbstofflaserlichtes über einen Strahlteiler auf eine Photodiode gelenkt, s. Kapitel 3.2, und die registrierte Intensität mitgeschrieben. Zur Eichung wurde die Impulsenergie E_b für verschiedene Abschwächer mit einem bolometrischen Messkopf (PEM 150) vor der optischen Zelle bestimmt, die Eichkurve ist in Abb. 5.22 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass das Signal der Photodiode E_d bei Impulsenergien von $E_b > 100\mu\text{J}/\text{Impuls}$ nichtlinear ansteigt. In diesem Bereich ist die Produktion von Photoelektronen nicht mehr proportional zur eingestrahlten Impulsenergie und kann mit einer Sättigungskurve beschrieben werden :

$$E_d = a (1 - e^{-b \cdot E_b}) . \quad (5.7)$$

Um von der Impulsenergie auf die Photonenflussdichte schließen zu können, müssen Annahmen zum Intensitätsprofil des Lasers und zur Dichteverteilung der Atome gemacht werden.

5.5.2 Bestimmung der Photonenflussdichte

Zur Bestimmung der Photonenflussdichte wurden die Intensitätsprofile $I(r)$ des Farbstofflasers und des Excimerlasers im Rahmen einer Diplomarbeit [63] gemessen. Dazu wurde zunächst das Laserlicht des Farbstofflasers hinter einer optischen Glasfaser zu einem parallelen Strahl mit einem Radius von $r_0 = 3.75$ mm fokussiert. Die Laserintensität wurde mit einer Photodiode, die hinter einer Lochblende mit einem Durchmesser von $20 \mu\text{m}$ angebracht war registriert. Das Detektorsystem, bestehend aus Photodiode und Lochblende, wurde in Schritten von 0.5 mm durch die horizontale Symmetrieachse des Strahls gefahren und das Intensitätsprofil mitgeschrieben. Nach demselben Verfahren wurde auch das Intensitätsprofil des Excimerlasers bei einem Strahlradius von $r_0 = 4.75$ mm gemessen. Es wird davon ausgegangen, dass das Laserprofil mit dem Durchmesser skaliert. Beide Profile lassen sich vereinfacht durch die in Abb. 5.23 dargestellte Funktion beschreiben.

In diesem Experiment wurde der Laser hinter der Faser mit einer Linse der Brennweite $f=2$ cm zu einem parallelen Lichtstrahl fokussiert. Zur Bestimmung des Strahldurchmessers wurde der Lichtreflex auf einem Blatt Millimeterpapier im Abstand von 20 cm von der Linse markiert. Bei diesem Abstand, der dem Abstand zwischen Linse und Fm-Filament entspricht, hatte sowohl der Strahlfleck des Excimerlasers, als auch der des Farbstofflasers einen Radius von $r_0 = 0.70(5)$ cm.

Mit dem bekannten Radius r_0 kann aus der Impulsenergie die Photonenflussdichte im Wechselwirkungsvolumen berechnet werden :

$$\Phi_1 = \frac{n_1}{A} = \frac{E_b}{h\nu_1} \frac{1}{A} \quad (5.8)$$

Die Querschnittsfläche des Lasers beträgt $A = 1.5(2)$ cm² und die Energie der Photonen $h\nu_1 = 5.0 \cdot 10^{-19}$ J bei $\bar{\nu}_1 = 25112$ cm⁻¹. Die Anstiegs- und Abfallflanke des Strahlprofils

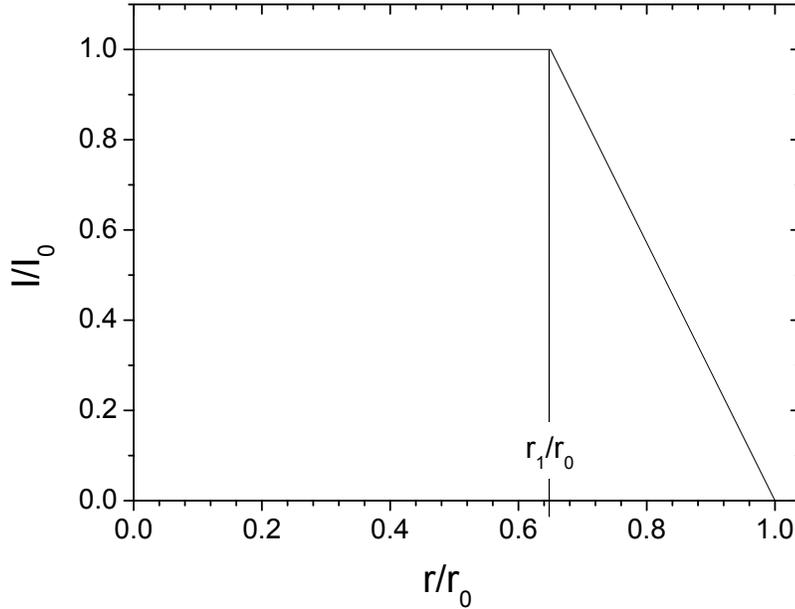


Abbildung 5.23: Räumliches Intensitätsprofil $I(r)$ von Excimer- und Farbstofflaser.

führen zu einem Fehler bei der Bestimmung des Sättigungsverhalten, der im Folgenden abgeschätzt wird.

Fehlerabschätzung

Bei kleinen Sättigungsparametern $\mathcal{S} \ll 1$, vergl. Gl. (E.37), ist der resultierende Fehler in der Resonanzzahlrate \dot{N}_{res} maximal und wird im Folgenden abgeschätzt. In diesem Fall ist \dot{N}_{res} proportional zur Faltung der Laserintensität $I(\vec{r} - \vec{r}_l)$ mit der räumlichen Dichteverteilung $N(\vec{r} - \vec{r}_a)$ der Fm-Atome :

$$\dot{N}_{res} \propto \int I(\vec{r} - \vec{r}_l) N(\vec{r} - \vec{r}_a) d^3r . \quad (5.9)$$

Die Achse des Laserstrahls wurde mit \vec{r}_l und das Zentrum der Verteilung der Atome mit \vec{r}_a bezeichnet.

Um Gl. (5.9) auswerten zu können, wird zunächst die räumliche Dichteverteilung $N(\vec{r} - \vec{r}_a)$ der Atome im Laservolumen abgeschätzt. Aufgrund von Diffusion und thermischer Konvektion findet eine Vermischung der Atome im Laservolumen statt. Mit dem in Ref. [26] entwickelten Modell kann die Konvektionsgeschwindigkeit v_{conv} als Funktion der Filamenttemperatur T abgeschätzt werden:

$$v_{conv} = 7 \cdot 10^4 \left(\frac{T}{1000} \right)^{-0.59} \cdot \frac{T_{fil} - T_0}{T^2} = 100 \text{ mm/ms} \quad (5.10)$$

Es bezeichnen $T_{fil} = 1300 \text{ K}$ die Filamenttemperatur und $T_0 = 370 \text{ K}$ die Temperatur der Wände der Puffergaszelle. Für die Temperatur im Laservolumen wurde die mittlere

Temperatur $T = \frac{T_{fil} + T_0}{2} = 835$ K angenommen. Die Diffusionsgeschwindigkeit wurde in Ref. [26] bei einer Temperatur von 1000 K zu $v_{dif} = 0.3$ mm/ms abgeschätzt und kann daher vernachlässigt werden. Aufgrund der hohen Konvektionsgeschwindigkeit wird angenommen, dass sich in der Zeit $t_L = 5$ ms zwischen zwei Laserimpulsen eine homogene Verteilung der Atome im Laservolumen einstellt, d.h. $N(\vec{r} - \vec{r}_a) = const.$

Unter dieser Annahme gilt

$$\frac{\Delta \dot{N}_{res}}{\dot{N}_{res}} \propto \frac{\Delta I(r)}{I(r)}, \quad (5.11)$$

mit dem Abstand r von der Achse des Laserstrahls. Der relative Fehler in der Resonanzfrequenzrate kann mit Gl. (5.11) und aus dem Verlauf des Intensitätsprofils, s. Abb. 5.23, wie folgt abgeschätzt werden :

$$\frac{\Delta \dot{N}}{\dot{N}} \propto \frac{\int_{r_1}^{r_0} I(r) dA}{\int_0^{r_0} I(r) dA} = \frac{\frac{1}{3} \pi I_0 (r_0 - r_1)^2}{\pi I_0 (r_1^2 + \frac{1}{3} (r_0 - r_1)^2)} = 0.08(4) = \frac{\Delta E_b}{E_b} \quad (5.12)$$

Hierbei bezeichnet ΔE_b den absoluten Fehler in der Bestimmung des Impulsenergieflusses E_b aufgrund der Flanken des Laserprofils. Zur Definition von r_0 und r_1 siehe Abb. 5.23.

Für den Fehler der Photonenflussdichte $\Delta \Phi_1$ im Wechselwirkungsvolumen ergibt sich daraus:

$$\Delta \Phi_1 = \frac{E_b}{h\nu_1} \frac{1}{A} \sqrt{\left(\frac{\Delta E_b}{E_b}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2} = 0.15 \cdot \Phi_1 \quad (5.13)$$

5.5.3 Messung der Sättigung des ersten Anregungsschrittes

Zur Messung des Sättigungsverhaltens des 1. Anregungsschrittes wurde die Photonenflussdichte Φ_1 von 0 bis $8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) variiert. Die Photonenflussdichte des Excimerlaserlichtes für den zweiten Schritt betrug bei allen Messungen $\Phi_2 = 6(1) \cdot 10^{15}$ Photonen/(cm² Impuls).

Da zum einen der maximale Photonenstrom mit der Zeit schwankt und zum anderen die Anzahl der vom Filament freigesetzten Fm-Atome mit Zeit und Temperatur variiert, wurde die Zählrate für jeden Messpunkt i jeweils im Wechsel mit maximalem Photonenstrom Φ_{1max}^i und abgeschwächtem Photonenstrom Φ_1^i bestimmt und die Zählrate auf $\dot{N}(\Phi_{1max}^i)$ normiert. Die Sättigungskurven sind in Abb. 5.24 dargestellt.

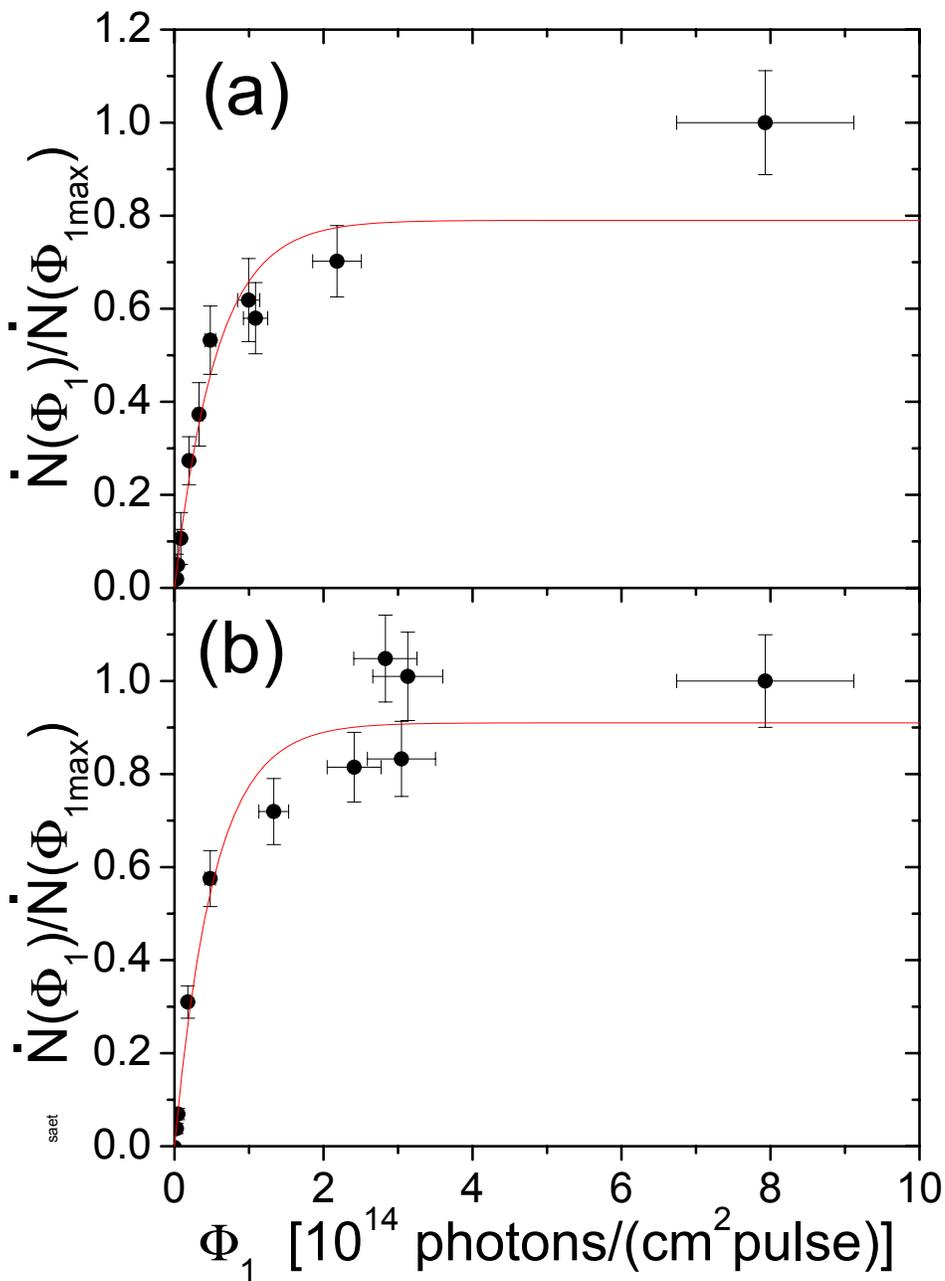


Abbildung 5.24: Sättigungsverhalten für den optischen Übergang (a) bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ und (b) bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$. Dargestellt ist die auf $\dot{N}(\Phi_{1max}) \approx 148/s$ normierte Zählrate auf der Masse $A=255$ als Funktion der Photonendichte Φ_1 des ersten Anregungsschrittes. Die durchgezogenen Linien sind Anpassungen von Sättigungskurven zur Umrechnung von x-Fehlern in y-Fehler, s. Anhang F.

5.5.4 Messung der Sättigung des zweiten Anregungsschrittes

Zur Messung des Sättigungsverhaltens des 2. Anregungsschrittes wurde die Photonendichte Φ_2 von 0 bis $5.0(8) \cdot 10^{15}$ Photonen/(cm² Impuls) variiert. Der Farbstofflaser wurde auf der Energie $\bar{\nu}_1 = 25111.80 \text{ cm}^{-1}$ mit einer Photonendichte von $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) festgehalten.

Aus der Sättigungskurve, die in Abb. 5.25 dargestellt ist, soll im Folgenden der Wirkungsquerschnitt für die Ionisation σ_i abgeschätzt werden. Nach der ersten Anregung befinden sich 50% der Atome im Zwischenniveau und werden mit der Wahrscheinlichkeit ϵ_{RIS} ionisiert [62] :

$$\epsilon_{RIS} = 0.5 (1 - e^{-\sigma_i \Phi_2}) \quad (5.14)$$

Eine Bestimmung von σ_i durch Anpassung der Funktion $S(\Phi_2) = A(1 - e^{-\sigma_i \Phi_2})$ ist nicht möglich, da in Abb. 5.25 kein Sättigungsverhalten erkennbar ist. Es ist allerdings möglich eine Obergrenze für σ_i abzuschätzen. Dazu wurde die Funktion $S(\Phi_2)$ so an die Datenpunkte angepasst, dass σ_i maximal wird und alle Datenpunkte noch innerhalb der Fehler mit $S(\Phi_2)$ übereinstimmen. Die Funktion mit den Parametern $A = 37/s$ und $\sigma_i = 10^{-16} \text{ cm}^2$ ist als durchgezogene Linie in Abb. 5.25 eingezeichnet. Daraus erhält man die Obergrenze $\sigma_i \leq 10^{-16} \text{ cm}^2$ für den optischen Wirkungsquerschnitt des zweiten Anregungsschrittes. Dies ist im Einklang mit Ref. [62], in der typische Werte für die Wirkungsquerschnitte für nicht-resonante Ionisation von $10^{-17} \text{ cm}^2 \leq \sigma_i \leq 10^{-16} \text{ cm}^2$ angegeben werden.

Darüberhinaus kann mit Gl. 5.14 die Effizienz für den zweiten Anregungsschritt bei dem maximalen Photonfluss von $\Phi_2 = 5.0(8) \cdot 10^{15}$ Photonen/(cm²·s), $\epsilon_{RIS} \leq 0.2$ abgeschätzt werden.

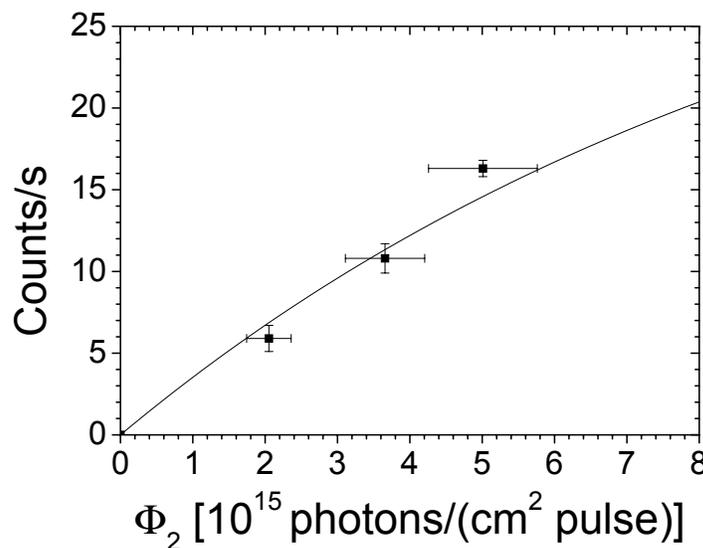


Abbildung 5.25: Zählrate auf der Masse $A=255$ als Funktion des Photonenflusses Φ_2 des zweiten Anregungsschrittes. Aus der durchgezogenen Kurve kann für den optischen Wirkungsquerschnitt des 2. Schrittes die Obergrenze $\sigma_i \leq 10^{-16} \text{ cm}^2$ bestimmt werden.

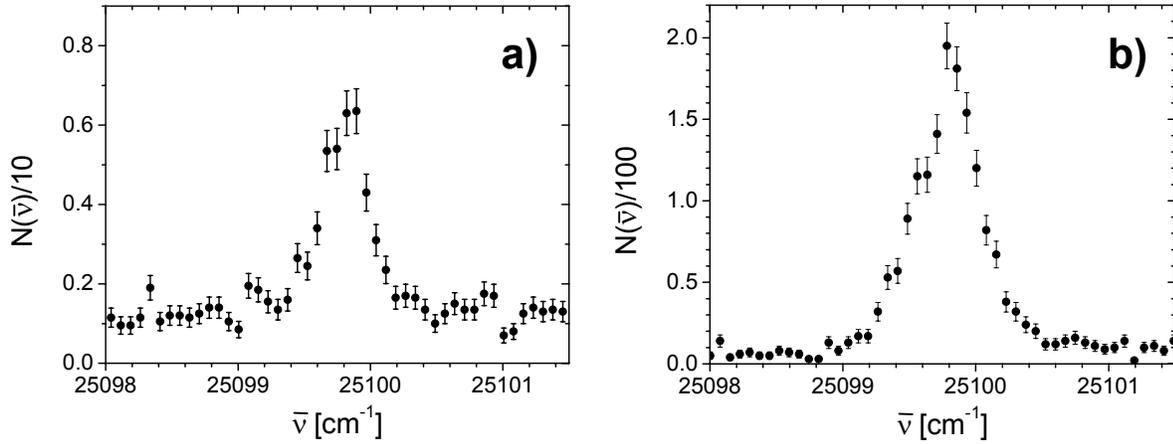


Abbildung 5.26: Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 0.50(8) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (a) und $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (b).

5.5.5 Messung der Linienformen

Zur Bestimmung der Sättigungsverbreiterung sind die Linienformen bei den Energien $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ und $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ bei zwei verschiedenen Photonenflussdichten Φ_1 aufgenommen worden. Die Flussdichte des zweiten Schrittes betrug bei allen Messungen $\Phi_2 = 6(1) \cdot 10^{15}$ Photonen/(cm^2 Impuls). In Abb. 5.26 ist die Linie bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 0.50(8) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (a) und $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (b) dargestellt und in Abb. 5.27 ist die Linie bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 0.50(8) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (a) und $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (b) dargestellt.

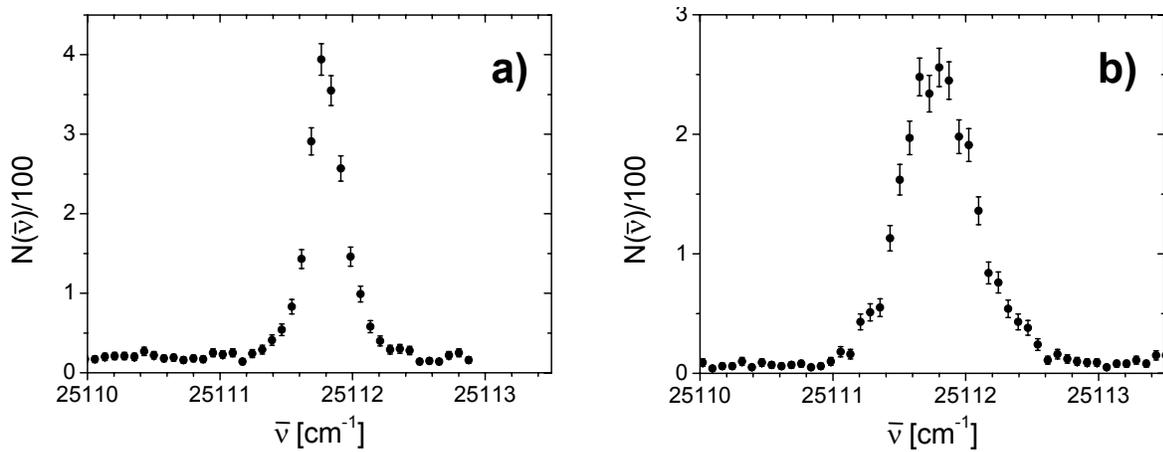


Abbildung 5.27: Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 0.50(8) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (a) und $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) (b).

5.6 Driftzeitmessungen

Neben ^{251}Cf und ^{255}Fm wurde bei der hohen Filamenttemperatur von $1215 \pm 70^\circ\text{C}$ eine weitere Linie bei der Massenzahl $A=254$ beobachtet, deren Intensität bei einem Wellenzahlen-Scan über den Bereich von 24051.84 cm^{-1} bis 24093.60 cm^{-1} unverändert blieb, siehe Abb. 5.28. Eine Erklärung könnte die nicht-resonante Ionisation eines Moleküls durch zwei UV-Photonen des Excimerlasers sein. Ein möglicher Kandidat ist UO^+ . Diese Hypothese wird von der deutlich erhöhten Driftzeit dieser Ionen im Puffergas gestützt, s. Abb. 5.29. Derartige UO^+ Ionen wurden bei allen elektrochemisch hergestellten Filamenten am Institut für Kernchemie auch bei RIMS-Experimenten beobachtet. Als Ursache wird das Vorkommen von Uran in der als Lösungsmittel benutzten HCl-Lösung angegeben. Bei der elektrochemischen Herstellung fällt Uran als Oxid aus, das auf den Filamenten abgeschieden und bei höheren Temperaturen als UO abgedampft wird [45]. Durch die beschränkte Massenaufösung von $\Delta m/m \approx 8 \cdot 10^{-3}$ können auch auf der Masse $A=255$ noch etwa 50% der UO^+ Ionen nachgewiesen werden. Diese Annahme erklärt den Untergrund in Abb. 5.11, der aufgrund der Zeitverteilung auf Molekülionen zurückgeführt wurde.

In Abb. 5.29 sind die Zeitverteilungen der drei beobachteten Ionenspezies $^{255}\text{Fm}^+$, $^{251}\text{Cf}^+$ und $^{238}\text{UO}^+$ dargestellt. In den Zeitverteilungsspektren der Ionen sind deutliche Linienschiebungen zwischen unterschiedlichen atomaren und molekularen Ionen erkennbar. Das $^{255}\text{Fm}^+$ - und das $^{251}\text{Cf}^+$ -Spektrum wurden mit dem Farbstofflaser auf der Wellenzahl $\bar{\nu}_{\text{Fm}} = 25111.80\text{ cm}^{-1}$ bzw. $\bar{\nu}_{\text{Cf}} = 26408.31\text{ cm}^{-1}$ aufgenommen. Der Massenfilter stand dabei fest auf der Massenzahl $A=255$ bzw. $A=251$. Bei der UO^+ -Messung wurde der Massenfilter über den Bereich von $A=246$ bis $A=266$ durchgestimmt und der Farbstofflaser auf der Wellenzahl $\bar{\nu} = 24063.23\text{ cm}^{-1}$ festgehalten. Die Zeitverzögerung ist im wesentlichen auf den Transport der Ionen mit Hilfe elektrischer Felder im Puffergas zurückzuführen. Eine Interpretation dieser unterschiedlichen Driftzeiten wird in Kapitel 7.2 vorgenommen.

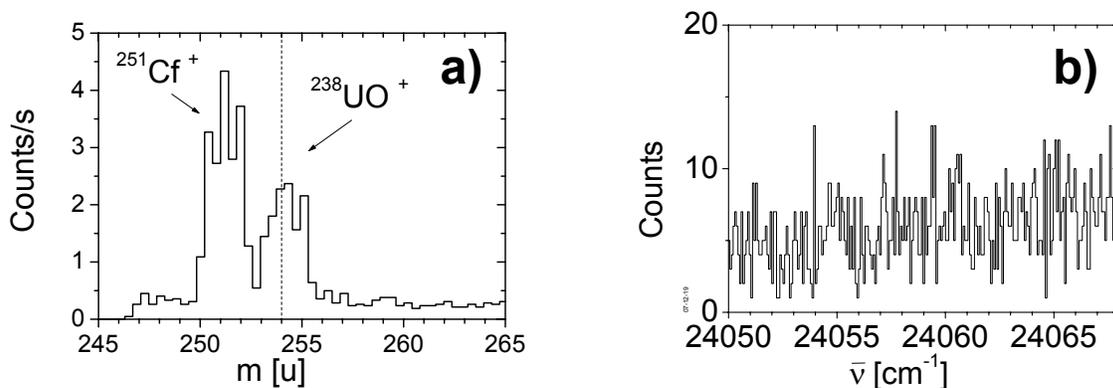


Abbildung 5.28: Massenspektrum mit $\bar{\nu}_1 = 24063.23\text{ cm}^{-1}$ (a). Wellenzahlen-Scan bei $A=254$ (b). Beide Spektren wurden bei der Filamenttemperatur $T = 1215 \pm 70^\circ\text{C}$ aufgenommen.

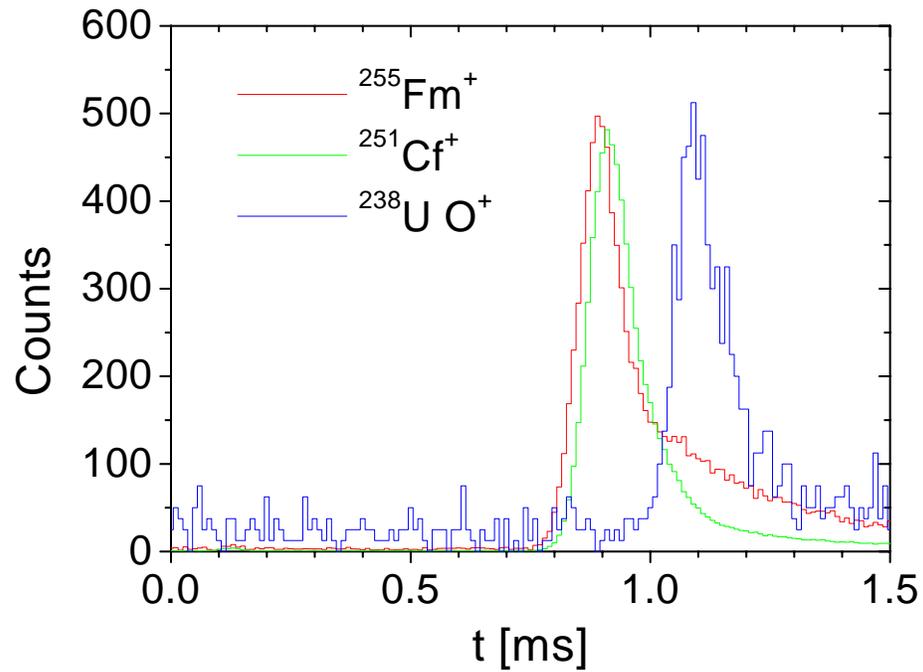


Abbildung 5.29: Zeitverteilung der massenselektierten Ionen. Das Startsignal gibt der Laser-Trigger bei $t=0$ ms.

Kapitel 6

Bestimmung der Übergangsraten aus den Sättigungsmessungen

Um die Einsteinkoeffizienten für spontane Emission A_{ki} der in Abb. 5.10 dargestellten, atomaren Übergänge zu bestimmen, wurde das Sättigungsverhalten beider Übergänge gemessen, s. Kapitel 5.5.3. In einem reinen Zwei-Niveau-System kann das Sättigungsverhalten mit einem einfachen Ratengleichungsmodell beschrieben werden, dessen Lösung durch die Gleichung

$$\dot{N}(\Phi_1) = \dot{N}_0(1 - e^{-\sigma_1 \cdot \Phi_1}) \quad (6.1)$$

gegeben ist [62]. Durch Anpassen der Parameter \dot{N}_0 und σ_1 kann der optische Anregungswirkungsquerschnitt σ_1 bestimmt werden. Mit Gl. (2.15) folgt daraus :

$$A_{ki} = \sigma_1 \frac{g_i}{g_k} \frac{1}{\lambda^2} \frac{2\pi\delta_l}{\sqrt{\pi \ln 2}} \quad (6.2)$$

Wie bereits in Kapitel 2.3 erwähnt wurde, ist dieses Modell nur gültig, sofern das spektrale Profil des Lasers konstant über den Anregungsbereich der atomaren Linie ist. Aufgrund der spektralen Verteilung des Lasers mit der vollen Halbwertsbreite δ_l und der Linienbreite γ' des Übergangs muss $\delta_l \gg \gamma'$ erfüllt sein.

In diesem Experiment wurde jedoch eine Leistungsverbreiterung beider Übergänge von $\gamma' = 5.7 \cdot 10^{10}$ rad/s bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 0.50(8) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) auf $\gamma' = 1.1 \cdot 10^{11}$ rad/s bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) beobachtet, s. Kapitel 5.5.5. Mit der Bandbreite des Lasers $\delta_l \approx 3.0 \cdot 10^{10}$ rad/s [60] wird die Bedingung $\delta_l \gg \gamma'$ nicht mehr erfüllt. Deshalb wurde ein mathematisches Modell entwickelt, mit dem sowohl das Sättigungsverhalten, als auch die Linienform der Übergänge in Abhängigkeit der Linienform des Anregungslasers beschrieben werden kann.

In Kapitel 6.3 wird das Modell unter Annahme verschiedener spektraler Profile des Laser an die Daten angepasst und daraus die Einsteinkoeffizienten A_{ki} bestimmt.

6.1 Beschreibung des Sättigungsverhaltens und der Linienform

Für die konsistente Beschreibung sowohl des Sättigungsverhaltens, als auch der beobachteten Linienverbreiterung, wurde ein mathematisches Modell entwickelt, das in Anhang E dargestellt ist. Mit Gl. (E.39) und Gl. (E.40) kann die beobachtete Zählrate $\dot{N}(\Phi_1)/\dot{N}(\Phi_{1max})$ als Funktion der Photonendichte Φ_1 und der Mittenfrequenz ω_I des Anregungslasers durch die Gleichung

$$\dot{N}(\Phi_1)/\dot{N}(\Phi_{1max}) = \mathcal{U} + \mathcal{A} \left(1 - e^{-P_2 \frac{1}{2} \frac{\mathcal{S}(\omega_I)}{1+\mathcal{S}(\omega_I)} \left[t_0 + \frac{1}{\gamma_{12}[1+\mathcal{S}(\omega_I)]} (e^{-\gamma_{12}[1+\mathcal{S}(\omega_I)]t_0} - 1) \right]} \right) \quad (6.3)$$

beschrieben werden. Für den frequenzabhängigen Sättigungsparameter $\mathcal{S}(\omega_I)$, gilt nach Gl. (E.37) :

$$\mathcal{S}(\omega_I) = \frac{g_k \lambda_1^2 \Phi_1}{g_i 2\pi t_0} \int \mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) \frac{\gamma'/2}{(\omega_{12} - \omega'_I)^2 + \gamma'^2/4} d\omega'_I. \quad (6.4)$$

Das flächennormierte, spektrale Intensitätsprofil des Farbstofflasers wurde mit $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$ bezeichnet. Sowohl die Amplitude \mathcal{A} , der Untergrund \mathcal{U} und die Übergangsrate P_2 im zweiten Schritt als auch die partielle Übergangsrate in den Grundzustand $\gamma_{12} = A_{ik}$, die aus natürlicher Linienbreite, dephasierenden Stößen und Phasenfluktuationen im Laserimpuls resultierende Linienbreite γ' und die Resonanzfrequenz ω_{12} wurden mit der in Anhang F dargestellten Anpassungsroutine an die Messdaten angepasst.

6.2 Das spektrale Intensitätsprofil des Lasers

Gleichung (6.3) erlaubt die Beschreibung der Abhängigkeit der registrierten Zählrate sowohl von der eingestrahlten Laserintensität (Sättigungsverhalten), als auch von der eingestrahlten Wellenlänge (Linienform). In das Modell geht das spektrale Intensitätsprofil $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$ des Farbstofflasers ein, mit der Mittenfrequenz ω_I des Lasers, um die die Frequenzen ω'_I verteilt sind. Da das spektrale Intensitätsprofil nicht hinreichend genau bekannt ist, werden im Folgenden Modellannahmen zu $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$ gemacht.

