

Kollineare Laserspektroskopie an radioaktiven Praseodymionen und Cadmiumatomen

Dissertation

zur Erlangung des Grades
"Doktor der Naturwissenschaften"

im Promotionsfach Chemie
am Fachbereich Chemie, Pharmazie und Geowissenschaften
der Johannes Gutenberg-Universität
in Mainz

Nadja Frömmgen
geb. in Koblenz

Mainz, den 01.10.2013

1. Berichterstatter: Prof. Dr. Wilfried Nörtershäuser
2. Berichterstatter: Prof. Dr. Klaus Blaum

Tag der mündlichen Prüfung: 21.11.2013

Zusammenfassung

Die Analyse optischer Spektren liefert einen kernmodellunabhängigen Zugang zur Bestimmung der Kernspins, Ladungsradien und elektromagnetischen Momente von Atomkernen im Grundzustand und von langlebigen (ms) Isomeren. Eine der vielseitigsten Methoden zur optischen Spektroskopie an kurzlebigen Isotopen ist die kollineare Laserspektroskopie. Im Rahmen dieser Arbeit wurde zum einen die TRIGA-LASER Strahlstrecke am Institut für Kernchemie der Universität Mainz durch die Implementierung einer neuen offline Oberflächenionenquelle für hohe Verdampfungstemperaturen und eines Strahlanalysesystems weiterentwickelt. Zum anderen wurde kollineare Laserspektroskopie an kurzlebigen Praseodym- und Cadmiumisotopen an ISOLDE/CERN durchgeführt. Die neue Ionenquelle ermöglichte dabei den Test der kollinearen Laserspektroskopie an Praseodymionen am TRIGA-LASER Experiment.

Die Spektroskopie der Praseodymionen motivierte sich aus der Beobachtung einer zeitlichen Modulation der EC-Zerfallsrate von wasserstoffähnlichem $^{140}\text{Pr}^{58+}$. Für die Erklärung dieser sogenannten *GSI Oszillationen* wird unter anderem das magnetische Moment des Kerns benötigt, welches bislang noch nicht experimentell bestimmt wurde. Zudem wurde für wasserstoffähnliches $^{140}\text{Pr}^{58+}$ überraschenderweise eine kleinere EC-Zerfallskonstante gemessen als für heliumähnliches $^{140}\text{Pr}^{57+}$. Die Erklärung dieses Phänomens setzt ein positives magnetisches Moment voraus. Bei der Spektroskopie am COLLAPS Experiment wurden erstmals die magnetischen Momente von ^{135}Pr , ^{136}Pr und ^{137}Pr vermessen. Aufgrund zu geringer Produktionsraten war die Spektroskopie des gewünschten Isotops ^{140}Pr jedoch nicht erfolgreich.

Die Untersuchung der Cadmiumisotope ist kernphysikalisch motiviert. In der Zinnregion erstrecken sich die Isotope über die beiden *magischen* Zahlen $N = 50$ und $N = 82$ bei gleichzeitiger Nähe des $Z = 50$ Schalenabschlusses. Hier können verschiedene Kernmodelle getestet werden, die sich beispielsweise hinsichtlich der Stärke des $N = 82$ Schalenabschlusses widersprechen. Diese Arbeit berichtet über erste Ergebnisse der Spektroskopie an Cadmiumatomen, die sich über die Isotope $^{106-124,126}\text{Cd}$ sowie die zugehörigen langlebigen $I = 11/2^-$ Isomere erstreckt. Die zuvor experimentell bekannten oder aus dem erweiterten Schalenmodell abgeleiteten Kernspins konnten für alle Isotope bis auf ^{119}Cd bestätigt werden. Der Kernspin von ^{119}Cd wurde eindeutig zu $I = 1/2$ bestimmt. Die elektrischen Quadrupolmomente der Isomere zeigen ein bemerkenswert lineares Verhalten in Abhängigkeit von der Neutronenzahl und dies über die eigentliche Kapazität der $1h_{11/2}$ Unterschale hinaus. Die Änderungen der mittleren quadratischen Ladungsradien zeigen den auch an Indium- und Zinnisotopen beobachteten stetigen Verlauf. Der lineare Anteil passt sehr gut zu den Berechnung des Tröpfchenmodells in der Parametrisierung nach Berdichevsky und Tondeur. Die Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien zwischen Grund- und isomeren Zustand der ungeraden Cadmiumisotope zeigen einen interessanten parabolischen Verlauf mit einem Minimum zwischen $A = 119$ und $A = 121$.

Inhaltsverzeichnis

1. Motivation	1
1.1. Magnetisches Moment von ^{140}Pr	1
1.2. Magnetische Momente, elektrische Quadrupolmomente und Ladungsradien der Cadmiumisotope	4
2. Theorie	9
2.1. Kernphysik	9
2.1.1. Das Tröpfchenmodell – der Ladungsradius	9
2.1.2. Das Schalenmodell – der Aufbau der Kerne	10
2.2. Atomphysik	14
2.2.1. Hyperfeinstruktur	14
2.2.2. Isotopieverschiebung	16
2.3. Vom optischen Spektrum zur kernphysikalischen Größe	18
2.4. Grundlagen der kollinearen Laserspektroskopie	19
3. Kollineare Laserspektroskopie Experimente	23
3.1. Prinzipieller Aufbau einer Apparatur zur kollinearen Laserspektroskopie	23
3.2. Das TRIGA-LASER Experiment am TRIGA Reaktor in Mainz	26
3.3. Das COLLAPS Experiment an ISOLDE am CERN	29
4. Aufbau einer offline Ionenquelle und eines Strahlanalysesystems für TRIGA-LASER	33
4.1. Offline Ionenquelle für TRIGA-LASER	33
4.2. Strahlabschwächer	36
4.3. Strahlanalysesystem für TRIGA-SPEC	38
5. Spektroskopie an Praseodymionen	43
5.1. Spektroskopie an stabilen Praseodymionen an TRIGA-LASER	43
5.1.1. Bestimmung der Hyperfeinstrukturparameter von $^{141}\text{Pr}^+$	44
5.2. Spektroskopie an radioaktiven Praseodymisotopen an COLLAPS	46
5.2.1. Bestimmung des Verstärkungsfaktors des Kepco BOP 1000	49
5.2.2. Bestimmung der Hyperfeinstrukturparameter von $^{141}\text{Pr}^+$	51
5.2.3. Bestimmung der magnetischen Momente von ^{135}Pr , ^{136}Pr und ^{137}Pr	51
5.2.4. Zusammenfassung und Ausblick	56
6. Spektroskopie an Cadmiumatomen	57
6.1. Spektroskopie an Cadmiumatomen an COLLAPS	58
6.2. Auswertung der Hyperfeinstrukturspektren	59
6.3. Ergebnisse und Diskussion	61
6.3.1. Kernspins	61
6.3.2. Hyperfeinstrukturparameter	64
6.3.3. Hyperfeinanomalien	65

6.3.4. Magnetische Momente und elektrische Quadrupolmomente	67
6.3.5. Isotopieverschiebungen	73
6.3.6. Ladungsradien	75
7. Zusammenfassung und Ausblick	83
A. Anhang	85
A.1. Abschätzung des magnetischen Moments von ^{140}Pr	85
A.2. Differentieller Dopplerfaktor	85
A.3. Systematische Unsicherheiten in der Isotopieverschiebung	86
A.4. Momente der neutronenreichen Cadmiumisotope aus der Spektroskopie am Ion .	87

Abbildungsverzeichnis

1.1. EC von wasserstoffähnlichem $^{140}\text{Pr}^{58+}$	2
1.2. Elektroneneinfangzerfälle von wasserstoffähnlichen $^{140}\text{Pr}^{58+}$ Ionen in Abhängig- keit von der Zeit	3
1.3. Auszug aus der Nuklidkarte	4
1.4. Anregungsenergien der ungeraden Cadmiumisotope	5
1.5. $E(2^+)$ Anregungsenergien der Palladium-, Cadmium- und Tellurisotope	6
2.1. Einteilchenenergieniveaus des Schalenmodells	11
2.2. Elektrisches Quadrupolmoment im Einteilchenbild	13
2.3. Hyperfeinstrukturaufspaltung von $^{140}\text{Pr}^+$	16
3.1. Schematische Darstellung eines kollinearen Laserspektroskopie Experiments . . .	23
3.2. Schematische Darstellung des TRIGA-SPEC Experiments.	27
3.3. Resonante Laserionenquelle an ISOLDE	29
3.4. ISOLDE Anlage am CERN	30
4.1. Dampfdruckkurven von Pr, Rb und Ca	34
4.2. Technische Zeichnung der TRIGA-LASER Oberflächenionenquelle	35
4.3. Fotos der TRIGA-LASER offline Ionenquelle	35
4.4. Blockschaltbild der TRIGA-LASER offline Ionenquelle	36
4.5. Temperatureichung der TRIGA-LASER offline Ionenquelle	37
4.6. Strahlabschwächer für die TRIGA-LASER offline Ionenquelle	37
4.7. Strahlanalysesystem für TRIGA-SPEC	38
4.8. Messung zur Bestimmung der Arbeitsparameter des MCPs	39
4.9. Kalibration des MCPs	40
4.10. Aufnahme des Ionenstrahls mit dem MCP.	41
5.1. Hyperfeinstrukturspektrum von $^{141}\text{Pr}^+$ gemessen an TRIGA-LASER	44
5.2. Auszug aus der Nuklidkarte in der Region um ^{140}Pr	48
5.3. Kepco-Scan während der Spektroskopie von Praseodymionen an COLLAPS . . .	49
5.4. Überlagerung zweier Teilspektren von $^{141}\text{Pr}^+$	50
5.5. Hyperfeinstrukturspektrum von $^{141}\text{Pr}^+$ gemessen an COLLAPS	52
5.6. Hyperfeinstrukturspektrum von $^{135}\text{Pr}^+$	53
5.7. Hyperfeinstrukturspektrum von $^{136}\text{Pr}^+$	54
5.8. Hyperfeinstrukturspektrum von $^{137}\text{Pr}^+$	55
6.1. Übersicht über die ungeraden Cadmiumisotope	57
6.2. Schematische Darstellung der Energieniveaus im Cadmiumatom.	59
6.3. Spektrum von ^{114}Cd	60
6.4. Schematische Darstellung der Hyperfeinstrukturaufspaltung in Cadmium	62
6.5. Hyperfeinstrukturspektrum des Grundzustands und des Isomers von ^{119}Cd . . .	63
6.6. Hyperfeinstrukturspektrum des Grundzustands und des Isomers von ^{121}Cd . . .	63

