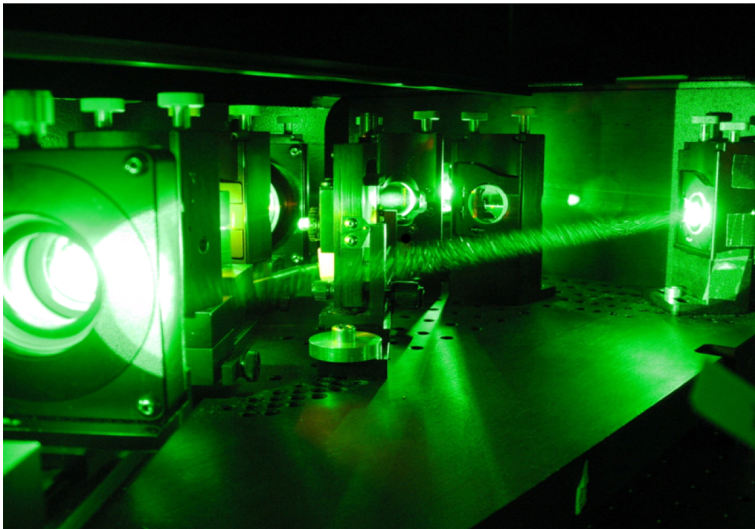


# Spektroskopische Untersuchungen an Technetium und Silizium

-

## Ein Festkörperlasersystem für die Resonanzionisationsspektroskopie



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

Christoph Mattolat  
geboren in Wiesbaden.

30. August 2010

D77

Tag der mündlichen Prüfung: 15. 11. 2010

## Zusammenfassung

Diese Arbeit beschreibt eine wesentliche Weiterentwicklung des Titan:Saphir-Lasersystems der Arbeitsgruppe LARISSA am Institut für Physik der Johannes Gutenberg-Universität Mainz und dessen Anwendung im Bereich der Resonanzionisationsspektroskopie. Die Entwicklungsarbeiten am Lasersystem umfassten drei Aspekte: die Erhöhung der Ausgangsleistung der vorhandenen Titan:Saphir-Laser um einen Faktor zwei, um damit für den vorgesehenen Einsatz an resonanten Laserionenquellen an ISOL-Einrichtungen optimale Voraussetzungen zu schaffen. Des Weiteren wurden zwei spezielle angepasste Titan:Saphir-Laser entwickelt: Das Lasersystem wurde damit um einen von 700 nm - 950 nm kontinuierlich abstimmbaren Titan:Saphir-Laser sowie einen geseedeten Titan:Saphir-Laser mit einer Linienbreite von nur 20 MHz (im Vergleich zu 3 GHz der konventionellen Laser) erweitert. Die Leistungsfähigkeit des neuen Lasersystems wurde durch Resonanzionisationsspektroskopie hochangeregter atomarer Zustände in Gold und Technetium demonstriert. Aus den gemessenen Energielagen konnte über die Rydberg-Ritz-Formel das Ionisationspotential von Gold bestätigt werden und das von Technetium erstmals mit hoher Präzision bestimmt werden. Mit dem geseedeten Titan:Saphir-Laser wurde dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie innerhalb eines heißen Ofens demonstriert. Bei spektroskopischen Untersuchungen mit dieser Methode an Siliziumisotopen konnte sowohl die Hyperfeinstruktur als auch die Isotopieverschiebung bei einer Breite der Resonanzen von etwa 90 MHz klar aufgelöst werden.

## Abstract

This doctoral thesis describes advancement and refinement of the titanium:sapphire laser system of the working group LARISSA, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz and its application to resonance ionization spectroscopy. Activities on the laser systems comprised three major tasks: The output power of the conventional titanium:sapphire lasers could be increased by a factor of two in order to match the needs at resonance ionization laser ion source at ISOL facilities. Additionally, the laser system was complemented by a titanium:sapphire laser in Littrow geometry, which ensures a mode-hop free tuning range from 700 nm to 950 nm, and by an injection seeded titanium:sapphire laser with a spectral width of 20 MHz (in respect to a spectral width of 3 GHz for the conventional lasers). The performance of the new laser system was tested in spectroscopic investigations of highly excited atomic levels of gold and technetium. From the measured level positions the ionization potential of gold could be verified by using the Rydberg-Ritz formula, while the ionization potential of technetium could be determined precisely for the first time. Using the seeded titanium:sapphire laser Doppler-free two-photon spectroscopy inside a hot ionizer cavity was demonstrated. A width of the recorded resonances of 90 MHz was achieved and the hyperfine structure and isotope shift of stable silicon isotopes was well resolved with this method.



---

# Inhaltsverzeichnis

---

Abbildungsverzeichnis	ix
Tabellenverzeichnis	xiii
<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1. Entwicklung der Resonanzionisation in der AG LARISSA . . . . .	1
1.1.1. Ultrapurenanalyse mittels RI/RIMS . . . . .	1
1.1.2. Spektroskopie von hochangeregten atomaren Zuständen und Zu- standssuche . . . . .	2
1.1.3. Laserionenquelle und <i>in-source</i> Spektroskopie . . . . .	3
1.2. Aufgabenstellung dieser Arbeit . . . . .	5
<b>2. Theoretische Grundlagen</b>	<b>9</b>
2.1. Wechselwirkung von Atomen mit Licht . . . . .	9
2.1.1. Zwei-Niveausystem im Lichtfeld . . . . .	9
2.1.2. Dichtematrixformalismus . . . . .	11
2.2. Spektroskopische Grundlagen . . . . .	13
2.2.1. Linienform und Sättigungsverbreiterung . . . . .	13
2.2.2. Isotopieverschiebung . . . . .	14
2.2.3. Hyperfeinstruktur . . . . .	16
2.2.4. Dopplerverbreiterung . . . . .	18
2.2.5. Zwei-Photonen-Spektroskopie . . . . .	19
2.2.6. Resonanzionisation . . . . .	25
2.3. Erzeugung von Laserstrahlung . . . . .	28
2.3.1. Inversion . . . . .	28
2.3.2. Entwicklung optischer Resonatoren . . . . .	29
2.4. Abstimmbare Festkörperlaser . . . . .	31
2.4.1. Niveaustuktur eines Fremdions im Kristallgitter . . . . .	31
2.4.2. Titan:Saphir-Kristall . . . . .	34
2.5. Frequenzselektion . . . . .	35
2.5.1. Frequenzselektion mit Lyotfilter und Etalon . . . . .	36
2.5.2. Frequenzselektion mit einem Reflexionsgitter . . . . .	40
2.6. Frequenzvervielfachung . . . . .	41
2.7. <i>Injection Seeding</i> . . . . .	44
2.7.1. Stabilisierung des Resonators . . . . .	45

<b>3. Laserentwicklung und Messsystem</b>	<b>49</b>
3.1. Vorhandenes Titan:Saphir-Lasersystem . . . . .	49
3.2. Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator . . . . .	51
3.2.1. Resonator design des Gitterlasers . . . . .	51
3.2.2. Charakteristik des Gitterlasers . . . . .	55
3.3. <i>Geseedeter</i> Titan:Saphir-Laser . . . . .	61
3.3.1. Aufbau des Systems . . . . .	62
3.3.2. Charakteristik des <i>geseedeteten</i> Lasers . . . . .	67
3.4. Weiterentwicklung des vorhandenen Lasersystems . . . . .	72
3.4.1. Veränderung der Pumpgeometrie . . . . .	72
3.5. Chrom:Forsterit-Laser . . . . .	74
3.6. Mainzer Atomstrahlapparatur . . . . .	76
3.7. Messsystem Gesamtaufbau . . . . .	79
<b>4. Spektroskopie an Gold, Technetium und Silizium</b>	<b>81</b>
4.1. Rydbergspektroskopie an Gold . . . . .	81
4.1.1. Experimenteller Aufbau . . . . .	81
4.1.2. Auswertung der Rydbergzustände in Gold . . . . .	82
4.1.3. Bestimmung des Ionisationspotentials von Gold . . . . .	86
4.2. Rydbergspektroskopie an Technetium . . . . .	88
4.2.1. Experimenteller Aufbau . . . . .	89
4.2.2. Auswertung der Rydbergzustände in Technetium . . . . .	89
4.2.3. Bestimmung des Ionisationspotentials von Technetium . . . . .	93
4.3. Zwei-Photonen- <i>in-source</i> Spektroskopie an Silizium . . . . .	95
4.3.1. Experimenteller Aufbau . . . . .	97
4.3.2. Isotopieverschiebung in Silizium . . . . .	98
4.3.3. Hyperfeinübergänge in Silizium . . . . .	100
<b>5. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>105</b>
5.1. Zusammenfassung . . . . .	105
5.1.1. Laserentwicklung . . . . .	105
5.1.2. Spektroskopie . . . . .	106
5.2. Ausblick . . . . .	107
<b>A. Winkel-Zeit Diagramme des Drehtisches von Micos</b>	<b>109</b>
<b>B. Lage der Rydbergresonanzen in Technetium</b>	<b>111</b>
B.1. Zum ionischen Grundzustand . . . . .	111
B.2. Zum ersten angeregten Zustand des Ions . . . . .	113
B.3. Zum zweiten angeregten Zustand des Ions . . . . .	115
<b>C. Zustandssuche mit dem Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator</b>	<b>117</b>
<b>D. Zwei-Photonen-Anregung von Krypton</b>	<b>121</b>

---

<b>E. Veröffentlichungen</b>	<b>125</b>
E.1. Konferenzbesuche . . . . .	126
E.2. Dienstreisen und Kollaborationstreffen . . . . .	127
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>129</b>



---

# Abbildungsverzeichnis

---

1.1. Schematische Darstellung des ISOL Prinzips. . . . .	4
2.1. Auswirkungen der Parameter $S_0$ (a) und $I_{sat}$ (b) auf die Besetzung des Niveaus $\rho_{ee}$ . . . . .	15
2.2. Größe der Isotopieverschiebung für die einzelnen Elemente . . . . .	17
2.3. Theoretische Linienform einer Zwei-Photonen-Anregung. . . . .	20
2.4. Schematisches Anregungsschema für die Resonanzionisation. . . . .	26
2.5. Erzeugung von Inversion in einem Vier-Niveausystem. . . . .	29
2.6. Strahlparameter eine Gaußmode. . . . .	30
2.7. Vibronische Zustände von Ionen in Festkörpern. . . . .	33
2.8. Bandstruktur des Titan:Saphir-Kristalls. . . . .	34
2.9. Spektroskopische Eigenschaften des Titan:Saphir-Kristall. . . . .	35
2.10. Aufbau und Transmission durch ein Lyotfilter. . . . .	37
2.11. Entstehung von Teilwellen an einer teilverspiegelten Platte. . . . .	38
2.12. Frequenzselektion in einem Titan:Saphir-Laser mit Lyotfilter und Etalon. . . . .	39
2.13. Beugung am Reflexionsgitter mit 1480 Furchen pro mm. . . . .	42
2.14. Schematischer Verlauf der Dispersion für den ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex. . . . .	44
2.15. Effekt des <i>spatial hole burnings</i> auf die Zeitstruktur und das spektrale Verhalten eines Titan:Saphir-Lasers. . . . .	46
2.16. Airyfunktion des Titan:Saphir-Laserresonators ( $R=0,6$ , $l=0,43$ m) und deren Ableitung. . . . .	47
3.1. Schematische Zeichnung der ursprünglich von Roland Horn konstruierten Titan:Saphir-Laser. . . . .	49
3.2. Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator. . . . .	52
3.3. Ausleuchtung des Reflexionsgitters im Resonator. . . . .	53
3.4. Laserscan von Rydbergzuständen in Dysprosium mit frequenzverdoppeltem Gitterlaser. . . . .	55
3.5. Durchschnittliche Ausgangsleistung des Gitterlasers bei verschiedenen Pumpleistungen. . . . .	56
3.6. Durchstimmbereich des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator mit verschiedenen Strahlaufweitern. . . . .	57
3.7. Durchstimmbereich des Gitterlasers mit zwei Prismen zur Strahlaufweitung. . . . .	58

3.8. FPI zur Bestimmung der Linienbreite des Gitterlasers. . . . .	58
3.9. Transmission von Helium-Neon-Laser und Diodenlaser durch das FPI zur Bestimmung des FSR. . . . .	59
3.10. Transmission des Gitterlasers durch das FPI zur Bestimmung der spektralen Breite. . . . .	60
3.11. Zeitstruktur der einzelnen Pulse des Gitterlasers in Abhängigkeit von der Wellenlänge. . . . .	61
3.12. Strahlprofil des Gitterlases in horizontaler und vertikaler Richtung bei verschiedenen Abständen vom Auskoppelspiegel. . . . .	62
3.13. Aufbau des Masterlasersystems. . . . .	63
3.14. Schematischer Aufbau des Slavelasers (a) und korrespondierende ABCD-Rechnungen zur Bestimmung der Modenform bei einem Umlauf im Resonator (b). . . . .	64
3.15. Aufbau zur Stabilisierung des Resonators des Slavelasers. . . . .	65
3.16. Gesamtaufbau zum <i>Injection seeding</i> . . . . .	66
3.17. Airyfunktion des Resonators. . . . .	67
3.18. Messung zur Bestimmung der spektralen Breite des geseedeten Titan:Saphir Lasers: Transmission durch ein FPI mit einem FSR von 300 MHz. . . . .	68
3.19. Zeitliches Profil des geseedeten Titan:Saphir-Lasers. . . . .	69
3.20. Bestimmung der Effizienz des <i>Injection seedings</i> . . . . .	70
3.21. Strahlprofil des geseedeten Titan:Saphir-Lasers. . . . .	71
3.22. Modenform im Titan:Saphir-Laser mit ursprünglicher Pumpgeometrie. . . . .	72
3.23. Modenform im Titan:Saphir-Laser mit neuer Pumpgeometrie. . . . .	73
3.24. Modenform im Chrom:Forsterit-Laser mit neuer Pumpgeometrie. . . . .	74
3.25. Leistungsdaten des Chrom:Forsterit-Lasers. . . . .	75
3.26. Durchstimmbereich und Zeitstruktur des Chrom:Forsterit-Lasers. . . . .	76
3.27. Test des Chrom:Forsterit-Lasers bei der Resonanzionisation von Silizium. . . . .	77
3.28. Atomstrahlquelle der MABU. . . . .	77
3.29. Die Spektroskopieapparatur MABU. . . . .	78
3.30. Lasersystem und Vakuumapparatur für spektroskopische Untersuchungen. . . . .	80
4.1. Anregungsschema für die Resonanzionisationsspektroskopie an Gold. . . . .	82
4.2. Experimenteller Aufbau des Messsystems für die Rydbergspektroskopie an Gold. . . . .	83
4.3. Laserscan des ersten Anregungsschritts in Gold. . . . .	84
4.4. Laserscan des zweiten Anregungsschritts in Gold. . . . .	84
4.5. Laserscan der Rydbergzustände in Gold . . . . .	85
4.6. Rydbergscan zum IP mit reduzierter Leistung des Gitterlasers. . . . .	86
4.7. Residuen der Rydbergfits mit Berücksichtigung verschiedener tiefliegender Zustände aus der Literatur. . . . .	87
4.8. Bestimmung des ersten Ionisationspotentials von Gold. . . . .	87
4.9. Anregungsschemata für die Rydbergspektroskopie an Technetium . . . . .	90
4.10. Laserscan des ersten Anregungsschritts in Technetium. . . . .	91

4.11. Laserscan des zweiten Anregungsschritts in Technetium für die Rydbergspektroskopie zum Grundzustand des Ions mit einer Laserleistung von 58(2) mW. . . . .	92
4.12. Laserscan des zweiten Anregungsschritts in Technetium für die Rydbergspektroskopie zu angeregten Zuständen des Ions. . . . .	93
4.13. Ionensignal in Technetium bei gleichzeitiger Verstimmung der Laser für den ersten und zweiten Anregungsschritt. . . . .	94
4.14. Laserscan der Rydbergzustände zum Ionisationspotential von Technetium. . . . .	94
4.15. Laserscan der Rydbergzustände zu den beiden ersten angeregten Zuständen des Technetiumions. Der Ausschnitt zeigt eine Vergrößerung ausgewählter Rydbergzustände. . . . .	95
4.16. Bestimmung des ersten Ionisationspotentials von Technetium. . . . .	96
4.17. Experimenteller Aufbau zur Zwei-Photonen- <i>in-source</i> Spektroskopie an Silizium. . . . .	98
4.18. Anregungsschema für die verschiedenen Übergänge in Silizium [MZ83]. . . . .	99
4.19. Isotopieverschiebung in Silizium. . . . .	100
4.20. Hyperfeinstruktur der verschiedenen Übergänge in Silizium. . . . .	103
A.1. Winkel-Zeit Diagramm bei einer Geschwindigkeit von $0,001^\circ/\text{s}$ . . . . .	109
A.2. Winkel-Zeit Diagramm bei einer Geschwindigkeit von $0,0005^\circ/\text{s}$ . . . . .	110
A.3. Winkel-Zeit Diagramm bei einer Geschwindigkeit von $0,0001^\circ/\text{s}$ . . . . .	110
C.1. Laserscan zum Auffinden von resonanten Zwischenschritten in Uran vom ersten angeregten Zustand bei $25349\text{ cm}^{-1}$ [Rae10, Fie08]. . . . .	118
C.2. Laserscan zum Auffinden von resonanten Zwischenschritten in Thorium. . . . .	118
C.3. Laserscan zum Auffinden von resonanten Zwischenschritten in Neptunium vom ersten angeregten Zustand bei $26245\text{ cm}^{-1}$ . . . . .	119
C.4. Zwei mögliche Anregungsschemata für Neptunium, entwickelt aus Laserscans mit dem Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator [Stö12]. . . . .	119
D.1. Anregungsschema für ATTA an Krypton. . . . .	121
D.2. Schematischer Aufbau zur Zwei-Photonenanregung von Krypton. . . . .	122
D.3. Laserscan bei der Zwei-Photonenanregung von Krypton. . . . .	123
D.4. Abhängigkeit des Fluoreszenzsignals bei Variation verschiedener Parameter. . . . .	124
D.5. Bild der Kryptonfluoreszenz. . . . .	124



---

# Tabellenverzeichnis

---

3.1. Strahldurchmesser des Gitterlasers. . . . .	60
3.2. Laserscan mit dem Chrom:Forsterit-Laser. . . . .	76
4.1. Mögliche Bandenköpfe in Gold (Referenzen: nf [Moo58], np [CB62]). .	86
4.2. Vergleich des gemessenen Ionisationspotentials für Gold mit den Lite- raturwerten. . . . .	88
4.3. Ionisationspotentiale und B-Faktoren für Technetium aus den einzelnen Messungen . . . . .	95
4.4. Isotopenverhältnisse in Silizium. . . . .	99
4.5. Isotopieverschiebung von Silizium relativ zum Isotop $^{28}\text{Si}$ . . . . .	99
4.6. Hyperfeinaufspaltung der verschiedenen Zustände in Silizium. . . . .	101
B.1. Lage der Rydbergresonanzen zum Grundzustand des Technetiumions. . . . .	112
B.2. Lage der Rydbergresonanzen zum ersten angeregten Zustand des Tech- netiumions. . . . .	114
B.3. Lage der Rydbergresonanzen zum zweiten angeregten Zustand des Tech- netiumions. . . . .	115



---

# Kapitel 1.

## Einleitung

---

Das Verfahren der Resonanzionisation (RI) hat in der Arbeitsgruppe LARISSA (Laser Resonanzionisation für Spektroskopie und selektive Anwendungen) eine mehr als 20-jährige Tradition. Die RI wurde bereits im Jahr 1972 von Letokhov [AL72] vorgeschlagen und ihr wurde ein breites Anwendungsgebiet vorausgesagt. Bei typischen Ionisationsenergien zwischen 6 eV und 9 eV der Elemente können diese durch die Absorption von zwei bis drei Photonen aus dem ultravioletten bis nah-infraroten Spektralbereich (etwa 200 nm - 1000 nm) ionisieren. Die so entstanden Ionen lassen sich mit Hilfe von Ionenoptiken von dem neutralen Rest der Probe trennen und mit geeigneten Detektoren sehr effizient nachweisen. Für die Sättigung der resonanten Übergänge sind Lichtintensitäten notwendig, die von modernen Lasern problemlos erzeugt werden können und eine hohe Ionisationseffizienz gewährleisten. Neben der Effizienz des Verfahrens und des hochempfindlichen Nachweises ist die Selektivität bei der Ionisation der wichtigste Vorzug der RI gegenüber anderen Ionisationsmethoden. Die für die Ionisation verwendeten Laser können gezielt auf die Übergangsfrequenzen eines bestimmten Elements bzw. bestimmten Isotops eingestellt werden, so dass bei ausreichend kleiner Linienbreite der Anregungslaser nur das gewünschte Element bzw. Isotop ionisiert wird. Die Selektivität kann durch die Verwendung möglichst vieler Anregungsschritte erhöht werden.

Die Selektivität, Effizienz und Sensitivität des Verfahrens ermöglichen eine Vielzahl von Anwendungen mit unterschiedlichsten Zielsetzungen. In der Arbeitsgruppe LARISSA wurde die RI vorwiegend für die Ultrapurenanalyse, die Spektroskopie von hochangeregten atomaren Zuständen sowie die hocheffiziente und elementselektive Ionisation zur Erzeugung von intensiven Ionenstrahlen eingesetzt.

### 1.1. Entwicklung der Resonanzionisation in der AG LARISSA

#### 1.1.1. Ultrapurenanalyse mittels RI/RIMS

Mit dem Reaktorunfall in Tschernobyl 1986 wurde eine präzise und schnelle Kontrolle der Umwelt auf radioaktive Belastung notwendig. In der neu entstandenen Arbeitsgruppe LARISSA wurde der Ultrapurennachweis für  $^{89,90}\text{Sr}$  mittels RI am schnellen

Atomstrahl am RISIKO-Massenseparator (Resonanzionisation in kollinear Geometrie am schnellen Atomstrahl) entwickelt [Mon92]. Dafür wurde eine strontiumhaltige Umweltprobe an einer heißen Oberfläche ionisiert, in einem elektrischen Feld beschleunigt und nach einer Massenseparation in einem Sektorfeldmagneten neutralisiert. Unter einem Winkel von  $2^\circ$  zum Atomstrahl wurde nun Laserlicht eingestrahlt und unter Ausnutzung der Isotopieverschiebung selektiv das gewünschte Strontiumisotop in einen Rydbergzustand angeregt. Die angeregten Atome wurden feldionisiert und mit einem elektrischen Ablenker vom schnellen Atomstrahl separiert. Die Kombination von Massenseparation und RI führt zu einer hohen Nachbarmassen- und Isobarenunterdrückung. Zusammenfassend konnte für das Radioisotop  $^{90}\text{Sr}$  eine Effizienz von  $10^{-5}$  und eine Selektivität von  $10^{11}$  erreicht werden [WBB<sup>+</sup>97a]. Dieses Projekt legte den Grundstein für eine Reihe von weiteren Anwendungen der RI in der Arbeitsgruppe.

Der hohe Aufwand für den Betrieb des RISIKO-Massenseparator führte zu der Entwicklung der Ultrapurenanalyse mittels RIMS (Resonanzionisations-Massenspektrometrie) mit Quadrupolmassenfilter und Diodenlasersystem. Dieses Verfahren ermöglicht ähnliche Spezifikationen wie die RI am schnellen Atomstrahl, bei gleichzeitig drastisch verringertem experimentellen Aufwand. Die Ionisation der Probe erfolgt dabei bereits isotopenselektiv direkt hinter der Atomquelle mit einem dreistufigen, resonanten Anregungsschema. Das Laserlicht wird von kompakten, wartungsarmen und spektral sehr schmalen Diodenlasern erzeugt. Die so erzeugten Ionen werden in einem kommerziellen Quadrupolmassenfilter (QMS von engl. *Quadrupole Mass Separator*) analysiert. Die Kombination aus sehr guter optischer Selektivität bei der Erzeugung der Ionen und der hohen Nachbarmassenunterdrückung des QMS ermöglichen eine signifikant höhere Selektivität als die Einzelverfahren. Diese hochaufgelöste RIMS (HR-RIMS, *High-Resolution-RIMS*) wurde bisher an verschiedenen Elementen erfolgreich realisiert. Bei der Ultrapurenanalyse von  $^{41}\text{Ca}$  zur Radiodatering von Meteoriten und zur Tracerbestimmung in medizinischen Untersuchung konnte eine Selektivität von  $10^{13}$  erreicht werden [Nör99, Mül03, Gep06]. Für das Element Gadolinium wurde die HR-RIMS zur Bestimmung von Isotopenhäufigkeitsanomalien an interstellarem Staub aus Meteoriten und für medizinische Studien entwickelt [Bla00]. Hierbei wurde eine Isobarenselktivität von  $^{152}\text{Gd}$  zu  $^{152}\text{Sm}$  von  $> 10^7$  erreicht. Die dritte Anwendung der HR-RIMS ist die Ultrapurenanalyse von  $^{236}\text{U}$  zum Nachweis von anthropogenem Uran in der Umwelt. Hier wurden bereits Selektivitäten von  $10^9$  erreicht [Sch06]. Dieses Projekt ist zur Zeit noch Forschungsschwerpunkt der AG LARISSA.

### 1.1.2. Spektroskopie von hochangeregten atomaren Zuständen und Zustandssuche

Bereits für die Ultrapurenanalyse von Strontium, Calcium, Gadolinium und Uran waren intensive spektroskopische Voruntersuchungen notwendig. Bei Sr und Ca wurde aus Rydbergzuständen ionisiert, was eine genaue Kenntnis dieser Zustände in Bezug auf Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung voraussetzte, um eine möglichst hohe optische Selektivität der Laseranregung zu erreichen. In Gd und U waren zusätzlich Untersuchungen von autoionisierenden Zuständen notwendig, um eine möglichst effi-

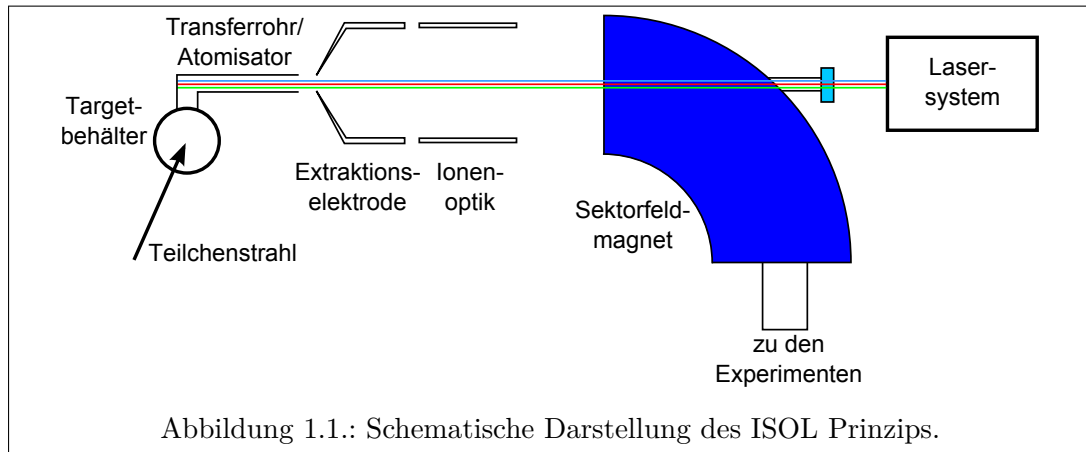
ziente Ionisation zu erreichen.

Untersucht man Rydbergserien in einem Atom, also Rydbergzustände, die sich nur durch die Hauptquantenzahl  $n$  unterscheiden, ergibt sich die Möglichkeit das Ionisationspotential aus der Lage der einzelnen Zustände zu berechnen. Rydbergzustände besitzen eine Anregungsenergie nahe der Ionisationsenergie und sind daher für die wenigsten Elemente mit nur einem Photon aus einem Laser zugänglich. Die mehrstufige Resonanzionisationsspektroskopie (RIS) ermöglicht den Zugang zu Rydbergzuständen durch die sequentielle resonante Anregung mit mehreren Photonen. Aufbauend auf der Erfahrung mit der RIS von Rydbergzuständen wurden in der AG LARISSA die Ionisationspotentiale von Samarium und Gadolinium mit Diodenlasern mit einer Genauigkeit von  $10^{-10}$  bestimmt. Die Spektroskopie mit Diodenlasern ist jedoch aufgrund ihres sehr beschränkten Durchstimmbereichs mühsam und experimentell aufwändig, zumal meist für jedes Element ein speziell angepasstes Lasersystem benötigt wird.

### 1.1.3. Laserionenquelle und *in-source* Spektroskopie

Nach erfolgreichem Abschluss des Projekts der Ultrapurenalyse von  $^{89,90}\text{Sr}$  wurde der RISIKO Massenseparator in einen Teststand für eine Resonanzionisations-Laserionenquelle (RILIS von engl. *Resonance Ionization Laser Ion Source*) [KARW85] umgebaut. Parallel dazu wurden bei LARISSA gepulste Titan:Saphir-Laser entwickelt, die als Ergänzung bzw. Ersatz für die bis dahin z.B. an ISOLDE für RILIS eingesetzten Farbstofflaser dienen sollten. Für den Teststand wurde eine zylindrische Atomquelle entwickelt, die resistiv geheizt wurde. Die zu untersuchende Probe wurde direkt in der Quelle platziert und die Laser axial zu der Quelle eingestrahlt. Bereits das fundamentale Licht der Titan:Saphir-Laser deckt den Spektralbereich von 700 nm bis 950 nm ab, der durch Frequenzvervielfachung noch erheblich erweitert werden kann. Das System bestehend aus drei Titan:Saphir-Lasern lässt sich universell für die RILIS an vielen Elementen einsetzen. Bisher wurde die RILIS mit Titan:Saphir-Lasern erfolgreich an 36 Elementen demonstriert, von weiteren 45 ist bekannt, dass die RILIS mit Titan:Saphir-Lasern möglich ist.

Die RILIS wird aufgrund ihrer Leistungsfähigkeit an sogenannten ISOL-Einrichtungen (Isotope Separator On-Line) zur Erzeugung radioaktiver Ionenstrahlen eingesetzt. Abbildung 1.1 zeigt eine schematische Darstellung des ISOL-Prinzips, mit dem exotische Nuklide erzeugt werden können. Das Target im Targetbehälter wird mit hochenergetischen Projektilen beschossen. Typische Projektilen sind Protonen. Mit geeigneten Beschleunigungsanlagen können auch schwerere Ionen verwendet werden. Die Projektilen werden üblicherweise auf Energien von 1 GeV - 2 GeV pro Nukleon beschleunigt, bevor sie auf das Targetmaterial treffen. Dabei entstehen durch Kernprozesse wie Spaltung, Spallation oder Fusion unter anderem viele kurzlebige, exotische Nuklide. Durch die Wahl von Targetmaterial und Projektil kann die Produktion der gewünschten Nuklide begünstigt werden. Die erzeugten Nuklide werden direkt im dicken Targetmaterial gestoppt. Um die entstandenen Nuklide den angeschlossenen Experimenten zuzuführen, muss ein möglichst schneller Transport stattfinden. Zu diesem Zweck werden der Targetbehälter und das Transferrohr auf Temperaturen von etwa 2000° C geheizt, um



eine möglichst schnelle Diffusion durch das Targetmaterial und einen schnellen Transport ohne Wandhaftung durch das Transferrohr zu gewährleisten. Für die Ionisation stehen neben der RILIS noch weitere Methoden zur Wahl. Üblich sind die Oberflächenionisation an der heißen Wand des Transferrohrs, Ionenquellen auf Grundlage der Elektronenzyklotronresonanz [Gel96] und FEBIAD (Forced Electron Beam Induced Arc Discharge) [K<sup>+</sup>76]<sup>1</sup>. Die RILIS ist die einzige selektive Ionisationsmethode, bei der gezielt nur die Isotope eines Elements ionisiert werden. Nachdem die normalerweise einfach geladenen Ionen das Transferrohr verlassen haben, werden sie im elektrischen Feld auf Energien von typisch 60 keV beschleunigt und in einem Sektorfeldmagnet nach ihrem Masse zu Ladungs-Verhältnis gefiltert. In Kombination mit der elementspezifischen Ionisation entsteht so theoretisch ein isotopenreiner Ionenstrahl. Durch die heißen Wände des Targetbehälters und des Transferrohrs findet jedoch immer auch Oberflächenionisation statt, so dass ein unerwünschter Untergrund von Oberflächenionen entsteht, unter denen sich auch Isobare des gewünschten Isotops befinden, die nicht von dem Massenseparator abgetrennt werden können. Lösungsansätze für dieses Problem sind aktueller Forschungsschwerpunkt der AG LARISSA.

Neben ihrer eigentlichen Bestimmung, der selektiven und effizienten RILIS, wurden die Laser auch zu spektroskopischen Zwecken eingesetzt. Die Spektroskopie findet dabei meist in kollinearer Richtung direkt in der Atomquelle statt. Mit dieser Methode wurden die Ionisationspotentiale von Nickel und Germanium anhand von jeweils 40 Rydbergzuständen bestimmt [KBB<sup>+</sup>07]. Die Spektroskopie über einen größeren Wellenlängenbereich ist, mit der beschränkten modensprungfreien Durchstimmbarkeit von etwa  $5 \text{ cm}^{-1}$  bis  $10 \text{ cm}^{-1}$ , experimentell aufwändig und zeitintensiv.

<sup>1</sup>Für eine genauere Beschreibung der Funktionsweise sei auf die Referenzen verwiesen. An dieser Stelle soll ausschließlich auf die RILIS eingegangen werden.

## 1.2. Aufgabenstellung dieser Arbeit

Für die RILIS mit Titan:Saphir-Lasern besteht Entwicklungsbedarf im Bereich der Quellenregion, der verfügbaren Laserleistung und der verwendeten Anregungsschemata. Für die Erhöhung der Selektivität einer Laserionenquelle werden in der AG LARISSA zwei Konzepte verfolgt: Test neuer Materialien mit niedriger Austrittsarbeit für das Transferrohr und die Laserionenquelle und Falle LIST. Beide Konzepte werden in der Dissertation von Fabio Schweltnus [Sch10] behandelt.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Weiterentwicklung des Lasersystems in den Bereichen Ausgangsleistung, modensprungfreie Durchstimmbarkeit und Reduktion der Linienbreite der Laser. Außerdem demonstriert sie die neu gewonnenen Möglichkeiten über spektroskopische Untersuchungen an Gold, Technetium und Silizium.

Eine sehr entscheidende Spezifikation einer Laserionenquelle ist neben ihrer Selektivität die Ionisationseffizienz. Um die Effizienz zu steigern, existieren drei Angriffspunkte: die Quellengeometrie, die Laserleistung und das verwendete Anregungsschema. Im Bereich der Quellengeometrie gewinnt man Effizienz durch ein längeres Transferrohr, was eine längere Verweildauer der Atome im Rohr bedingt. Dies kann bei sehr kurzlebigen Nukliden zu deren Zerfall bereits in der Quelle führen. Die Einflüsse der Quellengeometrie wurden ausführlich in der Dissertation von Fabio Schweltnus untersucht [Sch10]. Im Bereich des Lasersystems kann die Ausgangsleistung der Laser erhöht werden, um möglichst alle resonanten Übergänge zu sättigen und einen nicht resonanten Ionisationsschritt möglichst effizient zu gestalten. Die direkteste Möglichkeit, die Ausgangsleistung der Titan:Saphir-Laser zu vergrößern, ist die Erhöhung der Pumpleistung. Diese ist allerdings durch die Zerstörschwelle des Titan:Saphir-Kristalls limitiert. Somit ergibt sich aus der Leistungsdichte des Pumplasers auf der Kristalloberfläche ein Maximalwert für die Pumpleistung. Um dieses Problem zu eliminieren, existiert bereits ein Ansatz, der in der Diplomarbeit von Thomas Kessler [Kes04] entwickelt wurde. Dabei wird der Titan:Saphir-Kristall von zwei Seiten gepumpt. Die Pump- und Laserleistung konnte durch diesen Ansatz nahezu verdoppelt werden, allerdings auf Kosten einer wesentlich kritischeren Justage des Lasers und einer verringerten Langzeitstabilität. In dieser Arbeit wurde der Ansatz verfolgt, die Geometrie im Resonator zu verändern, um die Mode des Pumpstrahls auf der Kristalloberfläche zu vergrößern und dadurch die Leistungsdichte zu verringern. Eine zusätzliche Reduktion der Leistungsdichte kann über eine Erhöhung der Repetitionsrate des Pumplasers erreicht werden. Bei gleicher Ausgangsleistung verringert sich dabei die Leistung im Laserpuls entsprechend.

Die Ionisationseffizienz ist außerdem abhängig von dem verwendeten Anregungsschema und dabei insbesondere von den Übergangsstärken der einzelnen atomaren Resonanzen. Anregungsschemata können beispielsweise aus Literaturwerten für atomare Übergänge und Lagen der Energieniveaus entwickelt werden. Ist die Literaturlage nicht ausreichend, muss ein geeignetes Anregungsschema mit Hilfe spektroskopischer Untersuchungen gefunden werden. Die konventionellen Titan:Saphir-Laser in der Arbeitsgruppe LARISSA eignen sich jedoch nur bedingt für spektroskopische Untersu-

chungen. Ein Ziel dieser Arbeit war es daher, einen Titan:Saphir-Laser zu entwickeln, dessen Wellenlänge sich über einen weiten Bereich modensprungfrei verändern lässt. Dazu wurde der Ansatz gewählt, die Wellenlängenselektion durch einen angepassten Littrow-Aufbau [Hän72] zu realisieren.

Ein weiterer Punkt für die Weiterentwicklung der Titan:Saphir-Laser ist die Reduktion der spektralen Breite. Diese beträgt bei den konventionellen Titan:Saphir-Lasern etwa 3 GHz und kann prinzipbedingt einen Wert von etwa 600 MHz nicht unterschreiten. Um die spektrale Breite von gepulsten Lasern weiter zu Verringern wird im Allgemeinen das Verfahren des *Injection Seedings* verwendet. Dabei wird ein spektral schmaler Dauerstrichlaser in den Resonator eines gepulsten Lasers eingekoppelt. Der gepulste Laser übernimmt dann die spektrale Struktur des schmalbandigen Lasers, während alle weiteren Spezifikationen wie Ausgangsleistung, Pulslänge oder transversale Modenstruktur davon unberührt bleiben. In dieser Arbeit wurde erstmalig dieses Prinzip in Verbindung mit einem Titan:Saphir-Laser mit einer Repetitionsrate größer als 200 Hz angewendet.

Aus der Weiterentwicklung des Titan:Saphir-Lasersystems resultiert, neben der Spezifikation der Laser, die Aufgabe die Eignung der neu entwickelten Laser für die entsprechenden Aufgaben zu demonstrieren. Diese Tests sind teilweise Bestandteil von weiteren Dissertationen. Die Effizienz der Laserionenquelle mit dem Lasersystem mit erhöhter Leistung wurde im Rahmen der Promotion von Fabio Schwelnus [Sch10] untersucht. Die Entwicklung neuer Anregungsschemata mit dem Titan:Saphir-Laser mit Beugungsgitter wurden im Rahmen der Promotionen von Sebastian Raeder [Rae10], Nils Stöbener [Stö12] und Volker Sonnenschein [Son12] untersucht.

Ein weiteres Anwendungsgebiet für einen weit abstimmbaren Laser ist die spektroskopische Untersuchung von Rydbergzuständen. Die bekannten Energielagen von Rydbergzuständen ermöglichen einerseits die Entwicklung effizienter Anregungsschemata, da die Ionisation aus einem Rydbergzustand in einem heißen Ofen effizienter ist als die nicht resonante Ionisation mit einem Laser, andererseits ist es möglich aus den Energielagen das Ionisationspotential des untersuchten Elements zu bestimmen. In dieser Arbeit wurde daher die prinzipielle Eignung des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator für die Rydbergspektroskopie demonstriert. Als Testfall wurde Gold mit einem bekannten Ionisationspotential gewählt, um einen Vergleich mit bekannten Literaturwerten zu ermöglichen. Technetium ist ein interessanter Kandidat für die Neubestimmung des Ionisationspotentials. Die bekannten Werte datieren zurück auf die Jahre 1952 und 1958 und wurden durch Extrapolation aus den Ionisationspotentialen der Nachbarelemente respektive aus zwei niedrig liegenden Rydbergzuständen gewonnen. Über die Spektroskopie hochliegender Rydbergzustände kann dieser Wert deutlich genauer bestimmt werden.

Als eine mögliche Anwendung für den geseedeten Titan:Saphir-Laser wurde die dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie innerhalb eines heißen Ofens gewählt. Dieser Ansatz wurde ausgesucht, um die hochauflösende Spektroskopie mit diesem Laser zu demonstrieren im Hinblick auf einen möglichen Einsatz an ISOL-Einrichtungen. Ein schmalbandiger, gepulster Laser ermöglicht aufgrund der vorherrschenden Temperaturen und der damit verbundenen Dopplerverbreiterung im Bereich der Atomquelle

noch keine hochauflösende Spektroskopie. Daher wurde der Ansatz der dopplerfreien Zwei-Photonen-Spektroskopie gewählt, der für ISOL-Laserionenquellen bereits angedacht ist [BDF<sup>+</sup>97] und der einen Laser mit den Spezifikationen des geseedeten Lasers benötigt. Als Testelement diente Silizium, bei dem demonstriert wurde, dass die geringe Isotopieverschiebung und die Hyperfeinstruktur im Isotop  $^{29}\text{Si}$  mit dieser Methode aufgelöst werden kann.

Zusammenfassend besteht die Aufgabenstellung dieser Arbeit aus der Entwicklung neuer, speziell angepasster Titan:Saphir-Laser und deren Anwendung im Bereich der Rydbergspektroskopie und der dopplerfreien Zwei-Photonen-Spektroskopie.



---

# Kapitel 2.

## Theoretische Grundlagen

---

In diesem Kapitel werden die notwendigen theoretischen Grundlagen für diese Arbeit vorgestellt. Dies umfasst die Wechselwirkung von Licht mit Atomen, atomphysikalische Grundlagen, die Theorie der Gaußschen Strahlenoptik sowie die Theorie abstimmbarer Festkörperlaser.

### 2.1. Wechselwirkung von Atomen mit Licht

Die Wechselwirkung von Atomen mit elektromagnetischen Feldern bildet die Grundlage für die in dieser Arbeit eingesetzte resonante Anregung von Atomen mit Laserlicht. In diesem Abschnitt werden dazu die theoretischen Grundlagen erarbeitet. Die Beschreibung für ein reines Zwei-Niveausystem ohne Dämpfung geschieht mit Hilfe der zeitabhängigen Schrödingergleichung. Betrachtet man zusätzlich Dämpfung durch spontane Emission, wird der Übergang zum Dichtematrixformalismus notwendig. Eine anschauliche Darstellung wird dabei durch die Einführung des Blochvektors möglich.

#### 2.1.1. Zwei-Niveausystem im Lichtfeld

Das Atom lässt sich für die folgenden Überlegungen vereinfacht als Zwei-Niveausystem betrachten mit den Zuständen  $|g\rangle$  und  $|e\rangle$  und den zugehörigen Energien  $E_g$  und  $E_e$ . Die Energiedifferenz ist  $\Delta E = E_e - E_g = \hbar\omega_{ge}$ . Dieses System tritt in Wechselwirkung mit einem Lichtfeld einer Frequenz  $\omega$ . Die Beschreibung des Atoms als Zwei-Niveausystem ist dann gerechtfertigt, wenn gilt  $\omega \approx \omega_{ge}$  und für alle anderen Übergänge von Zuständen  $|i\rangle$  nach  $|j\rangle$  die Verstimmung zwischen  $\omega$  und  $\omega_{ij}$  hinreichend groß ist, weshalb diese Wechselwirkungen vernachlässigt werden können.

Der Beschreibung der Wechselwirkung von Licht mit Atomen liegt der Hamiltonoperator des Gesamtsystems  $\mathcal{H}$  zu Grunde. Dieser besteht aus dem Hamiltonoperator des freien Atoms und dem Anteil der Wechselwirkung

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}. \quad (2.1)$$

Die Wechselwirkungsenergie des Atoms mit einer elektromagnetischen Welle ist gegeben durch  $\mathcal{V} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ . Betrachtet man Wechselwirkungen von Atomen mit Licht im ultravioletten bis nah-infraroten Spektralbereich, ist die Wellenlänge des Lichts

etwa drei Größenordnungen größer als die Ausdehnung des Atoms am Ort  $\mathbf{R}$ . Somit kann die räumliche Veränderung des elektrischen Felds am Ort des Atoms vernachlässigt werden und es gilt die „elektrische Dipolnäherung“:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \approx \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) = \mathbf{E}(t). \quad (2.2)$$

Mit dem Anteil des elektrischen Felds einer elektromagnetischen Welle am Ort des Atoms folgt der Wechselwirkungsoperator zwischen Atom und Licht

$$\mathcal{V} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(t) = -\mathbf{d} \cdot \epsilon E_0 \cos(\omega t), \quad (2.3)$$

mit dem elektrischen Dipoloperator  $\mathbf{d} = -e\mathbf{r}$ , dem Polarisationsvektor  $\epsilon$ , der Amplitude des elektrischen Felds  $E_0$  und der Kreisfrequenz der elektromagnetischen Welle  $\omega$ .

Mit der Kenntnis des Wechselwirkungsoperators kann die zeitabhängige Schrödingergleichung betrachtet werden. Diese gibt Auskunft über die zeitliche Entwicklung des Systems:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \mathcal{H} \Psi(\mathbf{r}, t) = \mathcal{H}_0 \Psi(\mathbf{r}, t) + \mathcal{V} \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.4)$$

Ein allgemeiner Ansatz mit den stationären Eigenfunktionen  $u_g(\mathbf{r})$ ,  $u_e(\mathbf{r})$  und den zugehörigen zeitabhängigen Amplituden  $c_g(t)$ ,  $c_e(t)$

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = e^{-i\omega_g t} c_g(t) u_g(\mathbf{r}) + e^{-i\omega_e t} c_e(t) u_e(\mathbf{r}) \quad (2.5)$$

ergibt nach Einsetzen in die zeitabhängige Schrödingergleichung und Bildung des Skalarprodukts von links mit  $e^{-\omega_i t} u_i(\mathbf{r})$ :

$$\dot{c}_g = \frac{id_{ge}^\epsilon E_0}{\hbar} e^{-i\omega_{ge} t} \cos(\omega t) c_e(t) \quad \dot{c}_e = \frac{id_{eg}^\epsilon E_0}{\hbar} e^{i\omega_{ge} t} \cos(\omega t) c_g(t), \quad (2.6)$$

$d_{eg}^\epsilon$  ist dabei über folgendes Skalarprodukt gegeben:

$$d_{eg}^\epsilon = \mathbf{d}_{eg} \cdot \epsilon = \langle e | \mathbf{d} | g \rangle \cdot \epsilon. \quad (2.7)$$

Das Matrixelement  $\mathbf{d}_{eg}$  ist nur für erlaubte Übergänge größer als Null und gibt die Kopplungsstärke des Übergangs an.

Mit Hilfe der Eulerformel und der Definition der Rabi-Frequenz  $\Omega_0 = d_{eg}^\epsilon E_0 / \hbar$  folgt aus Formel 2.6:

$$\begin{aligned} \dot{c}_g &= \frac{i\Omega_0}{2} \left( e^{i(\omega - \omega_{ge})t} + e^{-i(\omega + \omega_{ge})t} \right) c_e(t) \\ \dot{c}_e &= \frac{i\Omega_0}{2} \left( e^{-i(\omega - \omega_{ge})t} + e^{i(\omega + \omega_{ge})t} \right) c_g(t). \end{aligned} \quad (2.8)$$

Da wir von einer resonanten Wechselwirkung zwischen Atom und Licht ausgehen gilt für den Prozess  $\omega \approx \omega_{ge}$ . Die *Rotating Wave Approximation* betrachtet nur die langsam

oszillierenden Terme und mit der Definition der Verstimmung  $\delta = \omega - \omega_{ge}$  und der Transformation  $\tilde{c}_g = c_g e^{-i\delta/2 \cdot t}$  und  $\tilde{c}_e = c_e e^{i\delta/2 \cdot t}$  folgen die Differentialgleichungen

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \tilde{c}_g(t) \\ \tilde{c}_e(t) \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} -\delta & \Omega_0 \\ \Omega_0 & \delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{c}_g(t) \\ \tilde{c}_e(t) \end{pmatrix}. \quad (2.9)$$

Die Lösungen der Differentialgleichungen ergeben sich durch nochmaliges Differenzieren und erneutes Einsetzen. Mit den Anfangsbedingungen, dass sich zum Zeitpunkt  $t = 0$  die gesamte Besetzung im Grundzustand  $|g\rangle$  befindet und dem Fall einer resonanten Anregung, also  $\delta = 0$ , ergeben sich die zeitabhängigen Besetzungen der Zustände

$$\begin{aligned} |\tilde{c}_g(t)t|^2 &= \cos^2(\Omega_0 t/2) = \frac{1}{2} [1 + \cos(\Omega_0 t)] \\ |\tilde{c}_e(t)t|^2 &= \sin^2(\Omega_0 t/2) = \frac{1}{2} [1 - \cos(\Omega_0 t)]. \end{aligned} \quad (2.10)$$

Für die zeitabhängige Besetzung des angeregten Zustands  $|e\rangle$  folgt bei einer Verstimmung der Frequenz des Lichtfelds gegenüber der Resonanzfrequenz des Atoms, also  $\delta \neq 0$ :

$$|\tilde{c}_e(t)|^2 = \frac{\Omega_0^2}{\Omega_0^2 + \delta^2} \sin^2\left(\frac{1}{2}\sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}t\right) = \frac{\Omega_0^2}{2(\Omega_0^2 + \delta^2)} \left[1 - \cos\left(\sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}t\right)\right]. \quad (2.11)$$

Es ergibt sich also für den Fall ohne Verstimmung eine Rabi-Oszillation der Besetzung mit der Frequenz  $\Omega_0$ , d.h. die gesamte Besetzung wechselt periodisch vom Grundzustand  $|g\rangle$  in den angeregten Zustand  $|e\rangle$ . Im Fall mit Verstimmung erhöht sich die Frequenz auf die verallgemeinerte Rabifrequenz  $\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}$  und gleichzeitig reduziert sich die Amplitude der Besetzung des angeregten Zustands auf  $\Omega_0^2/2\Omega^2$ .

### 2.1.2. Dichtematrixformalismus

Die Beschreibung der Wechselwirkung von Atomen mit einem Lichtfeld durch die zeitabhängige Schrödingergleichung ermöglicht es nicht, die spontane Emission, als statistische Überlagerung der beiden Quantenzustände, zu berücksichtigen. Dies leistet der sogenannte Dichtematrixformalismus. Der Dichtematrixoperator ist gegeben durch

$$\rho = \sum_n p_n |\psi_n\rangle \langle \psi_n|, \quad (2.12)$$

mit der Wahrscheinlichkeit  $p_n$  das System im Zustand  $\psi_n$  zu finden. Somit erhält man die Einträge der Dichtematrix für die bereits betrachteten Zustände:

$$\rho_{eg} = \langle e|\rho|g\rangle = c_e c_g^*. \quad (2.13)$$

Die Diagonalelemente  $\rho_{ee}$  und  $\rho_{gg}$  der Matrix sind reell und lassen sich direkt als die Besetzung der Zustände identifizieren. Die Nicht-Diagonalelemente  $\rho_{eg}$  und  $\rho_{ge}$  sind komplex und enthalten Informationen über die Interferenz zwischen den beiden Zuständen, wenn sich das System in einer kohärenten Superposition der beiden Zustände

befindet. Die Liouville Gleichung beschreibt die Zeitentwicklung des Dichtematrixformalismus:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}(t), \rho(t)]. \quad (2.14)$$

Betrachtet man zunächst die Zeitentwicklung der ersten Komponente der Dichtematrix erhält man:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{gg} = \frac{\partial}{\partial t} c_g c_g^* = \dot{c}_g c_g^* + c_g \dot{c}_g^*. \quad (2.15)$$

Beachtet man Formel 2.8 folgt:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{gg} = \frac{i\Omega_0}{2} [e^{i\delta t} c_e c_g^* - e^{-i\delta t} c_g c_e^*] = \frac{i\Omega_0}{2} [e^{i\delta t} \rho_{eg} - e^{-i\delta t} \rho_{ge}]. \quad (2.16)$$

Mit der Ersetzung, die bereits in Gleichung 2.9 angewendet wurde, vereinfacht sich die zeitliche Entwicklung zu:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{gg} = \frac{i\Omega_0}{2} [\tilde{c}_e \tilde{c}_g^* - \tilde{c}_g \tilde{c}_e^*] = \frac{i\Omega_0}{2} [\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge}]. \quad (2.17)$$

Hierbei wurde die Definition  $\tilde{c}_i \tilde{c}_j^* = \tilde{\rho}_{ij}$  verwendet. Die spontane Emission kann nun ad hoc in den Formalismus eingeführt werden. Sie führt zu einer Entvölkerung des angeregten Zustands  $|e\rangle$  mit der Rate  $\gamma$  und mit der gleichen Rate zu einer Bevölkering des Grundzustands  $|g\rangle$ . Gleichzeitig führt die spontane Emission zu einem Verlust der Kohärenz mit der Rate  $\gamma/2$ . Berechnet man die Zeitabhängigkeit für alle Komponenten der Dichtematrix und berücksichtigt die spontane Emission als Dämpfung, folgen die optischen Blochgleichungen für die Wechselwirkung von Licht mit einem Zwei-Niveausystem und der Zerfallsrate  $\gamma$  für die spontane Emission vom Zustand  $|e\rangle$  in den Zustand  $|g\rangle$ :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{gg} &= \gamma \rho_{ee} + \frac{i\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge}) \\ \dot{\rho}_{ee} &= -\gamma \rho_{ee} + \frac{i\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{ge} - \tilde{\rho}_{eg}) \\ \dot{\rho}_{ge} &= -\left(\frac{\gamma}{2} + i\delta\right) \tilde{\rho}_{ge} + \frac{i\Omega}{2} (\rho_{ee} - \rho_{gg}) \\ \dot{\rho}_{eg} &= -\left(\frac{\gamma}{2} + i\delta\right) \tilde{\rho}_{eg} + \frac{i\Omega}{2} (\rho_{gg} - \rho_{ee}). \end{aligned} \quad (2.18)$$

Die Eigenschaft  $Sp(\rho) = 1$  der Dichtematrix folgt aus der Betrachtung  $\dot{\rho}_{gg} + \dot{\rho}_{ee} = 0$ . Führt man des Weiteren noch die Inversion  $w = \rho_{ee} - \rho_{gg}$  ein und berücksichtigt, dass gilt  $\tilde{\rho}_{ge} = \tilde{\rho}_{eg}^*$ , lassen sich die optischen Blochgleichung aus 2.18 weiter vereinfachen:

$$\begin{aligned} \dot{w} &= -\gamma(w + 1) - i\Omega_0(\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge}) \\ \dot{\tilde{\rho}}_{eg} &= -\left(\frac{\gamma}{2} - i\delta\right) \tilde{\rho}_{eg} - \frac{i\Omega}{2} w. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Für Zeiten  $t \gg 1/\gamma$  befindet sich das System im Gleichgewicht, und es gilt  $\dot{w} = \dot{\rho}_{eg} = 0$ . Hierfür erhält man die folgende Lösung:

$$\begin{aligned} w &= -\frac{1}{1+S} \\ \tilde{\rho}_{eg} &= \frac{i\Omega_0}{2(\gamma/2 - i\delta)(1+S)}. \end{aligned} \quad (2.20)$$

Hier wurde der Sättigungsparameter  $S$  eingeführt, der mit der Rabifrequenz, der Verstimmung und der Übergangsrate zusammenhängt:

$$\begin{aligned} S &= \frac{\Omega_0^2/2}{\delta^2 + \gamma^2/4} = \frac{S_0}{1 + 4\delta^2/\gamma^2} \\ S_0 &= \frac{2\Omega_0^2}{\gamma^2}, \end{aligned} \quad (2.21)$$

wobei gilt  $S = S_0$  für  $\delta = 0$ . Die Herleitung des Sättigungsparameters und der Linienform der resonanten Anregung wird im Abschnitt 2.2.1 behandelt.

## 2.2. Spektroskopische Grundlagen

### 2.2.1. Linienform und Sättigungsverbreiterung

Die anschauliche Bedeutung des Sättigungsparameters aus Abschnitt 2.1 lässt sich über einen Vergleich des Dipoloperators  $\mathbf{d}$ , der Einsteinkoeffizienten  $A$  und  $B$  für die spontane und induzierte Emission und der Rabifrequenz ermitteln. Der Einsteinkoeffizient  $A$  ist identisch mit der bereits eingeführten Zerfallsrate  $\gamma$ . Für  $B$  sowie für das Verhältnis aus  $A$  und  $B$  gilt

$$B = \frac{d^2}{3\epsilon_0\hbar^2} \quad \frac{A}{B} = \frac{\gamma}{B} = \frac{\hbar\omega_{ge}^3}{\pi c^3}. \quad (2.22)$$

Das Quadrat des Dipoloperators ist damit gegeben durch

$$d^2 = \frac{3\gamma\pi\epsilon_0\hbar c^3}{\omega_{ge}^3}. \quad (2.23)$$

Mit Hilfe der Definition der Rabifrequenz  $\Omega_0 = dE_0/\hbar$  erhält man einen Ausdruck für  $S_0$ :

$$S_0 = \frac{6\pi\epsilon_0 c^3 E_0^2}{\hbar\omega_{ge}^3 \gamma}. \quad (2.24)$$

Über den Zusammenhang zwischen dem elektrischem Feld und der Lichtintensität  $I = \frac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2$  und demjenigen zwischen Wellenlänge und Frequenz  $c = \lambda\nu = 1/(2\pi)\lambda\omega$  erhält man schließlich den Sättigungsparameter in der Form

$$S_0 = \frac{I}{I_{Sat}} \quad \text{mit} \quad I_{Sat} = \frac{\pi\hbar c}{3\lambda^3\tau}. \quad (2.25)$$

Das Ergebnis verdeutlicht, dass die Sättigung eines atomaren Übergangs von der Lichtintensität abhängig ist und somit bei gleicher Fläche von der Leistung des eingestrahnten Lichtfelds<sup>1</sup>. Aus Formel 2.21 wird deutlich, dass mit zunehmender Verstimmung die Sättigung geringer wird, sich dies aber durch mehr Lichtintensität egalieren lässt. Über die Definition von  $w$  und die Eigenschaft der Dichtematrix  $Sp(\rho) = 1$  kann man die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustands  $\rho_{ee}$  durch den Sättigungsparameter ausdrücken. Es gilt:

$$\begin{aligned} \rho_{ee} &= w + \rho_{gg} \stackrel{Sp(\rho)=1}{=} w + 1 - \rho_{ee} = \frac{w + 1}{2} = \frac{S}{2(S + 1)} \\ &= \frac{S_0/2}{1 + S_0 + 4\delta^2/\gamma^2} = \frac{S_0}{2(S_0 + 1)} \frac{1}{1 + \frac{4\delta^2}{\gamma^2(1+S_0)}}. \end{aligned} \quad (2.26)$$

Dies beschreibt eine Lorentzkurve mit einer vollen Halbwertsbreite  $\gamma\sqrt{S_0 + 1}$ . Die volle Halbwertsbreite ist also abhängig von der Intensität des Lichtfelds. Dadurch wird auch die sogenannte Sättigungsverbreiterung von Resonanzkurven erklärt, wenn die eingestrahlte Lichtintensität  $I$  die Sättigungsintensität  $I_0$  um ein Vielfaches übertrifft. Die Linienform und insbesondere die Breite der Resonanzkurve, die sich mit Hilfe von Laserspektroskopie ergibt, wird durch weitere Faktoren signifikant beeinflusst. Die Dopplerverbreiterung und die Linienbreite des verwendeten Lasers tragen maßgeblich zu einer Verbreiterung der Resonanzkurve bei. Eine nicht aufgelöste Hyperfeinstruktur verursacht zusätzlich eine Veränderung der Linienform. Diese Mechanismen werden in den folgenden Abschnitten behandelt.