6.2.1 Die Einhüllende des spektralen Profils des Farbstofflasers

Die Wellenlängenselektion im Farbstofflaser, der ohne Intra-Cavity Etalon betrieben wurde, geschieht mit einem Gitter mit der Gitterkonstanten $d = 1.6 \mu\text{m}$, dessen Flächennormale relativ zum einfallenden Lichtstrahl variiert werden kann. Bei einer Wellenlänge von $\lambda = 400 \text{ nm}$ beträgt der Winkel zwischen Lichtstrahl und Flächennormale $\beta = 57^\circ$. Die Anzahl der ausgeleuchteten Gitterfurchen ist von der Aufweitung

des Laserstrahls im Oszillator abhängig und beträgt etwa $N = 23000$. Bei der Wellenlänge $\lambda = 400$ nm wird das Gitter in der Ordnung $m = 7$ betrieben. Die Bandbreite beträgt in diesem Fall $\Delta\omega_l = 6.7 \cdot 10^{10}$ rad/s (FWHM) [60].

Über die beobachteten Linienprofile atomarer Resonanzen bei kleinem Sättigungsparameter ($\mathcal{S} \ll 1$) kann die Einhüllende des differentiellen, flächennormierten, spektralen Intensitätsprofils mit der Funktion

$$\mathcal{G}^I(\omega_I - \omega'_I) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_l} e^{-\frac{(\omega_I - \omega'_I)^2}{2\sigma_l^2}} \quad (6.5)$$

beschrieben werden [63]. Die Standardabweichung σ_l der spektralen Verteilung des Lasers wurde an den beobachteten Linienbreiten bei kleinem Photonfluss $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) angepasst. Die Linien sind in den Abbildungen 5.26 (a), 5.27 (a) und in den Abb. 6.3 und 6.4 dargestellt. Die Anpassung, die in Anhang F beschrieben ist, ergibt $\sigma_l = 2.2(1) \cdot 10^{10}$ rad/s und ist in hinreichender Übereinstimmung mit der Herstellerangabe $\sigma_l = 2.8 \cdot 10^{10}$ rad/s.

6.2.2 Die Modenstruktur des Farbstofflasers

Die Einhüllende der spektralen Verteilung $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$ wird, wie in Kapitel 6.2.1 diskutiert wurde, von der Funktion $\mathcal{G}^I(\omega_I - \omega'_I)$ beschrieben. Aufgrund der Moden, die sich im Laserresonator ausbilden, besitzt $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$ jedoch eine Substruktur, zu der im Folgenden Modellannahmen gemacht werden.

Die Länge eines Laserimpulses beträgt $t_0 = 15$ ns [91]. Unter der Annahme, dass die spektrale Breite des Impulses Fourier-limitiert ist beträgt diese $\gamma_l = 6.7 \cdot 10^7$ rad/s (FWHM). Dies ist im Widerspruch zu der spektralen Breite des Lasers $\sigma_l = 2.2(1) \cdot 10^{10}$ rad/s s. Kapitel 6.2.1. Daher wird angenommen, dass ein Laserimpuls durch Modensprünge in viele Wellenzüge mit statistisch verteilter Phasenlage zerteilt wird.

In Messungen der spektralen Verteilung $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I)$ können einzelne Moden des Farbstofflasers aufgelöst werden [91]. Aus den Messungen geht jedoch nicht hervor, ob in jedem Laserimpuls nur genau eine Fourier-limitierte Mode anschwingt und sich die beobachtete Breite der spektralen Verteilung durch Aufsummieren vieler Impulse ergibt oder ob in jedem Impuls alle Moden anschwingen.

Sind die einzelnen Moden breit gegen den Modenabstand und schwingen alle Moden gleichzeitig an, so gilt $\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) \approx \mathcal{G}^I(\omega_I - \omega'_I)$, s. Abb. 6.1. Dieser Fall wird in Kapitel 6.3 (a) diskutiert.

Da die Moden in Konkurrenz zueinander anschwingen ist die Anzahl der Moden, die die Schwellwert-Inversion im Verstärkermedium erreichen, beschränkt. Es wird davon ausgegangen, dass nur die longitudinalen Moden die Inversionsgrenze überschreiten, für die gilt $\omega_I - 2.5\sigma_l \leq \omega_{M_k} \leq \omega_I + 2.5\sigma_l$, wobei ω_{M_k} die Mittenfrequenz der k-ten Mode bezeichnet. Für einen Resonator der Länge $d=255$ mm beträgt der Modenabstand $\delta_M = \omega_{M_k} - \omega_{M_{k+1}} = \pi c/d = 3.7 \cdot 10^9$ rad/s, so dass in den Modellrechnungen in Kapitel 6.3 (b)-(d) insgesamt 31 Moden berücksichtigt werden.

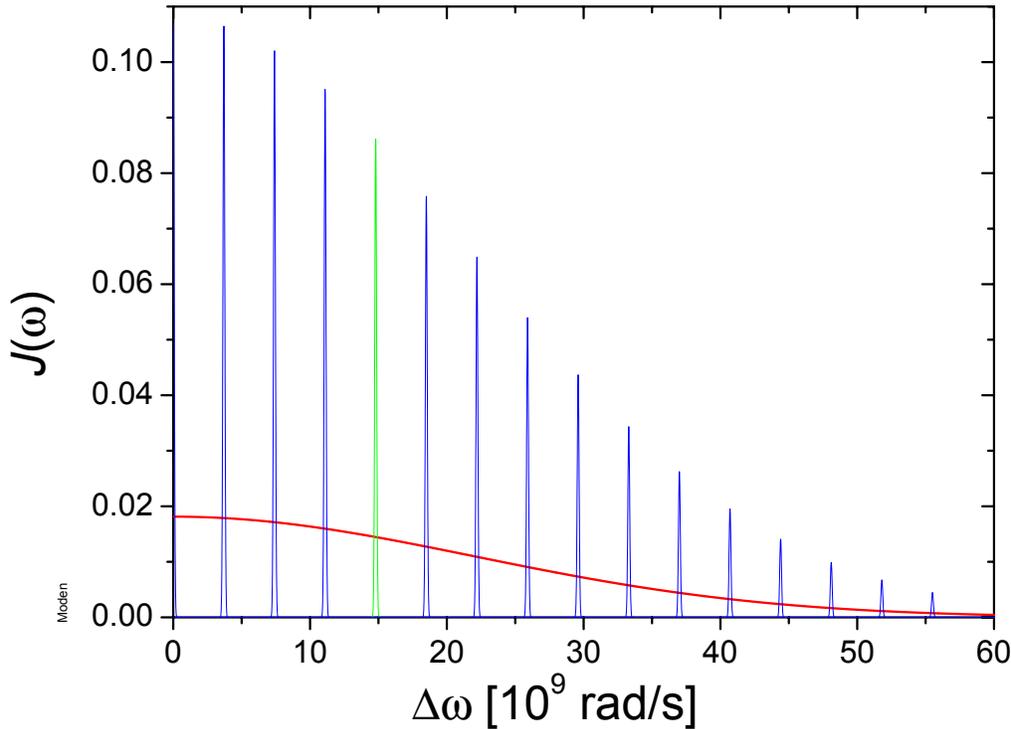


Abbildung 6.1: Annahmen für die spektrale Intensitätsverteilung des Farbstofflasers. Dargestellt ist sowohl ein Gaußprofil mit der Breite $\sigma_l = 2.2 \cdot 10^{10}$ rad/s als auch eine Struktur aus 31 Fourier-limitierten Moden mit der Breite $\gamma_M = 1/15$ ns = $6.7 \cdot 10^7$ rad/s innerhalb von $\pm 2.5 \sigma_l$.

6.3 Analyse unter Modellannahmen für das spektrale Intensitätsprofil des Lasers

In diesem Kapitel werden Modellrechnungen für verschiedene spektrale Intensitätsprofile des Farbstofflasers, s. Kapitel 6.2 diskutiert, die über das in Anhang F dargestellte Verfahren an die Messdaten angepasst wurden.

(a) Modellannahme einer einfachen Gaußverteilung

Im Folgenden wird die Annahme diskutiert, dass die spektrale Intensitätsverteilung des Farbstofflasers der Einhüllenden $\mathcal{G}^I(\omega_I - \omega'_I)$ entspricht :

$$\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) = \mathcal{G}^I(\omega_I - \omega'_I). \quad (6.6)$$

Eine Anpassung der Modellrechnungen am Sättigungsverhalten und an den Linienformen bei Photonenströmen von $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) und $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) ist für beide Übergänge in den Abbildungen 6.3 (a)

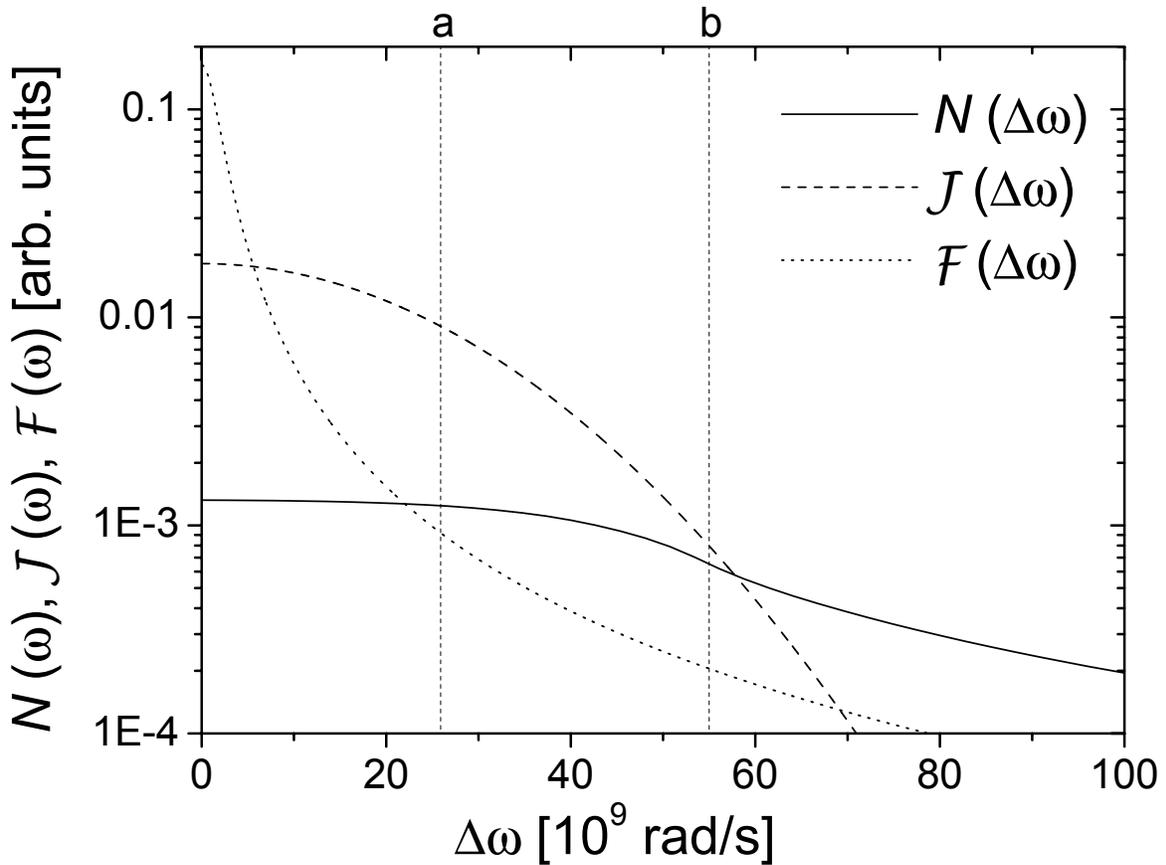


Abbildung 6.2: Anteile an der beobachteten Breite des Linienprofils $N(\Delta\omega)$ mit $\Delta\omega = \omega_I - \omega'_I$ bei einem Photonenfluss $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls). Dargestellt sind weiterhin die durch Phasenfluktuationen verbreiterte atomare Resonanzlinie $\mathcal{F}(\Delta\omega)$ mit der Breite $\gamma' = 3.9(3) \cdot 10^9$ rad/s und das Laserprofil $\mathcal{J}(\Delta\omega)$. Beide Funktionen sind flächennormiert. Die Halbwertsbreiten des Laserprofils (a) und des gesättigten Linienprofils (b) sind mit senkrechten, gepunkteten Linien gekennzeichnet.

und 6.4 (a) dargestellt. In Tab. 6.1 und Tab. 6.2 sind die Anpassungsparameter aufgeführt.

Die Rechnungen beschreiben sehr gut den Verlauf aller Messkurven mit Ausnahme der Linienform des Übergangs bei $\bar{\nu} = 25099.8$ cm⁻¹ bei einer Photonenflussdichte von $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) in Abb. 6.3 (a). Die Messkurve weist eine deutlich ausgeprägtere Spitze auf, als das berechnete, leistungsverbreiterte Linienprofil. Die Struktur in der Resonanzkurve ist bereits bei der Messung mit $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) erkennbar, die Abweichung von der Modellrechnung wird jedoch im leistungsverbreiterten Profil markanter. Eine Erklärung für diese Abweichung könnte eine Substruktur im Laserprofil sein. Mögliche Gründe für eine solche Substruktur werden in Kapitel 6.2.2 diskutiert.

Die Übergangsrate P_2 im zweiten Schritt hatte in beiden Anpassungen keinen Einfluss auf die Linienformen und wurde für die Rechnungen auf $P_2 = 6.7 \cdot 10^6$ /s gesetzt.

Die Anteile an der beobachteten Linienbreite bei einem Photonenfluss $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) sollen anhand von Abb. 6.2 erläutert werden. Es ist zu erkennen, dass die große Sättigungsverbreiterung von $1.1 \cdot 10^{11}$ rad/s darauf zurückzuführen ist, dass der Übergang bereits bei 1/10 der maximalen Laserintensität gesättigt ist. Diese Leistung wird bereits weit außen in den Flanken der spektralen Intensitätsverteilung $\mathcal{J}^I(\Delta\omega)$ bei $\Delta\omega \approx 2\sigma_I$ erreicht.

(b) Modellannahme 31 simultan anschwingender Moden

In diesem Abschnitt wird die Annahme diskutiert, dass sich die spektrale Intensitätsverteilung, wie in Abb. 6.1 dargestellt ist, aus 31 einzelnen Moden zusammensetzt. Es wird davon ausgegangen, dass alle Moden in jedem Laserimpuls anschwingen. Die Breite γ_M der Moden soll Fourier-limitiert sein, d.h. als Linienform der Einzelmode wird eine Lorentzkurve mit der Breite $\gamma_M = 1/t_0 = 6.7 \cdot 10^7$ rad/s angenommen. Weiterhin wird angenommen, dass die Phase der Moden statistisch verteilt ist.

$$\mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I) = \mathcal{C} a_k \frac{\gamma_M/(2\pi)}{(\omega_{M_k} - \omega'_I)^2 + \gamma_M^2/4} \quad (6.7)$$

$a_k = \mathcal{G}^I(\omega_I - \omega_{M_k})$ ist der Wichtungsfaktor der k-ten Mode und \mathcal{C} eine Normierungskonstante. Mit der Bedingung, dass die Summe der Flächen unter den Verteilungsfunktionen 1 ergeben muss, lässt sich \mathcal{C} berechnen :

$$\sum_k \int \mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I) d\omega'_I = \mathcal{C} \sum_k a_k = 1 \quad (6.8)$$

Unter der Annahme, dass die mittlere Mode mit der Mittenfrequenz des Lasers übereinstimmt ($\omega_{M_0} = \omega_I$) und mit dem Modenabstand $\delta_M = 3.7 \cdot 10^9$ rad/s erhält man :

$$\mathcal{C} = \frac{1}{\sum_{k=-15}^{15} \mathcal{G}(k\delta_M)} \quad (6.9)$$

Mit Gl. (6.5) lässt sich dann das spektrale Intensitätsprofil ausdrücken :

$$\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) = \sum_{k=-15}^{15} \frac{e^{-\frac{(k\delta_M)^2}{2\sigma_I^2}}}{\left(1 + 2 \sum_{k=1}^{15} e^{-\frac{(k\delta_M)^2}{2\sigma_I^2}}\right)} \frac{\gamma_M/(2\pi)}{(\omega_{M_k} - \omega'_I)^2 + \gamma_M^2/4} \quad (6.10)$$

Aufgrund der verschwindenden Modenbreite $\gamma_M = 0.067 \cdot 10^9$ rad/s im Vergleich zu dem homogen verbreiterten atomaren Übergang mit $\gamma' \approx 4 \cdot 10^9$ rad/s wurde für die Anpassungsfunktion Gl. (6.10) mit der Dirac Delta-Funktion $\delta(\omega_{M_k} - \omega'_I)$ vereinfacht :

$$\mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) = \sum_{k=-15}^{15} \frac{e^{-\frac{(k\delta_M)^2}{2\sigma_I^2}}}{14.8} \delta(\omega_{M_k} - \omega'_I) . \quad (6.11)$$

Eine Anpassung der Modellrechnungen am Sättigungsverhalten und an den Linienformen bei Photonentrömen von $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) und $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) ist für beide Übergänge in den in Abbildungen 6.3 (b) und 6.4 (b) dargestellt. In Tab. 6.1 und Tab. 6.2 sind die Anpassungsparameter aufgeführt.

Obwohl in dieser Annahme der Abstand der Moden $\delta_M = 3.7 \cdot 10^9$ rad/s groß gegen ihre Breite $\gamma_M = 0.067 \cdot 10^9$ rad/s ist, sind die Ergebnisse der Anpassungen nahezu identisch mit den Ergebnissen für eine einfache Gaußverteilung. Daraus lässt sich schließen, dass bei der Berücksichtigung von 31 Moden die Breite der Moden keinen Einfluss auf die Übergangsraten A_{ik} haben.

(c) Modellannahme einer einzeln anschwingenden Mode

Der vorhergehenden Rechnung soll nun die Annahme, dass genau eine Mode in jedem Laserimpuls anschwingt gegenübergestellt werden. In diesem Fall ist die spektrale Intensitätsverteilung gegeben durch :

$$\mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I) = \frac{\gamma_M/(2\pi)}{(\omega_{M_k} - \omega'_I)^2 + \gamma_M^2/4} \quad (6.12)$$

$$\approx \delta(\omega_{M_k} - \omega'_I) , \quad (6.13)$$

mit der Dirac Delta-Funktion $\delta(\omega_{M_k} - \omega'_I)$. Damit diese Annahme nach Mittelung über viele Laserimpulse dem experimentell beobachteten spektralen Profil des Lasers $\mathcal{G}(\omega_I - \omega'_I)$ entspricht, muss für die Wahrscheinlichkeit dafür, dass die k-te Mode $\mathcal{P}(M_k)$ anschwingt, gelten :

$$\mathcal{P}(M_k) = \mathcal{G}^I(\omega_I - \omega_{M_k}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_I} e^{-\frac{(\omega_I - \omega_{M_k})^2}{2\sigma_I^2}} . \quad (6.14)$$

Mit der Besetzungswahrscheinlichkeit $\rho_{33}(t_0, \mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I))$, s. Gl. (E.39), von Niveau 3 zur Zeit t_0 unter der Annahme von $\mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I)$ aus Gl. (6.13) folgt dann nach Mittelung über viele Laserimpulse für die Besetzungswahrscheinlichkeit $\bar{\rho}_{33}(t_0)$:

$$\bar{\rho}_{33}(t_0) = \frac{1}{\sum_{k=-15}^{15} \mathcal{P}(M_k)} \sum_{k=-15}^{15} \mathcal{P}(M_k) \rho_{33}(t_0, \mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I)) \quad (6.15)$$

Eine Anpassung der Modellrechnungen am Sättigungsverhalten und an den Linienformen bei Photonentrömen von $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) und $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) ist für beide Übergänge in den in Abbildungen 6.3 (c) und 6.4 (c) dargestellt. In Tab. 6.1 und Tab. 6.2 sind die Anpassungsparameter aufgeführt.

Diese Modellrechnung liefert sowohl für das Sättigungsverhalten, als auch für die Linienform deutlich abweichende Kurvenformen im Vergleich zu den Modellannahmen einer einfachen Gaußverteilung und dem simultanen Anschwingen von 31 Moden. Dennoch stimmen die Ergebnisse für die Übergangsraten A_{ik} für beide Übergänge im Rahmen der Fehler mit den Ergebnissen der anderen Modellannahmen überein.

(d) Modellannahme einer Kombination aus Fall (b) und (c)

Abschließend wird ein Zustand betrachtet, in dem alle Lasermoden zunächst anschwingen. Es wird angenommen, dass während des konkurrierenden Anschlagprozesses eine Mode zufällig an Intensität gewinnt und dadurch bis zum Ende des Laserimpulses zur dominanten Mode anwächst. In diesem Fall werden 50% der Laserintensität auf 31 Moden entsprechend der Einhüllenden $\mathcal{G}(\omega_I - \omega_{M_k})$ verteilt. Die restlichen 50% der Intensität werden der k-ten Mode aufaddiert. $\mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I)$ setzt sich in diesem Fall aus den beiden Anteilen Gl. (6.10) und Gl. (6.12) zusammen :

$$\mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I) = 0.5 \sum_{k=-15}^{15} \frac{e^{-\frac{(k\delta_M)^2}{2\sigma_I^2}}}{\left(1 + 2 \sum_{k=1}^{15} e^{-\frac{(k\delta_M)^2}{2\sigma_I^2}}\right)} \frac{\gamma_M/(2\pi)}{(\omega_{M_k} - \omega'_I)^2 + \gamma_M^2/4} \quad (6.16)$$

$$+ 0.5 \frac{\gamma_M/(2\pi)}{(\omega_{M_k} - \omega'_I)^2 + \gamma_M^2/4} \quad (6.17)$$

Die Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}(M_k)$ dafür, dass die k-te Mode anschwingt, ist gemäß Gl. (6.15) proportional zu $\mathcal{G}(\omega_I - \omega_{M_k})$:

$$\bar{\rho}_{33}(t_0) = \frac{1}{\sum_{k=-15}^{15} \mathcal{P}(M_k)} \sum_{k=-15}^{15} \mathcal{P}(M_k) \rho_{33}(t_0, \mathcal{J}_k^I(\omega_{M_k} - \omega'_I)) \quad (6.18)$$

Eine Anpassung der Modellrechnungen am Sättigungsverhalten und an den Linienformen bei Photonentrömen von $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) und $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) ist für beide Übergänge in den in Abbildungen 6.3 (d) und 6.4 (d) dargestellt. In Tab. 6.1 und Tab. 6.2 sind die Anpassungsparameter aufgeführt.

Tabelle 6.1: Anpassungsparameter der Modellrechnungen für den Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$. Aufgeführt sind die natürliche Linienbreite $\gamma_{12} = A_{ki}$, die resultierende Linienbreite $\gamma' = A_{ki} + 1/\tau_c + 1/\tau_d$ mit der mittleren Zeit τ_d zwischen zwei dephasierenden Modensprüngen und τ_c zwischen zwei dephasierenden Stößen und die Übergangsrates P_2 im zweiten Schritt. Weiterhin ist die maximale Übergangswahrscheinlichkeit des ersten Anregungsschrittes $W_1(\Phi_1^{max})$ mit $\Phi_1^{max} = 7.9 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ nach Gl. (F.5) angegeben. Mit \mathcal{A}_i und \mathcal{U}_i werden Amplitude und Untergrund der Sättigungskurven ($i = 1$), der Linienformen bei dem Photonfluss $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ ($i = 2$) und der Linienformen bei dem Photonfluss $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ ($i = 3$) bezeichnet.

Modellannahme				
	(a)	(b)	(c)	(d)
$\gamma_{12} = A_{ki}$	$3.5(7) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.6(7) \cdot 10^6/\text{s}$	$4.6(1.6) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.4(7) \cdot 10^6/\text{s}$
γ'	$3.9(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$4.1(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$3.0(5) \cdot 10^9/\text{s}$	$3.6(3) \cdot 10^9/\text{s}$
P_2	$6.7 \cdot 10^6/\text{s}$	$1.8(6) \cdot 10^7/\text{s}$	$6.7(4) \cdot 10^6/\text{s}$	$1.0(6) \cdot 10^5/\text{s}$
$W_1(\Phi_1^{max})$	0.43	0.52	0.08	0.14
\mathcal{A}_1	23(1)	6.9(4)	$1.3(1) \cdot 10^2$	$4.6(3) \cdot 10^3$
\mathcal{U}_1	0	0	0	0
\mathcal{A}_2	$2.8(1) \cdot 10^3$	$8(2) \cdot 10^2$	$1.60(8) \cdot 10^4$	$5.7(3) \cdot 10^5$
\mathcal{U}_2	12.0(4)	12.0(4)	11.6(4)	12.1(4)
\mathcal{A}_3	$3.9(1) \cdot 10^3$	$1.1(3) \cdot 10^3$	$1.78(5) \cdot 10^4$	$7.7(2) \cdot 10^5$
\mathcal{U}_3	6.0(1)	5.9(1)	5.6(1)	5.9(1)

Tabelle 6.2: Anpassungsparameter der Modellrechnungen für den Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$. Aufgeführt sind die natürliche Linienbreite $\gamma_{12} = A_{ki}$, die resultierende Linienbreite $\gamma' = A_{ki} + 1/\tau_c + 1/\tau_d$ mit der mittleren Zeit τ_d zwischen zwei dephasierenden Modensprüngen und τ_c zwischen zwei dephasierenden Stößen und die Übergangsrates P_2 im zweiten Schritt. Weiterhin ist die maximale Übergangswahrscheinlichkeit des ersten Anregungsschrittes $W_1(\Phi_1^{max})$ mit $\Phi_1^{max} = 7.9 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ nach Gl. (F.5) angegeben. Mit \mathcal{A}_i und \mathcal{U}_i werden Amplitude und Untergrund der Sättigungskurven ($i = 1$), der Linienformen bei dem Photonfluss $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ ($i = 2$) und der Linienformen bei dem Photonfluss $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ ($i = 3$) bezeichnet.

Modellannahme				
	(a)	(b)	(c)	(d)
$\gamma_{12} = A_{ki}$	$3.2(5) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.9(6) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.0(8) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.5(6) \cdot 10^6/\text{s}$
γ'	$3.9(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$4.6(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$3.0(5) \cdot 10^9/\text{s}$	$4.4(2) \cdot 10^9/\text{s}$
P_2	$6.7 \cdot 10^6/\text{s}$	$4(3) \cdot 10^6/\text{s}$	$1.1(6) \cdot 10^6/\text{s}$	$1.1(6) \cdot 10^6/\text{s}$
$W_1(\Phi_1^{max})$	0.38	0.49	0.08	0.13
\mathcal{A}_1	26(1)	33(1)	$7.9(7) \cdot 10^2$	$4.9(2) \cdot 10^2$
\mathcal{U}_1	0	0	0	0
\mathcal{A}_2	$1.72(5) \cdot 10^4$	$2(1) \cdot 10^4$	$5(3) \cdot 10^5$	$3.1(1) \cdot 10^5$
\mathcal{U}_2	18.4(8)	18.3(8)	17.3(9)	18.1(8)
\mathcal{A}_3	$6.8(2) \cdot 10^3$	$8(5) \cdot 10^3$	$2(1) \cdot 10^5$	$1.17(3) \cdot 10^5$
\mathcal{U}_3	4.6(2)	3.9(2)	3.9(2)	3.9(3)

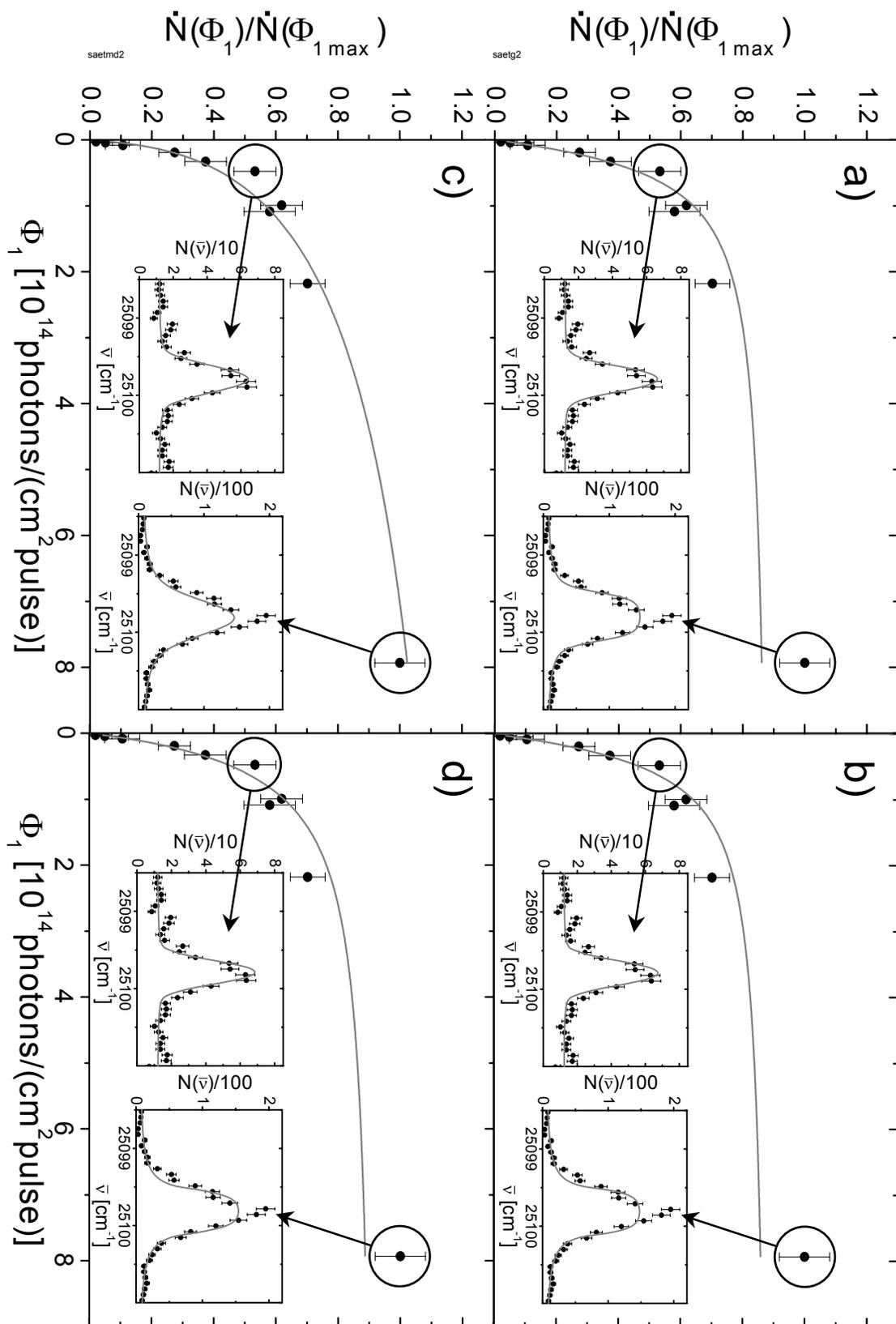


Abbildung 6.3: Anpassung der Modellannahmen (a)-(d) an das Sättigungsverhalten für den Übergang bei $\bar{\nu} = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$. Berechnungen der Linienformen bei den markierten Photonenströmen sind mit abgebildet.

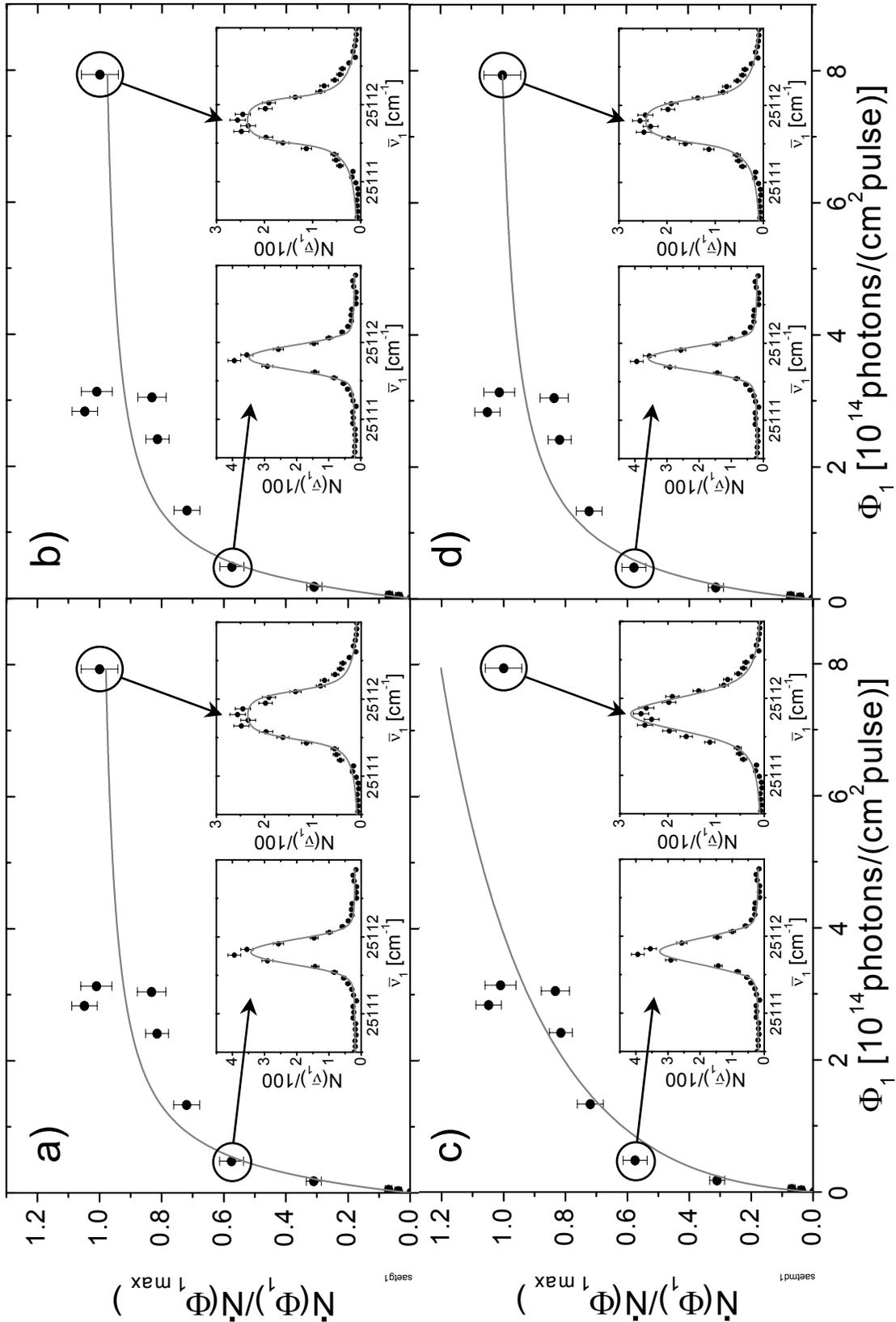


Abbildung 6.4: Anpassung der Modellannahmen (a)-(d) an das Sättigungsverhalten für den Übergang bei $\bar{\nu} = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$. Berechnungen der Linienformen bei den markierten Photonendichten sind mit abgebildet.