6.7. Verhältnis der A -Faktoren im Grund- und isomeren Zustand	64
6.8. Magnetische Momente von Cadmium	69
6.9. Elektrische Quadrupolmomente von Cadmium	71
6.10. Vergleich der Isotopieverschiebungen mit den Werten aus [Bri76]	75
6.11. King Plot des $5s5p\ ^3P_2 \rightarrow 5s6s\ ^3S_1$ Übergangs im Cadmiumatom.	76
6.12. Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien relativ zu ^{114}Cd	78
6.13. Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien der Cadmium-, Indium- und Zinnisotope	80
6.14. Vergleich von <i>Hartree-Fock-Bogoliubov</i> Berechnungen mit den experimentellen La- dungsradien	81
6.15. Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien zwischen Grundzustand und Isomer	81

Tabellenverzeichnis

5.1. Hyperfeinstrukturparameter von ^{141}Pr gemessen an TRIGA-LASER	45
5.2. Produktionsraten von Pr, Pm und Sm an ISOLDE	47
5.3. A -Faktoren und magnetische Momente von $^{135}\text{Pr}^+$, $^{136}\text{Pr}^+$ und $^{137}\text{Pr}^+$	56
6.1. A - und B -Faktoren der elektronischen Zustände $5s5p\ ^3\text{P}_2$ und $5s6s\ ^3\text{S}_1$ im Cadmiumatom	65
6.2. Differentielle Hyperfeinanomalien der Cadmiumisotope	66
6.3. Magnetische Momente der ungeraden Cadmiumisotope	68
6.4. Elektrische Quadrupolmomente von Cadmium	70
6.5. Isotopieverschiebung relativ zum Grundzustand von ^{114}Cd	74
6.6. Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius relativ zum Grundzustand von ^{114}Cd	79
A.1. Momente der neutronenreichen Cadmiumisotope aus der Spektroskopie am Ion	87

1. Motivation

Die kollineare Laserspektroskopie bietet die Möglichkeit, viele Grundzustandseigenschaften von Kernen mit hoher Präzision zu messen. Die endliche Größe der Kernladungsverteilung, der Kernspin und die damit einhergehenden elektromagnetischen Momente – das magnetische Dipolmoment und das elektrische Quadrupolmoment – lassen sich aus den optischen Spektren von Atomen oder Ionen gewinnen. Dabei zeichnet sich die kollineare Laserspektroskopie gegenüber anderen Präzisionstechniken dadurch aus, dass sie wie kaum eine andere Technik darauf ausgelegt ist, direkt an einer Beschleunigeranlage für die Spektroskopie kurzlebiger Isotope mit Lebensdauern bis in den ms-Bereich eingesetzt zu werden. Neben dem Grundzustand können auch isomere Zustände mit Halbwertszeiten in diesem Bereich untersucht werden. Das zweite Standardverfahren an Beschleunigeranlagen, die Resonanzionisationsspektroskopie, bietet in vielen Fällen zwar eine höhere Sensitivität, ist jedoch aufgrund der meist verwendeten gepulsten Laser in der Auflösung beschränkt [Fed12].

Obwohl die kollineare Laserspektroskopie bereits seit rund 35 Jahren eingesetzt wird [Ott89], ist sie durch die stetige Weiterentwicklung und den Einsatz verschiedener Nachweistechiken nach wie vor eine der wichtigsten Techniken auf diesem Gebiet [Che10, Bla13]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde sie für die Spektroskopie an Praseodymionen und Cadmiumatomen eingesetzt. Die Motivationen zur Spektroskopie dieser beiden Elemente unterscheiden sich grundlegend voneinander und werden daher im Folgenden getrennt vorgestellt. Die zwei Beispiele zeigen, in welchem breiten physikalischen Spektrum die Ergebnisse aus der kollinearen Laserspektroskopie einen Beitrag zum Verständnis kernphysikalischer Phänomene, dem Test von Kernmodellen und unserem Verständnis der starken und der schwachen Wechselwirkung liefern kann.

1.1. Magnetisches Moment von ^{140}Pr

Bei der Bestimmung der Elektroneneinfangraten (EC – engl. **e**lectron **c**apture) hochgeladener Praseodymionen und Promethiumionen am ESR Speicherring am GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung¹ in Darmstadt wurde beobachtet, dass wasserstoffähnliche $^{140}\text{Pr}^{58+}$ und $^{142}\text{Pm}^{60+}$ Ionen mit einem gebundenen Elektron eine 50 % größere Zerfallskonstante λ_{EC} besitzen als heliumähnliche $^{140}\text{Pr}^{57+}$ bzw. $^{142}\text{Pm}^{59+}$ Ionen mit zwei gebundenen Elektronen [Lit07, Win09]. Die Halbwertszeit $T_{1/2}$ der wasserstoffähnlichen $^{140}\text{Pr}^{58+}$ Ionen beträgt insgesamt 3.04(9) min und ist somit sogar kürzer als die Halbwertszeit neutraler ^{140}Pr Atome ($T_{1/2} = 3.39(1)$ min) [Lit07]. Dies ist zunächst nicht plausibel, da in den letzten beiden Systemen mehr Elektronen für den Einfang bereitstehen, kann aber auf der Grundlage der Drehimpulserhaltung und unter der Annahme, dass das magnetische Moment von ^{140}Pr bzw. ^{142}Pm positiv ist, erklärt werden [Pat08]. Beide Kerne, $^{140}_{59}\text{Pr}$ und $^{142}_{61}\text{Pm}$, zerfallen über einen erlaubten *Gamow-Teller* Übergang, d.h. unter Änderung des Kernspins um eine Einheit $\Delta I = 1$ und Beibehaltung der Parität ($1^+ \rightarrow 0^+$), in den Grundzustand ihrer Tochterkerne $^{140}_{58}\text{Ce}$ bzw. $^{142}_{60}\text{Nd}$. In Abbildung 1.1 wird der Zerfall des wasserstoffähnlichen $^{140}\text{Pr}^{58+}$ über EC ($p + e^- \rightarrow n + \nu_e$) in vollständig ionisiertes $^{140}\text{Ce}^{58+}$ schematisch dargestellt. Der Kernspin des ^{140}Pr Kernes $I = 1$ kann mit dem

¹ehemals Gesellschaft für Schwerionenforschung

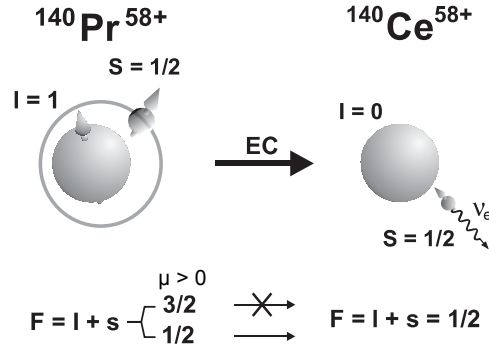


Abbildung 1.1.: Schematische Darstellung des Zerfalls von wasserstoffähnlichem $^{140}\text{Pr}^{58+}$ über EC in ein vollständig ionisiertes $^{140}\text{Ce}^{58+}$ Ion. Die Abbildung wurde aus [Lit07] entnommen. Weitere Details im Text.

Spin des einen gebundenen Elektrons $s_e = 1/2$ zu einem Gesamtdrehimpuls von $F = 1/2$ oder $F = 3/2$ koppeln. Welcher der beiden Hyperfeinzustände der Grundzustand ist, hängt von dem Vorzeichen des magnetischen Moments des ^{140}Pr Kerns ab. Das magnetische Moment ist bislang jedoch noch nicht experimentell bestimmt worden. Es kann lediglich mithilfe des Schalenmodells aus den benachbarten Isotopen zu $\mu(^{140}\text{Pr}) \approx +2.5 \mu_N$ abgeschätzt werden (siehe Anhang A.1). Unter der Annahme, dass das magnetische Moment von ^{140}Pr positiv ist, ist der Hyperfeinzustand mit $F = 1/2$ der Grundzustand. Der Tochterkern $^{140}\text{Ce}^{58+}$ besitzt einen Kernspin von $I = 0$. Der Spin des entstehenden Neutrinos ist $s_\nu = 1/2$. Da es sich um einen erlaubten Übergang handelt, wird das Neutrino mit einem Drehimpuls von $l = 0$ emittiert. Somit ergibt sich für dieses System ein Gesamtdrehimpuls von $F' = 1/2$. Unter Berücksichtigung der Drehimpulserhaltung der schwachen Wechselwirkung ist nur der Zerfall aus dem $F = 1/2$ in den $F' = 1/2$ Zustand erlaubt. Es wird angenommen, dass sich die Praseodymionen vor dem Zerfall zu 100 % im Grundzustand befinden. Unter diesen Voraussetzungen kann gezeigt werden, dass das Verhältnis der Zerfallskonstanten von wasserstoffähnlichen $\lambda_{\text{EC}}^{\text{H}}$ zu heliumähnlichen $\lambda_{\text{EC}}^{\text{He}}$ ^{140}Pr Ionen theoretisch 3/2 beträgt [Pat08]. Dies entspricht sehr genau dem experimentell gemessenen Verhältnis $\lambda_{\text{EC}}^{\text{H}}/\lambda_{\text{EC}}^{\text{He}} = 1.49(8)$ [Lit07]. Die vorangehenden Überlegungen gelten analog auch für ^{142}Pm . Das Verhältnis der Zerfallskonstanten wurde für dieses Isotop zu $\lambda_{\text{EC}}^{\text{H}}/\lambda_{\text{EC}}^{\text{He}} = 1.44(6)$ [Win09] bestimmt. Um die Berechnungen auf eine solide Grundlage zu stellen, muss das Vorzeichen des magnetischen Moments von ^{140}Pr bzw. ^{142}Pm verifiziert werden.