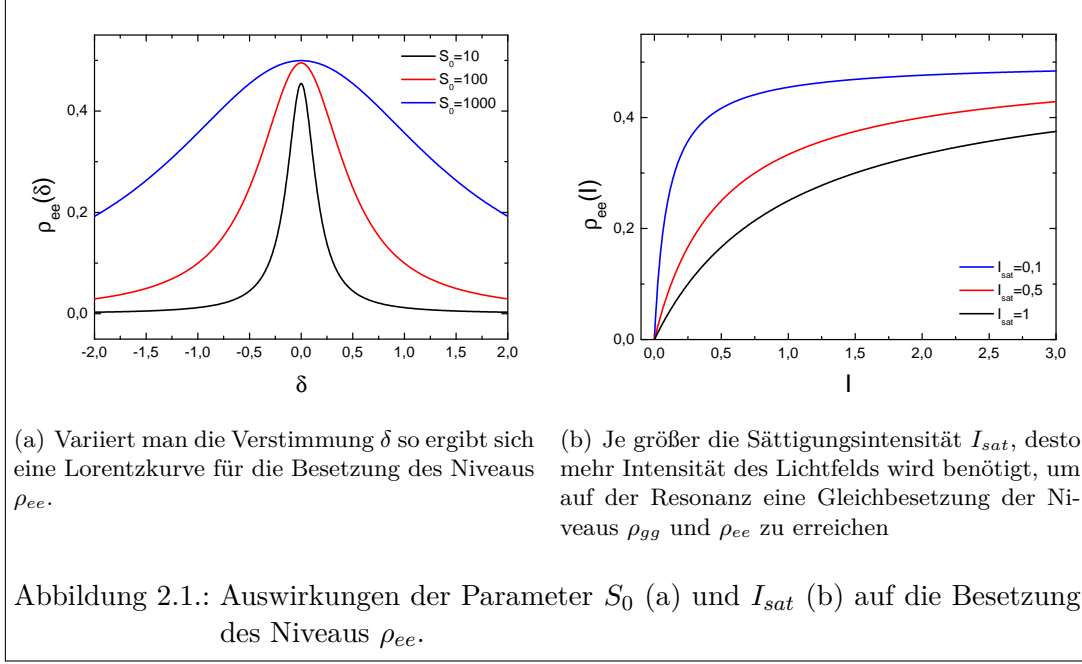
### 2.2.2. Isotopieverschiebung

Die Ursache der Isotopieverschiebung liegt in der unterschiedlichen Kernstruktur der verschiedenen Isotope eines Elements. Die Isotopieverschiebung führt zu einer Verschiebung der energetischen Lage der Resonanzübergänge. Grundsätzlich unterscheidet man bei der Isotopieverschiebung zwischen dem Masseneffekt und dem Volumeneffekt. Die Energieverschiebung, die durch den Masseneffekt hervorgerufen wird, hat ihre Ursache in der veränderten Schwerpunktsbewegung von Atomkern und Elektronen aufgrund der unterschiedlichen Kernmassen der Isotope. Die reduzierte Masse geht direkt in die Berechnung der kinetischen Energie der Elektronen ein. Der Hamiltonoperator für die kinetische Energie eines Isotops mit der Masse  $M_A$  ist gegeben durch

$$\mathcal{H}_{kin} = \frac{1}{2\mu_A} \left( \sum_{i=1}^N \mathcal{P}_i \right)^2 \quad \text{mit} \quad \mu_A = \frac{mM_A}{m + M_A}. \quad (2.27)$$

Die Isotopieverschiebung ergibt sich aus der Differenz der kinetischen Energien für verschiedene  $M_A$ . Das Quadrat der Summe der Impulsoperatoren lässt sich aufspalten

<sup>1</sup>Im experimentellen Teil der Arbeit wird ausschließlich von Sättigungsleistungen die Rede sein, da zur Bestimmung der Sättigungsintensität der Überlapp von Atom- und Laserstrahl bekannt sein muss. Diese Größe ist experimentell in der Vakuumapparatur nicht zugänglich. Die Sättigungsleistungen sind daher prinzipiell nur für den jeweils verwendeten Aufbau gültig.



in eine Summe der Quadrate des Ein-Elektron Impulsoperators und der Korrelation der Impulsoperatoren:

$$\mathcal{H}_{kin} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_{korr} = \frac{1}{2\mu_A} \sum_{i=1}^N \mathcal{P}_i^2 + \frac{1}{\mu_A} \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \mathcal{P}_i \mathcal{P}_j. \quad (2.28)$$

Der erste Teil bezeichnet den sogenannten normalen Masseneffekt und es ergibt sich für die Differenz der Resonanzfrequenzen der Isotope mit den Massen  $M_A$  und  $M_{A'}$ :

$$\delta\nu_{NMS}^{AA'} = K_{NMS} \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}} \quad \text{mit} \quad K_{NMS} = \nu \cdot m_e. \quad (2.29)$$

Der zweite Teil, der Korrelationsterm bekannt als spezifischer Masseneffekt, zeigt die gleiche Massenabhängigkeit wie der normale Masseneffekt:

$$\delta\nu_{SMS}^{AA'} = K_{SMS} \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}}. \quad (2.30)$$

Die Konstante  $K_{SMS}$ , die die Information über die Korrelation der Elektronenimpulse enthält, lässt sich jedoch nur für Systeme mit maximal drei Elektronen berechnen. Der Masseneffekt lässt sich demnach zusammenfassen zu:

$$\delta\nu_{MS}^{AA'} = (K_{NMS} + K_{SMS}) \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}}. \quad (2.31)$$

Neben dem Masseneffekt trägt der Volumeneffekt zur Verschiebung der Resonanzfrequenz zwischen verschiedenen Isotopen bei. Dieser resultiert aus den unterschiedlichen

Coulombpotentialen der einzelnen Isotope aufgrund verschiedener Ladungsradien. Die Coulombenergie, hervorgerufen durch die Ladungsverteilung des Kerns im Potential der Elektronen, ergibt sich zu

$$E_C = \int V_e(\mathbf{r})\rho_N(\mathbf{r})d\mathbf{r}. \quad (2.32)$$

Eine Reihenentwicklung dieser Energie führt unter der Annahme eines in erster Ordnung konstanten Potentials der Elektronen zu

$$E_C = -Ze^2 \left\langle \frac{1}{r_e} \right\rangle + \frac{2\pi}{3} Ze^2 |\Psi_e(0)|^2 \langle r_C^2 \rangle. \quad (2.33)$$

Der erste Summand ist die Energie von Teilchen in einem Coulombpotential, das durch eine punktförmige Ladung hervorgerufen wird. Er ist nicht abhängig von der Ladungsverteilung des Kerns und somit für alle Isotope gleich. Der zweite Summand enthält die Elektronendichte  $|\Psi_e(0)|^2$  am Kern und den mittleren quadratischen Ladungsradius  $\langle r_C^2 \rangle$  des Kerns. Die Isotopieverschiebung, die durch den Feldeffekt entsteht, ergibt sich als Differenz der Coulombenergien für die Isotope  $A$  und  $A'$ :

$$\delta\nu_{FS}^{AA'} = \frac{2\pi}{3h} Ze^2 \Delta |\Psi_e(0)|^2 \delta \langle r_C^2 \rangle^{AA'} = F \delta \langle r_C^2 \rangle^{AA'}. \quad (2.34)$$

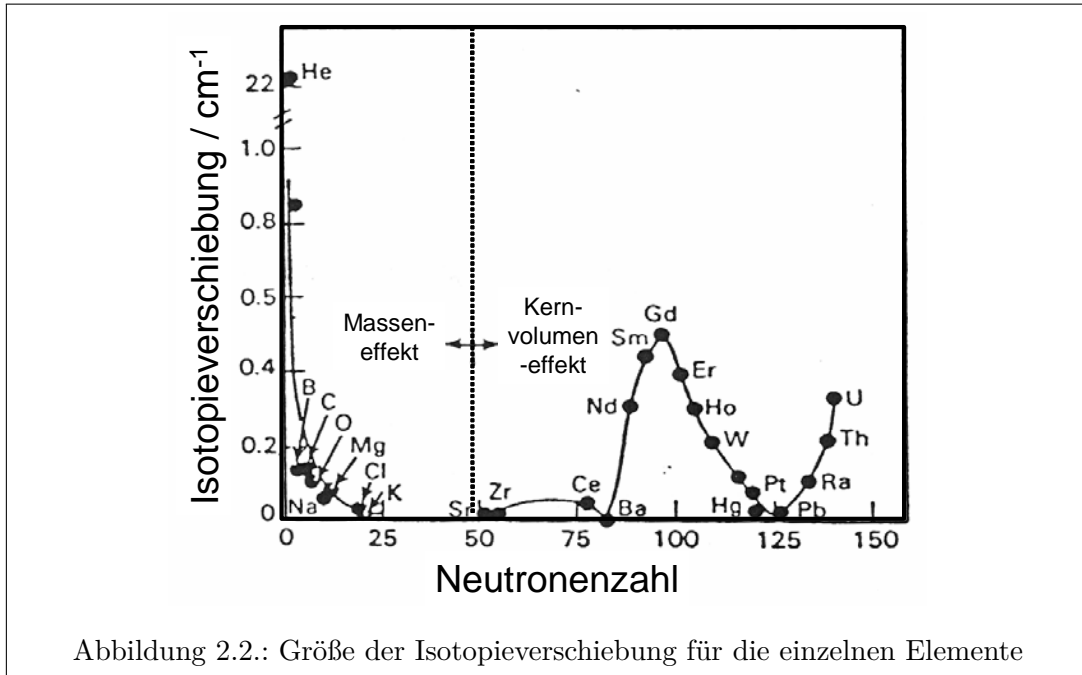
$\Delta |\Psi_e(0)|^2$  entspricht der Änderung der Ladungsdichte der Elektronen am Kern durch den Übergang von einem Energieniveau in ein anderes und ist konstant für verschiedene Isotope.  $\delta \langle r_C^2 \rangle^{AA'}$  ist die Differenz der mittleren quadratischen Ladungsradien der Isotope. Der mittlere quadratische Ladungsradius kann nur in wenigen Fällen theoretisch berechnet werden, er lässt sich über diesen Zusammenhang aber durch die Messung von Isotopieverschiebungen bestimmen. Die gesamte Isotopieverschiebung ist gegeben durch

$$\delta\nu_{IS}^{AA'} = (K_{NMS} + K_{SMS}) \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}} + F \delta \langle r_C^2 \rangle^{AA'}. \quad (2.35)$$

Für leichte Kerne ist der Masseneffekt der dominierende Beitrag zur Isotopieverschiebung, da die relative Änderung der reduzierten Masse durch das Hinzufügen oder Wegnehmen eines Neutrons groß ist. Bei schweren Kernen überwiegt der Feldeffekt, weil die Elektronendichte am Kernort aufgrund des stärkeren Coulombpotentials höher ist. Die Verschiebung der Energielagen durch den Masseneffekt ist entgegengesetzt zur Verschiebung durch den Feldeffekt. Abbildung 2.2 zeigt diesen Trend. Bei vielen Elementen kompensieren sich die Effekte und es ist nur eine sehr geringe Isotopieverschiebung zu beobachten.

### 2.2.3. Hyperfeinstruktur

Hat ein Atomkern eine ungerade Massenzahl oder eine ungerade Neutronen- und Protonenzahl, so besitzt er einen von Null verschiedenen Kernspin  $\mathbf{I}$ , welcher wiederum



ein magnetisches Dipolmoment des Kerns  $\mu_I$  hervorruft. Durch die Wechselwirkung mit dem magnetischen Feld der Elektronenhülle  $B_J$  entsteht eine zusätzliche Energie:

$$E_{IJ} = -\mu_I \cdot B_J. \quad (2.36)$$

Der Drehimpuls  $J$  ist nun keine Konstante der Bewegung mehr. Vielmehr koppelt er mit  $I$  zu dem Gesamtdrehimpuls

$$F = I + J. \quad (2.37)$$

Aus den Additionsregeln für Drehimpulse folgen die möglichen Werte für  $F$ :

$$|I - J| \leq F \leq |I + J|. \quad (2.38)$$

Behandelt man das Problem in Störungsrechnung erster Ordnung, so erhält man eine Energieaufspaltung der Niveaus gemäß

$$\Delta E_{\mu_i} = \frac{A}{2} [F(F + 1) - I(I + 1) - J(J + 1)] = \frac{A}{2} \cdot C. \quad (2.39)$$

$C$  ist der sogenannte Casimirkfaktor und  $A$  der Intervallfaktor. Er gibt die Größe der Aufspaltung an und ist gegeben durch

$$A = -\frac{\mu_I \mu_K \bar{B}_0}{IJ}. \quad (2.40)$$

Dabei ist  $\mu_K$  das Kernmagneton und  $\bar{B}_0$  das Magnetfeld der Hülle am Kernort. Dies lässt sich rechnerisch in den wenigsten Fällen mit hinreichender Genauigkeit bestimmen und so muss  $A$  meist durch spektroskopische Untersuchungen ermittelt werden.

Ist  $A$  bekannt, lässt sich der Abstand zwischen zwei Hyperfeinniveaus bestimmen. Er folgt aus der Intervallregel:

$$\Delta E_{F+1} - \Delta E_F = A \cdot (F + 1). \quad (2.41)$$

Bei den meisten Atomen ist die Elektronenhülle nicht kugelsymmetrisch und es existiert ein Feldgradient der Hülle, welcher bei Vorliegen einer Kerndeformation über ein Kernquadrupolmoment einen nicht vernachlässigbaren Beitrag zur HFS-Aufspaltung beisteuert. Der Energiebeitrag ist gegeben durch

$$\Delta E_Q = \frac{B}{4} \cdot \frac{\frac{3}{2}C(C+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{I(2I-1)J(2J-1)}. \quad (2.42)$$

Die Quadrupolkonstante  $B$  beinhaltet dabei die Projektion  $Q_s$  des intrinsischen Kernquadrupolmoments  $Q_0$  in Richtung des Kernspins und seine Wechselwirkung mit dem Feldgradienten der Hülle:

$$B = \left( \frac{\delta^2 V_z}{\delta z^2} \right)_0 e Q_s. \quad (2.43)$$

#### 2.2.4. Dopplerverbreiterung

Bei der Resonanzionisation wird das Laserlicht in der Regel aus einer Richtung eingestrahlt. Sobald die Atome eine Geschwindigkeitskomponente  $v_x$  parallel zum Laserstrahl haben, verschiebt sich ihre Resonanzfrequenz in Ruhe  $\nu_0$  aufgrund des Dopplereffekts gemäß:

$$\nu = \nu_0 \sqrt{\frac{1 \pm \beta}{1 \mp \beta}} \xrightarrow{v \ll c} \nu_0(1 \pm \beta) \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{v_x}{c} \quad (2.44)$$

Die Geschwindigkeitsverteilung der Komponente  $v_x$  ist durch die Maxwell-Boltzmann Verteilung gegeben:

$$\frac{dN(v_x)}{dv_x} = n_0 \cdot e^{-\frac{Mv_x^2}{2RT}}, \quad (2.45)$$

mit dem Molekulargewicht  $M$ , der Gaskonstante  $R$  und der absoluten Temperatur  $T$ . Für die Intensitätsverteilung in Abhängigkeit der Laserfrequenz erhält man durch die beiden vorangegangenen Gleichungen:

$$I(\nu) = I_0 \cdot e^{-\frac{Mc^2}{2RT} \frac{(\nu - \nu_0)^2}{\nu_0^2}} \quad (2.46)$$

Die volle Halbwertsbreite dieser Verteilung, bei Annahme einer streng monochromatischen Anregungslinie ist:

$$\Delta\nu = \frac{7,162 \cdot 10^{-7} \nu_0 \sqrt{T/M}}{1 - 7,162 \cdot 10^{-7} \sqrt{T/M}} \approx \nu_0 \cdot 7,162 \cdot 10^{-7} \sqrt{T/M} \sqrt{1/K}. \quad (2.47)$$

Die Evaporierung der Proben findet bei typischen Anwendungen der Resonanzionisation bei Temperaturen von etwa 2300 K statt. Die Dopplerverbreiterung der verwendeten resonanten Übergänge in den Elementen Gold, Technetium und Silizium

wurde für eine Temperatur von 2300 K berechnet. Für den ersten Anregungsschritt in Technetium bei 429,8 nm und für den ersten Anregungsschritt in Gold bei 267,7 nm ergibt sich jeweils eine Dopplerverbreiterung von etwa 2,7 GHz. Für das wesentlich leichtere Silizium ergibt sich für den Übergang bei 221,7 nm bereits eine Dopplerverbreiterung von fast 9 GHz. Dies hat zur Folge, dass für hochaufgelöste Spektroskopie die Dopplerverbreiterung unterdrückt werden muss.

### 2.2.5. Zwei-Photonen-Spektroskopie

Die erste theoretische Behandlung der Zwei-Photonen-Wechselwirkung mit Atomen findet sich in der Dissertation von Maria Göppert-Mayer aus dem Jahre 1931 [GM31]. Im Jahr 1961 wurde der erste experimentelle Nachweis einer Zwei-Photonen-Anregung erbracht [KG61]. Eine ausführliche Übersicht über die theoretischen und experimentellen Aspekte der dopplerfreien Mehr-Photonen-Spektroskopie wurde von Grynberg und Cagnac verfasst [GC77]. Die folgenden theoretischen Ausführungen orientieren sich an dieser Veröffentlichung. Prinzipiell ist eine Vielzahl von Mehr-Photonen-Prozessen möglich. So können z. B. auch drei Photonen unterschiedlicher Wellenlänge aus verschiedenen Richtungen absorbiert werden [GBBC76]. Diese Ausführungen beschränken sich aber auf den Fall, dass das Atom mit gegenläufigen, elektromagnetischen Wellen gleicher Frequenz wechselwirkt. Dieser Fall wird experimentell im Allgemeinen durch Reflexion der einlaufenden Welle realisiert.

Die Dopplerverbreiterung in einem Gas ergibt sich wie in Abschnitt 2.2.4 gezeigt aus der thermischen Geschwindigkeitsverteilung der Atome. Mit dem Wellenvektor  $\mathbf{k}$  des Lichts und der Geschwindigkeit  $\mathbf{v}$  eines Atoms ist die Dopplerverschiebung in erster Ordnung gegeben durch  $\delta\nu = \pm\mathbf{k}\mathbf{v}$  (Das Pluszeichen ergibt sich, wenn sich das Atom entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung des Lichts bewegt, das Minuszeichen entsprechend für eine Bewegung des Atoms in Ausbreitungsrichtung). Für den Fall eines Atoms, das sich im Feld zweier gegenläufiger, elektromagnetischer Wellen gleicher Frequenz<sup>2</sup> bewegt ergibt sich die Resonanzfrequenz für die Absorption beider Wellen:

$$E_e - E_g = \hbar(\omega_0 + \mathbf{k}\mathbf{v}) + \hbar(\omega_0 - \mathbf{k}\mathbf{v}) = 2\hbar\omega_0. \quad (2.48)$$

Es ist ersichtlich, dass bei dieser dopplerfreien Zwei-Photonen-Anregung die Resonanzfrequenz unabhängig von der Geschwindigkeit wird, d.h. der Laser mit einer Frequenz  $\omega_0 = \frac{E_e - E_g}{2\hbar}$  ist für alle Atome im Gas resonant. Somit ist eine solche Wechselwirkung frei von Dopplerverbreiterung erster Ordnung, und man erhält für streng monochromatisches Licht eine Lorentzkurve für die Anregung mit der natürlichen Linienbreite (abgesehen von einer möglichen Sättigungsverbreiterung) für die Anregung. Allgemein ist für die Absorption von  $n$  Photonen die Dopplerverschiebung  $\sum_{i=1}^n \mathbf{k}_i\mathbf{v}$ . Daher muss für eine dopplerfreie Spektroskopie gelten:

$$\sum_{i=1}^n \mathbf{k}_i = 0. \quad (2.49)$$

<sup>2</sup>Eigentlich enthält die Formel die Kreisfrequenz  $\omega = 2\pi\nu$ . Sie unterscheidet sich demnach nur um einen Faktor  $2\pi$  von der Frequenz. Im folgenden wird der Begriff Kreisfrequenz und Frequenz nicht weiter unterschieden.

Für die Absorption von zwei Photonen ergibt sich der hier betrachtete Spezialfall, dass die Ausbreitungsrichtung der beiden elektromagnetischen Wellen entgegengesetzt und die Frequenz gleich sein muss.

Die Linienform einer solchen Resonanz wurde 1970 von Vasilenko vorausgesagt [VCS70]. Neben der Möglichkeit mit jeweils einem Photon aus unterschiedlicher Richtung zu wechselwirken, besteht für das Atom auch die Möglichkeit mit zwei Photonen aus einer Richtung zu wechselwirken. Hierbei verdoppeln sich die Geschwindigkeitsanteile die zu einer Dopplerverbreiterung führen, es ist jedoch immer nur eine ausgewählte Geschwindigkeitsklasse in Resonanz für die Absorption von zwei Photonen aus einer Richtung. Daher ist die Intensität dieses Prozesses deutlich geringer als diejenige der Absorption von zwei Photonen aus unterschiedlichen Richtungen in Resonanz. Die Linienform ist daher gegeben durch die Summe einer Gaußkurve mit der Breite aus Formel 2.47 und einer Lorentzkurve mit der natürlichen Breite, die durch die Lebensdauer des Zustands gegeben ist. Abbildung 2.3 zeigt die theoretische Erwartung für eine Zwei-Photonen-Anregung mit streng monochromatischem Licht gleicher Polarisation und Intensität in beiden Strahlen. Ein quantitativer Vergleich der beiden

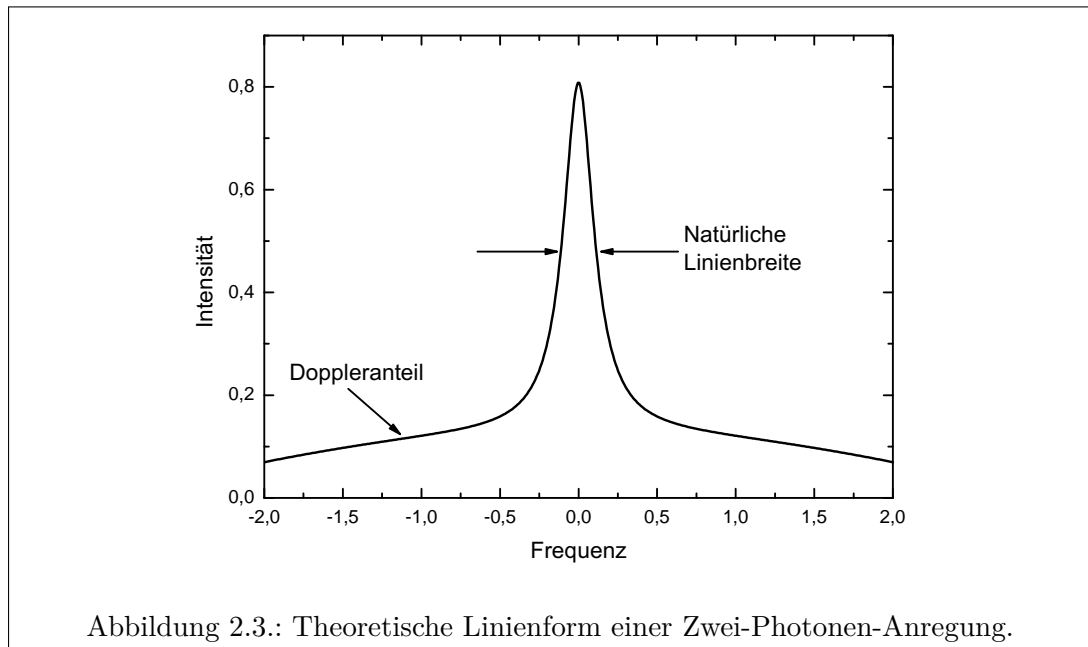


Abbildung 2.3.: Theoretische Linienform einer Zwei-Photonen-Anregung.

Anteile an der Resonanzkurve erfordert die detaillierte Betrachtung der beiden beteiligten Anregungsmöglichkeiten. Der Beitrag zur Gaußkurve entsteht durch die beiden unabhängigen Prozesse:

- Absorption zweier Photonen der einlaufenden Welle
- Absorption zweier Photonen der reflektierten Welle

Die Intensität ist die Summe der Einzelprozesse, und es ergibt sich die doppelte Intensität zu einer Anregung ohne reflektierte Welle. Zur Lorentzkurve tragen zwei nicht

unabhängige Prozesse bei:

- Zuerst Absorption eines Photons der einlaufenden Welle und anschließend Absorption eines Photons der reflektierten Welle
- Zuerst Absorption eines Photons der reflektierten Welle und anschließend Absorption eines Photons der einlaufenden Welle

Um die Intensität zu erhalten, muss man die Amplituden summieren. Die Intensität ist viermal so hoch wie bei einer Anregung in einer nicht reflektierten Welle. Das Verhältnis der Flächen von Lorentz- und Gaußkurve ist demnach zwei. Das Verhältnis der Höhen der beiden Kurven ist somit in der Größenordnung des Verhältnisses der Breiten der Kurven. Da die Dopplerbreite meist erheblich größer ist, erscheint die Gaußkurve, wenn überhaupt signifikant, als geringer Untergrund. Das Verhältnis der Flächen von Lorentz- und Gaußkurve kann für alle Polarisationen der beteiligten Wellen errechnet werden [GBBC76]; in bestimmten Fällen kann der Gaußsche Anteil aufgrund verletzter Auswahlregeln auch komplett verschwinden [CGB73]. Da der Gaußsche Anteil in den Messungen an Silizium aus Intensitätsgründen nicht beobachtet wurde<sup>3</sup>, wird hier nicht näher auf dessen Diskussion eingegangen.

Die Anregungswahrscheinlichkeit für die dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie kann in zweiter Ordnung Störungstheorie berechnet werden. Für einen atomaren Übergang vom Grundzustand  $|g\rangle$  in einen angeregten Zustand  $|e\rangle$  ist die Anregungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Verstimmung  $\delta\omega$  gegeben durch:

$$P_{ge}^{(2)}(\delta\omega) = \left| \sum_i \frac{\langle e | \mathcal{H}_1 | i \rangle \langle i | \mathcal{H}_2 | g \rangle + \langle e | \mathcal{H}_2 | i \rangle \langle i | \mathcal{H}_1 | g \rangle}{\Delta\omega_i} \right|^2 \frac{\Gamma_e}{4\delta\omega^2 + \frac{1}{4}\Gamma_e^2}, \quad (2.50)$$

mit  $\mathcal{H}_1$  und  $\mathcal{H}_2$  den Hamiltonoperatoren für die Wechselwirkung des Atoms mit einlaufender und reflektierter Welle, einem realen Zwischenzustand  $|i\rangle$ , der Verstimmung  $\Delta\omega_i$  zwischen dem Laser und dem Zwischenzustand für eine Ein-Photonen Anregung und der natürlichen Linienbreite  $\Gamma_e$  des angeregten Zustands. Für den betrachteten Fall zweier gegenläufiger Wellen gleicher Wellenlänge und Intensität vereinfacht sich der Ausdruck in Resonanz zu

$$P_{ge}^{(2)}(0) = \left| \sum_i \frac{\langle e | \mathcal{H} | i \rangle \langle i | \mathcal{H} | g \rangle}{\Delta\omega_i} \right|^2 \frac{16}{\Gamma_e^2}. \quad (2.51)$$

Die Berechnung der Anregungswahrscheinlichkeit erfordert die Summation über alle existierenden Zwischenzustände und die Kenntnis aller beteiligten Wellenfunktionen. Unter der vereinfachenden Annahme, dass nur ein Zwischenzustand  $|n\rangle$  maßgeblich zur Zwei-Photonenresonanz beiträgt, kann die Übergangswahrscheinlichkeit leicht berechnet werden. Diese Annahme ist gerechtfertigt, wenn man einen Zwischenzustand  $|n\rangle$  findet, für den  $\Delta\omega_n$  deutlich kleiner ist, als für alle übrigen Zwischenzustände. Mit der

<sup>3</sup>Das Verhältnis der gemessenen Linienbreite zur Abschätzung der Dopplerbreite aus 2.2.4 beträgt 1000.

Kenntnis der Übergangsstärken zwischen Grundzustand und Zwischenzustand sowie zwischen Zwischenzustand und angeregtem Zustand,  $f_{gn}$  und  $f_{ne}$ , findet man für die Übergangswahrscheinlichkeit in Resonanz

$$P_{ge}^{(2)}(0) = \frac{1}{\Gamma_e} \left( \frac{3r_0\lambda_{gn}\lambda_{ne}}{\pi\hbar c} \right)^2 I^2 \frac{\omega_{gn}\omega_{ne}}{\Delta\omega_n^2} f_{gn}f_{ne} \times |\langle J_e 1 m_e - q | J_n m_n \rangle \langle J_n 1 m_n - q | J_g m_g \rangle|^2. \quad (2.52)$$

$r_0$  ist der klassische Elektronenradius,  $I$  die Intensität des Laserstrahls am Wechselwirkungsort und  $\lambda_{gn}$ ,  $\lambda_{ge}$  sind die Wellenlängen für die resonanten Ein-Photonen Übergänge. Die Clebsch-Gordan Koeffizienten lassen sich mit der Kenntnis des Gesamtdrehimpulses  $J_i$  und der magnetischen Quantenzahl  $m_i$  der beteiligten Zustände ausrechnen. Die Variable  $q$  ist dabei abhängig von der verwendeten Polarisation der einzelnen Laserstrahlen. Sie kann folgende Werte annehmen:  $q = +1, 0, -1$  für die Polarisationen  $\sigma^+$ ,  $\pi$ ,  $\sigma^-$ . Aus der quadratischen Abhängigkeit von der Intensität wird die Notwendigkeit im fokussierten Laserstrahl zu arbeiten deutlich.

Um die Auswahlregeln der Zwei-Photonen-Anregung und die Intensitätsverhältnisse der Hyperfeinkomponenten zu ermitteln wird ein Tensorformalismus betrachtet [CGB73, GBBC76, GBGC77]. Die Wahrscheinlichkeit für einen Zwei-Photonen-Übergang in Resonanz lässt sich schreiben als

$$P_{ge}^{(2)}(0) = \frac{4n_1n_2\omega^2}{\epsilon_0^2\Gamma_e} \left| \langle e | \mathcal{Q}_{\epsilon_1\epsilon_2}^S | g \rangle \right|^2. \quad (2.53)$$

Hierbei sind  $n_1$  und  $n_2$  die Anzahl der Photonen in den Moden 1 und 2 und der symmetrische Zwei-Photonen-Operator ist gegeben durch

$$\mathcal{Q}_{\epsilon_1\epsilon_2}^S = \frac{1}{2} \left( \mathbf{d}\epsilon_1 \frac{1}{\hbar\omega - \mathcal{H}_0} \mathbf{d}\epsilon_2 + \mathbf{d}\epsilon_2 \frac{1}{\hbar\omega - \mathcal{H}_0} \mathbf{d}\epsilon_1 \right). \quad (2.54)$$

Der Dipoloperator  $\mathbf{d}$  wurde bereits in Abschnitt 2.1 eingeführt,  $\epsilon_1$  und  $\epsilon_2$  sind die Polarisationen der einfallenden und reflektierten Welle. Die Symmetrie des Operators  $\mathcal{Q}_{\epsilon_1\epsilon_2}^S$  ist nur für den betrachteten Fall zweier gegenläufiger Wellen gleicher Frequenz gegeben. Sein Rang ist kleiner oder gleich zwei: Er wird gebildet durch zweimalige Kopplung des Vektoroperators  $\mathbf{d}$  und einfache Kopplung des skalaren Operators  $(\hbar\omega - \mathcal{H}_0)$ . Dies ist eine Superposition aus einem skalaren und einem quadrupolaren Operator mit Rang 0 oder 2. Die Standardkomponenten des Zwei-Photonen-Operators ergeben sich aus denen des Dipoloperators. Über die Standardpolarisationen

$$\mathbf{e}_0 = \mathbf{e}_z \quad \text{sowie} \quad \mathbf{e}_{\pm 1} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (\mathbf{e}_x \pm i\mathbf{e}_y) \quad (2.55)$$

lässt sich der Dipoloperator schreiben als

$$\mathbf{d} = \sum_q (-1)^q d_{-q} \mathbf{e}_q. \quad (2.56)$$

Daraus ergibt sich

$$\mathcal{Q}_q^k = \sum_{q_1 q_2} \langle kq | 11q_1 q_2 \rangle d_{q_1} \frac{1}{\hbar\omega - \mathcal{H}_0} d_{q_2}. \quad (2.57)$$

Aus diesem Ausdruck ergibt sich  $\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$  mit Hilfe der Koeffizienten  $a_q^k(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2)$

$$\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = \sum_{k,q} a_q^k(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2) \mathcal{Q}_q^k. \quad (2.58)$$

Die verwendeten Koeffizienten erhält man bei Verwendung der Standardpolarisationen aus folgenden Clebsch-Gordan Koeffizienten

$$a_q^k(\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2) = \frac{1}{2} [\langle kq | 11q_1 q_2 \rangle + \langle kq | 11q_2 q_1 \rangle]. \quad (2.59)$$

Die Darstellung von  ${}^{ge}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$  vereinfacht sich, wenn man die Werte für  $J_g$  und  $J_e$  einfügt. Mit Hilfe der Projektionsoperatoren  $P(gJ_g)$  und  $P(eJ_e)$  in die Unterräume ( $gJ_g$ ) bzw. ( $eJ_e$ ) definiert man

$${}^{eg}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = P(eJ_e) \mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S P(gJ_g). \quad (2.60)$$

Es gilt:

- $J_g \neq J_e \rightarrow {}^{eg}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$  ist ein rein quadrupolarer Operator
- $J_g = J_e$  und  $J_g = 0$  oder  $1/2 \rightarrow {}^{ge}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$  ist ein rein skalarer Operator
- Für alle anderen Fälle besitzt  ${}^{ge}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$  skalare und quadrupolare Anteile

Für eine weitere Betrachtung wird folgende irreduzible Menge [Fan57, FR59, Omo65, Hap72] eingeführt:

$$T_q^k(eJ_e, gJ_g) = \sum_{m_e m_g} (-1)^{J_g - m_g} \langle J_e J_g m_e, -m_g | kq \rangle |eJ_e m_e\rangle \langle gJ_g m_g|. \quad (2.61)$$

Damit erhält man

$${}^{eg}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = \sum_{k=0,2} \sum_q \frac{\langle eJ_e || \mathcal{Q}^k || gJ_g \rangle}{\sqrt{2k+1}} a_q^k(\epsilon_1, \epsilon_2) T_q^k(eJ_e, gJ_g). \quad (2.62)$$

Die Auswahlregeln für einen Zwei-Photonen-Übergang ergeben sich aus dem Wigner-Eckhart Theorem angewendet auf  ${}^{ge}\mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ :

- $|J_g - J_e| \leq 2$
- $J_g = 0 \rightarrow J_e = 1$  und  $J_g = 1 \rightarrow J_e = 0$  verboten

Die Auswahlregeln für den Gesamtdrehimpuls  $F$  sind die gleichen wie für  $J$ , jedoch lassen sich für bestimmte Fälle noch konkretere Auswahlregeln finden [CGB73]. Für die untersuchten Übergänge in Silizium gilt  $\Delta L = 0$ ,  $L \neq 0$  und  $m_e - m_g = 0$  und man findet:

- $|\Delta F| \leq 2$
- $F_g = 0 \rightarrow F_e = 1$  verboten

Die mittlere Übergangswahrscheinlichkeit ohne magnetisches Feld und unpolarisierten Zustand erhält man aus Gleichung 2.52:

$$\bar{P}_{ge} = \frac{4n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} \frac{1}{2J_g + 1} \sum_{m_g, m_e} \left| \langle eJ_e m_e | e^g \mathcal{Q}_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S | gJ_g m_g \rangle \right|^2. \quad (2.63)$$

Mit Hilfe von Gleichung 2.62 wird daraus

$$\bar{P}_{ge} = \frac{4n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} \frac{1}{2J_g + 1} \sum_{k=0,2} \frac{\left| \langle eJ_e || \mathcal{Q}^k || gJ_g \rangle \right|^2}{2k + 1} \left( \sum_q \left| a_q^k(\epsilon_1, \epsilon_2) \right|^2 \right). \quad (2.64)$$

Um die Anregungswahrscheinlichkeit für die verschiedenen Hyperfeinzustände zu berechnen wird das neue Matrixelement  $\langle eJ_e I F_e || \mathcal{Q}^k || gJ_g I F_g \rangle$  eingeführt. Dies lässt sich mit Hilfe der Wigner 6J Symbole über  $\langle eJ_e || \mathcal{Q}^k || gJ_g \rangle$  ausdrücken:

$$\begin{aligned} \bar{P}_{ge}(F_g, F_e) &= \frac{4n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} (2F_e + 1) \sum_{k=0,2} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & k \\ F_g & F_e & I \end{matrix} \right\}^2 \\ &\times \frac{\left| \langle eJ_e || \mathcal{Q}^k || gJ_g \rangle \right|^2}{2k + 1} \left( \sum_q \left| a_q^k(\epsilon_1, \epsilon_2) \right|^2 \right). \end{aligned} \quad (2.65)$$

Für die Intensität der Übergänge muss nun noch die Besetzung der Hyperfeinzustände des Grundzustands berücksichtigt werden. Da die thermische Energie im Allgemeinen viel größer ist als die energetische Aufspaltung der Hyperfeinzustände kann angenommen werden, dass die Zustände gemäß ihrer Entartung besetzt sind. Somit ergibt sich für die Intensität der einzelnen Hyperfeinübergänge

$$I_{ge}(F_g, F_e) = \bar{P}_{ge}(F_g, F_e) \frac{2F_g + 1}{(2J_g + 1)(2I + 1)} n_0. \quad (2.66)$$

Es lassen sich nun wieder drei Fälle unterscheiden. Die relative Intensität für einen rein skalaren Übergang ist proportional zu

$$I_{ge}(F_g, F_e) \propto (2F_g + 1) \delta_{F_g F_e}. \quad (2.67)$$

Für einen rein quadrupolaren Übergang findet sich

$$I_{ge}(F_g, F_e) \propto (2F_g + 1)(2F_e + 1) \left\{ \begin{matrix} J_g & J_e & 2 \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \right\}^2. \quad (2.68)$$

Die relativen Intensitäten können nicht einfach angegeben werden, sofern  ${}^{eg}Q_{\epsilon_1\epsilon_2}^S$  einen skalaren und quadrupolaren Anteil besitzt, da das Verhältnis dieser beiden Anteile berechnet werden muss. Es gilt:

$$I_{ge}(F_g, F_e) \propto (2F_g + 1) \left[ R(g, e) \delta_{F_g F_e} + (2F_e + 1) \left\{ \begin{matrix} J_g & J_e & 2 \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \right\}^2 \right]. \quad (2.69)$$

$R(g, e)$  gibt dabei das Verhältnis der reduzierten Matrixelemente eines Tensors  $Q^0$  mit Rang 0 (für den skalaren Anteil) und eines Tensors  $Q^2$  mit Rang zwei (für den quadrupolaren Anteil) an:

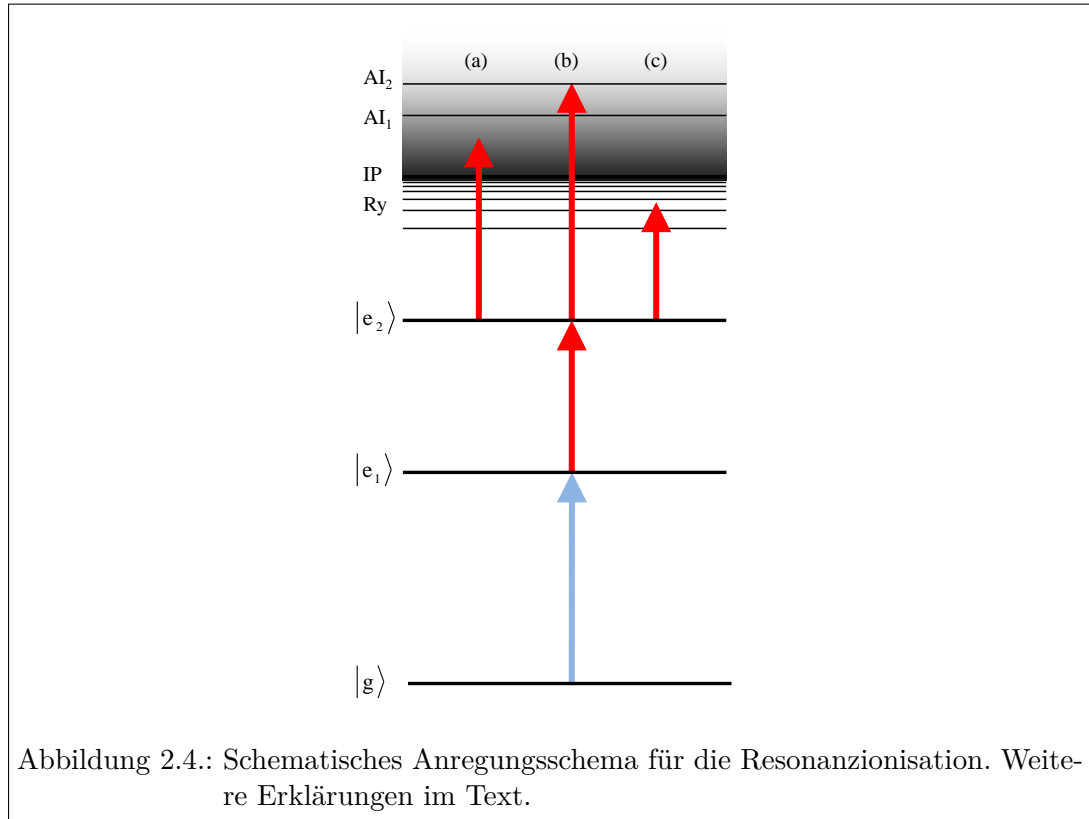
$$R(g, e) = \frac{|\langle e J_e || Q^0 || g J_g \rangle|^2}{\frac{1}{5} |\langle e J_e || Q^2 || g J_g \rangle|^2}. \quad (2.70)$$

Für den Fall, dass nur ein realer Zwischenzustand  $|r\rangle$  an der Zwei-Photonen-Resonanz beteiligt ist, existiert eine Abschätzung für dieses Verhältnis, die jedoch nur für wenige Fälle brauchbare Ergebnisse liefert:

$$R(g, e; J_r) \cong \left[ 3(2J_g + 1) \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & 2 \\ 1 & 1 & J_r \end{matrix} \right\}^2 \right]^{-1}. \quad (2.71)$$

### 2.2.6. Resonanzionisation

Die Resonanzionisation wurde bereits 1972 von Letokhov vorgeschlagen [AL72] und 1979 von Hurst, Payne, Kramer und Young in einem Übersichtsartikel ausführlich beschrieben [HPKY79]. Sie bezeichnet eine Möglichkeit der Ionisation, bei der diese aus einem angeregten atomaren Niveau heraus erfolgt, welches vorher über resonante Wechselwirkung bzw. Wechselwirkungen bevölkert wurde. Da die Frequenz, mit der die resonante Anregung stattfinden kann, stark elementabhängig und aufgrund der Isotopieverschiebung sogar isopenabhängig ist, kann durch geeignete Wahl der Laserfrequenz gezielt nur ein Element bzw., bei ausreichend geringer Linienbreite des Lasers und Reduktion des Dopplereffekts, sogar nur ein Isotop resonant angeregt werden. Somit ergibt sich eine hochselektive Anregungs- und Ionisationsmethode, wobei aber der finale Ionisationsmechanismus geeignet gewählt werden muss, damit nicht z. B. aus dem Grundzustand weitere Elemente ionisiert werden. Die Selektivität dieses Mechanismus kann weiter erhöht werden, wenn mehrere resonante Anregungsschritte verwendet werden, um ein energetisch hochliegendes Niveau zu bevölkern. Abbildung 2.4 zeigt ein typisches Ionisationsschema wie es bei der Resonanzionisation mit Titan:Saphir-Lasern verwendet wird. Aus dem Grundzustand wird ein erstes angeregtes atomares Niveau, üblicherweise über die Wechselwirkung mit Laserstrahlung aus dem ultravioletten oder blauen Spektralbereich, bevölkert. Die weitere resonante Anregung geschieht typisch mit Laserstrahlung aus dem nahinfraroten Spektralbereich. Das tatsächlich verwendete Anregungsschema hängt von den vorliegenden dipolerlaubten Übergängen des zu ionisierenden Elements ab. Für den finalen Ionisationsschritt mit Laserstrahlung gibt es drei verschiedene Möglichkeiten, welche in Abbildung 2.4 mit (a), (b) und (c) gekennzeichnet sind.



**(a) Nichtresonante Ionisation** Bei der nichtresonanten Ionisation wird Laserlicht eingestrahlt, dessen Energie größer ist als die Differenz der Energien des Ionisationspotentials und des Zustands  $|e_2\rangle$ . Die Anregung des Elektrons erfolgt somit nicht in einen diskreten Zustand, sondern in das Kontinuum. Die benötigte Photonenflussdichte  $n_{il}$ , um nach einfach resonanter Anregung die Hälfte aller angeregten Atome zu ionisieren, beträgt [Dem00]

$$n_{il} = \frac{A_k}{\sigma_{nr}}. \quad (2.72)$$

$\sigma_{nr}$  ist der Wirkungsquerschnitt für die nichtresonante Ionisation und  $A_k = 1/\tau$  die inverse mittlere Lebensdauer für den angeregten Zustand. Typische Werte dafür sind  $\sigma_{nr} \approx 10^{-17} \text{ cm}^2$  und  $A_k \approx 10^7 \text{ s}^{-1}$ . Um nun die Hälfte aller angeregten Atome zu ionisieren muss die Photonenflussdichte nach Glg. (2.72)  $n_{il} = 10^{24} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  betragen. Um diesen Wert zu erreichen müsste der für den Ionisationsschritt verwendete Laser bei typischen Betriebswerten (Pulsdauer 30 ns, Wellenlänge 780 nm, Fokusgröße in der Quellenregion  $1 \text{ mm}^2$ ) eine Pulsenergie von etwa 0,7 mJ, entsprechend 7 W mittlerer Leistung bei einer Repetitionsrate von 10 kHz, erbringen.

**(b) Autoionisation** Die Autoionisation kann als die Anregung von zwei verschiedenen Elektronen der Hülle verstanden werden. Mit dem dritten Laser, wird nicht das

Elektron im Zustand  $|e_2\rangle$  weiter angeregt, sondern ein weiteres Elektron. Die gesamte Anregungsenergie der Elektronen kann entweder unter Strahlungsemission abgegeben werden oder durch Korrelation der Gesamtwellenfunktion auf ein einzelnes Elektron übertragen werden, und es entsteht ein Elektron-Ion-Paar. Somit existieren für Mehrlektronenatome auch über dem Ionisationspotential diskrete Zustände, die resonant angeregt werden können. Bei der Autoionisation ist also auch der Ionisationsschritt resonant. Die Gesamtenergie der verwendeten Laser ist dabei größer als die Energie des Ionisationspotentials. Die Theorie zu autoionisierenden Resonanzen und die Beschreibung der resultierenden Linienform wurde von Fano entwickelt [Fan61], eine ausführliche Beschreibung der Mehrphotonen Anregung in einen autoionisierenden Zustand findet sich in [AJBF75]. Außer dieser unabhängigen Beteiligung zweier Elektronen muss es einen weiteren Mechanismus der Autoionisation geben. So existieren z.B. für Uran autoionisierende Zustände, bei denen die gesamte Anregungsenergie konstant bleibt, unabhängig davon, welchen Zwischenschritt  $|e_2\rangle$  man verwendet [Rae06].

**(c) Ionisation aus einem Rydbergzustand** Rydbergzustände sind Zustände im Atom, die sich über die Rydberg-Ritz-Formel beschreiben lassen, d.h. sie besitzen eine hohe Anregungsenergie. Atomkern und verbliebene Elektronenhülle können als Punktladung mit einer effektiven Ladung angenähert werden. In Abhängigkeit des Ionisationspotentials  $E_{IP}$  und der Hauptquantenzahl  $n$  ist die Energie eines Rydbergzustands  $E_n$  gegeben durch

$$E_n = E_{IP} - \frac{R_M}{(n - \delta(n))^2}. \quad (2.73)$$

Die Rydbergkonstante für die reduzierte Masse  $R_M$  ergibt sich aus der Rydbergkonstanten:

$$R_M = \frac{M}{M + m} \cdot R_\infty, \quad (2.74)$$

mit der nuklearen Masse  $M$  und der Elektronenmasse  $m$ . Der Quantendefekt  $\delta(n)$  kann durch die Ritz-Entwicklung in zweiter Ordnung von  $1/(n - A)$  abgeschätzt werden [RNJ+85, WS87, Har28]

$$\delta(n) = A + \frac{B}{(n - A)^2} \quad (2.75)$$

Über die Konstanten  $A$  und  $B$  wird die  $n$ -abhängige Abweichung von der Hauptquantenzahl ausgeglichen. Mit Hilfe der Formel 2.73 kann aus Messung der Energielagen der Rydbergniveaus das Ionisationspotential präzise bestimmt werden.

Es gibt keine genaue Kenntnis über den dominierenden Ionisationsmechanismus aus einem Rydbergzustand innerhalb eines heißen Ofens. Aufgrund der geringen Energiedifferenz zwischen Rydbergzustand und Ionisationspotential haben viele Photonen der thermischen Strahlung des Ofens genügend Energie, um das hochangeregte Atom zu ionisieren. Des Weiteren kann jeder der eingestrahlt Laser das Atom aus einem Rydbergzustand ionisieren und auch Stöße reichen für eine Ionisation bereits aus. Der bisher gängigen Annahme, dass die hochangeregten Atome aus dem fast feldfreien Ofen

in das Extraktionspotential diffundieren und dort durch das elektrische Feld ionisiert werden, widersprechen experimentelle Befunde. Analysen der Zeitstruktur zeigen, dass der Großteil der nachgewiesenen Ionen innerhalb des Volumens des Ofens erzeugt wird [KBB<sup>+</sup>07, GGS<sup>+</sup>08, LBB<sup>+</sup>ed]. Für ein genaueres Verständnis des Ionisationsprozesses aus einem Rydbergzustand sind weitere Untersuchungen notwendig.

## 2.3. Erzeugung von Laserstrahlung

Ein Laser besteht aus einer Energiequelle (Pumpe), einem resonanten optischen Verstärker und einem optischen Oszillator, der den Ausgang des optischen Verstärkers phasengleich an dessen Eingang zurückführt. Die Energiequelle kann auf vielfältige Art und Weise realisiert werden. Einige typische Möglichkeiten sind Gasentladungen, chemische Reaktionen, Lampen und andere Laser. Bei den Verstärkermedien unterscheidet man zwischen Festkörpern (Kristalle, Fasern, Gläser, Halbleiter), Flüssigkeiten (gelöste, organische Farbstoffe) und Gasen (atomar, ionisch, molekular). Der optische Oszillator wird in der Regel durch Spiegel realisiert, die einen optischen Resonator bilden.

### 2.3.1. Inversion

Die resonante Verstärkung von Photonen ist durch induzierte Emission möglich. In einem Zwei-Niveausystem, wie im Abschnitt 2.1 behandelt, lassen sich induzierte Emission und Absorption jedoch nicht entkoppeln und die Besetzung des angeregten Zustands in einem Atomensemble kann einen Wert von 0,5 nicht übersteigen. Ein Ensemble mit einem Zwei-Niveausystem kann daher kein optischer Verstärker sein. Das Ensemble ist nicht transparent für die zu verstärkende Lichtwelle, sondern absorbiert diese in gleicher Weise wie es diese verstärkt. Um eine Verstärkung zu erreichen, muss zu jedem Zeitpunkt an dem Verstärkung stattfinden soll, das obere Laserniveau  $|e\rangle$  stärker besetzt sein, als unter Zustand des Laserübergangs  $|g\rangle$ . Damit wird gewährleistet, dass weniger Photonen durch induzierte Absorption vernichtet werden, als durch induzierte Emission erzeugt. Dieser Zustand lässt sich in einem Zwei-Niveausystem nicht herstellen.

Prinzipiell ist es möglich in einem Drei-Niveausystem Inversion herzustellen, ein Vier-Niveausystem, wie in Abbildung 2.5 gezeigt, erlaubt zusätzlich die Entkopplung von Pumpübergang und Laserübergang. Betrachtet man die Besetzungszahlen  $N_0$ ,  $N_p$ ,  $N_e$  und  $N_g$  für den Fall eines schwachen Pumpprozesses (es gilt die Näherung  $N_0 \approx \text{konst.}$ ), folgt mit der Pumprate  $R$ , der Rate  $\gamma_e$  für den Zerfall aus dem Zustand  $|e\rangle$  in einen beliebigen Zustand, der Rate  $\gamma_{eg}$  für den Zerfall aus dem Zustand  $|e\rangle$  in den Zustand  $|g\rangle$  und der Zerfallsrate  $\gamma_0$  aus dem Zustand  $|g\rangle$  in den Grundzustand des Pumpprozesses die Dynamik (mit  $\gamma = \gamma_{eg} + \gamma_e$ ):

$$\begin{aligned}\dot{N}_e &= R - \gamma N_e \\ \dot{N}_g &= \gamma_{eg} N_e - \gamma_0 N_g.\end{aligned}\tag{2.76}$$

Für  $t \rightarrow \infty$  ergibt sich die Leerlaufinversion zu

$$\Delta N_L = N_e - N_g = \frac{R}{\gamma} - \frac{R\gamma_{eg}}{\gamma\gamma_0} = \frac{R}{\gamma} \left(1 - \frac{\gamma_{eg}}{\gamma_0}\right). \quad (2.77)$$

Um eine möglichst große Inversion zu erhalten muss Folgendes gelten:

- Die Pumprate  $R$  muss groß sein.
- Die Lebensdauer des Zustands  $|e\rangle$  muss groß sein, d.h.  $\gamma_e$  muss klein sein.
- Die Zerfallsrate  $\gamma_0$  aus dem Zustand  $|g\rangle$  muss groß sein, damit sich dieser schnell entleeren kann und keine induzierte Absorption von  $|g\rangle$  nach  $|e\rangle$  stattfinden kann.

Befindet sich Licht mit einer Energie gleich der Energiedifferenz der Zustände  $|e\rangle$  und  $|g\rangle$  im Verstärker, erfolgt zusätzlich induzierte Absorption und Emission zwischen diesen beiden Zuständen. Dazu wird die Übergangsrate für die induzierte Absorption/Emission  $N_{g/e}W_i$  eingeführt. Die Ratengleichung 2.76 verändert sich zu

$$\begin{aligned} \dot{N}_e &= R - \gamma N_e - N_e W_i + N_g W_i \\ \dot{N}_g &= \gamma_{eg} N_e - \gamma_0 N_g - N_g W_i + N_e W_i. \end{aligned} \quad (2.78)$$

Die stationäre Lösung ergibt sich zu

$$\Delta N = \frac{\Delta N_L}{1 + W_i \left(\frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma} - \frac{\gamma_{eg}}{\gamma_0\gamma}\right)} = \frac{\Delta N_L}{1 + W_i \tau_s}. \quad (2.79)$$

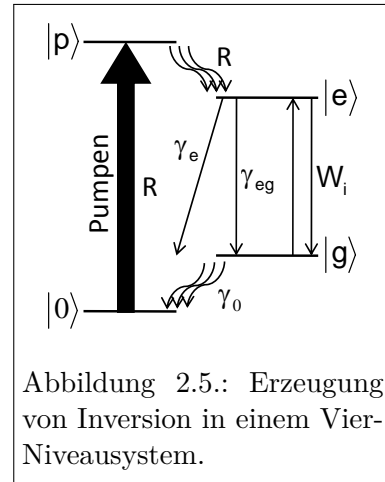
Hier wurde die Sättigungszeitkonstante  $\tau_s$  eingeführt.

Diese ist immer positiv und gibt an, bei welcher Übergangsrate  $W_i$  die Inversion auf die Hälfte der Leerlaufinversion sinkt. Mit Licht im Resonator gilt immer:  $N < N_L$ .

### 2.3.2. Entwicklung optischer Resonatoren

Für die Entwicklung optischer Resonatoren kann der sogenannte ABCD-Matrixformalismus verwendet werden. Er beschreibt die Transformation von Strahlparametern an Grenzflächen von optischen Elementen. In der geometrischen Optik ist ein Strahl entlang der optischen Achse  $z$  durch seinen Abstand  $d(z)$  zur optischen Achse und seinen Öffnungswinkel  $\theta(z)$  vollständig bestimmt. Die Transformation dieser Strahlparameter entlang der optischen Achse wird durch ein Matrixprodukt beschrieben:

$$\begin{pmatrix} d(z_2) \\ \theta(z_2) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} d(z_1) \\ \theta(z_1) \end{pmatrix}. \quad (2.80)$$



Die Matrix ist dabei das Produkt aller Transformationsmatrizen der optischen Komponenten zwischen den Punkte  $z_1$  und  $z_2$ . Die Matrizen für die freie Propagation der Weglänge  $l$  durch den Raum und die Brechung an einer dünnen Linse mit Brennweite  $f$  lauten wie folgt

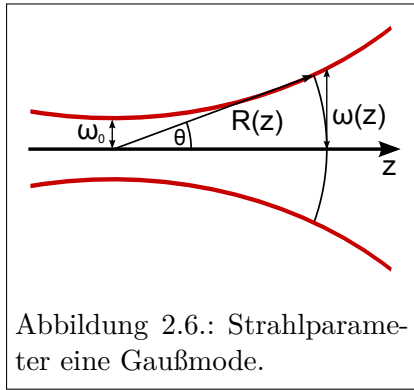
$$M_P = \begin{pmatrix} 1 & l \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad M_L = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix}. \quad (2.81)$$

Für die genaue Beschreibung von Laserstrahlen reicht die Beschreibung im Rahmen der geometrischen Optik nicht aus. Die korrekte Beschreibung erhält man bei der Verwendung von Gaußstrahlen. Die Amplitude des Gaußstrahls kann beispielsweise aus der paraxialen Helmholtzgleichung hergeleitet werden [ST08]. Sie ist gegeben durch

$$U(\mathbf{r}) = A_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp \left[ -\frac{x^2 + y^2}{\omega(z)^2} \right] \exp \left[ -ikz - ik \frac{x^2 + y^2}{2R(z)} + i\zeta(z) \right]. \quad (2.82)$$

Dabei wurden folgende Parameter eingeführt:

- die Strahltaile:  $\omega_0 = \sqrt{\frac{\lambda z_0}{\pi}}$
- der Strahlradius:  $\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}$
- der Krümmungsradius:  $R(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_0}{z}\right)^2\right)$
- die Gouy-Phase:  $\zeta(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right)$



Der Gaußsche Strahl kann bereits vollständig beschrieben werden durch die Definition des komplexen Strahlparameters  $q(z)$ :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi \omega(z)^2}. \quad (2.83)$$

Der ABCD-Matrixformalismus lässt sich auch auf Gaußsche Strahlen anwenden, lediglich die Rechenanweisung für die Transformation  $M \circ q$  ändert sich wie folgt

$$q(z_2) = \frac{Aq(z_1) + B}{Cq(z_1) + D}. \quad (2.84)$$

Um einen stabilen Resonator zu erhalten, muss sich die Mode nach einem Umlauf selbst reproduzieren. Die Matrix des Resonators  $M_R$  erhält man durch schrittweise Matrixmultiplikation der einzelnen Matrizen der Resonatorelemente. Für den Strahlparameter  $q$  ergibt sich folgendes Eigenwertproblem

$$q = M_R \circ q = \frac{Aq + B}{Cq + D}. \quad (2.85)$$

Löst man diese quadratische Gleichung erhält man als Bestimmungsgleichung

$$\frac{1}{q} = \frac{2C}{A - D \pm \sqrt{4BC + (A - D)^2}}. \quad (2.86)$$

Als physikalische Lösung muss sich eine echt komplexe Zahl mit negativem Imaginärteil ergeben. Für andere Lösungen ist die Strahltaile negativ oder unendlich. Diese Forderung bedeutet für die Determinante der Resonatormatrix

$$\left| \begin{array}{cc} A & B \\ C & D \end{array} \right|_R = 1 \Rightarrow (A + D)^2 < 4. \quad (2.87)$$

Für eine eindeutige Bestimmung von  $1/q$  muss in Gleichung 2.86 das positive Vorzeichen gewählt werden, damit man einen negativen Imaginärteil erhält. Um dieses Eigenwertproblem zu lösen, müssen die optischen Komponenten des Resonators so angepasst werden, dass physikalische Lösungen entstehen. Für die Entwicklung und Optimierung von Resonatoren kann man Computeralgebraprogramme verwenden, die einem gleichzeitig den Verlauf des Strahlradius entlang der Resonatorachse anzeigen. So können die für den Laserbetrieb wichtigen Parameter wie Strahlradius, Astigmatismus und Überlapp von Pumplasermode und Lasermode angepasst werden. Einige Beispiele für die Verwendung des Formalismus finden sich im Abschnitt 3.4.1.

## 2.4. Abstimmbare Festkörperlaser

Abstimmbare Laser bilden die Grundlage jeder spektroskopischen Untersuchung von Atomen, Ionen oder Molekülen. Die Eigenschaft, den Laser auf ganz bestimmte Wellenlängen einstellen zu können, ist auch Voraussetzung für die Nutzung des Lasers in einer Resonanzionisations-Laserionenquelle. Einen für die genannten Gebiete geeigneten Abstimmbereich bei gleichzeitig hoher Ausgangsleistung bieten nur Farbstofflaser und Festkörperlaser, welche einerseits in Lösungsmittel gelöste Farbstoffmoleküle und andererseits Kristalle, als Verstärkungsmedium verwenden. Insbesondere die einfache Handhabung und Wartungsfreiheit von Festkörperlasern gegenüber Farbstofflasern führten zu der Entscheidung die Entwicklung der Festkörperlaser, in den genannten Bereichen voranzutreiben. Die verwendeten Verstärkermedien zur Konstruktion der verwendeten Festkörperlaser sind Titan:Saphir und Chrom:Forsterit. Im Folgenden werden die theoretischen Grundlagen von Festkörperlasern erläutert.

### 2.4.1. Niveaustuktur eines Fremdions im Kristallgitter

Wird ein freies Ion in eine Kristallstruktur eingelagert, so ist die Umgebung der Elektronen nicht mehr ausschließlich durch das symmetrische Zentralpotential des Kerns bestimmt. Das Ion ist umgeben von weiteren Ionen in einer vom Kristall abhängigen Struktur. Im Allgemeinen wird durch das Ion ein im Kristall vorhandenes Kation ausgetauscht, welches dann meist von Sauerstoff Anionen umgeben ist. Der Austausch

wird als Dotierung bezeichnet. Die dotierten Ionen wechselwirken mit den vorhandenen Ionen im Kristall über das Coulombpotential, was zu einer Veränderung der Struktur der Zustände im dotierten Ion führt: die Zustände werden aufgespalten oder verbreitert. Eine theoretische Beschreibung dieses Vorgangs liefern die Kristallfeld- und die Ligandenfeldtheorie, welche Struktur, Farbe und Magnetismus der entsprechend dotierten Substanzen erklären können.

Der Hamiltonoperator eines solchen Systems lautet [Sen02]

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_I &= \left( -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_i \nabla_i^2 - \sum_i \frac{Ze^2}{r_i} \right) + \sum_{j>i} \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi_i \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} + \sum_i eV_C(r_i, \theta_i, \phi_i) \\ &= \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_{SB} + \mathcal{H}_K. \end{aligned} \quad (2.88)$$

Dabei stellt der erste Term den ungestörten Hamiltonoperator für die Wechselwirkung aller Elektronen mit dem Kern dar. Der zweite Term beschreibt die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Elektronen, der dritte die Spin-Bahn-Kopplung und der vierte schließlich die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Coulombpotential der Liganden. Nun kann man drei Fälle unterscheiden:

**1. Schwaches Kristallfeld** ( $\mathcal{H}_K < \mathcal{H}_{SB}, \mathcal{H}_e$ ): Der Einfluss des Kristallfelds auf die Coulombwechselwirkung der Elektronen mit dem Kern ist schwach und kann somit als Störung behandelt werden. Diese Störung verursacht eine Starkaufspaltung der Zustände des freien Ions. Dies ist der Fall z. B. für die Seltenen Erden, bei denen die optisch aktive 4f Schale abgeschirmt wird.

**2. Mittelstarkes Kristallfeld** ( $\mathcal{H}_{SB} < \mathcal{H}_K < \mathcal{H}_e$ ): Ist das Kristallfeld stärker als die Spin-Bahn-Kopplung, aber schwächer als die Wechselwirkung zwischen den Elektronen, wird zunächst das freie Ion mit dem Kristallfeld als Störung betrachtet, was zu einer Aufspaltung der Energieniveaus führt. Anschließend wird die Spin-Bahn-Kopplung als zusätzliche Störung betrachtet, die zu einer weiteren Aufspaltung führt. Dieser Fall tritt ein bei den Übergangsmetallen der vierten Periode.

**3. Starkes Kristallfeld** ( $\mathcal{H}_{SB}, \mathcal{H}_e < \mathcal{H}_K$ ): Bei diesem Fall spaltet die Störung durch das Kristallfeld die Einelektron-Energieniveaus auf. Anschließend wird die Wechselwirkung zwischen den Elektronen und schließlich die Spin-Bahn-Kopplung berücksichtigt. Dieser Fall tritt bei den Übergangsmetallen aus der fünften und sechsten Periode mit optisch aktiven Elektronen in einer nicht abgeschirmten 4d bzw. 5d Schale auf.