6.4 Diskussion der Modellrechnungen

Die Beschreibung der Sättigungskurven und der Linienformen mit dem in Kapitel 6.1 dargestellten Sättigungsmodell und den Annahmen zum spektralen Intensitätsprofil des Farbstofflasers, s. Kapitel 6.2, ist hinreichend gut.

In den Sättigungskurven sind jedoch Zählratenschwankungen zu erkennen, die darauf hindeuten, dass die abgeschätzten Fehler nicht alle Schwankungen berücksichtigen. In Kapitel 5.5.2 wurde die Annahme gemacht, dass die Atome aufgrund von thermischer Konvektion homogen in dem vom Laser ausgeleuchteten Volumen verteilt sind. Findet die Konvektion nicht kontinuierlich statt, sondern in Form aufeinander folgender thermischer Ablösungen, variiert die Dichteverteilung der Atome in dem Zeitraum τ_{ab} zwischen zwei Ablösungen. Die Resonanzfrequenz ist dann eine Funktion der Zeit zwischen Ablösung und Laserimpuls. Ist die Messzeit pro Kanal $\tau_k \approx 1$ s jedoch gross gegenüber τ_{ab} mittelt sich die resultierende Schwankung zu null.

Weiterhin ist es auffällig, dass die Spitze der sättigungsverbreiterten Linie bei $\bar{\nu} = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$, die in Abb. 6.5 nocheinmal dargestellt ist, von keiner Modellrechnung wiedergegeben wird. Eine ähnliche Struktur ist in derselben Linie auch bei der geringen Photonenflussdichte $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ zu erkennen. Daher ist es unwahrscheinlich, dass es sich in beiden Messungen um statistische Schwankungen in der niederenergetischen Flanke der Resonanzlinie handelt. Eine Substruktur der Resonanzlinie, wie z. B. eine Hyperfeinstrukturaufspaltung, kann ausgeschlossen werden, da die beobachtete Struktur schmäler als die Linienbreite des Lasers ist und nicht aufgelöst werden kann. Eine mögliche Erklärung für die beobachtete Struktur könnte ein fehlerhaftes Bewegen des Gitters sein. In Experimenten wurde beobachtet, dass sich das Gitter, das über einen Schrittmotor gesteuerte Spindel verfahren wird, zeitweise erst nach mehreren Impulsen der Schrittmotorsteuerung bewegt. Hierbei handelt es sich offenbar um ein mechanisches Problem, da sich das Gitter dann um mehrere Schritte auf einmal bewegt, so dass insgesamt keine Schritte verloren gehen. Ähnliche Probleme mit demselben Farbstofflaser wurden in Ref. [63] beschrieben. In der niederenergetischen Flanke der Linie ist an der gleichen Stelle, wie bei der Messung mit $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$ in Abb. 6.3 (d), ein Sprung zu erkennen, der darauf hindeuten könnten, dass das Gitter fehlerhaft verfahren wurde. Werden die betroffenen drei Datenpunkte, wie in Abb. 6.5 dargestellt, in der Anpassung nicht berücksichtigt, so lässt sich das resultierende Linienprofil hinreichend gut mit den Modellrechnungen beschreiben.

Weiterhin ist anzumerken, dass in dem Modell die „Optischen Bloch Gleichungen“ unter der Annahme stationärer Zustände für die Nicht-Diagonalelemente der Dichtematrix gelöst wurden. Diese Annahme beruht auf den schnellen Phasenfluktuationen innerhalb eines Laserimpulses, die in Kapitel 6.2.2 diskutiert wurden und zu der homogenen Linienverbreiterung mit der Breite $\gamma' \approx 1/\tau_d \approx 3.5(5) \cdot 10^9 \text{ rad/s}$ führen. Die Anpassung der Modellrechnungen an die Messdaten ist aufgrund der Ausläufer dieser Lorentzkurve in den äußeren Flanke der Resonanzkurven sehr empfindlich auf den Parameter γ' ($\Delta\gamma'/\gamma' \approx 0.14$). Daraus resultiert, dass die mittlere Zeit zwischen den Phasenfluktuationen $\tau_d \approx 0.3 \text{ ns}$ beträgt. Dies ist kurz gegen die Zeit eines atomaren Übergangs [92],

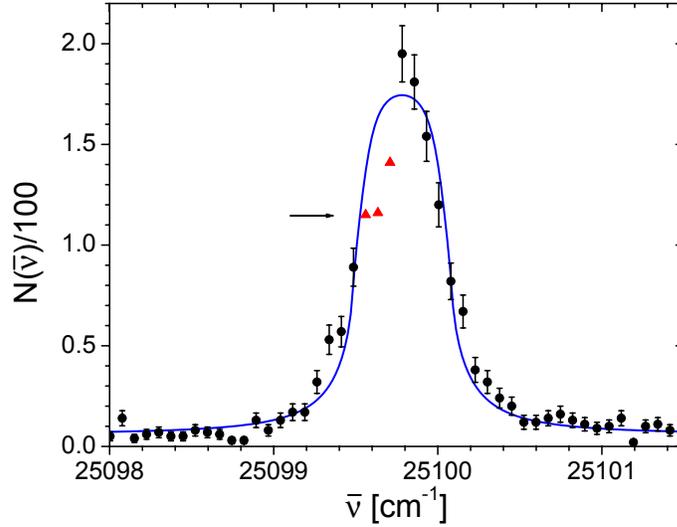


Abbildung 6.5: Übergang bei $\bar{\nu} = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ mit $\Phi_1 = 7.9 \cdot 10^{14} \text{ Photonen}/(\text{cm}^2 \text{ Impuls})$. Die auffällige Stufe in der niederenergetischen Flanke des Profils ist markiert. Die drei mit Dreiecken markierten Datenpunkte wurden in der Anpassung der Modellannahme (d) nicht berücksichtigt, vergl. Abb. 6.3 (d). Für eine übersichtlichere Darstellung wurde die Fehlerbalken dieser Datenpunkte weggelassen.

so dass keine kohärente Anregung des ersten und zweiten Übergangs möglich ist, d.h. die Übergänge sind entkoppelt. Mathematisch wird die Entkopplung der Übergänge durch die Annahme stationärer Zustände für die Nicht-Diagonalelemente der Dichtematrix realisiert. Für $\gamma' t_0 \approx 3.5 \cdot 10^9/\text{s} \cdot 15 \text{ ns} = 52.5 \gg 1$, s. Tab. 6.1 und Tab. 6.2, stellt diese Annahme keine Näherungslösung, sondern eine zeitliche Mittelung über die Phasenfluktuationen dar.

Tabelle 6.3: Ergebnisse der Modellrechnungen.

Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$				
Modellannahme				
	(a)	(b)	(c)	(d)
$\gamma_{12} = A_{ki}$	$3.5(7) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.6(7) \cdot 10^6/\text{s}$	$4.6(1.6) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.4(7) \cdot 10^6/\text{s}$
γ'	$3.9(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$4.1(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$3.0(5) \cdot 10^9/\text{s}$	$3.6(3) \cdot 10^9/\text{s}$
P_2	$6.7 \cdot 10^6/\text{s}$	$1.8(6) \cdot 10^7/\text{s}$	$6.7(4) \cdot 10^6/\text{s}$	$1.0(6) \cdot 10^5/\text{s}$
$W_1(\Phi_1^{max})$	0.43	0.52	0.08	0.14
Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$				
Modellannahme				
	(a)	(b)	(c)	(d)
$\gamma_{12} = A_{ki}$	$3.2(5) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.9(6) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.0(8) \cdot 10^6/\text{s}$	$3.5(6) \cdot 10^6/\text{s}$
γ'	$3.9(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$4.6(3) \cdot 10^9/\text{s}$	$3.0(5) \cdot 10^9/\text{s}$	$4.4(2) \cdot 10^9/\text{s}$
P_2	$6.7 \cdot 10^6/\text{s}$	$4(3) \cdot 10^6/\text{s}$	$1.1(6) \cdot 10^6/\text{s}$	$1.1(6) \cdot 10^6/\text{s}$
$W_1(\Phi_1^{max})$	0.38	0.49	0.08	0.13

Die Ergebnisse der Modellrechnungen sind noch einmal in Tab. 6.3 aufgeführt. Alle Modellrechnungen liefern im Rahmen der Fehler die gleichen Werte für die Einsteinkoeffizienten A_{ki} der beiden Übergänge. Es ist jedoch auffällig, dass die Annahmen (c) und (d) sehr geringe Übergangswahrscheinlichkeiten $W_1 \approx 0.1$ für den ersten Anregungsschritt liefern, obwohl die Sättigungskurven in den Abbildungen 6.3 (c), (d) und 6.4 (c), (d) nahezu ihr Maximum erreicht haben. Dieses Verhalten widerspricht der Beobachtung von $W_1 \approx 0.5$ aus Ref. [26], so dass diese Modellannahmen verworfen werden.

Der Mittelwert der Ergebnisse der Modellannahmen (a) und (b) wird als Endergebnis angegeben ¹ :

Der Einsteinkoeffizient des Übergangs bei $\bar{\nu} = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ beträgt $A_{ki} = 3.6(7) \cdot 10^6/\text{s}$ und bei $\bar{\nu} = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ beträgt $A_{ki} = 3.6(6) \cdot 10^6/\text{s}$.

¹Es ist anzumerken, dass die Modellannahme (a) aus der Annahme (b) hervorgeht, sofern die einzelnen Moden breit gegen den Modenabstand sind.

Kapitel 7

Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden den beiden optischen Übergängen in Fermium Niveaus zugeordnet und eine Termzuordnung vorgeschlagen. Daneben werden das Ionisationspotential von Fm abgeschätzt und die Driftzeitmessungen diskutiert.

7.1 Optische Übergänge in Fermium

Die Ergebnisse der optischen Spektroskopie an Fermium werden im Folgenden zusammengefasst und sind noch einmal in übersichtlicher Form in Tab. 7.1 aufgeführt.

7.1.1 Ergebnisse

Für die Suche nach den berechneten Niveaus 30 und 31 aus Tab. 2.1 wurde die Anregungsenergie $\bar{\nu}_1$ über den Energiebereich $24700 \text{ cm}^{-1} \leq \bar{\nu}_1 \leq 25930 \text{ cm}^{-1}$ durchgestimmt. Bei den Energien $\bar{\nu}_1 = (25099.80 \pm 0.04_{stat} \pm 0.2_{syst}) \text{ cm}^{-1}$ und $\bar{\nu}_1 = (25111.80 \pm 0.04_{stat} \pm 0.2_{syst}) \text{ cm}^{-1}$ wurden zwei atomare Linien gefunden, s. Abb. 5.10. Wie in Kapitel 5.4 beschrieben ist, konnten die Linien eindeutig dem Element Fermium zugeordnet werden.

Um Einblick in die Struktur der Niveaus zu erlangen, wurde das Sättigungsverhalten gemessen und mit dem in Kapitel 6 erläuterten Modell die Einsteinkoeffizienten für

Tabelle 7.1: Zusammenfassung der Ergebnisse

$\bar{\nu}$ [cm^{-1}]	A_{ki} [1/s]
25099.8(2)	$3.6(7) \cdot 10^6$
25111.8(2)	$3.6(6) \cdot 10^6$
25740(5)	

spontane Emission $A_{ki} = 3.6(7) \cdot 10^6/\text{s}$ für den Übergang bei $\bar{\nu} = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$ und $A_{ki} = 3.6(6) \cdot 10^6/\text{s}$ für den Übergang bei $\bar{\nu} = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$ bestimmt.

Weiterhin wurde in dem Wellenzahlenspektrum eine breite Struktur bei der Anregungsenergie $\bar{\nu}_1 = 25740 \text{ cm}^{-1}$ beobachtet. Diese Struktur wurde auf eine resonante Anregung mit dem Licht des Farbstofflasers bei einer Wellenlänge von 388 nm bis 389 nm zurückgeführt und besitzt eine Breite von etwa $30 \text{ cm}^{-1} \hat{=} 1000 \text{ GHz}$ (FWHM). Aufgrund des Zeitspektrums konnte ausgeschlossen werden, dass ein Molekül mit der Masse 255 u nachgewiesen wurde. Die beobachtete Linie ist gegenüber typischen Übergängen zwischen gebundenen atomaren Niveaus um etwa einen Faktor 100 verbreitert. Dies deutet auf die Anregung eines hochliegenden Rydbergzustandes oder eines autoionisierenden Zustandes hin. Ein solcher Übergang könnte durch Zweiphotonenanregung des Farbstofflasers über ein virtuelles Zwischenniveau angeregt worden sein.

7.1.2 Vorschlag einer Termklassifizierung

In diesem Kapitel sollen die experimentellen Ergebnisse mit den MCDF Rechnungen aus Kapitel 2.3.1 verglichen werden. Aufgrund der Ungenauigkeit der Rechnungen, die mit etwa $\Delta\bar{\nu} = \pm 2400 \text{ cm}^{-1}$ angegeben wird [68], sind die Niveaus 25, 30, 31, 35, 36 und 37 aus Tab. 2.1 mögliche Kandidaten für eine Zuordnung der beobachteten Niveaus bei $\bar{\nu} = 25099.8(2) \text{ cm}^{-1}$ und $\bar{\nu} = 25111.8(2) \text{ cm}^{-1}$. In Abb. 7.1 sind die partiellen Übergangsraten in den Grundzustand A_{ki} dieser Niveaus als Funktion der Niveauenergien dargestellt. Für die Niveaus 30 und 31 sind sowohl die berechneten Niveauenergien als auch die Einsteinkoeffizienten in sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen. Eine bessere Übereinstimmung zwischen der berechneten Fein-Struktur Aufspaltung von 245 cm^{-1} und der beobachteten von 12 cm^{-1} kann nicht erwartet werden, da atomare Niveaus mit unterschiedlichen Gesamtdrehimpulsquantenzahlen J aus unabhängigen relativistischen Rechnungen hervorgehen. Auch eine Umkehr der Niveaufolge kann nicht ausgeschlossen werden. Es ist unwahrscheinlich, dass die Niveaus 25, 35, 36 oder 37 beobachtet wurden. Die Energien der Niveaus 25 und 35 stimmen zwar im Rahmen der abgeschätzten Fehlergrenzen der Berechnungen mit den beobachteten Niveaus überein, die Übergangsraten weichen jedoch um ein bzw. zwei Größenordnungen ab. Aufgrund dieser Tatsache wurden die beiden beobachteten Linien den Niveaus 30 und 31 zugeordnet.

Tabelle 7.2: Ergebnisse der MCDF Rechnungen.

No.	$\bar{\nu} [\text{cm}^{-1}]$	J	$A_{ki} [1/\text{s}]$	Config.	Term	$ c ^2$
1	0	6	0	$5f^{12}7s^2$	${}^3H_6^e$	0.96
30	25226	6	$1.89 \cdot 10^6$	$5f^{12}7s7p$	${}^5I_6^o$	0.46
31	25471	5	$1.28 \cdot 10^6$	$5f^{12}7s7p$	${}^5G_5^o$	0.34
35	27394	6	$2.43 \cdot 10^8$	$5f^{12}7s7p$	${}^3H_6^o$	0.62
36	27633	5	$1.98 \cdot 10^8$	$5f^{12}7s7p$	${}^3G_5^o$	0.60
37	27802	7	$3.67 \cdot 10^8$	$5f^{12}7s7p$	${}^3I_7^o$	0.66

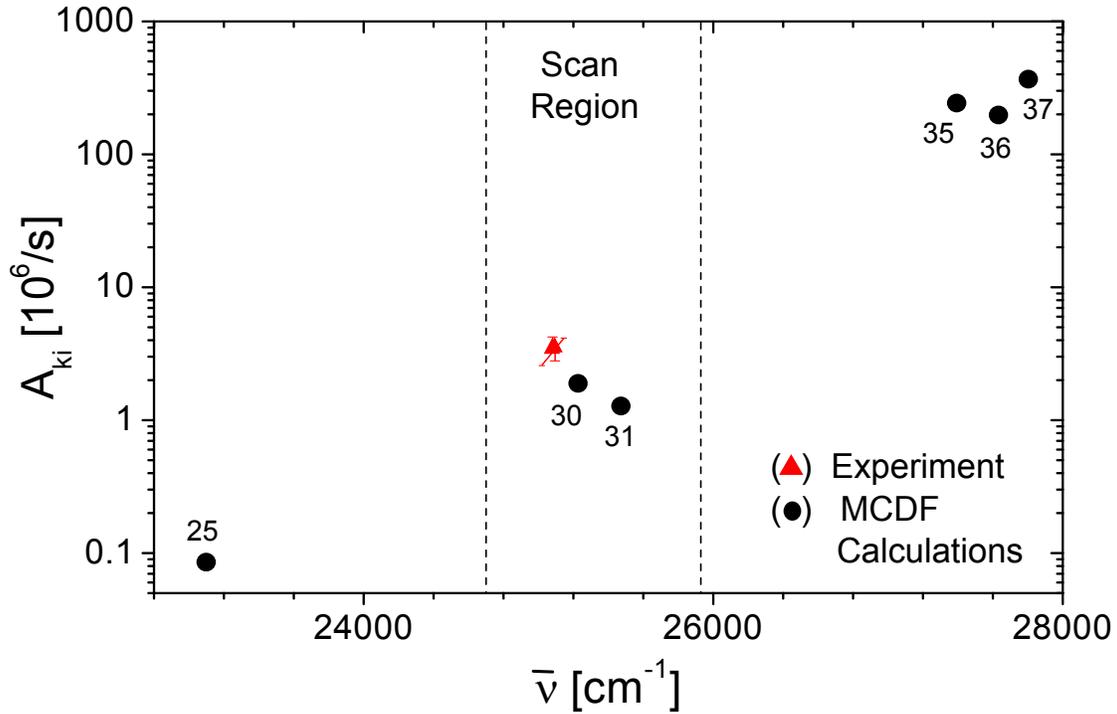


Abbildung 7.1: Berechnete Einsteinkoeffizient A_{ki} als Funktion der berechneten Niveauenergien aus Tab. 2.1. Experimentelle Werte sind mit Dreiecken, MCDF Rechnungen mit Punkten gekennzeichnet. Die Grenzen des durchgestimmten Energiebereichs sind mit senkrechten, gestrichelten Linien markiert.

Die Klassifizierung gemäß der „Russel-Saunders-Kopplung“ wurde nach dem führenden Term c in der Projektion der Konfigurationszustandsfunktionen auf die LS-Basis vorgenommen [68]. Die Ergebnisse sind in Tab 7.2 aufgeführt. Nach dieser Projektion werden die beobachteten Niveaus den spektroskopischen Termen $^5I_6^o$ und $^5G_5^o$ zugeordnet. Der relativ geringe Anteil dieser Terme an der Gesamtwellenfunktion von 46% bzw. 34% spiegelt die Fragmentation der atomaren Niveaus wieder, wie sie für die schweren Elemente erwartet wird [34]. Die Klassifizierung wird durch die beobachteten reduzierten Übergangsraten in den Grundzustand untermauert, da der Übergang in den $^3H_6^e$ Zustand eine Interkombinationslinie darstellt.

7.1.3 Abschätzung der Ionisationsenergie

Aus den beobachteten Niveauenergien lässt sich über die Beziehung $\bar{\nu}_1 + \bar{\nu}_2 + E_{th} \geq IP$ eine Obergrenze für die Ionisationsenergie IP von Fm abschätzen. Mit $\bar{\nu}_1 = 25100 \text{ cm}^{-1}$, der Energie der Grundzustandsanregung, $\bar{\nu}_2 = 28490 \text{ cm}^{-1}$ der Energie des zweiten Schrittes und $E_{th} \approx 660 \text{ cm}^{-1}$ der Energie¹, die in thermischen Stößen der Puffergasatome mit den angeregten Fm-Atome übertragen werden kann, ergibt

¹ $E_{th} = \frac{3}{2} kT$ mit der Boltzmannkonstanten k und der Temperatur des Puffergases $T \approx 1000 \text{ K}$ vor dem Filament.

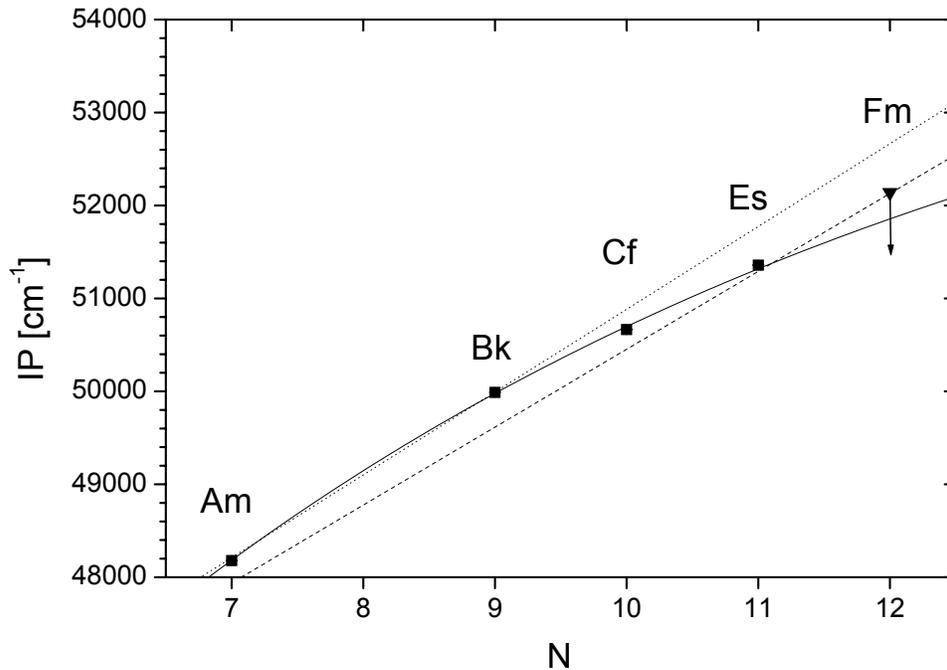


Abbildung 7.2: Ionisationsenergie als Funktion der Elektronenzahl N in der $5f$ Schale. Experimentelle Daten aus Ref. [13] sind als schwarze Quadrate dargestellt. Die abgeschätzte Obergrenze der Ionisationsenergie von Fm ist als schwarzes Dreieck abgebildet. Eine lineare Anpassungen aus Ref. [13] an die experimentellen Daten für $7 \leq N \leq 10$ ist gepunktet und eine lineare Anpassungen aus Ref. [93] an Hartree-Fock Rechnungen ist gestrichelt eingezeichnet. Die empirische Anpassung $IP_e(N)$ aus Gl. (7.1) ist als durchgezogenen Kurve dargestellt.

sich $IP \leq 54250 \text{ cm}^{-1} \hat{=} 6.7 \text{ eV}$. Dies ist in guter Übereinstimmung sowohl mit semiempirischen Extrapolationen, die $IP_{ext} = 52400(600) \text{ cm}^{-1} \hat{=} 6.5(1) \text{ eV}$ [72] vorhersagen, als auch mit MCDF Rechnungen, die $IP_{DF} = 50800(2400) \text{ cm}^{-1} \hat{=} 6.15(30) \text{ eV}$ berechnen [67]. Nach diesen Rechnungen besitzt der Grundzustand des einfach ionisierten Fermium, Fm II, die Konfiguration $[\text{Rn}] 5f^{12}7s$ mit Gesamtdrehimpuls und Parität $J^P = 13/2^e$.

Interpretiert man die Struktur bei der Anregungsenergie $\bar{\nu}_1 = 25740 \text{ cm}^{-1}$ als hochliegenden Rydbergzustand mit der Niveauenergie $\bar{\nu}_1 = 2 \cdot 25740 \text{ cm}^{-1} = 51480 \text{ cm}^{-1}$, so ergibt sich mit $E_{th} \approx 660 \text{ cm}^{-1}$ die Obergrenze $IP \leq 52140 \text{ cm}^{-1} \hat{=} 6.5 \text{ eV}$ für die Ionisationsenergie von Fm.

In Abb. 7.2 werden experimentelle Daten und theoretische Vorhersagen verglichen. Um die nicht lineare Abhängigkeit der Ionisationsenergie von der Anzahl N der $5f$ -Elektronen zu verdeutlichen, wurde eine Sättigungskurve gemäß

$$IP_e(N) = a(1 - e^{-bN}) + c, \quad (7.1)$$

mit $a = 19693.7$, $b = 0.15$ und $c = 35577$ angepasst. Eine Linearisierung relativistischer Hartree-Fock Rechnungen gemäß $IP(N) = 838.2 \cdot N + 42071$ aus Ref. [93] stimmt

zwar genau mit dem IP von Es und der abgeschätzten Obergrenze für Fm überein, der Verlauf der Geraden weicht jedoch deutlich von den experimentellen Ionisationsenergien für Am, Bk und Cf ab. Die in Ref. [13] vorgeschlagene lineare Anpassung an die experimentellen Daten von Am bis Cf gemäß $IP(N) = 891 \cdot N + 41973$ kann die Daten für $N \geq 10$ nicht mehr hinreichend genau beschreiben.

In den semi-empirischen Extrapolationen [72] wird aus gemessenen Energieintervallen ΔE_R von Rydbergzuständen deren effektive Quantenzahl n^* bestimmt. Für das Energieintervall am Ende der Serie kann über die Rydberg-Ritz Formel

$$E_R = R/n^{*2} \quad (7.2)$$

mit der Rydbergkonstanten R , die Niveauenergie E_R berechnet werden, die bis auf eine kleine Korrektur der Ionisationsenergie entspricht. Um, basierend auf bekannten Rydbergserien, Vorhersagen für andere Elemente machen zu können, wird ein glatter Verlauf der Kurve $\Delta E_R(N)$ in der Gruppe der Lanthanoide und der Aktinoide angenommen. J. Sugar und J. Reader benutzen dazu in ihren Extrapolationen einen nicht-linearen Kurvenverlauf [94, 95, 96, 71, 72], der dem Verlauf der Kurve aus Gl. 7.1 ähnelt. Obwohl die Autoren in Ref. [95] ausdrücklich auf die Ähnlichkeit der Anpassungskurven für $\Delta E_R(N)$ in den neutralen, einfach und zweifach geladenen seltenen Erden hinweisen – „Es gibt wenig Zweifel über eine Regelmäßigkeit in den Kurvenverläufen“ –, wird in keiner Veröffentlichung die Anpassungsfunktion angegeben. Hier scheint jedoch ein Schlüssel für das Verständnis der atomaren Eigenschaften beim Auffüllen der f -Schale zu liegen.

7.2 Bestimmung von Ionenradien aus den Driftzeitmessungen

In Kapitel 5.6 wurde die Beobachtung von Verschiebungen zwischen den Zeitverteilungsspektren der atomaren Ionen $^{255}\text{Fm}^+$, $^{251}\text{Cf}^+$ und des Molekülions $^{238}\text{UO}^+$ erläutert. Aus der Messung der Zeit T zwischen Laserimpuls und Nachweis im Channeltron-Detektor kann, wie in Kapitel 3.1.1 dargestellt wurde, die Ionenmobilität K bestimmt und über die Gleichung

$$\bar{\Omega}^{(1,1)}(T_{eff}) = \frac{3}{16} \frac{e}{N} \sqrt{\frac{2\pi}{\mu k_B T_{eff}}} \frac{1 + \alpha}{K} \quad (7.3)$$

der Impulsübertragungswirkungsquerschnitt $\bar{\Omega}^{(1,1)}(T_{eff})$ berechnet werden [97]. Dabei ist N die Anzahldichte der Puffergasatome, e die elektrische Ladung, μ die reduzierte Masse und k_B die Boltzmann Konstante. Die effektive Temperatur T_{eff} ist über die Gleichung

$$\frac{3}{2} k T_{eff} = \frac{3}{2} k T + \frac{1}{2} M v_D^2 \approx \frac{3}{2} k T \quad (7.4)$$

gegeben. Es bezeichnen M die Masse der Ar-Atome, v_D die Ionen-Driftgeschwindigkeit und $T = 80^\circ\text{C}$ die gemessenen Temperatur der optischen Zelle. Die Korrektur für höhere Ordnungen α kann vernachlässigt werden [97].

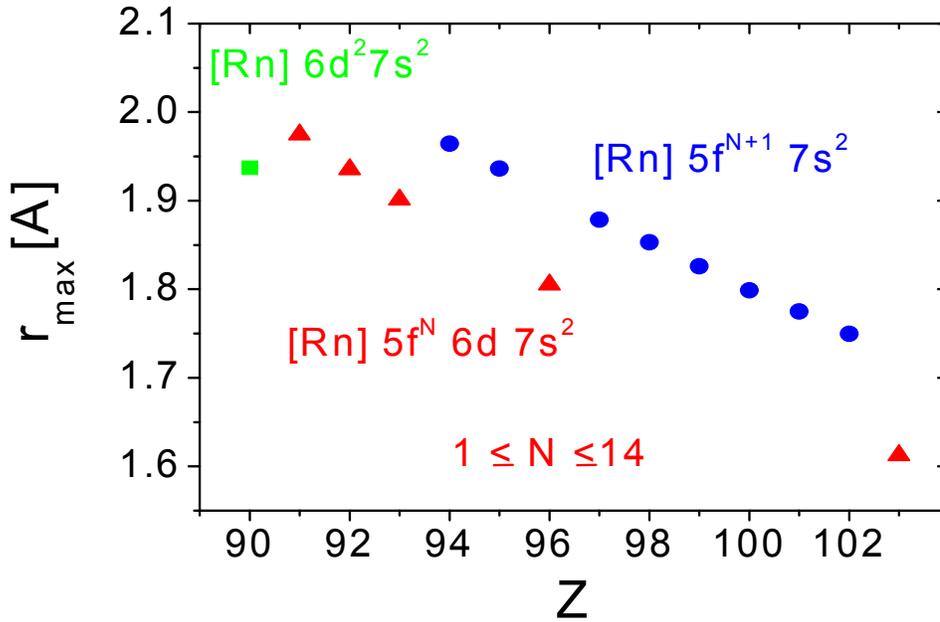


Abbildung 7.3: Das Hauptmaximum der Wellenfunktion des äußersten Elektronen-Orbitals ist als Funktion der Kernladungszahl Z dargestellt. Neben der Aktinoiden Kontraktion ist zu erkennen, dass sich die Elektronenkonfiguration direkt aus dem Verlauf der Radien der äußersten Orbitale bestimmen lässt. Die Daten wurden aus Ref. [98] entnommen.

Unter der Modellannahme harter Kugeln für Ionen und Puffergasatome kann $\bar{\Omega}^{(1,1)}(T_{eff})$ durch

$$\bar{\Omega}^{(1,1)}(T_{eff}) = \pi d^2 = \pi(r_{Ar} + r_{Ion})^2 \quad (7.5)$$

ausgedrückt werden und der Ionenradius r_{Ion} kann bestimmt werden, sofern der Radius r_{Ar} von Argon bekannt ist.

Mit $r_{Ar} = 1.44 \text{ \AA}$ [99] resultieren die Werte für die Ionenradien von Fm^+ und Cf^+ $r_{\text{Fm}^+, \text{Cf}^+} = (1.8 \pm 1.0) \text{ \AA}$ und von UO^+ $r_{\text{UO}^+} = (2.1 \pm 1.0) \text{ \AA}$. In den Fehler geht im wesentlichen die Ungenauigkeit in der Bestimmung des Ionisationsortes ein, der aufgrund der vom Laser ausgeleuchteten Fläche von 14 mm^2 mit $\pm 6 \text{ mm}$ angenommen wurde. Werden beide Laserstrahlen gekreuzt eingestrahlt, sollte sich der Fehler erheblich verkleinern lassen [85].

Wesentlich genauer kann die relative Änderung der Ionenradien

$$\frac{\Delta r^{A,B}}{r^B} = \frac{(r^A - r^B)}{r^B} \approx \frac{1}{2} \frac{\Delta T^{A,B}}{T^B} \left(1 + \frac{r_{Ar}}{r^B}\right) \quad (7.6)$$

aus den relativen Driftzeitunterschieden $\Delta T^{A,B}/\Delta T^B$ bestimmt werden. Die Ergebnisse sind $\Delta r^{\text{UO}^+, \text{Cf}^+}/r^{\text{Cf}^+} \approx 20\%$ und $\Delta r^{\text{Fm}^+, \text{Cf}^+}/r^{\text{Cf}^+} \approx -2\%$. Dieser Wert kommt relativistischen Rechnungen [98] für die Hauptmaxima der Wellenfunktionen der äußersten Orbitale der neutralen Atome nahe, die eine Kontraktion von $\Delta r_{\text{Atom}}^{\text{Fm}, \text{Cf}}/r_{\text{Cf}} \approx -3\%$ vorhersagen, s. Abb. 7.3. Bei der Ionisation wird in beiden Fällen ein s-Elektron abgegeben, so dass das äußerste Orbital unverändert das 7s Orbital ist. In erster Näherung wird

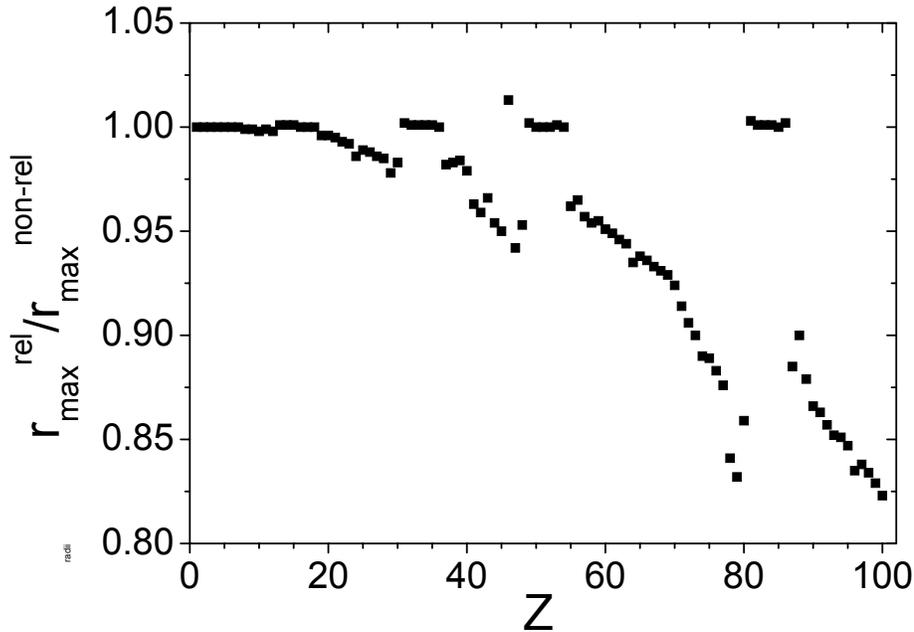


Abbildung 7.4: Relativistische Kontraktion der Atomradien. Dargestellt ist das Verhältnis von relativistischen zu nicht-relativistischen Rechnungen des Hauptmaximums der Wellenfunktion des äußersten Elektronen-Orbitals als Funktion der Kernladungszahl Z . Die Daten wurden aus Ref. [98] entnommen.

daher angenommen, dass die Verhältnisse $\Delta r_{\text{Atom}}^{\text{Fm,Cf}} / r_{\text{Cf}}$ und $\Delta r_{\text{Ion}}^{\text{Fm}^-, \text{Cf}^-} / r_{\text{Cf}^-}$ skalierbar sind.