In Abbildung 1.2 ist die Anzahl an EC-Zerfällen von wasserstoffähnlichen $^{140}\text{Pr}^{58+}$ und $^{142}\text{Pm}^{60+}$ Ionen im ESR Speicherring in Abhängigkeit von der Zeit dargestellt [Lit11]. Neben der erwarteten exponentiellen Zerfallskurve, die in der Abbildung gestrichelt eingezeichnet ist, wurde überraschenderweise eine zusätzliche Modulation beobachtet – die sogenannten *GSI Oszillationen*. Die durchgezogene Linie ist eine Anpassung an diese Modulation. Im Ausschnitt oben rechts ist die Fouriertransformierte des Zeitsignals dargestellt. Für beide Isotope ergibt sich eine annähernd gleiche Modulationsfrequenz von etwa 0.14 Hz bzw. eine Periodendauer von ungefähr 7 s. Dies lässt zunächst einen technischen Artefakt, zum Beispiel aufgrund von periodischen Instabilitäten im Speicherring, vermuten. Ein entsprechender Effekt konnte bislang aber nicht identifiziert werden. Es gibt eine Vielzahl an weiteren Erklärungsansätzen, von denen in [Lit08] und [Lit11] einige zusammengefasst werden. Im Folgenden werden einige mögliche Erklärungsansätze vorgestellt, die sensitiv auf das Vorzeichen oder die Größe des magnetischen Moments von ^{140}Pr bzw. ^{142}Pm sind.

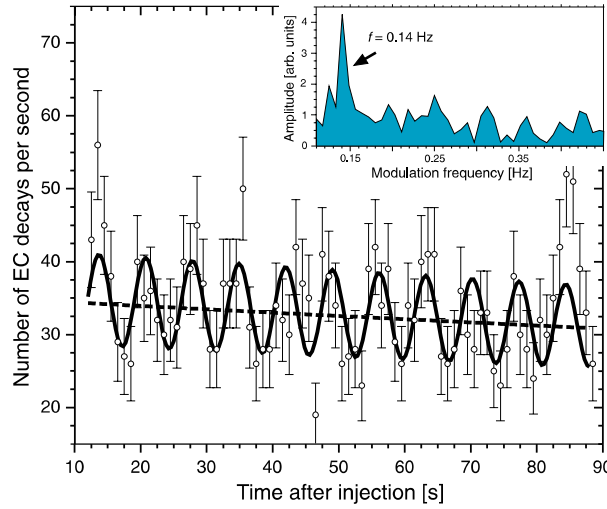


Abbildung 1.2.: Anzahl an EC-Zerfällen von wasserstoffähnlichen $^{140}\text{Pr}^{58+}$ Ionen in Abhängigkeit von der Zeit nach der Injektion in den ESR Speicherring [Lit11]. Die gestrichelte Linie zeigt die erwartete exponentielle Zerfallskurve. Die durchgezogene Linie ist eine Anpassung an die Modulation. Im Ausschnitt oben rechts ist die Fouriertransformierte des Zeitsignals dargestellt. Es ergibt sich eine Modulationsfrequenz von 0.14 Hz.

- Es wurde bereits dargelegt, dass der EC-Zerfall aus dem (mutmaßlich) oberen Hyperfeinstrukturzustand $F = 3/2$ aufgrund der Drehimpulserhaltung verboten ist, da der Tochterkern nur einen Zustand mit $F' = 1/2$ besitzt. Würde der Mutterkern mit einer Periode von 7 s aus dem $F = 1/2$ Zustand in den $F = 3/2$ Zustand und wieder zurück überführt werden, so könnte dies die Modulation erklären. Jedoch ist ein solcher Mechanismus bislang nicht bekannt. Auch müsste sich dann die absolute Zerfallswahrscheinlichkeit reduzieren. Dies steht im Widerspruch zu den Messungen am ESR Speicherring [Lit07, Win09].
- Es wäre möglich, dass das wasserstoffähnliche Ion in einer kohärenten Superposition der zwei Hyperfeinstrukturzustände $F = 1/2$ und $F = 3/2$ produziert wird. Dies könnte zu den bekannten Quantenbeats führen. Mit $T = h/\Delta E$ hängt deren Periodendauer direkt von der Energieaufspaltung der Hyperfeinstruktur ΔE ab. Diese wiederum ist proportional zum magnetischen Moment des Kerns. Der für das magnetische Moment von ^{140}Pr abgeschätzte Wert von $\mu \approx +2.5 \mu_N$ (siehe Anhang A.1) würde jedoch zu einer Periodendauer führen, die mehr als zwölf Größenordnungen kleiner ist als die beobachtete.
- Die Modulation könnte durch die Kopplung der Bahnbewegung im ESR Speicherring mit dem Spin des Elektrons oder des Kerns, der sogenannten *Thomas Präzession*, verursacht werden [Lam13].

Selbstverständlich sind weitere Experimente an wasserstoffähnlichen Ionen nötig, um eine definitive Erklärung der *GSI Oszillationen* zu finden. Die Kenntnis der Grundzustandseigenschaften der beiden Isotope ^{140}Pr und ^{142}Pm , insbesondere des magnetischen Moments, wäre aber sehr hilfreich bei der Bewertung der einzelnen Erklärungsansätze. Einige Ansätze sind mit dem abgeschätzten Wert des magnetischen Moments nicht vereinbar und könnten dann sicher ausgeschlossen werden.

Die Kenntnis des magnetischen Moments, und somit der Hyperfeinaufspaltung, würde weitere laserspektroskopische Experimente an hochgeladenen Praseodymionen am ESR Speicherring ermöglichen. So ist zum Beispiel angedacht, die Lebensdauer eines Kerns erstmals mittels einer Laseranregung zu manipulieren. Hierbei könnte die Tatsache, dass der EC-Zerfall von ^{140}Pr aus dem $F = 3/2$ Zustand verboten ist, genutzt werden. Durch gezielte Einstrahlung eines gepulsten Lasers soll das Elektron aus dem Grundzustand $F = 1/2$ in den $F = 3/2$ Zustand angeregt werden. Damit der Kern über EC zerfallen kann, muss sich das Elektron zunächst wieder in den Grundzustand abregen. Dies führt zur Verzögerung des Zerfalls und somit zur Verlängerung der Lebensdauer. Direkte Spektroskopie eines M1 Hyperfeinübergangs in hochgeladenen Ionen wurde am ESR Speicherring bereits an mehreren Ionenarten durchgeführt [Kla94, See98, Nör13]. Ziel der in dieser Arbeit beschriebenen kollinearen Laserspektroskopie an Praseodymionen am COLLAPS Experiment an ISOLDE war daher die Bestimmung des magnetischen Moments von ^{140}Pr . Von den beiden Lanthaniden wurde Praseodym gewählt, da am stabilen Isotop ^{141}Pr schon mehrere elektronische Übergänge untersucht wurden [Gin89]. Dies erleichterte die Wahl eines für die Laserspektroskopie geeigneten Übergangs. Vor den online Messungen an ISOLDE wurden Testmessungen am TRIGA-LASER Experiment in Mainz durchgeführt. Dies wäre für Promethium nicht möglich gewesen, da dieses Element kein stabiles Isotop besitzt.

1.2. Magnetische Momente, elektrische Quadrupolmomente und Ladungsradien der Cadmiumisotope

M. Goeppert Mayer und J. H. D. Jensen entwickelten in den 50er Jahren in Anlehnung an das Energiesystem der Elektronen im Atom das Schalenmodell der Kerne [Goe50, Goe55]. Sie begründeten ihr Modell auf den bis dahin bekannten Kerneigenschaften der stabilen Kerne und erklärten auf der Grundlage eines Einteilchenbildes unter Annahme einer starken Spin-Bahn-Kopplung die Existenz der Schalenabschlüsse bei einer bestimmten Anzahl an Nukleonen, den *magischen* Zahlen. Diese ergaben sich durch die Beobachtung, dass Kerne mit 2, 8, 20, 28, 50, 82 oder 126 Neutronen oder Protonen besonders stabil sind. Mit dem Schalenmodell können die Eigenschaften der Kerne, wie zum Beispiel der Kernspin oder das magnetische Moment, insbesondere in der Nähe der Stabilität recht gut beschrieben werden. Um kernphysikalische Modelle weit ab der Stabilität verbessern zu können, sind experimentelle Daten dieser Isotope essentiell. Die Isotope in der Nähe der *doppelt-magischen* Zinnkerne $^{100}_{50}\text{Sn}_{50}$ und $^{132}_{50}\text{Sn}_{82}$ sind hierbei für die Untersuchung der Schalenstruktur besonders interessant.