Da der zweite Fall schwierig zu berechnen ist, wird zur Beschreibung der Dotierung mit Übergangsmetallen aus der vierten Periode, zu denen auch Titan und Chrom zählen, der dritte Fall angewendet. Der Einfluss des Kristallfelds führt somit zu einer Aufspaltung der Energieniveaus des freien Ions bzw. einer Verbreiterung zu Bändern. Zusätzlich muss das Ion noch in einem schwingenden Gitter betrachtet werden. Der resultierende Hamiltonoperator ist dann gegeben durch

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_I + \mathcal{H}_G \quad \text{mit} \quad \mathcal{H}_G = V_G + \sum_i \frac{\mathcal{P}_i^2}{2M_i}, \quad (2.89)$$

mit der potentiellen Energie  $V_G$  und dem Impulsoperator  $\mathcal{P}_i^2$  des  $i$ -ten Ions.  $\mathcal{H}_I$  und  $\mathcal{H}_G$  entkoppeln nicht, da  $\mathcal{H}_I$  von den Ortskoordinaten der Elektronen und Ionen abhängt, welche im Gitter schwingen. Erst mit der Annahme, dass das Gitter den Positionen der Ionen adiabatisch folgt entkoppeln die Operatoren und die Eigenzustände des Gesamtsystems ergeben sich als Überlagerung der einzelnen Eigenzustände mit den Energieeigenwerten

$$E_{ges} = E_I + E_G. \tag{2.90}$$

Abbildung 2.7 zeigt schematisch eine solche Überlagerung aus den elektronischen Zuständen des Ions und den Schwingungsniveaus  $\nu$  des Gitters. Es sind die vom Ort abhängigen Wellenfunktionen eingezeichnet. Ein optischer Übergang findet nach dem Franck-Condon-Prinzip [FD26, Con26, Con28] vorzugsweise ohne Veränderung der Ortskoordinate  $r$  statt. Alle Zustände mit  $\nu > 0$  zerfallen strahlungslos durch Schwingungsrelaxation auf einer ps Zeitskala in den Zustand mit  $\nu^i = 0$ . Die optischen Lebensdauern für einen Übergang zwischen den elektronischen Niveaus sind mehrere Größenordnungen größer. Absorption findet also grundsätzlich aus dem elektronischen Grundzustand mit  $\nu'' = 0$  statt. Fluoreszenz demnach ausschließlich aus dem elektronisch angeregten Zustand mit  $\nu' = 0$ . Daraus folgt auch, dass die abge-

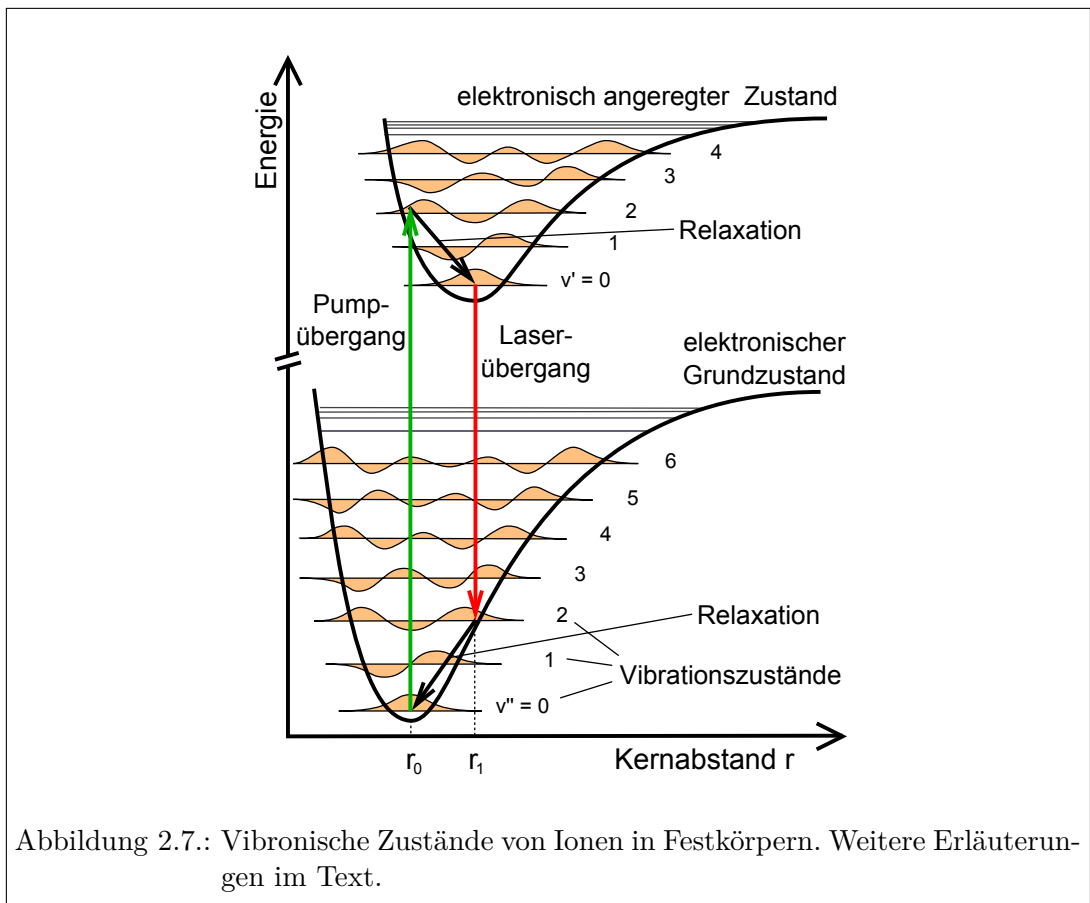
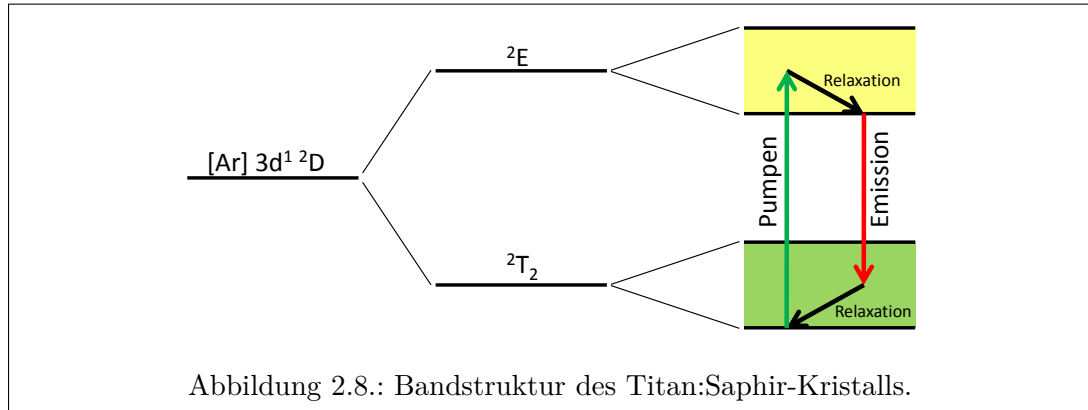


Abbildung 2.7.: Vibronische Zustände von Ionen in Festkörpern. Weitere Erläuterungen im Text.



strahlten Photonen immer eine geringere Energie besitzen, als die absorbierten, mit Ausnahme des Übergangs  $\nu'' = 0 \leftrightarrow \nu' = 0$ . Aus der Abbildung 2.7 ergibt sich auch das Vier-Niveausystem mit Pump- und Laserübergang. Aus dem elektronischen Grundzustand ( $\nu'' = 0$ ) kann prinzipiell jeder Zustand im elektronisch angeregten Zustand bevölkert werden. Am effektivsten gelingt dies im Beispiel mit dem Zustand  $\nu' = 2$ , weil sich die Ortskoordinate  $r$  nicht ändert. Danach findet ein schneller, strahlungsloser Übergang in den Zustand  $\nu' = 0$  statt, aus dem ein optischer Übergang in jeden Zustand des elektronischen Grundzustands erfolgen kann. Von dort erfolgt wiederum ein schneller, strahlungsloser Übergang in den Zustand  $\nu'' = 0$ . Für einen tieferen Einblick in die Kristallfeld- und Ligandenfeldtheorie sowie die optischen Eigenschaften von Lasermedien sei auf [Pow98, HI06, JKMR03, Sen02] verwiesen.

#### 2.4.2. Titan:Saphir-Kristall

Ein Titan:Saphir-Kristall ist ein mit Titan dotierter Korundkristall ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Dabei wird etwa jedes 300. bis 5000.  $\text{Al}^{3+}$ -Ion durch ein  $\text{Ti}^{3+}$ -Ion ersetzt [Fir00]. Die spektroskopischen Eigenschaften des Titan:Saphir-Kristalls werden ausschließlich durch ein freies 3d-Elektron des  $\text{Ti}^{3+}$ -Ions bestimmt. Die zehnfache Entartung des Grundzustands wird durch das Kristallfeld aufgehoben. Die Aufspaltung in einen sechsfach entarteten  ${}^2T_2$  Grundzustand und einen vierfach entarteten  ${}^2E$  angeregten Zustand wird dominierend vom kubischen Kristallfeld verursacht. Diese Niveaus liegen etwa  $19000 \text{ cm}^{-1}$  auseinander. Das trigonale Kristallfeld spaltet den Grundzustand wiederum in zwei Zustände auf, von denen der untere durch Spin-Bahn-Kopplung weiter in zwei Unterzustände aufgegliedert wird. Dies lässt sich jedoch nur bei Temperaturen von wenigen Kelvin oberhalb des absoluten Nullpunkts beobachten [Mou86]. Bei höheren Temperaturen, insbesondere bei Raumtemperatur, werden die Zustände  ${}^2T_2$  und  ${}^2E$  durch Phonon-Elektron-Wechselwirkung mit dem Kristallgitter zu Bändern verbreitert.

Der Pumpvorgang und der Zerfall des angeregten Zustands ist in Abbildung 2.8 schematisch dargestellt. Zunächst wird das Elektron vom Pumpstrahl bei 400 nm bis 600 nm in das obere Band angeregt. Dort relaxiert es strahlungslos innerhalb weniger

ps bis an den unteren Rand. Von hier aus findet nun der Übergang in das untere Niveau statt. Dieser kann durch spontane bzw. stimulierte Emission oder auch strahlungslos erfolgen und endet in einem beliebigen Zustand des unteren Bandes, welcher wiederum strahlungslos und schnell in den Grundzustand relaxiert.

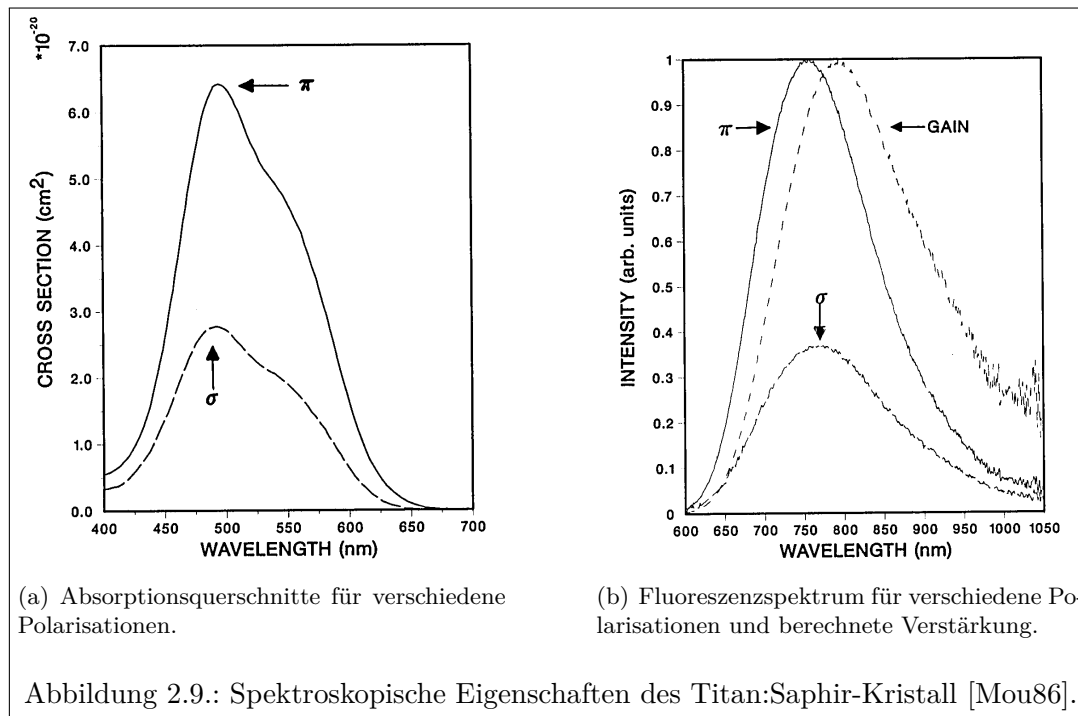


Abbildung 2.9.: Spektroskopische Eigenschaften des Titan:Saphir-Kristall [Mou86].

Abbildung 2.9 (a) zeigt das Absorptionsprofil des Titan:Saphir-Kristalls für p-polarisiertes Licht ( $\pi$ ) und s-polarisiertes Licht ( $\sigma$ ). Es besitzt ein Maximum bei etwa 490 nm und erlaubt es, Titan:Saphir-Laser mit leistungsstarken und kommerziell erhältlichen frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasern zu pumpen. Der Fluoreszenz- bzw. Verstärkungsbereich (Abbildung 2.9 (b)) reicht von etwa 650 nm bis 1050 nm mit einem Maximum um 800 nm. Die Lebensdauer des angeregten Niveaus beträgt bei Raumtemperatur 3,15  $\mu$ s [Mou86].

## 2.5. Frequenzselektion

Die in dieser Arbeit verwendeten Laserkristalle, Titan:Saphir und Chrom:Forsterit, besitzen ein sehr breites Emissionsband, das sich über mehrere 100 nm erstreckt. Daher ist auch das Verstärkungsprofil sehr breit. Würde man einen Festkörperlaser auf Basis dieser Kristalle frei laufen lassen, also in einem Resonator, der keinerlei Einschränkungen bezüglich der Wellenlänge macht, würden sie zentral um das Maximum des Verstärkungsprofil emittieren. So emittiert ein frei laufender, gepulster Chrom:Forsterit-Laser bei 1226 nm mit einer Linienbreite von 20 nm [DMW99]. Um die Wellenlänge, auf der der Laser emittiert, gezielt wählen zu können und insbesondere die Linienbreite des La-

sers zu verringern, ist der Einsatz von frequenzselektiven Elementen unumgänglich. In den folgenden Abschnitten werden verschiedene Möglichkeiten zur Frequenzselektion beschrieben.

### 2.5.1. Frequenzselektion mit Lyotfilter und Etalon

Zunächst schränkt das Verstärkungsmedium selbst den Frequenzbereich ein, in dem der Laser anschwingen kann. Eine weitere Vorauswahl des gewünschten Frequenzbereichs wird häufig durch die verwendeten Resonatorspiegel erreicht. Diese dielektrisch beschichteten Spiegel sind nur in einem bestimmten spektralen Bereich hochreflektierend. In anderen Bereichen transmittieren sie den größten Teil des einfallenden Lichts und die Verluste des Resonators übersteigen die Verstärkung. Ein Laserbetrieb ist in diesem Bereich nicht möglich. Zur weiteren Einschränkung des spektralen Bereichs des Lasers kann beispielsweise eine Kombination aus einem Lyotfilter und einem Etalon dienen.

**Das Lyotfilter** Ein Lyotfilter wird auch doppelbrechendes Filter genannt, da es auf dem Prinzip der wellenlängenabhängigen Verzögerung von Licht in einem doppelbrechenden Medium beruht. Steht die optische Achse eines doppelbrechenden Kristalls der Dicke  $d$  im Winkel von  $\phi = 45^\circ$  zur Polarisationsrichtung des Lichts wie in Abbildung 2.10 (a) gezeigt, so erfährt das Licht eine Verzögerung, die von der Wellenlänge abhängig ist:

$$\Delta = \alpha_o - \alpha_e = \frac{2\pi(n_o - n_e)d}{\lambda}. \quad (2.91)$$

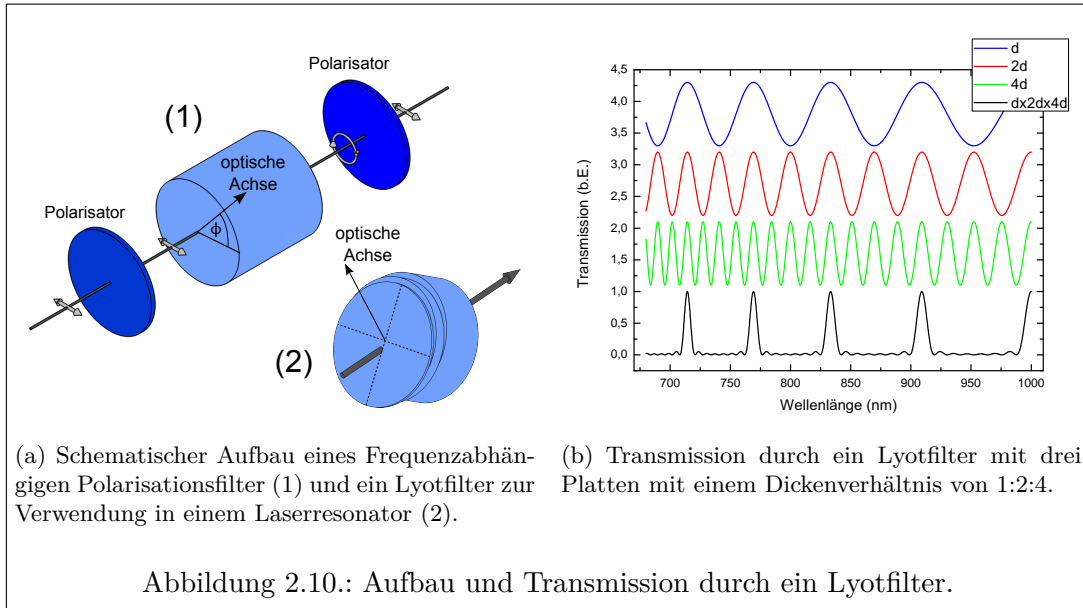
Mit dem Drehwinkel  $\alpha_{o,e}$  und dem Brechungsindex  $n_{o,e}$  für den ordentlichen und den außerordentlichen Strahl. Die Transmission durch den zweiten Polarisator wird gerade dann komplett ausgelöscht, wenn der doppelbrechende Kristall als  $\lambda/2$ -Platte wirkt. Dies ist aber nur für bestimmte Wellenlängen gegeben. Das Lyotfilter im Laser beruht auf dem gegenteiligen Effekt, dass der doppelbrechende Kristall auch nur für bestimmte Wellenlängen als  $\lambda$ -Platte wirkt und die Transmission nur für diese Wellenlängen nicht vermindert wird. Die Brewsterflächen des Lyotfilters selbst und weiterer Komponenten im Laserresonator wirken dabei als Polarisationsfilter. Die Transmission von in x-Richtung linear polarisiertem Licht nach einer Verzögerungsplatte, deren optische Achse mit dem Polarisationsvektor den Winkel  $\phi$  einschließt und einem Polarisator in x-Richtung ist gegeben durch

$$E^x = \exp\left(i\frac{\alpha_o + \alpha_e}{2}\right) \left[ \cos\left(\frac{\alpha_o - \alpha_e}{2}\right) + i \sin\left(\frac{\alpha_o - \alpha_e}{2}\right) \cos 2\phi \right] E_0^x. \quad (2.92)$$

Mit Gleichung 2.91 folgt daraus für die transmittierte Intensität

$$I = I_0^x \left( \cos^2\left(\frac{(n_o - n_e)\pi\nu d}{c}\right) + \sin^2\left(\frac{(n_o - n_e)\pi\nu d}{c}\right) \cos^2 2\phi \right). \quad (2.93)$$

Die transmittierte Wellenlänge kann durch drehen des Lyotfilters um die Achse senkrecht zur Eintrittsebene des Lichts eingestellt werden. Aus der Transmissionsfunktion



für drei Platten mit einem Dickenverhältnis von 1:2:4 und der kombinierten Transmissionsfunktion in Abbildung 2.10 (b) wird deutlich, dass die dünnste Platte des Filters den freien Spektralbereich, also den Abstand zwischen zwei Transmissionsmaxima bestimmt und die dickste Platte die Breite der gesamten Transmissionsfunktion.

**Das Etalon** Ein Etalon ist ein spezielles Fabry-Pérot Interferometer, das aus einer planparallelen Glasplatte besteht, die auf beiden Seiten teilweise verspiegelt ist. Die Abhängigkeit der Transmission von der Wellenlänge beruht auf der Interferenz der reflektierten Teilwellen mit einem Phasenunterschied  $\phi$ . Betrachtet man zunächst allgemein  $N$  benachbarte Teilwellen mit einem Phasenunterschied, ergibt sich die Feldstärke der Überlagerung aller Teilwellen zu

$$E_{ges} = E_0 e^{i(\omega t - kz)} \sum_{j=0}^{N-1} e^{-ij\phi} = E_0 e^{i(\omega t - kz)} \frac{1 - e^{-iN\phi}}{1 - e^{-i\phi}}. \quad (2.94)$$

Hier wurde das Ergebnis der geometrischen Reihe eingesetzt. Für die mittlere Intensität erhält man

$$\bar{I} = c\epsilon_0 E_{ges} E_{ges}^* = c\epsilon_0 \frac{E_0^2}{2} \cdot \frac{1 - \cos(N\phi)}{1 - \cos(\phi)} = c\epsilon_0 \frac{E_0^2}{2} \cdot \frac{\sin^2(N\phi/2)}{\sin^2(\phi/2)}. \quad (2.95)$$

Die Teilwellen bei der Interferenz am Etalon entstehen durch die teilweise Reflexion an der teilverspiegelten Oberfläche. Die Aufspaltung in verschiedene Teilwellen  $A_i$  und  $B_i$  ist in Abbildung 2.11 schematisch dargestellt. Eine Welle mit der Amplitude  $A_0$  trifft auf die Oberfläche der Platte und wird teilweise reflektiert. Die Amplitude der reflektierten Teilwelle hängt vom Reflexionsgrad  $R$  der Platte ab. Sie wird um

den Faktor  $\sqrt{R}$  geschwächt, während die gebrochene Teilwelle um den Faktor  $\sqrt{1-R}$  abgeschwächt wird. Somit ergeben sich folgende Amplituden für die reflektierten und transmittierten Wellen

$$\begin{aligned} |A_1| &= \sqrt{R}|A_0| \\ |A_m| &= (1-R)\sqrt{R} \cdot R^{(m-2)}|A_0| \quad m > 1 \\ |B_m| &= (1-R) \cdot R^{(m-1)}|A_0|. \end{aligned} \quad (2.96)$$

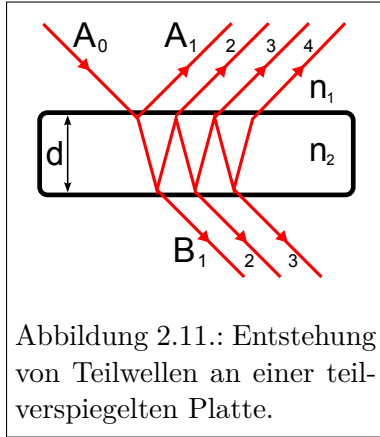


Abbildung 2.11.: Entstehung von Teilwellen an einer teilverspiegelten Platte.

Bei phasenrichtiger Addition der reflektierten bzw. transmittierten Teilwellen erhält man für die Intensitäten die Airy-Funktionen:

$$\begin{aligned} I_{refl} &= I_0 \frac{Q \sin^2(\phi/2)}{1 + Q \sin^2(\phi/2)} \\ I_{trans} &= I_0 \frac{1}{1 + Q \sin^2(\phi/2)} \end{aligned} \quad (2.97)$$

Hier wurde der Gütefaktor  $Q$  und die Phasenverschiebung  $\phi$  eingeführt. Es gilt für einen senkrechten Einfall des Lichts

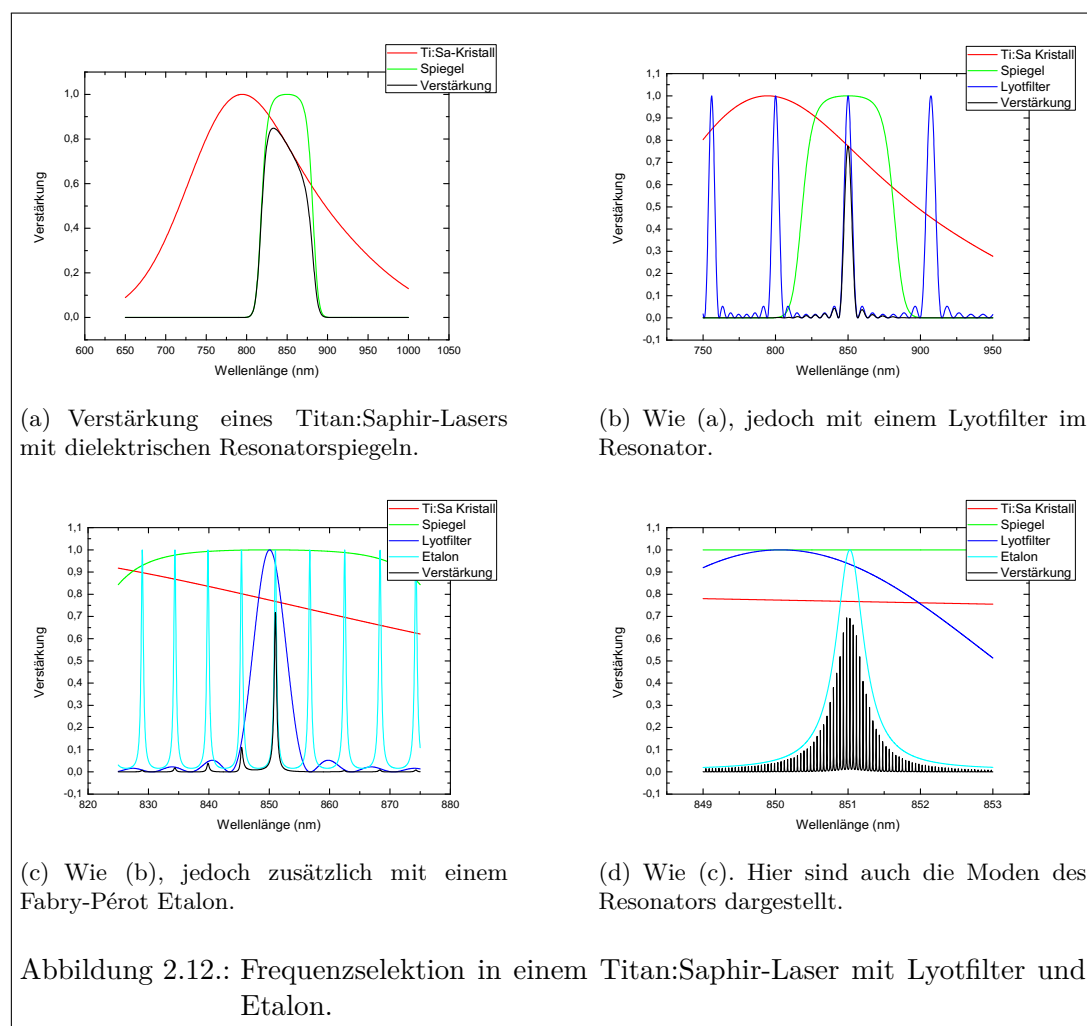
$$Q = \frac{4R}{(1-R)^2} \quad \text{und} \quad \phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2n_2 d. \quad (2.98)$$

Die Auswahl der zu transmittierenden Wellenlänge geschieht beim Etalon durch Verkippen des Etalons zur Strahlachse. Dadurch wird der geometrische Weg  $d$  verändert und die Phasenverschiebung  $\phi$  ist für andere Wellenlängen  $\lambda$  ein Vielfaches von  $\pi$ . Für Etalons bzw. Fabry-Pérot Interferometer definiert man zwei charakterisierende Größen, den freien Spektralbereich (FSR von englisch *Free Spectral Range*) und die Finesse  $F$ :

$$FSR = \frac{c}{2n_2 d} \quad F = \frac{FSR}{\Delta\nu_{FWHM}} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R}. \quad (2.99)$$

Der freie Spektralbereich gibt an, in welchem Frequenzabstand die Maxima der Transmissionsfunktion auftreten. Dieser skaliert invers mit der Dicke des Etalons. Bei der Wahl der Dicke ist darauf zu achten, dass jeweils nur ein Transmissionsmaximum im Transmissionsbereich des Lyotfilters liegt. Ansonsten kann der Laser auf zwei Wellenlängen im Abstand des FSR des Etalons gleichzeitig anschwingen. Die Linienbreite des Lasers wird durch die Finesse des Etalons bestimmt. Prinzipiell gilt: je höher die Finesse, desto geringer ist die Linienbreite. Jedoch kann man die Verspiegelung nicht beliebig hoch wählen, da die mögliche Verstimmung des Lasers durch die Verkippung des Etalons geringer wird. Dies lässt sich anschaulich dadurch erklären, dass bei größerem Kippwinkel des Etalons, auch der Anteil der Teilwellen größer wird, die nicht mehr interferieren. Bei höherer Verspiegelung wird ein größerer Anteil dieser nicht interferierenden Teilwellen aus dem Resonator reflektiert und die Verluste des Resonators übersteigen schnell die Verstärkung. Somit ist ein Laserbetrieb nicht mehr möglich.

Abbildung 2.12 stellt den Einfluss der verschiedenen optischen Komponenten eines Titan:Saphir-Lasers auf die resultierende Verstärkung dar. Die Wahl der Resonatorspiegel schränkt den Bereich, in dem Verstärkung stattfinden kann, bereits erheblich ein (Abb. 2.12 (a)). Durch den Einsatz des Lyotfilters wird die Selektion der Wellenlänge deutlich präziser. In der Praxis lassen sich mit einem Lyotfilter Linienbreiten von etwa 100 GHz bei gepulsten Titan:Saphir-Lasern erreichen (Abb. 2.12 (b)). Bei der Wahl der Kombination aus Lyotfilter und Resonatorspiegel muss darauf geachtet werden, dass der Abstand der Transmissionsmaxima des Lyotfilters größer ist, als die



Breite der Transmission der Resonatorspiegel. Andernfalls können zwei verschiedene Wellenlängen gleichzeitig anschwingen. Um Linienbreiten im Bereich von wenigen GHz zu erreichen muss zusätzlich das Fabry-Pérot Etalon in den Resonator eingebracht werden (Abb. 2.12 (c)). Das Etalon bestimmt letztendlich die Linienbreite des Lasers. Der Resonator hat zwar zusätzlich eine Struktur von Transmissionsmoden (Abb. 2.12 (d)), jedoch liegen diese aufgrund der Länge des Resonators so dicht beieinander, dass immer

mehrere Moden die Möglichkeit haben, verstärkt zu werden. Insbesondere sind diese Moden nicht stabil, sondern verschieben sich bereits bei der geringsten Änderung der optischen Resonatorlänge. Im gepulsten Betrieb schwingt pro Puls genau eine Mode im Verstärkungsbereich sowie eine ihre Nachbarmoden an (Dieses Phänomen beruht auf dem sogenannten *spatial hole burning* und wird in Abschnitt 2.7 näher erläutert). Die Häufigkeit, mit der die jeweiligen Resonatormoden anschwingen, wird durch die aus allen Komponenten resultierende Verstärkungskurve bestimmt.

### 2.5.2. Frequenzselektion mit einem Reflexionsgitter

Im Gegensatz zum gerade beschriebenen Verfahren der Frequenzselektion mit Lyotfilter und Etalon, benötigt man bei der Frequenzselektion mit Gitter, bei geeigneter Wahl der Gitterparameter, keine weiteren frequenzselektiven Elemente, um die gewünschte Linienbreite des Lasers zu erhalten. Ein Reflexionsgitter ist ein diffraktives Element und seine Wirkungsweise beruht auf der Interferenz der von den einzelnen Gitterfurchen reflektierten Teilwellen. Bei der Betrachtung der Interferenzfunktion ist zu beachten, dass sich diese aus der Interferenzfunktion für eine einzelne Gitterfurche (äquivalent zu einem Einzelspalt) und der Interferenzfunktion aller Furchen zusammensetzt. Die Interferenzfunktion eines Einzelspalts folgt aus folgender Überlegung: Die Feldstärke einer gebeugten Elementarwelle aus der Mitte des Einzelspalts der Breite  $b$  beträgt am Beobachtungsort  $S$

$$\mathbf{E}(S) = \mathbf{E}_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \mathbf{r}_{0P})}. \quad (2.100)$$

Eine Welle, im Abstand  $x$  ( $x$  klein gegenüber  $b$ ), hat gegenüber der eben betrachteten Welle einen Phasenunterschied  $x \sin \theta$  und ihre Feldstärke beträgt am Beobachtungsort

$$\mathbf{E}_{\Delta x}(S) = \mathbf{E}_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k}(\mathbf{r}_{0P} + x \sin \theta))}. \quad (2.101)$$

Um die resultierende Feldstärke aller Elementarwellen am Beobachtungsort zu erhalten, muss über die Spaltbreite integriert werden. Hier wurde nur die Achse senkrecht zum Spalt und zur Ausbreitungsrichtung des Lichts betrachtet:

$$E(S) \propto \int_{-b/2}^{b/2} e^{-ikx \sin \theta} dx = b \frac{\sin [(kb \sin \theta)/2]}{(kb \sin \theta)/2} = b \frac{\sin (\pi b/\lambda \sin \theta)}{\pi b/\lambda \sin \theta}. \quad (2.102)$$

Die Intensitätsverteilung des Einzelspalts ist demnach gegeben durch

$$I(S) \propto \left( \frac{\sin (\pi b/\lambda \sin \theta)}{\pi b/\lambda \sin \theta} \right)^2. \quad (2.103)$$

Bei einem Gitter leuchtet der Lichtstrahl  $N$  Gitterfurchen aus. An jeder Furche werden Teilwellen erzeugt. Die Teilwellen von verschiedenen Furchen besitzen bei einem Furchenabstand  $d$  den Phasenunterschied

$$\phi = (nd + x) \sin \theta \quad n = 1, 2, 3, \dots, N - 1. \quad (2.104)$$

Um die Feldstärke am Beobachtungspunkt zu erhalten, muss über die Furchenbreite integriert und über alle beleuchteten Furchen summiert werden:

$$\begin{aligned}
 E(S) &\propto \sum_{n=0}^{N-1} \left[ \int_{-b/2}^{b/2} e^{-ik(nd+x)\sin\theta} dx \right] \\
 &= \sum_{n=0}^{N-1} e^{-iknd\sin\theta} \cdot \int_{-b/2}^{b/2} e^{-ikx\sin\theta} dx = E_{\text{Interf}}(S) \cdot E_{\text{Spalt}}(S).
 \end{aligned} \tag{2.105}$$

Somit erhält man die Intensitätsverteilung für ein Reflexionsgitter

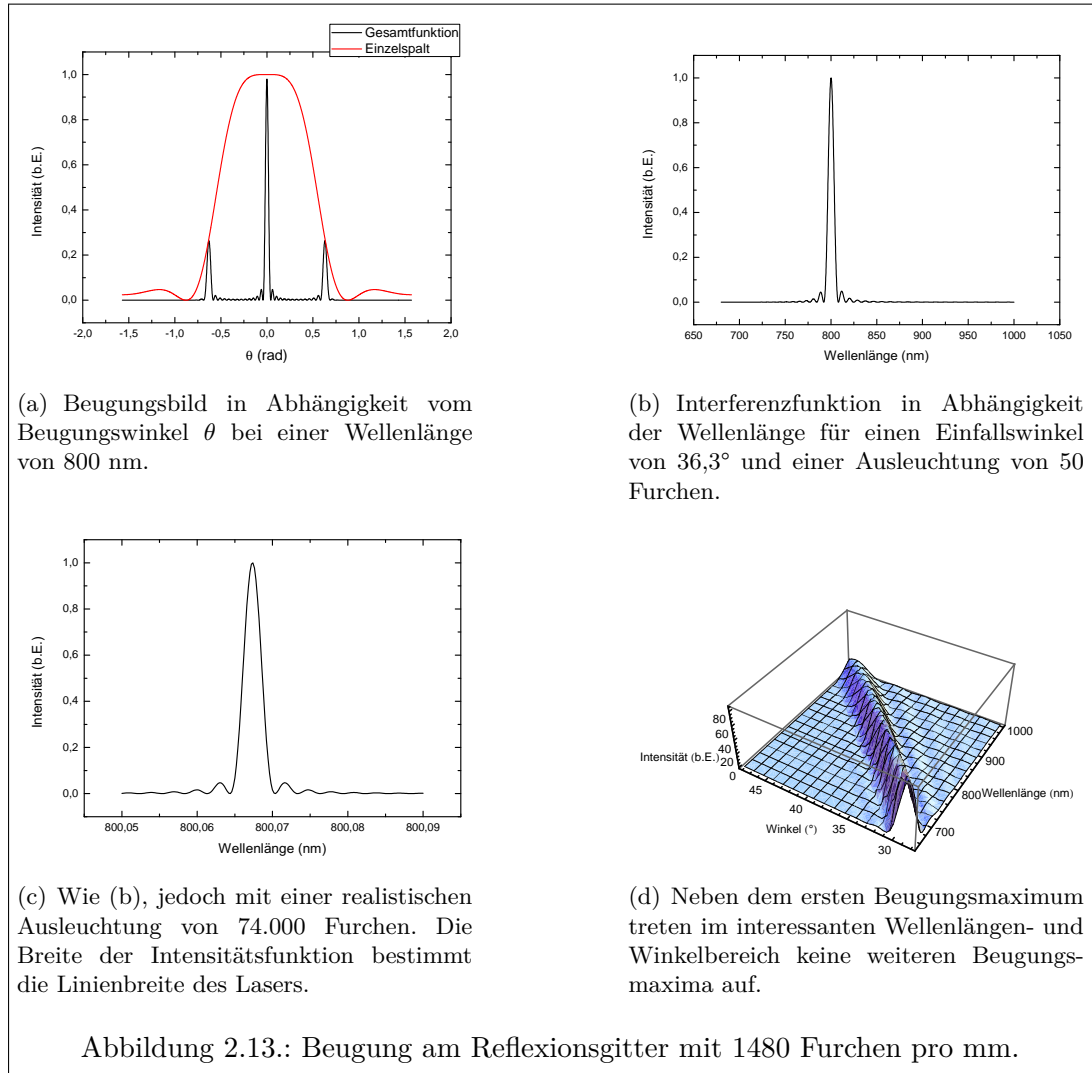
$$I(S) \propto \left( \frac{\sin(2\pi b/\lambda \cdot \sin\theta)}{2\pi b/\lambda \cdot \sin\theta} \right)^2 \cdot \left( \frac{\sin(2N\pi d/\lambda \cdot \sin\theta)}{\sin(2\pi d/\lambda \cdot \sin\theta)} \right)^2. \tag{2.106}$$

Bei der Verwendung eines Reflexionsgitters in einem Laserresonator in Littrow-Geometrie ist der Einfallswinkel ungleich  $0^\circ$  und die erste Beugungsordnung muss zurück in den Resonator reflektiert werden. Es folgt, dass der Einfallswinkel gleich dem Ausfallswinkel sein muss. Durch spezielle Formgebung der Gitterfurchen kann erreicht werden, dass für einen bestimmten Wellenlängenbereich der wesentliche Teil der Intensität in die erste Gitterordnung gebeugt wird (vgl. [LNM77]).

Abbildung 2.13 zeigt die Funktion 2.106 für verschiedene Variablen und Gitterparameter. Das Maximum nullter Ordnung ist nicht wellenlängenabhängig. Für den Betrieb des Lasers wird das Maximum erster Ordnung genutzt. Aus Abbildung 2.13 (b) wird deutlich, dass nur ein Reflexionsmaximum im Wellenlängenbereich des Titan:Saphir-Lasers für einen bestimmten Winkel liegt. Variiert man den Einfallswinkel und die Wellenlänge gleichzeitig, so erhält man die Reflexionsfunktion aus Abbildung 2.13 (d) und erkennt, dass über den gesamten Wellenlängenbereich des Titan:Saphir-Lasers jeweils nur ein zugehöriger Winkel existiert, der zu einem Maximum in der Reflexionsfunktion führt. Es sind also keine weiteren frequenzselektiven Elemente notwendig, um den Wellenlängenbereich einzuschränken. Um die Linienbreite des Lasers zu reduzieren, müssen möglichst viele Gitterfurchen ausgeleuchtet werden. Dies wird durch die Aufweitung der Lasermode in der Richtung senkrecht zu den Gitterfurchen erreicht. Mit Hilfe eines Strahlaufweiters, bestehend aus zwei anarmorphen Prismenpaaren, wird eine Aufweitung um einen Faktor neun in dieser Dimension erreicht. Die zugehörige Reflexionsfunktion mit einer Ausleuchtung von 74.000 Furchen ist in Abbildung 2.13 (c) dargestellt. Die Breite der Funktion ist deutlich reduziert und somit auch der Bereich, in dem der Laser anschwingen kann. Die Selektion der Laserwellenlänge ist nun reduziert auf die Wahl des Gitterwinkels. Ein kontinuierliches Verstimmen der Laserwellenlänge ist durch Variation des Gitterwinkels möglich.

## 2.6. Frequenzvervielfachung

In einem dielektrischen Medium induziert eine elektromagnetische Welle der Form  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t - kz)$  elektrische Dipolmomente  $\mathbf{p}(\mathbf{E})$  aufgrund von Ladungsverschie-



bungen, die durch das Feld der Welle hervorgerufen werden. Die dielektrische Polarisation ist die Vektorsumme der elektrischen Dipolmomente pro Volumeneinheit. Sie hängt von der Suszeptibilität  $n$ -ter Ordnung  $\chi^{(n)}$  des Mediums ab:

$$\mathbf{P}(\mathbf{E}) = \epsilon_0 \left( \chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 + \dots \right). \quad (2.107)$$

Die oszillierenden Dipolmomente sind wiederum Quellen elektromagnetischer Wellen. Der lineare Anteil erzeugt eine der anregenden Welle identische Welle. Betrachtet man den quadratischen Anteil bei zwei gleichzeitig einfallenden Wellen mit dem resultierenden elektrischen Feld

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 \cos(\omega_1 t - k_1 z) + \mathbf{E}_2 \cos(\omega_2 t - k_2 z), \quad (2.108)$$

erhält man unter Beachtung von  $\cos^2 x = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos 2x$

$$\begin{aligned} P^{(2)}(\omega) &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ E_1^2 \cos^2(\omega_1 t) + E_2^2 \cos^2(\omega_2 t) + 2E_1 E_2 \cos(\omega_1 t) \cos(\omega_2 t) \right] \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[ E_1^2 + E_2^2 + E_1^2 \cos(2\omega_1 t) + E_2^2 \cos(2\omega_2 t) \right. \\ &\quad \left. + 2E_1 E_2 \cos(\omega_1 + \omega_2)t + 2E_1 E_2 \cos(\omega_1 - \omega_2)t \right]. \end{aligned} \quad (2.109)$$

Man sieht, dass neben dem konstanten, frequenzunabhängigen Term  $E_1^2 + E_2^2$  auf mikroskopischer Ebene Wellen mit der Summen- und Differenzfrequenz und jeweils der doppelten Frequenz der Einzelwellen entstehen. Für die Intensitäten ergeben sich die folgenden Abhängigkeiten

$$I(2\omega) \propto I^2(\omega) \quad \text{und} \quad I(\omega_1 \pm \omega_2) \propto I(\omega_1) \cdot I(\omega_2). \quad (2.110)$$

Die Phasengeschwindigkeit der Wellen beträgt im Medium

$$v_P = \frac{\omega}{k} = \frac{c}{n(\omega)}. \quad (2.111)$$

Nur wenn die erzeugenden Wellen und die Oberwellen die gleiche Phasengeschwindigkeit besitzen, können sich die mikroskopischen Wellen zu einer makroskopischen Welle addieren. Dies wird durch die Impulserhaltung der beteiligten Photonen ausgedrückt:

$$\mathbf{k}(\omega_1 \pm \omega_2) = \mathbf{k}(\omega_1) \pm \mathbf{k}(\omega_2). \quad (2.112)$$

Für den Fall der kollinearen Ausbreitung der erzeugenden Wellen kann die Impulserhaltung wie folgt ausgedrückt werden

$$(\omega_1 \pm \omega_2) \cdot n(\omega_1 \pm \omega_2) = \omega_1 n(\omega_1) \pm \omega_2 n(\omega_2). \quad (2.113)$$

Für die optische Frequenzkonversion werden doppelbrechende, einachsige Kristalle verwendet. Diese besitzen entlang einer Achse (optische Achse) einen anderen Brechungsindex als entlang der beiden anderen Achsen. Bei der üblicherweise verwendeten Phasen Anpassung vom Typ I wird aus zwei Wellen gleicher Polarisation eine Welle mit dazu senkrechter Polarisation erzeugt. Im Falle der Frequenzverdopplung, also  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$  und einer Ausbreitung im nichtlinearen Kristall unter einem Winkel  $\theta$  zur optischen Achse folgt aus der Phasenbedingung

$$k(2\omega) = 2k(\omega) \Rightarrow n_a(2\omega) = n_o(\omega). \quad (2.114)$$

Abbildung 2.14 stellt diese Phasenbedingung anhand der schematischen Dispersionskurven für  $n_o(\lambda)$  und  $n_a(\lambda)$  graphisch dar. Bei gegebenem Winkel  $\theta$  ist diese Bedingung nur für eine Wellenlänge von 850 nm gegeben. Um die Phasenbedingung für andere Wellenlängen zu erfüllen, kann der Winkel  $\theta$  variiert werden. Diese Art der Phasen Anpassung wird kritische Phasen Anpassung genannt. Eine Phasen Anpassung für  $\theta = 90^\circ$  bei der die Phasenbedingung für verschiedene Wellenlängen über die Variation der Kristalltemperatur erreicht wird, wird nicht kritische Phasen Anpassung genannt. Damit wird die Gleichung  $n_a(2\omega, T) = n_o(\omega, T)$  erfüllt. Dies ist meist nur in sehr engen Wellenlängenbereichen möglich.

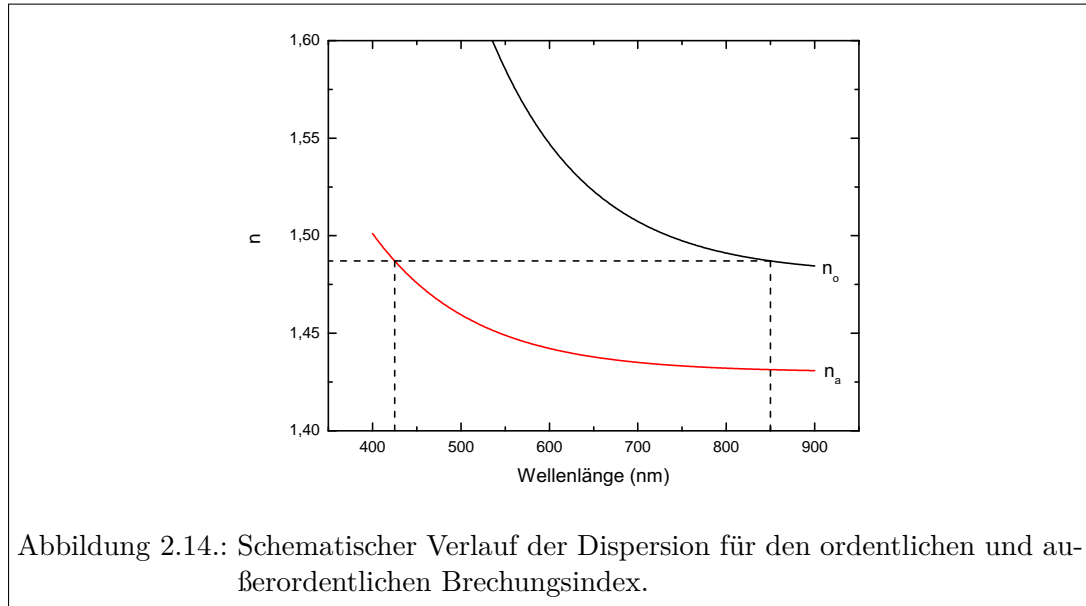


Abbildung 2.14.: Schematischer Verlauf der Dispersion für den ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex.

## 2.7. Injection Seeding

Das *Injection Seeding* beschreibt ein Verfahren, das es ermöglicht, die longitudinale Mode, auf der ein Laser (*Slavelaser*) anschwingt, mit Hilfe eines *Masterlasers* von außen vorzugeben. Das Verfahren eignet sich sowohl für kontinuierlich wie auch für gepulst betriebene *Slavelaser*. Das Ziel ist es meist, einen leistungsschwachen, aber spektral schmalen *Masterlaser* im Resonator des *Slavelasers* zu verstärken. Als *Slavelaser* werden daher leistungsstarke, aber spektral breite Laser verwendet, die im geseedeten Betrieb nur noch auf der Mode des *Slavelaser* anschwingen.

In der Literatur findet man geseedete Dauerstrich-Titan:Saphir-Laser [CHB02]. Dies hat den Vorteil, dass keine frequenzselektiven Elemente oder optische Diode im Resonator des Titan:Saphir-Laser benötigt werden. Es werden also keine Verluste von diesen Elementen verursacht. Weit häufiger werden gepulste Titan:Saphir-Laser geseedet [KYJ96, Ham92]. Der *Slavelaser* übernimmt dabei die spektrale Mode des *Masterlasers*. Die gebräuchliche englische Bezeichnung ist *mode locking*. Man erhält einen schmalbandigen Laser, der sich durch hohe Energien pro Puls auszeichnet. Alle bisher in der Literatur beschriebenen geseedeten Titan:Saphir-Laser werden jedoch lediglich mit Repetitionsraten im Bereich von  $\leq 100$  Hz betrieben. Eine weitere Möglichkeit des *Injection Seeding*s wurde von P. Schumann in seiner Diplomarbeit in der AG LARIS-SA verwirklicht [Sch01]. Hier diente als *Slavelaser* kein Titan:Saphir-Laser, sondern eine leistungsstarke, aber spektral breite Laserdiode. Diese wurde mit einem schmalbandigen Diodenlaser schwächerer Leistung geseedet.

Zum Start der Laseremission in einem freilaufenden Laser werden immer zuerst spontan emittierte Photonen benötigt, die die induzierte Emission hervorrufen können. Insbesondere bei gepulsten Lasern kann es bei jedem Laserpuls ein spontan emittiertes

Photon anderer Wellenlänge sein, das den Resonator und die frequenzselektiven Elemente passiert und das Anschwingen des Lasers verursacht. Genau dieses Problem löst das Verfahren des *Injection Seedings*. Indem ein weiterer Laser geeignet in Resonator und aktives Medium eingekoppelt wird, stehen jederzeit Photonen des *Masterlasers* zur Verfügung und führen das Anschwingen des Lasers herbei, sobald die Inversion aufgebaut wurde. Die longitudinale Mode, auf der der Laser anschwingt, wird dadurch von außen vorgegeben. Der *Slavelaser* übernimmt die spektralen Eigenschaften des *Masterlasers*.

Bei den Mainzer Titan:Saphir-Lasern existiert, neben dem beschriebenen Anschwingen verschiedener Moden in konsekutiven Pulsen, ein weiterer Beitrag zur spektralen Breite, das sogenannte *spatial hole burning* [FWVD95]. Dies ist ein Phänomen, das alle Laser mit Stehwellenresonator aufweisen. Betrachtet man einen einzelnen Laserpuls, so schwingt im Resonator die longitudinale Mode  $q$  an. Diese bildet eine stehende Welle im Resonator aus. Somit gibt es im Abstand  $\lambda_q/2$  Stellen, an denen das Feld der Lichtwelle immer Null ist. An diesen Stellen kann die Inversion im Kristall nicht abgerufen werden und bleibt vorerst erhalten. Die Nachbarmoden  $q-1$  und  $q+1$  besitzen in der Mitte des Resonators, an der Stelle des Kristalls, eine Phasenverschiebung von  $\lambda_q/4$  zur Mode  $q$ . Das Feld hat also genau dort sein Maximum, wo die Mode  $q$  kein Feld hat. Somit ist es möglich, dass diese Nachbarmoden die verbleibende Inversion abrufen und gleichzeitig anschwingen. Sie haben einen Unterschied in der Frequenz von

$$\Delta\nu \approx 330\text{MHz} \stackrel{!}{=} FSR = \frac{c}{2L}. \quad (2.115)$$

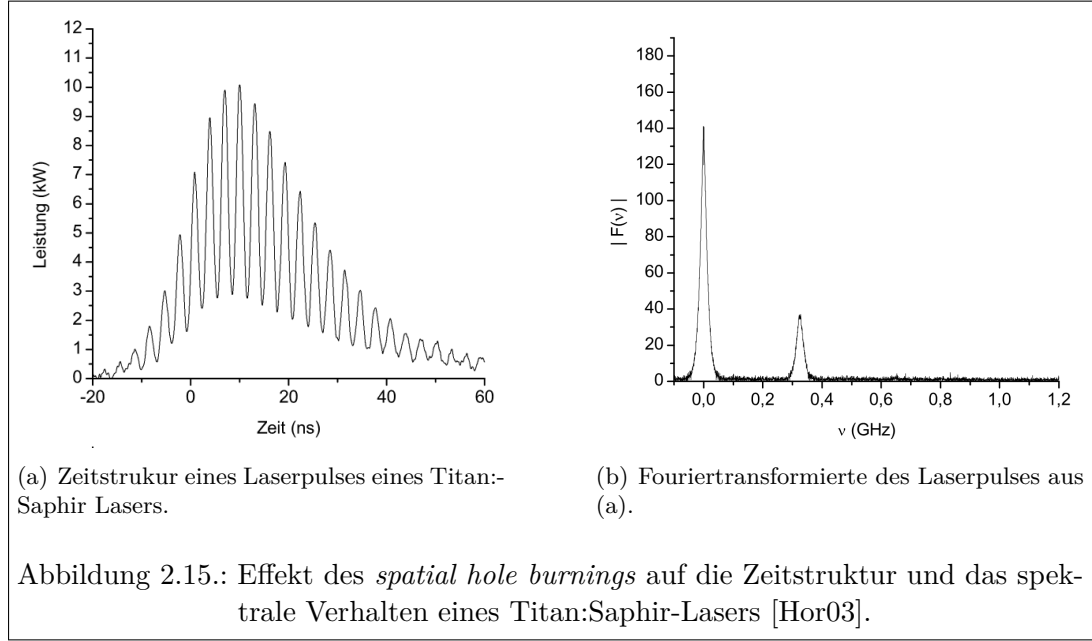
Diesen Vorgang kann man in Abbildung 2.15 erkennen, die der Dissertation von R. Horn entnommen wurde. In der Fouriertransformierten des Pulses in Abbildung 2.15 (b) erkennt man deutlich ein zweites Maximum bei  $\nu_0 + 330$  MHz was einer Resonatorlänge von etwa 450 mm entspricht. Dies zeigt, dass sich der Titan:Saphir-Laserpuls aus zwei Pulsen mit Frequenzen, die sich gerade um 330 MHz unterscheiden, zusammensetzt. Diese Nachbarmoden lassen sich auch mit Hilfe des *Injection Seedings* in einem Stehwellenresonator nicht unterdrücken. Aus diesem Grund besitzen die meisten geseedeten Laser einen Ringresonator [Ert05, KO05], in dem keine stehenden Wellen auftreten können.

### 2.7.1. Stabilisierung des Resonators

Für ein erfolgreiches Seeden des Titan:Saphir-Lasers ist es notwendig, dass der Resonator eine konstante Länge hat. Der optische Weg durch den Resonator muss zu jeder Zeit ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge des *Masterlasers* betragen:

$$d = n \cdot \lambda_{LD}. \quad (2.116)$$

Dies ist aus zweierlei Gründen unerlässlich: Hat der Resonator die geforderte Länge, das Licht der Laserdiode im Resonator optimal gespeichert. Zudem ist es dem Titan:Saphir-Laser nur dann möglich auf der Wellenlänge des *Masterlasers* anzuschwingen. Kontinuierliche Längenänderung des Resonators durch thermische Drifte oder mechanische Schwingungen erfordern eine aktive Stabilisierung.



Bei der Stabilisierung mit einem PID-Regler<sup>4</sup> [O'D09] benötigt man ein möglichst steiles, antisymmetrisches Signal, um auf den Symmetriepunkt zu regeln. Die erste Ableitung (und jede höhere ungerade) Ableitung der Airyfunktion des Resonators

$$A(l, R, \nu) = \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \cdot \sin^2\left(\frac{\pi l}{c/\nu}\right)} \quad (2.117)$$

ist um ihren Nullpunkt gerade eine derartige Funktion:

$$\frac{\partial A(l, R, \nu)}{\partial \nu} = -\frac{8 R \sin\left(\frac{\pi l \nu}{c}\right) \cos\left(\frac{\pi l \nu}{c}\right) \pi l}{\left(1 + \frac{4 R (\sin^2\left(\frac{\pi l \nu}{c}\right))}{(1-R)^2}\right)^2 (1-R)^2 c}. \quad (2.118)$$

Beide Funktionen,  $A$  und  $\frac{\partial A(l, R, \nu)}{\partial \nu}$ , sind in Abb. 2.16 für die Parameter des verwendeten Titan:Saphir-Laserresonators dargestellt. Das Fehlersignal gibt darüber Auskunft, ob der Resonator zu größerer oder zu kleinerer Länge hin verschoben ist, so dass sich aus dem Vorzeichen des Fehlersignals die Regelrichtung ergibt. Mit Hilfe eines sogenannten Lock-in-Verstärkers kann ein entsprechendes Fehlersignal über Ableitung erzeugt werden, welches dann von einem PID-Regler zur Regelung auf einen Sollwert  $l_0$  verwendet wird.

Die *Dither Lock* Stabilisierungstechnik [KYJ96] wird hier anhand der Stabilisierung der Laserfrequenz auf die Länge des Resonators erläutert. Um den Resonator später auf den Laser zu stabilisieren ist es nur nötig, den Ausgang des PID-Reglers nicht auf

<sup>4</sup>englisch: *proportional-integral-derivative controller*

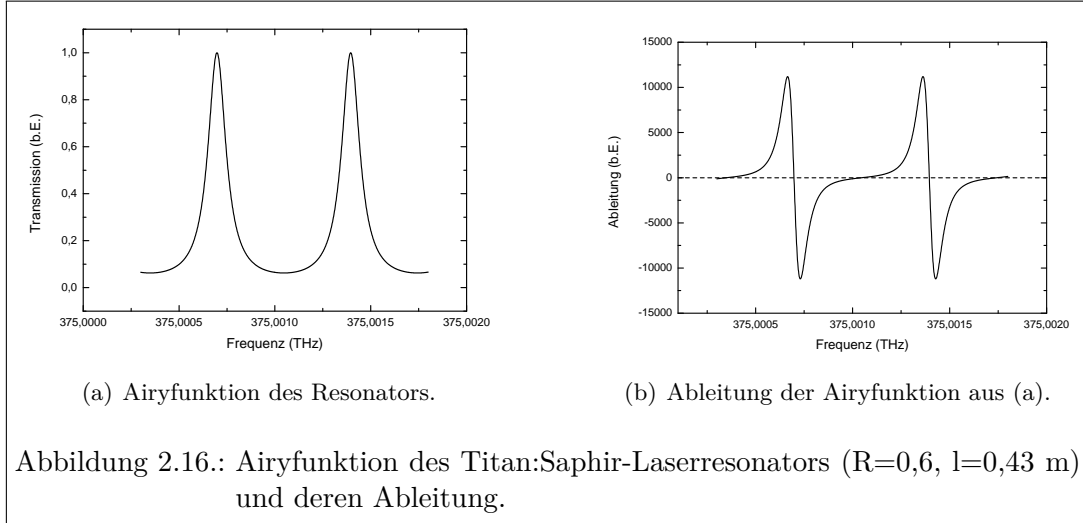


Abbildung 2.16.: Airyfunktion des Titan:Saphir-Laserresonators ( $R=0,6$ ,  $l=0,43$  m) und deren Ableitung.

das Stellglied für die Laserfrequenz, sondern auf das Stellglied für die Resonatorlänge zu geben.

Soll ein Laser auf die Resonatorlänge stabilisiert werden, so betrachtet man die Airyfunktion

$$\begin{aligned}
 A(l, R, \omega) &= \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \cdot \sin^2\left(\frac{\pi l}{2\pi c/\omega}\right)} \\
 &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} A^{(n)}(\Omega) \cdot (\omega - \Omega)^n.
 \end{aligned} \tag{2.119}$$

Die Laserfrequenz  $\nu$  ist hier als Kreisfrequenz  $\omega = 2\pi\nu$  dargestellt,  $R$  und  $l$  werden als fest angenommen. Die zweite Zeile von Gleichung 2.119 ist die Taylorentwicklung, in der  $A^{(n)}(\Omega)$  die  $n$ -te Ableitung nach  $\omega$  ist und  $\Omega$  die tatsächlich vom Laser emittierte Frequenz. Um den Laser auf die Zielfrequenz  $\omega_0$  einzustellen, moduliert man um die Frequenz  $\Omega$  sinusförmig. Es ergibt sich folgende Laserfrequenz

$$\omega(t) = \Omega + \delta \cdot \cos(\omega_M \cdot t). \tag{2.120}$$

Hier ist  $\delta$  der Modulationshub und  $\omega_M$  ist die Modulationsfrequenz. Setzt man  $\omega(t)$  in Gleichung 2.119 ein, so erhält man für die Spannung am Detektor (in diesem Fall eine Photodiode):

$$u(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} A^{(n)}(\Omega) \cdot \delta^n \cdot \cos^n(\omega_M \cdot t) \tag{2.121}$$

Dies lässt sich mit trigonometrischen Formeln umstellen. Anstatt der potenzierten Cosinusterme erhält man Cosinusterme mit höheren harmonischen Anteilen. Die Vor-

faktoren  $a_n, b_n, \dots$  lassen sich aus den trigonometrischen Beziehungen berechnen:

$$u(t) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n \delta^{2n} A^{2n}(\Omega) + \sum_{n=0}^{\infty} b_n \delta^{(2n+1)} A^{(2n+1)}(\omega) \cdot \cos(\omega_M \cdot t) + \sum_{n=0}^{\infty} c_n \delta^{(2n+2)} \times \\ A^{(2n+2)}(\Omega) \cos(2\omega_M \cdot t) + \sum_{n=0}^{\infty} d_n \delta^{(2n+3)} A^{(2n+3)}(\Omega) \cdot \cos(3\omega_M \cdot t) + \dots \quad (2.122)$$

Dies ist das vollständige Signalspektrum, das der Detektor aufnimmt. Mit einem Bandpassfilter, der auf die Modulationsfrequenz  $\omega_M$  eingestellt ist, wird nur der zweite Summand aus Gleichung 2.122 weiterverarbeitet. Der Lock-in-Verstärker multipliziert dieses Signal mit dem ursprünglichen Modulationssignal:

$$\hat{u}(t) = \cos(\omega_M \cdot t + \phi). \quad (2.123)$$

Dabei kann eine Verschiebung der beiden Signale in der Phase  $\phi$  auftreten. Daraus folgt

$$U(t) = \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} b_n \delta^{(2n+1)} A^{(2n+1)}(\omega) \cdot \cos(\phi) \\ + \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} b_n \delta^{(2n+1)} A^{(2n+1)}(\omega) \cdot \cos(2\omega_M \cdot t + \phi). \quad (2.124)$$

Der zweite Summand bei der Frequenz  $2\omega_M$  wird mit Hilfe einer Bandsperre unterdrückt. Der Rest stellt das erwünschte Fehlersignal dar, welches an den PID-Regler geleitet wird. Die Koeffizienten  $b_n$  lassen sich berechnen, so dass folgt

$$F(\Omega) = \left[ \frac{\delta}{2} A'(\Omega) + \frac{\delta^3}{16} A'''(\Omega) + \frac{\delta^5}{384} A^{(5)}(\Omega) + \frac{\delta^7}{18432} A^{(7)}(\Omega) + \dots \right] \cos(\phi) \\ \approx \frac{\delta}{2} A'(\Omega) \cdot \cos(\phi). \quad (2.125)$$

Die letzte Näherung kann nur gemacht werden, solange der Modulationshub  $\delta$  kleiner ist als die Breite der Airyfunktion. Dies ist bei dem verwendeten Modulationshub keine Einschränkung. Aus Gleichung 2.125 wird auch deutlich, dass die Phasenverschiebung  $\phi$  die Größe des Fehlersignals beeinflusst. Zudem kann der Cosinusterm das Vorzeichen des Fehlersignals verändern. Daher hat jeder Lock-in-Verstärker zumindest einen Phasenschieber, der den Cosinusterm zu eins machen kann. Die zweite Zeile aus Gleichung 2.125 ist die gesuchte Ableitung der Airyfunktion, die zur Stabilisierung nötig ist.