Obwohl das Experiment keineswegs auf eine präzise Messung der Driftzeiten ausgelegt war, kann doch gesagt werden, dass Driftzeitmessungen im Bereich der kurzlebigen Aktinoiden und Trans-Aktinoiden einen neuartigen Zugang zur Untersuchung relativistischer Effekte auf Ionenradien und Bindungslängen einfacher, molekularer Ionen bieten. Wie in Abb. 7.4 zu erkennen ist hat der Einfluss der relativistischen Effekte auf die Radien der äußersten Orbitale ein relatives Maximum bei Gold ($Z=79$) und steigt dann bei den Aktinoiden kontinuierlich an. Diese Effekte wurde bereits theoretisch untersucht [100, 101, 102], sie wurden bisher aber unseres Wissens experimentell nicht untersucht. Für eine systematische Untersuchung von Molekülionen müssen diese durch Zugabe von Probengasen gezielt gebildet werden. Eine Voraussetzung dieser Experimente ist die Kenntnis der chemischen Reaktivität der Ionen, die zunächst an den leichteren, chemischen Homologen untersucht werden kann [103, 85].

Kapitel 8

Ausblick

8.1 Fortsetzung der optischen Spektroskopie an Fermium

Selbst ohne apparative Verbesserungen kann die atomspektroskopie an Fermium fortgesetzt werden, sofern eine weitere Fm-Probe verfügbar ist. Dabei ist es gleichermaßen von Interesse sowohl die Kenntnisse über das Niveauschema zu erweitern als auch die Ionisationsenergie IP zu bestimmen. Bei zusätzlichen Messungen mit einer ^{257}Fm Probe könnten über Isotopieverschiebungsmessungen relativ zum Isotop ^{255}Fm weitere Informationen über die Struktur der Übergänge gewonnen werden.

8.1.1 Fortsetzung der Niveausuche an ^{255}Fm

Von besonderem Interesse ist die Suche nach den Niveaus 35, 36 und 37 aus Tab. 2.1, die große partielle Übergangsraten in den Grundzustand $A_{ki} \approx 2 \cdot 10^8/\text{s}$ besitzen, s. Abb. 7.1 und Tab. 7.2. Das Auffinden dieser optischen Übergänge wäre ein weiterer empfindlicher Test der MCDF Rechnungen in Hinblick auf die Laserspektroskopie an den Elementen Nobelium ($Z=102$) und Lawrencium ($Z=103$) [51] im Rahmen des SHIPTRAP Projektes [104, 105, 106] an der GSI in Darmstadt.

Für die Suche nach den drei Niveaus mit den berechneten Niveauenergien von 27394 cm^{-1} , 27633 cm^{-1} und 27802 cm^{-1} ist durchstimmbares Laserlicht mit einer Wellenlänge um 360 nm erforderlich. Die Suche kann mit einem Nd:YAG-Laser (Repetitionsrate 50 Hz) gepumpten, frequenzverdoppelten OPO-Lasersystem erfolgen. Wird der OPO-Laser mit der dritten Harmonischen (355 nm) des Nd:YAG-Lasers gepumpt, kann durchstimmbares Laserlicht mit einer Wellenlänge von 240 nm bis $1 \mu\text{m}$ und einer Impulsenergie von 2.5 mJ/Impuls erzeugt werden. Aufgrund der großen Bandbreite von 1 cm^{-1} ist dieses System ideal für die Suche über große Wellenzahlenbereiche. Zur nicht-resonanten Ionisation kann ein Teil der dritten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers mit einer Wellenlänge von 355 nm und einer Impulsenergie von 100 mJ/Impuls verwendet werden, s. Tab. 2.1.

Simultan kann die Suche mit einem Excimerlaser (XeCl, 308 nm, 100 mJ/Impuls, Repetitionsrate 100 Hz) gepumpten Farbstofflaser nach den Niveaus 20 bis 25 in Tab. 2.1 erfolgen. Mit dem effizienten Farbstoff Coumarin 2 ($\epsilon = 0.18$) kann durchstimmbares Laserlicht in einen Wellenlängenbereich von 430-480 nm [64] erzeugt werden. Ein Teil des Pumplaserlichtes mit der Wellenlänge 308 nm kann zur nicht-resonanten Ionisation verwendet werden.

Zeitgleich können mit einem dritten Lasersystem, bestehend aus einem Excimerlaser (XeFl, 351/353 nm, 50 mJ/Impuls, Repetitionsrate ≤ 500 Hz) gepumpten Farbstofflaser, s. Kapitel 3.2.1, die Übergänge bei 25099.8 cm^{-1} und 25111.8 cm^{-1} angeregt werden. Wird die Bandbreite des Farbstofflasers mit einem Intra-Cavity Etalon auf 0.05 cm^{-1} eingeschränkt, kann eine Präzisionsmessung der Absolutenergie dieser Linien durchgeführt werden. Um eine mögliche Druckverschiebung bestimmen zu können, muss die Messung bei verschiedenen Puffergasdrücken wiederholt werden. Diese Messung ist in Hinblick auf die Bestimmung der Isotopieverschiebung zum Isotop ^{257}Fm notwendig.

Alle drei Lasersysteme stehen am Institut für Kernphysik der Universität Mainz zur Verfügung.

8.1.2 Bestimmung der Ionisationsenergie von Fermium

Ausgehend von den beobachteten Niveaus bei 25099.8^{-1} und 25111.8cm^{-1} kann die Energie des zweiten Anregungsschrittes über die Ionisationsgrenze von 52400 cm^{-1} [72] durchgestimmt werden. Dazu ist durchstimmbares Laserlicht mit einer Wellenlänge um 370 nm erforderlich, s. Tab.2.1. Mit einem Excimerlaser (XeCl, 308 nm, 100 mJ/Impuls, Repetitionsrate 100 Hz) gepumpten Farbstofflaser kann mit dem Farbstoff RDC 370 ($\epsilon = 0.13$) die Wellenlänge von 349 nm bis 384 nm variiert werden. Das Überschreiten der Ionisationsenergie sollte eine drastische Zunahme der Zählrate der resonant ionisierten Fm-Atome zur Folge haben. Die Genauigkeit der Bestimmung des IP mit der IGRIS-Methode ist jedoch, wie in Kapitel 2.1 erläutert wurde, durch Stöße der angeregten Fm-Atome mit Puffergasatomen auf etwa 660 cm^{-1} beschränkt.

Werden im Durchstimmbereich der Anregungsenergie des zweiten Schrittes Rydbergserien gefunden, kann aus dem Abstand der Niveauenergien die Ionisationsenergie mit einer Genauigkeit von 0.004 cm^{-1} [107] bis 2 cm^{-1} [13] bestimmt werden. Das es prinzipiell möglich ist Rydbergserien in einer Puffergaszelle zu studieren, wurde in Ref. [73] gezeigt.

Ausgehend von den beobachteten Niveaus bei 25099.8 cm^{-1} und 25111.8cm^{-1} erscheint auch die Messung der Ionisationsenergie mit der Resonance Ionization Mass Spectroscopy (RIMS)-Methode [15] am Institut für Kernchemie der Universität Mainz Erfolg versprechend. Diese Atomstrahlapparatur hat eine Auflösung von $\pm 2 \text{ cm}^{-1}$ und bei Verwendung eines bekannten Anregungsschemas eine Nachweiseffizienz von etwa 10^{-5} .

8.1.3 Bestimmung der Isotopieverschiebung $\Delta T^{257,255}$

Über die Bestimmung der Isotopieverschiebung $\Delta T^{257,255}$ kann für eine Klassifizierung weiterer Einblick in die Struktur der Niveaus gewonnen werden.

Das langlebige Isotop ^{257}Fm mit einer Halbwertszeit von 100.5 d ist, wie in Kapitel 2.2 diskutiert wurde, in Mengen von etwa $1 \text{ pg} \hat{=} 2 \cdot 10^9$ Atome am HFIR verfügbar. Bei einer Effizienz von $4.5 \cdot 10^{-4}$, s. Kapitel 4.4, und einer Resonanzzählrate von 100/s würde die Zeit, die zur Laserspektroskopie zur Verfügung steht 2.5 h betragen. Diese Zeit reicht aus, um die am Isotop ^{255}Fm gemessenen Niveaus zu suchen und die absolute Niveauenergie bei verschiedenen Puffergasdrücken zu bestimmen.

Für eine solche Präzisionsmessung muss das Wellenlängenmessgerät, s. Kapitel 3.3, an einem bekannten atomaren Übergang eines Referenz Elementes geeicht werden. Wird der Farbstofflaser mit Intra-Cavity Etalon betrieben, beträgt die Bandbreite 0.05 cm^{-1} [60], so dass alle vier Etalons des Spektrometers genutzt werden können. In diesem Fall beträgt die Genauigkeit in der absoluten Bestimmung der Niveauenergie 0.003 cm^{-1} und ist vergleichbar mit Spektrographischen Methoden [90].

8.2 Apparative Verbesserungen

Wie in Kapitel 4.4 erläutert wurde, ist die Speicherzeit der Atome im Puffergas durch thermische Konvektion auf $t_{st} \approx 150 \mu\text{s}$ beschränkt. Daraus resultiert die geringe zeitliche Koinzidenz mit dem Laserimpuls von $\epsilon_t = 0.03$. Im Folgenden wird die Möglichkeit einer gepulsten Freisetzung der Atome im Zeitraum t_{st} diskutiert, die die zeitliche Koinzidenz um einen Faktor 30 auf $\epsilon_t = 1$ erhöhen würde.

Ein weiterer Verlustfaktor ist die geringe Übergangswahrscheinlichkeit im zweiten Anregungsschritt $W_2 \leq 0.5$. Daher wird in Abschnitt 8.2.2 ein Konzept zur Speicherung von Laserimpulsen in einem optischen Resonator vorgeschlagen.

Weiterhin sollte das kommerzielle, massenselektiven Nachweissystem ausgetauscht werden, dessen Effizienz zu $\epsilon_{det} = 0.17(6)$ bestimmt wurde, s. Kapitel 4.4.

8.2.1 Gepulste Filamentheizung

In Abb. 5.5 ist zu erkennen, dass die Freisetzung der Atome bei einer Temperatur von 960°C durch eine Änderung der Filamenttemperatur um $\Delta T = 10^\circ\text{C}$ signifikant verändert wird. Stellt man die Filamenttemperatur 960°C mit einer Konstantstromquelle ein, so kann mit einem zusätzlichen Stromimpuls ΔI die Filamenttemperatur kurzzeitig erhöht werden. Im Folgenden wird der Strom I abgeschätzt, der benötigt wird, um das Filament innerhalb der Zeit $t_p = 150 \mu\text{s}$ um $\Delta T = 10^\circ\text{C}$ zu erhöhen.

Die Titan-Filamente haben eine Länge von 25 mm und eine Breite von 4 mm. Abweichend von den in Kap. 5 verwendeten Filamenten, die eine Dicke von $50 \mu\text{m}$ besaßen, wird im Weiteren von einer Filamentdicke von $25 \mu\text{m}$ ausgegangen, da derartige

Filamente bereits erfolgreich an anderen Aktinoiden getestet wurden [26, 85]. Bei einem Volumen von $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3$ und mit der Dichte $\rho = 4.5 \text{ g/cm}^3$ und der Masse $M = 48 \text{ g/mol}$ von Titan ergibt sich die Titan-Teilchenzahl $n = 10^{20} \hat{=} 1.4 \cdot 10^{-4} \text{ mol}$. Die Filamente werden an beiden Enden über eine Länge von 5 mm in einer Halterung eingespannt, deren Temperatur T_{mount} bei einer Filamenttemperatur von $T_{fil} = 1000^\circ$ auf $T_{mount} = 400^\circ$ abgeschätzt wird. Die Fm-Atome sind durch die elektrochemische Abscheidung auf einer Fläche mit einem Durchmesser von 3 mm in der Mitte des Filamentes lokalisiert. Nur die Temperatur dieser Fläche muss im Stromimpuls um 10°C erhöht werden. Bei einer Temperatur von 1000° beträgt der Widerstand des Filamentes $R = 0.3 \Omega$.

Die elektrische Energie ΔE_{el} , die während des Stromimpulses im Filament deponiert wird, teilt sich in zwei Anteile auf :

$$\Delta E_{el} = \Delta E_{Fil} + \Delta E_l . \quad (8.1)$$

Es bezeichnen ΔE_{Fil} die Energie, die zur Erhöhung der Temperatur am Ort der Fm-Atome umgesetzt wird, und ΔE_l die Energie, die durch Wärmeleitfähigkeit verloren geht.

Über die Wärmekapazität $c_p = 30 \text{ J/(mol K)}$ bei 1000°C [108] lässt sich $\Delta E_{Fil} = c_p n \Delta T = 4.2 \cdot 10^{-2} \text{ J}$ bestimmen. Der Verlust ΔE_l ist durch die Wärmeleitfähigkeit $l = \frac{\Delta E_l / t_p}{d \delta T} = 0.236 \text{ W/(cm K)}$ gegeben. Die Temperaturdifferenz zwischen der Filamentmitte und der Halterung beträgt $\delta T = T_{fil} - T_{mount} = 600^\circ\text{C}$ und der Abstand zur Halterung $d = 6 \text{ mm}$. Es ergibt sich $\Delta E_l = 1.3 \cdot 10^{-2} \text{ J}$

Der Stromimpuls kann über die elektrische Leistung $P = E_{el} / t_p = R I^2$ berechnet werden :

$$I = \sqrt{\frac{E_{el}}{t_p R}} = 35 \text{ A} . \quad (8.2)$$

Ein solcher Stromimpuls von 35 A und einer Dauer von $150 \mu\text{s}$ kann problemlos mit MOS-FET Transistoren geschaltet werden [109].

8.2.2 Optischer Resonator zum Speichern von Laserimpulsen

Aufgrund der kleinen optischen Wirkungsquerschnitte von $10^{-17} \text{ cm}^2 \leq \sigma_i \leq 10^{-16} \text{ cm}^2$ [62] für den zweiten Anregungsschritt, der knapp über die Ionisationsgrenze führt, beträgt die Ionisationseffizienz selbst bei Verwendung leistungsstarker Lasersystem $\epsilon_{RIS} \leq 0.2$, s. Kapitel 5.5.4. Daher wird für die folgende Abschätzung die Abnahme der Anzahl N_{st} der im Puffergas gespeicherten Atome durch Laserionisation vernachlässigt.

Wird der Laserimpuls n-fach durch die optische Zelle geleitet, gilt für die Anzahl N_p der Photoionen pro Laserimpuls

$$N_p = n R_2 N_{st} , \quad (8.3)$$

mit der Übergangsrate pro Atom und Laserimpuls $R_2 = \sigma_i \Phi_2$. In diesem Fall muss die Ionisationseffizienz ϵ_{RIS} , vergl. Gl. (5.14), neu definiert werden :

$$\epsilon_{RIS} = \frac{N_p}{N} \quad (8.4)$$

Innerhalb einer Zeit $t \leq t_{st} = 150 \mu\text{s}$ kann die Konvektion vernachlässigt werden und es gilt für die Gesamtanzahl der Fm-Atome im Puffergas

$$N = N_p + N_{st} . \quad (8.5)$$

Einsetzen von Gl. (8.3) und Gl. (8.5) in Gl. (8.4) und Auflösen nach ϵ_{RIS} ergibt :

$$\epsilon_{RIS} = \frac{R_2 \cdot n}{1 + R_2 \cdot n} \quad (8.6)$$

Im Folgenden wird ein Konzept zur Speicherung einzelner Laserimpulse in einem Resonator, der um die optische Zelle aufgebaut wird, diskutiert. Ein paralleler Laserstrahl mit einem Durchmesser von 14 mm^2 wird durch die optische Zelle geleitet und nach der Weglänge l an einem Spiegel in sich reflektiert. Die minimale Länge l des Resonators ist durch die Länge des Laserimpulses vorgegeben. Bei einer Impulslänge von $t_0 = 15 \text{ ns}$ beträgt $l = 4.5 \text{ m}$. Um zu verhindern, dass der Strahl zurück in den Laser reflektiert wird, wird ein Schalter benötigt, der den Strahl ein weiteres Mal durch die Zelle spiegelt. Bei der Resonatorlänge $l = 4.5 \text{ m}$ muss die Schaltzeit $t_s \leq 15 \text{ ns}$ betragen. Derartig kurze Schaltzeiten sind mit Pockelszellen erreichbar [59]. Dazu ist es erforderlich einen polarisierten Laserstrahl in den Resonator einzustrahlen. Die Pockelszelle wird so geschaltet, dass sie den einlaufenden Laserstrahl passieren lässt. Nun wird die Polarisation in der Pockelszelle um 180° gedreht, so dass diese einen Spiegel für den vom Endspiegel rückreflektierten Laserstrahl darstellt. Der Laserimpuls ist dann zwischen Endspiegel und Pockelszelle gespeichert. Typischerweise beträgt die Abfallkonstante für die Laserintensität im Resonator $\gamma_d = 1 \mu\text{s}$ [110, 111] und wird durch die Totalreflexion an den Fenstern der optischen Zelle hervorgerufen.

Falls die intrinsische Polarisation des Laserstrahls, z. B. durch Verwendung einer optischen Glasfaser, nicht ausgenutzt werden kann, geht die Hälfte der Photonendichte bei der Polarisation vor der Pockelszelle verloren. Für die in Kapitel 5.5.4 beschriebene Anregung würde $R_2 = \sigma_i \Phi_2 \approx 0.25$ resultieren. Dafür beträgt mit $\gamma_d = 1 \mu\text{s}$ die Anzahl der Durchläufe eines Laserimpulses durch die Zelle $n \approx 100$. Mit Gl. (8.6) folgt die Resonanzionisationseffizienz $\epsilon_{RIS} = 0.96$, die gegenüber der in Kapitel 5.5.4 abgeschätzten Effizienz von $\epsilon_{RIS} \approx 0.2$ um einen Faktor 5 größer ist.

Hier muss erwähnt werden, dass in Kapitel 5.5.4 $R_2 \leq 0.5$ und $\epsilon_{RIS} \leq 0.2$ abgeschätzt wurde. Tatsächlich kann die Übergangsrate R_2 im zweiten Schritt wesentlich kleiner sein. Selbst wenn $R_2 = 0.01$, d.h. $\sigma_i = 4 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ angenommen wird, beträgt die Resonanzionisationseffizienz bei Verwendung des Resonators noch $\epsilon_{RIS} = 0.5$. Daher erscheint das Konzept Erfolg versprechend.

8.3 Resonanzionisationsspektroskopie an Mendeleevium (Z=101)

Die Fortführung der in Anhang B beschriebenen on-line Entwicklung eröffnet die Möglichkeit zur Resonanzionisationsspektroskopie an Mendeleevium (Z=101). Unter Verwendung eines radioaktiven ^{253}Es Targets kann das Isotop ^{256}Md mit der Halbwertszeit $t_{1/2} = 1.3$ h über die Kernreaktion $^{253}\text{Es}(\alpha, n)^{256}\text{Md}$ erzeugt werden. Für ein sättigungsdickes ^{253}Es -Target mit $\rho d_{\text{satt}} = 26 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ [49] ist eine Menge von $10 \mu\text{g}$ des 20 d Isotops, das am HFIR in Mengen von bis zu 10 mg verfügbar ist [33], erforderlich. Die Kernfusionsreaktion besitzt den relativ großen Wirkungsquerschnitt $\sigma = 1$ mb [33], so dass bei einem α -Teilchenstrom von $1 \text{ p}\mu\text{A}$ die Produktionsrate $\dot{N} = 400/\text{s}$ beträgt. Wie aus den Experimenten an Erbium, die in Anhang B.2 diskutiert werden, hervorgeht, sind apparative Veränderungen erforderlich, um das Signal/Untergrundverhältnis für die Laserspektroskopie an Md um einen Faktor 100 zu verbessern. Die Experimente an ^{255}Fm haben gezeigt, dass der Untergrund, der hauptsächlich durch die Ionisation von schweren Kohlenwasserstoffen aus Gasverunreinigungen stammt, bei Massen oberhalb von Erbium (162 u-170 u) stark abnimmt, so dass alleine dadurch eine Verbesserung des Signal/Untergrundverhältnis um einen Faktor 10 zu erwarten ist. Weiterhin wird erwartet, dass die Effizienz für die Extraktion der Ionen aus der Puffergaszelle um einen Faktor 10 verbessert werden kann. Dazu muss das Stoppvolumen reduziert werden. Wird der Düsendurchmesser um einen Faktor 3 auf 0.3 mm reduziert, kann der Puffergasdruck auf 400 mbar erhöht werden. Dies hat eine Reduktion des Stoppvolumens um einen Faktor 1000 zur Folge, so dass die Stoppverteilung gut lokalisiert ist und mit einer Effizienz von $\epsilon_{\text{cell}} = 0.8(2)$ [26] extrahiert werden kann.

Anhang A

Differenzialgleichungssystem zur Berechnung des ^{255}Es -Brutprozesses

Die Atomzahl N_{Es} kann in Abhängigkeit der Brutzeit t_b und des Neutronenflusses Φ_n berechnet werden. Dabei muss zum einen die Produktionsrate jedes Isotops mit der Massenzahl A und der Kernladungszahl Z durch Neutroneneinfang $\dot{N}_n(^AZ)$ mit dem Neutroneneinfangquerschnitt $\sigma(^{A-1}Z)$

$$\dot{N}(^AZ)_n = N(^{A-1}Z) \cdot \sigma(^{A-1}Z) \cdot \Phi_n \quad (\text{A.1})$$

und β^- -Zerfall $\dot{N}(^AZ)_{\beta^-}$ mit der Zerfallskonstante $\lambda(^AZ-1) = \ln(2)/t_{1/2}(^AZ-1)$

$$\dot{N}(^AZ)_{\beta^-} = f(^AZ-1) \cdot \lambda(^AZ-1) \cdot N(^AZ-1) \quad (\text{A.2})$$

berücksichtigt werden. $f(^AZ-1)$ bezeichnet das Verhältnis von β^- -Zerfällen zur Summe der natürlichen Zerfallskanäle des Isotops $^AZ-1$. Zum anderen muss die Zerfallsrate durch neutroneninduzierte Spaltung $\dot{N}_f(^AZ)$ mit dem Spaltquerschnitt $\sigma_f(^AZ)$

$$\dot{N}(^AZ)_f = N(^AZ) \cdot \sigma_f(^AZ) \cdot \Phi_n \quad (\text{A.3})$$

und radioaktiven Zerfall $\dot{N}(^AZ)_r$ mit der Zerfallskonstante $\lambda(^AZ) = \ln(2)/t_{1/2}(^AZ)$

$$\dot{N}(^AZ)_r = \lambda(^AZ) \cdot N(^AZ) \quad (\text{A.4})$$

berechnet werden :

$$\dot{N}(^AZ) = \dot{N}(^AZ)_n + \dot{N}(^AZ)_{\beta^-} - \dot{N}(^AZ)_f - \dot{N}(^AZ)_r \quad (\text{A.5})$$

In Tabelle A.1 sind die in den Rechnungen verwendeten Parameter aufgeführt. Die berechnete Atomzahl N_{Es} wird in Kapitel 2.2 in Abhängigkeit der Brutzeit t_b und des Neutronenflusses Φ_n diskutiert. Die Ergebnisse sind im Einklang mit den Rechnungen aus Ref. [53].

Tabelle A.1: Eigenschaften der beim Brutprozess erzeugten Isotope.

Isotop	$t_{1/2}$	σ [barn]	σ_f [barn]	f
^{244}Cm	18.1 a	15	1.1	
^{245}Cm	8500 a	350	2100	
^{246}Cm	4730 a	1.2	0.16	
^{247}Cm	$1.56 \cdot 10^7$ a	60	82	
^{248}Cm	$3.40 \cdot 10^5$ a	2.6	0.36	
^{249}Cm	64.15 m	1.6		1
^{249}Bk	320 d	700	0.1	0.99
^{250}Bk	3.217 h		1000	1
^{249}Cf	350.6 a	500	1700	
^{250}Cf	13.08 a	2000	350	
^{251}Cf	898 a	2900	4500	
^{252}Cf	2.645 a	20	32	
^{253}Cf	17.18 d	18	1300	0.9969
^{254}Cf	60.5 d	4.5		0
^{253}Es	20.47 d	180		
^{254}Es	275.7 d	28	2000	
^{255}Es	39.8 d	55		0.92

Anhang B

Vorexperimente zur on-line Laserspektroskopie am Isotop ^{251}Fm

Wie in Kapitel 2.1.3 erläutert wurde, sollte die optische Spektroskopie an Fermium zunächst in einem on-line Verfahren durchgeführt werden. Nach diesem Konzept sollte das Isotop ^{251}Fm mit der Halbwertszeit $t_{1/2} = 5.3$ h über die Kernfusionsreaktion $^{249}\text{Cf}(\alpha, 2n)^{251}\text{Fm}$ erzeugt werden.

Im Rahmen einer Diplomarbeit [49] wurde die IGRIS Apparatur so erweitert, dass der 30 MeV α -Strahl eines Schwerionenbeschleunigers auf das radioaktive Californium Target, das in der optischen Zelle angebracht wird, geleitet werden kann. In diesem Verfahren muss der primäre α -Strahl durch das Puffergas geleitet werden. Um Aufstreuung des Strahls und Ionisation des Gases zu minimieren, werden geeignete Strahl Eintritts- und Austrittstrichter verwendet, auf denen 1.8 mg/cm² dicke Titan Folien angebracht sind, um das Vakuum der Strahlführung vom Puffergas zu trennen. Die Fusionsprodukte treten aufgrund ihres Rückstoßimpulses aus dem Target mit einer Energie von ≤ 500 keV aus und können im Argon Puffergas bei einem Druck von 40 mbar auf einer Länge von 5 mm abgestoppt werden, s. Abb. 2.3.

Die Apparatur, die in Abb. B.1 dargestellt ist, wurde an Strahlplatz L4 des Emperor-Tandem Beschleunigers am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg aufgebaut, siehe Abb. B.2, wo ein geeigneter α -Strahl mit einem Teilchenstrom von $\bar{I}_\alpha = 1$ pμA zur Verfügung steht. Bei Verwendung eines sättigungsdicken Targets (26 μg/cm²) und einem Reaktionswirkungsquerschnitt von 20 mb [35] beträgt somit die Fm-Produktionsrate etwa 10⁴/s.

Bevor ein radioaktives Cf-Target in der Puffergaszelle montiert werden sollte, wurde die Apparatur in Vorversuchen am Element Erbium, dem chemischen Homologen des Elementes Fermium, optimiert. Zunächst wurde ein 50 MeV $^{166}\text{Er}^{7+}$ -Strahl in der Puffergaszelle gestoppt und die Resonanzionisation an den beim Abstoppen neutralisierten Er Atomen getestet. Die Experimente sind in Kapitel B.1 dargestellt. Im nächsten Schritt wurde die Resonanzionisation an Fusionsprodukten der Kernreaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha, 2n)^{163}\text{Er}$ getestet. Neben der Gesamteffizienz wurde der durch den Primärstrahl erzeugte Untergrund im Detektor untersucht. Die Vorgehensweise ist in Kapitel B.2 erläutert.

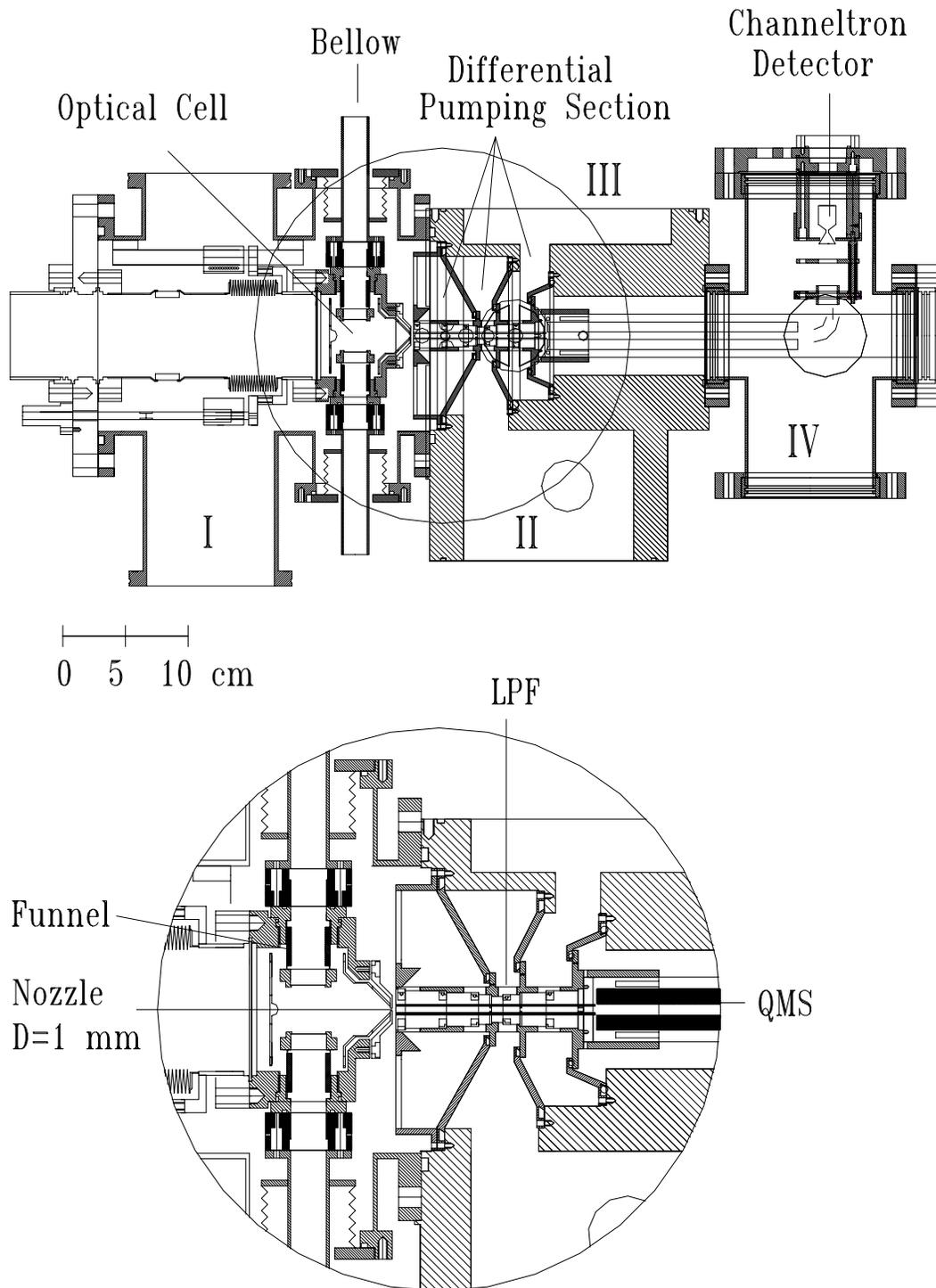


Abbildung B.1: Experimenteller Aufbau zur on-line Resonanzionisationsspektroskopie an Fm. Das Bild wurde aus Ref. [49] entnommen. Dargestellt sind die drei Vakuumkammern der IGRIS Apparatur mit den vier Sektionen (I-IV) der differentiellen Pumpstrecke. Die Anschlussbälge (Bellow) zwischen optischer Puffergaszelle und Strahlführungssystem und die Strahl Eintritts- und Austrittstrichter (Funnel) sind markiert. In der Ausschnittsvergrößerung (unteres Bild) sind die Puffergaszelle und die differentielle Pumpstrecke mit der linearen Paul-Falle (LPF) erkennbar.

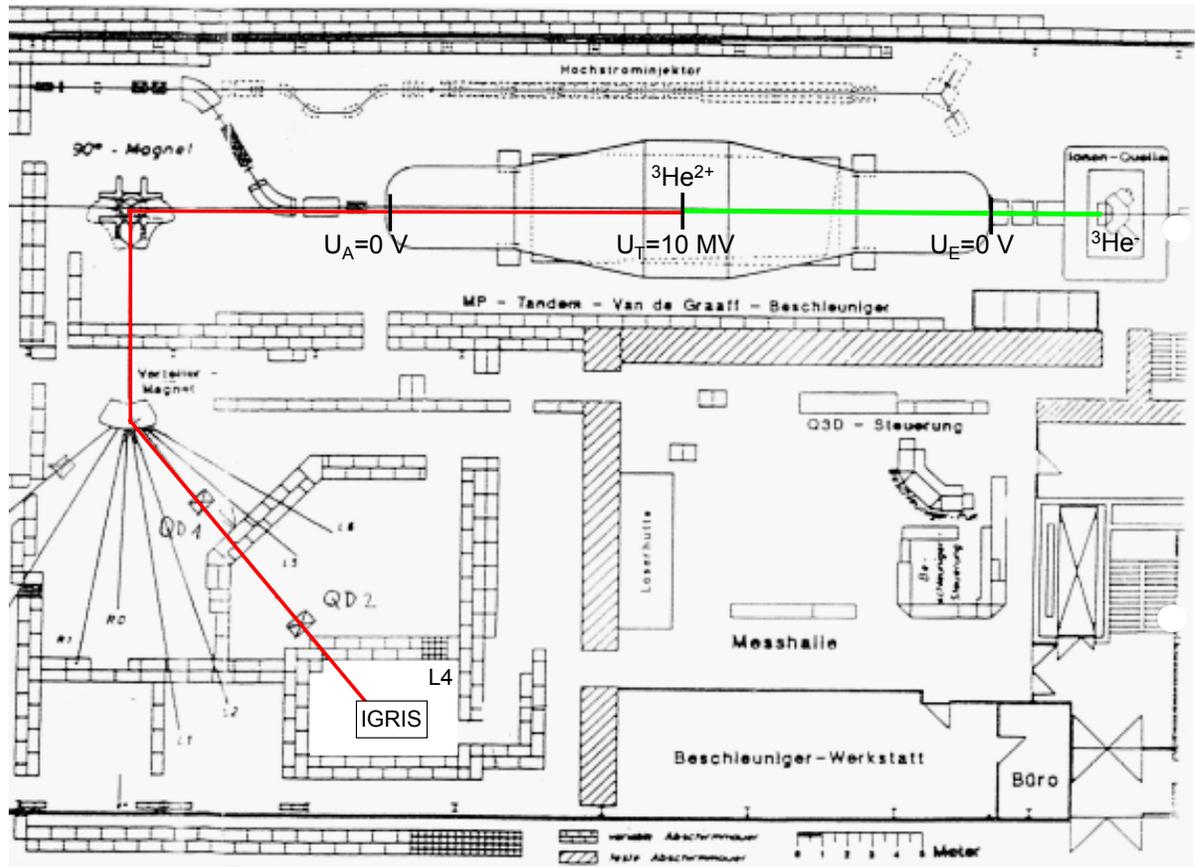


Abbildung B.2: Beschleuniger Labor des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg. Strahlplatz L4 und die IGRIS Apparatur sind gekennzeichnet.