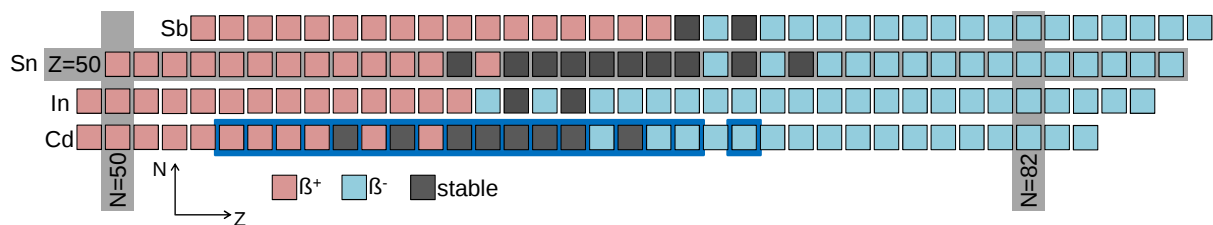


Abbildung 1.3.: Auszug aus der Nuklidkarte in der sogenannten Zinnregion. Die *magische* Protonenzahl $Z = 50$ und die *magischen* Neutronenzahlen $N = 50$ und $N = 82$ sind besonders hervorgehoben. Cadmium fehlen mit $Z = 48$ zwei Protonen zum *magischen* Schalenabschluss. Die Ladungsradien der blau hinterlegten Cadmiumisotope waren bereits zuvor bekannt [Fri95].

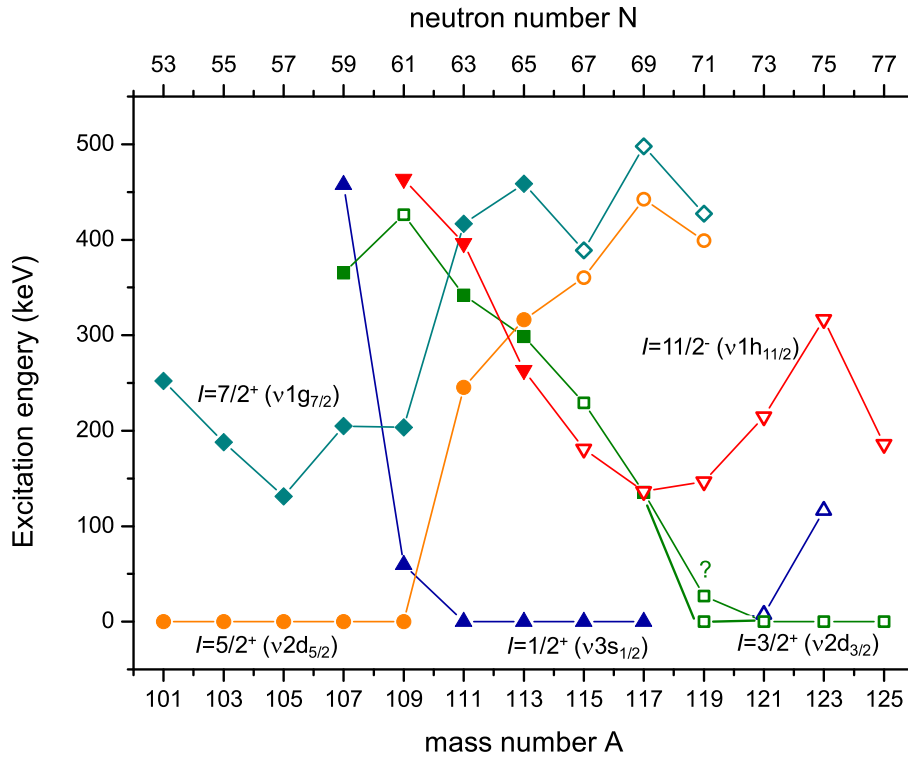


Abbildung 1.4.: Anregungsenergien der ungeraden Cadmiumisotope relativ zum Grundzustand. Die Werte wurden aus [Nat13] entnommen. Die Zustände, deren Kernspins nur tendentiell bekannt sind, werden durch offene Symbole dargestellt. Weitere Details siehe Text.

In Abbildung 1.3 ist ein Auszug aus der Nuklidkarte in der Zinnregion dargestellt. Die *magischen* Zahlen $Z = 50$, $N = 50$ und $N = 82$ sind grau hervorgehoben. Mit 48 Protonen fehlen den Cadmiumisotopen zwei Protonen bzw. ein Protonenpaar zum *magischen* Schalenabschluss bei $Z = 50$. Zwischen $N = 50$ und $N = 82$ werden entlang der Isotopenreihe mit zunehmender Neutronenzahl gemäß dem Schalenmodell die Neutronenschalen $1g_{7/2}$, $2d_{5/2}$, $3s_{1/2}$, $2d_{3/2}$ und $1h_{11/2}$ sukzessive aufgefüllt. In Abbildung 1.4 sind die Energien dieser Unterschalen für die ungeraden Cadmiumisotope dargestellt. Die Daten stammen aus [Nat13]. Die offenen Symbole wurden gewählt, wenn die Zuordnung des Spins nur aufgrund der Systematik der ungeraden Cadmiumisotope und den Erkenntnissen aus den γ -Spektren der Cadmium- und Indiumisotope erfolgte. Ein spezieller Fall stellt der Grundzustand und der erste angeregte Kernzustand des Isotops ^{119}Cd dar. Hier lagen widersprüchliche Informationen vor. Auf der Grundlage von γ -Spektren von ^{119}In wurde ein Kernspin von $I = 1/2^+$ für den Grundzustand ausgeschlossen. Gleichzeitig erlaubt ein γ -Zerfall aus dem $I = 7/2^+$ Zustand in den ersten angeregten Zustand für diesen nur einen Kernspin von $I = 3/2^+$ [Sym09]. Aus Abbildung 1.4 wird außerdem ersichtlich, dass die Energien des $I = 11/2^-$ Zustands ab dem Isotop ^{113}Cd niedriger sind als die Energien der $I = 5/2^+$ und $I = 7/2^+$ Zustände. Diese Zustände zerfallen daher nicht über einen γ -Zerfall sondern über einen β^- -Zerfall. Sie haben ähnliche Halbwertszeiten wie die entsprechenden Grundzustände. Der $I = 11/2^-$ Zustand des Isotops ^{111}Cd zerfällt über γ -Zerfall in den $I = 5/2^+$ Zustand. Dieser Zustand ist mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 48.50(9)$ min ebenfalls sehr langlebig.

Das magnetische Dipolmoment, das elektrische Quadrupolmoment und der Ladungsradius eines

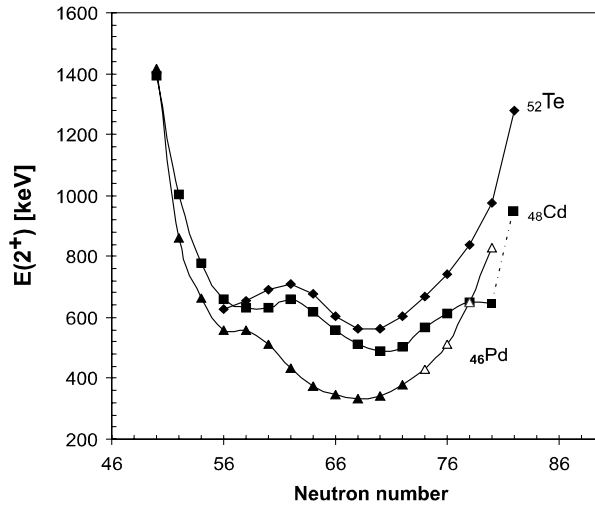


Abbildung 1.5.: Erste $E(2^+)$ Anregungsenergien der geraden Palladium-, Cadmium- und Tellur-isotope. Für ^{128}Cd wurde im Vergleich zu den beiden anderen Isotopenreihen eine ungewöhnlich niedrige Anregungsenergie gemessen. Diese Abbildung wurde aus [Kau00] entnommen.

Kerns können mittels kollinearer Laserspektroskopie sehr präzise bestimmt werden. Diese kernphysikalischen Größen geben Aufschluss über die Einteilchenzustände (μ), die Deformation (Q) und die Größe eines Kerns ($\langle r^2 \rangle$). Insbesondere aus der Änderung dieser Eigenschaften mit zunehmender Neutronenzahl können wichtige Kenntnisse zur Überprüfung und Weiterentwicklung theoretischer Modelle gewonnen werden. In Abbildung 1.3 sind die Cadmiumisotope blau hinterlegt, deren Ladungsradien bereits vor den in dieser Arbeit beschriebenen Messungen bekannt waren [Fri95]. Die magnetischen Momente und elektrischen Quadrupolmomente der ungeraden Isotope von ^{103}Cd bis einschließlich ^{115}Cd waren bereits experimentell bestimmt worden [Sto05]. Ziel der Laserspektroskopie an Cadmium am COLLAPS Experiment war daher die Bestimmung der Kernspins, der magnetischen Dipolmomente, elektrischen Quadrupolmomente und Ladungsradien der übrigen Cadmiumisotope zwischen den beiden *magischen* Schalenabschlüssen. Da an ISOLDE neben den Grundzuständen auch die langlebigen $I = 11/2^-$ Isomere produziert werden, können diese ebenfalls untersucht werden. Für die entsprechenden ungeraden Cadmiumisotope $A \geq 111$ kann daher zusätzlich auch die Isomerieverschiebung zwischen Grund- und isomeren Zustand bestimmt werden.