---

## Kapitel 3.

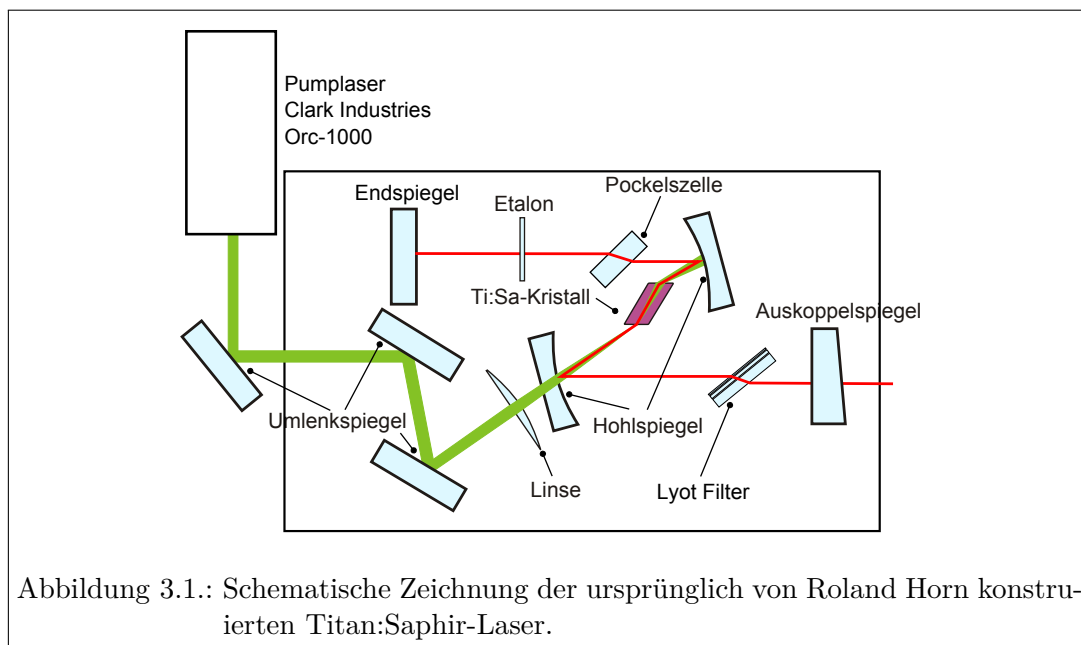
# Laserentwicklung und Messsystem

---

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das bei der AG LARISSA vorhandene Titan:Saphir-Lasersystem optimiert und durch neu entwickelte Laser ergänzt. Ziel dieser Entwicklungsarbeit war es, das Lasersystem in den Bereichen der Durchstimmbarkeit, der spektralen Breite, der Leistung und des zur Verfügung stehenden Wellenlängenbereichs zu verbessern. In diesem Kapitel werden die neu- und weiterentwickelten Laser beschrieben und ihre Spezifikationen erläutert.

### 3.1. Vorhandenes Titan:Saphir-Lasersystem

Die in diesem Kapitel beschriebenen Entwicklungen auf dem Gebiet der gepulsten Festkörperlaser bauen auf der Konstruktion der Titan:Spahir-Laser von Roland Horn [Hor03] auf, wie sie in Abbildung 3.1 als schematische Zeichnung dargestellt sind. Der Aufbau besteht aus einem z-förmigen Resonator mit einer Gesamtlänge von 460



mm (geometrische Weglänge) entsprechend einer Umlauflänge von 920 mm. Der Einfallswinkel an den Hohlspiegeln beträgt  $17,5^\circ$ . Für einen optimalen Überlapp von Pumplasermode und Resonatormode wurde der Titan:Saphir-Kristall nicht mittig zwischen den Hohlspiegeln platziert. Die Abstände zwischen den Hohlspiegeln und dem Titan:Saphir-Kristall betragen 20 mm und 50 mm, die Kristalllänge beträgt 20 mm und die beiden Arme sind 170 mm bzw. 190 mm lang. Für die Frequenzselektion und die Reduktion der Linienbreite wurde in einem Arm ein Lyotfilter integriert und in dem zweiten Arm ein Etalon. In dem zweiten Arm ist zusätzlich eine Pockelszelle als schneller Güteschalter für den Resonator eingebaut<sup>1</sup>. Damit ist die zeitliche Synchronisation mehrerer Laser möglich. Der Laser wird mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG Laser des Typs Orc-1000 von Clark Industries gepumpt. Das Pumplicht wird dazu über zwei Umlenkspiegel, eine Linse und den Hohlspiegel des Resonators in den Titan:Saphir-Kristall eingestrahlt. Mit diesem System werden folgende Spezifikationen erreicht:

- Ausgangsleistung: 1,5 W - 2,5 W
- Pulslänge: 35 ns
- Repetitionsrate: 7 kHz<sup>2</sup>
- Linienbreite: 3 GHz
- Strahlqualität:  $M^2 < 1,3$
- Wellenlängenbereich: 690 nm - 950 nm
- Durchtimmbereich: 300 GHz

Zur Erzeugung höherer Harmonischer wurde im Rahmen der Staatsexamensarbeit von Simone Sirotzki [Sir04] eine Frequenzvervielfachungseinheit entwickelt. Sie ermöglicht die Frequenzverdopplung, -verdreifachung und -vervierfachung des fundamentalen Laserlichts der Titan:Saphir-Laser. Dadurch kann Laserstrahlung von typischer der angegebenen Leistung in den folgenden Wellenlängenbereichen erzeugt werden:

- verdoppelt, 395 nm - 475 nm: 300 mW
- verdreifacht, 230 nm - 315 nm: 100 mW
- vervierfacht, 205 nm - 220 nm: 20 mW

---

<sup>1</sup>Durch anlegen einer Spannung (wenige kV) an den KD\*P Kristall der Pockelszelle dreht dieser die Polarisationsebene des Lichts. Da der Resonator über viele Brewsterflächen verfügt wird seine Güte dadurch schlechter. Somit kann eine Anschwingen des Laser trotz Inversion im Kristall verhindert werden.

<sup>2</sup>Die Laser wurden bei 7 KHz betrieben, da der Pumplaser bei dieser Repetitionsrate die höchste Effizienz erreichte.

Die in den nachfolgenden Kapiteln dargestellten Entwicklungen zielen auf die Erweiterungen der aufgeführten Spezifikationen. Dazu wurde für den Bereich der Ausgangsleistung das vorhandene Laserkonzept lediglich leicht modifiziert, für die Bereiche Durchstimmbarkeit, Wellenlängenbereich und Linienbreite mussten aber neue Konzepte entwickelt werden.

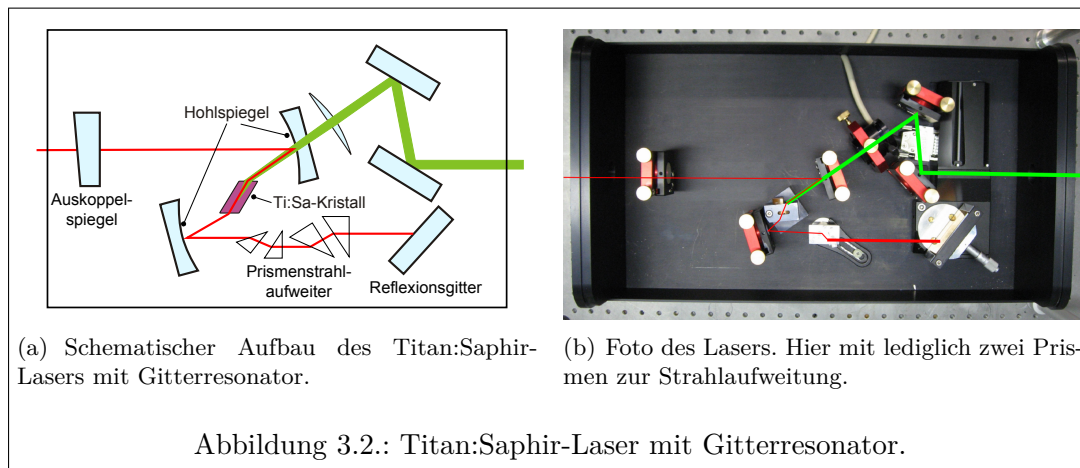
## 3.2. Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator

Die bisher beschriebenen Titan:Saphir-Laser nutzen, wie in Abschnitt 2.5.1 beschrieben, eine Kombination aus Lyotfilter und Etalon für die Frequenzselektion. Dies ermöglicht eine Frequenzselektion mit sehr geringen Resonatorverlusten und folglich einer hohen Ausgangsleistung der Laser. Der Nachteil für spektroskopische Untersuchungen ist jedoch der sehr geringe Spektralbereich, in dem sich der Laser ohne Modensprung verstimmbar lässt. Die maximale Verstimmung beträgt bei synchroner Verstellung von Etalon und Lyotfilter etwa 300 GHz. Dies ermöglicht ohne weiteres die spektroskopische Untersuchung bekannter Übergänge in Atomen. Allerdings erfordert beispielsweise die Spektroskopie von Rydbergzuständen oder die Suche nach unbekanntem Übergängen einen möglichst großen modensprungfreien Verstimmungsbereich von mehreren 10 nm, entsprechend mehreren 5 THz bei 800 nm. Bei den Lasern mit Lyotfilter und Etalon müssen dazu jeweils einzelne Laserscans mit einer Breite von 300 GHz durchgeführt werden, die anschließend in der Auswertung aneinandergereiht werden. Um den experimentellen Aufwand drastisch zu reduzieren, wurde auf der Grundlage des vorhandenen Titan:Saphir-Laseraufbaus, ein Resonator mit einem Gitter als frequenzselektives Element entwickelt. Der Bereich der modensprungfreien Verstimmung ist dabei prinzipiell nur durch die Verstärkung des Titan:Saphir-Kristalls limitiert. In der Realität müssen die wellenlängenabhängigen Verluste des Gitters berücksichtigt werden. Den auf etwa 300 nm erweiterten Bereich der modensprungfreien Verstimmung erreicht man nur mit größeren Resonatorverlusten aufgrund der nicht nutzbaren Reflexion in die nullte Ordnung des Gitters. Dies reduziert generell die Ausgangsleistung des Lasers, stellte jedoch im Experiment keine wesentliche Limitierung für die Anwendung in der Spektroskopie dar.

### 3.2.1. Resonatordesign des Gitterlasers

Das Resonatordesign des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator konnte ohne Veränderung von den bereits existierenden Titan:Saphir Lasern übernommen werden. Das Reflexionsgitter wird auf einem Drehtisch an der Stelle des hochreflektierenden Endspiegels angebracht und ersetzt diesen. Um die Linienbreite des Lasers zu reduzieren, müssen möglichst viele Gitterstriche ausgeleuchtet werden. Zu diesem Zweck wird die Resonatormode vor dem Gitter in der Ebene senkrecht zu den Gitterstrichen mit einem Prismenstrahlauflaufweiter aufgeweitet. Abbildung 3.2 zeigt den schematischen Aufbau und ein Foto des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator.

Die Resonatorgeometrie wurde exakt derjenigen der Titan:Saphir-Laser, die von Roland Horn entwickelt wurden, nachgebildet. Die Lasermode entspricht daher der Mode



der herkömmlichen Titan:Saphir-Laser, und es bedurfte keiner weiteren Betrachtungen zur Modenstruktur im Resonator. Die Auswahl der optischen Komponenten und des Drehtisches erforderten eine sorgfältige Betrachtung der Spezifikationen, um die gewünschten Eigenschaften des Lasers zu erhalten.

Im Gegensatz zu den herkömmlichen Titan:Saphir-Lasern dienen die Spiegel des Resonators nun nicht mehr als frequenzselektives Element. Um einen Betrieb des Lasers in dem gesamten Verstärkungsbereich des Titan:Saphir-Kristalls zu ermöglichen wurde explizit darauf geachtet, dass die Spiegel für den Betrieb von etwa 650 nm bis 1050 nm geeignet sind. Dabei konnte auf bereits vorhandene Auskoppelspiegel zurückgegriffen werden. Diese weisen eine Reflektivität von 80 % über diesen Bereich auf. Die beiden Hohlspiegel wurden bei der Firma Layertec (Bestellnummer: 100973) gekauft. Diese sind hochreflektierend von 650 nm bis 1100 nm und besitzen eine geringe Reflektivität (<5 %) bei 532 nm. Obwohl diese Spiegel den Laserbetrieb über einen sehr großen Bereich ermöglichen (siehe Abschnitt 3.2.2), waren sie nicht für einen Dauereinsatz in diesem Laser geeignet. Die hohe Energie des Pumplasers zerstört die Beschichtung der Spiegel und führte zu einer Verschlechterung der Reflexionseigenschaften, was wiederum zu Leistungseinbußen von etwa 20 % führte. Als Ersatz wurden bei Layertec kundenspezifische Spiegel in Auftrag gegeben, die eine höhere Zerstörschwelle aufweisen. Diese konnten seitens Layertec jedoch nicht vor Fertigstellung dieser Arbeit geliefert werden, wurden aber im Rahmen der Promotion von Tina Gottwald bereits eingesetzt und zeigten ein annähernd identisches Verhalten wie die vorherigen Spiegel.

Das Reflexionsgitter muss mehrere Anforderungen gleichzeitig erfüllen. Einerseits benötigt man eine möglichst hohe Effizienz für die Beugung in die erste Ordnung, andererseits muss die Anzahl der Gitterstriche an den Wellenlängenbereich des Lasers und die geforderte Linienbreite angepasst werden. Der Zusammenhang zwischen der Wellenlänge und dem Gitterwinkel kann, im Fall der Beugung in erster Ordnung in sich selbst zurück, vereinfacht angenommen werden zu

$$\lambda = 2 \cdot g \sin \alpha. \quad (3.1)$$

$g$  ist die Gitterkonstante und gibt die Dichte der Gitterstriche an. Gitter werden üblicherweise mit der Angabe an Gitterstrichen pro mm spezifiziert. Diesen Wert erhält man aus der Gitterkonstante durch die Umrechnung  $\frac{0,001 \text{ m}}{g}$ . Eine Limitierung für die maximale Anzahl an Gitterstrichen ist dadurch gegeben, dass  $\alpha$  nicht größer als  $90^\circ$  werden kann. Soll der Laser bis 1000 nm betrieben werden können, darf das Gitter nach Gleichung 3.1 nicht mehr als 2000 Striche pro mm aufweisen. Die Linienbreite des Lasers mit Gitterresonator sollte dem vorhandenen Lasersystem angepasst sein. Es gilt also eine Linienbreite von 3 GHz zu erreichen. Die Auflösung eines Reflexionsgitters ist durch die Beugungsordnung  $n$  und die Anzahl der ausgeleuchteten Gitterstriche  $N$  gegeben durch

$$A = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} nN. \quad (3.2)$$

Bei einer Wellenlänge von 800 nm entspricht eine Linienbreite von 3 GHz, wie sie üblich ist für die Titan:Saphir-Laser, einer Auflösung von

$$A = \frac{c}{800 \text{ nm} \cdot 3 \text{ GHz}} = 124.914 \quad c = 299.792.458 \frac{\text{m}}{\text{s}}. \quad (3.3)$$

Damit lässt sich nun mit Hilfe von Gleichung 3.2 die benötigte Gitterkonstante berechnen. Dazu sind jedoch noch Vorüberlegungen zur Anzahl der ausgeleuchteten Gitterstriche notwendig.

Abbildung 3.3 illustriert die Ausleuchtung des Gitters im Resonator. Die Breite des Laserstrahls  $d$  kann aus den ABCD Rechnungen für den Resonator abgeschätzt werden. Verwendet man einen neunfach Strahlaufweiter, erhält man  $d = 54 \text{ mm}$ . Die ausgeleuchtete Strecke auf dem Gitter ergibt sich demnach zu  $l = \frac{d}{\cos \alpha}$ . Aus Gleichung 3.1 kann  $\alpha$  bestimmt werden. Es folgt für das Auflösungsvermögen:

$$\begin{aligned} A &= \frac{d}{g \cos \left( \arcsin \frac{2g}{\lambda} \right)} \\ &= \frac{d}{g \sqrt{1 - \frac{4g^2}{\lambda^2}}} \stackrel{!}{=} 124.914 \end{aligned} \quad (3.4)$$

Aus der Lösung dieser Gleichung folgt, dass das Gitter etwa 1700 Striche pro mm besitzen sollte. Dies erfüllt auch die Forderung für den Betrieb bis 1000 nm.

An das Gitter werden noch weitere Anforderungen gestellt. Es muss eine möglichst hohe Effizienz für die Beugung in die erste Ordnung für den interessanten Wellenlängenbereich besitzen, die Zerstörschwelle muss ausreichend hoch sein und das Substrat von sich aus eine hohe Reflektivität für den nahinfraroten Wellenlängenbereich besitzen. Zudem sollten auch ökonomische Gesichtspunkte berücksichtigt werden.

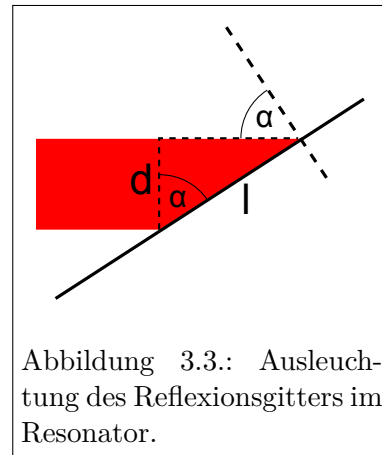


Abbildung 3.3.: Ausleuchtung des Reflexionsgitters im Resonator.

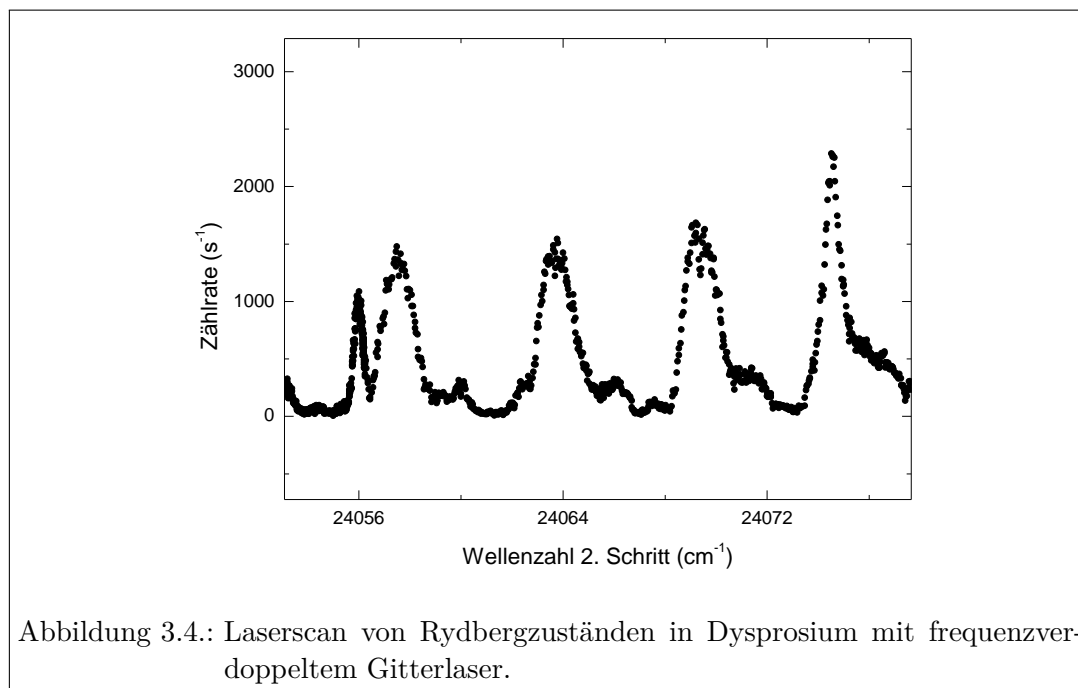
Die Firma Horiba stellt holografische Gitter für die Kompression kurzer Laserpulse aus fs-Lasern her, die die Anforderungen fast exakt erfüllen. Das Gitter mit der Bestellnummer 524 20 090 hat 1740 Striche pro mm, besitzt eine Effizienz für die Beugung in die erste Ordnung von über 90 % im Wellenlängenbereich von 700 - 1000 nm, eine Goldbeschichtung für eine hohe Reflektivität in diesem Wellenlängenbereich und auch eine hohe Zerstörschwelle. Es handelt sich bei diesem Gitter jedoch um ein sogenanntes Mastergitter. Für dessen Herstellung wird auf das Substrat ein photosensitiver Lack aufgetragen und dieser mit einem Interferenzmuster von Lasern belichtet. Dieses Herstellungsverfahren ist sehr aufwändig und die so hergestellten Gitter entsprechend teuer. Eine Alternative stellen sogenannte Replikagitter dar. Sie werden mit Hilfe der Mastergitter belichtet und sind etwa um einen Faktor fünf günstiger, besitzen jedoch eine etwas verminderte Effizienz für die Beugung in die erste Ordnung. Zudem sind Replikagitter bei Horiba nur mit maximal 1480 Strichen pro mm erhältlich. Trotzdem wurde aufgrund ökonomischer Gesichtspunkte ein Replikagitter mit 1480 Striche pro mm für den Laser verwendet (Bestellnummer C524 28 090/T3). Wie sich bei der Charakterisierung des Lasers herausstellte, erfüllt auch dieses Gitter sämtliche Anforderungen ausgezeichnet.

Für spektroskopische Untersuchungen wurde die Anforderung an den Laser definiert, dass während Laserscans alle 0,5 GHz ein Datenpunkt entstehen soll. Daraus lässt sich die Winkelgeschwindigkeit bestimmen, mit der sich der Drehtisch drehen muss, auf dem das Gitter montiert ist. Wir gehen wieder von einer Wellenlänge von 800 nm aus, d.h. nach Gleichung 3.1 steht das Gitter in einem Winkel von  $\alpha = 36,3^\circ$  zur Lasermode. Die Veränderung der Wellenlänge und somit des Winkels ist gegeben durch

$$\begin{aligned} \Delta\lambda &= 2g[\sin(\alpha + \Delta\alpha) - \sin\alpha] \\ \Rightarrow \Delta\alpha &= \arcsin\left[\sin\alpha + \frac{\Delta\lambda}{2g}\right] - \alpha = 0,000056^\circ. \end{aligned} \quad (3.5)$$

Das bedeutet, dass die Forderung, alle 0,5 GHz ein Datenpunkt bei einer Frequenz der Datenaufnahme von 10 Hz erfüllt ist, wenn sich das Gitter mit einer Geschwindigkeit von  $0,00056^\circ/\text{s}$  dreht. Lediglich die Firma Micos konnte die geforderten Spezifikationen für ihre Produkte garantieren. Für den Laser mit Gitterresonator wurde ein Drehtisch der Serie DT-65N mit einem Schrittmotor des Typs *2Phase-045*<sup>3</sup> verwendet. Im Anhang A finden sich Winkel-Zeit Diagramme des Drehtisches für verschiedene Geschwindigkeiten. Aus diesen geht hervor, dass die Bewegung bis hinab zu einer Geschwindigkeit von  $0,0005^\circ/\text{s}$  annähernd linear ist. Bei kleineren Geschwindigkeiten verhindert mechanischer Jitter eine lineare Bewegung. Daher ist der Betrieb bei kleineren Geschwindigkeiten nicht zu empfehlen. Abbildung 3.4 zeigt exemplarisch einen Laserscan von Rydbergzuständen in Dysprosium mit frequenzverdoppelten Gitterlasers. Sowohl Linienbreite, als auch Schrittweite des Lasers ermöglichen eine einwandfreie Auflösung der einzelnen Resonanzen des Spektrums.

<sup>3</sup>Der Drehtisch wurde zunächst mit einem Gleichstrommotor und einem Encoder für die Positionsbestimmung betrieben. Das aktive Regeln auf die vorgegebene Position ermöglichte jedoch keine Drehung mit exakt konstanter Geschwindigkeit. Alle gezeigten Spektren bei der Spektroskopie an Gold und Technetium wurden noch mit dem Gleichstrommotor aufgenommen.



Für noch präzisere Veränderungen des Gierwinkels des Gitters wurde ein Piezoaktuator in den Gitterhalter integriert. Dieser ermöglicht durch Anlegen einer Spannung von 0 - 150 V eine kontinuierliche Veränderung des Winkels von 0  $\mu\text{rad}$  bis 400  $\mu\text{rad}$ , was einer Verstimmung von etwa 250 GHz entspricht.

### 3.2.2. Charakteristik des Gitterlasers

Bei der Charakterisierung des Gitterlasers muss vorweg genommen werden, dass alle Messungen mit beschädigten Spiegeln durchgeführt wurden. Dies führte aufgrund verschlechterter Reflexionseigenschaften im Allgemeinen zu einer verminderten Ausgangsleistung und somit auch zu einem eingeschränkten Durchstimmbereich.

**Konversionseffizienz** Die Messungen zur Konversionseffizienz des Gitterlasers wurden jeweils bei einer Wellenlänge von 810 nm durchgeführt. Die Repetitionsrate des Pump lasers betrug 7 kHz. Abbildung 3.5 zeigt die Abhängigkeit der durchschnittlichen Ausgangsleistung des Gitterlasers von der Pumpleistung. An die Datenpunkte wurde jeweils eine Gerade angepasst. Für den Gitterlaser mit zwei Prismen zur Strahlaufweitung ergibt sich eine Laserschwelle von 2,7(4) W und eine differentielle Konversionseffizienz von 0,15(1). Betreibt man den Laser mit vier Prismen zur Strahlaufweitung ergibt sich eine Laserschwelle von 2,4(3) W und eine differentielle Konversionseffizienz von 0,14(1). Da diese Werte einer gewissen Abhängigkeit von der Justage des Lasers unterliegen, kann man annehmen, dass sich die Laserschwelle und die differentielle Effizienz für den Betrieb mit zwei oder vier Prismen nicht signifikant unterscheiden.

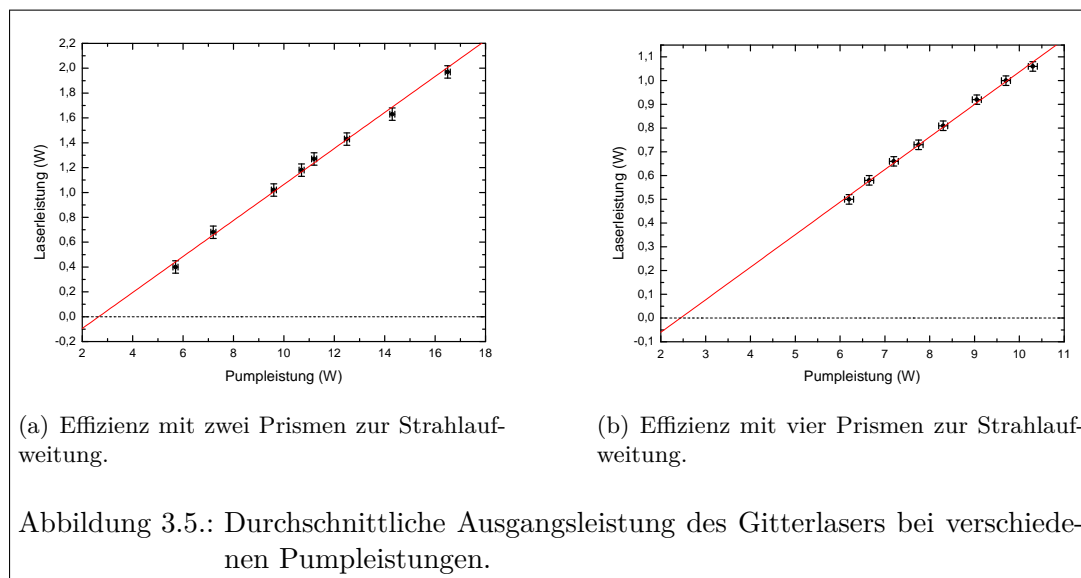


Abbildung 3.5.: Durchschnittliche Ausgangsleistung des Gitterlasers bei verschiedenen Pumpleistungen.

Die geringere Laserschwelle mit vier Prismen im Strahlaufweiter widerspricht der Erwartung, da zusätzliche Oberflächen zu höheren Verlusten im Resonator führen, was eine höhere Laserschwelle bedingt. Der Strahlaufweiter ist so konstruiert, dass jeweils eine Fläche der Prismen im Brewsterwinkel zum Strahl steht und die andere Fläche antireflex-beschichtet ist. Somit können die Verluste effektiv reduziert werden, was sich in der quasi identischen Laserschwelle zeigt.

**Spektrales Verhalten** Die durchschnittliche Leistung des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator wurde bei verschiedenen Wellenlängen bestimmt. Dazu wurde die Wellenlänge des Lasers in etwa 10 nm großen Schritten verstimm und jeweils die Leistung gemessen. Dabei musste der Nickwinkel des Gitters meist leicht optimiert werden. Eine weitere Justage des Resonators war jedoch nicht notwendig. Abbildung 3.6 zeigt die erreichbaren Laserleistungen bei verschiedenen Wellenlängen. Bei der Verwendung von zwei Prismen für die Strahlaufweitung und einer Pumpleistung von 17,5 W ist ein Laserbetrieb von 698 nm bis 947 nm möglich. Die maximale Ausgangsleistung von 1,26(2) W wird bei etwa 806 nm erreicht, was dem Maximum des Verstärkungsprofils des Titan:Saphir-Kristalls entspricht. Verwendet man vier Prismen zur Strahlaufweitung verkleinert sich der Bereich in dem ein Laserbetrieb möglich ist und reicht nur noch von 707 nm bis 933 nm. Die maximale Ausgangsleistung von 1,17(2) W wird wiederum bei etwa 806 nm erreicht. Bei einem ersten Test des Gitterlasers mit zwei Prismen konnte ein wesentlich größerer Durchstimmbereich erreicht werden. Dieser ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Hier konnte ein Laserbetrieb von 684 nm bis 996 nm erreicht werden. Bei der späteren systematischen Charakterisierung des Lasers konnte dies nicht wieder reproduziert werden. Vermutlich waren zu diesem frühen Zeitpunkt die Resonatorspiegel noch intakt und führten nicht zu Verlusten im Resonator. Im Nachhinein kann dies jedoch nicht mehr eindeutig geklärt werden.

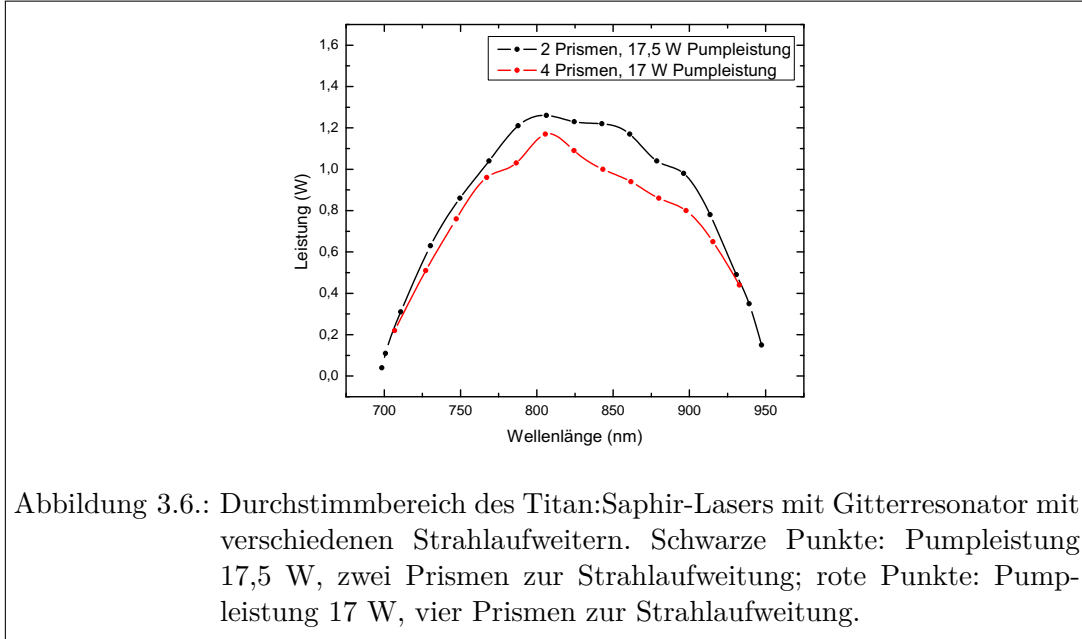
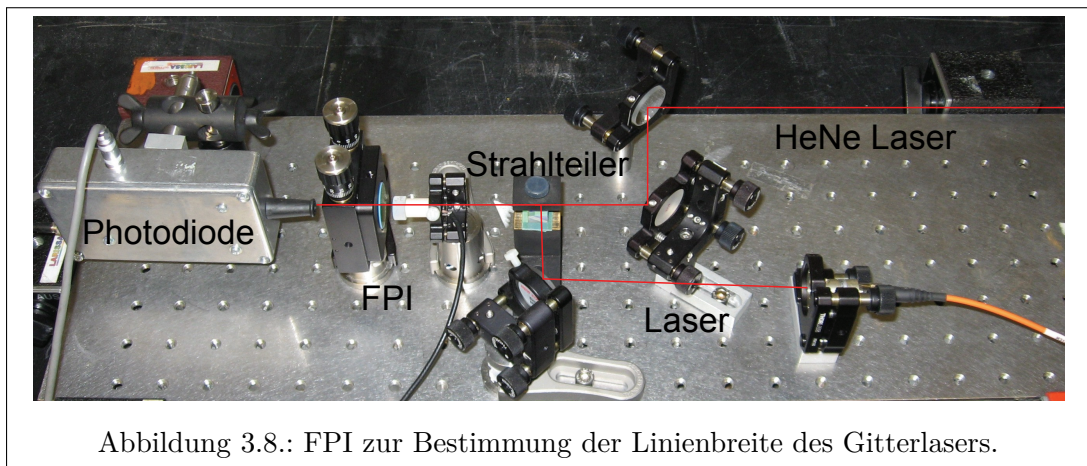
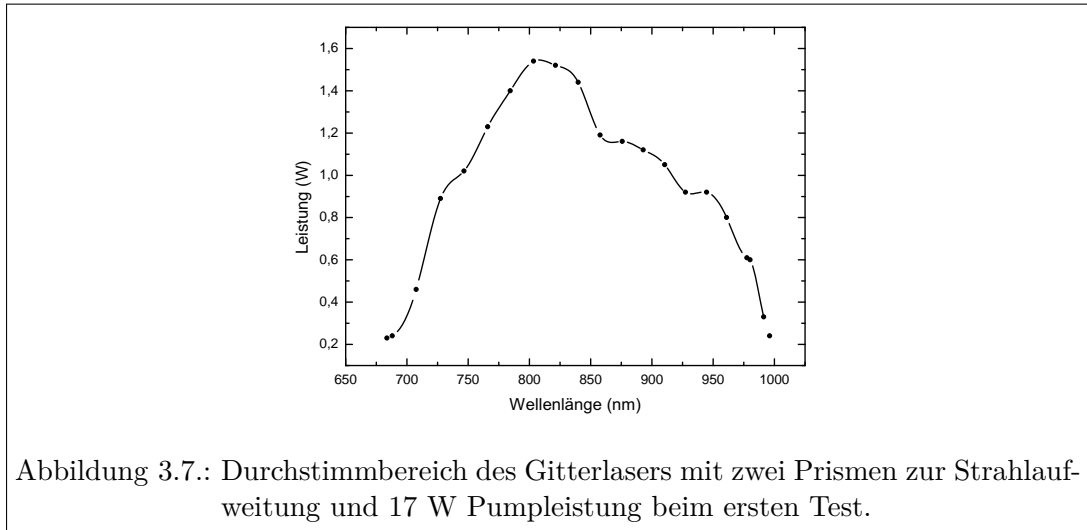


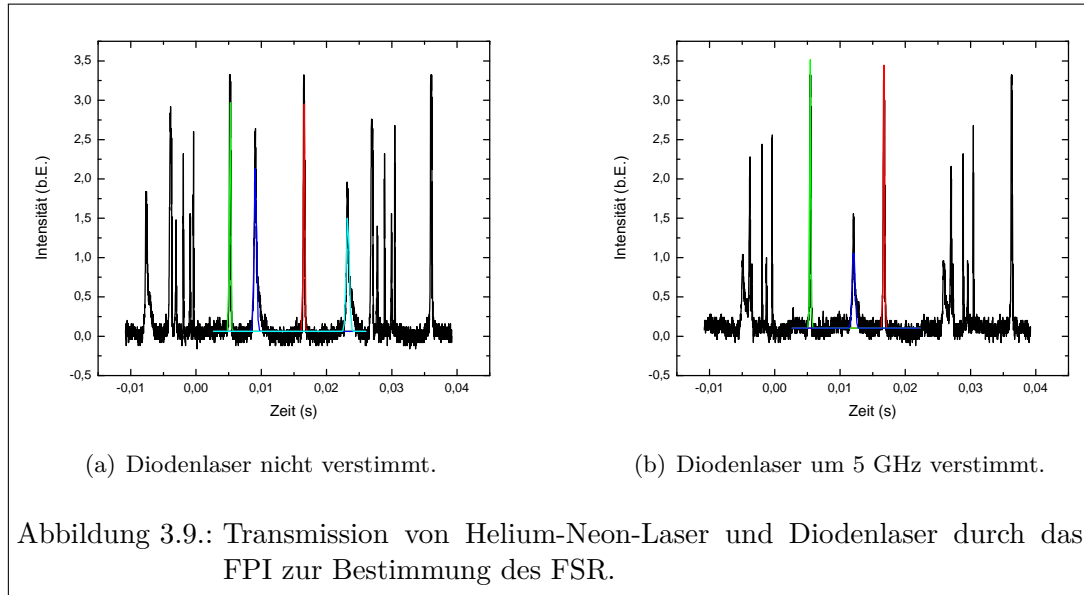
Abbildung 3.6.: Durchstimmbereich des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator mit verschiedenen Strahlaufweitern. Schwarze Punkte: Pumpleistung 17,5 W, zwei Prismen zur Strahlaufweitung; rote Punkte: Pumpleistung 17 W, vier Prismen zur Strahlaufweitung.

Neben dem Durchstimmbereich wurde auch die Linienbreite des Gitterlasers untersucht. Zu diesem Zweck musste zunächst ein Fabry-Pérot Interferometer (FPI) mit einem freien Spektralbereich von etwa 30 GHz konstruiert werden. Dazu wurden zwei planparallele Spiegel mit einer Reflektivität von 99,9 % im gesamten Verstärkungsbereich des Titan:Saphir-Lasers in einem Abstand von 5 mm gegenüberliegend montiert. Einer der Spiegel wurde auf einen röhrenförmigen Piezoaktuator geklebt um die Länge des FPI variieren zu können. Ein Foto der Konstruktion zeigt Abbildung 3.8. Für die Bestimmung des FSR konnte über einen Strahlteiler ein frequenzstabilisierte Helium-Neon-Laser und ein frequenzstabilisierter Diodenlaser über eine Faser gleichzeitig in das FPI eingekoppelt werden. An den Piezoaktuator wurde eine periodisch linear ansteigende und abfallende Spannung angelegt, was zu einer linearen Längenänderung des FPIs führte. Abbildung 3.9 (a) zeigt das gemeinsame Transmissionssignal vom Helium-Neon Laser (grüne und rote Fitkurve) und dem Diodenlaser (blaue und türkise Fitkurve). Um einen Bezug zwischen der aufgenommenen Zeitinformation und der Frequenzinformation zu erhalten, wurde in Abbildung 3.9 (b) der Diodenlaser um exakt 5 GHz verstimmt. An die Transmissionskurve wurden jeweils Gaußkurven angepasst und das Zentrum des Transmissionsmaximums ermittelt. Um den Einfluss von Veränderungen während der Messungen zu eliminieren, wurde die Veränderung des Abstands vom Transmissionsmaximum des Diodenlasers zum Transmissionsmaximum des Helium-Neon-Lasers betrachtet. Diese Veränderung betrug  $2,56(5) \mu\text{s}$ , was der Verstimmung von 5 GHz entspricht. Berechnet man die zeitliche Differenz zwischen den Transmissionsmaxima des Diodenlasers  $\Delta t_{\text{Diode}}$  erhält man den FSR zu

$$FSR = \frac{\Delta t_{\text{Diode}}}{2,56(5) \mu\text{s}} \cdot 5 \text{ GHz} = 27,7(5) \text{ GHz}. \quad (3.6)$$



Mit der Kenntnis des FSR kann nun der Abstand von zwei Transmissionsmaxima des Gitterlasers ins Verhältnis zu deren Breite gesetzt werden und diese daraus berechnet werden. Die Transmission des Gitterlasers durch das FPI ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Aufgrund des gepulsten Betriebs des Gitterlasers sieht man die einzelnen Laserpulse auch in der Transmission durch das FPI. Die Einhüllende der Maxima der Laserpulse beschreibt die Transmissionsfunktion. Ein Fit an die Datenpunkte ist aufgrund der gepulsten Struktur nicht ohne Weiteres möglich. Bei denen in Abbildung 3.10 gezeigten Kurven wurde zunächst ohne Beschränkung der Parameter in den gesamten Daten gefittet und anschließend lediglich die Amplitude der angepassten Gaußfunktion manuell angepasst, was zu einer guten Beschreibung der Einhüllenden führt und die Breite nicht verändert. Es wurden jeweils die vollen Halbwertsbreiten für den Betrieb mit zwei und vier Prismen bestimmt. Diese ergeben sich aus den Breiten

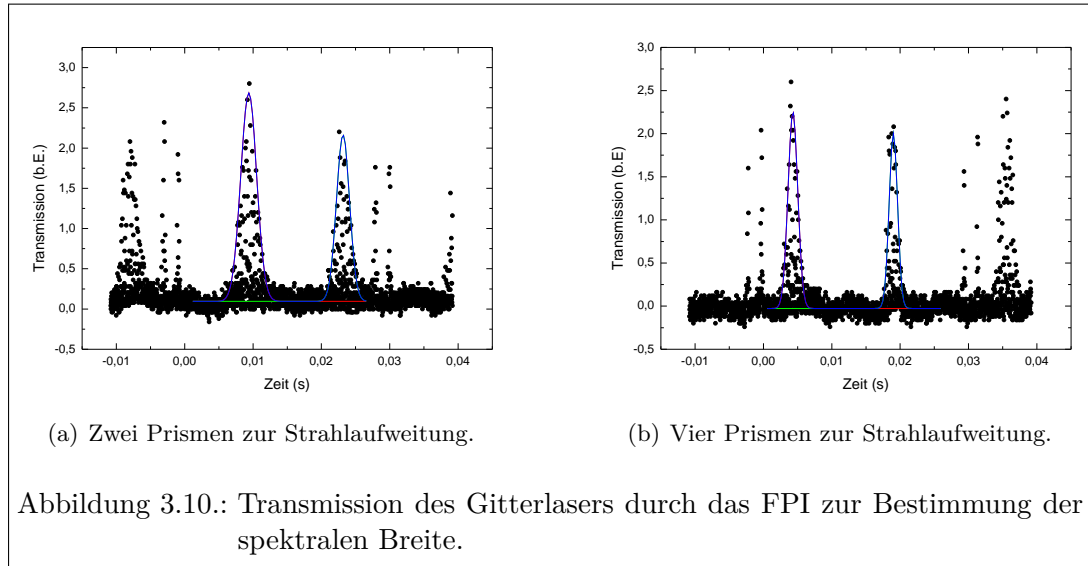


und den Lagen der Transmissionsmaxima zu

$$\Delta\nu_{FWHM} = \frac{\Delta\nu_1 + \Delta\nu_2}{2(x_2 - x_1)} \cdot \text{FSR}. \quad (3.7)$$

Dabei wird direkt der Mittelwert aus den Breiten der beiden Transmissionspeaks gebildet. Für den Betrieb mit zwei Prismen zur Strahlaufweitung ergibt sich eine spektrale Breite des Laser von  $\Delta\nu_{FWHM} = 5,2(3)$  GHz. Mit vier Prismen zur Strahlaufweitung hat der Laser eine spektrale Breite von  $\Delta\nu_{FWHM} = 2,9(2)$  GHz. Die geforderte Linienbreite von 3 GHz wird demnach, trotz der etwas geringeren Anzahl an Strichen pro mm des Gitters, erreicht. Bei optimaler Justage des Prismenstrahlaufweilers stehen die Prismen mit einer Fläche im Brewsterwinkel zum Strahl und mit der anderen nahezu senkrecht. Dies ergibt nach der Theorie [KSS78, Tre85, DP80] eine Aufweitung des Strahls um einen Faktor drei pro Prismenpaar. Somit sollte die Linienbreite des Lasers mit vier Prismen auch um einen Faktor drei geringer sein, als mit zwei Prismen, was aber bei den Messungen nicht der Fall war. Die wahre Größe der Lasermode auf der Gitteroberfläche ist stark abhängig von der Justage des Resonators und insbesondere der Prismen. Es kann daher nicht festgestellt werden, ob die Größe der Lasermode auf der Gitteroberfläche tatsächlich der theoretisch erwarteten Größe entspricht.

**Zeitliches Verhalten** Die Zeitstruktur des Gitterlasers wurde bei verschiedenen Wellenlängen mit zwei und mit vier Prismen zur Strahlaufweitung aufgenommen. Abbildung 3.11 zeigt die Zeitverläufe der einzelnen Laserpulse bei verschiedenen Wellenlängen relativ zum Puls des Pumplasers. Die volle Halbwertsbreite der Laserpulse zeigt eine signifikante Abhängigkeit von der Wellenlänge und variiert mit zwei Prismen von 43 ns bei 794,4 nm bis 173 ns bei 707,5 nm. Die Verzögerung gegenüber dem Puls des



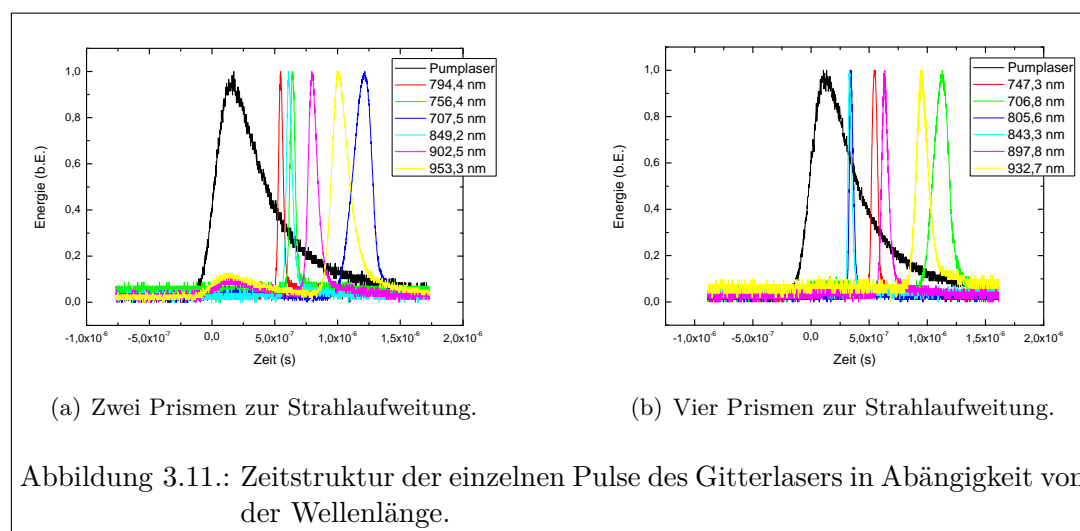
Pumplasers beträgt  $0,39 \mu\text{s}$  bei  $794,4 \text{ nm}$  und  $1,06 \mu\text{s}$  bei  $707,5 \text{ nm}$ . Bei der Verwendung von vier Prismen zur Strahlaufweitung verändert sich die volle Halbwertsbreite des Laserpulses von  $36,5 \text{ ns}$  bei  $843,3 \text{ nm}$  zu  $154 \text{ ns}$  bei  $706,8 \text{ nm}$ . Die Verzögerung beträgt bei  $843,3 \text{ nm}$   $0,21 \mu\text{s}$  und  $1,00 \mu\text{s}$  bei  $706,8 \text{ nm}$ . Neben der Abhängigkeit von der Wellenlänge zeigt die Zeitstruktur auch eine starke Abhängigkeit von der Justage. Der Laser wurde jeweils auf die maximale Ausgangsleistung bei der zu untersuchenden Wellenlänge justiert und dann die Zeitstruktur gemessen.

**Strahlprofil** Das transversale Strahlprofil des Gitterlasers wurde mit einer kommerziellen CCD-Kamera (Ophir Beamstar-V-PCI) aufgenommen. Das Strahlprofil in vertikaler und horizontaler Richtung im Abstand von  $17,5 \text{ cm}$  und  $42 \text{ cm}$  hinter dem Auskoppelspiegel ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Man erkennt ein  $\text{TEM}_{00}$  Strahlprofil in beiden Raumrichtungen. Als Konsequenz lassen sich Gaußkurven an die gemessenen Profile anpassen. Man erkennt in der Horizontalen eine leichte Asymmetrie. Die Strahldurchmesser für beide Achsen und Abstände sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Der Strahl ist leicht elliptisch, was auf eine nicht vollständige Astigmatismuskompensation zurückzuführen ist. In linearer Näherung ergibt sich horizontal eine Divergenz von

Abstand zum Auskoppler	Strahldurchmesser	
	horizontal	vertikal
$17,5(10) \text{ cm}$	$0,32 \text{ mm}$	$0,38 \text{ mm}$
$42,0(10) \text{ cm}$	$0,64 \text{ mm}$	$0,57 \text{ mm}$

Tabelle 3.1.: Strahldurchmesser des Gitterlasers.

$1,3 \text{ mrad}$  und vertikal von  $0,8 \text{ mrad}$ . In horizontaler Richtung kann die transversale Mode des Gitterlaser durch den großen Akzeptanzbereich des Gitters stark durch Ver-



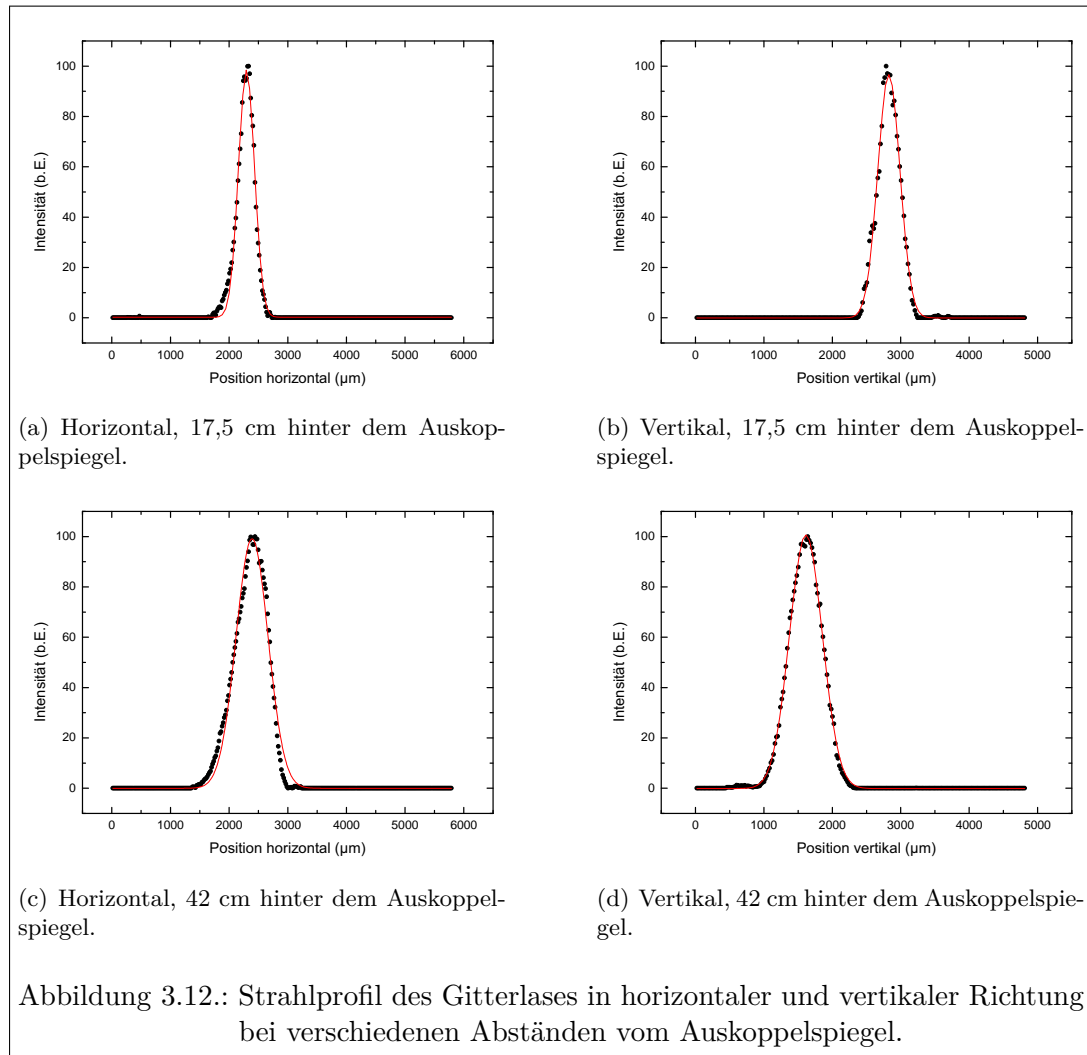
kippung des Auskoppelspiegels variiert werden. Dabei treten auch Modenstrukturen höherer Ordnung auf. Bei optimaler Justage des Lasers lässt sich jedoch immer ein annähernd rundes Strahlprofil erzeugen.

Die ermittelten Spezifikationen des Titan:Saphir-Lasers mit Gitterresonator ermöglichen eine nahtlose Integration in das vorhandene Lasersystem. Die modensprungfreie Durchstimbarkeit über einen Bereich von etwa 250 nm ermöglicht intensive spektroskopische Untersuchungen von Rydbergzuständen (siehe Abschnitt 4.1 und 4.2) oder das Auffinden bisher unbekannter Übergänge (siehe Abschnitt C).

### 3.3. Geseedeter Titan:Saphir-Laser

Der geseedete Titan:Saphir-Laser ist die konsequente Weiterentwicklung aus dem in meiner Diplomarbeit [Mat06] entwickelten geseedeten Laser. Ursprünglich wurde die Technik des Masterlasers und insbesondere die Stabilisierung des Resonators des Savelasers an einem herkömmlichen Titan:Saphir-Laser erprobt. Da dieser Laser einen linearen Resonator besitzt, bildet die longitudinale Mode  $q$  eine stehende Welle aus. Somit ist das elektrische Feld im Abstand von  $\lambda/2$  gleich Null. An diesen Wellenknoten kann die Inversion im Titan:Saphir-Kristall nicht durch die Lasermode abgebaut werden. Sie bleibt zunächst bestehen. Die Nachbarmoden  $q \pm 1$  besitzen in der Mitte des Resonators, wo in etwa auch der Titan:Saphir-Kristall angebracht ist, an den Knoten der Mode  $q$ , jeweils ihr Maximum. Daher schwingt der Laser auch auf diesen Moden an. Dieses Phänomen ist unter dem Namen *spatial hole burning* bekannt und limitiert die minimale Linienbreite eines geseedeten Lasers mit linearem Resonator auf dessen zweifachen freien Spektralbereich.

Der nächste Entwicklungsschritt war daher der Aufbau eines Ringresonators, bei dem sich die Mode im geseedeten Fall nur in eine Richtung ausbreitet und sich keine stehende Welle ausbildet. Damit wird *spatial hole burning* vermieden und der Be-

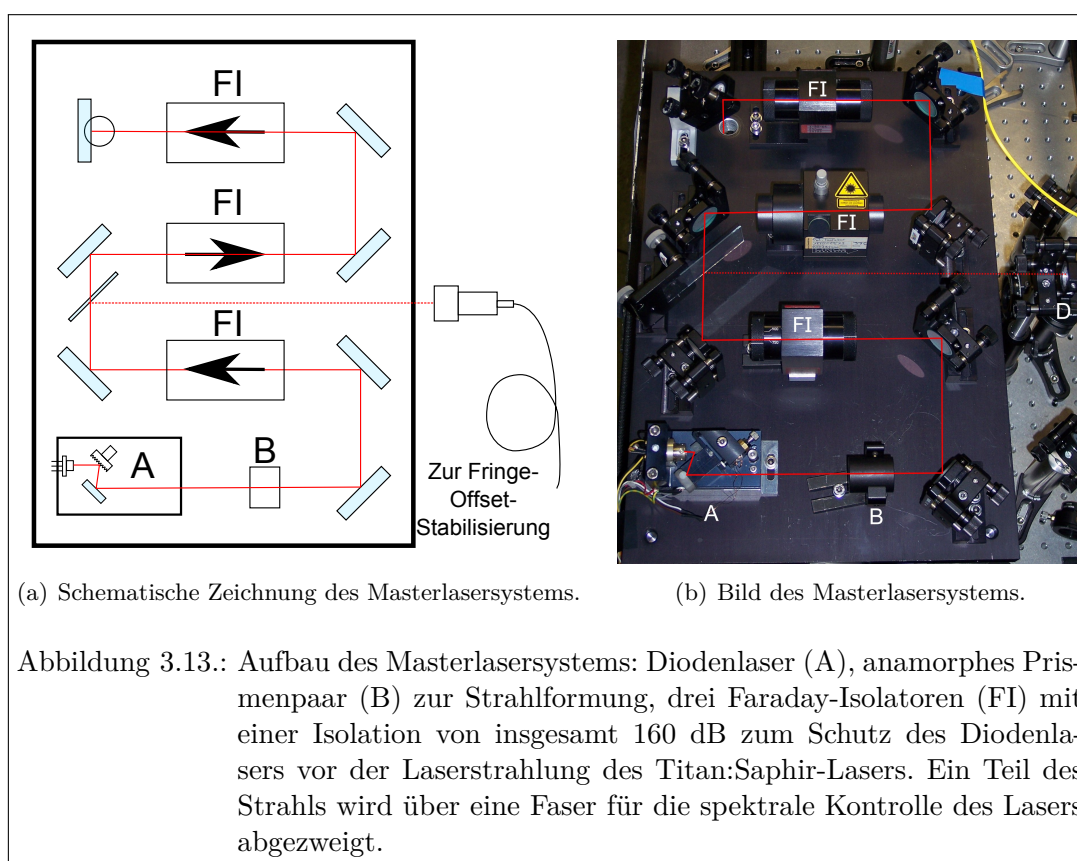


trieb auf einer longitudinalen Mode möglich. Die geleisteten Vorarbeiten bezüglich des Masterlaser und der Stabilisierung des Resonators konnten weitestgehend ohne Veränderung übernommen werden.

### 3.3.1. Aufbau des Systems

Das geseedete Lasersystem besteht im Wesentlichen aus drei Komponenten. Der Masterlaser ist ein schmalbandiger, leistungsschwacher Laser. Der Slavelaser ist ein gepulster, leistungsstarker Laser mit einer großen spektralen Breite. Dieser übernimmt im geseedeten Fall die spektrale Mode des Masterlasers. Die Stabilisierung ermöglicht erst den geseedeten Betrieb, indem die Länge des Resonators des Slavelasers auf ein Vielfaches der Wellenlänge des Masterlasers stabilisiert wird. Der Aufbau der einzelnen Komponenten wird in den folgenden Abschnitten beschrieben.

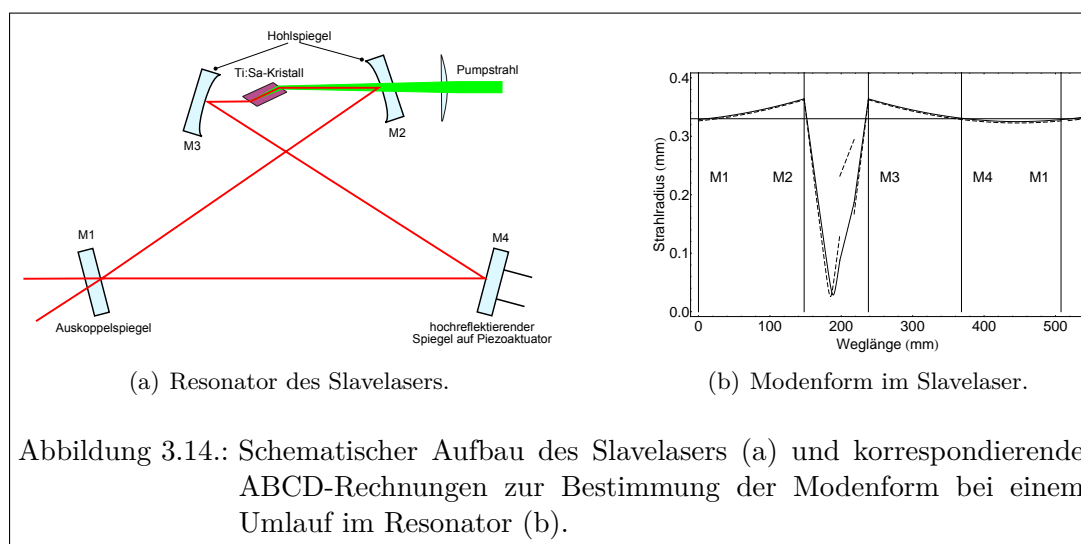
**Masterlaser** Der Masterlaser ist ein Diodenlaser mit einem externen Littrow Resonator [MSW85, WH91, AWB98], dessen Aufbau weitestgehend dem des kommerziell erhältlichen Diodenlaser DL100 [Top02] der Firma Toptica entspricht. Der Laser wurde bisher mit einer Diode des Typs EYP-RWE-0850-05010-1500-SOT02-0000 bzw. des Typs EYP-RWE-0940-08000-0750-SOT01-0000 der Firma Eagleyard Photonics betrieben. Beide Laserdioden besitzen eine Antireflex-Beschichtung, wodurch die spektralen Eigenschaften ausschließlich durch den äußeren Resonator bestimmt werden [BBHS91]. Im Bereich von 800 nm bis 860 nm bzw. von 860 nm bis 940 nm lässt sich jeweils eine Ausgangsleistung von 50 mW bis 70 mW erzielen bei einer spektralen Breite von etwa 1 MHz. Abbildung 3.13 zeigt den Aufbau des Masterlasersystems.