B.1 Resonanzionisation an Erbium aus einem 50 MeV Schwerionenstrahl

Zur Optimierung der Apparatur wurde ein gepulster 50 MeV $^{166}\text{Er}^{7+}$ Strahl mit einem mittleren Strahlstrom von $\bar{I} = 0.6 \text{ pA}$ in die mit 50 mbar Ar gefüllte Puffergaszelle eingeschossen, siehe Abb. B.3. Die Energie der Er-Ionen wurde mit einem drehbaren Abschwächer (C, $400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) so angepasst, dass ein möglichst großer Anteil in der Zelle stoppte. Das Experiment wurde, wie in Kapitel 2.1.3 erläutert wurde, in zwei Phasen durchgeführt. Zunächst wurden die geladenen Teilchen mit Hilfe elektrischer Felder während der “Clean Up” Periode entfernt, so dass nur neutrale Er-Atome im Gas gespeichert blieben. Dann wurden die Spannungen an den Zellenelektroden für die Extraktion umgeschaltet, siehe dazu auch Abb. 2.4 und Abb. B.7. Die elektrische Feldkonfiguration für beide Phasen ist in Abb. B.4 dargestellt.

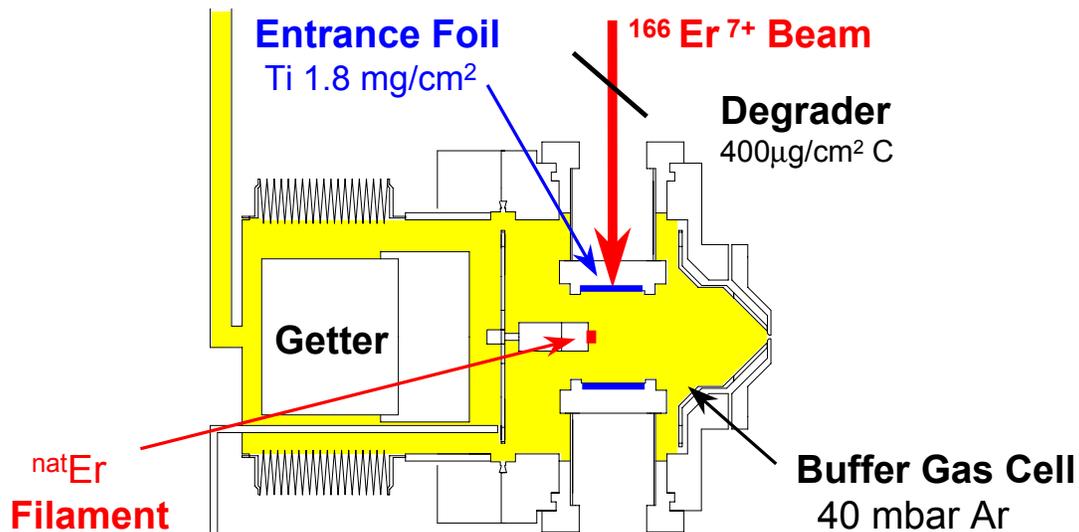


Abbildung B.3: Optische Zelle zur on-line Laserspektroskopie. Um die Gasverunreinigungen möglichst gering zu halten, ist die optische Zelle in UHV Technik aufgebaut. Das Ar-Gas der Reinheit 6.0 wird durch einen Getter zusätzlich gereinigt. Mit Hilfe eines ^{nat}Er -Filamentes kann die Apparatur ohne Strahl getestet und eine Massen- und Wellenlängeneichung durchgeführt werden. Beide Laserstrahlen zur Resonanzionisation wurden über eine einzige Glasfaser zur optischen Zelle transportiert. Der Strahlfleck wurde auf einen Durchmesser von 1,5 cm aufgeweitet und senkrecht zum Er-Strahl eingestrahlt.

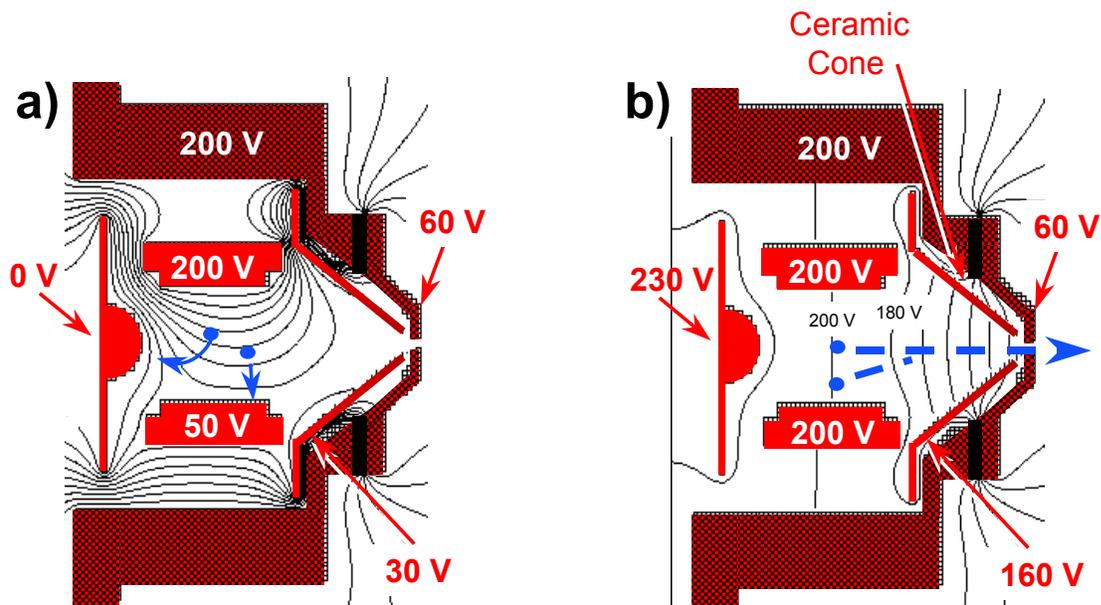


Abbildung B.4: Elektrische Feldkonfiguration in der "Clean Up" Periode (a) und der "Extraction" Periode (b).

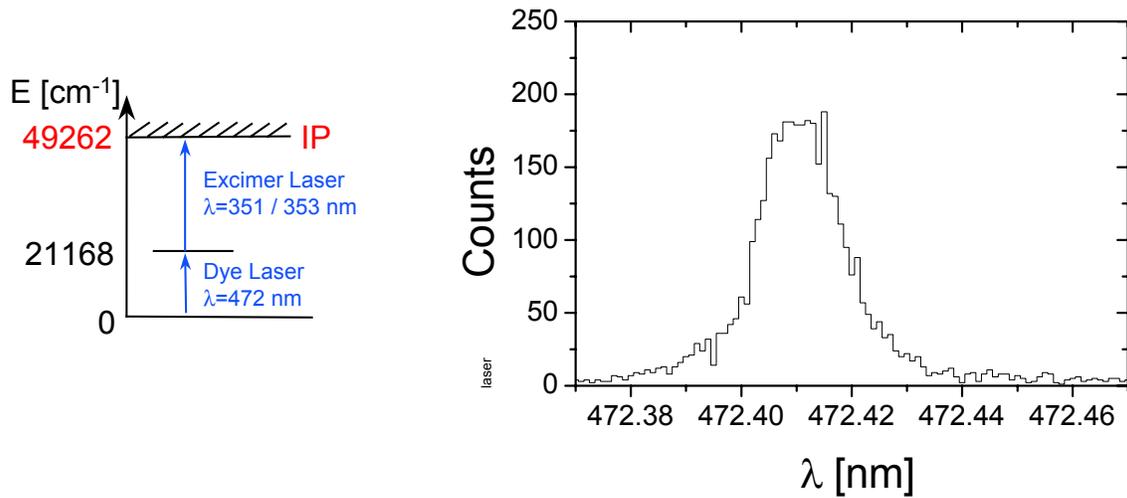


Abbildung B.5: Laser Anregungsschema (a). Wellenlängen-Scan (b).

Mit einem gepulsten Farbstofflaser der Wellenlänge 472 nm wurden die Er-Atome resonant angeregt und mit dem Licht eines Excimerlasers nichtresonant ionisiert, siehe Abb. B.5. Die Wellenlänge des Farbstofflasers wurde im Weiteren auf der Resonanz festgehalten und ein Massenspektrum aufgenommen, s. Abb. B.6. Die Repetitionsrate des Lasers betrug dabei 200 Hz.

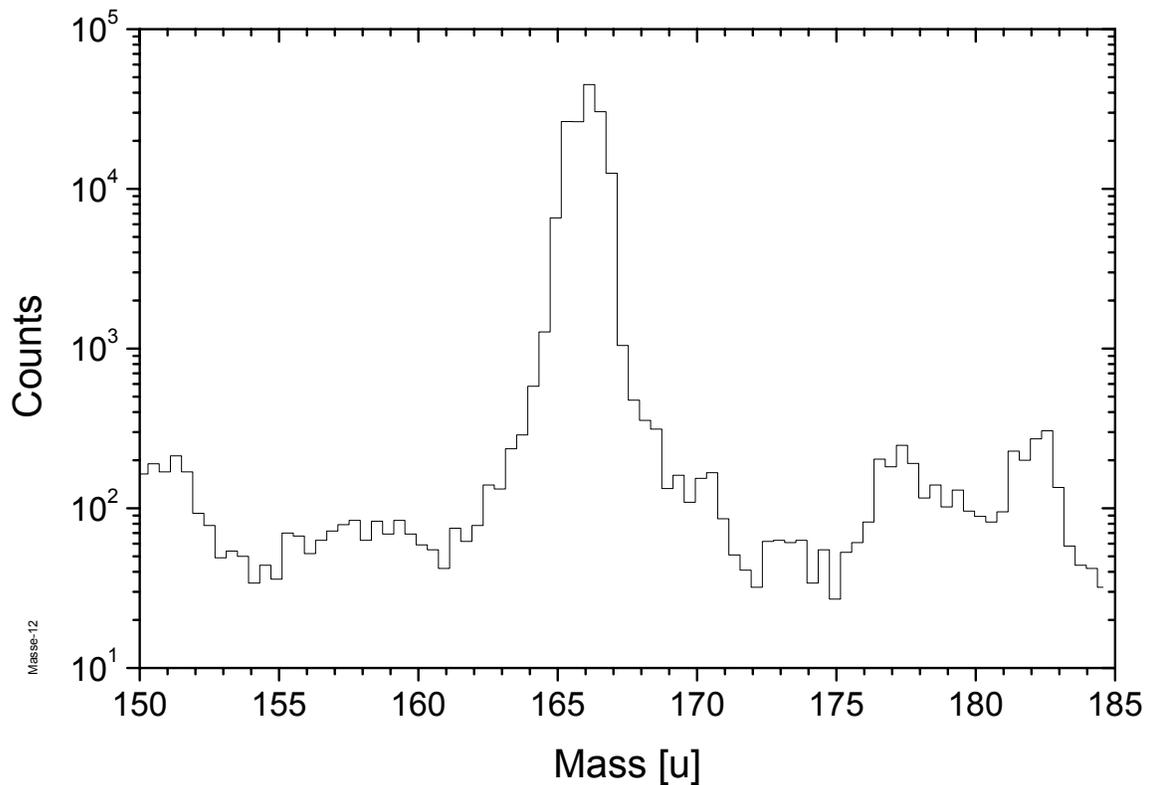


Abbildung B.6: Massenspektrum bei RIS an einem ^{166}Er -Strahl.

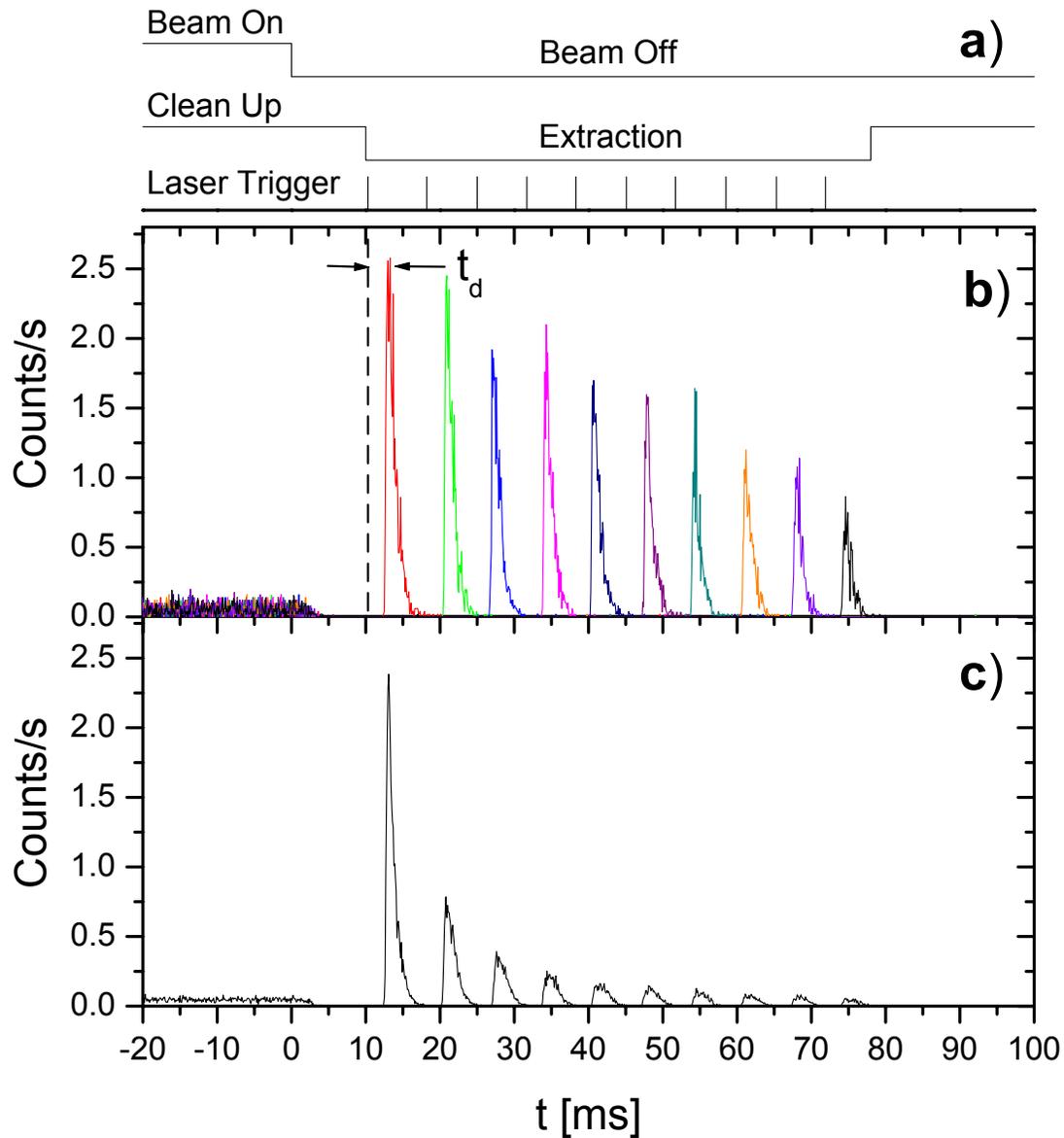


Abbildung B.7: Zeitlicher Ablauf bei RIS. Pulsung des Primärstrahls (100 ms an/100 ms aus), der elektrischen Felder und des Lasers (a). Zeit aufgelöstes Ionensignal ($m=166$ u) von 10 einzelnen Laserimpulsen die zeitlich um jeweils 7.7 ms verzögert wurden (b) und das entsprechende Signal für eine Sequenz von 10 Pulsen (c).

In den folgenden Experimenten wurde die Zeitentwicklung der Resonanzzählrate untersucht. Dabei wurde der Massenfilter auf der Masse 166 u festgehalten. Zunächst wurde jeweils nur ein Laserimpuls mit einer variablen Zeitverzögerung zwischen 3 ms und 72 ms eingestrahlt, siehe Abb. B.7 (b). Die Verzögerungszeit $t_d = 2,8$ ms zwischen Laserimpuls und dem Maximum des Ionensignals entspricht der Transportzeit vom Stoppvolumen zum Detektor. Durch Diffusion der Er-Atome aus dem vom Laser ausgeleuchteten Volumen nimmt die Anzahl der gespeicherten Er-Atome $N_{st}(t)$ und somit das dargestellte Ionensignal mit der Zeit t ab. Die Abnahme der Teilchenzahl $N_{st}(t)$ kann durch Funktion

$$N_{st}(t) = N_{st}(0) e^{-t/\tau_d} , \quad (\text{B.1})$$

mit der Zeitkonstante $\tau_d = 60$ ms, beschrieben werden.

In einem weiteren Experiment wurde eine Sequenz von 10 Laserimpulsen bei einer Repetitionsrate von 150 Hz eingestrahlt, siehe Abb. B.7 (c). In diesem Experiment kann aus dem Verhältnis der Zählraten \dot{N} zweier aufeinanderfolgender Ionensignale zu den Zeiten t_i und t_{i+1} die RIS-Effizienz bestimmt werden :

$$\epsilon_{RIS} = \frac{\dot{N}(t_{i+1})}{\dot{N}(t_i)} e^{\Delta t/\tau_d} = 0.5 , \quad (\text{B.2})$$

mit der Zeit $\Delta t = t_{i+1} - t_i = 7.7$ ms zwischen zwei Laserimpulsen. Der letzte Term in Gl. (B.2) berücksichtigt die Diffusionsverluste in der Zeit Δt , s. Gl. (B.1). Die Gesamteffizienz des Systems wurde aus dem Verhältnis der Zählrate des Channeltron-Detektors \dot{N}_d zu dem Ionenstrom des Primärstrahls \dot{N}_p zu $\epsilon = \dot{N}_d/\dot{N}_p = 4 \cdot 10^{-5}$ bestimmt. Zum Vergleich mit der erwarteten Effizienz wird

$$\epsilon = \epsilon_{stop} \cdot \epsilon_{neutral} \cdot \epsilon_{overlap} \cdot \epsilon_{RIS} \cdot \epsilon_{cell} \cdot \epsilon_{trans}$$

berechnet. Der Anteil der in der Zelle gestoppten Ionen wurde mit Hilfe von Monte Carlo Simulationen zu $\epsilon_{stop} \approx 0.2$ bestimmt. Der Anteil der Ionen, die beim Stoppprozess neutralisieren beträgt etwa 13% [43]. Die Beobachtung, dass die Zählrate bei Erhöhung des Strahlstroms von 3 ppA bis 1 pnA linear anstieg schließt eine Zunahme der Neutralisation durch Rekombination der Er-Ionen mit Elektronen im Plasma des Primärstrahls, s. Kapitel 2.1.3, aus. Dieser Befund ist in Übereinstimmung mit Ref. [52], in der kein Anstieg der Neutralisation in diesem Energiebereich erkennbar ist. Der räumliche Überlapp des Laserstrahlflecks mit der Stoppverteilung betrug $\epsilon_{overlap} = 0.3$ und die Transporteeffizienz durch die LPF und den QMS $\epsilon_{trans} = 0.12$, s. Kapitel 4.4. Daraus muss gefolgert werden, dass die Effizienz der Extraktion der Ionen aus der Gaszelle nur $\epsilon_{cell} = 0.03$ beträgt. Dies steht im Gegensatz zu off-line Messungen (0.8 [26]) und könnte mit der räumlichen Verteilung der gestoppten Ionen erklärt werden. Im Gegensatz zu den Filamentexperimenten aus Kapitel 4.4 und Ref. [26] ist die Verteilung der Er-Atome in diesem on-line Experiment nicht auf einen gut lokalisierten Ort in der Zelle beschränkt, sondern nahezu homogen im gesamten Bereich zwischen Eintritts- und Austrittsfolie. Simulationen mit dem Programm SIMION [78] zeigen, dass die Extraktionseffizienz mit elektrischen Feldern für eine ausgedehnte Verteilung stark abnimmt. Einen weiteren Grund kann die mögliche Abschirmung der elektrischen Felder,

durch die grosse Anzahl freier Ladungsträger in der Puffergaszelle, darstellen. Auch der Verlust neutraler Er-Atome in ionenchemischen Reaktionen mit Gasverunreinigungen, führt zu einer Abnahme der Extraktionseffizienz.

B.2 Resonanzionisation an Erbium aus einer Fusionsreaktion

In einem weiteren vorbereitenden Schritt zur Resonanzionisationsspektroskopie an ^{251}Fm , wurde die Resonanzionisation an Erbium, das wie im geplanten Fm-Experiment in einer $(\alpha, 2n)$ -Kernfusionsreaktion erzeugt wurde, getestet.

Der Experimentelle Aufbau ist in Abb. B.8 dargestellt. Um sicherzustellen, dass die nachgewiesenen Er-Ionen in der Kernreaktion produziert wurden und nicht von Kontaminationen der Apparatur oder von dem zur Wellenlängeneichung verwendeten ^{nat}Er -Filament stammen, sollte das Isotop ^{163}Er erzeugt werden. Dieses β^- -instabile Isotop kommt aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von 75 min in der Natur nicht vor, kann aber über die Reaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha, 2n)^{163}\text{Er}$ erzeugt werden. Da die natürliche Häufigkeit des Isotops ^{161}Dy nur 18.9% beträgt, wurden die Targets am Institut für Kernchemie, ausgehend von einer auf 80% angereicherten ^{161}Dy Probe, elektrochemisch hergestellt. Das Verfahren ist in Referenz [112] beschrieben. Dabei wurde das Targetmaterial mit einer Massenbelegung von $\rho d = 200\mu\text{g}/\text{cm}^2$ auf Ti Trägerfolien der Dicke $1.8\text{ mg}/\text{cm}^2$ abgeschieden. Die Energie des α -Strahls E_{beam} betrug bei dem Experiment 28 MeV. Bei dieser Energie hat der Reaktionswirkungsquerschnitt σ , der mit dem Programm HI-VAP [113, 114] berechnet wurde, sein Maximum und beträgt 1 barn. Die Ergebnisse der Rechnungen sind in Abb. B.9 dargestellt.

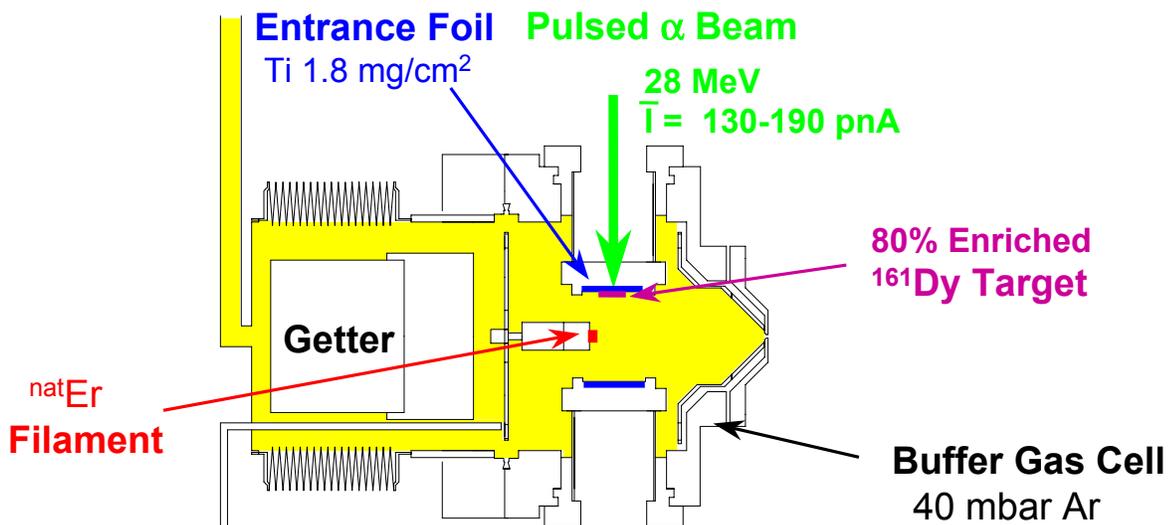


Abbildung B.8: Experimenteller Aufbau zur Resonanzionisationsspektroskopie an ^{163}Er .

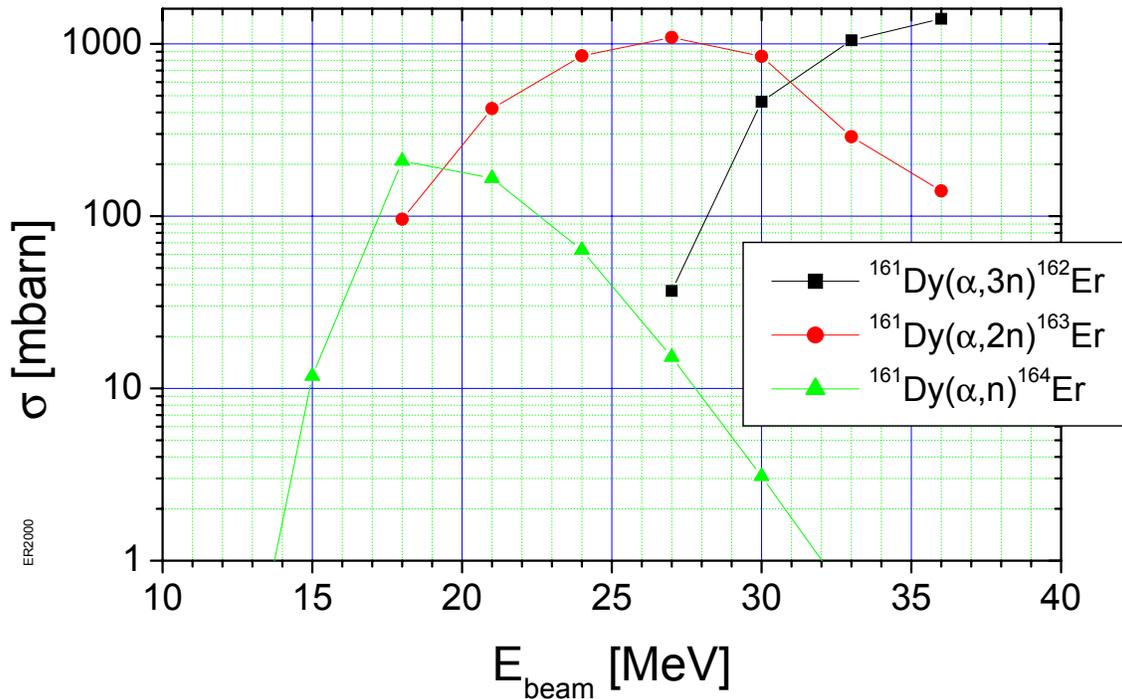


Abbildung B.9: Wirkungsquerschnitte σ als Funktion der α -Strahlenergie E_{beam} . Dargestellt sind die Ergebnisse der Rechnungen mit dem Programm HIVAP [113, 114].

Aufgrund der geringen Rückstoßenergie der Fusionsprodukte von 500 keV wurde das Target in der Puffergaszelle auf der Eintrittsfolie befestigt. Ein Anteil von 90% der Erbiumkerne wird bei einem Puffergasdruck von 40 mbar innerhalb einer Sphäre von 5 mm Durchmesser gestoppt, s. Abb. B.10.

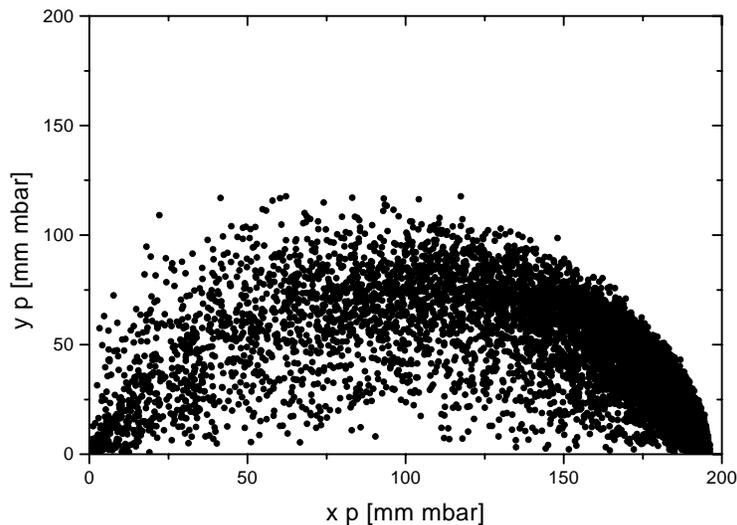


Abbildung B.10: Stoppverteilung der Rückstoßkerne im Argon-Puffergas in Abhängigkeit vom Zellendruck p . Das Target befindet sich bei $x p = 0$. Entnommen aus Ref. [49].

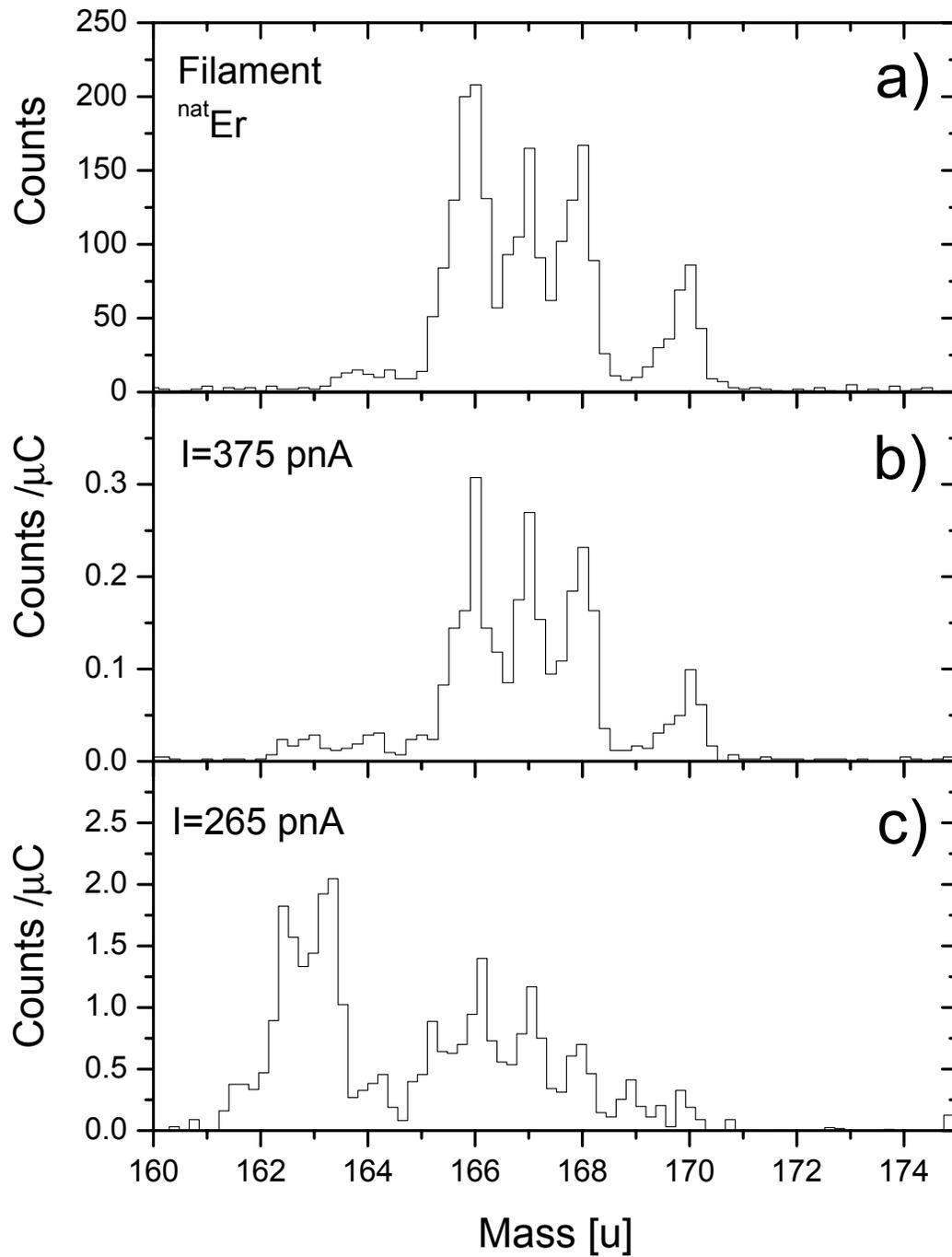


Abbildung B.11: Massenspektrum mit einem ^{nat}Er -Filament (a) und nach RIS an Er aus der Kernreaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha, 2n)^{163}\text{Er}$ (b) und (c).