Eine weitere Motivation ergibt sich aus den in Abbildung 1.5 dargestellten ersten $E(2^+)$ Anregungsenergien der geraden Palladium-, Cadmium- und Tellurisotope [Kau00]. Die Isotope der Elemente Tellur und Palladium zeigen den typischen parabelförmigen Verlauf der $E(2^+)$ Energien zwischen den zwei *magischen* Zahlen mit besonders hohen Werten am Schalenabschluss. Im Vergleich zu diesen Isotopenreihen fällt auf, dass die Anregungsenergie von ^{128}Cd nicht in die Systematik passt. Sie ist sogar niedriger als die des Isotops ^{126}Cd . Der Ursprung dieser Abweichung ist bislang noch nicht geklärt. Während zunächst über ein *Shell-Quenching*, d.h. dem Verschwinden der *magischen* Zahl von ^{130}Cd spekuliert wurde [Kau00], zeigte die Messung des $B(E2)$ Wertes für dieses Isotop für den Schalenabschluss einen typischen Wert. *Hartree-Fock-Bogoliubov* (HFB) Rechnungen von T. Rodríguez *et al.* zeigten jedoch, dass der niedrige Wert für ^{128}Cd auch im Rahmen des Schalenmodells ohne *Shell-Quenching* erklärt werden kann [Rod08]. Demnach führt bereits bei leicht oblater Deformation das Anheben der $\nu 3s_{1/2}$ und $\pi 2p_{1/2}$ Ni-

veaus über die Fermienergie dazu, dass die $1h_{11/2}$ Unterschale durch die Umlagerung der Neutronen bzw. Protonen komplett besetzt wird. Dadurch wird die Ausbildung eines oblaten Kerns bei ^{128}Cd geblockt. Daher ist es besonders interessant, wie sich die Momente und die Ladungsradien in dieser Region verhalten.

Die neutronenreichen Cadmiumisotope sind zusätzlich im Zusammenhang mit dem schnellen Neutroneneinfangprozess der Nukleosynthese, dem *r-Prozess*, von besonderem Interesse. Damit dieser besser verstanden werden kann, werden unter anderem mehr experimentelle Daten in der Region rund um das *waiting point* Nuklid ^{130}Cd benötigt [Arn07].

In dieser Arbeit werden die Ergebnisse der kollinearen Laserspektroskopie an Praseodymionen und Cadmiumatomen präsentiert. In Kapitel 2 werden zunächst die kern- und atomphysikalischen Grundlagen sowie das Prinzip der kollinearen Laserspektroskopie erläutert. Das anschließende Kapitel 3 befasst sich mit dem prinzipiellen Aufbau eines kollinearen Laserspektroskopie Experiments sowie den beiden Experimenten TRIGA-LASER in Mainz und COLLAPS an ISOLDE, an denen die hier vorgestellten Messungen durchgeführt wurden. Der Aufbau und die Charakterisierung einer neuen Oberflächenionenquelle, die für erste Testmessungen am stabilen Praseodymisotop benötigt wurde, und eines Strahlanalysesystems für das TRIGA-LASER Experiment werden in Kapitel 4 beschrieben. In Kapitel 5 werden schließlich die Ergebnisse der Spektroskopie an stabilem Praseodym am TRIGA-LASER Experiment sowie an radioaktiven Praseodymionen am COLLAPS Experiment ausführlich diskutiert. Die Präsentation der aus der Laserspektroskopie der Cadmiumatome gewonnen kernphysikalischen Größen und ihre Interpretation erfolgt in Kapitel 6. Im letzten Kapitel 7 werden die Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst.

2. Theorie

Bei der kollinearen Laserspektroskopie wird eine atomphysikalische Methode verwendet, um kernphysikalische Größen, wie den Spin, die Momente und den Ladungsradius eines Atomkerns, zu bestimmen. Dieses Kapitel befasst sich daher zunächst mit dem Tröpfchenmodell, aus welchem Aussagen über die Größe eines Kerns getroffen werden können, und dem Schalenmodell, das den Aufbau eines Kerns aus seinen Nukleonen beschreibt. Anschließend werden die atomphysikalischen Grundlagen der Hyperfeinstrukturaufspaltung und der Isotopieverschiebung erläutert und beschrieben, wie aus einem optischen Spektrum kernphysikalische Größen extrahiert werden können. Das letzte Kapitel befasst sich mit den Grundlagen der kollinearen Laserspektroskopie. Einige spezielle theoretische Aspekte werden zudem direkt in den entsprechenden Ergebniskapiteln erläutert.

2.1. Kernphysik

2.1.1. Das Tröpfchenmodell – der Ladungsradius

Das allgemein bekannte Flüssigkeitströpfchen-Modell (engl. liquid-drop model) basiert auf der Annahme, dass die Protonen und Neutronen homogen über einen kugelförmigen Kern verteilt sind. Im Tröpfchenmodell (engl. droplet model) nach W. Myers und K.-H. Schmidt [Mye83] wird zusätzlich zwischen Protonen und Neutronen unterschieden. Dies führt in Kernen mit einem großen Neutronenüberschuss zum Beispiel zur Ausbildung einer Neutronenhaut. Zusätzlich berücksichtigt dieses Modell die Umverteilung der Nukleonen aufgrund der abstoßenden Coulombkraft. Insgesamt können mit dem Tröpfchenmodell verschiedene makroskopische Eigenschaften eines Kerns, wie zum Beispiel die Bindungsenergie und der Ladungsradius, beschrieben werden. In den folgenden Abschnitten soll die Abschätzung des Ladungsradius genauer erläutert werden, da dessen relative Änderungen zwischen zwei Isotopen über die Isotopieverschiebung mithilfe der Laserspektroskopie bestimmt werden kann.

Der Radius eines Kerns mit mittlerer Dichte $\bar{\rho} = \bar{\rho}_n + \bar{\rho}_p$ ist gegeben durch [Mye83, Ber85]

$$R = r_0 A^{1/3} (1 + \epsilon) \quad (2.1)$$

$$\text{mit} \quad \epsilon = \frac{1}{3} \frac{\rho_0 - \bar{\rho}}{\rho_0} = \frac{1}{K} \left(-2a_s A^{-1/3} + L\delta^2 + c_1 Z^2 A^{-4/3} \right) \quad (2.2)$$

$$\text{und} \quad \delta = \frac{\bar{\rho}_n - \bar{\rho}_p}{\bar{\rho}} = \frac{I + (3c_1/16Q) Z A^{-2/3}}{1 + (9J/4Q) A^{-1/3}}. \quad (2.3)$$

Hierbei ist $\rho_0 = 3/(4\pi r_0^3) = 1/V$ und somit verknüpft mit dem Volumen einer sphärischen Kugel vom Radius r_0 . Der Parameter I ist gleich $(N - Z)/A$ und der Coulomb-Koeffizient $c_1 = 3/5 \cdot e^2/r_0$. Die übrigen Parameter beschreiben Eigenschaften eines Tröpfchens, wie die Kompressionsfähigkeit K , der Oberflächen-Koeffizient a_s , der Dichteparameter L , der Asymmetrie-Koeffizient J und die Steifigkeit der Oberfläche Q , welche maßgeblich für die Neutronenhautdicke $t = 2/3 \cdot R(I - \delta)$ ist. Konkrete Werte der Parameter, durch die Anpassung an experimentelle Daten erhalten, können [Ber85] entnommen werden.

Die Unterscheidung zwischen Protonen und Neutronen führt zu jeweils einem separaten effektiven Radius für die Neutronen- und Protonenverteilung im Kern

$$R_n = R + \frac{Z}{A}t \quad \text{und} \quad R_p = R - \frac{N}{A}t . \quad (2.4)$$

Mithilfe des Protonenradius R_p wird im Tröpfchenmodell der mittlere quadratische Ladungsradius eines Kerns über die Summe

$$\langle r^2 \rangle = \langle r^2 \rangle_u + \langle r^2 \rangle_r + \langle r^2 \rangle_d \quad (2.5)$$

berechnet. Der erste Summand

$$\langle r^2 \rangle_u = \frac{3}{5}R_p^2 \quad (2.6)$$

ist der dominierende Teil und ein Maß für die Größe der gleichförmigen Verteilung der Protonen. Der Effekt der Umverteilung (engl. redistribution) der Protonen auf die Form des Kerns wird durch

$$\langle r^2 \rangle_r = \frac{12}{175}CR_p^2 \quad (2.7)$$

berücksichtigt, wobei der Parameter C proportional zur Ladungszahl Z ist. Der letzte Term

$$\langle r^2 \rangle_d = 3\sigma^2 \quad (2.8)$$

beinhaltet die Tatsache, dass der Kern keine scharfe Kontur (engl. diffuseness) hat.

Der mittlere quadratische Ladungsradius $\langle r^2 \rangle$, das radiale Moment einer Ladungsverteilung $\rho(\mathbf{r})$, ist allgemein definiert als [Boh69]

$$\langle r^2 \rangle = \frac{\int_0^R \rho_p(\mathbf{r}) r^2 d\mathbf{r}}{\int_0^R \rho_p(\mathbf{r}) d\mathbf{r}} . \quad (2.9)$$

Hierbei ergibt das Integral im Nenner gerade die Ladung Ze des Kerns.

Im Experiment kann der mittlere quadratische Ladungsradius $\langle r^2 \rangle$ über die Isotopieverschiebung bestimmt werden (siehe Kapitel 2.2.2). Während das Tröpfchenmodell von einer sphärischen Ladungsverteilung ausgeht, sind Atomkerne in Wirklichkeit nur in der Nähe abgeschlossener Schalen annähernd sphärisch. Ein Vergleich der experimentell gemessenen Ladungsradien, bzw. deren Änderung, mit den Vorhersagen des Tröpfchenmodells gibt daher Aufschluss über die Deformation der Kerne in Abhängigkeit der Neutronen- oder Protonenzahl.