Das elliptische Strahlprofil des Diodenlasers wird mit einem anamorphem Prismenpaar in ein rundes Strahlprofil überführt. Anschließend passiert der Laserstrahl drei optische Isolatoren mit einer Isolation von insgesamt 160 dB (einmal 40 dB, zweimal 60 dB) in Rückwärtsrichtung. Zwischen den Isolatoren wird ein Teil des Lichts in eine Glasfaser eingekoppelt. Dieses Licht wird für die spektrale Kontrolle des Diodenlasers verwendet. Es wird einem Wavemeter zur groben Kontrolle der Wellenlänge und einer Fringe-Offset-Stabilisierung [ZSOS98] zugeführt. Die Fringe-Offset-Stabilisierung ermöglicht die spektrale Kontrolle und die gezielte Verstimmung des Diodenlasers. Eine

detaillierte Erläuterung der Funktionsweise der Stabilisierung findet sich in den Dissertationen von C. Geppert [Gep06] und P. Schumann [Sch06]. Die optischen Elemente des Masterlasersystems führen zu Leistungsverlusten von etwa 50 %. Somit stehen für das *Seeding* 25 mW bis 35 mW Laserleistung zur Verfügung.

**Slavelaser** Der Slavelaser wurde auf Basis der existierenden Titan:Saphir-Laser entwickelt. Es galt einen Ringresonator zu entwerfen, der die gleichen Eigenschaften aufweist, wie der z-Resonator der normalen Titan:Saphir-Laser. Um dies zu erreichen musste insbesondere der Bereich um den Titan:Saphir-Kristall und die Hohlspiegel die gleichen Transformationseigenschaften auf die Lasermode im Resonator aufweisen. Um eine Pulslänge von etwa 30 ns zu erreichen, muss die Länge des Resonators gleich der Länge der z-Resonatoren sein. Zu diesem Zweck wurde der Einfallswinkel einer der Hohlspiegel invertiert und der Resonator in *bow tie* (englisch für Fliege) Geometrie geschlossen. Der aus diesen Überlegungen entstandene Resonator ist in Abbildung 3.14

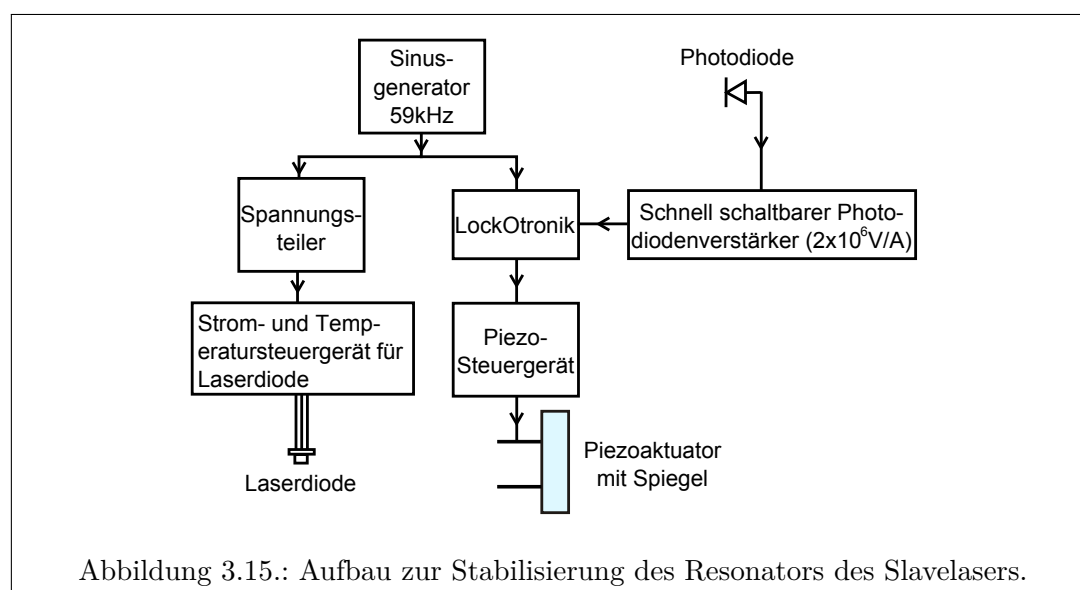


(a) dargestellt. In Abbildung 3.14 (b) ist die daraus resultierende Modenform, mit dem ABCD Matrixformalismus berechnet, gezeigt. Da sich die Matrix für die Reflexion an einem Hohlspiegel nicht verändert, wenn man das Vorzeichen des Einfallswinkels ändert, ist die Modenform identisch zu der in einem z-Resonator. Das Laserlicht wird allerdings an einer anderen Stelle ausgekoppelt als im z-Resonator, wo der Auskoppelspiegel genau zwischen M4 und M1 stehen würde, bei dem die Mode am kleinsten ist. Diese Veränderung führt jedoch lediglich zu einer geringfügig größeren Mode hinter dem Auskoppelspiegel, was auf die experimentelle Eignung des *geseedeten* Lasers keinen Einfluss hat. Der Resonator ist etwa 50 cm lang und somit geringfügig länger als der z-Resonator. Daraus resultiert eine minimal größere Pulslänge, was jedoch auch keine Einschränkung für den experimentellen Betrieb darstellt<sup>4</sup>.

<sup>4</sup>Bei gleicher optischer Weglänge muss der Stehwellenresonator auf dem Hin- und Rückweg durchlaufen werden, damit sich die Mode reproduziert. Beim Ringresonator geschieht dies bereits nach

Für den Resonator wurden die gleichen Spiegel verwendet wie für den z-Resonator. Der Auskoppelspiegel (M1) und der hochreflektierende, plane Spiegel (M4) sind für einen Einfallswinkel von  $0^\circ$  optimiert. Sie werden in diesem Resonator jedoch unter  $17,5^\circ$  verwendet. Es konnte keine Beeinträchtigung für den Laserbetrieb aus diesem Umstand festgestellt werden. Zur aktiven Längenstabilisierung des Resonators ist der Spiegel M4 auf einem Piezoaktuator montiert.

**Stabilisierung** Die theoretischen Grundlagen der Stabilisierung wurden in Abschnitt 2.7.1 beschrieben. An dieser Stelle wird die experimentelle Umsetzung beschrieben. In Abbildung 3.15 ist ein Flussdiagramm der Stabilisierung dargestellt. Ein Generator erzeugt eine sinusförmige Spannung, deren Amplitude sich mit Hilfe eines Potentiometers einstellen lässt. Diese Spannung liegt am Modulationseingang des Steuergeräts der



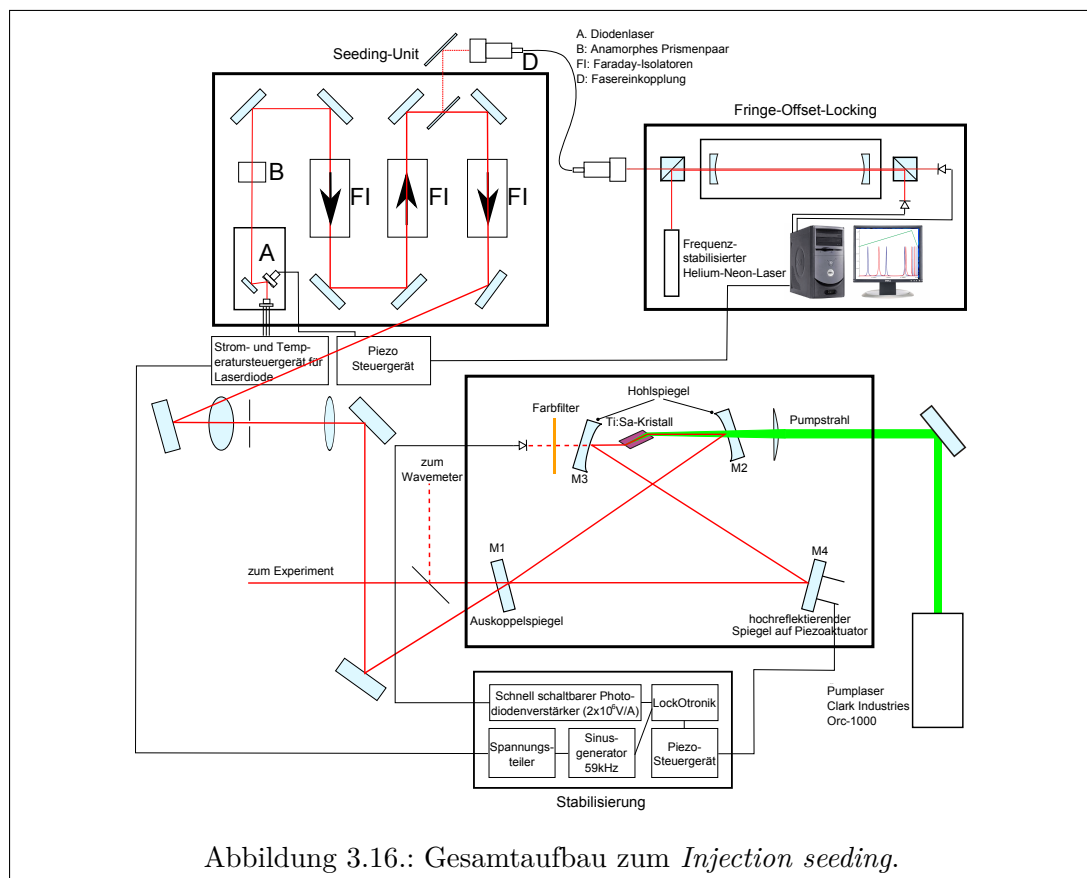
Laserdiode an und wird von diesem in eine sinusförmige Variation des Diodenstroms umgesetzt. Als Folge verändert sich die Frequenz des von der Diode emittierten Laserlichts periodisch. Hinter dem Spiegel M2 aus Abbildung 3.14 (a) ist eine Photodiode angebracht, die das dort transmittierte Licht der Laserdiode aufnimmt. Die Intensität ist nach Gleichung 2.97 abhängig von der Länge des Resonators. Vor der Photodiode befindet sich ein Farbfilter, der das Licht des Pumplasers herausfiltert. Da das Licht aus dem Titan:Saphir-Laser auf die Photodiode trifft und im Puls eine wesentlich höhere Intensität besitzt als das Licht des Diodenlasers, würde die Photodiode bzw. deren Verstärker sättigen. Eine Stabilisierung wäre bis zum Abklingen der Sättigung

---

dem ersten Umlauf. Ein Resonatorumlauf im Stehwellenresonator ist demnach doppelt so lang wie die optische Weglänge. Für den Vergleich der Zeitstrukturen hat diese Tatsache keine Auswirkung, da der Titan:Saphir-Kristall bei einem Umlauf im Stehwellenresonator zweimal passiert wird. Somit wird in beiden Resonatoren pro Wegstrecke etwa gleichviel Inversion abgeräumt und die Länge der Laserpulse ist in etwa gleich.

nicht möglich. Aus diesem Grund wurde ein schnell schaltbarer Photodiodenverstärker entwickelt. Dieser verfügt über zwei schnelle analoge Schalter. Einer erdet den Ausgang der Photodiode während des Pulses des Titan:Saphir-Lasers, der andere erdet den Verstärkerausgang. Somit erhält man während eines Pulses des Titan:Saphir-Lasers kein Signal am Ausgang des Verstärkers, hat aber keine längere Ausfallzeit des Regelsignals durch einen gesättigten Verstärker.

Aus dem Signal der Photodiode und dem Signal des Sinusgenerators wird in der LockOtronic<sup>5</sup> mit Hilfe einer Lock-in Technik das Fehlersignal zur Regelung erzeugt. Ein PID Regler erzeugt das Regelsignal, das verstärkt wird und an dem Piezoaktuator anliegt. Somit kann die Länge des Resonators auf ein Vielfaches der Wellenlänge des Diodenlasers stabilisiert werden.



**Gesamtsystem** Abbildung 3.16 zeigt den Gesamtaufbau des Lasersystems für das *Injection Seeding*. Ein Computer wertet die Daten der Fringe-Offset Stabilisierung aus und stabilisiert den Diodenlaser auf der gewünschten Frequenz oder verstimmt diesen

<sup>5</sup>Die LockOtronic wurde ursprünglich zur Stabilisierung eines Diodenlasers auf eine atomare Cäsiumresonanz entwickelt [Kna00, Göt02], kann jedoch deutlich universeller eingesetzt werden.

definiert. Der Laserstrahl des Masterlasers wird transversal und longitudinal mittels eines Teleskops und Spiegeln mit dem Strahl des Slavelasers überlagert. Dadurch sind die Moden der beiden Laser innerhalb des Slavelaserresonators gleich<sup>6</sup>. Die Photodiode, die das Signal für die Stabilisierung aufnimmt, ist hinter dem Spiegel M3 und einem Farbfilter angebracht. Ihr Signal wird verstärkt und der Regelelektronik zugeführt, welche die Position des Spiegels M4 variiert, um die Resonatorlänge konstant zu halten.

### 3.3.2. Charakteristik des *geseedeten* Lasers

Der geseedete Titan:Saphir-Laser wurde bei einer Wellenlänge von etwa 924 nm spezifiziert. Es wurde dazu die Diode vom Typ EYP-RWE-0940-08000-0750-SOT01-0000 im Diodenlaser verwendet. Die Spiegel M2, M3 und M4 sind hochreflektierend für den Bereich von 890 nm bis 1050 nm und der Auskoppelspiegel M1 besitzt in diesem Bereich eine Reflektivität von 80 %.

**Spektrales Verhalten** Zunächst wurden die spektralen Eigenschaften des *bow tie* Resonators ermittelt. Dazu wurde der Masterlaser in den Resonator eingekoppelt und

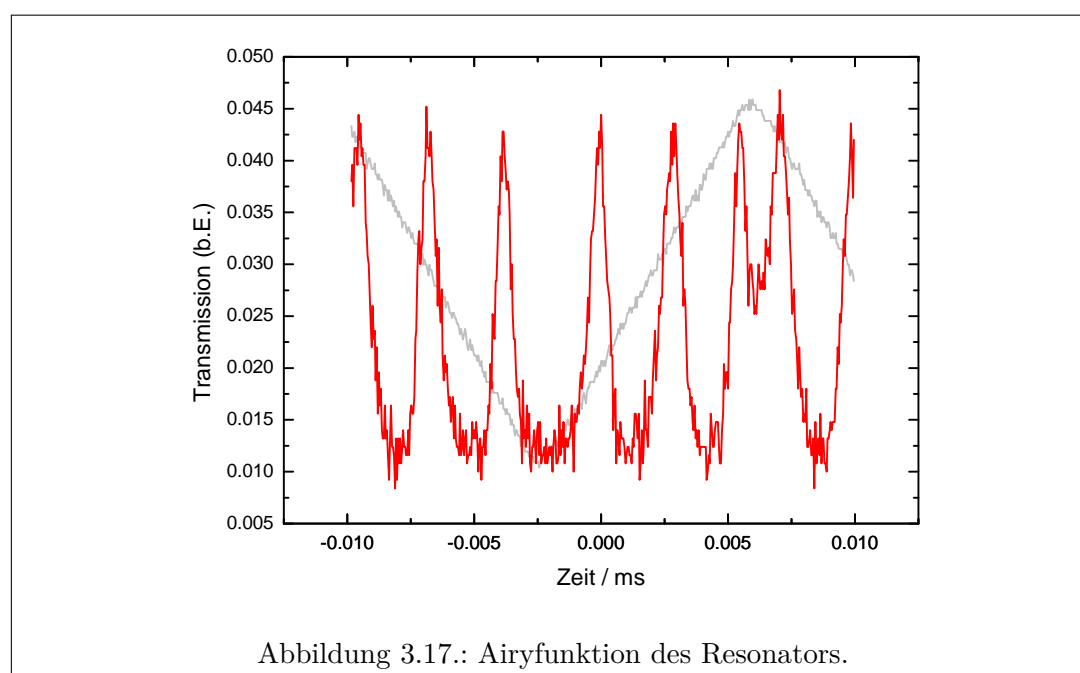


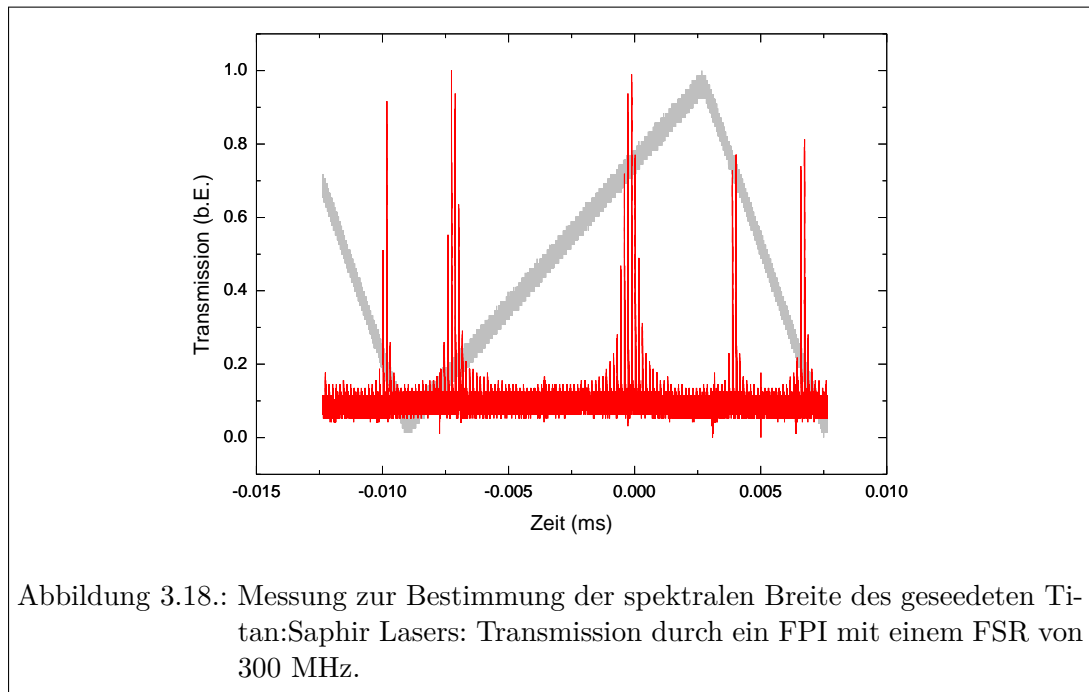
Abbildung 3.17.: Airyfunktion des Resonators.

an den Piezoaktuator eine rampenförmige Spannung angelegt. Diese führt zu einer

<sup>6</sup>In der Praxis wird der Titan:Saphir-Laser meist mit einem Pumplaser gepumpt, dessen Strahl höhere transversale Moden enthält. somit ist die Pumplasermode im Kristall größer als die Resonatormode, die mit dem Masterlaser überlagert worden ist. Somit kann es vorkommen, dass eine andere horizontale Resonatormode besser verstärkt wird und diese dann nicht geseedet wird. Dieses Problem kann durch Verwendung eines Pumplasers mit besserem Strahlprofil vermindert werden.

entsprechenden Bewegung des Spiegels M4 und so zu einer Längenänderung des Resonators. Mit einer Photodiode wurde das Transmissionssignal beobachtet. Abbildung 3.17 zeigt die rampenförmige Spannung (grau) und die durch den Resonator transmittierte Intensität des Masterlasers (rot). Aus dem Verhältnis des freien Spektralbereichs und der vollen Halbwertsbreite der Transmissionsmaxima wurde die Finesse des Resonators zu  $F = 6(1)$  bestimmt. Dies entspricht Verlusten von 40(5) % innerhalb des Resonators etwa das zweifache der Verluste am Auskoppelspiegel.

Um die spektrale Bandbreite des geseedeten Lasers zu bestimmen, wurde dieser in das FPI eingekoppelt, das sonst für die Fringe-Offset Stabilisierung verwendet wird. Dessen FSR ist sehr gut bekannt und beträgt 298,111(12) MHz. Die Transmission des geseedeten Lasers durch das FPI zeigt Abbildung 3.18. Die graue Sägezahnkurve beschreibt die Spannung, die die Länge des FPI variiert. In rot ist die Transmission dargestellt. Man erkennt, wie bereits beim Laser mit Gitterresonator, die gepulste Struktur des Lasers. Um die volle spektrale Halbwertsbreite des Lasers in Einheiten



der Frequenz zu erhalten, wurde der Quotient aus der vollen Halbwertsbreite und dem Abstand der Transmissionsmaxima in Einheiten der Zeit gebildet und mit dem FSR des FPI multipliziert. Man erhält, ohne Berücksichtigung der Finesse des FPI, eine spektrale Breite des Lasers von 20(5) MHz. Die minimale Bandbreite eines Lasers bei gegebener Pulslänge ist durch das Fourier-Limit gegeben zu [SA77]

$$\Delta\nu = \frac{2 \ln 2}{\pi \Delta\tau}. \quad (3.8)$$

Diese Gleichung gilt prinzipiell nur für Laserpulse mit einer Gaußschen Zeitstruktur. Für die Form eines Titan:Saphir-Laserpulses lässt sie sich jedoch ohne Einschränkung

anwenden [WLF01]. Aus der Pulslänge des geseedeten Titan:Saphir-Laser von 60 ns (siehe Seite 69) ergibt sich somit eine minimale Bandbreite von 7,4 MHz. Die Diskrepanz zu der erreichten Bandbreite hat ihre Ursache in der für die Stabilisierung notwendigen Modulation der Frequenz der Laserdiode. Der gesamte Diodenstroms ergibt sich aus der Formel

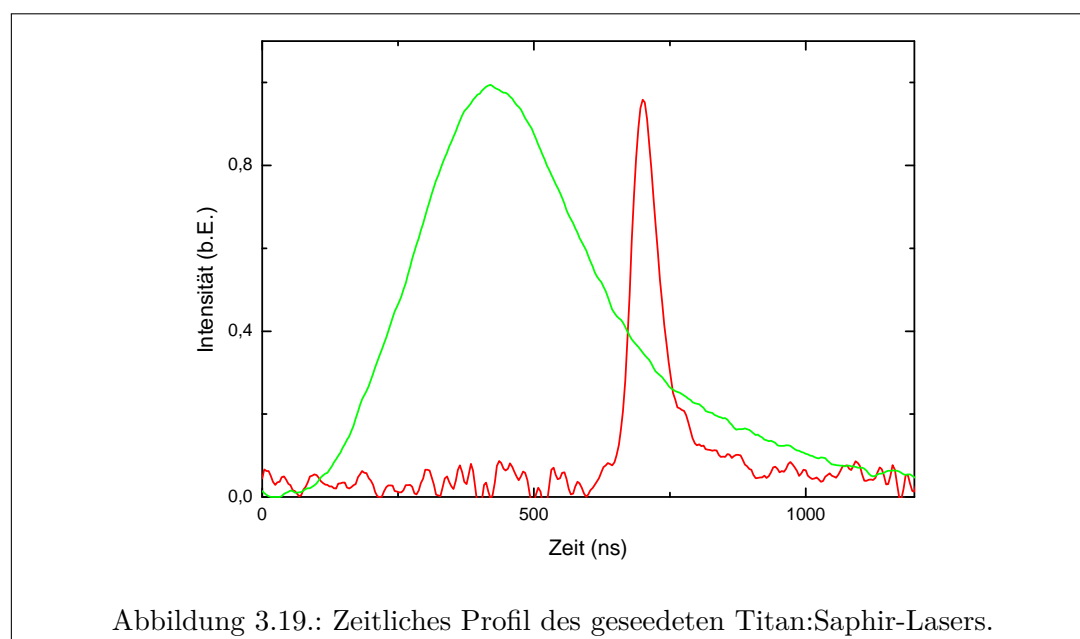
$$I_{LD} = I_{set} + I_{max} \cdot U_{mod}/10. \quad (3.9)$$

Aus den Betriebsdaten der Laserdiode beim *Injection seeding*

- maximaler Diodenstrom:  $I_{max} = 110(1)$  mA
- Amplitude der Modulationsspannung:  $U_{mod} = 6,0(2)$  mV

und dem Koeffizienten 0,3 GHz/mA zwischen Frequenz und Stromstärke ergibt sich der Modulationshub zu 19,8(6) MHz und entspricht der gemessenen spektralen Breite.

**Zeitliches Verhalten und Effizienz** Die zeitliche Struktur des geseedeten Titan:Saphir Lasers ist in Abbildung 3.19 dargestellt. Der Puls des Pumplasers ist etwa 280 ns (volle Halbwertsbreite) lang, der des geseedeten Titan:Saphir-Lasers etwa 60 ns. Dies ist geringfügig länger als bei den Titan:Saphir-Lasern mit z-Resonator und kommt durch den insgesamt etwas längeren Resonator zustande. Die Verzögerung zwi-



schen Pumpimpuls und Laserimpuls beträgt etwa 240 ns. Diese Zeit, die zum Anschwingen benötigt wird, ist immer kürzer als bei einem ungeseedeten Laser, da zu jedem Zeitpunkt die Photonen des Masterlasers für das Anschwingen des Lasers zur Verfügung

stehen und nicht erst ein spontan emittiertes Photon den Resonator einmal durchlaufen muss. Der Resonator kann nicht mit einem Güteschalter ausgestattet werden, weil er zu jeder Zeit stabilisiert werden muss. Daher ist es notwendig beim kombinierten Betrieb mit anderen Titan:Saphir-Lasern, separate Pump Laser für den geseedeten und die ungeseedeten Laser zu verwenden und die zeitliche Synchronisation über die Zeitpunkte der Pumpulse zu realisieren.

Um die Effizienz des geseedeten Lasers zu bestimmen, wurde die Ausgangsleistung in Vorwärtsrichtung bei 11 W, 13 W und 17 W Pumpleistung für den geseedeten und den ungeseedeten Laser gemessen. Wird der Ringlaser nicht geseedet, verteilt sich die Leistung jeweils zur Hälfte auf beide Richtungen. Aus Abbildung 3.20 ergibt

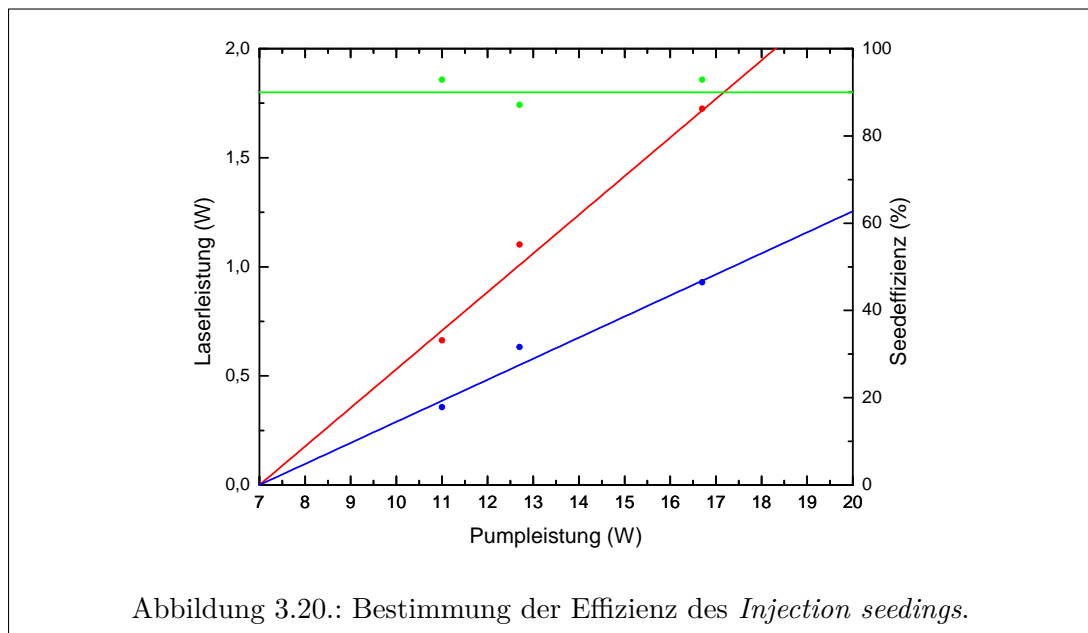


Abbildung 3.20.: Bestimmung der Effizienz des *Injection seedings*.

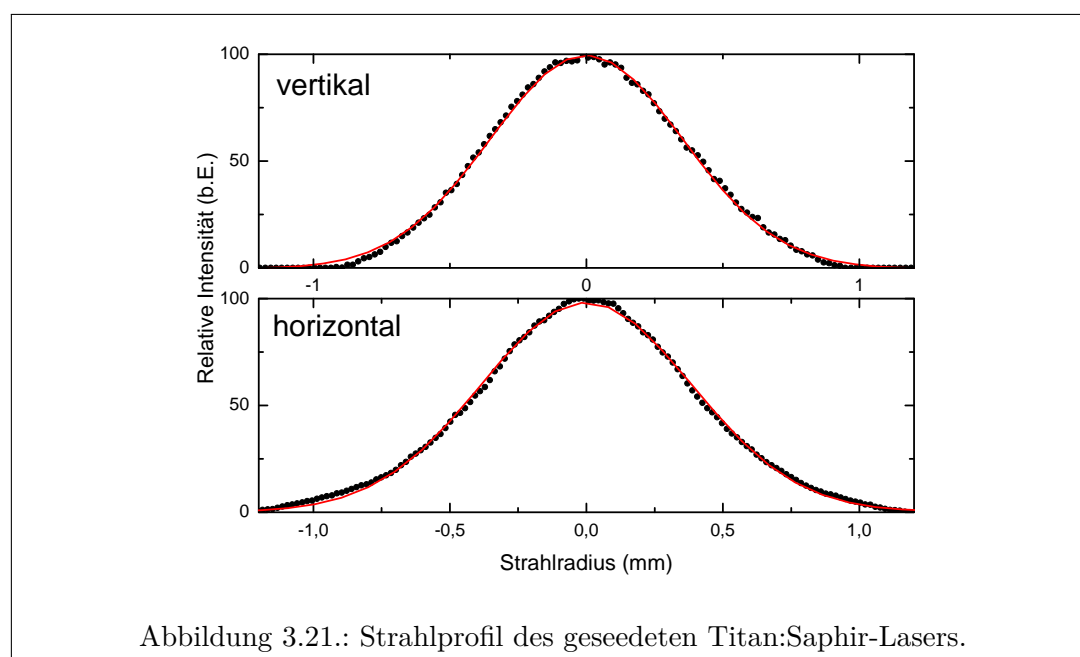
sich für den geseedeten Fall (rote Punkte) eine Laserschwelle von 7,0(7) W und eine differentielle Effizienz von 0,17(2). Der freilaufende Laser (blaue Punkte) besitzt eine nahezu identische Laserschwelle von 6,7(13) W und für eine Richtung eine differentielle Effizienz von 0,09(2). Um die Effizienz des *Injection Seedings* zu bestimmen kann man sich folgende Überlegung zu nutze machen. Im ungeseedeten Fall schwingt der Laser in beide Richtungen an, es ergeben sich zwei Laserstrahlen hinter dem Auskoppelspiegel, auf die sich die Leistung gleichmäßig verteilt. Im geseedeten Fall schwingt der Laser in Richtung des Diodenlasers an. Misst man nun die Leistung in dieser Richtung ergibt sich die Effizienz zu:

$$\epsilon = \frac{P_{geseedet}}{2P_{ungeseedet}} \quad (3.10)$$

Die Effizienz ist unabhängig von der Pumpleistung und liegt bei  $\bar{\epsilon} = 91(2) \%$ . Die Effizienz des Seedings konnte, aufgrund des guten Überlapps der Mode des Masterlasers mit der des Slavelasers, bereits mit einer Leistung von 0,5 mW des Masterlasers gesättigt werden. Es ist dennoch ratsam den Diodenlaser mit der maximal verfügbaren

Ausgangsleistung zu betreiben, da das Signal für die Stabilisierung größer ist und die Stabilisierung dadurch robuster wird.

**Strahlprofil** Das Strahlprofil des geseedeten Titan:Saphir-Lasers wurde 20 cm hinter dem Auskoppelspiegel mit einer CCD Kamera (Ophir Beamstar-V-PCI) aufgenommen. Ein Schnitt in vertikaler und horizontaler Richtung ist in Abbildung 3.21 dargestellt. Man erkennt ein fast perfektes  $TEM_{00}$  Strahlprofil. Folglich lassen sich



Gaußfunktionen an die Messdaten anpassen. Als Strahldurchmesser wird die volle Halbwertsbreite der Strahlprofile angegeben. In vertikaler Richtung ergibt sich ein Durchmesser von 0,84(1) mm und in horizontaler Richtung von 0,91(1) mm. Der Strahl ist leicht elliptisch, was auf eine nicht ganz optimale Astigmatismuskompensation hinweist. Daraus ergaben sich für den Betrieb jedoch keinerlei Einschränkungen. Das Strahlprofil wird durch das Seeden des Lasers nicht beeinflusst und ist nur von der Resonatorgeometrie abhängig.

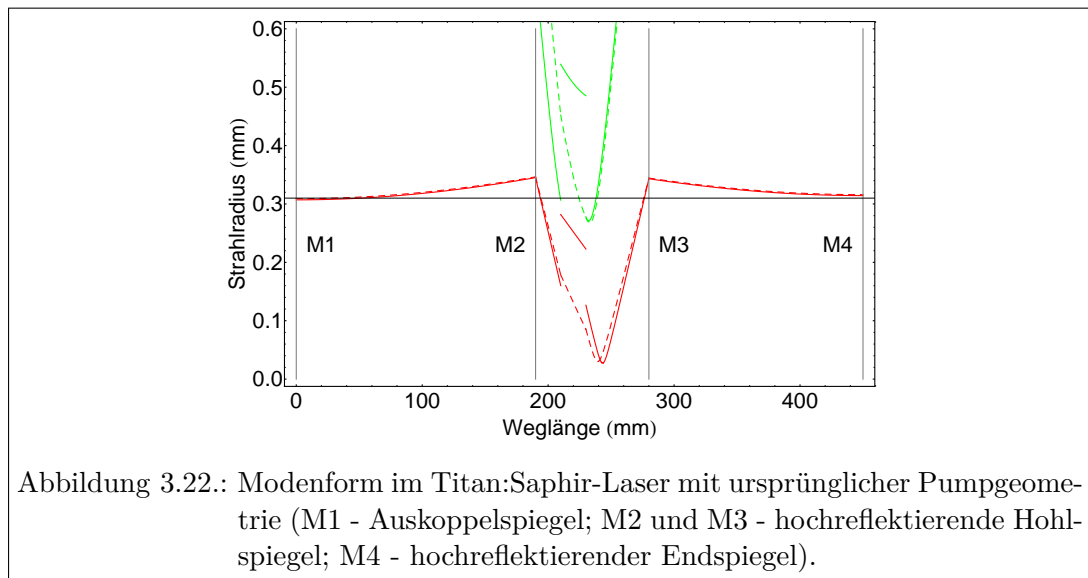
Durch die konsequente Weiterentwicklung des geseedeten Titan:Saphir-Lasers wurde erreicht, dass die Spezifikationen des Lasers weitgehend denen der herkömmlichen Titan:Saphir-Laser entsprechen bei einer deutlich reduzierten Linienbreite von 20 MHz.

### 3.4. Weiterentwicklung des vorhandenen Lasersystems

#### 3.4.1. Veränderung der Pumpgeometrie

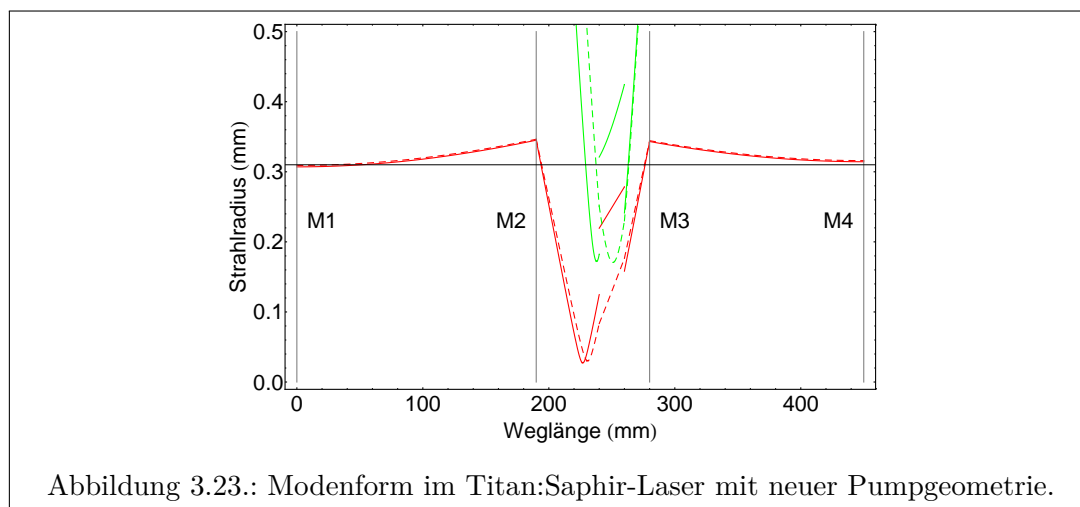
Das Titan:Saphir-Lasersystem wurde mit einem neuen Pumplaser DM532-80 der Firma Photonics Industries ausgestattet. Dieser löst den Pumplaser Orc-1000 von Clark Industries ab. Dieser neue Pumplaser bietet eine mittlere Ausgangsleistung von 90 W bei einer Repetitionsrate von 10 kHz. Die Pulslänge beträgt etwa 150 ns und die Strahlqualität ist mit  $M^2 = 32,4$  angegeben. Der Pumplaser Orc 1000 wurde stets bei einer Repetitionsrate von 7 kHz betrieben, da er dort ein Maximum in der Effizienz erreichte. Die Strahlqualität  $M^2$  dieses Lasers ist stark leistungsabhängig und bereits bei einer moderaten Leistung von 23 W größer als 40 [Kes04].

Die ursprüngliche Pumpgeometrie wurde so gewählt, dass bei gegebenem  $M^2$  des Pumplasers ein möglichst guter räumlicher Überlapp zwischen Pumpstrahl- und Lasermode entstand. Eine ABCD-Rechnung der Modenstruktur ist in Abbildung 3.22 dargestellt. Dabei steht der Titan:Saphir-Kristall in einem Abstand von 5 cm zur



Oberfläche des Hohlspiegels, durch den der Pumpstrahl einfällt. Der Abstand zum anderen Hohlspiegel beträgt dann 2 cm. Der Fokus des Pumpstrahls liegt dabei auf der vorderen Oberfläche des Titan:Saphir-Kristalls. Diese Tatsache limitiert die maximale Pumpleistung aufgrund von möglichen, durch das Licht des Pumplasers hervorgerufenen, Beschädigungen der Kristalloberfläche. Für einen sicheren Betrieb bei einer Repetitionsrate von 7 kHz wurde die maximale Pumpleistung auf 17 W beschränkt. Die Spezifikationen des neuen Pumplasers erlaubten eine Modifikation der Pumpgeometrie. Durch die bessere Strahlqualität ergibt sich beim Vertauschen der Abstände des Kristalls zu den Hohlspiegeln ein besserer Überlapp zwischen den Lasermoden. Der Fokus des Pumplasers liegt nun auf der hinteren Kristalloberfläche, wo bereits ein Großteil der Pumpleistung von dem Kristall absorbiert wurde. Die Leistungsdichte auf

der vorderen Kristalloberfläche reduziert sich aufgrund der größeren Pumpstrahlmode um einen Faktor 0,77. Die Leistungsdichte pro Laserpuls wird zusätzlich durch die



Verwendung einer Repetitionsrate von 10 kHz um den Faktor  $7/10$  vermindert. Somit kann die Pumpleistung prinzipiell auf  $31,5 \text{ W} (= 17 \text{ W} \cdot \frac{10}{7} \cdot \frac{10}{7,7})$  erhöht werden, ohne die Leistungsdichte auf der Kristalloberfläche zu vergrößern. Im laufenden Betrieb wird jedoch mit Pumpleistungen von etwa 25 W gearbeitet. Aus der Möglichkeit mit höheren Pumpleistungen zu arbeiten, ergeben sich folgende Leistungswerte für das Lasersystem:

- fundamental (690 - 950 nm): 3,5 - 5 W<sup>7</sup>
- frequenzverdoppelt (345 - 475 nm): 0,5 - 1 W
- frequenzverdreifacht (230 - 315 nm): 150 - 250 mW
- frequenzvervierfacht (205 - 230 nm): 100 - 150 mW

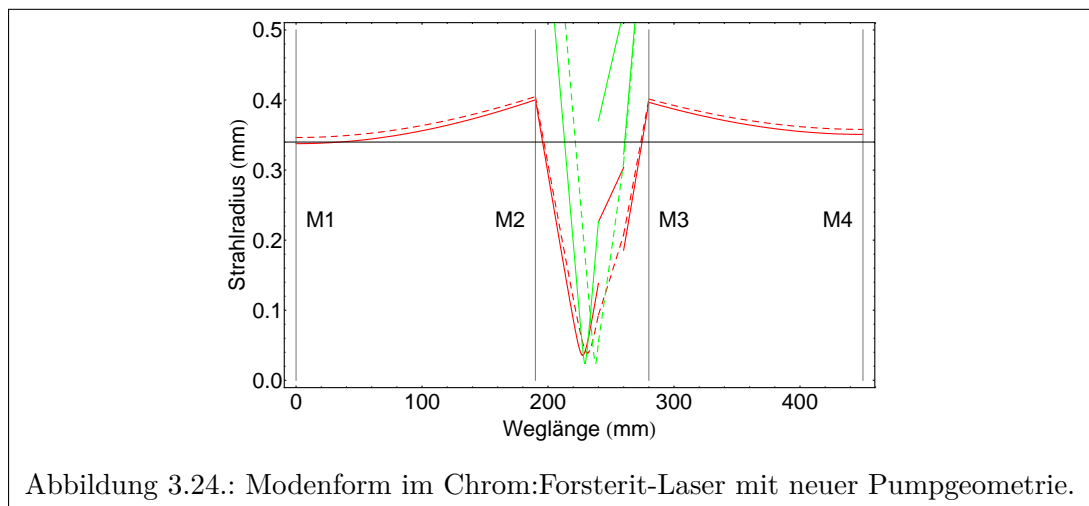
Durch diese Modifikationen an der Pumpgeometrie und der daraus resultierenden Möglichkeit, die Laser mit deutlich höherer Leistung zu pumpen, konnte die zur Verfügung stehende Ausgangsleistung in allen Wellenlängenbereichen mehr als verdoppelt werden. Diese Erhöhung der Leistung ist vor allem mit Blick auf den zukünftigen Einsatz des Lasersystems an on-line Laserionenquellen an ISOLDE oder SPIRAL 2 wichtig. Dort entstehen durch die große räumliche Trennung von Lasersystem und Ionisationsort größere Verluste beim Strahltransport der Laser, die nur durch mehr Ausgangsleistung kompensiert werden können.

<sup>7</sup>Die tatsächlich erreichten Leistungswerte sind abhängig vom Wellenlängenbereich, in dem der Laser betrieben wird.

### 3.5. Chrom:Forsterit-Laser

Zusammen mit und im Rahmen der Diplomarbeit von Sebastian Rothe [Rot09] wurde das vorhandene Lasersystem um einen Chrom:Forsterit-Laser [Sen02] erweitert. Chrom:Forsterit ist ein Mineral aus der Olivin-Gruppe und ermöglicht Lasertätigkeit im Bereich von 1130 nm bis 1367 nm [BKK<sup>+</sup>90]. Chrom:Forsterit besitzt drei Pumpbänder und lässt sich am effektivsten mit dem fundamentalen Licht eines Nd:YAG-Lasers bei einer Wellenlänge von 1064 nm pumpen. Durch die Frequenzverdopplung des Lichts eines Chrom:Forsterit-Lasers lassen sich Wellenlängen von 565 nm bis 683,5 nm erzeugen. Der Wellenlängenbereich liegt gerade in einem Bereich des sichtbaren Spektrums, der für Titan:Saphir-Laser unzugänglich ist.

Um ähnliche Spezifikationen wie bei den Titan:Saphir-Lasern zu erhalten, wurde der gleiche Resonator für den Chrom:Forsterit-Laser verwendet. Die ABCD-Rechnung in Abbildung 3.24 zeigt, dass die ausgekoppelte Mode des Chrom:Forsterit Lasers um etwa 10 % größer ist und einen leichten Astigmatismus aufweist. Für den Laserbetrieb



und die weiteren Spezifikationen stellt dies keine Einschränkung dar. Für den Laser wurden Resonatorspiegel der Firma CVI verwendet, die für den Bereich von 1220 nm bis 1270 nm hochreflektierend beschichtet waren. Als frequenzselektive Elemente wurden ein Lyotfilter und ein Etalon verwendet, wie sie auch in den Titan:Saphir-Lasern zum Einsatz kommen. Als Pump Laser wurde ein Mirus MI-020 der Firma Northrop Grumman eingesetzt. Dieser Laser emittiert Laserlicht bei einer Wellenlänge von 1064 nm mit Repetitionsraten von bis zu 50 kHz. Er liefert eine maximale Ausgangsleistung von bis zu 25 W und besitzt eine Strahlqualität von  $M^2 < 1,3$ . Durch den nachträglichen Einbau von Brewsterflächen ist das Laserlicht p-polarisiert.

Bei einem ersten Test des Chrom:Forsterit-Lasers wurde eine starke Abhängigkeit der Laserleistung von der Kristalltemperatur festgestellt (siehe Abbildung 3.25 (b)). Daher wurde eine Kühlung des Kristalls mit Peltierelementen realisiert. Diese ermöglichte eine Kristalltemperatur von  $-8^\circ\text{C}$  während des Betriebs.

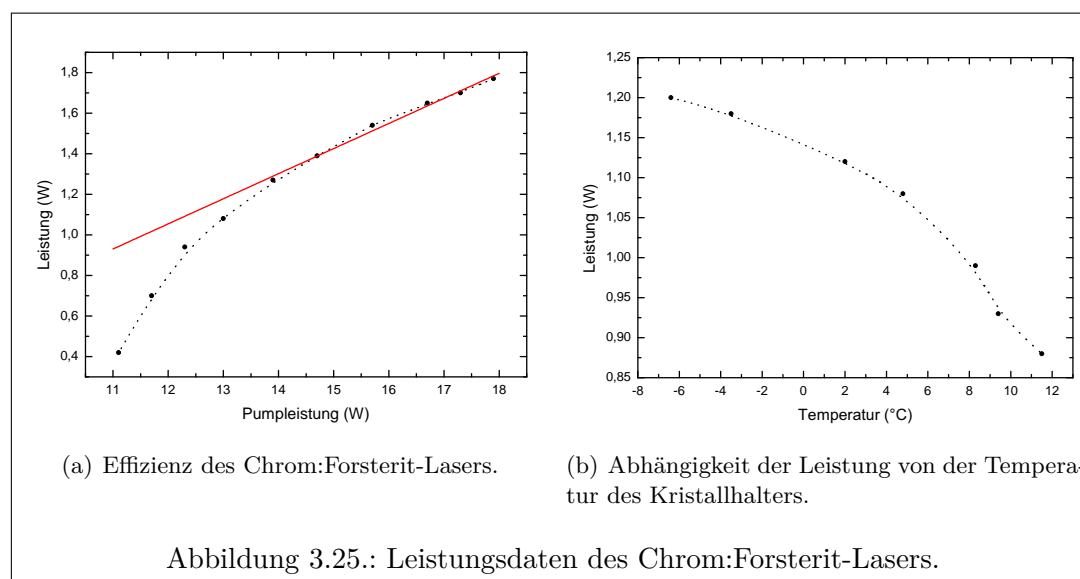
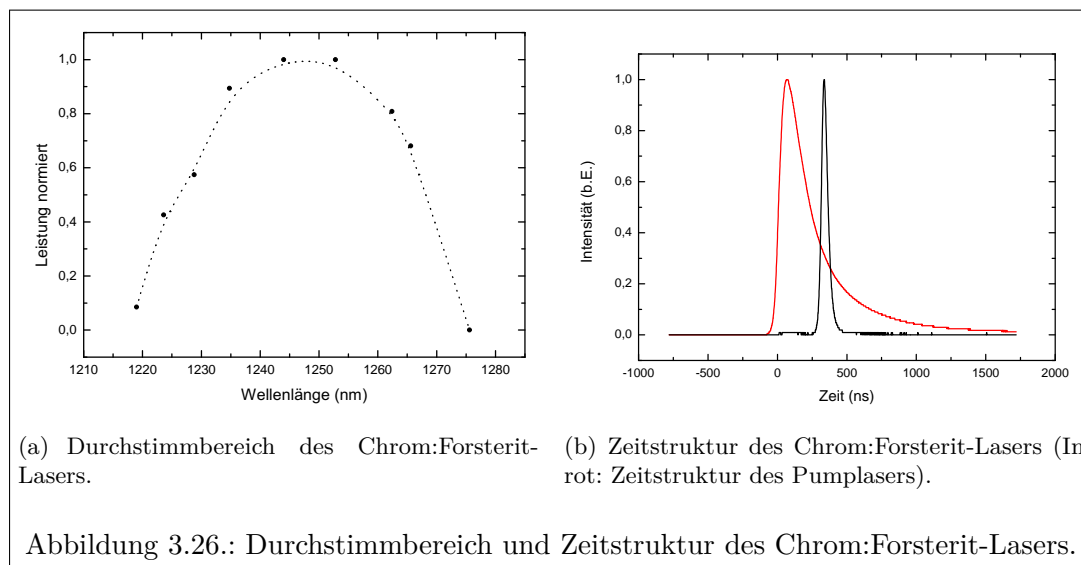


Abbildung 3.25.: Leistungsdaten des Chrom:Forsterit-Lasers.

Bei einer Repetitionsrate von 10 kHz wurde eine maximale Ausgangsleistung ohne frequenzselektive Elemente von 1,8 W erreicht. Abbildung 3.25 (a) zeigt die Abhängigkeit der Ausgangsleistung von der Pumpleistung. Die Abweichung von einem linearen Verlauf wird mit dem wesentlich größeren Temperaturgradienten im Chrom:Forsterit-Kristall als im Titan:Saphir-Kristall erklärt<sup>8</sup>. Dies führt zu der Ausprägung einer thermischen Linse, die die Modenform im Resonator beeinflusst. Der Resonator war bei der Messung für hohe Pumpleistungen optimiert. Im linearen Teil ergibt sich eine differentielle Effizienz von 12,4 %. Der Durchstimmbereich ist maßgeblich durch die verwendeten Spiegel limitiert. Abbildung 3.26 (a) zeigt den Bereich in dem mit den verwendeten Spiegeln ein Laserbetrieb möglich war. Er reicht von 1219 nm bis 1275 nm. Mit dem Einsatz der frequenzselektiven Elemente sank die maximal erreichbare Ausgangsleistung auf 1,2 W, dabei ist zu beachten, dass weder Lyotfilter noch Etalon für die Verwendung in diesem Wellenlängenbereich optimiert waren. Durch Frequenzverdopplung in einem BIBO-Kristall (Bismuttriborat,  $\text{BiB}_3\text{O}_6$ ) konnte Laserlicht mit Wellenlängen zwischen 610 nm und 637 nm mit einer maximalen Ausgangsleistung von 150 mW erzeugt werden. Die Zeitstruktur des Chrom:Forsterit-Lasers ist in Abbildung 3.26 (b) dargestellt. Die Breite des Chrom:Forsterit-Laserpulses beträgt 51 ns und ist somit nur geringfügig größer als die des Titan:Saphir-Lasers.

Die Resonanzionisation von Silizium war ein Test des kombinierten Lasersystems. Ein gewähltes Anregungsschema ist in Abbildung 3.27 (a) gezeigt. Es wurde ein frequenzvervierfacher Titan:Saphir-Laser und der frequenzverdoppelte Chrom:Forsterit-Laser verwendet. Abbildung 3.27 (b) zeigt den Laserscan des zweiten Anregungsschemas mit dem Chrom:Forsterit-Laser. Neben dem eigentlich gewählten Übergang liegen

<sup>8</sup>Zum Einen ist der Temperaturunterschied zwischen Kristallmitte und Außenseite aufgrund der starken Kühlung höher, zum Anderen ist die Wärmeleitfähigkeit des Chrom:Forsterit-Kristalls um einen Faktor 4,25 geringer als der des Titan:Saphir-Kristalls.



noch zwei weitere Übergänge, die ebenfalls in der Literatur verzeichnet sind. Die Resonanzionisation mit dem kombinierten Lasersystem bestehend aus Titan:Saphir- und Chrom:Forsterit-Laser konnte erfolgreich demonstriert werden.

Resonanz	Wellenzahl [ $\text{cm}^{-1}$ ]		Abweichung [ $\text{cm}^{-1}$ ]
	gemessen	Literaturwert [RA65]	
1	15981,84	15981,58	+0,26
2	15983,32	15983,18	+0,14
3	15984,98	15984,87	+0,11

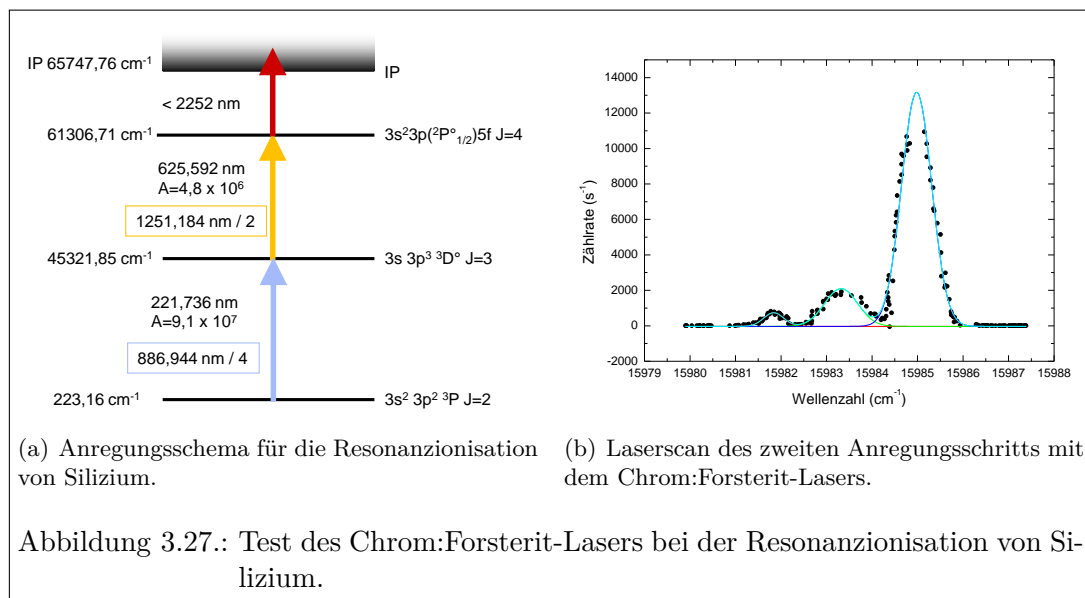
Tabelle 3.2.: Laserscan mit dem Chrom:Forsterit-Laser.

### 3.6. Mainzer Atomstrahlapparatur

Alle spektroskopischen Untersuchungen wurden in der MABU (engl. für *Mainz atomic beam unit*) durchgeführt. Sie entspricht im Wesentlichen der Apparatur, wie sie für die Ultraspurenanalyse von  $^{41}\text{Ca}$  eingesetzt wurde [Wil02, Gep06]. Der genaue Aufbau und die Spezifizierung der Apparatur wird in der Dissertation von Sebastian Raeder beschrieben [Rae10]. Die wichtigsten Einzelheiten der Apparatur werden im Folgenden näher erläutert.

Der gesamte Aufbau der MABU ist in Abbildung 3.29 dargestellt. Er unterteilt sich in drei wesentliche Bereiche:

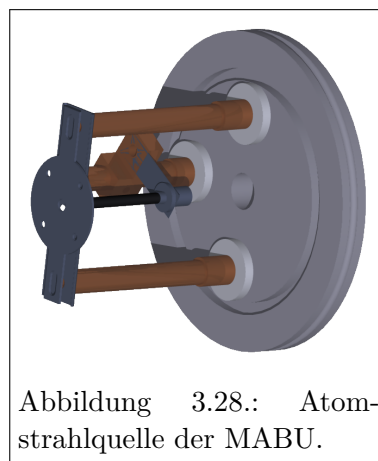
1. Die Quellenregion
2. Die Ionenoptik und den Quadrupolmolenker



### 3. Den Quadrupolmassenfilter und den Detektor

Die Atomstrahlquelle besteht aus einem 50 mm langen Graphitrohr mit einem Innendurchmesser von 2,2 mm. Das Graphitrohr wird mit einer Blattfeder aus Tantal gegen ein Tantalblech gedrückt. Die Tantalfeder und das Tantalblech dienen gleichzeitig als elektrische Zuleitungen.

Das Graphitrohr wird resistiv mit Strömen bis zu 130 A geheizt. So können Temperaturen deutlich über 2000° C erreicht werden. Abbildung 3.28 zeigt die Quellenregion im Detail. Der Graphitofen existiert in zwei Varianten. Für die Spektroskopie wird meist ein offenes Rohr verwendet, so dass die Laser den Ofen passieren können. Dies vereinfacht die Justage der Laser und ist für die Zwei-Photonen-Spektroskopie unerlässlich. Um Verluste der Probe bei effizienzkritischen Anwendungen zu vermeiden, wird ein Rohr mit einem Steg in der Mitte verwendet. Während des Betriebs wird um den Ofen ein Hitzeschild aus Tantalfolie gewickelt. Der gesamte Quellenaufbau ist an einem Vakuumflansch mit einem Durchmesser von 100 mm angebracht. In der Mitte des Flansches ist ein Fenster angebracht, so dass die Laserstrahlen die Vakuumapparatur wieder verlassen können und wenn gewünscht, wieder zurückreflektiert werden können.



Die Ionenoptik besteht aus zwei Extraktionselektroden, die die Ionen mit wenigen 100 V beschleunigen und einem System aus Einzellinsen, das den Ionenstrahl formt und für einen optimalen Eintritt in den Quadrupolumlenker [ML90] sorgt. Dieser lenkt

den Ionenstrahl um  $90^\circ$  ab um möglichen neutralen Untergrund abzutrennen. Eine weitere Linse formt den Ionenstrahl, um eine möglichst große Akzeptanz durch den Quadrupolmassenfilter zu erreichen.

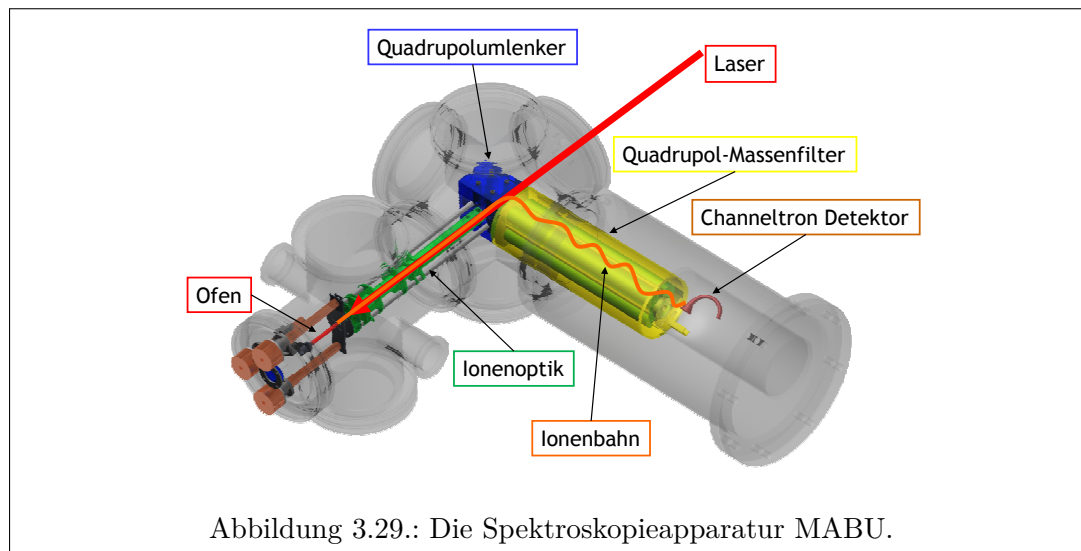


Abbildung 3.29.: Die Spektroskopieapparatur MABU.

Der Quadrupolmassenfilter ist ein kommerzielles Gerät der Firma ABB Extrel. Es besteht im wesentlichen aus vier zylindrischen Molybdänstäben mit einem Radius von 9,39 mm und einer Länge von 210,1 mm, die das Quadrupolfeld mit einem freien Feldradius von 8,33 mm erzeugen. Um den Ionenstrahl zu fokussieren und um das Quadrupolfeld abzuschirmen, sitzen am Anfang und Ende des Stabsystems Linsen. Zusätzlich sind noch vier Korrekturstäbe angebracht, um Feldfehler zu minimieren. Das System wurde aufgrund seiner Vorzüge bezüglich Nachbarmassenunterdrückung, Transmission und insbesondere seiner kompakten Größe ausgewählt. Das Netzgerät des Massenfilters erzeugt eine Überlagerung einer Gleichspannung von bis zu 1000 V und einer Wechselspannung mit einer Frequenz von 1,2 MHz und einer maximalen Amplitude von 5000 V. Dies ermöglicht den Betrieb in einem Massenbereich von 0 u bis 300 u.

Die Ionen werden mit Hilfe eines Channeltron Detektors nachgewiesen. Der Channeltron Detektor besteht aus einem trichterförmigen, gebogenen Glas auf dessen Innenseite eine Halbleiterschicht aufgebracht ist. Zwischen der Öffnung und dem Ende des Trichters (Abstand etwa 30 mm) wird eine Spannung von ungefähr 2000 V angelegt. Der kontinuierliche Spannungsabfall wirkt im Zusammenhang mit der Geometrie wie ein Sekundärelektronenvervielfacher. Einzelne Ionen setzen Elektronen frei, die auf messbare Strompulse verstärkt werden. Ein Diskriminator wandelt diese Pulse in TTL-Signale um, die von einem Zähler ausgewertet werden.