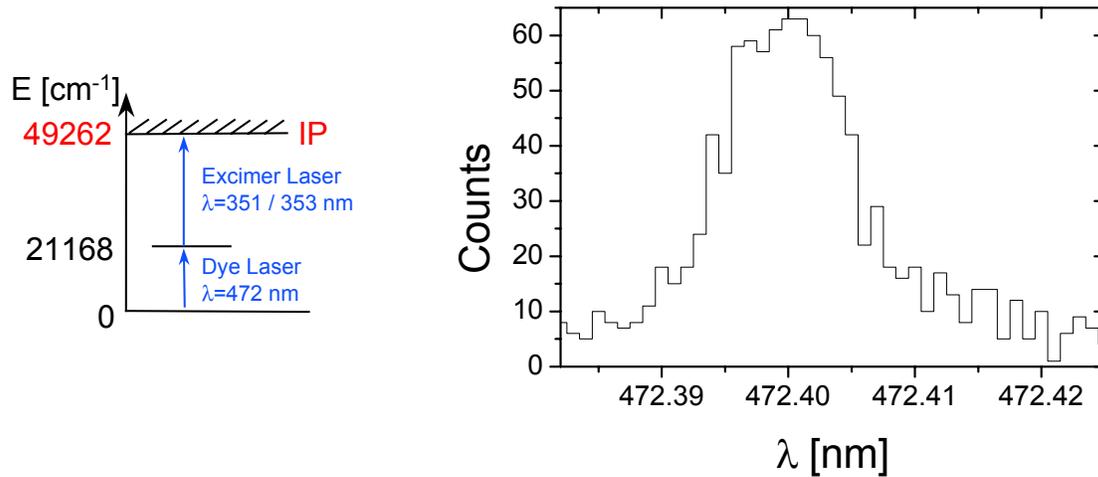


Abbildung B.12: RIS an Er aus der Kernreaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha, 2n)^{163}\text{Er}$. Laser Anregungs-schemata (a). Wellenlängen-Scan (b).

Das Experiment wurde, wie in Kapitel B.1 beschrieben ist, in zwei Phasen durchgeführt. Die Spannungen der Zellenelektroden während der “Clean Up” und “Extraction” Periode wurden, wie in Abb. B.4 abgebildet ist, eingestellt.

Um die Resonanzwellenlänge von 472 nm mit dem Farbstofflaser einzustellen, wurden zunächst Er-Atome von dem ^{nat}Er -Filament abgedampft. Das Massenspektrum ist in Abb. B.11 (a) dargestellt. Anschließend wurde das Filament abgeschaltet und ein weiteres Massenspektrum bei einem Primärstrahlstrom von 375 pA aufgenommen. In dem in Abb. B.11 (b) dargestellten Massenspektrum ist das Signal bei der Masse 163 u kaum zu erkennen. Es dominiert ein Untergrund der aufgrund des Massenspektrums und der Wellenlängenabhängigkeit auf ^{nat}Er zurückgeführt werden kann. Vermutlich wurden auf das Target aufgedampfte Er-Atome vom Primärstrahl abgesputtert und im Puffergas gespeichert. Nach einer Messzeit von 3 h wurde das in Abb. B.11 (c) dargestellte Massenspektrum bei einem Strahlstrom von 265 pA aufgenommen. Das ^{163}Er Signal ist gegenüber dem ^{nat}Er Signal so angewachsen, dass es im Spektrum dominiert. Weiterhin ist zu erkennen, dass das Signal auch absolut um einen Faktor 100 angewachsen ist.

Im Folgenden wurde der Massenfilter fest auf der Masse 163 u gehalten und ein Wellenlängen-Scan aufgenommen. Das Wellenlängenspektrum und die verwendete Laser Anregung sind in Abb. B.12 (a) und (b) dargestellt. Der zeitliche Ablauf des Experimentes ist in Abb. B.13 (a) dargestellt. In Abb. B.13 (b) ist die Zeitverteilung der Ionen auf der Masse 163 u abgebildet. Nach jedem Laserimpuls ist mit einer Verzögerung von $t_d = 3 \text{ ms}$ eine erhöhte Zählrate im Channeltron-Detektor erkennbar. Diese Zeitverzögerung entspricht im Wesentlichen der Driftzeit der laserionisierten Er-Atome in der Puffergaszelle. Die Struktur bei 5 ms wird auf Erbium Ionen aus der Kernreaktion zurückgeführt, die sich direkt vor der Austrittsdüse gesammelt haben und daher nicht in der “Clean Up” Periode aus dem Puffergas extrahiert werden konnten, s. Abb. B.4.

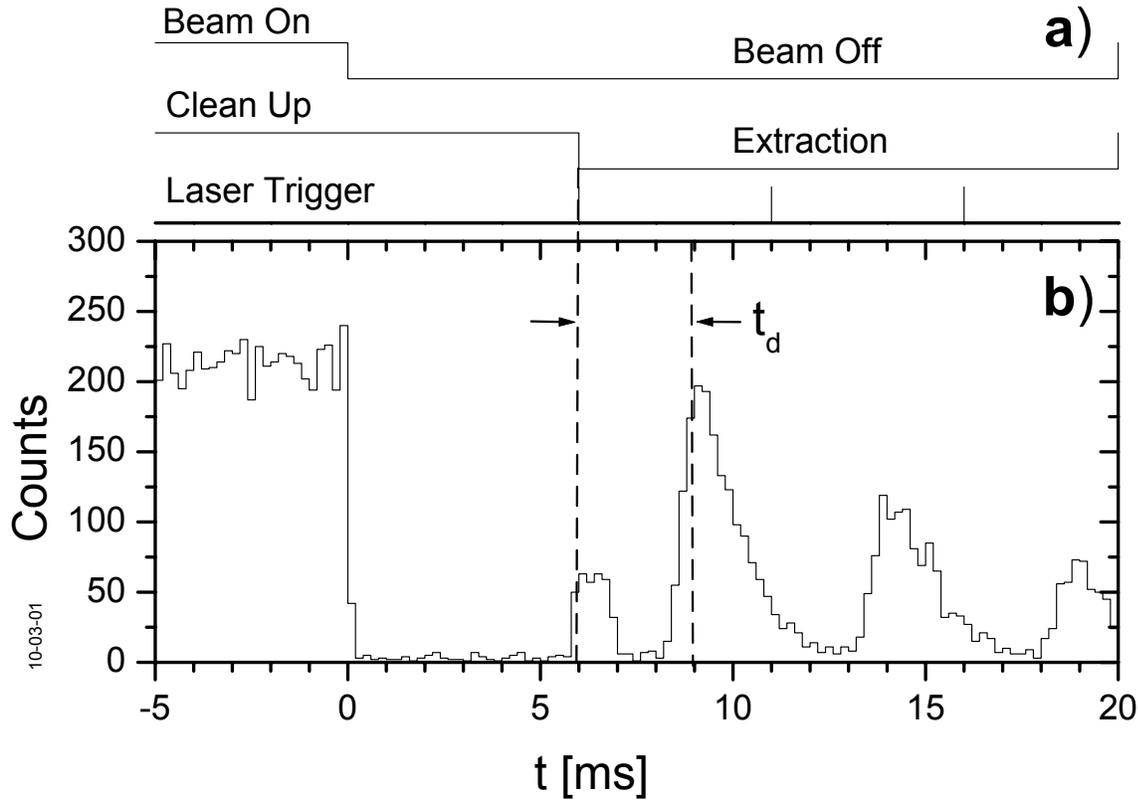


Abbildung B.13: Zeitlicher Ablauf bei RIS. Pulsung des Primärstrahls (20 ms an/20 ms aus), der elektrischen Felder und des Lasers (a). Zeit aufgelöstes Ionensignal auf der Masse 163 u mit einer Sequenz von 3 Laserimpulsen (b). Die Messzeit beträgt $T = 100$ s.

In diesem Experiment ist die Gesamteffizienz ϵ das Verhältnis der mittleren Zählrate im Channeltron-Detektor \dot{N}_d zur Erbium Produktionsrate \dot{P} . Diese wurde mit der Sättigungsdicke des Targets $\rho d_{eff} = 137 \mu\text{g}/\text{cm}^2$, einem mittleren Strahlstrom von $\bar{I}_\alpha = 160$ pA und einem Reaktionswirkungsquerschnitt $\sigma = 1$ barn zu $\dot{P} = 5 \cdot 10^5/\text{s}$ abgeschätzt. Die Effizienz $\epsilon = \dot{N}_d/\dot{P} = 1 \cdot 10^{-4}$ ist in Übereinstimmung mit der in Kapitel B.1 bestimmten Effizienz von $4 \cdot 10^{-5}$.

Tatsächlich wurde eine wesentlich bessere Effizienz erwartet, da auf der einen Seite die Reichweiteverteilung der Er-Ionen mit einer Länge 5 mm abgeschätzt worden war und auf der anderen Seite die Effizienz der Extraktion der Ionen im elektrischen Feld auf 80% für eine gut lokalisierte Ionenverteilung bestimmt worden war [26]. In Testexperimenten wurde jedoch deutlich, dass sowohl die mittlere Reichweite als auch die Breite der Reichweiteverteilung größer als erwartet sind. Ein Grund dafür könnte darin liegen, dass das Monte Carlo Programm SRIM2000 [115, 116] das Stoppvermögen von Argon um etwa 30% überschätzt [51]. Ein weiterer Grund könnte in einer lokalen Erwärmung und damit verbundenen Abnahme der Dichte des Puffergases durch den Primärstrahl liegen. Die daraus resultierende Breite der Reichweiteverteilung kann bis zu 10 mm betragen, was eine dramatische Abnahme der Extraktionseffizienz bedingt, da diese mit dem Abstand von der Symmetrieachse der Zelle stark abnimmt.

Die Effizienz der on-line Technik leidet weiterhin unter der Tatsache, dass nur etwa 13% [43] der Ionen im Puffergas neutralisiert. Eine verstärkte Neutralisation durch freie Ladungsträger im vom Primärstrahl erzeugten Plasma, wie in Referenz [52] beschrieben ist, konnte in unseren Experimenten nicht beobachtet werden. Weiterhin ist zu bemerken, dass Signalintensität und Untergrundzählrate stark variierten. Eine mögliche Erklärung für diese Beobachtung ist die Freisetzung von Lösungsmittelresten aus Mikroeinschlüssen im Targetmaterial bei der Bestrahlung mit 30 MeV α -Teilchen. Eine Abnahme der freigesetzten Lösungsmittelmenge mit der Dauer der Bestrahlung könnte den Anstieg der Resonanzzählrate um einen Faktor 100, s. Abb. B.11 (b) und (c) erklären. Das ^{161}Dy Target wurde vor der Bestrahlung 48 h bei einer Temperatur von etwa 100°C durch indirektes Heizen ausgeheizt. Bei der Wiederholung des Experimentes mit identischen Targets, die jedoch nicht ausgeheizt wurden, konnte das Signal nur mit Mühe gefunden werden.

Das Signal/Untergrundverhältnis lässt sich aus Abb. B.12 (b) und Abb. B.13 (b) abschätzen und beträgt etwa 100/1. Der nicht-zeitkorrelierte Untergrund auf der Masse 163 u beträgt in der Strahl-aus-Periode etwa 2/s und ist auf die Ionisation schwerer Kohlenwasserstoffketten, die wahrscheinlich aus der Verwendung von Vakuumfett zum Abdichten der Eintrittsfolien stammt, zurückzuführen. Dieser Untergrund ist bei schweren Massen stark reduziert und sollte bei entsprechender Reinheit des Puffergases völlig unterdrückt werden können. Der Untergrund ohne Laserstrahl beträgt 0.1/s und wird hauptsächlich durch γ -Strahlung hervorgerufen, die aus vom α -Strahl aufaktiviertem Material im Bereich des Targets und Strahlfänger stammen. Dieser Untergrund kann um etwa einen Faktor 4 durch Abschirmung des Channeltron-Detektors mit 5 mm Blei reduziert werden [49]. In dem geplanten Fm-Experiment würde bei demselben Strahlstrom die Produktionsrate 10^3 /s betragen. Die Resonanzzählrate würde dann 0.1/s bei einem Signal/Untergrundverhältnis von etwa 4/1 betragen.

Ohne weitere Verbesserungen der Effizienz ist eine Breitbandsuche nach atomaren Linien im Element Fermium schwierig. Ausgehend von den Übergängen, die im Isotop ^{255}Fm gefunden wurden, s. Kapitel 5, sollte es jedoch möglich sein, begrenzte Wellenzahlenbereiche abzusuchen um die Isotopieverschiebung $\Delta T^{251,255}$ für beide Übergänge zu bestimmen.

Um die Extraktionseffizienz zu verbessern könnte eine Düse mit einem Durchmesser von 0.3 mm verwendet werden. Dadurch kann der Druck in der Zelle auf etwa 400 mbar erhöht werden, so dass der Durchmesser der Stoppverteilung auf etwa 1/10 des Durchmessers in den beschriebenen Experimenten reduziert wird. Für eine so lokalisierte Stoppverteilung sollte dann die Extraktionseffizienz 0.8 [26] betragen.

Anhang C

Analyse der α -Detektorsignale

Die Fm- α -Aktivität der Filamente wurde, wie bereits in Kapitel 5.2 beschrieben wurde, mit zwei Oberflächensperrschichtzählern registriert. Aufgrund der hohen Temperatur von etwa 100 °C beim Ausheizen der Apparatur konnte zunächst nur ein Rauschen in den Detektoren beobachtet werden. Durch etwa 30 min Kühlen der Apparatur mit Kaltluftgebläsen, ließ sich das Rauschen in Detektor 1 so reduzieren, dass die α -Aktivität nachgewiesen werden konnte. Im Verlauf des Experimentes wurden Energiespektren, die für Filament 2 in den Abbildungen C.1 und C.2 dargestellt sind mit einem ADC (Northern, NS 623) aufgenommen. In den Spektren 10 bis 13 ist das Fm- α -Spektrum sehr gut links der senkrechten Markierung zu erkennen. Die beiden Zerfallsenergien $\alpha_1 = 7.02$ Mev und $\alpha_2 = 6.96$ Mev, (vergl. Abb. 5.4 b), können nicht aufgelöst werden. Es wird angenommen, dass die kleine Linie bei Kanal 2929, von Fm stammt, dass sich auf der Titanfolie vor dem Detektor, (vergl. Abb. 5.4 a), angesammelt hat. Daher verlieren diese α -Teilchen keine Energie in der Titan-Sputterschicht und im Puffergas. Die Linien rechts der Markierung werden auf elektrische Störungen zurückgeführt.

Die Zählrate \dot{N} aller in den Energiespektren C.1 und C.2 dargestellten Ereignisse wurde mit einem Zähler über eine Dauer von jeweils 100 s integriert. Der Verlauf der integrierten Zählrate als Funktion der Zeit ist in Abb. C.3 dargestellt. Die Abhängigkeit der Zählrate von Zeit und Heizstrom ist für beide Filamente erkennbar.

Bei Filament 1 sind drei Bereiche erkennbar, in denen die α -Aktivität sprunghaft ansteigt. Dieses Verhalten ist unphysikalisch, da es sich jedoch nur um wenige Datenpunkte handelt, werden diese für die weitere Auswertung vernachlässigt.

Die α -Aktivität von Filament 2 zeigt ebenfalls Bereiche mit sprunghaftem Anstieg, die insgesamt etwa die Hälfte der Messdauer umfassen. Die Energiespektren, Abbildungen C.1 und C.2, zeigen, dass zeitweise ein elektronisches Störsignal mit wechselnder Energie und einer Rate von 200/s aufgenommen wurde. Diese Rate entspricht genau der Repititionsrate des Excimerlasers. Schon früher wurde festgestellt, dass die Schaltfunken des Thyratrons als Störimpulse in der Datenaufnahme registriert wurden. Daher wurde für die weitere Analyse eine Rate von 200/s in den entsprechenden Bereichen von \dot{N} abgezogen. Um diese Hypothese zu beweisen, wurde in den Energiespektren die Zählrate $\dot{N}_{\Delta E}$ über die markierten Energiebereiche integriert und in Form von waage-

rechten Linien in Abb. C.3 unten dargestellt. Es ist zu erkennen, dass $\dot{N}_{\Delta E}$ hinreichend genau mit der korrigierten Zählrate \dot{N}_{corr} übereinstimmt.

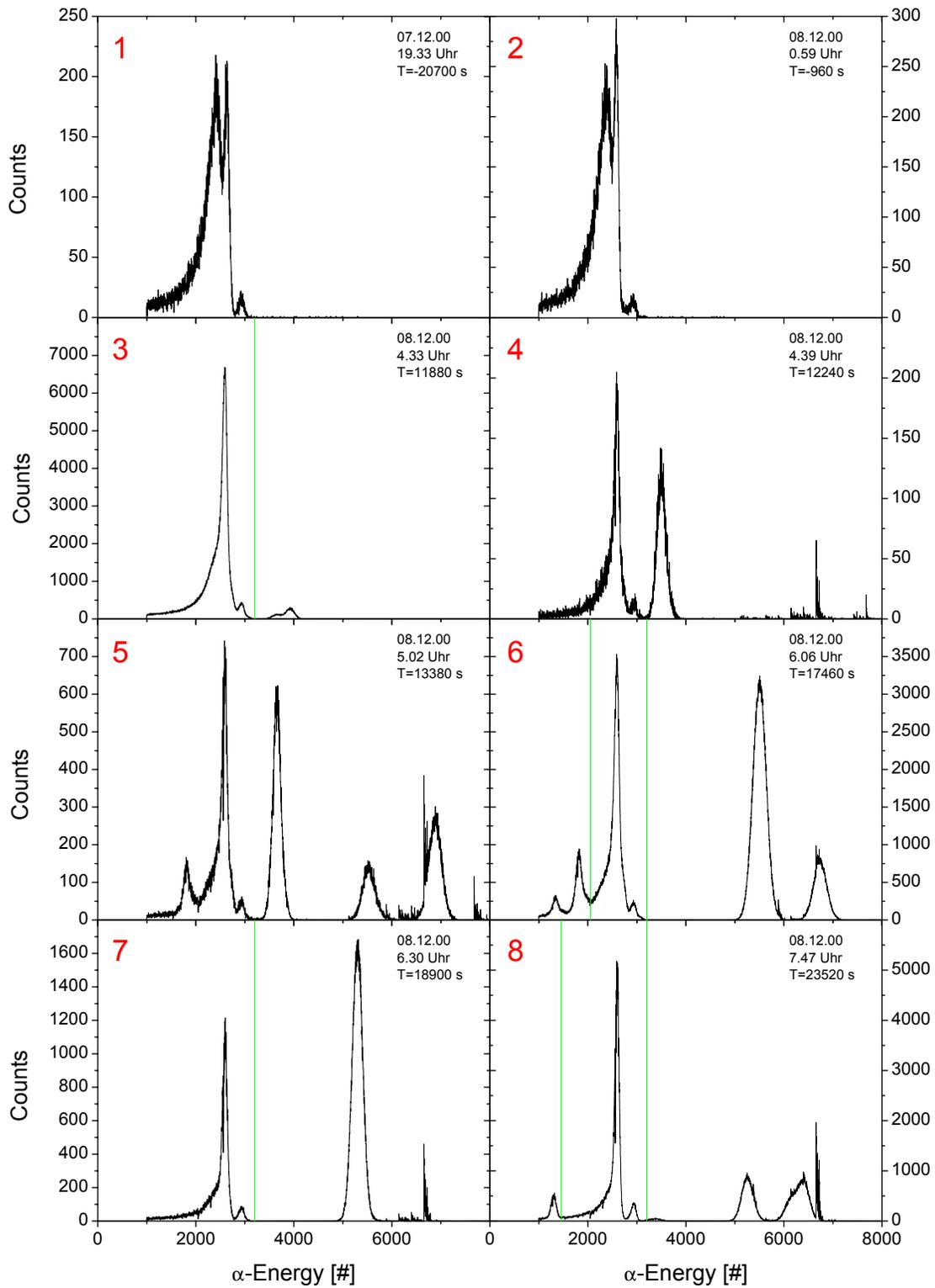


Abbildung C.1: α -Energiespektrum 1-8. Zur Bestimmung der Zählrate $\dot{N}_{\Delta E}$ wurde über die Bereiche links der senkrechten Linie bzw. zwischen den senkrechten Linien integriert.

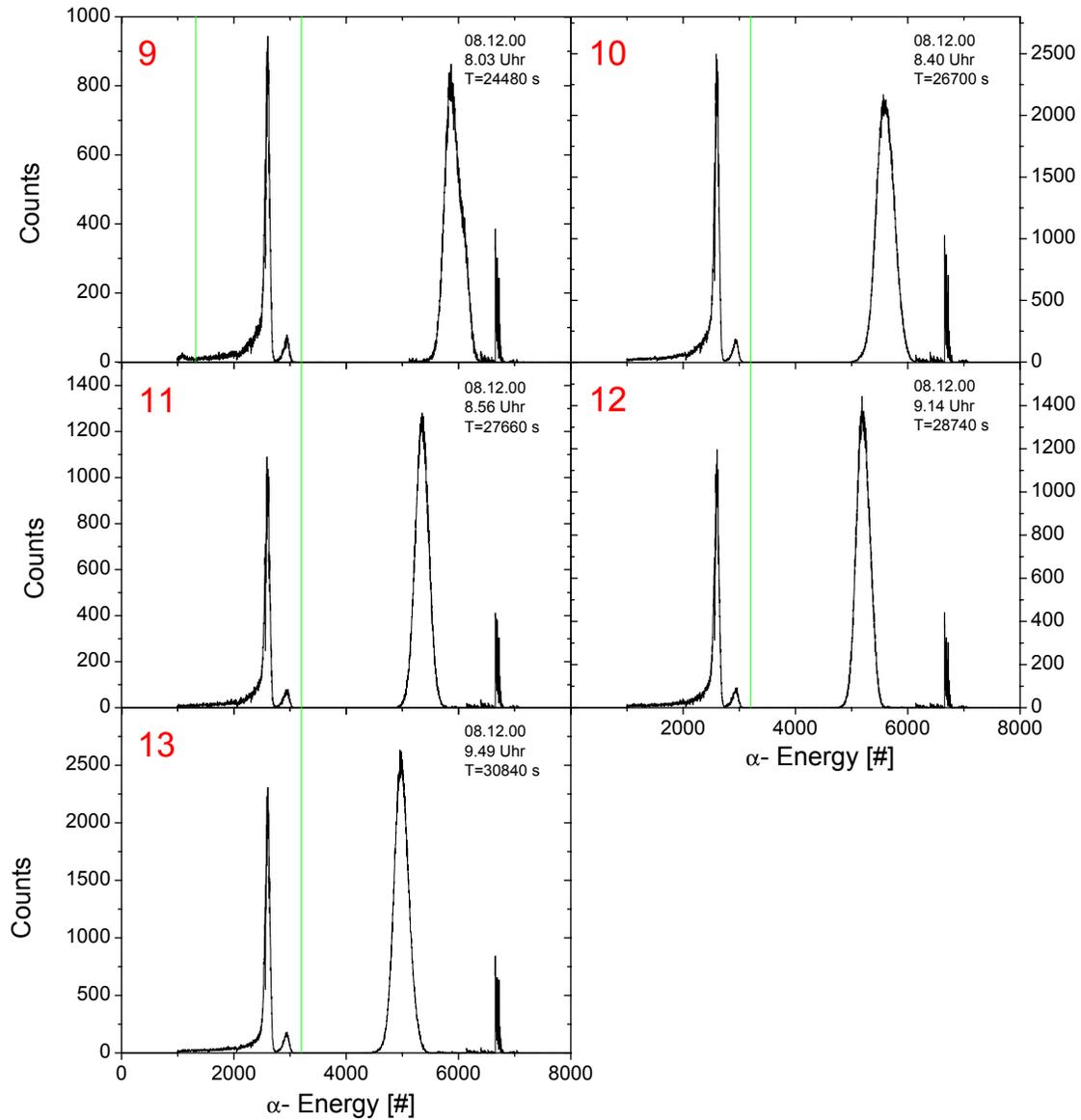


Abbildung C.2: α -Energiespektrum 9-13. Zur Bestimmung der Zählrate $\dot{N}_{\Delta E}$ wurde über die Bereiche links der senkrechten Linie bzw. zwischen den senkrechten Linien integriert.

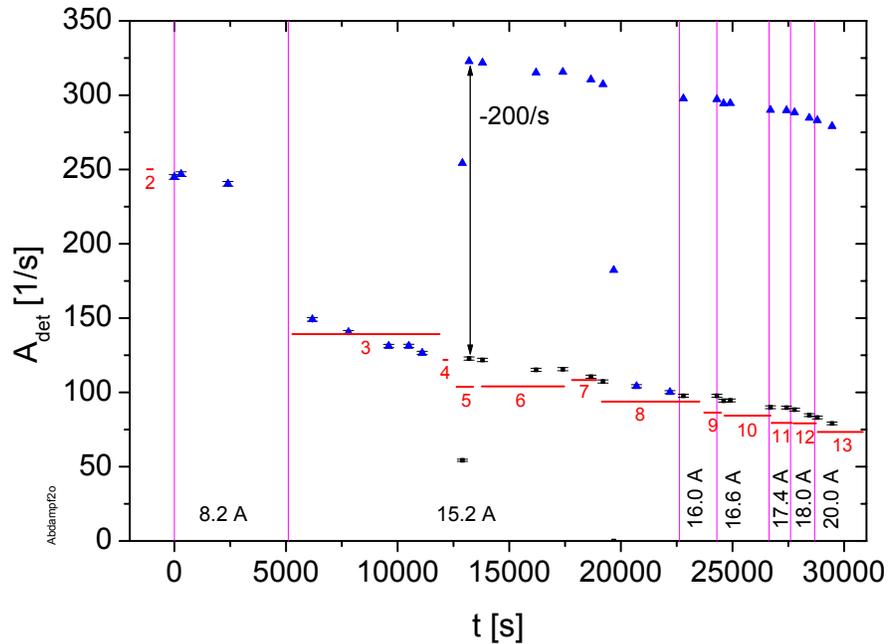
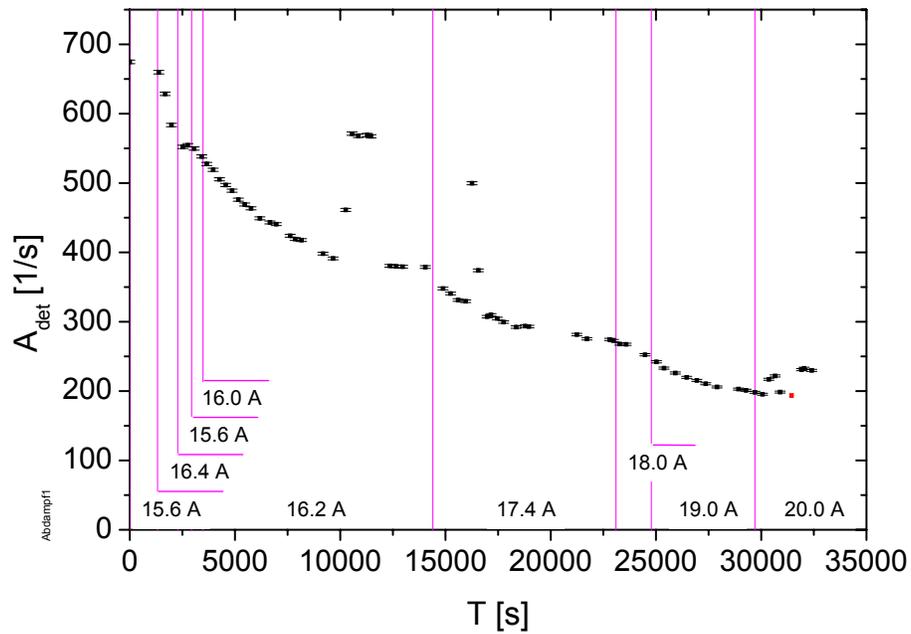


Abbildung C.3: Zählrate der α -Detektoren als Funktion der Zeit. Oben : Filament 1, unten : Filament 2. Die Zählrate \dot{N} ist mit Dreiecken und \dot{N}_{corr} mit Punkten gekennzeichnet. Die Zählraten $\dot{N}_{\Delta E}$ sind durch waagerechte Linien dargestellt. Die Länge der Linien bezeichnen dabei die Zeitdauern der Messungen.

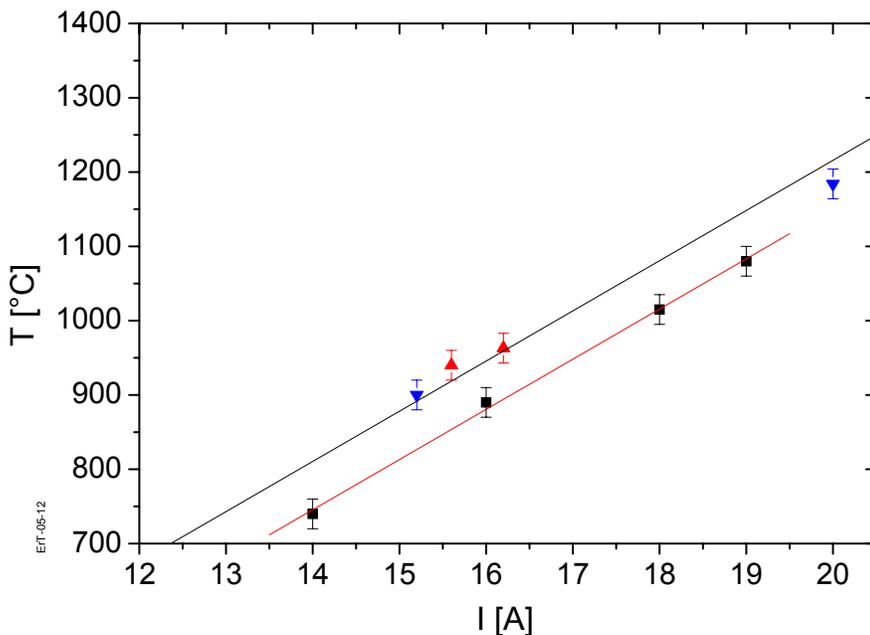


Abbildung C.4: Filamenttemperatur als Funktion der Stromstärke. Quadrate : Er-Filament. Dreiecke : Fm-Filament 1 und 2.

Temperatureichung

Bei den Experimenten mit Filamenten wurde ein linearer Zusammenhang zwischen Temperatur und Heizstromstärke beobachtet, siehe Abb. C.4. Anhand der Messung von Stromstärke und Temperatur eines Er-Filamentes wird eine Eichung der Fm-Filamente durchgeführt. Bei allen Filamenten wurden $50 \mu\text{m}$ dicke Ta-Trägerfolien verwendet, auf denen das jeweilige Element elektrochemisch auf einer kreisförmigen Fläche von 3 mm Durchmesser abgeschieden wurde. Anschließend wurden die Filamente mit etwa $1 \mu\text{m}$ Titan besputtert. Für das Er-Filament zeigt die mit einem Farb-Pyrometer beobachteten Temperatur T_{Er} als Funktion der Heizstromstärke I_{Er} einen linearen Verlauf, an den die Geraden $T = a + b \cdot I$ mit den Parametern $a_{Er} = (-200 \pm 35)^\circ\text{C}$ und $b_{Er} = (67.5 \pm 2.0)^\circ\text{C}/\text{A}$ angepasst wurde. Da die jeweils zwei Datenpunkte für die Fm-Filamente nicht für eine Anpassung ausreichen, wurde die Gerade so parallel verschoben, dass sie die Fm-Datenpunkte möglichst gut beschreibt. Bei der Verschiebung ergibt sich $a_{Fm} = (-135 \pm 35)^\circ\text{C}$, für die Steigung gilt unverändert $b_{Fm} = (67.5 \pm 2.0)^\circ\text{C}/\text{A}$. Der Offset zwischen Er- und Fm-Filamenten kann durch eine Abweichung der Filamentbreiten um 0.2 mm erklärt werden. Derartige Abweichungen sind beim manuellen Schneiden der Folien möglich. Die Fm-Filamente hingegen wurde gestanzt, so dass eine Abweichung der Breiten dieser beiden Filamente unwahrscheinlich ist.

Anhang D

Radiochemische Analyse der ^{255}Fm Probe

Date of Last Actinide Separation: December 4, 2000 @ 01:19

Date of Final Analysis: December 4, 2000 @04:15

<u>Alpha Energy</u>	<u>Abundance</u>
7.02 MeV	100.0 %

99.97% !
=

Volume: 1.3 mL

Gross α: 3.00E+07 Bq/mL

1.718 ng of ²⁵⁵Fm

Gross N_p: <2.00E+02 cts/m/mL

Table 2. Radiochemical Impurities
Date of Analysis: December 4, 2000

<u>Nuclide</u>	<u>Bq/mL*</u>	<u>μCi/ng Fm-255</u>
⁹¹ Y	<1.10E+05	<2.250
⁹⁵ Nb	<1.80E+02	<0.004
⁹⁵ Zr	<4.40E+02	<0.009
¹⁰³ Ru	<2.90E+02	<0.006
¹⁰⁶ Ru	<2.20E+03	<0.045
¹²⁵ Sb	<6.10E+02	<0.012
¹³⁴ Cs	<2.60E+02	<0.005
¹³⁷ Cs	<8.20E+01	<0.002
¹⁴⁰ Ba	<7.20E+02	<0.015
¹⁴⁰ La	<3.20E+02	<0.007
¹⁴¹ Ce	<3.70E+02	<0.008
¹⁴⁴ Ce	<4.20E+03	<0.086
¹⁵² Eu	<1.40E+03	<0.029
¹⁵⁴ Eu	<8.00E+02	<0.016
¹⁵⁵ Eu	<1.30E+03	<0.027
¹⁶⁰ Tb	<8.50E+02	<0.017
¹⁶⁶ Dy	<2.20E+06	<44.991
¹⁶⁶ Ho	<4.60E+06	<94.072
²⁴⁹ Cf	<2.70E+02	<0.006
²⁴³ Am	<1.20E+04	<0.245

✓
✓

*Minimum Detectable Activities

*Best regards,
Mark*

M. Schwab

*dies ist heute per luftpost
gekommen
An welche Größe D. Frank*

Abbildung D.1: Radiochemische Analyse der ²⁵⁵Fm Probe.

Anhang E

Das Modell für die Beschreibung des Sättigungsverhaltens und der Linienform

Im Folgenden wird das in Kapitel 6 verwendete Modell, für die Beschreibung sowohl des Sättigungsverhaltens als auch der beobachteten Linienverbreiterung, dargestellt.

E.1 Die optischen Bloch-Gleichungen für ein Zwei-Niveau-System

In Ref. [92] werden die Anregung eines atomaren Übergangs mit einem monochromatischen Laser, mit der Frequenz ω_I und der elektrischen Feldamplitude E_0^I , diskutiert und die optischen Bloch-Gleichungen für ein Zwei-Niveau-System, wie es in Abb. E.1 dargestellt ist, hergeleitet :

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -i\frac{1}{2}V^*e^{i(\omega_{12}-\omega_I)t}\rho_{12} + i\frac{1}{2}Ve^{-i(\omega_{12}-\omega_I)t}\rho_{21} - \gamma_{12}\rho_{22} \quad (\text{E.1})$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = i\frac{1}{2}Ve^{-i(\omega_{12}-\omega_I)t}(\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\gamma'}{2}\rho_{12} \quad (\text{E.2})$$

$$\frac{d\rho_{21}}{dt} = -i\frac{1}{2}V^*e^{i(\omega_{12}-\omega_I)t}(\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\gamma'}{2}\rho_{21} \quad (\text{E.3})$$

$$\rho_{11} + \rho_{22} = 1. \quad (\text{E.4})$$

Es bezeichnen ρ_{nm} die Wahrscheinlichkeitsdichten dafür, dass sich das Atom im Grundzustand ρ_{11} , im angeregten Zustand ρ_{22} oder in einem Mischzustand $\rho_{12} = \rho_{21}^*$ befindet. Die Resonanzfrequenz des atomaren Übergangs von Niveau 1 in Niveau 2 wird mit ω_{12} bezeichnet. Für die Dämpfungskonstante gilt $\gamma' = 1/\tau_{ki} + 1/\tau_d$, mit der partiellen Lebensdauer von Niveau 2 $\tau_{ki} = 1/A_{ki}$, dem Einstein-Koeffizienten für spontane Emission A_{ki} und der mittleren Zeit τ_d zwischen zwei dephasierenden Stößen.