2.1.2. Das Schalenmodell – der Aufbau der Kerne

Bei der systematischen Untersuchung der Kernmassen und Anregungsenergien der stabilen Isotope stellte sich heraus, dass Atomkerne mit einer bestimmten Anzahl an Protonen oder Neutronen, den sogenannten *magischen* Zahlen **2, 8, 20, 28, 50, 82** und **126**, besonders hohe Separations- und Anregungsenergien im Vergleich zu den benachbarten Kernen haben. Diese Situation erinnert an die Edelgase, deren Ionisationsenergien und ersten Anregungsenergien besonders hoch sind und in der Atomphysik über abgeschlossene Elektronenschalen erklärt werden können. Während die elektromagnetische Wechselwirkung zwischen den Elektronen und dem Atomkern durch ein zentrales langreichweitiges Coulomb-Potential beschrieben werden kann, dominiert im Atomkern die kurzreichweitige starke Wechselwirkung. Die Nukleonen wechselwirken vorwiegend mit den direkten Nachbarnukleonen. Somit hängt das Potential, in dem sich die

einzelnen Nukleonen bewegen, direkt von der Dichteverteilung im Kern ab [Pov06]. Ein entsprechendes Potential, das die Dichteverteilung der Nukleonen im Kern annähernd wiedergibt, ist für schwere Kerne zum Beispiel das *Wood-Saxon-Potential*:

$$V_{\text{zentral}}(r) = \frac{-V_0}{1 + e^{(r-R)/a}} . \quad (2.10)$$

Hierbei ist R ein Maß für die Größe des Kerns und a für seine Hautdicke, d.h. dem Bereich, in dem die Dichte von 90 % auf etwa 10 % der zentralen Dichte abfällt. Die Quantisierung in diesem Orbital führt zwanglos zu einer Erklärung der niedrigeren *magischen* Zahlen 2, 8

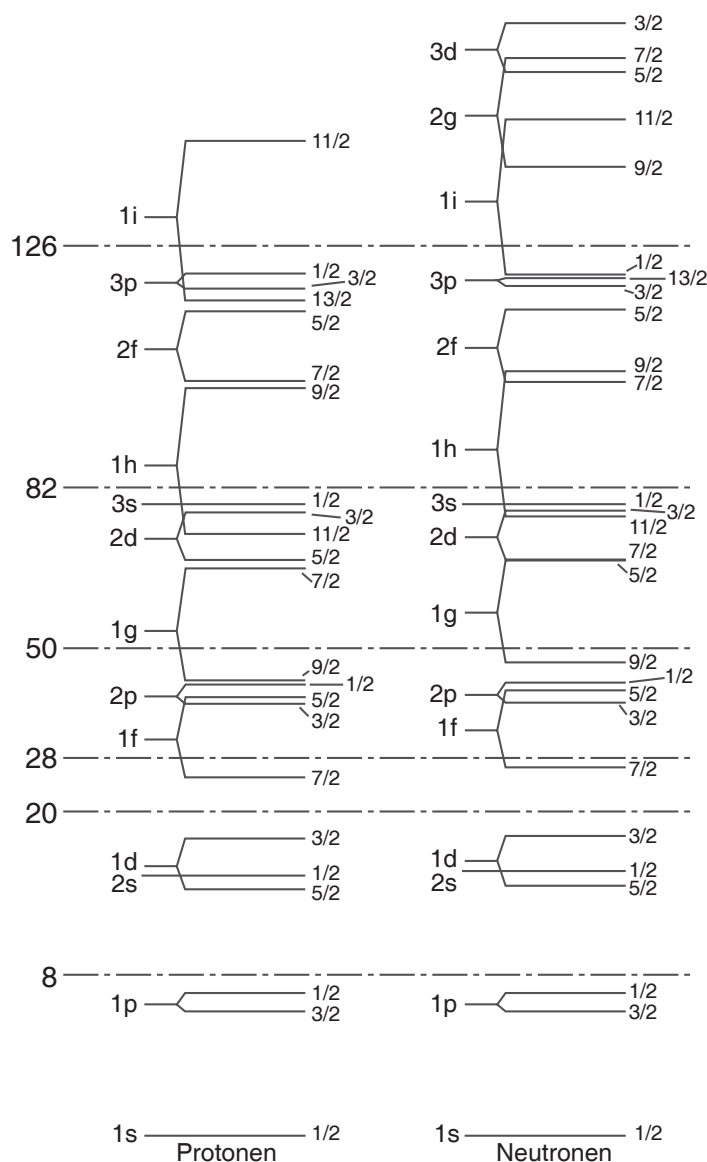


Abbildung 2.1.: Einteilchenenergieniveaus des Schalenmodells für Protonen und Neutronen (entnommen aus [Pov06]). Die Schalenabschlüsse bei einer *magischen* Anzahl an Protonen bzw. Neutronen sind durch horizontale Linien angedeutet. Hier sind die Lücken für zwei aufeinanderfolgende Energieniveaus besonders groß.

und 20. Um die höheren *magischen* Zahlen erklären zu können, führten M. Goeppert Mayer und J. H. D. Jensen analog zur atomaren Feinstruktur eine Kopplung des Spins $\mathbf{s}$ und des Bahndrehimpulses $\mathbf{l}$ des Nukleons zum Gesamtdrehimpuls $j\hbar = l\hbar \pm \hbar/2$ ein [Goe55]. Diese führt zu einer Energieverschiebung proportional zum Skalarprodukt $\langle \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \rangle$:

$$V(r) = V_{\text{zentral}}(r) + V_{ls}(r) \frac{\langle \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \rangle}{\hbar^2}. \quad (2.11)$$

Aus dem Erwartungswert von $\mathbf{l} \cdot \mathbf{s}$

$$\frac{\langle \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \rangle}{\hbar^2} = \frac{j(j+1) - l(l+1) - s(s+1)}{2} = \begin{cases} 1/2 l & \text{für } j = l + 1/2 \\ -1/2 (l+1) & \text{für } j = l - 1/2 \end{cases} \quad (2.12)$$

folgt eine Energieaufspaltung von $\Delta E_{ls} \propto l + 1/2$, die proportional zum Drehimpuls l ist. Das Potential V_{ls} ist negativ und somit liegt das $j = l + 1/2$ Niveau energetisch immer unterhalb des $j = l - 1/2$ Niveaus. Jedes Niveau nlj ist $(2j + 1)$ -fach entartet. Abbildung 2.1 zeigt die resultierenden Einteilchenenergieniveaus getrennt für Protonen und Neutronen [Pov06]. Bei den *magischen* Zahlen **2, 8, 20, 28, 50, 82** und **126** treten größere Lücken zwischen zwei aufeinanderfolgenden Energieniveaus auf. Besitzt ein Kern sowohl eine *magische* Neutronen- als auch eine *magische* Protonenzahl, so spricht man von *doppelt-magischen* Kernen. Diese Kerne sind besonders stabil und haben eine sphärische Form. Beispiele hierfür sind die *doppelt-magischen* Kerne $^{100}_{50}\text{Sn}_{50}$ und $^{132}_{50}\text{Sn}_{82}$.

Im Vergleich zur Atomphysik, bei der eine abstoßende Kraft zwischen den einzelnen Elektronen herrscht, überwiegt im Atomkern im Mittel die anziehende Kraft zwischen den Nukleonen. Durch die Bildung von Nukleonenpaaren, deren Gesamtdrehimpuls Null ist, gewinnt der Kern zusätzlich an Energie, die sogenannte Paarungsenergie, und somit an Stabilität.

Der Kernspin

Zur Bestimmung des Kernspins I muss die Kopplung der Nukleonen untereinander betrachtet werden [Goe55]. Kerne mit einer abgeschlossenen Schale sind sphärisch. Ihre Nukleonen koppeln zu einem Gesamtspin von Null. Der Kernspin wird folglich von den Nukleonen außerhalb abgeschlossener Schalen bestimmt, wobei Protonen und Neutronen getrennt voneinander betrachtet werden. Für Kerne mit gerader Anzahl an Protonen und Neutronen (*gg*-Kerne) ergibt sich aufgrund der Paarungsenergie immer ein Kernspin und eine Parität von $I^P = 0^+$. Bei Kernen, die entweder eine ungerade Anzahl an Neutronen (*gu*-Kerne) oder Protonen (*ug*-Kerne) haben, bestimmt das ungepaarte Nukleon den Kernspin $I = j$. Die Parität eines Zustandes ergibt sich dann aus $P = (-1)^l$. Bei Kernen mit jeweils einem ungepaarten Proton und Neutron (*uu*-Kerne) mit Gesamtdrehimpuls j_p und j_n erfüllt der Kernspin die *Nordheim-Regel* $|j_p - j_n| \leq I \leq j_p + j_n$.

Das magnetische Moment

Das magnetische Moment eines Kerns μ_I ist mit dem Kernspin I über den gyromagnetischen Faktor g_I verknüpft: $\mu_I = g_I I \mu_N$. Für Kerne mit ungerader Massenzahl A in der Nähe abgeschlossener Schalen kann das magnetische Moment unter der Annahme, dass es von dem einen ungepaarten Nukleon mit Gesamtspin j bestimmt wird, aus den gyromagnetischen Faktoren des freien Protons und Neutrons, $g_l(n) = 0$, $g_l(p) = 1$, $g_s(n) = -3.82$ und $g_s(p) = 5.58$, zu

$$\mu_{\text{sp}}(j = l + 1/2) = \left[j g_l + \frac{(g_s - g_l)}{2} \right] \mu_N \quad (2.13)$$

$$\mu_{\text{sp}}(j = l - 1/2) = \left[j g_l - \frac{(g_s - g_l)}{2} \cdot \frac{j}{(j + 1)} \right] \mu_N \quad (2.14)$$

abgeschätzt werden [Hey94]. Diese Einteilchen-Momente (sp – single particle) werden auch *Schmidt-Werte* genannt. Im Vergleich zum Kernspin handelt es sich hier nur um eine grobe Abschätzung. Während für leichte Kerne die abgeschätzten Werte recht gut mit den experimentell gemessenen Werten übereinstimmen, muss für schwerere Kerne berücksichtigt werden, dass das magnetische Moment eines Nukleons von der Anwesenheit der übrigen Nukleonen beeinflusst wird. Über die Einführung effektiver gyromagnetischer Faktoren kann dies berücksichtigt werden. Im Fall der ungeraden Indiumisotope beträgt der effektive g -Faktor auf Grundlage der experimentell gemessenen Momente zum Beispiel $g_s^{\text{eff}} = 0.7g_s^{\text{frei}}$ [Hey94].