### 3.7. Messsystem Gesamtaufbau

Das gesamte Messsystem ist in Abbildung 3.30 abgebildet. Auf dem hinteren Lasertisch (A) sind die Pumplaser (2x Orc-1000, 1x Mirus) aufgestellt. Auf dem Lasertisch im Vordergrund ist das Lasersystem mit zwei herkömmlichen Titan:Saphier Lasern (B) und dem Gitterlaser (C) sowie die Frequenzvervielfachungseinheit (D) zu sehen. Die weiteren Spiegel und Teleskope auf dem Lasertisch dienen dem Strahltransport in die Vakuumapparatur (E). Der Auf dem Bild gezeigte Aufbau wurde für die Rydberg-spektroskopie an Technetium verwendet. Für andere spektroskopische Anwendungen muss das Lasersystem entsprechend umgebaut werden.

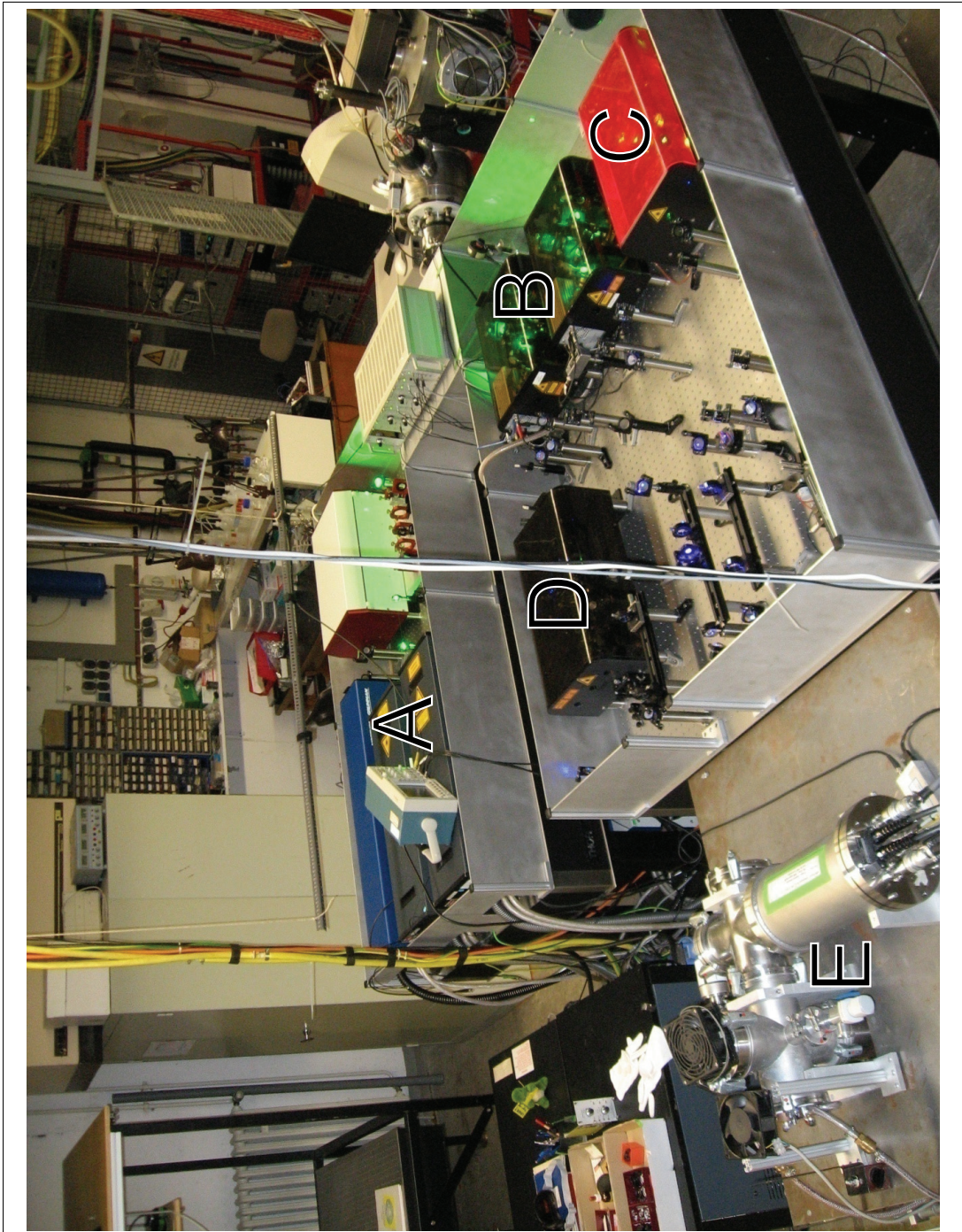


Abbildung 3.30.: Lasersystem und Vakuumapparatur für spektroskopische Untersuchungen.

---

## Kapitel 4.

# Spektroskopie an Gold, Technetium und Silizium

---

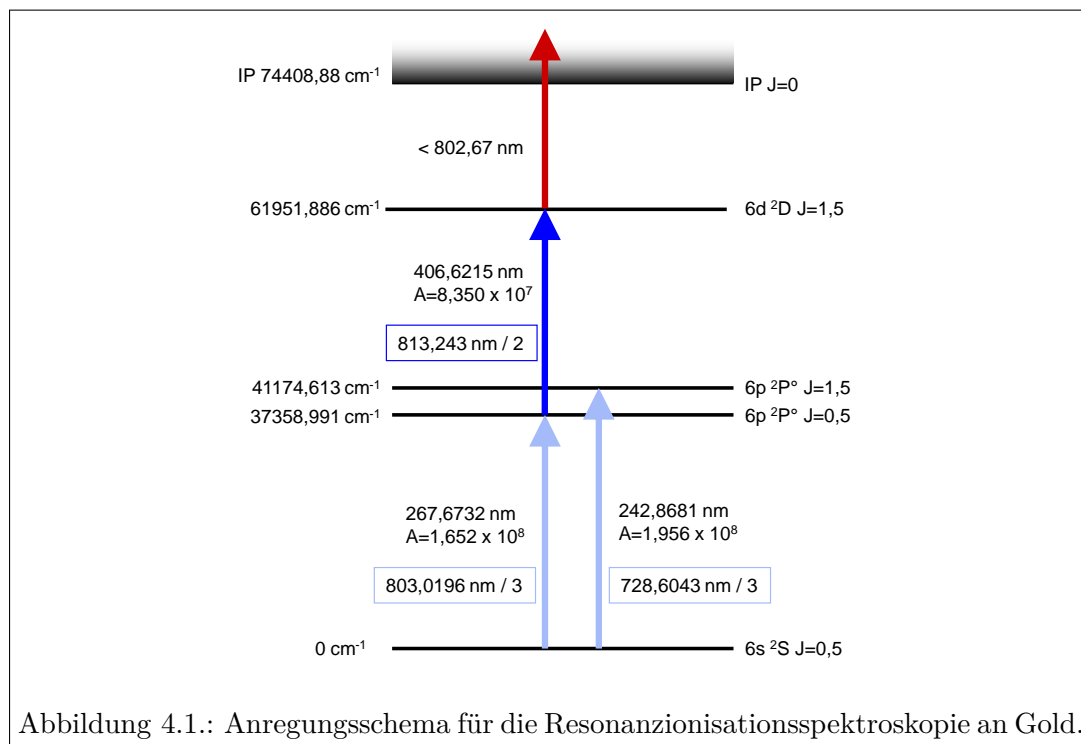
### 4.1. Rydbergspektroskopie an Gold

Um die prinzipielle Eignung des experimentellen Aufbaus von Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator in Kombination mit der MABU für die Atomspektroskopie, speziell die Bestimmung von Ionisationspotentialen, zu überprüfen, wurden Rydbergniveaus in Gold spektroskopiert und aus deren Lage das Ionisationspotential von Gold ermittelt.

#### 4.1.1. Experimenteller Aufbau

Gemäß Abbildung 4.1 wird für die Resonanzionisationsspektroskopie an Gold ( $^{199}\text{Au}$ ,  $I=3/2$ ) Laserlicht bei einer Wellenlänge von 267,6732 nm für den ersten Anregungsschritt und bei 406,6215 nm für den zweiten Anregungsschritt verwendet. Damit wird über das  $6p\ ^2P_{3/2}$  Zwischenniveau das  $6d\ ^2D_{5/2}$  Niveau bei  $61951,886\ \text{cm}^{-1}$  bevölkert. Die Übergänge besitzen eine große Übergangsstärke [HLL81, Mig78], was eine effiziente Anregung ermöglicht. Um die Rydbergzustände unterhalb des Ionisationspotentials zu bevölkern, wird Laserlicht mit Wellenlängen größer als 802,67 nm benötigt. Zur Erzeugung des Laserlichts mit den benötigten Wellenlängen wurden zwei standardmäßige Titan:Saphir-Laser und der Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator verwendet. Um die Wellenlängen im ultravioletten und blauen Spektralbereich zu erreichen wurden die konventionellen Titan:Saphir-Laser in ihrer Frequenz verdreifacht, respektive verdoppelt. Da der Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator nicht über einen Güteschalter verfügt, wurde dieser mit einem separaten Pumplaser betrieben, so dass eine zeitliche Synchronisation über den Zeitpunkt des Pumplaserpulses realisiert werden konnte. Die beiden anderen Titan:Saphir-Laser wurden mit einem Pumplaser betrieben und über die resonatorinterne Pockelszelle synchronisiert.

Die Probe wurde aus einer Goldnitratlösung hergestellt, welche auf Titanfolie aufgetropft und getrocknet wurde. Die Folie wurde anschließend direkt im Ofen der MABU platziert. Die Laserstrahlen wurden einzeln mittels Teleskopen in den Ofen fokussiert, wobei die individuellen Laserstrahlen mit Hilfe dichroitischer Spiegel überlagert wurden, um einen idealen Überlapp zwischen den einzelnen Laserstrahlen am Ionisationsort zu erzielen. Abbildung 4.2 stellt diesen Aufbau schematisch dar. Für den ersten

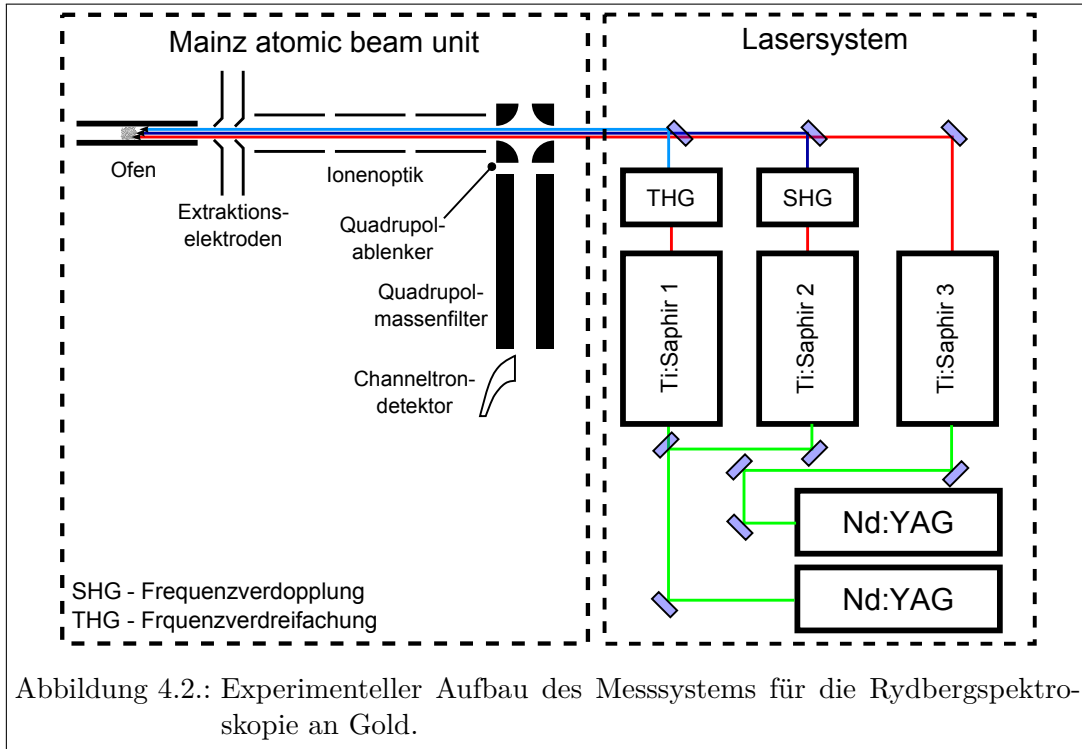


Anregungsschritt stand eine Laserleistung von 22,0(1) mW zur Verfügung und für den zweiten 300(10) mW. Die Laserleistung des Gitterlasers ist, wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, stark von der Wellenlänge abhängig. Für die spektroskopischen Messungen wurden die Leistungen der Laser für den ersten und zweiten Anregungsschritt deutlich abgeschwächt um Untergrund, der aufgrund nicht resonanter Ionisation durch einen der beiden Laser entsteht, zu verringern. Es wurde mit einer Laserleistung von etwa 2,3 mW bei 267 nm und etwa 3,2 mW bei 406 nm gearbeitet. Der Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator wurde kontinuierlich von etwa 797 nm bis 983 nm verstimmt und es wurde die Wellenlänge des Lasers und das Ionensignal aufgenommen.

#### 4.1.2. Auswertung der Rydbergzustände in Gold

Vor der eigentlichen Rydbergspektroskopie wurden die beiden Übergänge in die intermediären Zustände untersucht. Der Laserscan des ersten Zustands ist in Abbildung 4.3 (a) abgebildet. An die Messdaten wurde eine Gaußfunktion angepasst, das Maximum liegt bei 37358,93(14)  $\text{cm}^{-1}$ . Die volle Halbwertsbreite des Laserscans beträgt 0,56  $\text{cm}^{-1}$  bzw. 16,8 GHz. Die Lage des Übergangs weicht um -0,06  $\text{cm}^{-1}$  vom Literaturwert [ED71] ab und liegt im Rahmen der Messfehler. Für diesen Zustand und den verwendeten Aufbau wurde die Sättigungsleistung für diesen Übergang bestimmt. Dazu wurde die Zählrate der Photoionen in Abhängigkeit der Leistung des ersten An-

<sup>1</sup>Der Fehler auf den Messwert ist im wesentlichen durch die Genauigkeit des Wavemeteres gegeben. Dieser beträgt 0,14  $\text{cm}^{-1}$ , der Fit liefert einen Fehler auf die Lage von 0,002  $\text{cm}^{-1}$ .

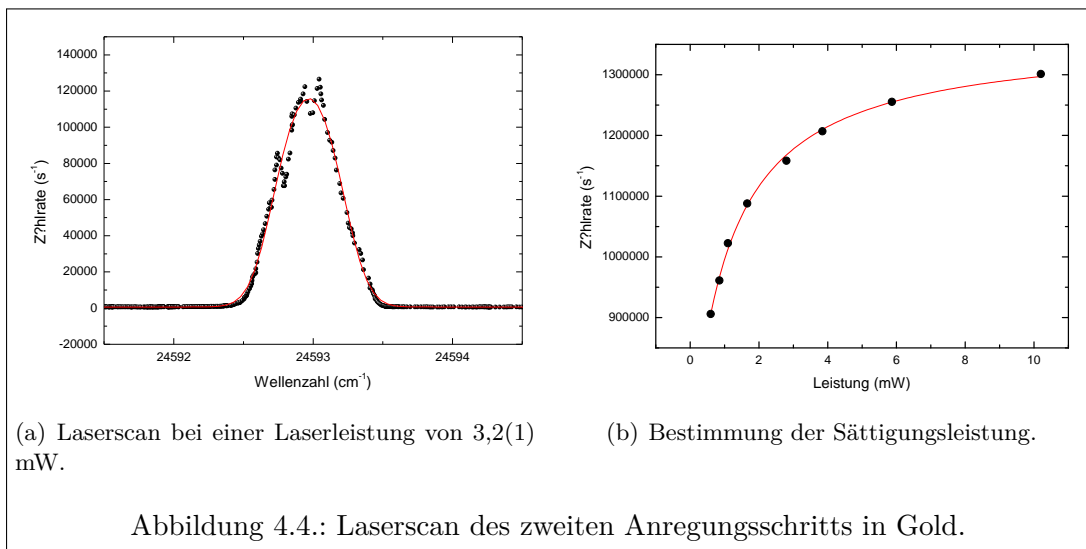
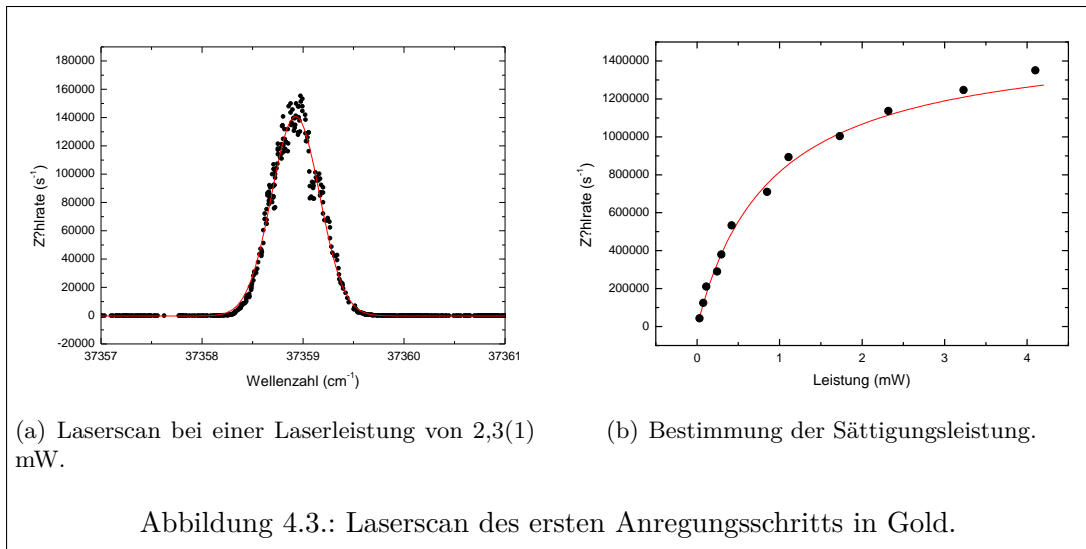


regungsschritts aufgenommen. Die Abhängigkeit ist in Abbildung 4.3 (b) dargestellt. Die Sättigungsleistung wird gemäß Gleichung 2.26 bestimmt über:

$$I = I_0 + A \frac{P/P_{Sat}}{P/P_{Sat} + 1}. \quad (4.1)$$

Die Sättigungsleistung  $P_{Sat}$  gibt an, welche Leistung notwendig ist, um 50 % des maximalen Ionensignals (bei unendlich großer Leistung) zu erreichen und  $I_0$  ist ein konstanter Untergrund. Für den ersten Anregungsschritt in Gold liegt die Sättigungsleistung bei 0,9(1) mW. Der Übergang ließ sich demnach mit der zur Verfügung stehenden Leistung von 22 mW sehr gut sättigen und bei der verwendeten Leistung von 2,3 mW mussten kaum Einbußen im Ionensignal hingenommen werden.

Abbildung 4.4 (a) zeigt den Laserscan des zweiten Anregungsschritts. Hier wurde ebenfalls eine Gaußkurve an die Daten angepasst. Ihr Zentrum liegt bei 24592,97(14)  $\text{cm}^{-1}$  bei einer vollen Halbwertsbreite von 0,45  $\text{cm}^{-1}$  entsprechend 13,5 GHz. Der Wert für die Energie des Übergangs weicht zum Literaturwert [ED71] um +0,07  $\text{cm}^{-1}$  ab. Auch hier ist die Abweichung mit den Messfehlern verträglich und die Gesamtenergie der Anregung mit beiden Lasern entspricht fast exakt dem Literaturwert. Die Sättigungsleistung für diesen Übergang wurde aus dem Graphen in Abbildung 4.4 (b) zu  $P_{Sat}=1,0(2)$  mW bestimmt. Aufgrund der A-Faktoren für die Übergänge erwartet man eine Sättigungsleistung von etwa 1,8 mW. Dieser Unterschied kann einerseits durch das bessere Strahlprofil des frequenzverdoppelten Laser erklärt werden, andererseits



spielen hier experimentelle Gründe eine wichtige Rolle. Es kann nicht gewährleistet werden, dass der Überlapp von Atom- und Laserstrahl für beide Laser gleich ist, somit ist eine Vergleichbarkeit nicht gegeben.

Der Laserscan des dritten Anregungsschrittes ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Durch die Reduktion der Laserleistung für die ersten beiden Anregungsschritte konnte ein sehr geringer Untergrund erreicht werden, da hinreichend wenig Laserleistung für nicht resonante Ionisation zur Verfügung stand. Der Kontrast zwischen den Rydbergresonanzen und dem Untergrundlevel ist dementsprechend gut. Die Rydbergresonanzen nah am Ionisationspotential wurden zusätzlich mit reduzierter Laserleistung im dritten Anregungsschritt aufgenommen. Abbildung 4.6 zeigt diesen Laserscan. Der Verlauf zum Bereich nicht resonanter Ionisation verläuft wesentlich flacher und ermöglicht eine übersichtlichere Darstellung der Rydbergzustände nahe dem Ionisationspotential.

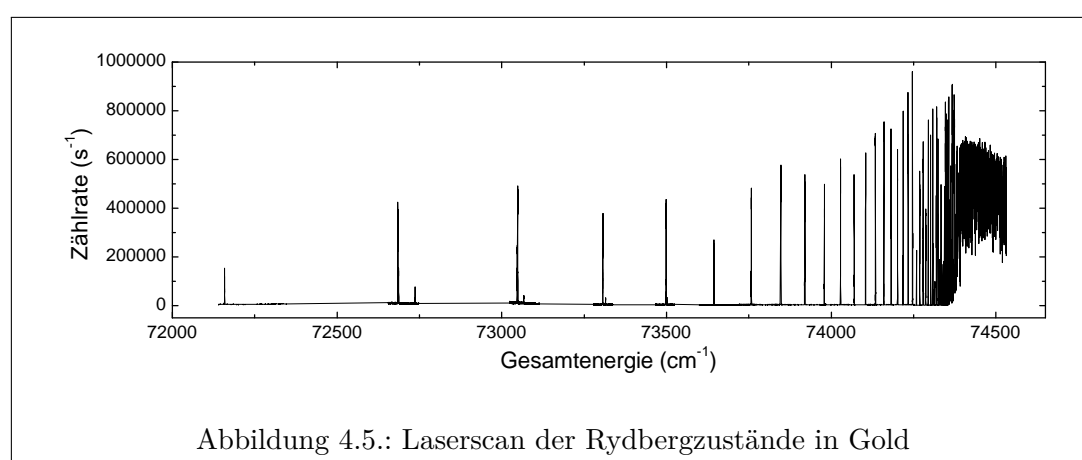


Abbildung 4.5.: Laserscan der Rydbergzustände in Gold

Der Laserscan zur Bestimmung der energetischen Lage der Rydbergzustände wurde zweimal durchgeführt. Insgesamt konnten 40 Rydbergresonanzen ausgewertet werden. Zu diesem Zweck wurde an jede Resonanz eine Gaußfunktion angepasst und die Photonenenergie des Lasers auf Resonanz bestimmt. Um die Gesamtenergie des Zustands zu bestimmen, wurde der Literaturwert für die Energie des angeregten  $6d\ ^2D_{3/2}$  Zustands addiert.

Die Konfiguration der Rydbergzustände konnte nicht eindeutig ermittelt werden. Aus der Konfiguration des zweiten angeregten Zustands und den Auswahlregeln für erlaubte Übergänge ergeben sich drei Möglichkeiten für die Konfiguration der Rydbergserie. Es kann eine np-Serie mit einem Drehimpuls von  $J=1/2$  oder  $J=3/2$  sowie eine nf-Serie mit einem Drehimpuls von  $J=5/2$  angeregt werden. Alle aus der Literatur bekannten Zustände mit dieser Konfiguration sind in Tabelle 4.1 aufgeführt. Die aus dem Rydberg-Ritz Fit ermittelten B-Faktoren von  $-0,27(4)$  und  $-0,40(5)$  deuten auf eine nf Serie hin (vgl. [WS87]). Um die Zugehörigkeit zu einer der drei möglichen Serien zu überprüfen, wurde die aus der Literatur bekannten Werte in den Fit der Rydberg-Ritz Formel an die experimentellen Daten integriert. Dafür wurde die Rydberg-Ritz

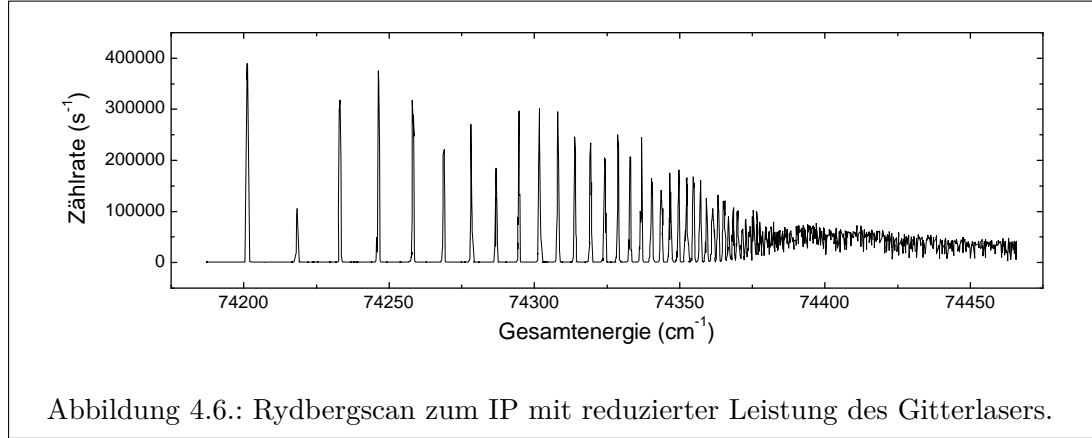


Abbildung 4.6.: Rydbergscan zum IP mit reduzierter Leistung des Gitterlasers.

$n$	$nf \ J=5/2: E \ [cm^{-1}]$	$np \ J=0,5: E \ [cm^{-1}]$	$np \ J=1,5: E \ [cm^{-1}]$
5	67490,0	-	-
6	-	37358,991	41174,613
7	-	60032,85	60728,49
8	-	66935,76	67487,11
9	-	69648,28	69969,89

Tabelle 4.1.: Mögliche Bandenköpfe in Gold (Referenzen: nf [Moo58], np [CB62]).

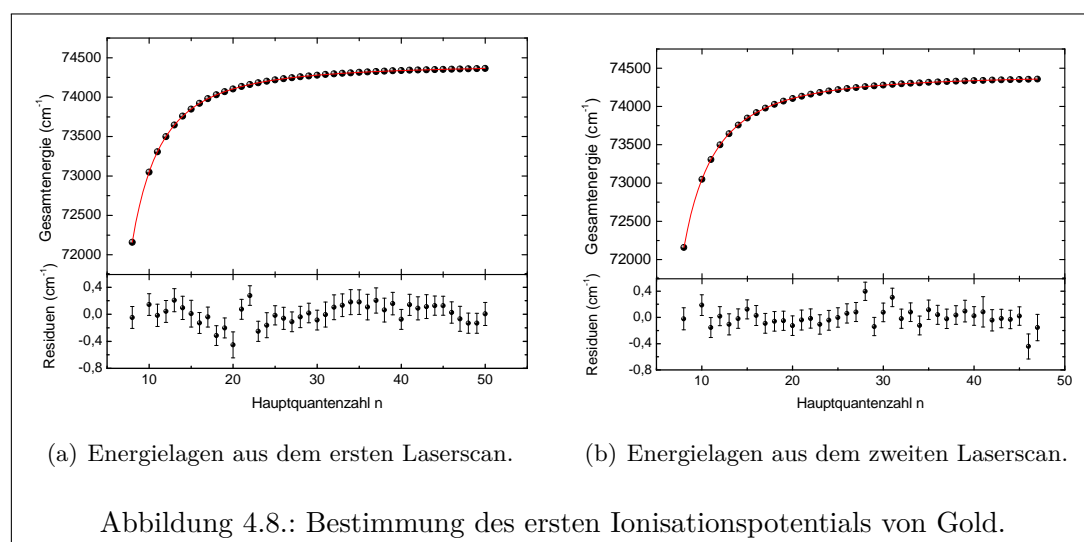
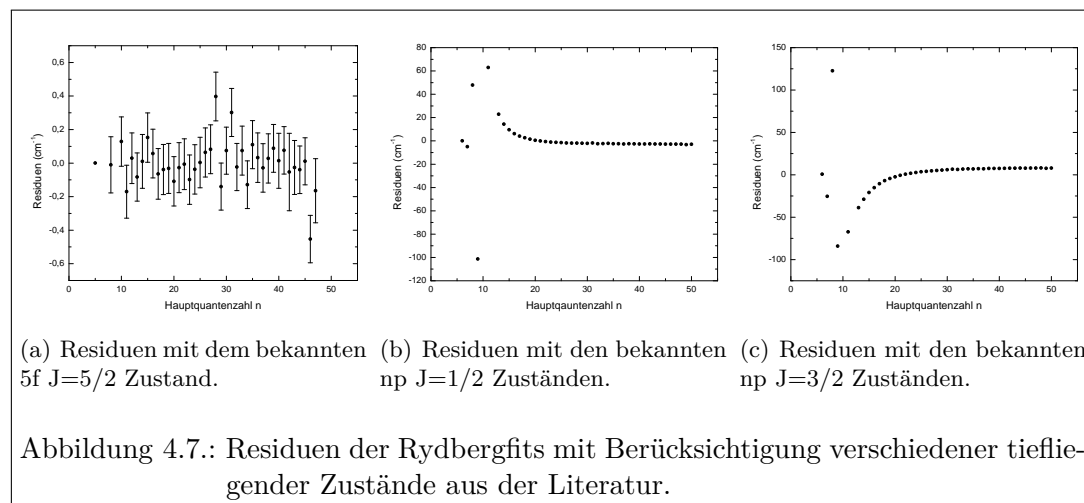
Formel in der Form

$$E_n = E_{IP} - \frac{R_M}{(n - \delta(n))^2} \quad \text{mit} \quad \delta(n) = A + \frac{B}{(n - A)^2} + \frac{C}{(n - A)^4} \quad (4.2)$$

verwendet. Die Ritz-Entwicklung in 2. Ordnung trägt dem Unterschied des effektiven Potentials von dem Potential einer Punktladung für niedrigere  $n$  Rechnung. Abbildung 4.7 zeigt die Residuen des Fits an die Messdaten mit den jeweils unterschiedlichen Literaturwerten. Aus der Abbildung 4.7 wird deutlich, dass nur der Zustand  $5f \ J=5/2$  mit den Messdaten verträglich ist. Bei dem Fit an die Daten ergibt sich ein Quantendefekt von  $\delta = 1$ . Dies ist für eine f-Serie ungewöhnlich, man erwartet normalerweise einen Quantendefekt von  $\delta = 0$ . Es bleibt daher eine Unsicherheit bei der Bestimmung der Konfiguration der gefundenen Rydbergserie, aufgrund der guten Übereinstimmung des  $5f$  Zustands mit den experimentellen Daten kann aber davon ausgegangen werden, dass die Rydbergniveaus die Konfiguration  $5d^{10} \ nf$  mit  $J=5/2$  besitzen. Der ungewöhnliche Quantendefekt kann mit den in dieser Arbeit gewonnenen Daten nicht genauer untersucht werden.

#### 4.1.3. Bestimmung des Ionisationspotentials von Gold

Zur Bestimmung des Ionisationspotentials wurden die ermittelten Energielagen gegen die Hauptquantenzahl  $n$  aufgetragen. Dabei ist anzumerken, dass der absolute Wert von  $n$  nicht definitiv ermittelt werden konnte, aber auch keinen Einfluss auf das



berechnete Ionisationspotential hat. Abbildung 4.8 zeigt die Anpassung der Rydberg-Ritz Formel 2.73 an zwei separat gemessene Datensätze. Als Mittelwert beider Messungen für das Ionisationspotential von Gold ergab sich  $V_{IP} = 74409,14(35)\text{ cm}^{-1}$  entsprechend  $9,225557(43)\text{ eV}$ . Bei der Bestimmung des Mittelwerts wurden folgende einzelne Werte für das Ionisationspotential verwendet:  $V_{IP}^{(1)} = 74409,27(45)\text{ cm}^{-1}$  und  $V_{IP}^{(2)} = 74409,01(45)\text{ cm}^{-1}$ . Die Fehler setzen sich jeweils aus einer Unsicherheit der Energie der ersten beiden Anregungslaser von  $0,35\text{ cm}^{-1}$ , dem Fehler aus dem Rydberg-Ritz Fit von jeweils  $0,03\text{ cm}^{-1}$  und der Unsicherheit in der Wellenlängenbestimmung von  $0,1\text{ cm}^{-1}$  für den Gitterlaser zusammen. Tabelle 4.2 zeigt einen Vergleich mit den in der Literatur vorhandenen Werten für das Ionisationspotential. Dieser zeigt eine hervorragende Übereinstimmung mit den akzeptierten Werten für das Ionisationspotential von Gold. Die Eignung der MABU in Kombination mit dem neu entwickelten

$V_{IP}$	Referenz
74409,14(35) $\text{cm}^{-1}$	diese Arbeit
74410,00 $\text{cm}^{-1}$	[PS41]
74408,88(17) $\text{cm}^{-1}$	[BG78]
74409,00(20) $\text{cm}^{-1}$	[LBS99]

Tabelle 4.2.: Vergleich des gemessenen Ionisationspotentials für Gold mit den Literaturwerten.

Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator zur Bestimmung von Ionisationspotentialen konnte somit erfolgreich demonstriert werden.

## 4.2. Rydbergspektroskopie an Technetium

Bereits Ende der 80er Jahre wurde am Institut für Kernchemie der Universität Mainz die Resonanzionisations-Massenspektrometrie an Technetium zur Ultrapurenanalyse erfolgreich demonstriert. Dabei wurde ein Farbstofflasersystem und ein Mattauch-Herzog Massenspektrometer verwendet [ABJ<sup>+</sup>90, Rim89, WEH<sup>+</sup>96]. Als Folgeprojekt wurde im Rahmen der Dissertation von Katja Wies in der Arbeitsgruppe LARISSA die Resonanzionisations-Massenspektrometrie an Technetium mit dem in der Gruppe zur Verfügung stehenden Titan:Saphir-Lasersystem entwickelt [Wie06]. Ziel dieser Entwicklung war es, ein möglichst effizientes und selektives Anregungsschema und somit eine entsprechend gute Nachweisgrenze für die Ultrapurenbestimmung zu erhalten. In der Literatur findet man erste Untersuchungen an Technetium mittels RIMS von Downey, Nogar und Miller aus den Jahren 1983 und 1984 [NMDS83, DNM84] mit dem Ziel, Isotopenverhältnisse von <sup>97</sup>Tc, <sup>98</sup>Tc und <sup>99</sup>Tc zu messen. Genauere spektroskopische Untersuchungen, z. B. von Rydbergserien, wurden nicht publiziert. Darüberhinaus ist auch das Ionisationspotential für Technetium nur ungenau bekannt. Die erste Abschätzung mit  $E_{IP}(Tc) = 7,23$  eV stammt von Catalán aus dem Jahr 1952 und wurde von Finkelnburg zitiert [FH55]. Dieser Wert wurde durch Interpolation der bekannten Ionisationspotentiale der Nachbarlemente ermittelt. Aus dem Jahr 1958 existiert eine weitere Bestimmung von Bozman mit  $E_{IP}(Tc) = 7,28$  eV [Moo58], welche mit Hilfe einer Rydberg-Ritz Formel aus nur zwei Zuständen  $4d^6$  (a <sup>5</sup>D) ns <sup>6,4</sup>D (n = 5,6) gewonnen wurde. Ziel der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen war es, das Ionisationspotential mit hoher Genauigkeit zu ermitteln. Hierbei wurde auf die zuvor von Katja Wies entwickelten Anregungsschemata zurückgegriffen, um über Rydbergkonvergenzen das Ionisationspotential zu ermitteln. Dabei konnten sowohl Konvergenzen gegen den ionischen Grundzustand als auch gegen den ersten und zweiten angeregten Zustand des Technetiumions vermessen werden.

### 4.2.1. Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau ähnelt stark demjenigen für die Rydbergspektroskopie an Gold (Abschnitt 4.1.1). Einzig das Laserlicht für den ersten resonanten Anregungsschritt in Technetium wird nicht in der Frequenz verdreifacht, sondern lediglich verdoppelt. Die Überlagerung der beiden Laserstrahlen im blauen Frequenzbereich wird daher auch nicht mit dichroitischen Spiegeln, sondern mit einem polarisierenden Strahlteilerwürfel realisiert.

Um die zeitliche Synchronisation zwischen dem Gitterlaser und den anderen Lasern zu verbessern, wurde die Elektronik für die Pockelszellenansteuerung um einen Diskriminator erweitert. Dieser erzeugt aus dem Signal einer schnellen Photodiode ein TTL-Signal. Somit ist es möglich, die Pockelszellen der herkömmlichen Titan:Saphir-Laser auf den Pumpuls des Gitterlasers zu triggern. Aufgrund der sehr geringen zeitlichen Schwankung der Titan:Saphir-Laser gegenüber ihrem Pumplaser, konnte eine zeitliche Synchronisation aller Laser besser als 10 ns erreicht werden. Dies führt zu einer verbesserten Stabilität und Intensität des Ionensignals.

Die verwendete Probe wurde aus einer Technetiumnitratlösung mit einer Konzentration von  $2,35 \times 10^{15}$  Atomen Technetium pro 10  $\mu\text{l}$  hergestellt. Dazu wurden jeweils 10  $\mu\text{l}$  der Lösung auf Titanfolie getropft und eingedampft. Diese Folie wurde direkt im Ofen der MABU platziert und bei Temperaturen von  $1500^\circ\text{C}$  bis  $2000^\circ\text{C}$  verdampft und an der Oberfläche der Titanfolie zu elementarem Technetium reduziert.

### 4.2.2. Auswertung der Rydbergzustände in Technetium

Sämtliche spektroskopische Untersuchungen wurde an dem langlebigen Technetiumisotop  $^{99\text{g}}\text{Tc}$  ( $I=9/2$ ) durchgeführt. Es wurde je eine Rydbergserie zum Grundzustand, zum ersten und zum zweiten angeregten Zustand des Ions untersucht. Die dazu verwendeten Anregungsschemata sind in Abbildung 4.9 dargestellt. Der erste Anregungsschritt ist jeweils gleich und bevölkert aus dem Grundzustand den  $4d^5 5s5p \ ^6P_{7/2}$  Zustand bei  $23265,33 \text{ cm}^{-1}$ . Dieser Übergang sowie die Hyperfeinaufspaltung der beteiligten Zustände sind aus der Literatur bekannt [Moo70, PW99, NIS02, WBL77]. Der Übergang wurde in der Dissertation von Katja Wies bereits genauer untersucht und der Laserscan zeigte damals eine eindeutige Asymmetrie, welche sich auf die beteiligten Hyperfeinkomponenten zurückführen ließ. Der Laserscan aus Abbildung 4.10, der vor der Untersuchung der Rydbergzustände aufgenommen wurde, zeigt keine solche Asymmetrie, da aufgrund einer größeren Dopplerverbreiterung und Sättigungsverbreiterung im Vergleich zum vormals verwendeten Aufbau die HFS keinen nennenswerten Einfluss mehr auf die Peakform hat. Die Daten lassen sich durch eine sättigungsverbreiterte Gaußfunktion der Form

$$I(\tilde{\nu}) = I_0 + A \frac{S_0 e^{-\frac{(\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu})^2}{2\omega^2}}}{1 + S_0 e^{-\frac{(\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu})^2}{2\omega^2}}} \quad (4.3)$$

beschreiben. Die volle Halbwertsbreite beträgt  $1,32 \text{ cm}^{-1}$ , sie wird dominiert von der Hyperfeinstruktur, welche etwa  $1 \text{ cm}^{-1}$  breit ist (vgl. [Wie06] S. 92). Das Zentrum der

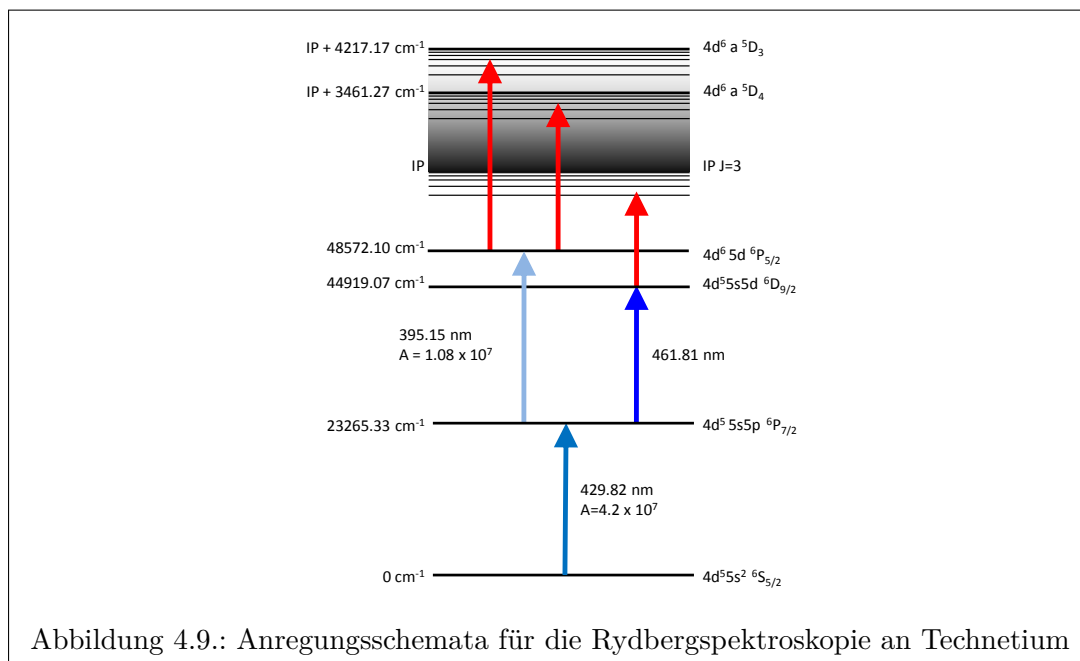
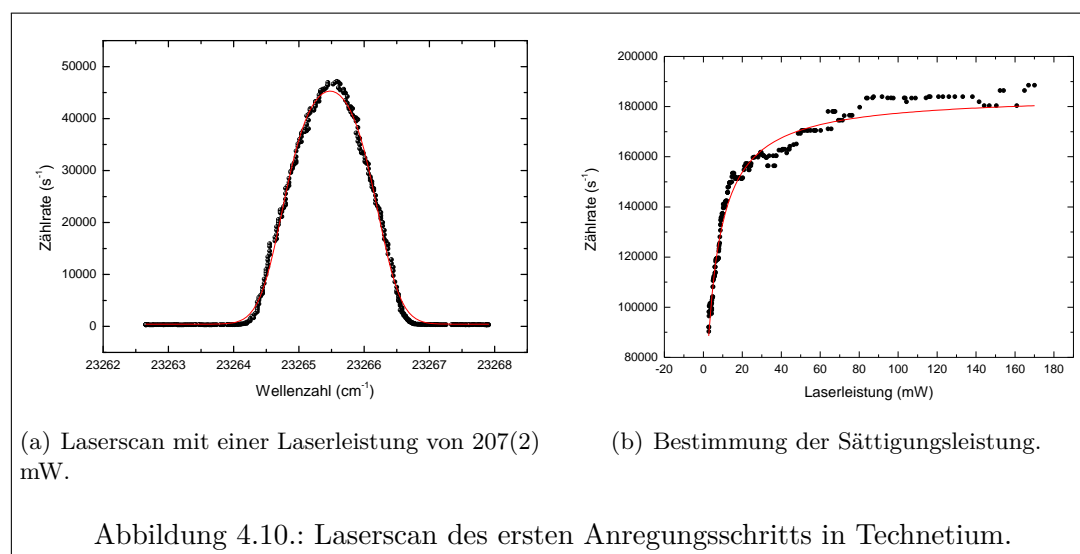


Abbildung 4.9.: Anregungsschemata für die Rydbergspektroskopie an Technetium

Struktur liegt bei  $23265,5(25) \text{ cm}^{-1}$  und weicht damit um  $+0,15 \text{ cm}^{-1}$  vom Literaturwert [BMC67] ab. Diese Abweichung ist durch die mehrstufige resonante Anregung erklärbar. Werden mit dem Laser für den zweiten Anregungsschritt bestimmte Hyperfeinzustände wahrscheinlicher entvölkert als andere, verschiebt sich die Resonanzkurve in Richtung dieser Zustände. Eine genauere Betrachtung dieses Phänomens kann durch einen zweidimensionalen Laserscan realisiert werden, bei dem beide Laser für die resonante Anregung durchgestimmt werden und das Ionensignal in Abhängigkeit beider Laserfrequenzen betrachtet wird (siehe Seite 94). Für den Übergang zum ersten angeregten Zustand wurde eine Sättigungsleistung von  $5,4(9) \text{ mW}$  bestimmt (Abbildung 4.10 (b)).

Betrachtet man den zweiten Anregungsschritt für die Rydbergspektroskopie zum Grundzustand in Abbildung 4.11 fällt die deutliche Asymmetrie des Peaks und die von einer Gaußform abweichende Struktur auf. Für diesen Übergang sind aus der Literatur keine Übergangsstärken bekannt und auch die Hyperfeinstruktur des  $4d^5 5s 5d \ ^6D_{9/2}$  Zustands ist unbekannt. Das Zentrum des Peaks liegt bei  $21653,93(145) \text{ cm}^{-1}$  mit einer Halbwertsbreite von  $0,52 \text{ cm}^{-1}$ . Die Lage dieses Peaks ist um  $+0,19 \text{ cm}^{-1}$  gegenüber dem Literaturwert [BMC67] verschoben. Sowohl die Lage als auch die Asymmetrie kann wie beim ersten Anregungsschritt mit der Hyperfeinaufspaltung der beteiligten Zustände erklärt werden. Die Struktur der Resonanz lässt sich am besten mit einem Voigtprofil beschreiben. Dies legt die Vermutung nahe, dass die Übergangsstärke für diesen Übergang deutlich geringer ist als für den ersten. Leider konnten aus technischen Gründen während der Messungen mit diesem Anregungsschema keine Sättigungsmessungen durchgeführt werden.

Für die Rydbergspektroskopie zu den angeregten Zuständen des Ions war es not-



wendig, ein höher liegendes Zwischenniveau zu bevölkern, um die entsprechenden Rydbergniveaus anschließend mit dem Gitterlaser zu bevölkern. Hier konnte wiederum der bereits in der Dissertation von Katja Wies verwendete Übergang genutzt werden. Abbildung 4.12 zeigt den Laserscan dieses Anregungsschrittes. Es wurde eine sättigungsverbreiterte Gaußkurve an die Daten angepasst, deren Zentrum bei  $25306,87(96) \text{ cm}^{-1}$  liegt. Die Lage des Übergangs weicht somit um  $+0,10 \text{ cm}^{-1}$  vom Literaturwert [PW99] ab. Die Sättigungsleistung ist für diesen Übergang und den verwendeten Aufbau  $2,0(7) \text{ mW}$ .

Während der Untersuchungen zur Bestimmung der Rahmenbedingungen für analytische Messungen an Technetium wurden ein zweidimensionaler Laserscan durchgeführt. Dabei wurden die Laser für die ersten beiden Anregungsschritte gleichzeitig verstimmt und das Ionensignal aufgenommen. Diese Messungen wurden am RISIKO Massenseparator [WBB<sup>+</sup>97b] durchgeführt. Das Ergebnis des 2D Laserscans ist in Abbildung 4.13 dargestellt. Aus der Form der Diagonalstruktur wird deutlich, dass die Ursache der Struktur nicht die erhaltene Gesamtenergie der Anregung sein kann; in diesem Fall hätte die Diagonale eine Steigung von eins. Die hier beobachtete Struktur wird durch die unterschiedlich breite Hyperfeinstruktur der beiden Übergänge hervorgerufen. Die maximalen Abweichungen von den Resonanzfrequenzen ohne merkliche Beeinträchtigung des Ionensignals<sup>2</sup> wurde demnach als Fehler bei der Bestimmung der Lage der Rydbergzustände berücksichtigt. Dieser Fehler ergibt sich zu  $0,35 \text{ cm}^{-1}$ .

Zur Bestimmung des Ionisationspotentials von Technetium wurden drei Rydbergserien untersucht, die jeweils doppelt gemessen wurden und aus jeder Messung wurde ein Ionisationspotential bestimmt. Ausgehend vom angeregten Zustand  $4d^5 5s5d \text{ } ^6D_{9/2}$  wurde der Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator von 907 nm bis 797 nm verstimmt und das Ionensignal aufgenommen. Der zugehörige Laserscan ist in Abbildung 4.14

<sup>2</sup>Eine merkliche Beeinträchtigung wird als eine Reduktion des Ionensignals um mehr als 30 % definiert.

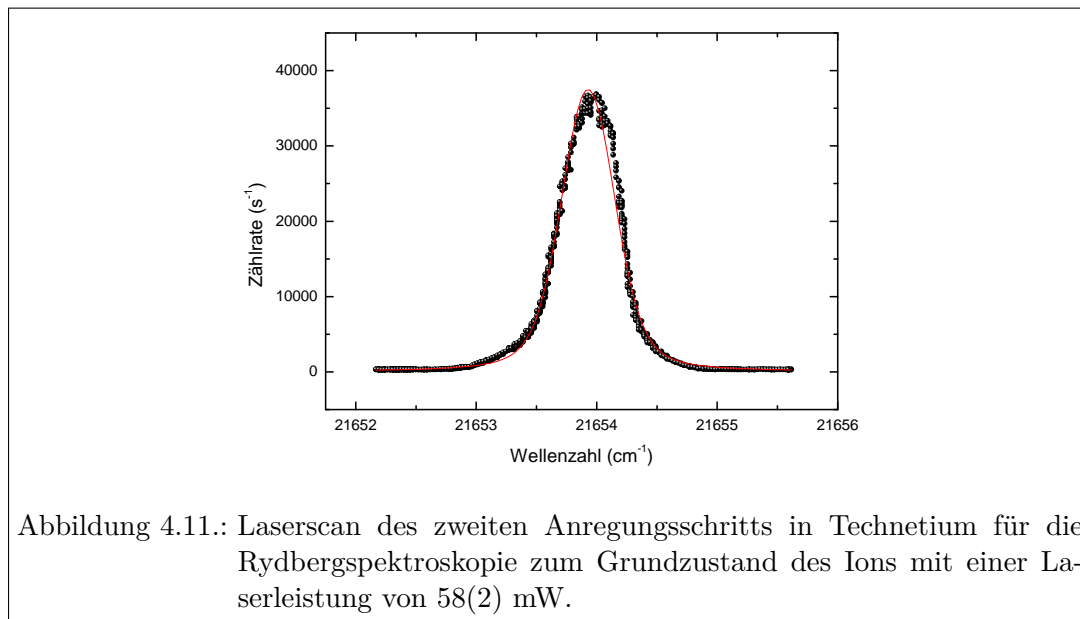
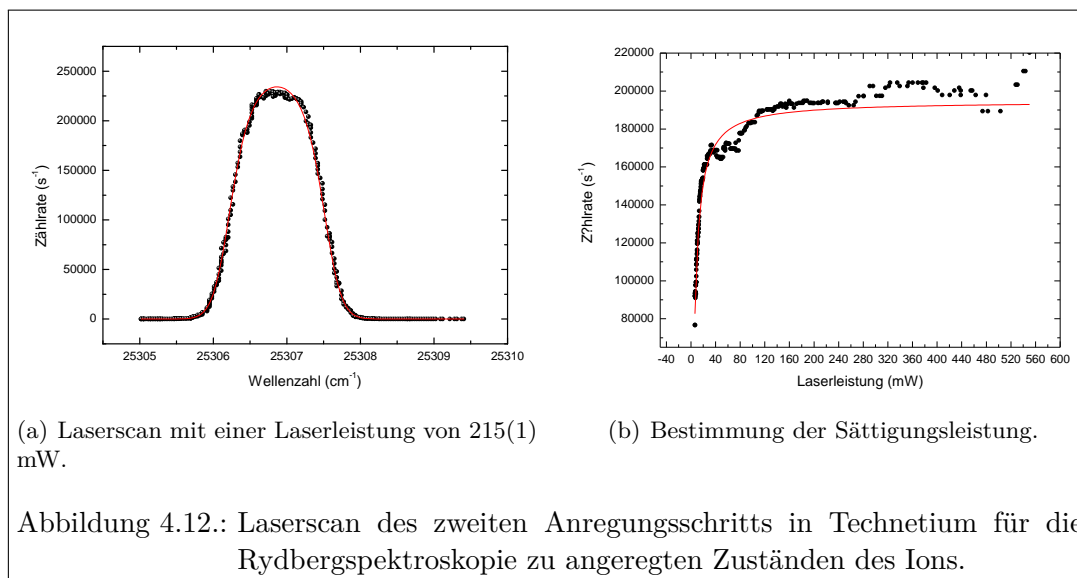


Abbildung 4.11.: Laserscan des zweiten Anregungsschritts in Technetium für die Rydbergspektroskopie zum Grundzustand des Ions mit einer Laserleistung von 58(2) mW.

dargestellt. Dabei konnten 40 zusammengehörige Rydbergzustände identifiziert werden und an jede Resonanz wurde eine Gaußfunktion angepasst. Zusätzlich zu den Rydbergresonanzen erkennt man etwa 30 sogenannte *Interloopers*, also Resonanzen, die nicht zu der gesuchten Rydbergserie gehören. Diese Resonanzen können zu einer anderen Rydbergserie gehören oder resonante Zwischenschritte sein. Sie lassen sich leicht von den konvergierenden Rydbergresonanzen unterscheiden.

Ausgehend von dem angeregten Zustand  $4d^6 5d^6 P_{5/2}$  wurde der Laser von 860 nm bis 763 nm verstimmt. Der Laserscan ist in Abbildung 4.15 dargestellt. Man erkennt zwei Rydbergserien die gegen die angeregten Zustände bei  $3461,27 \text{ cm}^{-1}$  bzw.  $4217,17 \text{ cm}^{-1}$  des einfach geladenen Technetiumions konvergieren. Es wurde wiederum an jede Resonanz eine Gaußfunktion angepasst und deren Lage ermittelt. Hier konnten 34 Rydbergzustände zum ersten angeregten Zustand und 21 Zustände zum zweiten angeregten Zustand identifiziert werden. Die Lage aller gemessenen Rydbergresonanzen ist in Anhang B in tabellarischer Form zusammengefasst.

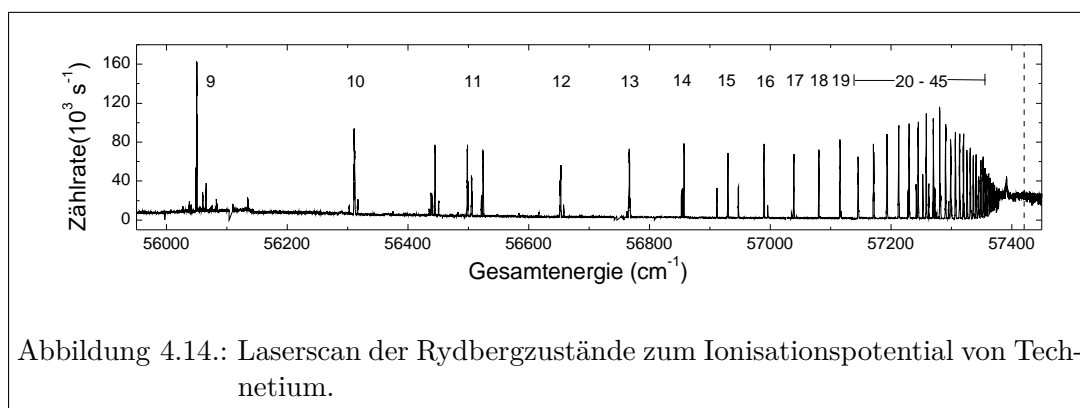
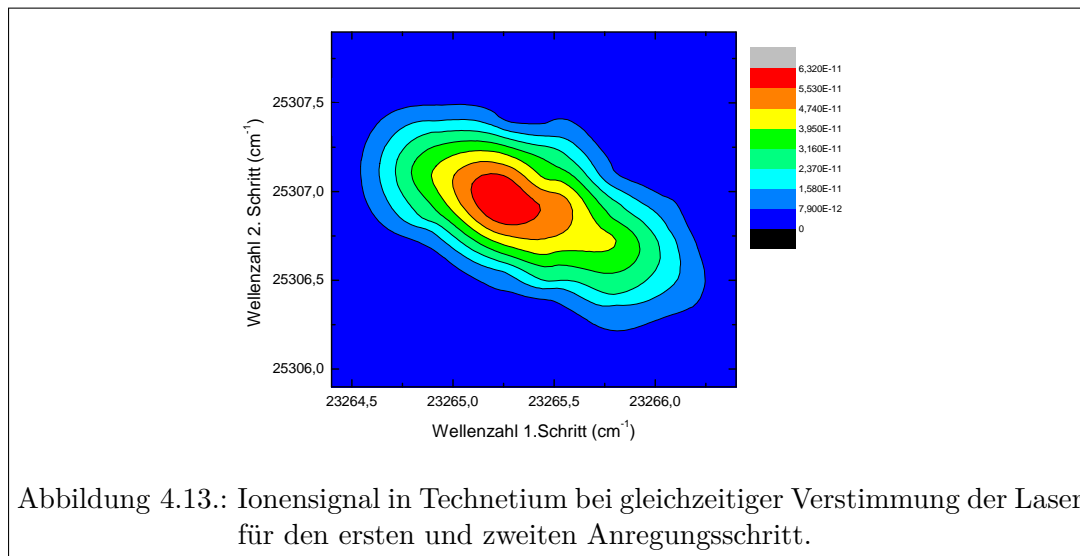
Gemäß den Auswahlregeln für einen E1 Übergang kann aus dem Zustand  $4d^5 5s5d^6 D_{9/2}$  in eine  $4d^5 5snp$  oder  $nf$  Rydbergserie angeregt werden. Aus dem Zustand  $4d^6 5d^6 P_{5/2}$  können Niveaus einer  $4d^6 np$  oder  $nf$  Serie angeregt werden. Die genaue Zuordnung der Serie, als auch der Hauptquantenzahl  $n$  erfordert wieder die Kenntnis eines energetisch tiefliegenden Bandenkopfes, dessen Konfiguration bekannt ist und dessen Zugehörigkeit zu der Rydbergserie über einen Fit an die Daten verifiziert werden kann. Leider sind im Falle des Technetiums nur sehr wenig spektroskopische Daten in der Literatur bekannt, so dass eine Zuordnung der Rydbergserien in keinem der Fälle möglich ist, da keine Zustände mit den möglichen Konfigurationen in der Literatur vorhanden sind. Eine Aussage über die mögliche Zugehörigkeit der Rydbergserie kann auch über den  $B$ -Faktor aus der Rydberg-Ritz Formel getroffen werden. So wurde



von Weber und Sansonetti [WS87] ein eindeutiger Zusammenhang zwischen Bahndrehimpuls der Rydbergserie und dem Vorzeichen von  $B$  gezeigt. Für Serien mit einer Konfiguration, bei der die Wellenfunktion einen großen Überlapp mit dem Kernvolumen hat, wie im Falle von s- oder p-Serien, wird eine Abnahme des Quantendefekts mit zunehmendem  $n$  erwartet, was einem positiven Vorzeichen von  $B$  entspricht. Für alle Serien mit einem größeren Bahndrehimpuls nimmt der Quantendefekt aufgrund von Polarisierungseffekten mit zunehmendem  $n$  zu und  $B$  ist negativ. Der  $B$ -Faktor für die individuellen Rydbergserien ist in Tabelle 4.3 aufgeführt. Für keine Serie lässt sich ein eindeutiger Trend feststellen, auch aufgrund der Tatsache, dass der  $B$ -Faktor erst für kleine  $n$  signifikant ist, da hier eine deutliche Abweichung des Kern- und Hüllpotentials von einer Punktladung besteht. Die Uneindeutigkeit des  $B$ -Faktors und die großen Fehler auf diesen Parameter ermöglichen keine Aussage über die Zugehörigkeit der Rydbergserien.

### 4.2.3. Bestimmung des Ionisationspotentials von Technetium

Um das Ionisationspotential von Technetium zu bestimmen, wurde die Gesamtenergie der einzelnen Rydbergzustände gegen die Hauptquantenzahl  $n$  aufgetragen. Die Gesamtenergie wurde aus der Energie der Resonanzen im Rydbergscan zuzüglich der Energie des jeweiligen angeregten Zustands bestimmt. Ohne Kenntnis eines Bandenkopfes bzw. der Konfiguration lässt sich der absolute Wert von  $n$  aus den aufgenommenen Daten nicht bestimmen; der angegebene Wert für  $n$  kann vom wahren Wert um eine ganze Zahl abweichen. An jede Rydbergserie wurde die Rydberg-Ritz Formel 2.73 angepasst und das jeweilige Limit ermittelt. Um das Ionisationspotential aus den Rydbergserien gegen die angeregten Zustände zu erhalten, muss deren Energie vom Wert für das Limit der jeweiligen Serie abgezogen werden. Da jeder Rydbergscan zweimal



durchgeführt wurde, ergeben sich sechs Werte für das Ionisationspotential.

Die Fehler der einzelnen Ionisationspotentiale beinhalten eine mögliche unbemerkte Abweichung der Laser für die ersten beiden Anregungsschritte von der Resonanz. Diese Abweichung wurde aus dem 2D-Laserscan zu  $0,35 \text{ cm}^{-1}$  abgeschätzt<sup>3</sup>. Des Weiteren geht in den Fehler eine systematische Unsicherheit von  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  für die Messung der Wellenlänge des Gitterlasers sowie der statistische Fehler aus dem Rydberg-Ritz Fit an die Datenpunkte ein. Die mögliche Abweichung der ersten beiden Anregungslaser ist für jede Messung unabhängig und kann bei der Bildung eines gewichteten Mittelwerts, wie der Fehler auf den Fit, als statistischer Fehler betrachtet werden. Die Unsicherheit der Wellenlängenmessung muss als systematischer Fehler separat behandelt werden. Im Rahmen der resultierenden Gesamtgenauigkeit von typisch  $0,5 \text{ cm}^{-1}$  stimmen die individuellen Resultate für das Ionisationspotential überzeugend überein und belegen

<sup>3</sup>Die erste Messung wurde über Nacht unterbrochen. Dabei trat ein Sprung in der Wellenlänge des ersten Anregungslasers auf. Daher wurde der maximale Fehler für die Abweichung zu  $0,55 \text{ cm}^{-1}$  abgeschätzt.