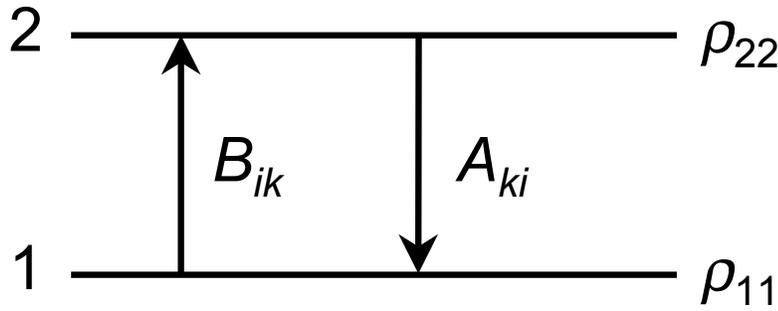


Abbildung E.1: Zwei-Niveau-System.

Weiterhin gilt

$$V = e E_0^I \chi_{12} / \hbar, \quad (\text{E.5})$$

mit der elektrischen Ladung e und dem Übergangsmatrixelement

$$\chi_{12} = \vec{\varepsilon} \cdot \int \psi_1^* \vec{D} \psi_2 dV. \quad (\text{E.6})$$

Das elektrische Dipolmoment des Atoms wird mit $-e \vec{D} = e \sum_{j=1}^Z \vec{r}_j$, die Ortskoordinate von Elektron j mit \vec{r}_j , der Polarisationsvektor des Laserstrahls mit $\vec{\varepsilon}$ und die Wellenfunktion von Niveau i mit ψ_i bezeichnet.

E.2 Verallgemeinerung für beliebige Leistungsverteilungen

Im Folgenden wird das Gleichungssystem Gln. (E.1-E.4) für die Anregung mit einem beliebigen Frequenzgemisch verallgemeinert :

$$V^* e^{-i\omega_I t} \longrightarrow e^{-i\omega_I t} \int \frac{dV^*}{d\omega} (\omega'_I - \omega_I) e^{-i(\omega'_I - \omega_I)t} d\omega'_I \quad (\text{E.7})$$

$$V e^{i\omega_I t} \longrightarrow e^{i\omega_I t} \int \frac{dV}{d\omega} (\omega'_I - \omega_I) e^{i(\omega'_I - \omega_I)t} d\omega'_I \quad (\text{E.8})$$

Es bezeichnet ω_I die Mittenfrequenz des Lasers. Die Fourierrücktransformierte¹

$$v^*(t) = \tilde{\mathcal{F}}(V^*(\omega'_I - \omega_I)) = \frac{1}{2\pi} \int \frac{dV^*}{d\omega} (\omega'_I - \omega_I) e^{-i(\omega'_I - \omega_I)t} d\omega'_I \quad (\text{E.9})$$

$$v(t) = \tilde{\mathcal{F}}(V(\omega'_I - \omega_I)) = \frac{1}{2\pi} \int \frac{dV}{d\omega} (\omega'_I - \omega_I) e^{i(\omega'_I - \omega_I)t} d\omega'_I \quad (\text{E.10})$$

sind langsam mit der Zeit veränderliche Funktionen. Weiterhin wird die Substitution

$$\tilde{\rho}_{12} = e^{i(\omega_{12} - \omega_I)t} \rho_{12} \quad (\text{E.11})$$

$$\tilde{\rho}_{21} = e^{-i(\omega_{12} - \omega_I)t} \rho_{21} \quad (\text{E.12})$$

¹Es wird die Fouriertransformation $V(\omega) = \mathcal{F}(v(t)) = \int v(t) e^{-i\omega t} dt$ und $v(t) = \tilde{\mathcal{F}}(V(\omega)) = \frac{1}{2\pi} \int V(\omega) e^{i\omega t} d\omega$ verwendet.

durchgeführt. Für die zeitlichen Ableitungen folgt dann :

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = \left(-i(\omega_{12} - \omega_I)\tilde{\rho}_{12} + \frac{d\tilde{\rho}_{12}}{dt} \right) e^{-i(\omega_{12}-\omega_I)t} \quad (\text{E.13})$$

$$\frac{d\rho_{21}}{dt} = \left(i(\omega_{12} - \omega_I)\tilde{\rho}_{21} + \frac{d\tilde{\rho}_{21}}{dt} \right) e^{i(\omega_{12}-\omega_I)t} . \quad (\text{E.14})$$

Das Gleichungssystem Gln. (E.1-E.4) hat nun die Form :

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -i\frac{1}{2}2\pi v^*(t)\tilde{\rho}_{12} + i\frac{1}{2}2\pi v(t)\tilde{\rho}_{21} - \gamma_{12}\rho_{22} \quad (\text{E.15})$$

$$\frac{d\tilde{\rho}_{12}}{dt} = i\frac{1}{2}2\pi v(t)(\rho_{11} - \rho_{22}) + \left[i(\omega_{12} - \omega_I) - \frac{\gamma'}{2} \right] \tilde{\rho}_{12} \quad (\text{E.16})$$

$$\frac{d\tilde{\rho}_{21}}{dt} = -i\frac{1}{2}2\pi v^*(t)(\rho_{11} - \rho_{22}) + \left[-i(\omega_{12} - \omega_I) - \frac{\gamma'}{2} \right] \tilde{\rho}_{21} \quad (\text{E.17})$$

$$\rho_{11} + \rho_{22} = 1 \quad (\text{E.18})$$

E.3 Lösung der optischen Bloch-Gleichungen unter der Annahme stationärer Kohärenz

Aufgrund von Phasenfluktuationen des Farbstofflasers, erfolgt die Lösung unter der Annahme, dass $v(t)$ eine stochastisch fluktuierende Funktion ist. In diesem Fall soll die Lösung für den Erwartungswert $E\{\rho_{22}\}$ von ρ_{22} erfolgen. Gleichung (E.15) lautet dann

$$\frac{dE\{\rho_{22}\}}{dt} + \gamma_{12}E\{\rho_{22}\} = -i\frac{1}{2}2\pi [E\{v^*(t)\tilde{\rho}_{12}\} - E\{v(t)\tilde{\rho}_{21}\}] . \quad (\text{E.19})$$

Die Erwartungswerte $E\{v^*(t)\tilde{\rho}_{12}\}$ und $E\{v(t)\tilde{\rho}_{21}\}$ können für den einfachen Fall $v(t) = v_0 e^{i\phi(t)}$ mit Hilfe der Dgl. (E.16) bzw. (E.17) berechnet werden. Es bezeichnen v_0 eine reelle Konstante und $-\pi \leq \phi(t) \leq \pi$ eine stochastisch fluktuierende Phase. Die mittlere Frequenz der Phasenfluktuationen wird mit $\bar{\nu} = \frac{1}{2\pi\tau_d}$ bezeichnet. Es kann gezeigt werden, dass die Fluktuationen zu einem zusätzlichen Dämpfungsterm $\gamma_d = 1/\tau_d$ führen [117]. Es gilt dann :

$$\gamma' = A_{ki} + 1/\tau_c \longrightarrow \gamma' = A_{ki} + 1/\tau_c + 1/\tau_d \quad (\text{E.20})$$

Weiterhin kann gezeigt werden, dass sich für $\tilde{\rho}_{12}$ und $\tilde{\rho}_{21}$ stationäre Zustände $\frac{d\tilde{\rho}_{12}}{dt} = 0$ und $\frac{d\tilde{\rho}_{21}}{dt} = 0$ einstellen, falls für die Dauer t_0 eines Laserimpulses

$$t_0 \gg \frac{1}{\gamma'} \quad (\text{E.21})$$

gilt [117]. Die stationäre Lösung der Gln. (E.16) bzw. (E.17) lauten

$$E\{v^*(t)\tilde{\rho}_{12}\} = E\{v(t)\tilde{\rho}_{21}\}^* = \frac{-\frac{i}{2} [E\{\rho_{11}\} - E\{\rho_{22}\}] (2\pi v_0)^2}{-i(\omega_{12} - \omega_I) + \frac{\gamma'}{2}} \quad (\text{E.22})$$

und einsetzen in Gl. (E.19) ergibt :

$$\frac{dE\{\rho_{22}\}}{dt} + \gamma_{12}E\{\rho_{22}\} = \frac{1}{2} \frac{[E\{\rho_{11}\} - E\{\rho_{22}\}](2\pi v_0)^2 \gamma' / 2}{(\omega_{12} - \omega_I)^2 + \gamma'^2 / 4}. \quad (\text{E.23})$$

Für eine übersichtlichere Darstellung wird desweiteren $E\{\rho_{11}\} \rightarrow \rho_{11}$ und $E\{\rho_{22}\} \rightarrow \rho_{22}$ verwendet.

Berechnung von $|v(t)|^2$

Bevor Gl. (E.23) für eine beliebige Frequenzverteilung $\frac{dV}{d\omega}$ gelöst werden kann, soll $|v(t)|^2$ berechnet werden. Nach dem Parseval Theorem gilt

$$(2\pi)^2 \int |v(t)|^2 dt = 2\pi \int \left| \frac{dV}{d\omega} \right|^2 d\omega. \quad (\text{E.24})$$

Aus Gl. (E.5) folgt

$$\frac{dV}{d\omega} = e \frac{dE_0^I}{d\omega} \frac{\chi_{12}}{\hbar}. \quad (\text{E.25})$$

Einsetzen von Gl. (E.25) in Gl. (E.24) ergibt

$$(2\pi)^2 \int |v(t)|^2 dt = 2\pi \frac{e^2 |\chi_{12}|^2}{\hbar^2} \int \left| \frac{dE_0^I}{d\omega} \right|^2 d\omega. \quad (\text{E.26})$$

Für die spektrale Energieflussdichte gilt

$$\frac{1}{2\pi} \frac{d(E^I/A)}{d\omega} = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \left| \frac{dE_0^I}{d\omega} \right|^2. \quad (\text{E.27})$$

Es bezeichnen A die ausgeleuchtete Fläche, ϵ_0 die Influenzkonstante, c die Lichtgeschwindigkeit und

$$|\chi_{12}|^2 = \frac{1}{3} |D_{12}|^2 = \frac{1}{2} \frac{\epsilon_0 \hbar^2 c}{e^2 \hbar \omega_{12}} \sigma_0 \gamma_{12}, \quad (\text{E.28})$$

mit

$$\sigma_0 = \frac{g_2}{g_1} \frac{2\pi}{(\omega_{12}/c)^2} = \frac{g_2}{g_1} \frac{\lambda_1^2}{2\pi}. \quad (\text{E.29})$$

Die statistischen Gewichte der Zustände 1 und 2 wurden mit g_1 und g_2 bezeichnet und die Übergangswellenlänge mit λ_1 . Einsetzen von Gl. (E.27-E.29) in Gl. (E.26) ergibt :

$$(2\pi)^2 \int |v(t)|^2 dt = \frac{\gamma_{12} \sigma_0 E^I}{\hbar \omega_{12} A} \quad (\text{E.30})$$

Wird die Anregung mit einem Rechteckimpuls genähert

$$|v(t)|^2 = v_0^2 [\Theta(t) - \Theta(t - t_0)] , \quad (\text{E.31})$$

erhält man mit der Intensität $I^I = \frac{E^I}{A t_0}$:

$$|v(t)|^2 = \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{\gamma_{12}\sigma_0}{\hbar\omega_{12}} I^I . \quad (\text{E.32})$$

Gleichung (E.23) lautet somit

$$\frac{\rho_{22}}{dt} + \gamma_{12}\rho_{22} = \frac{1}{2}(\rho_{11} - \rho_{22}) \frac{\gamma_{12}\sigma_0}{\hbar\omega_{12}} \frac{I^I \gamma' / 2}{(\omega_{12} - \omega_I)^2 + \gamma'^2 / 4} . \quad (\text{E.33})$$

Schwingen mehrere Moden mit der Frequenz ω_{M_k} an, so kann, da Gl. (E.22) genähert linearisiert wurde, mit der Superposition der Einzellösungen der Moden gerechnet werden.

$$\frac{\rho_{22}}{dt} + \gamma_{12}\rho_{22} = \frac{1}{2}(\rho_{11} - \rho_{22}) \frac{\gamma_{12}\sigma_0}{\hbar\omega_{12}} \sum_k \frac{I^I (\omega_{M_k} - \omega_I) \gamma' / 2}{(\omega_{12} - \omega_I)^2 + \gamma'^2 / 4} . \quad (\text{E.34})$$

Im Weiteren wird Gleichung (E.34) zum Integral verallgemeinert :

$$\frac{\rho_{22}}{dt} + \gamma_{12}\rho_{22} = \frac{1}{2}(\rho_{11} - \rho_{22}) \frac{\gamma_{12}\sigma_0 I_0^I}{\hbar\omega_{12}} \int \frac{\mathcal{J}^I(\omega'_I - \omega_I) \gamma' / 2}{(\omega_{12} - \omega_I)^2 + \gamma'^2 / 4} d\omega , \quad (\text{E.35})$$

mit der flächennormierten Funktion $\mathcal{J}^I(\omega'_I - \omega_I) = \frac{1}{I_0^I} \frac{dI}{d\omega}(\omega'_I - \omega_I)$. Die Lösung von Gl. (E.35) lautet :

$$\rho_{22}(t) = \frac{1}{2} \frac{\mathcal{S}(\omega_I)}{1 + \mathcal{S}(\omega_I)} [1 - e^{-\gamma_{12}[1 + \mathcal{S}(\omega_I)]t}] \quad (\text{E.36})$$

mit dem frequenzabhängigen Sättigungsparameter

$$\mathcal{S}(\omega_I) = \frac{\sigma_0}{\hbar\omega_{12}} I_0^I \int \mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) \frac{\gamma' / 2}{(\omega_{12} - \omega'_I)^2 + \gamma'^2 / 4} d\omega'_I \quad (\text{E.37})$$

E.4 Erweiterung auf ein Drei-Niveau-System

Im Folgenden wird das Lösungsmodell für ein Drei-Niveau-System, wie es in Abb. E.2 dargestellt ist, erweitert. Unter der Annahme eines quasistationären Gleichgewichts zwischen ρ_{11} und ρ_{22} gilt mit der Übergangsrate P_2 im zweiten Schritt

$$\frac{d\rho_{33}}{dt} = P_2(1 - \rho_{33})\rho_{22} . \quad (\text{E.38})$$

Die Wahrscheinlichkeitsdichte ρ_{33} für die Besetzung von Niveau 3 kann dann durch Integration bestimmt werden :

$$\rho_{33}(t_0) = 1 - e^{-P_2 \int_0^{t_0} \rho_{22}(t) dt} . \quad (\text{E.39})$$

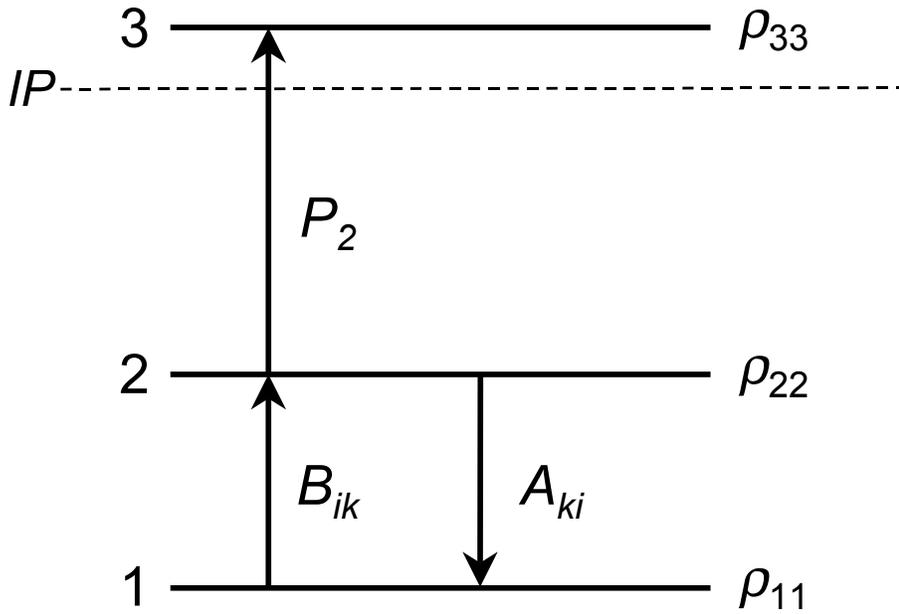


Abbildung E.2: Drei-Niveau-System.

Mit Gl. (E.36) folgt

$$\int_0^{t_0} \rho_{22}(t) dt = \frac{1}{2} \frac{\mathcal{S}(\omega_I)}{1 + \mathcal{S}(\omega_I)} \left[t_0 + \frac{1}{\gamma_{12} [1 + \mathcal{S}(\omega_I)]} (e^{-\gamma_{12} [1 + \mathcal{S}(\omega_I)] t_0} - 1) \right] \quad (\text{E.40})$$

In der Nähe der Resonanz ($\omega_I \approx \omega_{12}$) gilt $\gamma_{12} [1 + \mathcal{S}(\omega_I)] t_0 \gg 1$ und

$$\int_0^{t_0} \rho_{22}(t) dt \approx \frac{1}{2} \frac{\mathcal{S}(\omega_I)}{1 + \mathcal{S}(\omega_I)} t_0 \quad (\text{E.41})$$

Die Lösung des Drei-Niveau-Systems lautet dann genähert :

$$\rho_{33}(t_0) \approx 1 - e^{-\frac{1}{2} P_2 t_0 \frac{\mathcal{S}(\omega_I)}{1 + \mathcal{S}(\omega_I)}} . \quad (\text{E.42})$$

Gilt weiterhin $P_2 t_0 \ll 1$, so folgt mit Gl. (E.36)

$$\rho_{33}(t_0) \approx P_2 t_0 \rho_{22}(t_0) . \quad (\text{E.43})$$

Anhang F

Die Anpassungsroutine für das Sättigungsmodell

Zur Anpassung der Modellrechnungen, die in Kapitel 6 beschrieben sind, an die Messdaten, wurde eine Minimierung unter Verwendung der Anpassungsroutine Minuit [118] durchgeführt.

Die Funktion, s. Gl. (E.39) und Gl. (E.40),

$$\dot{N}(\Phi_1)/\dot{N}(\Phi_{1max}) = \mathcal{U} + \mathcal{A} \left(1 - e^{-P_2 \frac{1}{2} \frac{\mathcal{S}(\omega_I)}{1+\mathcal{S}(\omega_I)} \left[t_0 + \frac{1}{\gamma_{12}[1+\mathcal{S}(\omega_I)]} \left(e^{-\gamma_{12}[1+\mathcal{S}(\omega_I)]t_0} - 1 \right) \right]} \right), \quad (\text{F.1})$$

mit dem frequenzabhängigen Sättigungsparameter, s. Gl. (E.37),

$$\mathcal{S}(\omega_I) = \frac{g_k \lambda_1^2 \Phi_1}{g_i 2\pi t_0} \int \mathcal{J}^I(\omega_I - \omega'_I) \frac{\gamma'/2}{(\omega_{12} - \omega'_I)^2 + \gamma'^2/4} d\omega'_I \quad (\text{F.2})$$

wurde an die Sättigungskurven, die in Abb. 5.24 dargestellt sind und an die Linienformen bei den Photonendichten $\Phi_1 = 0.50(8) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) und $\Phi_1 = 8(1) \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls), s. Abb. 5.26 und Abb. 5.27, angepasst. Da der Gesamtdrehimpuls des Grundzustandes i $J_i = 6$ beträgt, können nur Niveaus k mit $J_k = 5, 6, 7$ angeregt werden. Für die statistischen Gewichte $g_{i,k}$ der Niveaus gilt $g_{i,k} = 2J_{i,k} + 1$ und ihr Verhältnis beträgt $g_k/g_i = 1.0(2)$. Die Anregungswellenlänge beträgt $\lambda_1 = 398$ nm.

Für die Anpassung mussten die Fehler in der Bestimmung der Photonendichte Φ_1 (x-Fehler) in die Fehler der normierten Zählrate $\dot{N}(\Phi_1)/\dot{N}(\Phi_{1max})$ (y-Fehler) umgerechnet werden. Dazu wurde an die Sättigungskurven die in Abb. 5.24 dargestellt sind, die Funktion

$$\dot{N} = a (1 - e^{-b \cdot \Phi_1}) \quad (\text{F.3})$$

mit den Parametern $a = 0.79(5)$, $b = 1.8(4) \cdot 10^{-14}$ für den Übergang bei 25099.8 cm⁻¹ und $a = 0.91(2)$, $b = 1.9(2) \cdot 10^{-14}$ für den Übergang bei 25111.8 cm⁻¹ angepasst. Der Fehler der Zählrate $\Delta \dot{N}$ wurde dann über das Gauß'sche Fehlerfortpflanzungsgesetz bestimmt.

Die folgenden Parameter wurden angepasst :

P_2 Übergangsrate im zweiten Schritt. Für die Wahrscheinlichkeit der nicht-resonanten Ionisation gilt $P_2 \cdot t_0 = \sigma_2 \cdot \Phi_2 \approx 6.5 \cdot 10^{-2} - 6.5 \cdot 10^{-3}$ /Implus, wobei $\sigma_2 \approx 10^{-17} - 10^{-18} \text{ cm}^2$ [62] den optischen Wirkungsquerschnitt und $\Phi_2 = 6.5 \cdot 10^{15}$ Photonen/(cm^2 Impuls) den Photonenfluss des Excimerlasers für den zweiten Anregungsschritt während der Impulsdauer $t_0 = 15 \text{ ns}$ bezeichnen.

$\gamma_{12} = A_{ik}$ Partielle Übergangsrate in den Grundzustand.

γ' Aus natürlicher Linienbreite, dephasierenden Stößen und Phasenfluktuationen im Laserimplus resultierende Linienbreite.

σ_l Da die spektrale Breite σ_l des Farbstofflasers von der Anzahl der ausgeleuchteten Gitterfurchen abhängt, wurde σ_l an den beobachteten Linienbreiten bei geringer Laserintensität angepasst. Die Bandbreite des Lasers beträgt, wie in Kapitel 6.5 beschrieben wurde, bei einer Wellenlänge von 400 nm $\sigma_l = 2.8 \cdot 10^{10} \text{ rad/s}$. In Experimenten wurden jedoch typische Breiten von atomaren Übergängen in diesem Wellenlängenbereich von $\sigma = 2.2 \cdot 10^{10} \text{ rad/s}$ beobachtet [63]. Daher wurde für die Modellrechnungen die Standardabweichung σ_l der spektralen Verteilung des Lasers als Parameter innerhalb der Grenzen $1 \cdot 10^{10} \text{ rad/s} \leq \sigma_l \leq 3 \cdot 10^{10} \text{ rad/s}$ variiert.

ω_{12} Resonanzfrequenz des Übergangs.

\mathcal{A} Amplitude. Gilt $\mathcal{U} = 0$, so ist die Resonanzionisationswahrscheinlichkeit $\rho_{33}(t_0)$ nach Gl. (E.39) und Gl. (6.3) gegeben durch

$$\rho_{33}(t_0, \Phi_1) = \frac{\dot{N}(\Phi_1)/\dot{N}(\Phi_{1max})}{\mathcal{A}} = W_1 W_2 . \quad (\text{F.4})$$

Es bezeichnen W_1 die Wahrscheinlichkeit für den ersten Schritt und W_2 die Wahrscheinlichkeit für den zweiten Schritt. Gilt weiterhin $P_2 t_0 \ll 1$, kann $W_1 = \rho_{22}(t_0)$ mit Hilfe von Gl. (E.43) bestimmt werden :

$$\rho_{22}(t_0, \Phi_1) \approx \frac{\rho_{33}(t_0, \Phi_1)}{P_2 t_0} = \frac{\dot{N}(\Phi_1)/\dot{N}(\Phi_{1max})}{\mathcal{A}} \frac{1}{P_2 t_0} . \quad (\text{F.5})$$

\mathcal{U} Untergrund.

Da das Sättigungsverhalten eine starke Abhängigkeit sowohl von γ_{12} , als auch von γ' aufweist, musste zunächst γ' durch Anpassung an die Linienform bestimmt werden. Diese variiert jedoch ebenfalls -wenn auch schwach- mit γ_{12} , so dass die Anpassung an die Daten iterativ vorgenommen werden musste :

Zunächst wurden die Parameter σ_l , γ' und P_2 simultan an den Linienformen bei Photonenflüssen von $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) und $\Phi_2 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) angepasst. Hierzu war es notwendig ebenfalls die Parameter ω_{12} , \mathcal{A} und \mathcal{U} jeweils bei $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2 Impuls) und $\Phi_2 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm^2

Impuls), sowie γ_{12} anzupassen. Für alle in Kapitel 6.2 diskutierten Modelle hat sich $\sigma_l = 2.2(1) \cdot 10^{10}$ rad/s ergeben.

Anschließend wurden die Parameter γ_{12} und P_2 am Sättigungsverhalten des Übergangs angepasst. Zusätzlich wurde der Parameter \mathcal{A} angepasst. Da diese Messung praktisch untergrundfrei war, wurde der Parameter $\mathcal{U}=0$ festgehalten. Es wurde ebenfalls angenommen, dass die Laserfrequenz exakt der Resonanzfrequenz entspricht, d.h $\omega_I = \omega_{12}$. Die Größen σ_l und γ' wurden aus der ersten Anpassung übernommen und nicht variiert.

In einem dritten Schritt wurden wieder die Parameter γ' und P_2 an den Linienformen angepasst. P_2 und γ_{12} wurden dabei aus dem zweiten Schritt übernommen. Die Parameter \mathcal{A} und \mathcal{U} bei $\Phi_1 = 0.5 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) und $\Phi_2 = 7.9 \cdot 10^{14}$ Photonen/(cm² Impuls) wurden wieder für die Anpassung freigegeben, während die restlichen Parameter festgehalten wurden.

Im vierten Schritt wurden wieder die Parameter γ_{12} und P_2 am Sättigungsverhalten angepasst. \mathcal{A} wurde dabei mit variiert.

Dieses Verfahren wurde solange wiederholt, bis sich der Parameter γ_{12} mit einer Genauigkeit von $\pm 1\%$ nicht mehr verändert hat.

Anhang G

Die Odysse des ^{255}Fm

Der Transport der Fm Probe sollte über eine Spedition erfolgen, die sich auf den Transport von radioaktiven Materialien spezialisiert hatte. Was zunächst als Routinevorgang eingeschätzt wurde, entwickelte sich dann jedoch zu einer Belastungsprobe für alle beteiligten Mitarbeiter und ist daher im Folgenden dokumentiert.

Am Montag, den 27.11.2000, wurde eine Probe von 2.18 ng des Isotops ^{255}Fm am ORNL, Oak Ridge, USA, chemisch von der radioaktiven ^{255}Es Mutter separiert. Das Fermium wurde als Chlorid Salz getrocknet und in einem Quarz Fläschchen nach Deutschland verschickt, wo es am Dienstag, den 28.11.2000, ankommen sollte.

Aufgrund der kurzen Halbwertszeit des Fm Isotops von 20.1 h hatte die Probe eine α -Aktivität von 48 MBq. Diese hohe Radioaktivität erfordert spezielle Umgangsgenehmigungen in den Labors, insbesondere da zu diesem Zeitpunkt ^{255}Fm als unbekanntes Isotop eingestuft war. Da es sich um ein Aktinoid handelt, unterlag der Umgang mit der Probe automatisch den Reglementierungen zur Handhabung von Kernwaffenfähigen Material. Diese Tatsache wurde einer Mitarbeiterin des ORNL, erst beim Versandt der Probe bewusst. Der Versuch telefonisch einen Nachweis der erforderlichen Umgangsgenehmigung des Empfängerlabors, dem Institut für Kernchemie, der Universität Mainz, zu ordern, scheiterte an der Zeitverschiebung von 7 h gegenüber der Mitteleuropäischen Zeit. Um etwa 0.00 Uhr Ortszeit war das Büro des Strahlenschutzbeauftragten in Mainz nicht besetzt. Daraufhin versuchte die Mitarbeiterin in Oak Ridge die benötigte Kopie per Fax zu bestellen. Auch dieser Versuch scheiterte. Die Telefonanlage der Universität Mainz wurde am 30.08.2000 auf ein ISDN System umgestellt. Diese Umstellung brachte eine Erweiterung der bisher 8 stelligen Telefon- und Faxnummern auf 9 Stellen. Diese Nummern sind standardmäßig an amerikanischen Forschungsinstituten gesperrt und wurden erst in den darauffolgenden zwei Jahren teilweise freigeschaltet. Erst am folgenden Tag gelang es telefonisch die Anfrage nach Mainz zu übermitteln, woraufhin unverzüglich eine Kopie der Umgangsgenehmigung an das ORNL gefaxt wurde.

Weiterhin wurde ein, dem europäischen Castor Behälter ähnlicher, Typ B Strahlenschutzcontainer mit einer Länge von 6 m benötigt, der Dienstag abend Oak Ridge auf einem LKW verlassen sollte. Beim Verladen stellte sich heraus, dass dieser Container keine internationale Zulassung besaß, voraufhin der Transport von FedEx abgelehnt wurde.

Es wurde beschlossen einen Tag abzuwarten, da durch den Zerfall der Probe dann nur noch ein kleinerer Behälter (Type-A Container) benötigt wurde, der mit den entsprechenden Papieren zur Verfügung stand. Mittwoch morgen wurde der Behälter abgeholt und sollte abends mit einem Flugzeug von New York nach Frankfurt transportiert werden. Es wurde mit der Ankunft in Frankfurt am Donnerstagvormittag gerechnet. Da zu diesem Zeitpunkt noch 0.18 ng der Probe vorhanden wären, erschien das Experiment weiterhin durchführbar. In Heidelberg wurde zu dem Zeitpunkt die Nachweiseffizienz der Apparatur mit intensiven Bemühungen optimiert.

Tatsächlich kam die Probe jedoch erst Donnerstag in New York an, da sie eine Nacht in Indianapolis zwischengelagert wurde. Zu diesem Zeitpunkt bestand noch die Hoffnung, dass die Reste der Probe am Freitag in Mainz eintreffen könnten. Auch dies konnte nicht realisiert werden, da sich der zuständige Lufthansa Sicherheitsbeauftragten weigerte, die Ladung zu transportieren. Mit dieser Entscheidung zerfielen die Überreste der Fermium Probe in New York.

Am Sonntagvormittag, den 03.12.2000, wurde das weitere Vorgehen mit allen Beteiligten am Institut für Kernchemie in Mainz erörtert. Es lag ein Angebot der amerikanischen Mitarbeiter vor, eine weitere Probe nach Deutschland zu schicken, die in der Nacht zum Montag abgetrennt werden sollte. Die Weiterführung des Experimentes wurde unter der Voraussetzung zugesagt, dass die Probe bis Dienstag nach Deutschland befördert wird.

Am Montag, den 04.12.2000, wurde dann eine zweite Probe von 1.718 ng ^{255}Fm von Oak Ridge verschickt. Diesmal wurde der Weg über Atlanta gewählt und die Fluggesellschaft Delta Airlines mit dem Transport beauftragt. Die Fluggesellschaft hält sich die Option offen, den Transport von Waren um einen Tag zu verzögern, wenn diese nicht 3 h vor Abflug des täglichen Frachtflugzeuges nach Frankfurt am Flughafen eintrifft. Da die Fm Probe erst 2.5 h vor Abflug in Atlanta eintraf, wurde der Behälter erst Dienstag verladen. Nach Öffnung des Zollschalters konnte dann das kurzlebige Material Mittwoch morgen in Frankfurt abgeholt werden. Zu diesem Zeitpunkt war die Probe bereits auf 1/10 der ursprünglichen Menge zerfallen und umfasste noch $4 \cdot 10^{11}$ Atome.

Literaturverzeichnis

- [1] S. Hofmann und G. Münzenberg. *The Discovery of the Heaviest Elements*. Rev. Mod. Phys. **72**, 733 (2000).
- [2] M. Schädel. *Chemistry of the Transactinide Elements*. Radiochim. Acta **70/71**, 207 (1995).
- [3] M. Schädel. *Aqueous Chemistry of Transactinides*. Radiochim. Acta **89**, 721 (2001).
- [4] A. Türler. *Gas Phase Chemistry Experiments with Transactinide Elements*. Radiochim. Acta **72**, 7 (1996).
- [5] J.V. Kratz, H.P. Zimmermann, U.W. Scherer, M. Schädel, W. Bröchle K.E. Gregorich, C.M. Gannett, H.L. Hall, R.A. Henderson, D.M. Lee, J.D. Leyba, M.J. Nurmi, H. Gäggeler, D. Jost, U. Baltensperger, Ya Nai-Qui, A. Türler und Ch. Lienert. *Chemical Properties of Element 105 in Aqueous Solution: Halide Complex Formation and Anion Exchange into Triisooctyl Amine*. Radiochim. Acta **48**, 121 (1989).
- [6] M. Schädel, W. Bröchle, R. Dressler, B. Eichler, H.W. Gäggeler, R. Günther, K.E. Gregorich, D.C. Hoffman, S. Hübener, D.T. Jost, J.V. Kratz, W. Paulus, D. Schumann, S. Timokhin, N. Trautmann, A. Türler, G. Wirth und A. Yakushev. *Chemical Properties of Element 106 (Seaborgium)*. Nature **388**, 55 (1997).
- [7] R. Eichler, W. Bröchle, R. Dressler, Ch.E. Düllmann, B. Eichler, H.W. Gäggeler, K.E. Gregorich, D.C. Hoffman, S. Hübener, D.T. Jost, U.W. Kirbach, C.A. Laue, V.M. Lavanchy, H. Nitsche, J.B. Patin, D. Piguet, M. Schädel, D.A. Shaughnessy, D.A. Strellis, S. Taut, L. Tobler, Y.S. Tsyganov, A. Türler, A. Vahle, P.A. Wilk und A.B. Yakushev. *Chemical Characterization of Bohrium (Element 107)*. Nature **407**, 63 (2000).
- [8] Ch.E. Düllmann, W. Bröchle, R. Dressler, K. Eberhardt, B. Eichler, R. Eichler, H.W. Gäggeler, T.N. Ginter, F. Glaus, K.E. Gregorich, D.C. Hoffman, E. Jäger, D.T. Jost, U.W. Kirbach, D.M. Lee, H. Nitsche, J.B. Patin, V. Pershina, D. Piguet, Z. Qin, M. Schädel, B.Schausten, E. Schimpf, H.-J. Schött, S. Soverna, R. Sudowe, P. Thörle, S.N. Timokhin, N. Trautmann, A. Türler, A. Vahle, G. Wirth, A.B. Yakushev und P.M. Zielinski. *Chemical Investigation of Hassium (Element 108)*. Nature **418**, 859 (2002).