Für *uu*-Kerne, also Kerne mit jeweils einem ungepaarten Proton und Neutron, in der Nähe *magischer* Schalen kann das magnetische Moment über die Momente der benachbarten Kerne abgeschätzt werden (engl. odd-odd coupling rule) [Hey94]:

$$\mu(I) = \frac{I}{2} \left[\frac{\mu_p}{I_p} + \frac{\mu_n}{I_n} + \left(\frac{\mu_p}{I_p} - \frac{\mu_n}{I_n} \right) \frac{I_p(I_p + 1) - I_n(I_n + 1)}{I(I + 1)} \right]. \quad (2.15)$$

Der Index p steht hierbei für einen Kern mit gleicher Protonenzahl wie der zu berechnende Kern und der Index n entsprechend für einen Kern mit gleicher Neutronenzahl.

Das elektrische Quadrupolmoment

Eine Abweichung von einer kugelsymmetrischen Verteilung der Ladung im Kern resultiert in einem elektrischen Quadrupolmoment, welches klassisch definiert ist durch

$$Q = \sum_{i=1}^A e_i (3z_i^2 - r_i^2) \quad (2.16)$$

und somit die Ladung des einzelnen Nukleons e_i am Ort r_i berücksichtigt. Analog zum magnetischen Moment kann das Quadrupolmoment eines Kerns im Einteilchenbild betrachtet werden, das heißt es wird nur das ungepaarte Nukleon mit Gesamtdrehimpuls j betrachtet [Hey94]

$$Q_{\text{sp}}(j) = -e_j \cdot \frac{2j-1}{2j+2} \langle r_j^2 \rangle. \quad (2.17)$$

Hierbei ist $\langle r_j^2 \rangle = \int_0^\infty u_{nlj}^2(r) r^2 dr$ das radiale Moment des Nukleons im Orbital nlj . Da die Ladung des freien Neutrons e_n gleich Null ist, müsste das elektrische Quadrupolmoment für ein

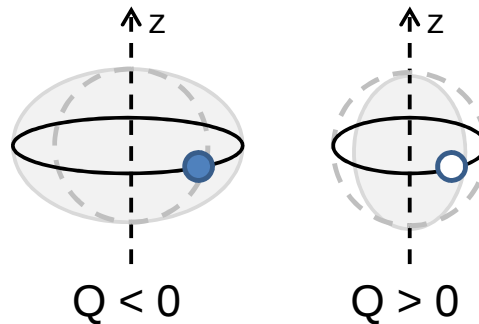


Abbildung 2.2.: Elektrisches Quadrupolmoment im Einteilchenbild. Durch ein zusätzliches Nukleon zu einer abgeschlossenen Schale ergibt sich eine oblate Deformation und $Q < 0$, für ein fehlendes Nukleon zu einer abgeschlossenen Schale eine prolate Form und $Q > 0$.

ungepaartes Neutron eigentlich verschwinden. Aufgrund der Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung beeinflusst ein Neutron allerdings dennoch den Restkern und polarisiert diesen. Ähnlich wie beim magnetischen Moment kann dieser Effekt durch die Einführung einer effektiven Ladung berücksichtigt werden.

Für einen Kern mit überzähligem Nukleon außerhalb einer geschlossenen Schale ergibt sich ein negatives Quadrupolmoment und der Kern wird oblat deformiert. Fehlt dagegen ein Nukleon zur abgeschlossenen Schale, so ist das Quadrupolmoment positiv und der Kern hat eine prolate Form (siehe Abbildung 2.2).

Die Besetzungsreihenfolge der Energieniveaus

Betrachtet man innerhalb einer Isotopenkette die verschiedenen vorkommenden j -Zustände des Schalenmodells, so fällt auf, dass für den Kernspin I im Grundzustand einige mögliche Werte j nicht auftauchen. Dies lässt sich mithilfe der Paarungsenergie, welche mit zunehmendem j größer wird, erklären [Goe55]. Liegen zwei Energieniveaus eng beieinander, hängt es von der Differenz der Paarungsenergien zwischen oberem und unterem Niveau $\Delta P = P_{\text{oben}} - P_{\text{unten}}$ sowie der Energiedifferenz der Niveaus $\Delta\epsilon = \epsilon_{\text{oben}} - \epsilon_{\text{unten}}$ ab, welches der beiden Energieniveaus zuerst mit einem Paar an Neutronen oder Protonen besetzt wird. Daraus ergeben sich folgende drei Möglichkeiten:

- (a) $\Delta P < \Delta\epsilon$: Die Energieniveaus werden nacheinander besetzt.
- (b) $\Delta P > 2\Delta\epsilon$: Die Paarungsenergie für zwei Nukleonen im oberen Niveau ist im Vergleich zum unteren Niveau soviel größer, dass ein Anheben in das obere Energieniveau energetisch günstiger ist. Ein weiteres ungepaartes Nukleon befindet sich im unteren Zustand.
- (c) $2\Delta\epsilon > \Delta P > \Delta\epsilon$: Zunächst wird das untere Energieniveau mit zunehmender Neutronen- bzw. Protonenzahl aufgefüllt, bis dieses vollständig besetzt ist. Ein weiteres Nukleon muss dann das obere Energieniveau besetzen. Nun ist es aber energetisch günstiger, ein bereits gepaartes Nukleon des unteren Energiezustandes ebenfalls in den oberen Zustand anzuheben und dort mit dem neuen Nukleon zu paaren. Somit befindet sich wieder ein ungepaartes Nukleon im unteren Zustand.

Da der Kernspin I immer von dem ungepaarten Nukleon bestimmt wird, lässt sich der Fall (a) leicht von den anderen beiden unterscheiden. Im Fall (b) und (c) ist der Kernspin I aber immer vom j des unteren Zustandes bestimmt, d.h. der höhere Spin tritt nicht auf. Diese beiden Fälle können unter Hinzunahme des Vorzeichens des elektrischen Quadrupolmoments unterschieden werden. Das elektrische Quadrupolmoment eines Kerns ist negativ, wenn dieser zusätzlich zu einer abgeschlossenen Schale ein ungepaartes Nukleon besitzt, und positiv, wenn ein Nukleon zum Abschluss einer Schale fehlt (siehe Abbildung 2.2).

2.2. Atomphysik

2.2.1. Hyperfeinstruktur

Mit dem Kernspin I eines Atomkerns ist ein magnetisches Dipolmoment [Hak04]

$$\mu_I = g_I \mu_N I / \hbar \quad (2.18)$$

verbunden. Hierbei wird g_I als gyromagnetischer Faktor des Kerns und $\mu_N = e\hbar / (2m_p)$ als Kernmagneton bezeichnet. Entsprechend der Quantisierungsvorschrift für den Kernspin I ,

$I_z = m_I \hbar$ mit $m_I = I, I-1, \dots, -I$, ist vom magnetischen Moment μ_I nur die Komponente längs einer Vorzugsrichtung z beobachtbar. Bei dem in Kapitel 2.1.2 eingeführten magnetischen Moment $\mu_I = g_I \mu_N I$ eines Kerns handelt es sich daher um dessen maximale z -Komponente.

Die Elektronen eines Atoms erzeugen am Kernort ein magnetisches Feld $\mathbf{B}_J$, welches mit dem magnetischen Dipolmoment des Kerns μ_I wechselwirkt. Diese sogenannte (magnetische Dipol-) Hyperfein-Wechselwirkung führt zu einer Kopplung des Kernspins $\mathbf{I}$ mit dem Gesamtdrehimpuls der Elektronenhülle $\mathbf{J}$ zu einem Gesamtdrehimpuls $\mathbf{F} = \mathbf{I} + \mathbf{J}$ mit den möglichen Quantenzahlen $F = J + I, J + I - 1, \dots, |J - I|$. Ein Energieniveau mit elektronischem Gesamtdrehimpuls J spaltet demzufolge für $I < J$ in $(2I + 1)$ bzw. für $J < I$ in $(2J + 1)$ Unterniveaus auf (siehe Abbildung 2.3).

Der resultierende Beitrag zur Energieaufspaltung der Hyperfeinstruktur kann aus der Energie der magnetischen Dipol-Wechselwirkung [Hak04]

$$V_{\text{MD}} = -\mu_I \cdot \mathbf{B}_J \quad (2.19)$$

berechnet werden. Aus der Anwendung von Gleichung 2.18 unter Berücksichtigung der Antiparallelität von $\mathbf{B}_J$ und $\mathbf{J}$ ergibt sich

$$V_{\text{MD}} = \frac{g_I \mu_N |\mathbf{I}|}{\hbar} B_J \cos(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) . \quad (2.20)$$

Mithilfe des Kosinussatzes, $|\mathbf{F}|^2 = |\mathbf{I}|^2 + |\mathbf{J}|^2 + 2|\mathbf{I}||\mathbf{J}|\cos(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})$, kann der letzte Term durch

$$\cos(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) = \frac{F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)}{2|\mathbf{I}||\mathbf{J}|} \hbar^2 \quad (2.21)$$

ersetzt werden und für die Energieaufspaltung folgt:

$$\Delta E_{\text{MD}} = \frac{A}{2} (F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)) = \frac{A}{2} C \quad (2.22)$$

mit dem Hyperfeinstrukturparameter

$$A = \frac{g_I \mu_N B_J}{\sqrt{J(J+1)}} . \quad (2.23)$$

Die Energiedifferenz zwischen zwei aufeinanderfolgenden Niveaus mit den Quantenzahlen F und $F-1$ beträgt somit $\Delta E_F - \Delta E_{F-1} = A \cdot F$. Die Konstante A wird daher auch als Intervallfaktor bezeichnet.