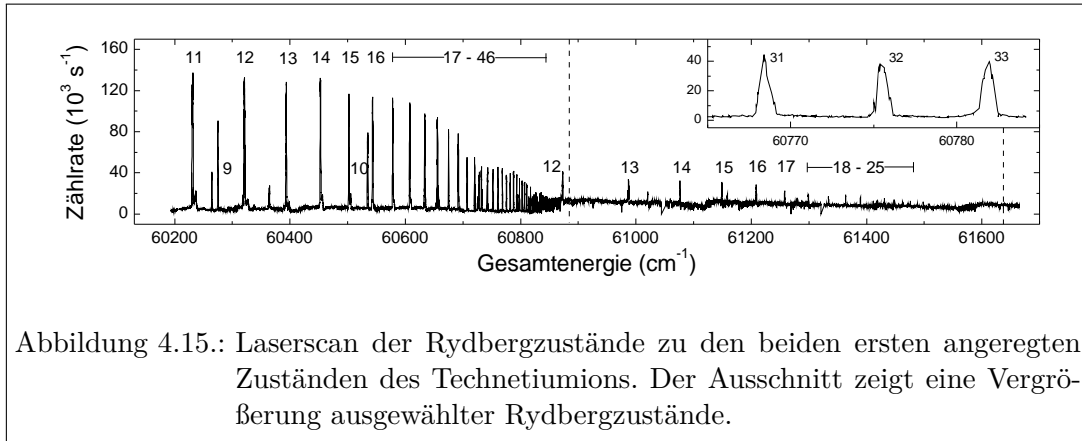


Abbildung 4.15.: Laserscan der Rydbergzustände zu den beiden ersten angeregten Zuständen des Technetiumions. Der Ausschnitt zeigt eine Vergrößerung ausgewählter Rydbergzustände.

Messung	B	Limit [ $\text{cm}^{-1}$ ]	Energie AZ <sup>a</sup> [ $\text{cm}^{-1}$ ]	V <sub>IP</sub> [ $\text{cm}^{-1}$ ]
1. zum GZ <sup>b</sup>	0,17(8)	57421,93(67)	0	57421,93(67)
2. zum GZ	-0,02(9)	57421,61(47)	0	57421,61(47)
1. zum 1. AZ	-0,39(75)	60882,98(48)	3461,27	57421,71(48)
2. zum 1. AZ	1,28(47)	60882,77(47)	3461,27	57421,50(47)
1. zum 2. AZ	-0,49(15)	61639,23(51)	4217,17	57422,06(51)
2. zum 2. AZ	-0,05(12)	61638,91(50)	4217,17	57421,74(50)

Tabelle 4.3.: Ionisationspotentiale und B-Faktoren für Technetium aus den einzelnen Messungen

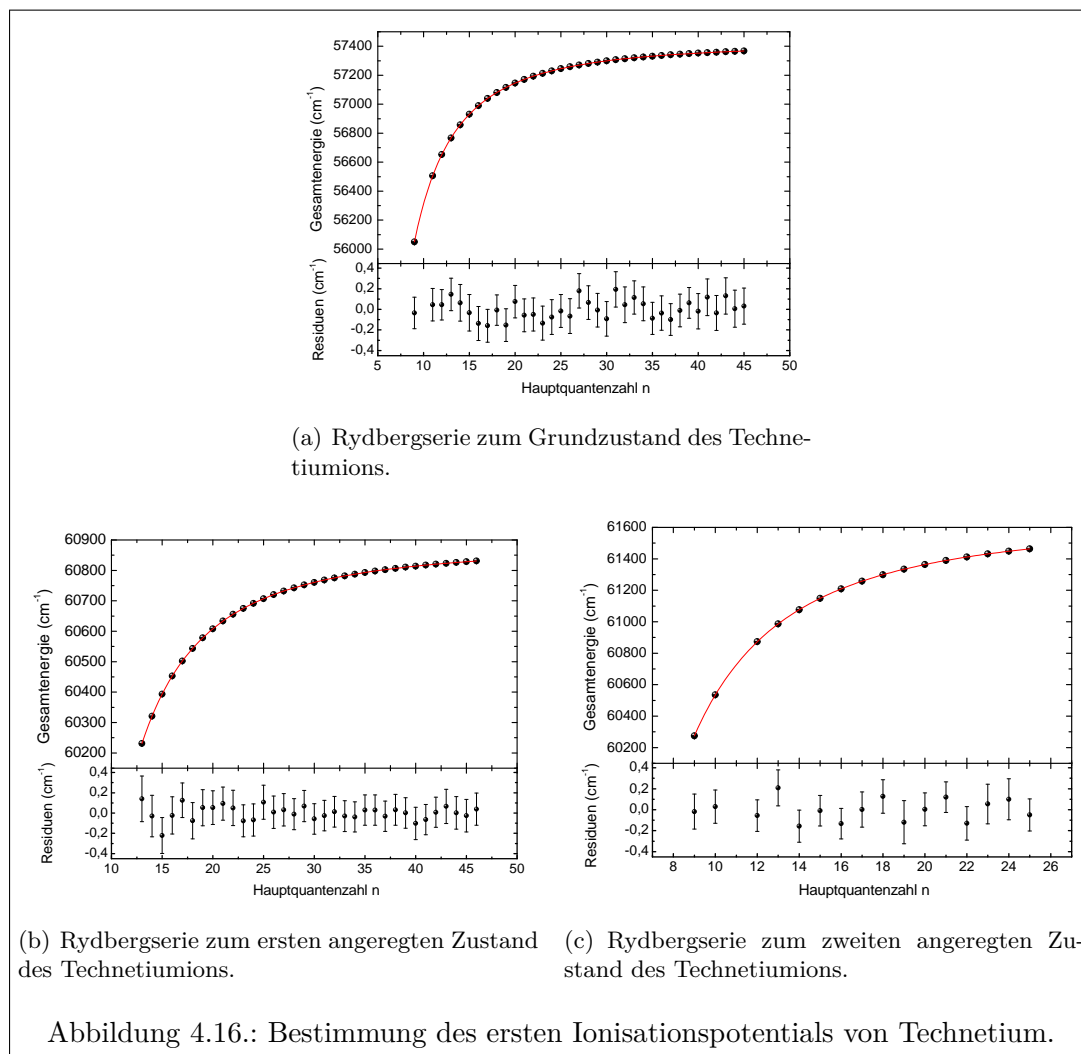
<sup>a</sup>AZ=angeregter Zustand

<sup>b</sup>GZ=Grundzustand

die Präzision und Richtigkeit der Messung. Für das Ionisationspotential von Technetium ergibt sich als gewichteter Mittelwert  $V_{IP}(Tc) = 57421,68(26) \text{ cm}^{-1}$ , entsprechend  $7,119380(32) \text{ eV}$ . Dieser Wert ist wesentlich präziser als die bisher veröffentlichten Resultate von  $V_{IP}(Tc) = 7,23 \text{ eV}$  bzw.  $V_{IP}(Tc) = 7,28 \text{ eV}$  und weicht von diesen um etwa 2 % zu niedrigerem Wert ab. Der erste Wert stammt aus dem Jahr 1952 und wurde von Catalán aus den Ionisationpotentialen der Nachbarelemente interpoliert [CR52]. Der zweite Wert wurde von Bozman [Moo58] aus spektroskopischen Daten gewonnen [MS50]. Dabei wurden lediglich die beiden Zustände  $4d^6 (a^5D) ns^6,4D$  ( $n=5,6$ ) berücksichtigt und mit einer Rydberg-Ritz Formel das Ionisationspotential bestimmt.

### 4.3. Zwei-Photonen-*in-source* Spektroskopie an Silizium

Bei der Spektroskopie mit den konventionellen Titan:Saphir-Laser bzw. mit Gitterresonator ist man in der Auflösung durch die Bandbreite des Lasers auf etwa 3 GHz beschränkt. Für hochauflösende Spektroskopie kann der geseedete Titan:Saphir-Laser



mit einer Bandbreite von 20 MHz verwendet werden. Die prinzipielle Eignung des geseedeten Titan:Saphir-Lasers für die hochauflösende Spektroskopie wurde bereits durch Spektroskopie an stabilem Aluminium gezeigt [KTM<sup>+</sup>08]. Dabei wurde, um die Dopplerverbreiterung zu minimieren, der Laser senkrecht zum Atomstrahl eingestrahlt und mittels Blenden die Breite der transversalen Geschwindigkeitsverteilung im Atomstrahl reduziert. Dieses Szenario ist für die eigentliche Bestimmung des Lasers, die Nutzung an on-line Isotopenseparatoren wie ISOLDE/Cern [Kös02, KFM03, CFK<sup>+</sup>04], TRIUMF/Vancouver [LBD<sup>+</sup>05, LBD<sup>+</sup>09], IGISOL/Jyväskylä [NMB<sup>+</sup>05, Kes08] und in Zukunft SPIRAL 2/Caen [LME<sup>+</sup>06, LEF<sup>+</sup>08], nicht realistisch, da der Zugang senkrecht zum Atomstrahl meist nicht möglich ist und der Laser anti-kollinear mit dem Atomstrahl überlagert wird.

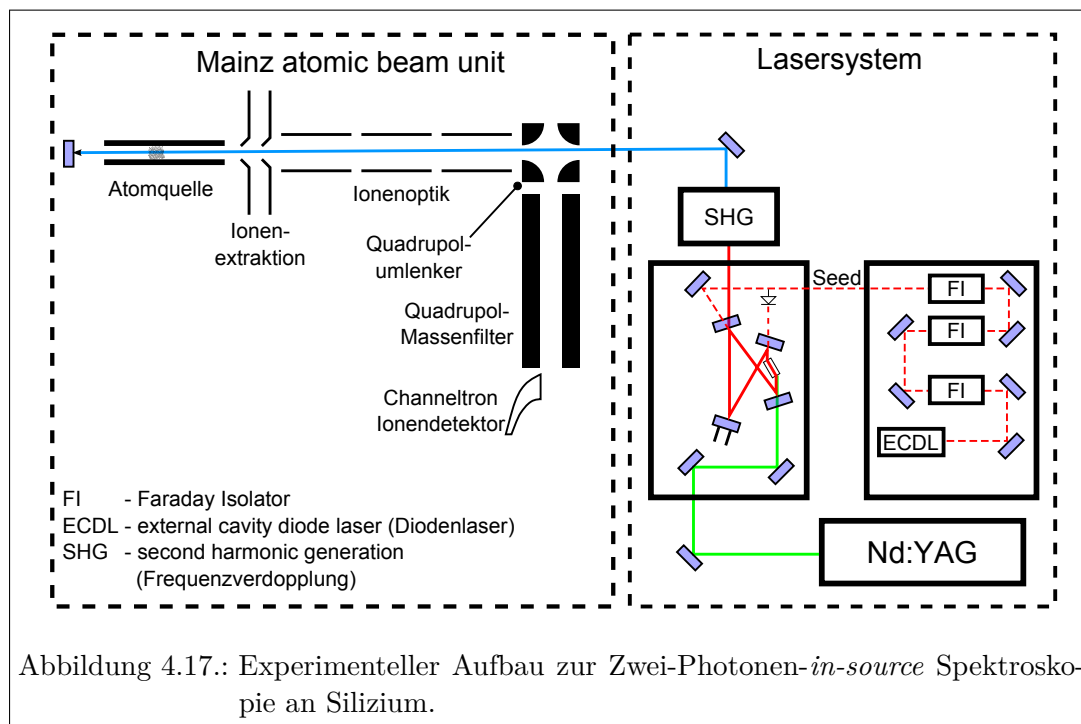
Spektroskopische Untersuchungen werden on-line meist am schnellen Atomstrahl in kollinearere Geometrie durchgeführt um die Dopplerverbreiterung zu reduzieren. Dabei

stellt die im Vergleich zu den Transportzeiten im Massenseparator oft sehr kurze Lebensdauer der Nuklide eine Beschränkung für spektroskopische Untersuchungen dar. Um sehr kurzlebige Isotope dennoch spektroskopisch untersuchen zu können, werden die Laser, die eigentlich für die Ionisation in der Quelle bestimmt sind, verstimmt und das resultierende Ionensignal beobachtet. Diese so genannte *in-source* Spektroskopie ermöglicht zwar den spektroskopischen Zugang zu extrem kurzlebigen Isotopen, ist aber in ihrer erreichbaren Auflösung beschränkt. Für eine schnelle Freisetzung der Spaltprodukte muss die Quellenregion auf Temperaturen von etwa 2000° C geheizt werden, was zu einer Dopplerverbreiterung der Resonanzlinien von einigen GHz führt [ABD<sup>+</sup>92, BCF<sup>+</sup>00, KFM<sup>+</sup>00, WKC<sup>+</sup>02, FFH<sup>+</sup>03, DWAB<sup>+</sup>07]. Um diese Einschränkung zu umgehen, existieren zwei Ansätze, die dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie oder die Sättigungsspektroskopie direkt in der Quelle [Den94, BDF<sup>+</sup>96].

Diese Voraussetzungen für die dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie konnten mit der MABU und dem geseedeten Titan:Saphir-Laser unter off-line Bedingungen geschaffen werden. Die Atomquelle der MABU besteht hier aus einem Graphitrohr, das die Laserstrahlen passieren können. Durch ein Fenster in der Vakuumapparatur können die Laserstrahlen diese verlassen und mit einem Spiegel zurück in die Quelle reflektiert werden. Der geseedete Titan:Saphir-Laser besitzt bezüglich Zeitstruktur, Leistung und räumlichem Strahlprofil die Spezifikationen der konventionellen Titan:Saphir-Laser bei einer spektralen Breite von lediglich 20 MHz, die sich optimal für hochauflösende Spektroskopie anbietet. Die prinzipielle Eignung dieser Methode für die *in-source* Spektroskopie an kurzlebigen Radionukliden wurde durch dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie an den stabilen Siliziumisotopen <sup>28,29,30</sup>Si demonstriert. Dies wird in den folgenden Abschnitten näher erläutert. Für einen Einsatz der Technik an on-line Massenseparatoren muss deren Quellenregion entsprechend adaptiert werden und das Lasersystem um einen spektral schmalen Laser wie den in dieser Arbeit eingesetzten erweitert werden.

#### 4.3.1. Experimenteller Aufbau

Für die Zwei-Photonenspektroskopie an Silizium wird der geseedete Titan:Saphir-Laser bei Wellenlängen zwischen 813 nm und 819,5 nm betrieben. Das Licht des Lasers wird in einem BBO-Kristall in der Frequenz verdoppelt und mit einem Teleskop in die Quellenregion fokussiert. Für die Spektroskopie standen etwa 130 mW frequenzverdoppeltes Laserlicht zur Verfügung. Damit wurde der Zwei-Photonen-Übergang angeregt und gleichzeitig aus diesem heraus nicht resonant ionisiert. Die verwendeten Anregungsschemata sind in Abbildung 4.18 dargestellt. Die Messungen fanden in der MABU statt. Zu diesem Zweck wurde ein Graphitrohr mit einem Innendurchmesser von 2,2 mm als Ofen verwendet. Als Probe diente eine Siliziumnitratlösung, die auf einer Titanfolie eingedampft wurde und im Ofen platziert wurde. Der Laserstrahl passierte den Ofen, trat an einem Fenster aus der Vakuumapparatur aus und wurde mit einem Spiegel zurück in den Ofen reflektiert. Eine nochmalige Fokussierung zeigte aufgrund der langen Fokusslänge keinen Effekt, daher wurde darauf verzichtet. Ein vereinfachter Gesamtaufbau ist in Abbildung 4.17 dargestellt. Die Stabilisierung des Diodenlasers



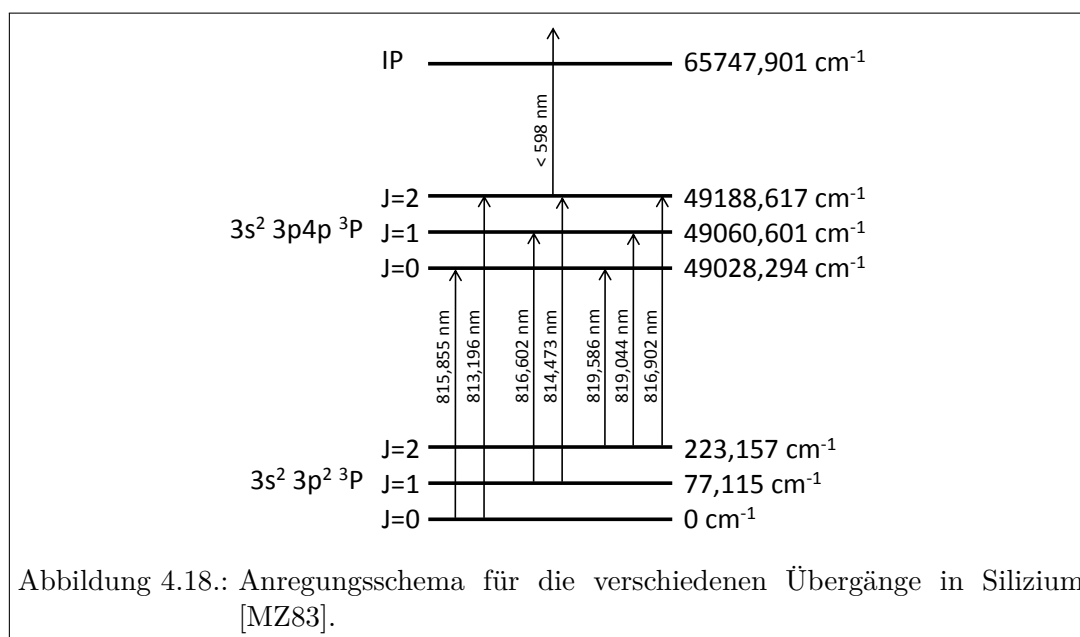
und die Datenaufnahme wurden mit dem System bestehend aus FPI und Computer realisiert, das für die Ultraspurenanalyse in Uran entwickelt wurde [Sch06, Rae06].

Es wurden die Übergänge aus dem Grundzustand  $3s^2 3p^2 \ ^3P_{0,1,2}$  in den angeregten Zustand  $3s^2 3p4p \ ^3P_{0,1,2}$  untersucht. Hierbei wurde im Übergang  $\ ^3P_0 - \ ^3P_0$  die Isotopieverschiebung zwischen den Isotopen  $^{28,29,30}\text{Si}$  gemessen, da dieser auch für das Isotop  $^{29}\text{Si}$  ( $I=1/2$ ) keine Hyperfeinstruktur aufweist. Die Hyperfeinstruktur von  $^{29}\text{Si}$  wurde in den sechs weiteren erlaubten Übergängen des Feinstruktur-Multipletts aufgenommen. Abbildung 4.18 gibt eine Übersicht über die sieben erlaubten Übergänge. An den Pfeilen steht jeweils die fundamentale Wellenlänge des Titan:Saphir-Lasers für den entsprechenden Übergang.

#### 4.3.2. Isotopieverschiebung in Silizium

Die Isotopieverschiebung zwischen den drei stabilen Siliziumisotopen zeigt Abbildung 4.19. An jede Resonanz wurde eine Gaußfunktion angepasst. Die Übergänge besitzen eine Breite von etwa 90 MHz, was gut mit der vierfachen Linienbreite von etwa 20 MHz des geseedeten Titan:Saphir-Lasers übereinstimmt<sup>4</sup>. Aus den Verhältnissen der Flächen unter den Kurven kann die Isotopenhäufigkeit berechnet werden. Die gemessene Isotopenhäufigkeit ist in Tabelle 4.4 zusammengestellt. Es ergibt sich eine gute

<sup>4</sup>Die Breite des Anregungslasers verdoppelt sich bei der Frequenzverdopplung in etwa und durch die Zwei-Photonenanregung geht die Linienbreite des Lasers mit einem Faktor zwei in die Breite der Resonanz ein.



Übereinstimmung mit dem Literaturwert für die Verteilung von natürlichem Silizium. Die Isotopieverschiebung für diesen Übergang kann aus der Differenz der Lagen der

	<sup>28</sup> Si	<sup>29</sup> Si	<sup>30</sup> Si
<b>gemessener Wert</b>	91,7(10) %	4,6(17) %	3,6(18) %
<b>Literaturwert</b>	92,23 %	4,67 %	3,10 %

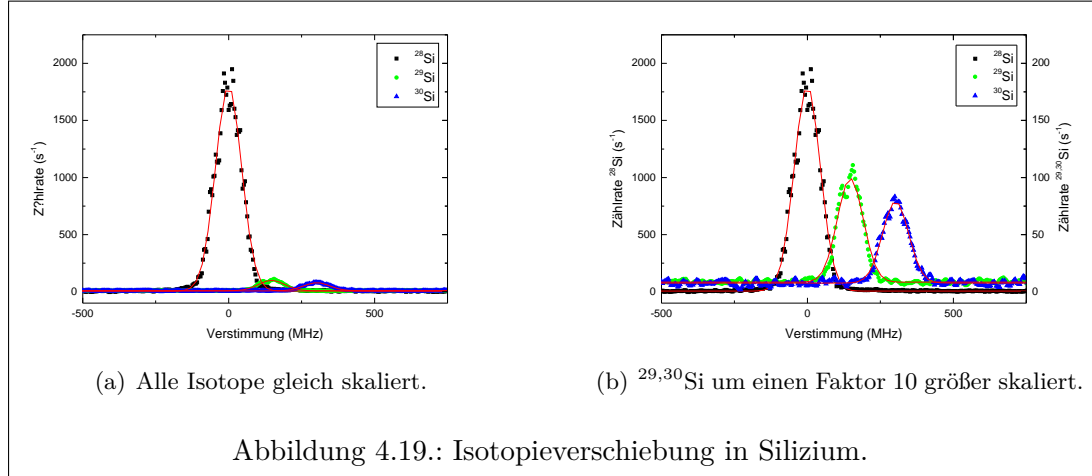
Tabelle 4.4.: Isotopenverhältnisse in Silizium.

Resonanzen ermittelt werden. Es ergeben sich folgende Werte, bei denen sich der Gesamtfehler aus dem Fehler der Fitroutine und dem Fehler der Frequenzbestimmung zusammensetzt: Für diesen Übergang existieren keine Literaturwerte für die Isoto-

Isotop	Verschiebung (MHz)
<sup>28</sup> Si	0
<sup>29</sup> Si	147,5(59)
<sup>30</sup> Si	302,7(68)

Tabelle 4.5.: Isotopieverschiebung von Silizium relativ zum Isotop <sup>28</sup>Si.

pieverschiebung. Von Holmes und Hoover wurde die Isotopieverschiebung für Ein-Photonen-Übergänge zwischen <sup>28</sup>Si und <sup>30</sup>Si mit ähnlicher Gesamtenergie gemessen [HH62]. So beträgt die Isotopieverschiebung für den Übergang aus dem Grundzustand 3p<sup>2</sup> <sup>3</sup>P<sub>1</sub> und dem angeregten Zustand 4s <sup>3</sup>P<sub>1</sub> 318(15) MHz. Für die Isotopieverschiebung von <sup>29</sup>Si relativ zu <sup>28</sup>Si findet man in der Literatur lediglich Werte für die Linien zwischen 250 nm und 253 nm, die aus Interpolation unter Verwendung der Formel



für den Masseneffekt gewonnen wurden. Aus dieser Interpolation ergibt sich ein Wert von 170,8 MHz. Angesichts der Tatsache, dass die aus der Literatur bekannte Isotopieverschiebung für Übergänge mit etwas geringerer Energie gemessen wurden, kann man von einer guten Übereinstimmung mit den hier gemessenen Werten ausgehen. Interpoliert man aus der Isotopieverschiebung zwischen  $^{28}\text{Si}$  und  $^{30}\text{Si}$  die Isotopieverschiebung unter Vernachlässigung des Feldeffekts die Isotopieverschiebung zwischen  $^{28}\text{Si}$  und  $^{29}\text{Si}$  erhält man 165,6(35) MHz. Dieser Wert ist etwas größer als der experimentell bestimmte Wert, ist mit diesem im Rahmen der Fehler aber noch verträglich.

#### 4.3.3. Hyperfeinübergänge in Silizium

Bei der Untersuchung der Hyperfeinstruktur für die sieben möglichen Zwei-Photonen-Übergänge zwischen  $3p^2$  und  $3p4p$  müssen zwei Fälle berücksichtigt werden: Bei den vier untersuchten Übergängen mit unterschiedlichem Drehimpuls  $J$  der beteiligten Zustände liegt ein rein quadrupolarer Übergang vor und die relativen Linienstärken der Hyperfeinkomponenten innerhalb eines Feinstrukturübergangs berechnen sich zu

$$I_{ge}(F_g, F_e) \propto (2F_g + 1)(2F_e + 1) \left\{ \begin{matrix} J_g & J_e & 2 \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \right\}^2. \quad (4.4)$$

Bei den beiden Übergängen mit gleichem Drehimpuls  $J$  der beteiligten Zustände besitzt der Übergang skalare und quadrupolare Anteile und die Formel zur Berechnung der Intensität wird erweitert zu

$$I_{ge}(F_g, F_e) \propto (2F_g + 1) \left[ R(g, e) \delta_{F_g F_e} + (2F_e + 1) \left\{ \begin{matrix} J_g & J_e & 2 \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \right\}^2 \right]. \quad (4.5)$$

Für den Term  $R(g, e)$  wurde in Abschnitt 2.2.5 eine Näherung gegeben. Diese gilt jedoch nur unter der Einschränkung, dass nur ein einziger realer Zwischenzustand an der Zwei-Photonen-Resonanz beteiligt ist. Selbst dann liefert sie nur selten brauchbare

Ergebnisse. Bei den untersuchten Übergängen  $J_g = 1 \rightarrow J_e = 1$  und  $J_g = 2 \rightarrow J_e = 2$  findet man im Spektrum lediglich zwei Komponenten. Nimmt man etwa den Zustand  $3s^2 3p4s \ ^3P_2$  bei  $39955,05 \text{ cm}^{-1}$  als Zwischenzustand an, ergibt sich aus der Näherung, dass der skalare Anteil für den Fall  $J = 1$  um einen Faktor 300 größer ist als der quadrupolare, im Fall  $J = 2$  immerhin noch um einen Faktor 12. Daher wurde für die Berechnung der relativen Intensitäten davon ausgegangen, dass nur der skalare Anteil im Spektrum sichtbar ist und sich die Intensitätsverteilung vereinfacht zu

$$I_{ge}(F_g, F_e) \propto (2F_g + 1)\delta_{F_g F_e}. \quad (4.6)$$

Alle untersuchten Übergänge mit Hyperfeinstruktur sind in Abbildung 4.20 dargestellt. An die Daten wurden jeweils Gaußfunktionen angepasst, wobei die Höhenverhältnisse der einzelnen Komponenten der Hyperfeinstruktur für jeden Übergang aus der Theorie übernommen wurden. Die Breiten wurden als gleich angenommen. Bei den Übergängen  $J_g = 1 \rightarrow J_e = 2$  und  $J_g = 2 \rightarrow J_e = 1$  mit vier Komponenten wurde zusätzlich die Bedingung berücksichtigt, dass der Abstand zwischen zwei zusammengehörigen Hyperfeinkomponenten<sup>5</sup> jeweils gleich sein muss. Für die Übergänge  $J_g = 0 \rightarrow J_e = 2$ ,  $J_g = 1 \rightarrow J_e = 2$ ,  $J_g = 2 \rightarrow J_e = 0$  und  $J_g = 2 \rightarrow J_e = 1$  lässt sich direkt aus dem Abstand der einzelnen Resonanzlinien die Hyperfeinaufspaltung der beteiligten Zustände ermitteln. Tabelle 4.6 gibt eine Übersicht über die Aufspaltungen. Die linke Spalte gibt darüber Aufschluss, aus welcher Messung die Aufspaltung ermittelt wurde. Die A-Faktoren wurden aus der Intervallregel

$$\Delta E_{F+1} - \Delta E_F = A(F + 1) \quad (4.7)$$

und dem gewichteten Mittelwert für die Hyperfeinaufspaltung berechnet. Für ein Isotop mit Kernspin  $I=1/2$  ist der B-Faktor nicht vorhanden.

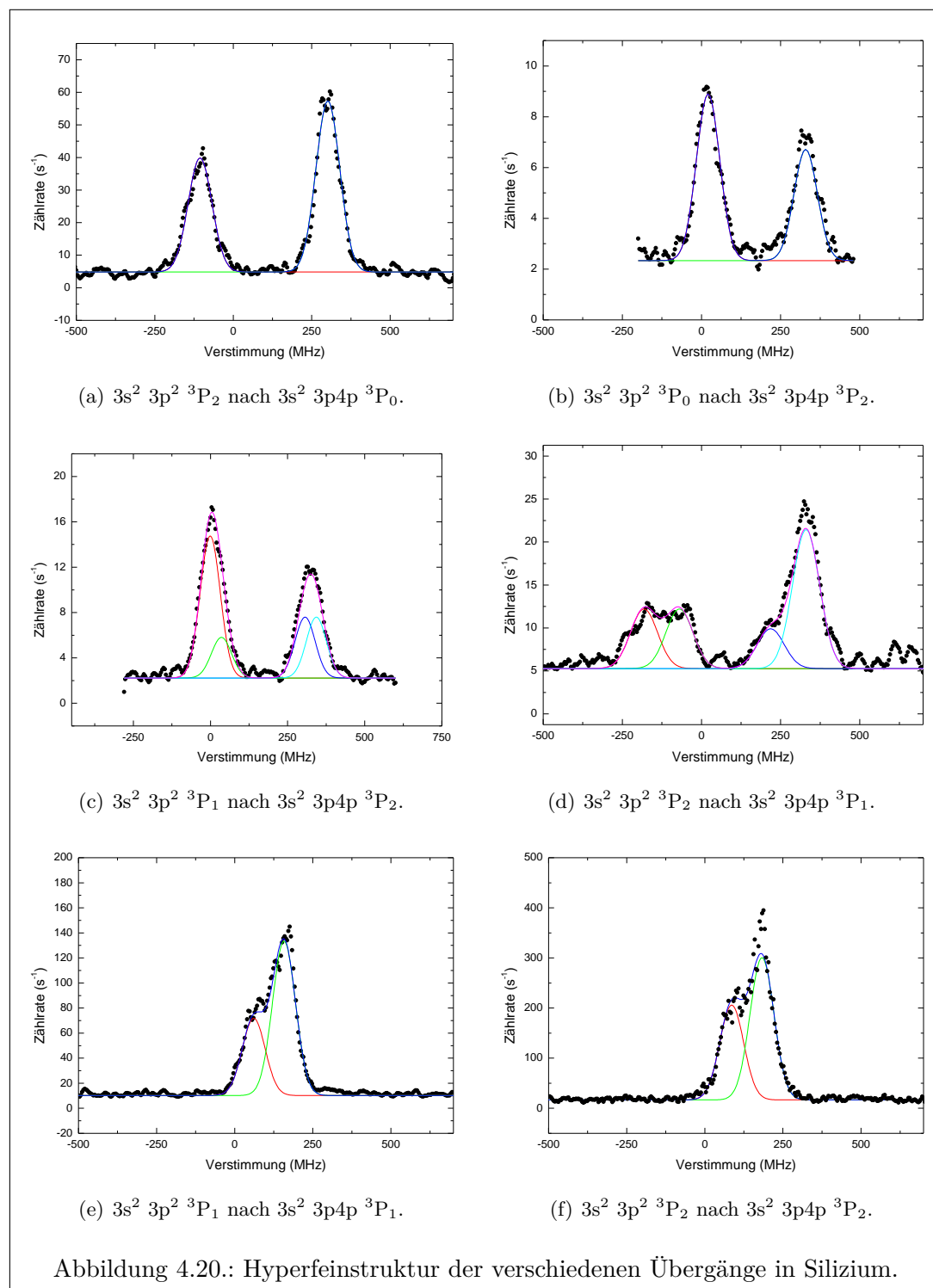
$J_g \rightarrow J_e$	$3s^2 3p^2 \ ^3P$		$3s^2 3p4p \ ^3P$	
	$J=1$	$J=2$	$J=1$	$J=2$
$0 \rightarrow 2$				311(8) MHz
$2 \rightarrow 0$		410(6) MHz		
$1 \rightarrow 2$	37(18) MHz			308(18) MHz
$2 \rightarrow 1$		400(18) MHz	112(25) MHz	
gewichtetes Mittel	37(18) MHz	409(6) MHz	112(25) MHz	310(8) MHz
A-Faktor	15(7) MHz	117(2) MHz	45(10) MHz	89(2) MHz

Tabelle 4.6.: Hyperfeinaufspaltung der verschiedenen Zustände in Silizium.

Die Differenz der Lagen der Resonanzlinien in Abbildung 4.20 (e) und (f) muss gleich der Differenz der Hyperfeinaufspaltungen der beteiligten Zustände sein. Aus

<sup>5</sup>Gleiches  $F$  im Grundzustand oder äquivalent gleiches  $F$  im angeregten Zustand. Der Abstand solcher zusammengehöriger Komponenten im Spektrum entspricht dann jeweils der Hyperfeinaufspaltung der entsprechenden Energieniveaus.

dem Fit in Abbildung 4.20 (e) ergibt sich ein Abstand von 96,9(47) MHz. Berechnet man den Abstand mit den Werten aus Tabelle 4.6 ergibt sich 75,3(234) MHz. Diese verhältnismäßig große Abweichung lässt sich mit den großen zugehörigen Fehlern und der schlechten Auflösung der einzelnen Resonanzen in Abbildung 4.20 erklären. Für den Übergang aus Abbildung 4.20 (f) erhält man einen Abstand von 96,9(30) MHz, der gut mit dem berechneten Wert von 99,1(28) MHz übereinstimmt. Ein Vergleich mit Literaturwerten ist aufgrund fehlender Daten nicht möglich. Es konnten keine veröffentlichten Werte zu einer Hyperfeinstruktur in  $^{29}\text{Si}$  gefunden werden. Für eine abschließende Bewertung der Methode der dopplerfreien Zwei-Photonen-Spektroskopie mit einem geseedeten Titan:Saphir-Laser innerhalb einer heißen Quelle müssen daher Messungen mit einem Element mit bekannter Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung durchgeführt werden. Dies war im begrenzten zeitlichen Rahmen dieser Arbeit nicht möglich.





---

# Kapitel 5.

## Zusammenfassung und Ausblick

---

In diesem Kapitel werden die einzelnen Abschnitte der Arbeit im Bereich der Laserentwicklung und der RIS noch einmal zusammenfassend dargelegt. Des Weiteren werden Messungen vorgestellt, die durch das neue Lasersystem möglich geworden sind, die jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht realisiert werden konnten. Einige dieser Messungen sind Bestandteil aktueller Dissertationen der AG LARISSA.

### 5.1. Zusammenfassung

#### 5.1.1. Laserentwicklung

Das Titan:Saphir-Lasersystem der AG LARISSA wurde im Rahmen dieser Arbeit weiterentwickelt und um neue, spezialisierte Festkörperlaser ergänzt. Die Ausgangsleistung der vorhandenen, konventionellen Titan:Saphir-Laser wurde um einen Faktor zwei erhöht, indem die maximal zulässige Pumpleistung erhöht wurde. Zu diesem Zweck wurde die Pumpgeometrie verändert, was die Leistungsdichte des Pumplasers auf der Oberfläche des Titan:Saphir-Kristalls um einen Faktor 1,3 reduziert. Gleichzeitig wurde die Repetitionsrate von 7 kHz auf 10 kHz erhöht. Die maximal zulässige Pumpleistung wurde somit zu 30 W bestimmt. Die deutlich höhere Ausgangsleistung ist insbesondere wichtig im Hinblick auf die Installation des Lasersystems an ISOL Einrichtungen (siehe 5.2) mit einem aufwändigen Strahltransport und den damit verbundenen Verlusten in der Laserleistung. Nachfolgend sind die Laserleistung des Titan:Saphir-Lasersystems für die erreichbaren Wellenlängenbereiche zusammengefasst:

- fundamental (690 - 950 nm): 3,5 - 5 W
- frequenzverdoppelt (345 - 475 nm): 0,5 - 1 W
- frequenzverdreifacht (230 - 315 nm): 150 - 250 mW
- frequenzvervieracht (205 - 230 nm): 100 - 150 mW

Um das Lasersystem für spektroskopische Untersuchungen einsetzen zu können, wurde ein Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator entwickelt. Dieser ist kontinuierlich von

etwa 700 nm bis 950 nm abstimbar. Die Ausgangsleistung beträgt im Maximum 1,5 W. Die restlichen Spezifikationen entsprechen denen der bereits vorhandenen Laser. Somit konnte der neu entwickelte Laser nahtlos in das vorhandene System integriert werden. Der neue Laser ermöglicht mit geringem experimentellen Aufwand die Spektroskopie von Rydbergzuständen zur Bestimmung von Ionisationspotentialen (siehe auch Abschnitt 5.1.2) oder die Suche nach atomaren Zuständen zur Entwicklung neuer effizienter Anregungsschemata (siehe Anhang C).

Um den Bereich der hochauflösenden Spektroskopie mit dem Titan:Saphir-Lasersystem zu erschließen, wurde das Verfahren des *Injection Seedings* auf einen eigens dafür entwickelten Titan:Saphir-Laser mit Ringresonator angewendet. Die spektrale Breite des Lasers konnte so von etwa 3 GHz auf 20 MHz reduziert werden. Aufgrund der gepulsten Struktur des Lasers ist eine einfache Frequenzvervielfachung mit nur einem Durchgang durch nichtlineare, optische Kristalle möglich. Da der geseedete Laser sich bis auf die geringere Lineienbreite in seinen Spezifikationen nicht von den herkömmlichen Titan:Saphir-Lasern unterscheidet, kann er problemlos in das vorhandene Lasersystem integriert werden. Dies eröffnet unter anderem die Möglichkeit von hochaufgelöster Spektroskopie mittels RIS an on-line Laserionenquellen.

Um den erreichbaren Wellenlängenbereich des Festkörperlaser-Systems zu erweitern, wurde zusammen mit und im Rahmen der Diplomarbeit von Sebastian Rothe ein Chrom:Forsterit-Laser auf Basis der Titan:Saphir-Laser entwickelt. Mit der vorhandenen Optik konnte ein Laserbetrieb von 1219 nm bis 1275 nm erreicht werden bei einer maximalen Ausgangsleistung von 1,2 W. Mit speziell auf den Chrom:Forsterit-Laser angepasster Optik sollte ein Laserbetrieb von 1180 nm bis 1330 nm, wie bereits demonstriert [ZPN99, DMW99], erreichbar sein. Durch Frequenzverdopplung des Lichts wäre somit der Wellenlängenbereich von 590 nm bis 665 nm zugänglich, der Titan:Saphir-Lasern verschlossen ist. Die Integration in das vorhandene Titan:Saphir-Lasersystem konnte anhand von spektroskopischen Untersuchungen an Strontium, Titan, Nickel, Scandium und Silizium demonstriert werden.

### 5.1.2. Spektroskopie

Mit dem aufgerüsteten Titan:Saphir-Lasersystem wurden spektroskopische Untersuchungen zur Bestimmung von Ionisationspotentialen mittels Rydbergkonvergenzen durchgeführt. Dabei diente Gold als Testfall. Das Ionisationspotential von Gold konnte mit der gewählten Methode und dem Lasersystem erfolgreich und mit guter Genauigkeit reproduziert werden. Aufbauend auf diesen Erfahrungen wurde das bisher nur unzureichend bekannte Ionisationspotential von Technetium untersucht. Eine Neubestimmung des Ionisationspotentials über Rydbergkonvergenzen gegen den Grundzustand sowie den ersten und zweiten angeregten Zustand des Technetiumions wurde durchgeführt. Das Ionisationspotential wurde zu  $V_{IP}(\text{Tc}) = 7,119391(15)$  eV bestimmt. Dies stellt eine Abweichung von -1,5 % bzw. -2,2 % zu den bisherigen Literaturwerten von Technetium dar. Aufgrund der gewählten Methodik, die wesentlich mehr Daten in Betracht zieht als die vorigen Bestimmungen des Ionisationspotentials und der Tatsache, dass das Ionisationspotential für Gold auf die selbe Art und Weise genau reprodu-

ziert werden konnte, kann der in dieser Arbeit ermittelte Wert als korrekt angesehen werden.

An dem Element Silizium wurde mit den stabilen Isotopen  $^{28,29,30}\text{Si}$  die dopplerfreie Zwei-Photonen-Spektroskopie mit einem geseedeten Titan:Saphir-Laser demonstriert. Die Spektroskopie fand dabei in einer heißen Quelle (Graphitrohr, ca. 2200 K) statt, um die Bedingungen, wie sie an einer ISOL-Einrichtung existieren, nachzuahmen. Diese Messungen dienten als Machbarkeitsstudie für die hochauflösende *in-source* Spektroskopie für sehr kurzlebige Isotope. Mit diesem Aufbau gelang es die Isotopieverschiebung zwischen den einzelnen Siliziumisotopen und die Hyperfeinstruktur von  $^{29}\text{Si}$  aufzulösen, bei einer Linienbreite der Resonanzen von etwa 90 MHz, welche durch die spektrale Breite des Lasers dominiert war. Es wurde gezeigt, dass hochauflösende Spektroskopie direkt in der Quelle von ISOL-Anlagen möglich ist, wenn die Quelle entsprechend angepasst ist, so dass die Laserstrahlen an deren Ende reflektiert werden.

## 5.2. Ausblick

Das Titan:Saphir-Lasersystem wird seit mehreren Jahren routinemäßig am Mainzer RISIKO-Massenseparator für die Resonanzionisation verwendet. Seit 2005 wird das Lasersystem auch on-line am TRIUMF erfolgreich zur Produktion radioaktiver Ionenstrahlen eingesetzt [LBD<sup>+</sup>05]. Aufgrund der einfachen Handhabung, der Zuverlässigkeit und den guten Leistungswerten wird das Titan:Saphir-Lasersystem zur Zeit an zwei weiteren on-line Einrichtungen installiert. Sebastian Rothe baut das System zurzeit an ISOLDE auf, wo es komplementär zu dem vorhandenen Farbstofflasersystem eingesetzt werden wird. Ein identisches Titan:Saphir-Lasersystem wird unter der Leitung von Nathalie Lecesne an der Forschungseinrichtung GANIL für den im Aufbau befindlichen Isotopenseparator SPIRAL 2 [LEF<sup>+</sup>08] installiert. Es wird dort neben einer EZR-, einer FEBIAD- und einer Obeflächenionenquelle, als vierte Ionenquelle zum Einsatz kommen.

Das Festkörperlasersystem hat seine universelle Einsetzbarkeit in vielen Bereichen bereits unter Beweis gestellt. Neben der eigentlichen Bestimmung, dem Einsatz bei einer Resonanzionisations-Laserionenquelle, kann das Lasersystem insbesondere im Bereich der Spektroskopie eingesetzt werden. Für die nahe Zukunft ist bereits geplant, die nur unzureichend genau bestimmten Ionisationspotentiale von Promethium (5,582 eV [WSPC78]), Praseodym (5,473 eV [WSPC78]) und Protactinium (5,89 eV [Sug74]) mittels Rydbergspektroskopie in der MABU auf weniger als einen  $\text{cm}^{-1}$  genau zu bestimmen.

Neben den nur unzureichend bekannten Ionisationspotentialen von Praseodym und Protactinium wurde für Astat bis heute noch kein Ionisationspotential experimentell bestimmt. Zur Bestimmung des Ionisationspotentials wurden bisher nur ab initio Rechnungen durchgeführt. Aus diesen Rechnungen sind folgende Werte bekannt: 10,4 eV [Var53], 9,2(4) eV [FH55] und 9,86 eV [LW03]. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 8,1 h des langlebigsten Astatisotops ist eine off-line Untersuchung in der MABU nicht möglich. Die spektroskopischen Untersuchungen sind daher an ISOLDE und

TRIUMF geplant. Eine Schwierigkeit stellt das weitgehend unbekannte atomare Spektrum von Astat dar. Bisher sind nur zwei starke Fluoreszenzlinien in Astat bekannt, von denen vermutet wird, dass sie von einem angeregten Zustand in den Grundzustand führen [McL64]. Daher ist eine weitreichende spektroskopische Voruntersuchung an Astat unerlässlich. Dies wird im Rahmen der Entwicklung der Resonanzionisation von Astat an ISOLDE [AAB<sup>+</sup>10] geschehen. Sobald ein geeignetes Anregungsschema für Astat entwickelt worden ist, kann die Rydbergspektroskopie on-line stattfinden. Der Gitterlaser wird bei dem Experiment für die Suche nach Zwischenzuständen und für die Rydbergspektroskopie eingesetzt werden.

Um die neu entwickelten Laser (Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator, Chrom:Forsterit-Laser) völlig nahtlos in das vorhandene Lasersystem zu integrieren, sind weitere Entwicklungsschritte notwendig. Für eine exakte zeitliche Synchronisation muss der Gitterlaser mit einer Pockelszelle ausgestattet werden, die es erlaubt, die Güte des Resonators aktiv zu schalten und somit das Anschwingen des Lasers zu verzögern. Die Integration der Pockelszelle ist auf die gleiche Art und Weise möglich wie bei den herkömmlichen Titan:Saphir-Lasern. Es sollte sich damit eine zeitliche Synchronisation von besser als 5 ns erreichen lassen. Der Chrom:Forsterit-Laser bedarf mehrerer Anpassungen. Insbesondere die Optik des Lasers muss explizit auf den Wellenlängenbereich angepasst werden, in dem der Laser betrieben werden kann. Dies erfordert ein Lyotfilter und ein Etalon, welche für den Wellenlängenbereich von 1130 nm bis 1370 nm gefertigt wurden. Die Resonatorspiegel müssen dann auf den FSR des Lyotfilters abgestimmt werden. Dies erfordert für den genannten Wellenlängenbereich voraussichtlich drei Spiegelsätze, die jeweils für einen Teil des Verstärkungsbereichs hochreflektierend sind. Um eine gute zeitliche Synchronisation mit dem restlichen Lasersystem zu erreichen, muss auch in den Chrom:Forsterit-Laser eine Pockelszelle integriert werden.

Für die Anwendung der dopplerfreien Zwei-Photonen-Spektroskopie in einer heißen Quelle mit dem geseedeten Titan:Saphir-Laser bei ISOLDE ist zunächst eine Modifikation der Quellenregion notwendig, damit die Laserstrahlen nach dem Passieren der Quelle zurück reflektiert werden können. Diese Entwicklung wird derzeit von Maxim Seliverstov und Gerhard Huber geleistet, mit der Zielsetzung die Zwei-Photonen-Spektroskopie zu ermöglichen und die Laserleistung in der Ionisationsregion für die konventionelle RILIS um einen Faktor zwei zu erhöhen.

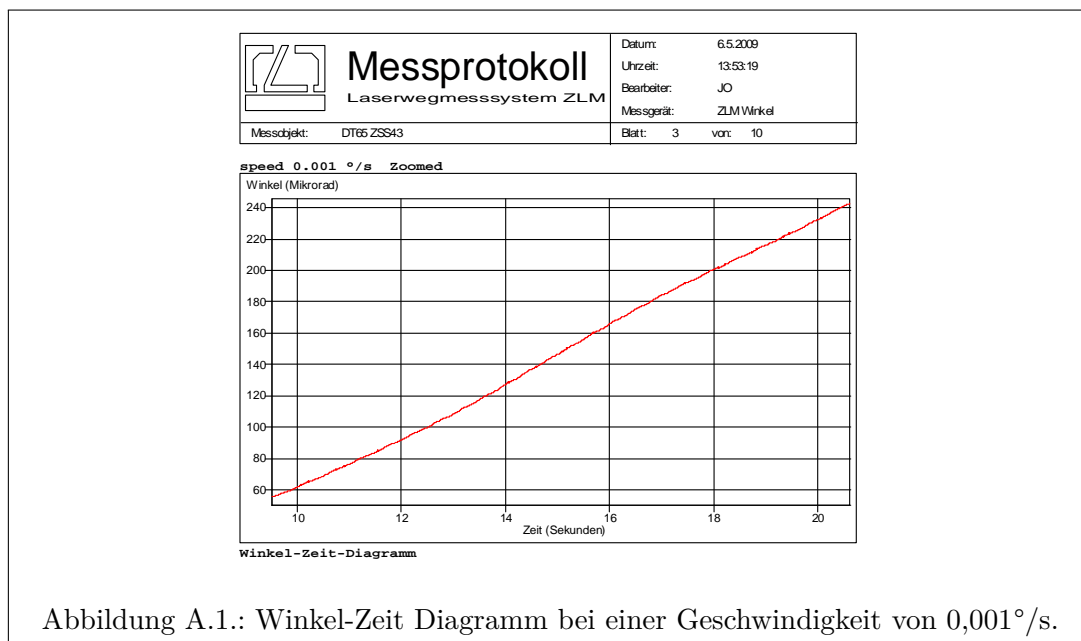
---

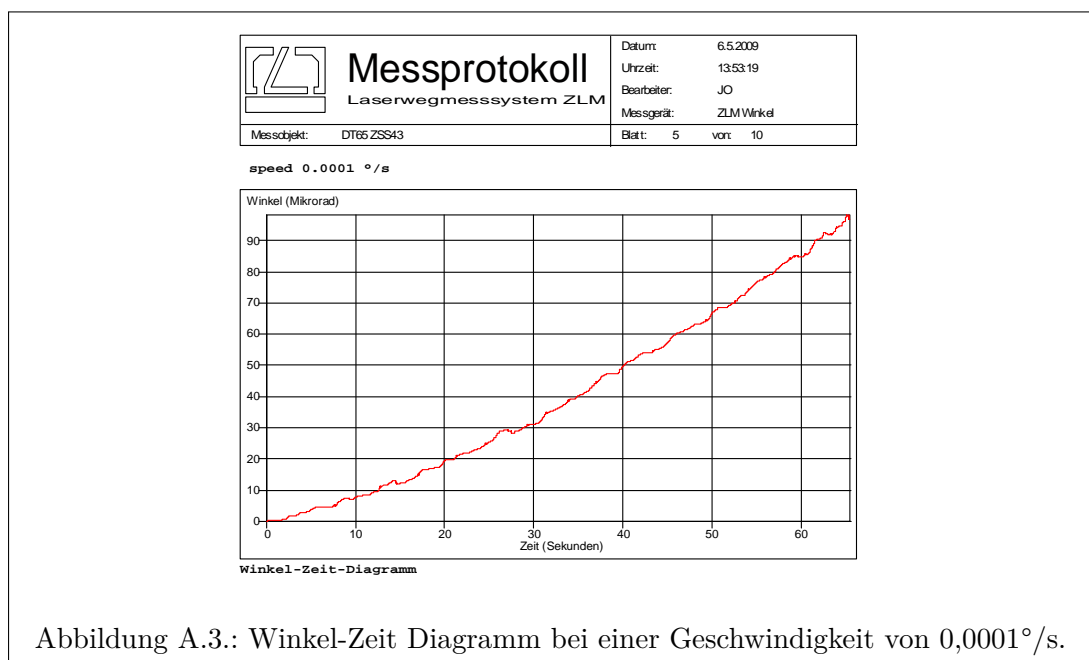
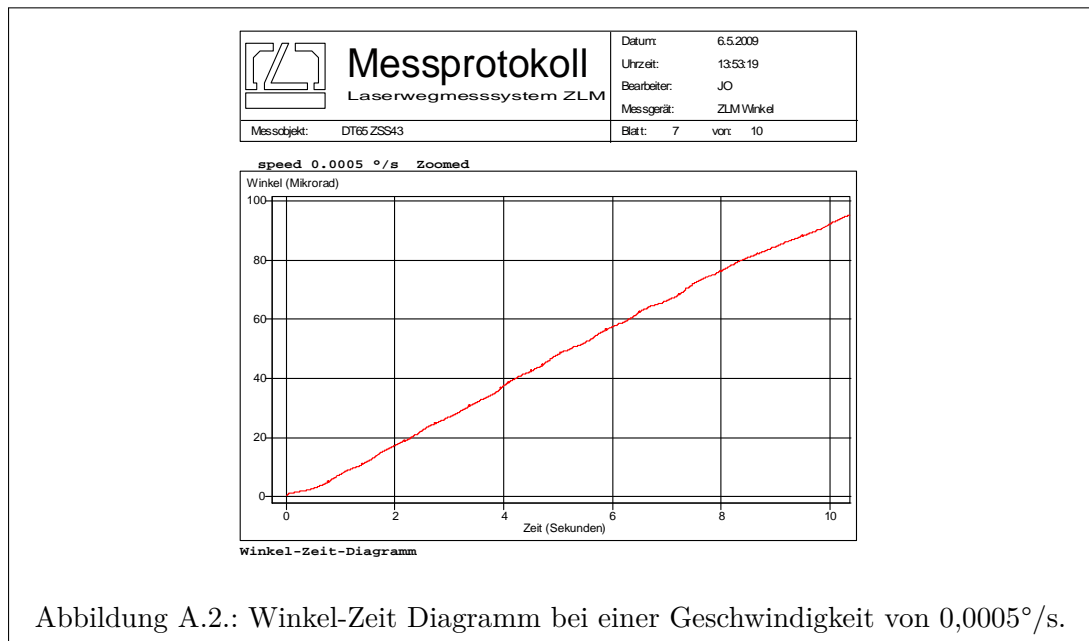
## Anhang A.

# Winkel-Zeit Diagramme des Drehtisches von Micos

---

Die Linearität des Winkel-Zeit Diagramms bei verschiedenen Geschwindigkeiten wurde für den verwendeten Drehtisch DT-65N von Micos seitens des Herstellers überprüft. Der Drehtisch wird von einem Schrittmotor angetrieben. Sowohl bei  $0,001^\circ/\text{s}$  (Abbildung A.1) und  $0,0005^\circ/\text{s}$  (Abbildung A.2) kann die Bewegung als nahezu linear angenommen werden. Erst bei einer Geschwindigkeit von  $0,0001^\circ/\text{s}$  (Abbildung A.3) machen sich deutliche Abweichungen von einer linearen Bewegung bemerkbar. Als Konsequenz aus diesen Messungen kann als minimale Geschwindigkeit für den Messbetrieb  $0,0005^\circ/\text{s}$  angegeben werden. Für noch präzisere und langsamere Veränderungen des Gitterwinkels muss auf den Piezoaktuator im Halter des Gitters zurückgegriffen werden.





---

## Anhang B.

### Lage der Rydbergresonanzen in Technetium

---

An dieser Stelle sind die gemessenen Lagen der einzelnen Rydbergresonanzen, aus denen das Ionisationspotential von Technetium bestimmt wurde, in tabellarischer Form aufgeführt.

#### B.1. Zum ionischen Grundzustand

n	Messung 1		Messung 2	
	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )
9	56049,86	0,15	56050,14	0,15
10	-	-	-	-
11	56505,53	0,16	56505,79	0,17
12	56652,50	0,15	56652,70	0,15
13	56766,83	0,16	56767,04	0,15
14	56857,29	0,18	56857,29	0,15
15	56930,17	0,18	56930,16	0,16
16	56989,75	0,16	56989,89	0,15
17	57039,15	0,16	57039,36	0,16
18	57080,70	0,15	57080,70	0,15
19	57115,57	0,16	57115,77	0,16
20	57145,68	0,16	57145,87	0,15
21	57171,26	0,16	57171,51	0,16
22	57193,53	0,16	57193,71	0,16
23	57212,87	0,17	57213,09	0,16
24	57229,97	0,17	57230,19	0,17
25	57245,07	0,16	57245,20	0,16

## Fortsetzung

n	Messung 1		Messung 2	
	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )
26	57258,34	0,17	57258,57	0,16
27	57270,46	0,17	57270,57	0,16
28	57280,97	0,16	57281,08	0,15
29	57290,43	0,16	57290,73	0,16
30	57298,95	0,17	57299,46	0,15
31	57307,01	0,17	57307,04	0,15
32	57313,92	0,17	57314,14	0,16
33	57320,42	0,16	57320,46	0,15
34	57326,23	0,16	57326,37	0,16
35	57331,46	0,16	57331,77	0,17
36	57336,44	0,17	57336,64	0,16
37	57340,91	0,15	57341,21	0,17
38	57345,18	0,16	57345,47	0,17
39	57349,11	0,15	57349,24	0,17
40	57352,61	0,17	57352,89	0,17
41	57356,06	0,18	57356,16	0,17
42	57358,99	0,17	57359,25	0,17
43	57362,03	0,18	57362,16	0,17
44	57364,58	0,18	57364,80	0,18
45	57367,10	0,18	57367,33	0,18
46	-	-	57369,70	0,18
47	-	-	57371,87	0,17
48	-	-	57373,86	0,18
49	-	-	57376,06	0,19

Tabelle B.1.: Lage der Rydbergresonanzen zum Grundzustand des Technetiumions.

## B.2. Zum ersten angeregten Zustand des Ions

n	Messung 1		Messung 2	
	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )
13	60230,71	0,19	60231,08	0,23
14	60320,84	0,18	60320,95	0,20
15	-	-	60393,34	0,18
16	60452,76	0,17	60452,90	0,18
17	60501,92	0,16	60502,23	0,17
18	60543,14	0,17	60543,22	0,18
19	60578,46	0,17	60578,19	0,18
20	60608,09	0,17	60607,94	0,17
21	60633,55	0,17	60633,57	0,16
22	60655,67	0,16	60655,70	0,17
23	60674,93	0,15	60674,92	0,16
24	60691,87	0,15	60691,90	0,16
25	60706,89	0,15	60707,04	0,17
26	60720,21	0,15	60720,22	0,16
27	60732,06	0,15	60732,08	0,16
28	60742,59	0,15	60742,62	0,15
29	60752,22	0,15	60752,20	0,15
30	60760,68	0,15	60760,65	0,15
31	60768,48	0,15	60768,43	0,15
32	60775,53	0,15	60775,51	0,15
33	60782,00	0,15	60781,87	0,15
34	60787,74	0,15	60787,71	0,15
35	60793,15	0,15	60793,14	0,15
36	60798,04	0,15	60798,05	0,15
37	60802,61	0,15	60802,51	0,15
38	60806,79	0,15	60806,75	0,15
39	60810,62	0,15	60810,57	0,15
40	60814,20	0,15	60814,03	0,16
41	60817,54	0,15	60817,38	0,15
42	60820,83	0,16	60820,53	0,15
43	60823,84	0,18	60823,45	0,17

## Fortsetzung

n	Messung 1		Messung 2	
	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )
44	60826,43	0,16	60826,05	0,16
45	60828,88	0,16	60828,52	0,16
46	60831,23	0,18	60830,92	0,16
47	60833,50	0,15	-	-
48	60835,36	0,17	-	-
49	60837,32	0,15	-	-
50	60839,20	0,15	-	-
51	60840,71	0,16	-	-
52	60842,35	0,15	-	-
53	60843,89	0,15	-	-
54	60845,32	0,16	-	-
55	60846,67	0,15	-	-
56	60847,97	0,16	-	-
57	60849,22	0,15	-	-
58	60850,26	0,15	-	-

Tabelle B.2.: Lage der Rydbergresonanzen zum ersten angeregten Zustand des Technetiumions.

### B.3. Zum zweiten angeregten Zustand des Ions

n	Messung 1		Messung 2	
	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )	Position (cm <sup>-1</sup> )	Fehler (cm <sup>-1</sup> )
9	60274,84	0,17	60274,83	0,17
10	60534,66	0,16	60534,71	0,17
11	-	-	-	-
12	60872,75	0,15	60872,96	0,17
13	60986,63	0,17	60986,68	0,16
14	61076,38	0,15	61076,44	0,15
15	61149,20	0,15	61149,10	0,15
16	61208,53	0,15	61208,47	0,16
17	61257,92	0,17	61257,84	0,16
18	61299,30	0,16	61299,13	0,16
19	61333,97	0,21	61334,02	0,17
20	61363,89	0,16	61363,66	0,15
21	61389,65	0,15	61389,29	0,15
22	61411,61	0,16	61411,48	0,16
23	61431,18	0,19	61430,85	0,17
24	61448,22	0,20	61447,88	0,15
25	61463,08	0,15	61462,80	0,16
26	-	-	61476,13	0,16
27	-	-	61487,93	0,15
28	-	-	61498,74	0,16
29	-	-	61508,38	0,14

Tabelle B.3.: Lage der Rydbergresonanzen zum zweiten angeregten Zustand des Technetiumions.



---

## Anhang C.

# Zustandssuche mit dem Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator

---

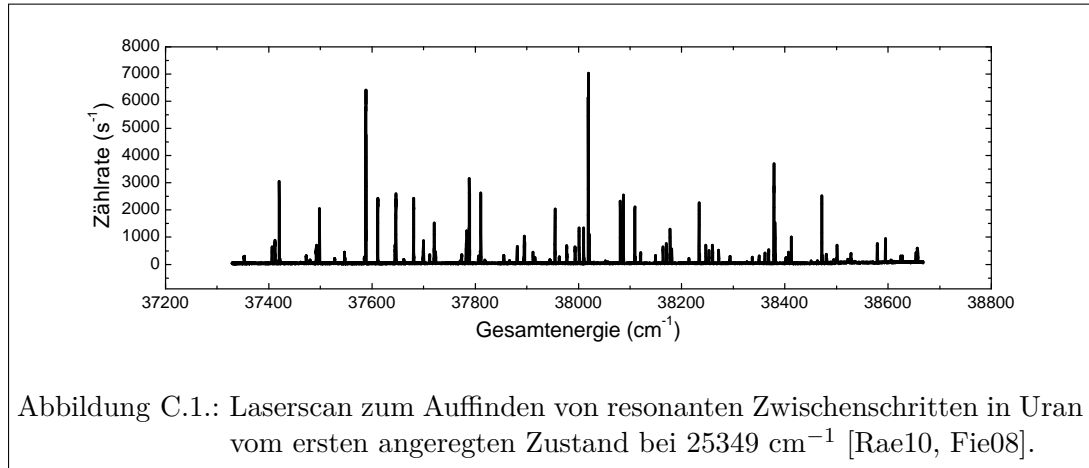
Für die Entwicklung effizienter Anregungsschemata für die Resonanzionisation ist eine möglichst genaue Kenntnis der elektronischen Zustände des zu ionisierenden Atoms erforderlich. Bei der hochaufgelösten Resonanzionisations-Massenspektrometrie müssen die elektronischen Zustände zudem mit Dauerstrich-Lasern zugänglich sein. Bei der Suche nach solchen geeigneten Energieniveaus muss die Wellenlänge des Lasers oft um mehrere hundert nm durchgestimmt werden. Der Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator ist ein ideales Werkzeug für diese Aufgabe. Für die Elemente Uran, Thorium und Neptunium wurden spektroskopische Untersuchungen zur Entwicklung von möglichst effizienten Anregungsschemata durchgeführt. Diese Untersuchungen fanden im Rahmen der Dissertationen von Sebastian Raeder (Uran) [Rae10], Volker Sonnenschein (Thorium) [Son12] und Nils Stöbener (Neptunium) [Stö12] statt. An dieser Stelle sollen auszugsweise Laserscans dieser spektroskopischen Untersuchungen gezeigt werden, um die Eignung des Gitterlasers auf diesem Einsatzgebiet zu demonstrieren.

**Uran** Für die Ultraspurenanalyse an Uran wird zur Zeit ein Diodenlaser bei 415 nm verwendet. Die Laserdioden für diesen Laser sind nicht mehr verfügbar. Es wurde daher ein alternativer Zwischenschritt für einen ersten Anregungsschritt bei 405 nm<sup>1</sup> gesucht. Der experimentelle Aufbau zur Suche von Zwischenschritten unterscheidet sich prinzipiell nicht von dem für die Rydbergspektroskopie. Abbildung C.1 zeigt diverse Resonanzen in Uran, die ausgehend vom Zustand bei 25348,977 cm<sup>-1</sup> mit dem Gitterlaser bevölkert werden können. Hat man einen geeigneten Übergang identifiziert, kann das Anregungsschema weiterentwickelt werden, indem etwa von diesem neu gefundenen Zwischenzustand spektroskopiert wird, um effiziente, autoionisierende Zustände zu finden. Für eine detailliertere Auswertung dieser spektroskopischen Daten sei auf [Rae10, Fie08] verwiesen.