- [9] B. Fricke, E. Johnson und G.M. Rivera. *Ionization Potentials and Radii of Atoms and Ions of Element 105 (Unnilpentium) and Ions of Tantalum Derived from Multiconfiguration Dirac-Fock Calculations*. *Radiochim. Acta* **62**, 17 (1993).
- [10] E. Eliav, U. Kaldor und Y. Ishikawa. *Ground State Electron Configuration of Rutherfordium: Role of Dynamic Correlation*. *Phys. Rev. Lett.* **74**(7), 1079 (1995).
- [11] W.C. Martin und J. Sugar. *Designations of ds^2p Energy Levels in Neutral Zirconium, Hafnium, and Rutherfordium ($Z=104$)*. *Phys. Rev. A* **53**, 1911 (1996).
- [12] E.F. Worden, R.W. Lougheed, R.G. Gutmacher und J.G. Conway. *Hyperfine Structure in the ^{253}Es Emission Spectrum, III: Extension of the Line List, Levels of Es I and Es II, Nuclear Magnetic-Dipole and Quadrupole Moments*. *J. Opt. Soc. Am.* **64**(1), 77 (1974).
- [13] S. Köhler, R. Deißberger, K. Eberhardt, G. Herrmann, G. Huber, J.V. Kratz, M. Nunnemann, G. Passler, P.M. Rao, J. Riegel, N. Trautmann und K. Wendt. *Determination of the First Ionization Potential of Actinide Elements by Resonance Ionization Mass Spectroscopy*. *Spectrochim. Acta B* **52**, 717 (1997).
- [14] N. Erdmann, M. Nunnemann, K. Eberhardt, G. Herrmann, G. Huber, S. Köhler, J.V. Kratz, G. Passler, J.R. Peterson, N. Trautmann und A. Waldek. *Determination of the First Ionization Potential of Nine Actinide Elements by Resonance Ionization Mass Spectroscopy (RIMS)*. *Journal of Alloys and Compounds* **271-273**, 837 (1998).
- [15] J.R. Peterson, N. Erdmann, M. Nunnemann, K. Eberhardt, G. Huber, J.V. Kratz, G. Passler, O. Stetzer, P. Thörle, N. Trautmann und A. Waldek. *Determination of the First Ionization Potential of Einsteinium by Resonance Ionization Mass Spectroscopy (RIMS)*. *Journal of Alloys and Compounds* **271-273**, 876 (1998).
- [16] S. Fritzsche, C. Froese Fischer und G. Gaigalas. *RELIC: A Program for Relativistic Configuration Interaction Calculations*. *Comput. Phys. Commun.* **148**, 103 (2002).
- [17] F.A. Parpia, C. Froese Fischer und I.P. Grant. *GRASP92: A Package for Large-Scale Relativistic Atomic Structure Calculations*. *Comput. Phys. Commun.* **94**, 249 (1996).
- [18] G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius und W. Seelmann-Eggebert. *Karlsruher Nuklidkarte*. Haberbeck GmbH, Lage, 6. Auflage, 1995.
- [19] W. Lauth, H. Backe, M. Dahlinger, I. Klafft, P. Schwamb, G. Schwickert, N. Trautmann und U. Othmer. *Resonance Ionization Spectroscopy in a Buffer Gas Cell with Radioactive Decay Detection, Demonstrated Using ^{208}Tl* . *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1675 (1992).
- [20] H. Backe, P. Graffé, D. Habs, M. Hies, Ch. Ilgner, H. Kunz, W. Lauth, H. Schöpe, P. Schwamb, W. Theobald, P. Thörle, N. Trautmann und R. Zahn. *Radiation*

- Detected Resonance Ionization Spectroscopy on ^{208}Tl and ^{242f}Am .* Hyp. Int. **78**, 35 (1993).
- [21] H. Backe, Th. Blönnigen, M. Dahlinger, U. Doppler, P. Graffé, D. Habs, M. Hies, Ch. Ilgner, H. Kunz, W. Lauth, H. Schöpe, P. Schwamb, W. Theobald und R. Zahn. *First Observation of a Resonance Ionization Signal on ^{242m}Am Fission Isomers.* Hyp. Int. **74**, 47 (1992).
- [22] H. Backe, R.-R. Baum, B. Fricke, D. Habs, K. Hellmann, M. Hies, Ch. Ilgner, Ch. Krameyer, H. Kunz, W. Lauth, R. Martin, P. Schwamb, W. Theobald, P. Thörle und N. Trautmann. *Isotope Shift and Hyperfine Structure Measurements at the ^{242f}Am Fission Isomer.* Hyp. Int. **97-98**, 535 (1996).
- [23] H. Backe, M. Hies, H. Kunz, W. Lauth, O. Curtze, P. Schwamb, M. Sewtz, W. Theobald, R. Zahn, K. Eberhardt, N. Trautmann, D. Habs, R. Repnow und B. Fricke. *Isotope Shift Measurements for Superdeformed Fission Isomeric States.* Phys. Rev. Lett. **80**(5), 920 (1998).
- [24] H. Backe, A. Dretzke, M. Hies, G. Kube, H. Kunz, W. Lauth, M. Sewtz, N. Trautmann, R. Repnow und H.J. Maier. *Isotope Shift Measurement at ^{244f}Am .* Hyp. Int. **127**, 35 (2000).
- [25] H. Backe, A. Dretzke, D. Habs, M. Hies, G. Kube, H. Kunz, W. Lauth, H.J. Maier, R. Repnow, M. Sewtz und N. Trautmann. *Stability of Superdeformation for Americium Fission Isomers as Function of the Neutron Number.* Nucl. Phys. **A 690**, 215c (2001).
- [26] P. Schwamb. *Entwicklung eines Detektors zum direkten massenselektiven Ionennachweis nach Resonanzionisationsspektroskopie in einer Puffergaszelle.* Dissertation, Institut für Physik, Universität Mainz, 1996.
- [27] H. Backe, K. Eberhardt, R. Feldmann, M. Hies, H. Kunz, W. Lauth, R. Martin, H. Schöpe, P. Schwamb, M. Sewtz, P. Thörle, N. Trautmann und S. Zauner. *A Compact Apparatus for Mass Selective Resonance Ionization Spectroscopy in a Buffer Gas Cell.* Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B 126**, 406 (1997).
- [28] J. Ärje, J. Äystö, J. Taskinen, J. Honkanen und K. Valli. *Ion Guide Method for On-Line Isotope Separation.* Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B 26**, 384 (1987).
- [29] A. Iivonen, R. Saintola und K. Valli. *Ion-Guide Quadrupole Mass Spectrometer.* Phys. Scr. **42**, 133 (1990).
- [30] M. Sewtz, H. Backe, A. Dretzke, G. Kube, W. Lauth, P. Schwamb, K. Eberhardt, C. Grüning, P. Thörle, N. Trautmann, P. Kunz, J. Lassen, G. Passler, C.Z. Dong, S. Fritzsche und R.G. Haire. *First Observation of Atomic Levels for the Element Fermium ($Z=100$).* Phys. Rev. Lett. **90**(16), 163002-1 (2003).
- [31] M. Sewtz, H. Backe, C.Z. Dong, A. Dretzke, K. Eberhardt, S. Fritzsche, C. Grüning, R.G. Haire, G. Kube, P. Kunz, J. Lassen, W. Lauth, G. Passler,

- P. Schwamb, P. Thörle und N. Trautmann. *Resonance Ionization Spectroscopy of Fermium ($Z=100$)*. Spectrochim. Acta **B 58**, 1077 (2003).
- [32] H. Backe, A. Dretzke, K. Eberhardt, S. Fritzsche, C. Grüning, G. Gwinner, R.G. Haire, G. Huber, J.V. Kratz, G. Kube, P. Kunz, J. Lassen, W. Lauth, G. Passler, R. Repnow, D. Schwalm, P. Schwamb, M. Sewtz, P. Thörle, N. Trautmann und A. Waldek. *First Determination of the Ionization Potential of Actinium and First Observation of Optical Transitions in Fermium*. J. Nucl. Sci. Tech., Suppl. **3**, 86 (2002).
- [33] G.T. Seaborg und W.D. Loveland. *Transuranium Nuclei*. In D.A. Bromley, Herausgeber, *Treatise on Heavy-Ion-Science, Volume 4*, Seite 255, New York, 1985. Plenum Press.
- [34] T. Mayer-Kuckuk. *Kernphysik*. Teubner, Stuttgart, 1992.
- [35] S. Amiel, A.Chetham-Strode, G.R. Choppin, A. Chiorso, B.G. Harvey, L.W. Holm und A.G. Thompson. *Production and Properties of the Nuclides Fermium-250, 251 and 252*. Phys. Rev. **106**(3), 553 (1957).
- [36] B. Vignon. *The PIAFE Project*. In T.v. Egidy, D. Habs, F.J. Hartmann, K.E.G. Löbner und H. Nifenecker, Herausgeber, *Research with Fission Fragments*, Seite 3, Singapore, 1997. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd.
- [37] D. Habs. *The Munich Fission Fragment Accelerator*. In T.v. Egidy, D. Habs, F.J. Hartmann, K.E.G. Löbner und H. Nifenecker, Herausgeber, *Research with Fission Fragments*, Seite 3, Singapore, 1997. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd.
- [38] F.S. Tomkins und M. Fred. *Electrodeless Discharge Tubes Containig Rare Earth and Heavy Element Halides*. J. Opt. Soc. Am. **47**(12), 1087 (1957).
- [39] E.F. Worden, R.G. Gutmacher, R.W. Lougheed, J.G. Conway und R.J. Mehlhorn. *Hyperfine Structure in the ^{253}Es Emission Spectrum. II. Nuclear Spin, Nuclear Magnetic Dipole Moment, and Energy Levels of Es II*. J. Opt. Soc. Am. **60**(10), 1297 (1970).
- [40] J. Blaise und J.F. Wyart. *Energy Levels and Atomic Spectra of Actinides*, Band 20 of *International Table of Selected Constants*. Laboratoire Aime Cotton, Orsay, Paris, 1992.
- [41] G.S. Hurst und M.G. Payne. *Principles and Applications of Resonance Ionization Spectroscopy*. IOP Publishing Ltd., Bristol, Philadelphia, 1988.
- [42] C. Grüning. *Spektroskopie und Ultrapurenanalyse von Plutonium mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*. Dissertation, Institut für Kernchemie, Universität Mainz, 2001.

- [43] H. Backe, W. Lauth, W. Achenbach, M. Hain, M. Hies, A. Scherer, A. Steinhof, S. Tölg und S. Ziegler. *Fission Fragment Anisotropy for the ^{242m}Am Fission Isomer by Spin Exchange Pumping with Polarized Rubidium Vapour*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B 70**, 521 (1992).
- [44] K. Eberhardt, N. Erdmann, H. Funk, G. Herrmann, S. Köhler, A. Nähler, G. Passler, N. Trautmann und F.-J. Urban. *Chemical Separation of Plutonium from Air Filters and Preparation of Filaments for Resonance Ionization Mass Spectroscopy*. In H.-J. Kluge, J.E. Parks und K. Wendt, Herausgeber, *AIP Conference Proceedings 329*, Seite 503, New York, 1995. AIP Press. Resonance Ionization Spectroscopy, Conference 1994.
- [45] B. Eichler, S. Hübener, N. Erdmann, K. Eberhardt, H. Funk, G. Herrmann, S. Köhler, N. Trautmann, G. Passler und F.-J. Urban. *An Atomic Beam Source for Actinide Elements: Concept and Realization*. Radiochim. Acta. **79**, 221 (1997).
- [46] V. Metag, D. Habs und H.J. Specht. *Spectroscopic Properties of Fission Isomers*. Phys. Rep. **65**, 1 (1980).
- [47] A. Scherrer. *Weiterentwicklung, Test und Berechnung eines elektrostatischen Fokussierungssystems für das Experiment zur optischen Spektroskopie an Americium-Spaltisomeren*. Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 1990.
- [48] R.-R. Baum. *Entwurf, Aufbau und Test eines elektrostatischen Transportsystems für Rückstoßionen*. Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 1994.
- [49] Th. Schütze. *Vorbereitung einer Apparatur zur On-Line-Laserspektroskopie an Trans-Einsteinium-Elementen*. Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, 1998. KPH 4/98.
- [50] G. Münzenberg, W. Faust, S. Hofman, P. Armbruster, K. Güttner und H. Ewald. *The Velocity Filter SHIP, A Separator to Unslowed Heavy Ion Fusion Products*. Nucl. Instr. Methods **161**, 65 (1979).
- [51] W. Ludolphs. *Konstruktion, Aufbau und Test einer optischen Zelle zur Resonanzionisationsspektroskopie an Trans-Fermium-Elementen*. Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, 2001.
- [52] K. Morita, T. Inamura, T. Nomura, J. Tanaka, H. Miyataka, M. Fujioka, T. Shinozuka, M. Yoshii, H. Hama, K. Taguchi, K. Sueki, Y. Hatsukawa, K. Furuno und H. Kudo. *An Ion Guide Isotope Separator On-Line at INS*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B 26**, 406 (1987).
- [53] J.E. Bigelow, B.L. Corbett, L.J. King, S.C. McGuire und T.M. Sims. *Production of Transplutonium Elements in the High Flux Isotope Reactor*. In J. Navratil und W. Schulz, Herausgeber, *ACS Symposium Series 161*, Seite 3, Washington, DC, 1980. ACS.

- [54] L.J. King, J.E. Bigelow und E.D. Collins. *Experience in the Separation and Purification of Transplutonium Elements in the Transuranium Processing Plant at Oak Ridge National Laboratory*. In J. Navratil und W. Schulz, Herausgeber, *ACS Symposium Series 161*, Seite 135, Washington, DC, 1980. ACS.
- [55] C.E. Porter, F.D. Riley, Jr., R.D. Vandergrift und L.K. Felker. *Fermium Purification using TEVATM Resin Extraction Chromatography*. *Separation Science and Technology* **32**(1-4), 83 (1997).
- [56] H.-J. Zech. *Kernreaktoren*. Inforum Verlag, Bonn, 1988.
- [57] A. Corney. *Atomic and Laser Spectroscopy*. Oxford University Press, Oxford, 1986.
- [58] W. Ruster, F. Ames, H.-J. Kluge, E.-W. Otten, D. Rehklaue, F. Scheerer, G. Herrmann, C. Mühleck, J. Riegel, H. Rimke, P. Sattelberger und N. Trautmann. *A Resonance Ionization Mass Spectrometer as an Analytical Instrument for Trace Analysis*. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **281**, 547 (1989).
- [59] W. Demtröder. *Laserspektroskopie*. Springer-Verlag, Berlin, 3.. Auflage, 1993.
- [60] *FL2002 Operator's Manual, Rev. 1*. Lambda Physik, Göttingen, 2 1982.
- [61] GWU. *VisIR 2, Beta-Barium Borate Optical Parametric Oscillator, Produkt Beschreibung*. Erfstadt, 2000.
- [62] V.S. Letokhov. *Laser Photoionization Spectroscopy*. Academic Press, Inc., Orlando, San Diego, New York, Austin, Boston, Sydney, Tokyo and Toronto, 1987.
- [63] A. Morbach. *Experimentelle Entwicklung zur optischen Spektroskopie an Trans-Einsteinium Elementen*. Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, 2001.
- [64] Radient Dyes. *Produktbeschreibung* (2000).
- [65] Continuum. *Operation and Maintenance Manual for the Precision II Series Lasers, Powerlite 8050, Produkt Beschreibung*, Band 996-0255. Darmstadt, rev. a. Auflage, 2000.
- [66] S. Fritzsche. *Large-Scale Accurate Structure Calculations for Open-Shell Atoms and Ions*. *Phys. Scr.* **T100**, 37 (2002).
- [67] S. Fritzsche. *The Challenge of Atomic Structure Calculations for Heavy Elements with open d- and f-Shells*. In H.Backe und W.Lauth, Herausgeber, *Proceedings of the International Workshop on Ion Chemical Aspects in Ion Guide Systems*. Johannes-Gutenberg Universität Mainz, 30.September - 2.October 1999.
- [68] S. Fritzsche. *Persönliche Mitteilung*. Auszug aus dem Laborbuch von C.Z. Dong (2002).

- [69] S. Fritzsche. *RATIP - a Toolbox for Studying the Properties of Open-Shell Atoms and Ions*. J. Elec. Spec. Rel. Phenom. **114-116**, 1155 (2001).
- [70] S. Fritzsche, C. Froese Fischer und C.Z. Dong. *REOS99: A Revised Program for Transition Probability Calculations Including Relativistic, Correlation and Relaxation Effects*. Comput. Phys. Commun. **124**, 340 (2000).
- [71] J. Sugar. *Ionization Energies of Neutral Actinides*. J. Chem. Phys. **59**, 788 (1973).
- [72] J. Sugar. *Revised Ionization Energies of Neutral Actinides*. J. Chem. Phys. **60**, 4103 (1974).
- [73] W. Lauth. *Optische Spektroskopie mit radioaktivem Zerfallsnachweis am Spaltisomer ^{242m}Am und ^{208}Tl* . Dissertation, Institut für Physik, Universität Mainz, 1991.
- [74] T. Kolb. *Aufbau einer Frequenzverdopplungseinheit zur Resonanzionisationsspektroskopie am ^{251}Fm* . Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, 1998. KPH 9/98.
- [75] W.C. Martin, J.R. Fuhr, D.E. Kelleher, A. Musgrove, L. Podobedova, J. Reader, E.B. Saloman, C.J. Sansonetti, W.L. Wiese, P.J. Mohr und K. Olsen. *NIST Atomic Spectra Database*. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, 2. Auflage, 2002.
- [76] V.N. Gorshkov und V.A. Komarovskii. *Lifetime of Excited Levels and Oscillator Strength of Er I and Er II Spectral Lines*. Opt. Spectrosc. **50**, 853 (1981).
- [77] M. Sewtz. *Entwicklung eines HF-Quadrupols für ein Ionentransportsystem*. Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, 1997. KPH x/97.
- [78] *Beschreibung des Programms SIMION 7* (2000).
- [79] M. Hies. *Messung von Isotopieverschiebungen am Spaltisomer ^{242f}Am mit optischer Spektroskopie*. Dissertation, Institut für Physik, Universität Mainz, 1993.
- [80] M. Dahlinger. *Mitteilung* (1990).
- [81] *Spindler & Hoyer, Produktkatalog* (1992).
- [82] ATOS GmbH. *λ -Meter; Measure and View - A short Introduction*. Produktbeschreibung (1997).
- [83] H. Schöpe. *Entwicklung eines Systems zum massenselektiven Nachweis von Ionen nach Resonanzionisation in einer optischen Puffergaszelle*. Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 1992.
- [84] H. Barth. *Aufbau des Datenaufnahmesystems für das Mainzer Neutrinomassenexperiment*. Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 1991.
- [85] A. Dretzke. *Ionenchemie in der Gasphase an Aktinoiden*. Dissertation, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, in Vorbereitung, 2003.

- [86] J. Navratil und W. Schulz. *Transplutonium Elements - Production and Recovery*, Band 161 of *ACS Symposium Series*. Am. Chem. Soc., Washington, 1980.
- [87] K. Eberhardt. *Persönliche Mitteilung* (2002).
- [88] C.M. Lederer und Herausgeber V.S. Shirley. *Table of Isotopes*. John Wiley & Sons, New York, 7. Auflage, 1987.
- [89] C. Grüning, K. Eberhardt, G. Huber, J. Lassen, J.V. Kratz, P. Kunz, M. Nunnemann, G. Passler und N. Trautmann. *Bestimmung der Abdampftemperaturen von Es und Fm von Tantal-Titan-Filamenten*. Jahresbericht 2001, IKMz (2002).
- [90] J.G. Conway, E.F. Worden und J. Blaise. *Energy Levels of Neutral Californium ($^{249}\text{CF I}$) and Singly Ionized Californium ($^{249}\text{CF II}$)*. J. Opt. Soc. Am. **B 12**, 1186 (1995).
- [91] D. Basting, B. Burghardt, P. Lokai und W. Mückenheim. *Single-Frequency Dye Laser with 50 ns Pulse Duration*. In *Conference Proceedings O.E. Laser'88*. Los Angeles, Januar 1988.
- [92] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. Clarendon Press, Oxford, 2. Auflage, 1983.
- [93] K. Rajnak und B.W. Shore. *Regularities in s-Electron Binding Energies in $l^N s^M$ Configurations*. J. Opt. Soc. Am. **68**, 360 (1978).
- [94] J. Sugar und J. Reader. *Ionization Energies of the Singly Ionized Rare Earths*. J. Opt. Soc. Am. **55**(10), 1286 (1965).
- [95] J. Reader und J. Sugar. *Ionization Energies of the Neutral Rare Earths*. J. Opt. Soc. Am. **56**(9), 1189 (1966).
- [96] J. Reader und J. Sugar. *Ionization Energies of Ce I and Gd I*. J. Opt. Soc. Am. **60**(10), 1421 (1970).
- [97] E.A. Mason und E.W. McDaniel. *Transport Properties of Ions in Gases*. John Wiley & Sons, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 1988.
- [98] J.P. Desclaux. *Relativistic Dirac-Fock Expectation Values for Atoms with $Z=1$ to $Z=120$* . At. Data Nucl. Data Tables **12**, 311 (1973).
- [99] H. Haken und H.Ch. Wolf. *Atom- und Quantenphysik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, London, Paris, Tokyo, HongKong, 3. Auflage, 1990.
- [100] P. Pyykkö und J.P. Desclaux. *Relativity and the Periodic System of Elements*. Acc. Chem. Res. **12**, 276 (1979).
- [101] P. Pyykkö. *Dirac-Fock One-Centre Calculations Part 8. The $^1\Sigma$ States of ScH, YH, LaH, AcH, TmH LuH and LrH*. Phys. Scr. **20**, 647 (1979).
- [102] P. Pyykkö. *Relativistic Effects in Structural Chemistry*. Chem. Rev. **88**, 563 (1988).

- [103] A. Dretzke, H. Backe, G. Kube, W. Lauth, W. Ludolphs, A. Morbach und M. Sewtz. *Prospects of Ion Chemical Reactions with Heavy Elements in the Gas Phase*. Hyp. Int. **132**, 501 (2001).
- [104] J. Dilling, D. Ackermann, J. Bernard, F.P. Hessberger, S. Hofmann, W. Hornung, H.-J. Kluge, E. Lamour, M. Maier, R. Mann, G. Marx, R.B. Moore, G. Münzenberg, W. Quint, D. Rodriguez, M. Schädel, J. Schönfelder, G. Sickler, C. Toader, L. Vermeeren, Chr. Weber, G. Bollen, O. Engels, D. Habs, P. Thirolf, H. Backe, A. Dretzke, W. Lauth, W. Ludolphs und M. Sewtz. *The SHIPTRAP Project: A Capture and Storage Facility at GSI for Heavy Radionuclides from SHIP*. Hyp. Int. **127**, 491 (2000).
- [105] G. Marx, D. Ackermann, J. Dilling, F.P. Hessberger, S. Hofmann, H.-J. Kluge, R. Mann, G. Münzenberg, Z. Qamhieh, W. Quint, D. Rodriguez, M. Schädel, J. Schönfelder, G. Sickler, C. Toader, C. Weber, O. Engels, D. Habs, P. Thirolf, H. Backe, A. Dretzke, W. Lauth, W. Ludolphs und M. Sewtz. *Status of the SHIPTRAP Project: A Capture and Storage Facility for Heavy Radionuclides from SHIP*. Hyp. Int. **132**, 463 (2001).
- [106] J. Schönfelder, D. Ackermann, H. Backe, G. Bollen, J. Dilling, A. Dretzke, O. Engels, J. Estermann, D. Habs, S. Hofmann, F.P. Hessberger, H.-J. Kluge, W. Lauth, W. Ludolphs, M. Maier, G. Marx, R.B. Moore, W. Quint, D. Rodriguez, M. Sewtz, G. Sickler, C. Toader und Chr. Weber. *SHIPTRAP – A Capture and Storage Facility for Heavy Radionuclides at GSI*. Nucl. Phys. A **701**, 579c (2002).
- [107] A.N. Zherikhin, V.I. Mishin und V.N. Fedoseev. *Determining the Absolute nf^2F^0 Energy Levels of Al I Rydber Series via Laser Step Excitation and Photoionization*. Opt. Spectrosc. (USSR) **57**(5), 476 (1984).
- [108] R. Lide. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press.
- [109] Advanced Power Technology©. *Power MOS V©APT20M11JVR*. Produktbeschreibung (2003).
- [110] R. Schuch. *Laser Pulse Storage Ring for Spectroscopy of Trapped Ions*. Laser and Penning Trap Workshop, Universität Mainz, 2003.
- [111] T. Mohamed, G. Andler und R. Schuch. *Development of an Electro-Optical Device for Storage of High Power Laser Pulses*. Opt. Commun. **214**, 291 (2002).
- [112] K. Eberhardt, P. Thörle, A. Nähler und N. Trautmann. *Preparation of Actinide Targets by Electrodeposition for Heavy-Ion Studies and Laserspectroscopic Investigations*. In J.L. Duggan und I.L. Morgan, Herausgeber, *AIP Conference Proceedings 576*, Seite 1144, New York, 2001. AIP Press. Application of Accelerators in Research and Industrie, Conference 2000.
- [113] W. Reisdorf und M. Schädel. *How Well do we Understand the Synthesis of Heavy Elements by Heavy-Ion Induced Fusion?* Z. Phys. A **343**, 47 (1992).

- [114] G.I. Kosenko, C. Shen und Y. Abe. *A Dynamical Approach to Heavy-ion Fusion : $^{48}\text{Ca}+^{244}\text{Pu}$* . J. Nucl. Radiochem. Sci. **3**(1), 19 (2002).
- [115] J.F. Ziegler, J.P. Biersack und U. Littmark. *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press, New York, 1985.
- [116] J.F. Ziegler. *The Stopping and Range of Ions in Matter*. IBM-Research-Center, Yorktown, 2000. Software Manual.
- [117] H. Backe. *Persönliche Mitteilung* (2001).
- [118] F. James und M. Roos. *Beschreibung des Programms MINUIT*. CERN Computer Centre, Prog. Lib. (1989).

Abbildungsverzeichnis

1.1	Eigenschaften der Elemente um $Z=100$	2
2.1	Prinzip der RIS an Fm.	7
2.2	Prinzip der Niveausuche an Fm	8
2.3	Prinzip der on-line RIS an Fm.	11
2.4	Zeitlicher Ablauf der Resonanzionisation von Fermium	11
2.5	Produktion von ^{255}Es im Hochflussreaktor	12
2.6	Atomzahl N_{Es} als Funktion der Brutzeit	13
2.7	Prinzip der Resonanzionisation in einem 2 Stufen Prozess	14
2.8	Anregungsschema zur RIS an Fm	20
3.1	Apparatur zur RIS an Fm	22
3.2	Die optische Zelle	23
3.3	Potentialverlauf in der optischen Zelle	24
3.4	Segmentierter Stab der linearen Paul-Falle	24
3.5	Phasenschieber	25
3.6	Resonanzkreises der linearen Paul-Falle	25
3.7	Excimerlasersystem zur RIS an Fm	27
3.8	Nd:YAG-Lasersystem zur RIS an Fm	28
3.9	Zeitabfolge der Laserimpulse	28
3.10	Datenaufnahme	30
3.11	Benutzerschnittstelle der Experimentsteuerung	32
4.1	Aufbau zur Bestimmung der Transportzeit	33
4.2	Massenspektrum mit einer α -Ionisationsquelle	34

4.3	Transportzeiten in der linearen Paul-Falle	35
4.4	RIS an Er bei 21168 cm^{-1}	35
4.5	Benennung der Spannungen	36
4.6	Zeitverteilung der Er-Ionen nach Resonanzionisation	37
4.7	RIS an Er bei 34684 cm^{-1}	38
4.8	Zeitabfolge der Laserimpulse zur RIS an Er	38
5.1	Hochflussreaktor	41
5.2	^{255}Fm Teilchenzahl als Funktion der Zeit	42
5.3	Infrarotbild Fm-Filamentes	43
5.4	Puffergaszelle mit Halbleiterzählern	44
5.5	Registrierte Fm- α -Aktivität von Filament 1 als Funktion der Zeit . . .	45
5.6	Registrierte Fm- α -Aktivität von Filament 2 als Funktion der Zeit . . .	46
5.7	Gewählte Anregungsschemata zur RIS an Fm	47
5.8	Ausschnitt aus dem Wellenzahlen-Scan Abb. 5.9	47
5.9	Wellenzahlen-Scan von 24700 cm^{-1} bis 25930 cm^{-1}	48
5.10	Wellenzahlen-Scan um die Resonanzen bei 25100 cm^{-1} und 25110 cm^{-1} . . .	49
5.11	Wellenzahlen-Scan von 23900 cm^{-1} bis 24080 cm^{-1}	50
5.12	Massenspektrum bei der Energie 25111.80 cm^{-1}	51
5.13	Zeitspektrum bei der Energie 25111.80 cm^{-1}	51
5.14	Gefiltertes Massenspektrum bei der Energie 25111.80 cm^{-1}	52
5.15	Anregungsschemata zur Resonanzionisation von Cf	52
5.16	Massenspektrum bei der Energie 25105.00 cm^{-1}	53
5.17	Wellenzahlen-Scan um die tabellierte Cf-Resonanz bei $\bar{\nu} = 26408.31 \text{ cm}^{-1}$. . .	54
5.18	Effizienz der Nachweismethode	55
5.19	Massenspektrum bei der Energie 25111.80 cm^{-1} mit Filament 2	56
5.20	Massenspektrum mit Filament 2 zur Zeit $t_{10} = 26400 \text{ s}$ und $t_{11} = 30900 \text{ s}$. . .	57
5.21	Abdampfverhalten von Cf	57
5.22	Eichung der Photodiode zur Impulsenergiemessung	58
5.23	Räumliches Intensitätsprofil der Laser	60
5.24	Sättigungsverhalten der beiden optischen Übergänge	62

5.25	Sättigungsverhalten des zweiten Schrittes	63
5.26	Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$	64
5.27	Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$	64
5.28	Untergrund bei $T = 1215 \pm 70^\circ\text{C}$	65
5.29	Zeitverteilung der massenselektierten Ionen	66
6.1	Modenstruktur des Farbstofflasers	70
6.2	Beiträge zur Linienbreite	71
6.3	Anpassung der Modellannahmen (a)-(d) für den Übergang bei $\bar{\nu} = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$	76
6.4	Anpassung der Modellannahmen (a)-(d) für den Übergang bei $\bar{\nu} = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$	77
6.5	Korrigiertes Linienprofil	79
7.1	Einsteinkoeffizient A_{ki} als Funktion der Niveauenergie	83
7.2	Ionisationsenergie als Funktion der Elektronenzahl N in der $5f$ Schale	84
7.3	Aktinoiden Kontraktion	86
7.4	Relativistische Kontraktion der Atomradien	87
B.1	Experimenteller Aufbau zur on-line RIS an Fm	98
B.2	Experimenteller Aufbau zur RIS an Fm	99
B.3	Optische Zelle zur on-line RIS	100
B.4	Elektrische Feldkonfiguration bei on-line Experimenten	100
B.5	RIS an Er aus einem $^{166}\text{Er}^{7+}$ Strahl	101
B.6	Massenspektrum bei RIS an einem ^{166}Er -Strahl	101
B.7	Zeitverteilung der laserionisierten Er-Atome aus einem $^{166}\text{Er}^{7+}$ Strahl	102
B.8	Experimenteller Aufbau zur RIS an ^{163}Er	104
B.9	Wirkungsquerschnitte für die Produktion von Erbium	105
B.10	Stoppverteilung der Rückstoßkerne im Argon-Puffergas	105
B.11	Massenspektrum nach RIS an Er aus einer Kernreaktion	106
B.12	RIS an Er aus der Kernreaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha,2n)^{163}\text{Er}$	107
B.13	Zeitverteilung der resonant ionisierten Er Atome aus der Kernreaktion $^{161}\text{Dy}(\alpha,2n)^{163}\text{Er}$	108

C.1	α -Energiespektrum 1-8	113
C.2	α -Energiespektrum 9-13	114
C.3	α -Zählrate als Funktion der Zeit	115
C.4	Temperatureichung der Filamente	116
D.1	Radiochemische Analyse der ^{255}Fm Probe	118
E.1	Zwei-Niveau-System	120
E.2	Drei-Niveau-System	124

Tabellenverzeichnis

2.1	Energien der Fm-Niveaus 1 - 37	18
2.2	Energien der Fm-Niveaus 38 - 48	19
3.1	Technische Daten des Spektrometers	29
4.1	Spannungen im Testexperiment mit Xe	34
4.2	Spannungen zum Ionentransport	36
5.1	Freigesetzte Fm-Teilchenrate	46
5.2	Korrelation der Resonanzzählrate $\dot{N}_{res}(t)$ mit der freigesetzten Fm-Teilchenrate $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$	55
5.3	Korrelation der Cf-Zählrate $\dot{N}_{res}^{Cf}(t)$ mit dem Fm-Teilchenstrom $\dot{N}_{rel}^{Fm}(t)$	56
6.1	Anpassungsparameter der Modellrechnungen für den Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25099.8 \text{ cm}^{-1}$	75
6.2	Anpassungsparameter der Modellrechnungen für den Übergang bei $\bar{\nu}_1 = 25111.8 \text{ cm}^{-1}$	75
6.3	Ergebnisse der Modellrechnungen	79
7.1	Zusammenfassung der Ergebnisse der optischen Spektroskopie an Fm.	81
7.2	Ergebnisse der MCDF Rechnungen	82
A.1	Eigenschaften der beim Brutprozess erzeugten Isotope	96