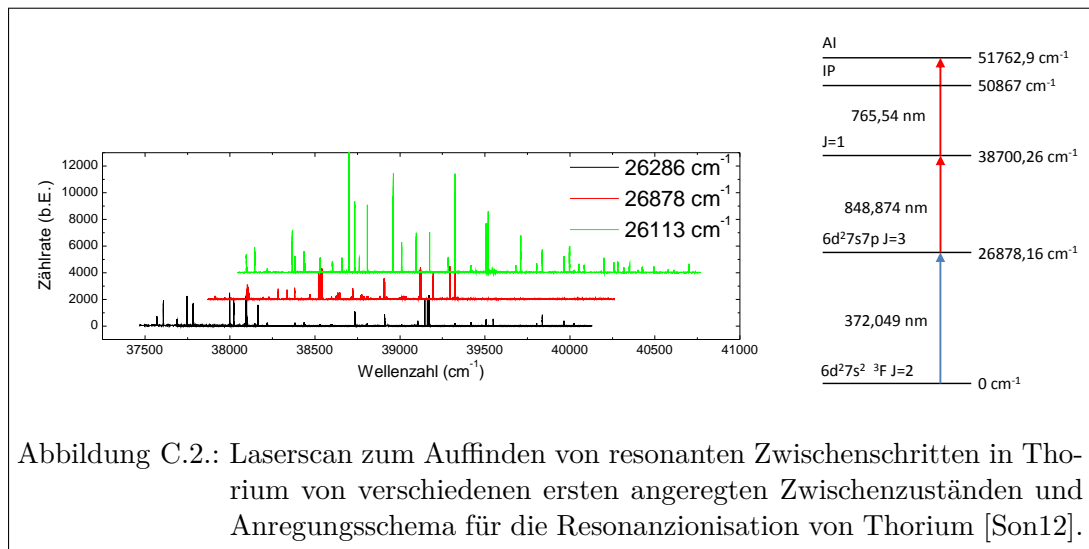
**Thorium** Im Isotop <sup>229</sup>Th wird ein isomerer Kernzustand mit einer Energie von 7,6 eV [BBB<sup>+</sup>07] erwartet. Dieses Isomer <sup>229m</sup>Th mit einem Kernspin von  $I = 3/2$

---

<sup>1</sup>Laserdioden dieser Wellenlänge werden für moderne optische Laufwerke hergestellt und werden längerfristig erhältlich sein.



wurde bis heute noch nicht direkt nachgewiesen. Ein direkter Nachweis könnte über die Veränderung der Hyperfeinaufspaltung gegenüber  $^{229}\text{gTh}$  mit einem Kernspin von  $I = 5/2$  durch spektroskopische Untersuchungen geführt werden. Die IGISOL Einrichtung in Jyväskylä entwickelt derzeit die Produktion eines  $^{229}\text{Th}$  Ionenstrahls, um an diesem den Nachweis des Isomers zu führen. Für die Produktion wurde in Mainz ein möglichst effizientes Anregungsschema für die Resonanzionisation von Thorium entwickelt. Abbildung C.2 zeigt drei Laserscans von ersten angeregten Zuständen zu weiteren möglichen Zwischenzuständen. Aus diesem Laserscan und weiteren Laser-



scans zum Auffinden von autoionisierenden Zuständen wurde das Anregungsschema in Abbildung C.2 entwickelt.

**Neptunium** Nils Stöbener wird in seiner Dissertation das Ausbreitungsverhalten von Neptunium in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie untersuchen<sup>2</sup>. Dort wird bereits routinemäßig das Isotopenverhältnis von Plutonium in Umweltproben bestimmt. Um diese Methode auf Neptunium anzuwenden, musste zunächst ein geeignetes Anregungsschema entwickelt werden. Abbildung C.3 zeigt exemplarisch den Laserscan zum Auffinden von zweiten resonanten Anregungsschritten, ausgehend von dem angeregten Zustand bei  $26245\text{ cm}^{-1}$ . Durch weitere spektroskopische Untersuchungen, insbesondere zum Auffinden von autoionisierenden Zuständen, wurden die Anregungsschemata in Abbildung C.4 entwickelt.

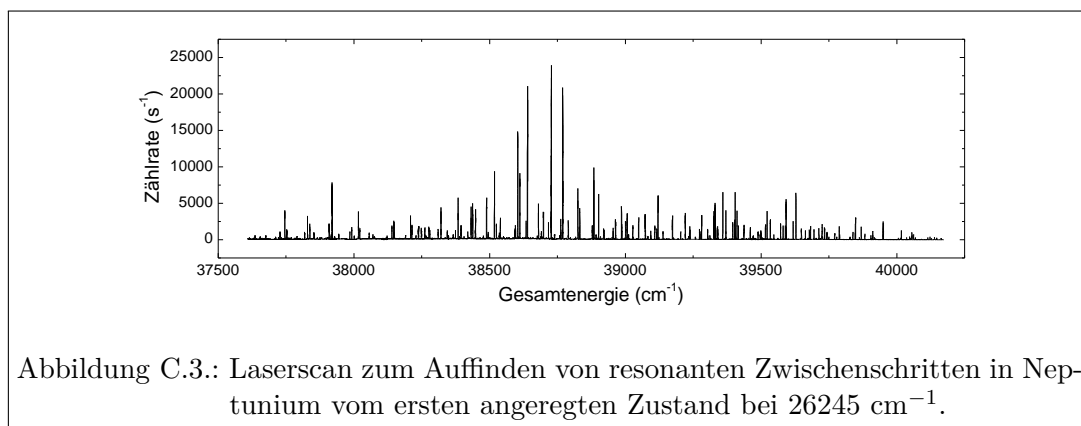


Abbildung C.3.: Laserscan zum Auffinden von resonanten Zwischenschritten in Neptunium vom ersten angeregten Zustand bei  $26245\text{ cm}^{-1}$ .

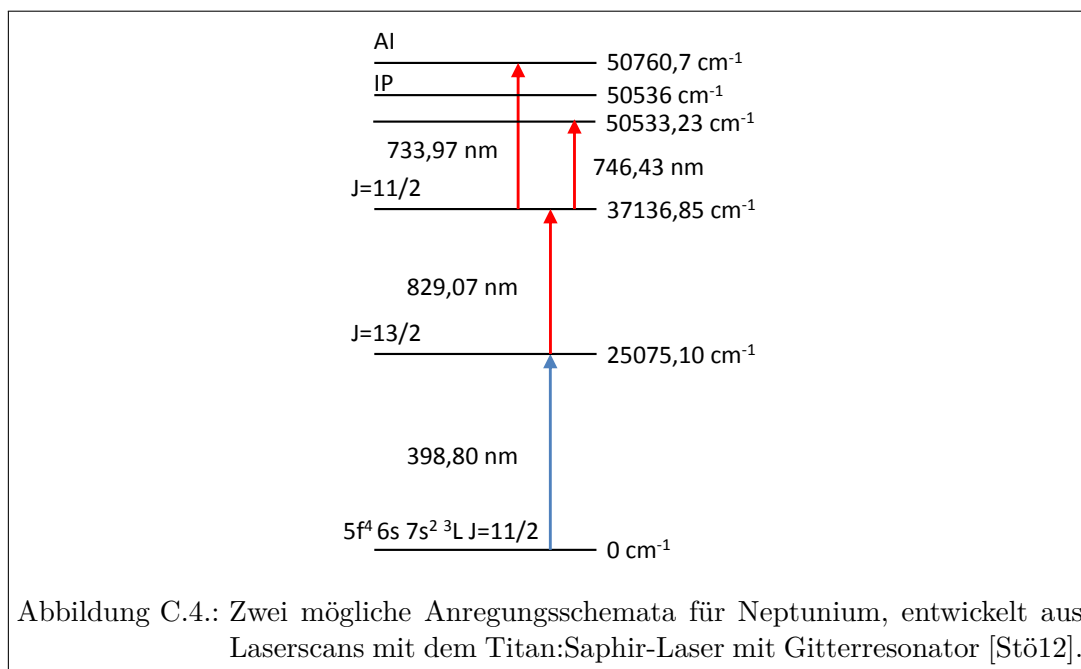


Abbildung C.4.: Zwei mögliche Anregungsschemata für Neptunium, entwickelt aus Laserscans mit dem Titan:Saphir-Laser mit Gitterresonator [Stö12].

<sup>2</sup>Die Dissertation wird am Institut für Kernchemie der Johannes Gutenberg-Universität durchgeführt.



---

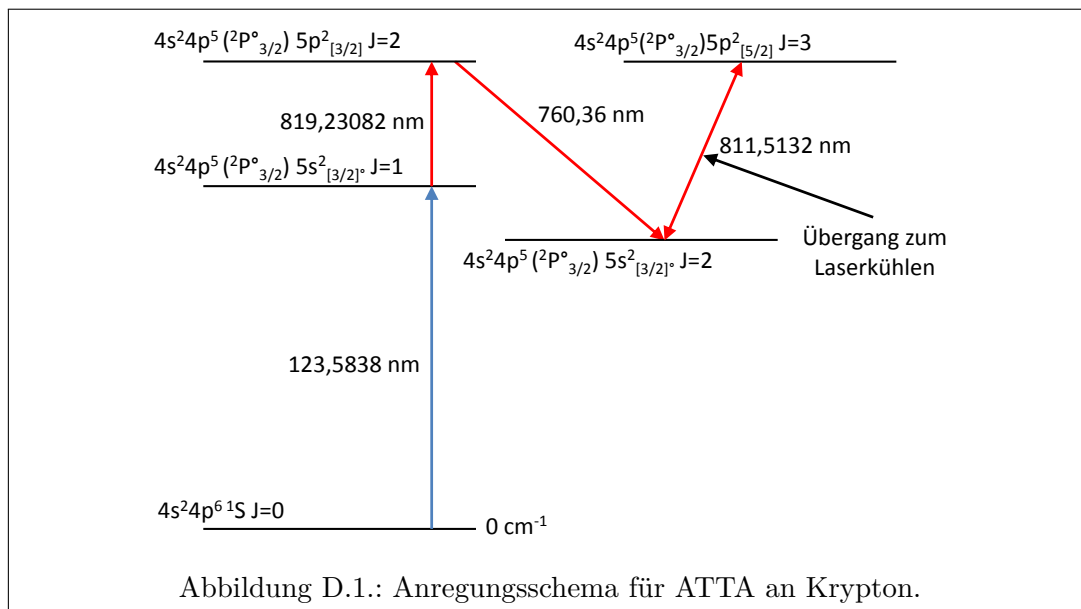
## Anhang D.

---

# Zwei-Photonen-Anregung von Krypton

---

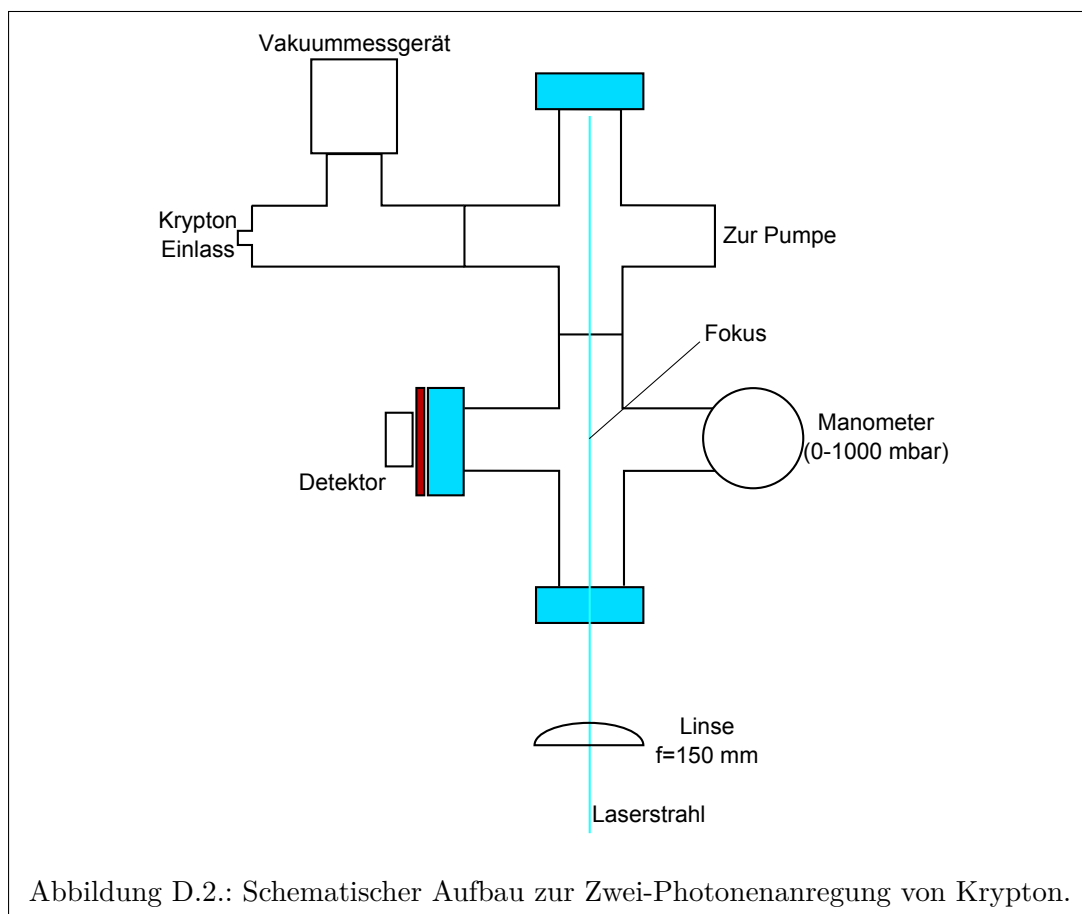
Am Argonne National Laboratory (ANL) wird unter der Leitung von Zheng-Tian Lu die Ultraspurenanalyse in einer Atomfalle (ATTA von *Atom Trap Trace Analysis*) durchgeführt. Die Spurenanalyse des Elements Krypton wird dabei zur Altersdatierung von Grundwasser unter der Sahara verwendet [CLB<sup>+</sup>99, DPB<sup>+</sup>03, SDP<sup>+</sup>04]. Um eine magneto-optische Falle (MOT von *Magneto Optical Trap*) verwenden zu können, muss ein geschlossener Übergang im zu untersuchenden Element vorhanden sein, d.h. aus einem langlebigen Zustand muss eine Laseranregung in einen energetisch höher gelegenen Zustand erfolgen können. Dieser muss anschließend wieder in den langlebigen Zustand zerfallen. Zudem muss der Übergang mit verfügbaren Lasern spektroskopisch zugänglich sein. In Krypton ist der Übergang zwischen dem metastabilen Zustand  $4s^2 4p^5 ({}^2P_{3/2}^{\circ}) 5s^2 J=3/2$  und dem Zustand  $4s^2 4p^5 ({}^2P_{3/2}^{\circ}) 5p^2 J=5/2$  für das Laserkühlen optimal. Abbildung D.1 zeigt ein Anregungsschema um diesen Zustand zu bevölkern. Zunächst muss der Zustand  $4s^2 4p^5 ({}^2P_{3/2}^{\circ}) 5p^2 J=3/2$  angeregt werden. Dieser zerfällt



mit einem Verzweungsverhältnis von 90 % in den gewünschten Zustand. Bisher kann

der Zustand über eine Gasentladung [CBL<sup>+</sup>01] oder die schrittweise Anregung mittels Photonen mit einer Wellenlänge von 123,6 nm aus einer Kryptonlampe und Photonen mit einer Wellenlänge von 819,2 nm aus einem Titan:Saphir-Laser [DHB<sup>+</sup>07] erzeugt werden.

Alternativ kann mit Photonen mit einer Wellenlänge von 215 nm eine Zwei-Photonenanregung direkt in den Zustand erfolgen. In Zusammenarbeit mit Peter Müller vom ANL wurde diese Möglichkeit unter Verwendung der gepulsten Titan:Saphir-Laser untersucht. Zu diesem Zweck wurde das Licht eines Titan:Saphir-Lasers in der Frequenz vervierfacht. In einer Vakuumapparatur mit Kryptonatmosphäre wurde das Laserlicht fokussiert und die Fluoreszenz mit einem Leistungsmessgerät im nah-infraroten Spektralbereich beobachtet. Abbildung D.2 zeigt den schematischen Aufbau zur Zwei-



Photonenanregung von Krypton. Die Vakuumapparatur wurde zunächst evakuiert und anschließend mit Krypton befüllt. Der gewünschte Druck wurde mit Hilfe eines Manometers eingestellt. Das Laserlicht wurde mit einer Linse mit einer Brennweite von 150 mm innerhalb der Vakuumapparatur fokussiert. Wird der Zustand  $5p^2$  angeregt zerfällt dieser unter Aussendung eines Photons in den Zustand  $5s^2$   $J=1$  oder den gewünschten metastabilen Zustand  $5s^2$   $J=2$ . Um lediglich die Photonen mit einer Wellenlänge von

819 nm bzw. 760 nm zu detektieren, wurde ein Langpassfilter vor dem Detektor eingebaut, der kein Licht aus dem ultravioletten Bereich transmittiert. Als Detektor wurde ein Laserleistungsmessgerät der Firma Ophir verwendet. Auf diese Weise konnte direkt die Anzahl emittierter Photonen aus dem Zusammenhang  $N = \frac{P}{E_{\nu} \epsilon_{Det}}$  berechnet werden.

Nachdem es gelungen ist ein Fluoreszenzsignal zu produzieren, wurde zunächst ein Laserscan durchgeführt, um zu bestätigen, dass es sich um eine resonante Anregung des gewünschten Zustands handelte. Abbildung D.3 zeigt diesen Laserscan. Die Resonanz liegt bei  $93123,43(1) \text{ cm}^{-1}$  und weicht somit nur  $0,09 \text{ cm}^{-1}$  vom Literaturwert ab. Es wurde gezeigt, dass der gewünschte Zustand angeregt werden kann.

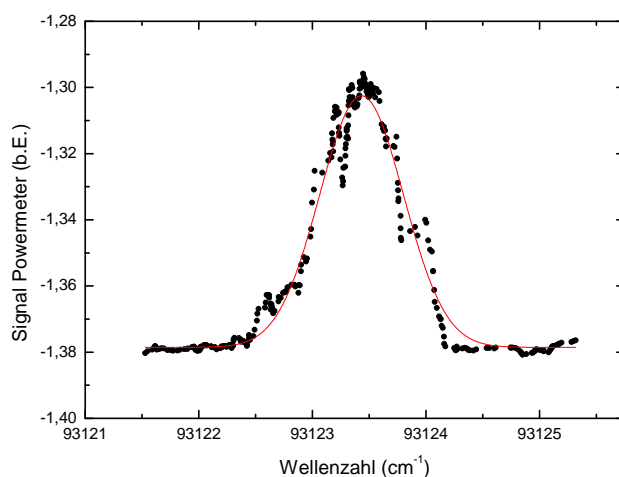
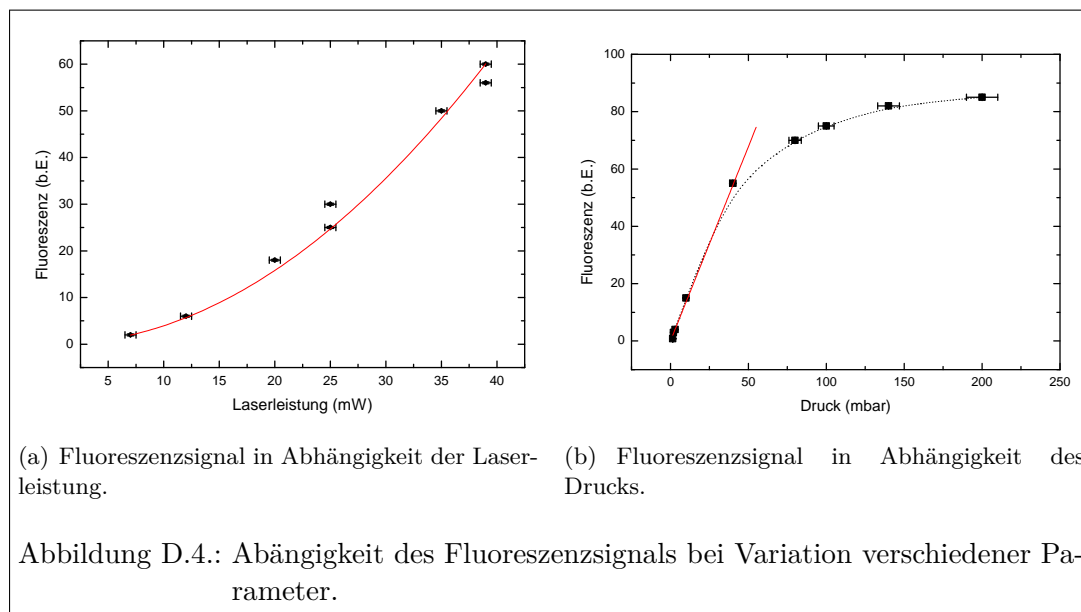


Abbildung D.3.: Laserscan bei der Zwei-Photonenanregung von Krypton.

Um die Effizienz und das Verhalten der Anregung unter verschiedenen Bedingungen zu untersuchen, wurde die Laserleistung und der Druck variiert. Abbildung D.4 (a) zeigt eine quadratische Abhängigkeit der Fluoreszenz von der Laserleistung. Aus Abbildung D.4 (b) erkennt man eine Sättigung des Fluoreszenzsignals ab einem Druck von etwa 50 mbar. In dem ATTA Experiment werden weit geringere Drücke verwendet. In diesem Bereich kann eine weitgehend lineare Abhängigkeit vom Druck angenommen werden. Die Effizienz ist in diesem Bereich somit unabhängig vom Druck.

Für eine Effizienzabschätzung wurde die Anzahl der abgestrahlten Photonen unter dem vom Messkopf abgedeckten Raumwinkel in Relation gesetzt zu der Anzahl der Kryptonatome, die sich im Volumen des Laserfokus befinden. Bei einer Laserleistung von 50 mW ergibt sich eine Effizienz pro Laserpuls von etwa  $3,5 \times 10^{-6}$  für die Anregung im Bereich der linearen Druckabhängigkeit. Für eine größere Effizienz muss die Laserleistung erhöht werden.

Bei dem Experiment standen maximal 50 mW an Laserleistung zur Verfügung. Bei früheren Tests zur Erzeugung von Laserstrahlung bei 215 nm konnten bereits Leistungen von 125 mW erreicht werden. Während der Messung wurde jedoch der BBO-



Kristall für die Erzeugung der Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von 215 nm durch das erzeugte Licht selbst beschädigt. Daher waren keine höheren Laserleistungen möglich. Bei weiterer Optimierung des Systems zur Erzeugung frequenzvervierfachter Laserstrahlung sollte eine weitere Leistungssteigerung auf annähernd 200 mW möglich sein. Aufgrund der quadratischen Abhängigkeit der Fluoreszenz von der Laserleistung könnte die Effizienz um einen Faktor 16 auf  $5,6 \times 10^{-5}$  gesteigert werden. Bei einer konkreten Anwendung der Technik im vorgesehenen Experiment kann der Laserstrahl das für die Anregung vorgesehene Volumen, bei geschickter Anordnung von Spiegeln, mehrfach passieren und die Effizienz somit weiter erhöht werden.



---

## Anhang E.

### Veröffentlichungen

---

T. KESSLER, T. ERONEN, C. MATTOLAT, I. MOORE, K. PERÄÄRVI, P. RONKANEN, P. THÖRLE, B. TORDOFF, N. TRAUTMANN, K. WENDT. *Upgrade to the IGISOL laser ion source towards spectroscopy on Tc*. *Hyperfine Interactions*, Band 171(1):121–126, 2006.

T. KESSLER, H. TOMITA, C. MATTOLAT, S. RAEDER UND K. WENDT. *An injection seeded high-repetition rate Ti: Sapphire laser for high-resolution spectroscopy and trace analysis of rare isotopes*. *Laser Physics*, Band 18(7):842–849, 2008.

F. SCHWELLNUS, K. BLAUM, C. GEPPERT, T. GOTTWALD, H. KLUGE, C. MATTOLAT, W. NÖRTERSCHÄUSER, K. WIES UND K. WENDT. *The laser ion source and trap (LIST) - A highly selective ion source*. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research*, B, Band 266(19-20):4383–4386, 2008.

H. TOMITA, C. MATTOLAT, T. KESSLER, S. RAEDER, F. SCHWELLNUS, K. WENDT, K. WATANABE UND T. IGUCHI. *Ultra Trace Determination Scheme for  $^{26}\text{Al}$  by High-Resolution Resonance Ionization Mass Spectrometry using a Pulsed Ti: Sapphire Laser*. *Journal of Nuclear Science and Technology*, Band 6:37–42, 2008.

T. GOTTWALD, J. LASSEN, C. MATTOLAT, Y. LIU, S. RAEDER UND K. WENDT. *Laser Resonance Ionization Spectroscopy of the Lanthanides Tb, Dy and Ho as Homologues to Actinides and Super Heavy Elements*. *AIP Conference Proceedings*, Band 1104:138–143, 2009.

Y. LIU, J. BEENE, T. GOTTWALD, C. HAVENER, C. MATTOLAT, J. LASSEN, K. WENDT UND C. VANE. *Resonant Ionization Laser Ion Source for Radioactive Ion Beams*. *AIP Conference Proceedings*, Band 1099:141, 2009.

C. MATTOLAT, S. ROTHE, F. SCHWELLNUS, T. GOTTWALD, S. RAEDER UND K. WENDT. *An All Solid State High Repetition Rate Titanium:Sapphire Laser System For Resonance Ionization Laser Ion Sources*. *Aip Conference Proceedings*, Band 1104:114, 2009.

H. TOMITA, C. MATTOLAT, T. KESSLER, T. MURAMATSU, K. WENDT, K. WATANABE UND T. IGUCHI. *Tunability of Injection Seeded High-Repetition Rate Ti: Sap-*

- phire Laser Far Off the Gain Peak*. AIP Conference Proceedings, Band 1104:195, 2009.
- F. SCHWELLNUS, R. CATHERALL, B. CREPIEUX, V. FEDOSSEEV, B. MARSH, C. MATTOLAT, M. MENNA, F. ÖSTERDAHL, S. RAEDER, T. STORA ET AL. *Study of Low Work Function Materials for Hot Cavity Resonance Ionization Laser Ion Sources*. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B, Band 267(10):1856–1861, 2009.
- H. TOMITA, C. MATTOLAT, S. RAEDER, S. SASADA, Y. HIGUCHI, K. TAKEZAWA, T. MURAMATSU, T. IGUCHI UND K. WENDT. *Development of laser ablation assisted resonant ionization mass spectrometry for isotope analysis*. Hyperfine Interactions, 2010. ISSN 0304-3843.
- S. RAEDER, S. FIES, T. GOTTWALD, C. MATTOLAT, S. ROTHE UND K. WENDT. *In-source resonance ionization spectroscopy of high lying energy levels in atomic uranium*. Hyperfine Interactions, 2010. ISSN 0304-3843.
- K. WENDT, T. GOTTWALD, D. HANSTORP, C. MATTOLAT, S. RAEDER, S. ROTHE, F. SCHWELLNUS, C. HAVENER, J. LASSEN UND YUAN LIU. *The selective and efficient laser ion source and trap project LIST for on-line production of exotic nuclides*. Hyperfine Interactions, 2010. ISSN 0304-3843.
- T. GOTTWALD, C. HAVENER AND J. LASSEN, Y. LIU, C. MATTOLAT, S. RAEDER, S. ROTHE UND K. WENDT. *Ion production from solid state laser ion sources*. Review of Scientific Instruments, Band 81:02A514, 2010.
- F. SCHWELLNUS, K. BLAUM, R. CATHERALL, B. CREPIEUX, V. FEDOSSEEV, T. GOTTWALD, H.-J. KLUGE, B. MARSH, C. MATTOLAT, S. ROTHE, T. STORA, AND K. WENDT. *The laser ion source trap for highest isobaric selectivity in online exotic isotope production*. Review of Scientific Instruments, Band 81:02A515, 2010.
- N. LECESNE, R. ALVÈS-CONDÉ, E. COTERREAU, F. DE OLIVEIRA, M. DUBOIS, J. L. FLAMBARD, H. FRANBERG, T. GOTTWALD, P. JARDIN, J. LASSEN, F. LE BLANC, R. LEROY, C. MATTOLAT, A. OLIVIER, J. Y. PACQUET, A. PICHARD, S. ROTHE, M. G. SAINT-LAURENT UND K. WENDT. *GISELE: A resonant ionization laser ion source for the production of radioactive ions at GANIL*. Review of Scientific Instruments, Band 81:02A910, 2010.
- C. MATTOLAT, T. GOTTWALD, S. RAEDER, S. ROTHE, F. SCHWELLNUS, P. THÖRLE-POSPIECH, N. TRAUTMANN UND K. WENDT. *Determination of the first ionization potential of technetium*. Physical Review A, Band 81:052513, 2010.

## E.1. Konferenzbesuche

- DGMS Jahrestagung 2006 in Mainz - Poster: Resonance ionisation mass spectrometry (RIMS) on  $^{26}\text{Al}$  with an injection seeded Ti:Sa Laser.

- DPG Frühjahrstagung 2006 in Frankfurt - Poster: Ultraspurenachweis von  $^{26}\text{Al}$  mit resonanter Laserionisations-Massen-Spektrometrie (RIMS).
- DPG Frühjahrstagung 2007 in Düsseldorf - Vortrag: Developement of a Seeded, high Repetition Rate Titan:Saphir-Laser for Resonance Ionisation Mass Spetrometry on  $^{26}\text{Al}$ .
- DPG Frühjahrstagung 2008 in Darmstadt - Vortrag: Hochrepetierende Titan:Saphir-Laser für Laserionenquellen.
- DPG Frühjahrstagung 2009 in Hamburg - Vortrag: Ein Festkörperlasersystem für spektroskopische Voruntersuchungen für Resonanzionisations Laserionenquellen.
- DPG Frühjahrstagung 2010 in Hannover - Vortrag: Two-photon spectroscopy inside a hot cavity.
- Eurons Trapspec Workshop 2008 in La Londe- Teilnahme am Abschlussworkshop zum EURONS Projekt #506065.
- diverse ISOLDE Workshops.

## E.2. Dienstreisen und Kollaborationstreffen

- Jyväskylä/Finnland, 04/2006, zwei Wochen Forschungsaufenthalt
- Genf/Schweiz, 01/2007 und 01/2008, zwei Forschungsaufenthalte an ISOLDE/Cern
- Oak Ridge/USA, 11/2006 und 10/2007, jeweils zwei Wochen Forschungsaufenthalt
- Nagoya/Japan, 02/2007, Japan, drei Wochen Forschungsaufenthalt
- Radiant Dyes, 05/2007, Besprechung der technischen Vorraussetzungen für den Lizenzvertrieb der bei LARISSA entwickelten Titan:Saphir Laser
- München, 06/2007, eine Woche Betreuung des Standes des Landes Rheinland-Pfalz auf der Messe *World of Photonics*
- Chicago/USA, 10/2007, wissenschaftlicher Austausch
- Caen/Frankreich, 11/2007 und 05/2009, Kollaborationsbesprechungen zum Aufbau eine Laserionenquelle an GANIL
- Regelmäßige Kollaborationstreffen mit dem Institut für Kernchemie der Universität Mainz



---

## Literaturverzeichnis

---

- [AAB<sup>+</sup>10] A. ANDREYEV, S. ANTALIC, L. E. BERG, T. COCOLIOS, V. N. FEDOSSEEV, T. GOTTWALD, M. HUYSE, Y. KUDRYAVTSEV, U. KÖSTER, W. KURCEWICZ, J. LASSEN, H. MACH, B. A. MARSH, R. PAGE, D. PAUWELS, D. RÄDER, S. ROTHE, A. M. SJÖDIN, T. STORA, P. VAN DUPPEN UND K. WENDT. *Development of astatine ion beams with rilibs*. Technischer Bericht CERN-INTC-2010-010. INTC-I-086, CERN, Geneva, Jan 2010.
- [ABD<sup>+</sup>92] G. ALKHAZOV, A. BARZAKH, V. DENISOV, K. MEZILEV, Y. NOVIKOV, V. PANTELEYEV, A. POPOV, E. SUDENTAS, V. LETOKHOV, V. MISHIN ET AL. *A new highly efficient method of atomic spectroscopy for nuclides far from stability*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Band 69:517–520, 1992.
- [ABJ<sup>+</sup>90] F. AMES, T. BRUMM, K. J. ÄGER, H. KLUGE, B. SURI, H. RIMKE, N. TRAUTMANN UND R. KIRCHNER. *A High-Temperature Laser Ion Source for Trace Analysis and Other Applications*. Applied Physics B, Band 51:200–206, May 1990.
- [AJBF75] L. ARMSTRONG JR, B. BEERS UND S. FENEUILLE. *Resonant multiphoton ionization via the Fano autoionization formalism*. Physical Review A, Band 12(5):1903–1910, 1975.
- [AL72] R. AMBARTZUMIAN UND V. LETOKHOV. *Selective two-step (STS) photoionization of atoms and photodissociation of molecules by laser radiation*. Applied Optics, Band 11(2):354–358, 1972.
- [AWB98] A. ARNOLD, J. WILSON UND M. BOSHIER. *A simple extended-cavity diode laser*. Review of Scientific Instruments, Band 69:1236–1239, 1998.
- [BBB<sup>+</sup>07] B. BECK, J. BECKER, P. BEIERSDORFER, G. BROWN, K. MOODY, J. WILHELMY, F. PORTER, C. KILBOURNE UND R. KELLEY. *Energy Splitting of the Ground-State Doublet in the Nucleus  $^{229}\text{Th}$* . Physical review letters, Band 98(14):142501, 2007.
- [BBHS91] M. BOSHIER, D. BERKELAND, E. HINDS UND V. SANDOGHDAR. *External-cavity frequency-stabilization of visible and infrared semicon-*

- ductor lasers for high resolution spectroscopy.* Optics Communications, Band 85:355–359, 1991.
- [BCF<sup>+</sup>00] A. BARZAKH, I. CHUBUKOV, D. FEDOROV, V. PANTELEEV, M. SELIVERSTOV UND Y. VOLKOV. *Mean square charge radii of the neutron-deficient rare-earth isotopes in the region of the nuclear shell  $N=82$  measured by the laser ion source spectroscopy technique.* Physical Review C, Band 61(3):34304, 2000.
- [BDF<sup>+</sup>96] A. BARZAKH, V. DENISOV, D. FEDOROV, S. ORLOV UND M. SELIVERSTOV. *A mass-separator laser ion source.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, Band 126(1):85–87, 1996.
- [BDF<sup>+</sup>97] A. BARZAKH, V. DENISOV, D. FEDOROV, S. ORLOV UND M. SELIVERSTOV. *A mass-separator laser ion source.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Band 126(1-4):85–87, 1997.
- [BG78] C. BROWN UND M. GINTER. *Absorption spectrum of Au I between 1300 and 1900 Å.* Journal of the Optical Society of America B, Band 68:243–246, 1978.
- [BKK<sup>+</sup>90] V. BARYSHEVSKII, M. KORZHIK, A. KIMAEV, M. LIVSHITS, V. PAVLENKO, M. MEIL'MAN UND B. MINKOV. *Tunable chromium forsterite laser in the near IR region.* Journal of Applied Spectroscopy, Band 53(1):675–676, 1990.
- [Bla00] K. BLAUM. *Resonante Laserionisations-Massenspektrometrie an Gadolinium zur Isotopenhäufigkeitsanalyse mit geringsten Mengen.* Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2000.
- [BMC67] W. BOZMAN, W. MEGGERS UND C. CORLISS. *An improved description of Technetium spectra (Tc I and Tc II), 2000 to 9000 Å.* Journal of Research of the National Bureau of Standards A, Band 71:547–565, 1967.
- [CB62] C. CORLISS UND W. BOZMAN. *Experimental transition probabilities for spectral lines of seventy elements.* Govt. Print. Off., 1962.
- [CBL<sup>+</sup>01] C. CHEN, K. BAILEY, Y. LI, T. O'CONNOR, Z. LU, X. DU, L. YOUNG UND G. WINKLER. *Beam of metastable krypton atoms extracted from a rf-driven discharge.* Review of Scientific Instruments, Band 72:271–272, 2001.
- [CFK<sup>+</sup>04] R. CATHERALL, V. FEDOSSEEV, U. KÖSTER, J. LETTRY, G. SUBERLUCQ, B. MARSH UND E. TENGBORN. *Recent developments in production of radioactive ion beams with the selective laser ion source at the on-line isotope separator ISOLDE.* Review of Scientific Instruments, Band 75:1614–1616, 2004.

- [CGB73] B. CAGNAC, G. GRYNBERG UND F. BIRABEN. *Spectroscopie d'absorption multiphotonique sans effet Doppler*. Journal de Physique, Band 34(10):845–858, 1973.
- [CHB02] E. CUMMINGS, M. HICKEN UND S. BERGESON. *Demonstration of a 1-W injection-locked continuous-wave titanium:sapphire laser*. Applied Optics, Band 41(36):7583–7587, Dezember 2002.
- [CLB<sup>+</sup>99] C. CHEN, Y. LI, K. BAILEY, T. O'CONNOR, L. YOUNG UND Z. LU. *Ultrasensitive isotope trace analyses with a magneto-optical trap*. Science, Band 286(5442):1139–1141, 1999.
- [Con26] E. CONDON. *A theory of intensity distribution in band systems*. Physical Review, Band 28(6):1182–1201, 1926.
- [Con28] E. CONDON. *Nuclear motions associated with electron transitions in diatomic molecules*. Physical Review, Band 32(6):858–872, 1928.
- [CR52] M. CATALAN UND F. RICO. *SERIES AND IONIZATION POTENTIALS IN THE I AND II SPECTRA OF ELEMENTS OF THE PALLADIUM GROUP*. In *Anales real soc. espan. fis. y quim*, Band 48. 1952.
- [Dem00] W. DEMTRÖDER. *Laserspektroskopie*. Springer-Verlag, Heidelberg, 2000.
- [Den94] V. DENISOV. *On high-efficient Doppler-free atomic spectroscopy of unstable nuclides*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Band 345:99–101, 1994.
- [DHB<sup>+</sup>07] Y. DING, S. HU, K. BAILEY, A. DAVIS, R. DUNFORD, Z. LU, T. O'CONNOR UND L. YOUNG. *Thermal beam of metastable krypton atoms produced by optical excitation*. Review of Scientific Instruments, Band 78:023103, 2007.
- [DMW99] J. DIETRICH, I. MCKINNIE UND D. WARRINGTON. *Efficient, kHz repetition rate, gain-switched Cr:forsterite laser*. Applied Physics B, Band 69(3):203–206, 1999.
- [DNM84] S. DOWNEY, N. NOGAR UND C. MILLER. *Resonance ionization mass spectrometry of technetium*. International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes, Band 61(3):337–345, 1984.
- [DP80] F. DUARTE UND J. PIPER. *A double-prism beam expander for pulsed dye lasers*. Optics Communications, Band 35(1):100–104, 1980.
- [DPB<sup>+</sup>03] X. DU, R. PURTSCHERT, K. BAILEY, B. LEHMANN, R. LORENZO, Z. LU, P. MUELLER, T. O'CONNOR, N. STURCHIO UND L. YOUNG. *A new method of measuring <sup>81</sup>Kr and <sup>85</sup>Kr abundances in environmental samples*. Geophysical Research Letters, Band 30(20):2068, 2003.

- [DWAB<sup>+</sup>07] H. DE WITTE, A. ANDREYEV, N. BARRÉ, M. BENDER, T. COCOLIOS, S. DEAN, D. FEDOROV, V. FEDOSEYEV, L. FRAILE, S. FRANCOO ET AL. *Nuclear charge radii of neutron-deficient lead isotopes beyond  $N=104$  midshell investigated by in-source laser spectroscopy*. Physical Review Letters, Band 98(11):112502, 2007.
- [ED71] J. EHRHARDT UND S. DAVIS. *Precision wavelengths and energy levels in gold*. Journal of the Optical Society of America, Band 61(10):1342–1349, 1971.
- [Ert05] ERTEL, K. AND LINNÉ, H. AND BÖSENBERG, J. *Injection-seeded pulsed Ti:sapphire laser with novel stabilization scheme and capability of dual-wavelength operation*. Applied Optics, Band 44(24):5120–5126, August 2005.
- [Fan57] U. FANO. *Description of states in quantum mechanics by density matrix and operator techniques*. Reviews of Modern Physics, Band 29(1):74–93, 1957.
- [Fan61] U. FANO. *Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts*. Physical Review, Band 124(6):1866–1878, 1961.
- [FD26] P. FRANCK UND E. DYMOND. *Elementary processes of photochemical reactions*. Transactions of the Faraday Society, Band 21(February):536–542, 1926.
- [FFH<sup>+</sup>03] V. FEDOSSEEV, D. FEDOROV, R. HORN, G. HUBER, U. KÖSTER, J. LASSEN, V. MISHIN, M. SELIVERSTOV, L. WEISSMAN UND K. WENDT. *Atomic spectroscopy studies of short-lived isotopes and nuclear isomer separation with the ISOLDE RILIS*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B, Band 204:353–358, 2003.
- [FH55] W. FINKELNBURG UND W. HUMBACH. *Ionisierungsenergien von Atomen und Atomionen*. Naturwissenschaften, Band 42(2):35–37, 1955.
- [Fie08] S. FIES. *Entwicklung einer direkten Flüssigprobeneinbringung für den lasser-massenspektrometrischen Nachweis von Uranisotopen*. Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität, Heidelberg, August 2008.
- [Fir00] FIRMA RODITI. *Ti:Sapphire rods – Properties depending on concentration*. Fax, 2000.
- [FR59] U. FANO UND G. RACAH. *Irreducible Tensorial Sets*. Reviews of Modern Physics, Band 29:74, 1959.
- [FWVD95] C. FLOOD, D. WALKER UND H. VAN DRIEL. *Effect of spatial hole burning in a mode-locked diode end-pumped Nd:YAG laser*. Optics Letters, Band 20(1):58–60, 1995.

- [GBBC76] G. GRYNBERG, F. BIRABEN, M. BASSINI UND B. CAGNAC. *Three-Photon Doppler-Free Spectroscopy: Experimental Evidence*. Physical Review Letters, Band 37(5):283–285, 1976.
- [GBGC77] G. GRYNBERG, F. BIRABEN, E. GIACOBINO UND B. CAGNAC. *Doppler-free two-photon spectroscopy of neon. II. Line intensities*. Journal de Physique, Band 38(6):629–640, 1977.
- [GC77] G. GRYNBERG UND B. CAGNAC. *Doppler-free multiphotonic spectroscopy*. Reports on Progress in Physics, Band 40:791–841, 1977.
- [Gel96] R. GELLER. *Electron cyclotron resonance ion sources and ECR plasmas*. Taylor & Francis, 1996.
- [Gep06] C. GEPPERT. *Resonanzionisation zum Nachweis und zur Erzeugung radioaktiver Ionenstrahlen: Vom hochselektiven Ultrapurennachweis zur selektiven on-line Laserionenquelle*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [GG<sup>+</sup>08] T. GOTTWALD, C. GEPPERT, F. SCHWELLNUS, K. WIES, K. WENDT, Y. LIU, C. BAKTASH, J. BEENE, C. HAVENER, H. KRAUSE ET AL. *Optical spectroscopy and performance tests with a solid state laser ion source at HRIBF*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B, Band 266(19-20):4398–4402, 2008.
- [GM31] M. GÖPPERT-MAYER. *Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*. Annalen der Physik, Band 9:273–295, 1931.
- [Göt02] S. GÖTTE. *Aufbau und Test eines Prototypens zur Messung von Hochspannung mittels kollinearer Spektroskopie*. Dissertation, Universität Heidelberg, November 2002.
- [Ham92] C. HAMILTON. *Single-frequency, injection-seeded Ti:sapphire ring laser with high temporal precision*. Optical Letters, Band 17(10):728–730, Mai 1992.
- [Hap72] W. HAPPER. *Optical pumping*. Reviews of Modern Physics, Band 44(2):169–249, 1972.
- [Har28] D. HARTREE. *The wave mechanics of an atom with a non-Coulomb central field. part I. theory and methods*. In *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, Band 24, 89. 1928.
- [HH62] J. HOLMES UND M. HOOVER. *Isotope Shift in the First Spectrum of Silicon (Si I)*. Journal of the Optical Society of America, Band 52(3):247–250, 1962.
- [HI06] B. HENDERSON UND G. IMBUSCH. *Optical spectroscopy of inorganic solids*. Oxford University Press, USA, 2006.

- [HLL81] P. HANNAFORD, P. LARKINS UND R. LOWE. *Radiative lifetimes and branching ratios for the  $6^2P^o$  levels of gold*. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, Band 14:2321–2327, 1981.
- [Hän72] T. HÄNSCH. *Repetitively pulsed tunable dye laser for high resolution spectroscopy*. Applied Optics, Band 11(4):895–898, 1972.
- [Hor03] R. HORN. *Aufbau eines Systems gepulster, abstimmbarer Festkörperlaser zum Einsatz in der Resonanzionisations-Massenspektroskopie*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2003.
- [HPKY79] G. S. HURST, M. G. PAYNE, S. D. KRAMER UND J. P. YOUNG. *Resonance ionization spectroscopy and one-atom detection*. Rev. Mod. Phys., Band 51(4):767–819, Oct 1979.
- [JKMR03] C. JANIAK, T. KLAPÖTKE, H. MEYER UND E. RIEDEL. *Moderne Anorganische Chemie*. Walter de Gruyter, 2003.
- [K<sup>+</sup>76] E. KIRCHNER ET AL. *Investigation of gaseous discharge ion sources for isotope separation on-line*. Nuclear Instruments and Methods, Band 133(2):187–204, 1976.
- [KARW85] H. KLUGE, F. AMES, W. RUSTER UND K. WALLMEROOTH. *Laser ion sources*. In *Proceedings of the Accelerated Radioactive Beams workshop, Parksville, Canada*. 1985.
- [KBB<sup>+</sup>07] T. KESSLER, K. BRÜCK, C. BAKTASH, J. BEENE, C. GEPPERT, C. HAVENER, H. KRAUSE, Y. LIU, D. SCHULTZ, D. STRACENER ET AL. *Three-step resonant photoionization spectroscopy of Ni and Ge: ionization potential and odd-parity Rydberg levels*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, Band 40(23):4413–4432, 2007.
- [Kes04] T. KESSLER. *Optimierung eines Ti:Saphir-Lasersystems für den Einsatz an einer On-line-Ionenquelle - Spektroskopie an Zinn*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, August 2004.
- [Kes08] T. KESSLER. *Development and application of laser technologies at radioactive ion beam facilities*. Dissertation, University of Jyväskylä, August 2008.
- [KFM<sup>+</sup>00] U. KÖSTER, V. FEDOSEYEV, V. MISHIN, L. WEISSMAN, M. HUYSE, K. KRUGLOV, W. MUELLER, P. VAN DUPPEN, J. VAN ROOSBROECK, P. THIROLF ET AL. *Isomer separation of  $^{70g}\text{Cu}$  and  $^{70m}\text{Cu}$  with a resonance ionization laser ion source*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, Band 160:528–535, 2000.
- [KFM03] U. KÖSTER, V. FEDOSEYEV UND V. MISHIN. *Resonant laser ionization of radioactive atoms*. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, Band 58(6):1047–1068, 2003.

- [KG61] W. KAISER UND C. GARRETT. *Two-Photon Excitation in CaF<sub>2</sub>: Eu<sup>2+</sup>*. Physical Review Letters, Band 7(6):229–231, 1961.
- [Kna00] K.-M. KNAAK. *Laserunterstützte Spannungsmesstechnik - Konzeption und Aufbau eines Experiments zur spektroskopischen Messung von Hochspannung*. Dissertation, Universität Heidelberg, 2000.
- [KO05] M. KATSURAGAWA UND T. ONOSE. *Dual-wavelength injection-locked pulsed laser*. Optics Letters, Band 30(18):2421–2423, September 2005.
- [Kös02] U. KÖSTER. *Resonance ionization laser ion sources*. Nuclear Physics, Section A, Band 701(1-4):441–451, 2002.
- [KSS78] T. KASUYA, T. SUZUKI UND K. SHIMODA. *A prism anamorphic system for Gaussian beam expander*. Applied Physics A: Materials Science & Processing, Band 17(2):131–136, 1978.
- [KTM<sup>+</sup>08] T. KESSLER, H. TOMITA, C. MATTOLAT, S. RAEDER UND K. WENDT. *An injection-seeded high-repetition rate Ti: Sapphire laser for high-resolution spectroscopy and trace analysis of rare isotopes*. Laser Physics, Band 18(7):842–849, 2008.
- [KYJ96] A. KASAPI, G. YIN UND M. JAIN. *Pulsed Ti: sapphire laser seeded off the gain peak*. Applied Optics, Band 35(12):1999–2004, 1996.
- [LBB<sup>+</sup>ed] Y. LIU, C. BAKTASH, J. R. BEENE, C. C. C. C. HAVENER, H. F. H. F. KRAUSE, D. R. D. R. SCHULTZ, D. W. STRACENER, C. R. C. R. VANE, C. GEPPERT, T. KESSLER, K. K. WIES UND K. WENDT. *Studies of the Time Profile of Ions from a Hot-Cavity Laser Ion Source*. to be submitted.
- [LBD<sup>+</sup>05] J. LASSEN, P. BRICAULT, M. DOMBSKY, J. LAVOIE, C. GEPPERT UND K. WENDT. *Resonant Ionization Laser Ion Source Project at TRIUMF*. Hyperfine Interactions, Band 162(1):69–75, 2005.
- [LBD<sup>+</sup>09] J. LASSEN, P. BRICAULT, M. DOMBSKY, J. LAVOIE, M. GILLNER, T. GOTTWALD, F. HELLBUSCH, A. TEIGELH ÖFER, A. VOSS UND K. WENDT. *Laser Ion Source Operation at the TRIUMF Radioactive Ion Beam Facility*. In *AIP Conference Proceedings*, Band 1104, 9. 2009.
- [LBS99] H. LOOCK, L. BEATY UND B. SIMARD. *Reassessment of the first ionization potentials of copper, silver and gold*. Physical Review A, Band 59(1):873–875, 1999.
- [LEF<sup>+</sup>08] N. LECESNE, C. ELEON, C. FEIERSTEIN, G. GAUBERT, Y. HUGUET, P. JARDIN, F. LEMAGNEN, R. LEROY, J. PACQUET, F. PELLEMOINE ET AL. *The radioactive ion beam production systems for the SPIRAL2 project*. Review of Scientific Instruments, Band 79:02A907, 2008.

- [LME<sup>+</sup>06] C. LAU, M. MHAMED, S. ESSABAA, J. ARIANER, O. BAJEAT, H. CROIZET, M. DUCOURTIEUX, H. LEFORT, C. HUET-EQUILBEC, P. JARDIN ET AL. *Contribution to ion source developments for SPIRAL-2 and EURISOL*. Review of Scientific Instruments, Band 77:03A706, 2006.
- [LNM77] E. LOEWEN, M. NEVIERE UND D. MAYSTRE. *Grating efficiency theory as it applies to blazed and holographic gratings*. Applied Optics, Band 16(10):2711–2721, 1977.
- [LW03] E. LEE UND T. WRIGHT. *The heaviest group 2 dihalide: RaAt2*. Chemical Physics Letters, Band 374(1-2):176–182, 2003.
- [Mat06] C. MATTOLAT. *Entwicklung der Resonanzionisations- Massenspektrometrie an <sup>26</sup>Aluminium mit einem geseedeten Titan:Saphir-Lasersystem*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [McL64] R. McLAUGHLIN. *Absorption Spectrum of Astatine*. Journal of the Optical Society of America, Band 54(8):965–967, 1964.
- [Mig78] J. MIGDALEK. *Relativistic oscillator strengths for some transitions in Cu (I), Ag (I) and Au (I)*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, Band 20:81–87, 1978.
- [ML90] P. MAHAFFY UND K. LAI. *An electrostatic quadrupole deflector for mass spectrometer applications*. Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films, Band 8:3244–3246, 1990.
- [Mül03] P. MÜLLER. *Ultrapurennachweis von <sup>41</sup>Ca mittels hochauflösender Resonanzionisations-Massenspektrometrie*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2003.
- [Mon92] L. MONZ. *Eine neue Methode zum Spurennachweis von Strontium-90 und Strontium-89 in Umweltproben*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1992.
- [Moo58] C. MOORE. *Atomic Energy levels, vol. III*. National Bureau of Standards circular, Band 467, 1958.
- [Moo70] C. MOORE. *Selected Tables of Atomic Spectra*. National Bureau of Standards, National Standard Reference Series, 1970.
- [Mou86] P. F. MOULTON. *Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. Journal of the Optical Society of America B, Band 3(1):125–133, 1986.
- [MS50] W. MEGGERS UND B. SCRIBNER. *ARC AND SPARK SPECTRA OF TECHNETIUM*. Journal of Research National Bureau of Standards, Band 45, 1950.

- [MSW85] K. MACADAM, A. STEINBACH UND . WIEMAN. *A narrow-band tunable diode laser system with grating feedback, and a saturated absorption spectrometer for Cs and Rb*. Physical Review Letters, Band 54:735–740, 1985.
- [MZ83] W. MARTIN UND R. ZALUBAS. *Energy levels of silicon, Si I through Si XIV*. Journal of Physical and Chemical Reference Data, Band 12:323–380, 1983.
- [NIS02] NIST NATIONAL INSTITUTE OF STANDARD AND TECHNOLOGY. *NIST Atomic Spectra Database*. [http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main\\_asd](http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main_asd), 2002.
- [NMB<sup>+</sup>05] A. NIEMINEN, I. MOORE, J. BILLOWES, P. CAMPBELL, K. FLANAGAN, C. GEPPERT, J. HUIKARI, A. JOKINEN, T. KESSLER, B. MARSH ET AL. *Laser ion source project at IGISOL*. Hyperfine Interactions, Band 162(1):39–43, 2005.
- [NMDS83] N. NOGAR, C. MILLER, S. DOWNEY UND R. SANDER. *Resonant multiphoton ionization for the detection of technetium*. In *Los Alamos Conference on Optics'83*, 291–295. 1983.
- [Nör99] W. NÖRTERSCHÄUSER. *Theoretische Beschreibung und Realisation der mehrstufigen Resonanzionisation von Calcium für die hochselektive Spurenanalyse*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1999.
- [O'D09] A. O'DWYER. *Handbook of PI and PID controller tuning rules*. Imperial College Pr, 2009.
- [Omo65] A. OMONT. *Relaxation par collisions des états excités d'un atome*. Journal de Physique, Band 26(1):26–40, 1965.
- [Pow98] R. POWELL. *Physics of solid-state laser materials*. Springer Verlag, 1998.
- [PS41] J. PLATT UND R. SAWYER. *New classifications in the spectra of Au I and Au II*. Physical Review, Band 60(12):866–876, 1941.
- [PW99] P. PALMERI UND J. WYART. *Interpretation of energy levels and predicted transition probabilities in neutral technetium (Tc I)*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, Band 61:603–616, 1999.
- [RA65] L. RADZIEMSKI, JR UND K. ANDREW. *Arc spectrum of silicon*. Journal of the Optical Society of America, Band 55(5):474–490, 1965.
- [Rae06] S. RAEDER. *Spektroskopie und Spurenanalyse im Uran mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.

- [Rae10] S. RAEDER. *Spektroskopie und Spurenanalyse von Aktiniden mittels RIMS*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [Rim89] H. RIMKE. *Resonanz-Ionisations-Massenspektrometrie an Uran und Technetium*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1989.
- [RNJ<sup>+</sup>85] H. RINNEBERG, J. NEUKAMMER, G. JÖNSSON, H. HIERONYMUS, A. KÖNIG UND K. VIETZKE. *High n Rydberg atoms and external fields*. Physical review letters, Band 55(4):382–385, 1985.
- [Rot09] S. ROTHE. *Aufbau eines Chrom:Forsterit-Lasers und Resonanzionisationspektroskopie an Strontium, Titan, Nickel, Scandium und Silicium*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Februar 2009.
- [SA77] S. SHAPIRO UND D. AUSTON. *Ultrashort light pulses*. Springer-Verlag Berlin, 1977.
- [Sch01] P. SCHUMANN. *Entwicklung, Aufbau und Test eines leistungsverstärkten Halbleiterlasers für die resonante Laserionisations-Massenspektrometrie*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2001.
- [Sch06] P. SCHUMANN. *Selektiver Nachweis von <sup>236</sup>Uran mittels hochauflösender Resonanzionisations-Massenspektrometrie*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.
- [Sch10] F. SCHWELLNUS. *Entwicklung von Ionenquellen zur Steigerung von Selektivität und Effizienz bei der resonanten Laserionisation*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010.
- [SDP<sup>+</sup>04] N. STURCHIO, X. DU, R. PURTSCHERT, B. LEHMANN, M. SULTAN, L. PATTERSON, Z. LU, P. M  
ÜLLER, T. BIGLER, K. BAILEY ET AL. *One million year old groundwater in the Sahara revealed by krypton-81 and chlorine-36*. Geophysical research letters, Band 31(5):5503–5503, 2004.
- [Sen02] A. SENNAROGLU. *Broadly tunable Cr<sup>4+</sup>-doped solid-state lasers in the near infrared and visible*. Progress in Quantum Electronics, Band 26(6):287–352, 2002.
- [Sir04] S. SIROTZKI. *Konzeption und Aufbau einer Frequenzverdreifachungseinheit für ein gepulstes Titan-Saphir Lasersystem*. Staatsexamensarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2004.
- [Son12] V. SONNENSCHNEIN. *Titel noch nicht festgelegt*. Dissertation, University of Jyväskylä, 2012.
- [ST08] B. SALEH UND M. TEICH. *Grundlagen der Photonik*. Wiley-VCH, 2008.

- [Stö12] N. STÖBENER. *Elementspeziation von Neptunium im Ultraspurenbereich*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2012.
- [Sug74] J. SUGAR. *Revised ionization energies of the neutral actinides*. The Journal of Chemical Physics, Band 60(10):4103, 1974.
- [Top02] TOPTICA PHOTONICS AG. *Handbuch DL100*, 2002.
- [Tre85] R. TREBINO. *Achromatic N-prism beam expanders: optimal configurations*. Applied Optics, Band 24(8):1130–1138, 1985.
- [Var53] Y. VARSHNI. *Die Schwingungsfrequenzen im Grundzustand befindlicher Moleküle vom Typ XX*. Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, Band 135(5):512–515, 1953.
- [VCS70] L. VASILENKO, V. CHEBOTAEV UND A. SHISHAEV. *Line Shape of Two-Photon Absorption in a Standing-Wave Field in a Gas*. Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters, Band 12:113, 1970.
- [WBB<sup>+</sup>97a] K. WENDT, G. BHOWMICK, B. BUSHAW, G. HERRMANN, J. KRATZ, J. LANTZSCH, P. MÜLLER, W. NÖRTERSCHÄUSER, E. OTTEN, R. SCHWALBACH ET AL. *Rapid trace analysis of <sup>89</sup>, <sup>90</sup>Sr in environmental samples by collinear laser resonance ionization mass spectrometry*. Radiochimica Acta, Band 79(3):183–190, 1997.
- [WBB<sup>+</sup>97b] K. WENDT, G. BHOWMICK, B. BUSHAW, G. HERRMANN, J. KRATZ, J. LANTZSCH, P. MÜLLER, W. NÖRTERSCHÄUSER, E. OTTEN, R. SCHWALBACH ET AL. *Rapid Trace Analysis of <sup>89</sup>, <sup>90</sup>Sr in Environmental Samples by Collinear Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry*. Radiochimica Acta, Band 79:183–190, 1997.
- [WBL77] D. WENDLANDT, J. BAUCHE UND P. LUC. *Hyperfine structure in Tc I: experiment and theory*. Journal of Physics B: Atomic Molecular Physics, Band 10(10):1989–2002, 1977.
- [WEH<sup>+</sup>96] A. WALDECK, N. ERDMANN, H.-U. HASSE, A. NÄHLER, M. NUNNEMANN, G. PASSLER, N. TAKAHASHI UND N. TRAUTMANN. *Herstellung von <sup>95m</sup>Tc-Tracer und Abtrennung des Technetiums aus Umweltproben für RIMS-Messungen*. Jahresbericht, Instiut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 1996.
- [WH91] C. WIEMAN UND L. HOLLBERG. *Using diode lasers for atomic physics*. Review of Scientific Instruments, Band 62:1–20, 1991.
- [Wie06] K. WIES. *Aufbau und Test einer linearaen Quadrupolfalle für das LIST Projekt - Entwicklungsarbeiten an Laserionenquellen*. Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2006.

- [Wil02] K. WILL. *Entwicklung einer Ionenoptik zur Untergrundreduzierung bei der resonanten Laserionisations-Massenspektrometrie*. Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2002.
- [WKC<sup>+</sup>02] L. WEISSMAN, U. KÖSTER, R. CATHERALL, S. FRANCHO, U. GEORG, O. JONSSON, V. N. FEDOSEYEV, V. I. MISHIN, M. D. SELIVESTOV, J. VAN ROOSBROECK, S. GHEYSEN, M. HUYSE, K. KRUGLOV, G. NEYENS UND P. VAN DUPPEN. *Magnetic moments of  $^{68}\text{Cu}^{g,m}$  and  $^{70}\text{Cu}^{g,m1,m2}$  nuclei measured by in-source laser spectroscopy*. Physical Review C, Band 65(2):024315, Jan 2002.
- [WLF01] T. WALTHER, M. LARSEN UND E. FRY. *Generation of Fourier-transform-limited 35-ns pulses with a ramp-hold-fire seeding technique in a Ti:sapphire laser*. Applied Optics, Band 40:3046–3050, 2001.
- [WS87] K. WEBER UND C. SANSONETTI. *Accurate energies of  $nS$ ,  $nP$ ,  $nD$ ,  $nF$ , and  $nG$  levels of neutral cesium*. Physical Review A, Band 35(11):4650–4660, 1987.
- [WSPC78] E. WORDEN, R. SOLARZ, J. PAISNER UND J. CONWAY. *First ionization potentials of lanthanides by laser spectroscopy*. Journal of the Optical Society of America, Band 68(1):52–61, 1978.
- [ZPN99] N. ZHAVORONKOV, V. PETROV UND F. NOACK. *Powerful and tunable operation of a 1–2-kHz repetition-rate gain-switched Cr:forsterite laser and its frequency doubling*. Appl. Opt, Band 38:3285–3293, 1999.
- [ZSOS98] W. ZHAO, J. SIMSARIAN, L. OROZCO UND G. SPROUSE. *A computer-based digital feedback control of frequency drift of multiple lasers*. Review of Scientific Instruments, Band 69:3737–3740, 1998.