Hat der Kern ein spektroskopisches Quadrupolmoment, d.h. $I, J > 1/2$, so tritt eine zusätzliche Verschiebung der Hyperfeinstrukturniveaus auf:

$$\Delta E_{\text{EQ}} = B \cdot \frac{\frac{3}{4} C(C+1) - I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)J(2J-1)} . \quad (2.24)$$

Der zugehörige Hyperfeinstrukturparameter $B = eQ \left\langle \frac{\partial^2 V_e}{\partial z^2} \right\rangle$ ist proportional zum elektrischen Feldgradienten am Ort des Kerns.

In Abbildung 2.3 ist beispielhaft die Hyperfeinstrukturaufspaltung des in dieser Arbeit für die Spektroskopie von $^{140}\text{Pr}^+$ ($I = 1$) verwendeten Übergangs $4f^3 6s \ ^5I_4 \rightarrow 4f^3 6p \ ^5H_3$ (siehe Kapitel 5) dargestellt. Beide Energieniveaus spalten in jeweils $2I + 1 = 3$ Unterniveaus auf ($I < J$).

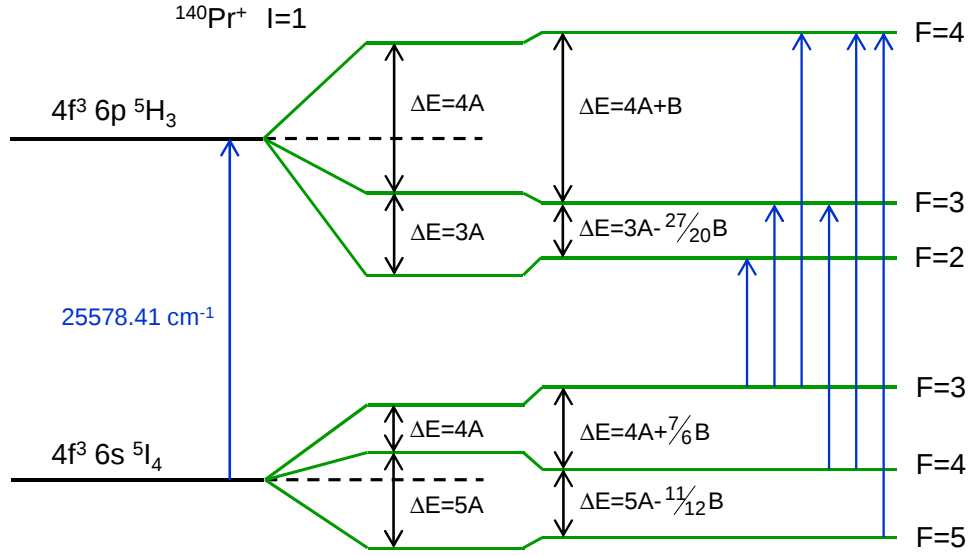


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung der Hyperfeinstrukturaufspaltung von $^{140}\text{Pr}^+$ ($I = 1$) (nicht maßstabsgetreu). Dargestellt ist der für die Spektroskopie in dieser Arbeit verwendete Übergang $4f^3 6s \ ^5I_4 \rightarrow 4f^3 6p \ ^5H_3$. Die beiden Energieniveaus spalten in jeweils drei Hyperfeinniveaus auf. Daraus resultieren sechs erlaubte Hyperfeinübergänge.

Der Hauptbeitrag der Energieaufspaltung ΔE ergibt sich aufgrund des magnetischen Dipolmoments des Kerns aus Gleichung 2.22 und wird durch den Beitrag des elektrischen Quadrupolmoments leicht modifiziert (Gleichung 2.24). Gemäß der Auswahlregel für optische Hyperfeinübergänge $\Delta F = 0, \pm 1$ (wobei $F = 0 \rightarrow F' = 0$ verboten ist) ergeben sich sechs erlaubte Hyperfeinübergänge. Die Intensität der einzelnen Übergänge relativ zur Intensität des $J \rightarrow J'$ Übergangs $S_{JJ'}$ kann mithilfe der Wigner $6j$ -Symbole gemäß [Dra06]

$$S_{FF'} = (2F + 1)(2F' + 1) \left\{ \begin{matrix} F & F' & 1 \\ J' & J & I \end{matrix} \right\}^2 S_{JJ'} \quad (2.25)$$

berechnet werden. Für jedes Isotop eines Elements ergibt sich somit ein Hyperfeinstrukturspektrum mit charakteristischen Abständen und Intensitätsverhältnissen der einzelnen Hyperfeinstrukturresonanzen.

Die Extraktion der kernphysikalischen Größen aus den Hyperfeinspektren wird in Kapitel 2.3 ausführlich erläutert. Zuvor wird im folgenden Kapitel jedoch der Einfluss der endlichen Kerngrößen auf die optischen Spektren diskutiert.

2.2.2. Isotopieverschiebung

Die Verschiebung der Übergangsfrequenz ν^A zwischen zwei Isotopen mit Massenzahl A und A'

$$\delta\nu_{\text{IS}}^{A,A'} = \nu^{A'} - \nu^A \quad (2.26)$$

wird als Isotopieverschiebung bezeichnet [Ure32]. Tritt Hyperfeinstrukturaufspaltung auf, so ergibt sich die Übergangsfrequenz eines Isotops aus dem Schwerpunkt aller Hyperfeinübergänge.

Die Isotopieverschiebung wird durch die Änderung der Masse und des Kernvolumens verursacht und daher in zwei Komponenten aufgeteilt, den Massen- (MS – engl. **mass shift**) und den Volumen- oder Feldeffekt (FS – engl. **field shift**)

$$\delta\nu_{\text{IS}}^{A,A'} = \delta\nu_{\text{MS}}^{A,A'} + \delta\nu_{\text{FS}}^{A,A'} . \quad (2.27)$$

Masseneffekt

Aufgrund der unterschiedlichen Massen m_A und $m_{A'}$ der Kerne ändert sich die reduzierte Masse des Elektron-Kernsystems und somit dessen Dynamik relativ zum Schwerpunkt. Die daraus folgende Verschiebung der Energieniveaus bzw. der Übergangsfrequenz ν^A wird als normaler Masseneffekt (NMS) bezeichnet. Er ist direkt linear zur reduzierten Masse des Systems $\mu = m_e / (1 + m_e/m_A)$, sodass die relative Verschiebung zwischen zwei Isotopen mit Massenzahl A und A' durch

$$\frac{\delta\nu_{\text{NMS}}^{A,A'}}{\nu^A} = \frac{\mu - \mu'}{\mu} = 1 - \frac{\mu}{\mu'} \quad (2.28)$$

gegeben ist. Da die Elektronenmasse m_e sehr viel kleiner ist als die Masse der Kerne $m_{A,A'}$, ergibt sich [Ott89]

$$\delta\nu_{\text{NMS}}^{A,A'} = \nu^A \cdot \frac{\frac{m_e}{m_A} - \frac{m_e}{m_{A'}}}{1 + \frac{m_e}{m_A}} \approx N \cdot \frac{m_{A'} - m_A}{m_A \cdot m_{A'}} \quad (2.29)$$

mit $N = m_e \nu^A$, dem Faktor des normalen Masseneffekts. Besteht das System aus mehreren Elektronen, so muss zusätzlich deren Relativbewegung berücksichtigt werden, welche wiederum Einfluss auf die Kernbewegung hat. Dieser Anteil des Masseneffekts wird spezifischer Masseneffekt genannt und besitzt die gleiche Massenabhängigkeit wie der normale Masseneffekt

$$\delta\nu_{\text{SMS}}^{A,A'} = S \cdot \frac{m_{A'} - m_A}{m_A \cdot m_{A'}} . \quad (2.30)$$

Da er von der Korrelation der Elektronenbewegung abhängt, ist der Faktor S nicht so leicht zu berechnen wie der Faktor N des normalen Masseneffekts. Insgesamt kann der Masseneffekt zu

$$\delta\nu_{\text{MS}}^{A,A'} = \delta\nu_{\text{NMS}}^{A,A'} + \delta\nu_{\text{SMS}}^{A,A'} = \underbrace{(N + S)}_M \frac{m_{A'} - m_A}{m_A \cdot m_{A'}} \quad (2.31)$$

zusammengefasst werden.

Feldeffekt

Die Zahl der Neutronen im Kern beeinflusst dessen Verteilung der Protonen und führt somit zu einer Änderung der Kernladungsverteilung. Dies hat eine Änderung des elektrostatischen Potentials, welches die Elektronen im Kerninneren erfahren, zur Folge. Der resultierende Feldeffekt zwischen zwei Isotopen ist in erster Ordnung durch [Ott89]

$$\delta\nu_{\text{FS}}^{A,A'} = -\frac{2\pi Ze^2}{3} \Delta |\psi(0)|^2 \cdot \delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} = F \cdot \delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} \quad (2.32)$$

gegeben. $\Delta |\psi(0)|^2$ beschreibt die durch den optischen Übergang hervorgerufene Änderung der nicht-relativistischen Elektronendichte am Kernort. Für schwere Kerne müssen zusätzlich noch relativistische Korrekturen berücksichtigt werden. Der Feldeffekt ist proportional zur Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius

$$\delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} = \langle r^2 \rangle^{A'} - \langle r^2 \rangle^A \quad (2.33)$$

und enthält somit Informationen über die Größe des Kerns.

2.3. Vom optischen Spektrum zur kernphysikalischen Größe

Da die Frequenz eines Hyperfeinstrukturübergangs von den A - und B -Faktoren des unteren und des oberen Hyperfeinstrukturzustandes abhängt (siehe Abbildung 2.3), können diese über die relative Lage der Resonanzen in einem Hyperfeinspektrum bestimmt werden. Bei der Anpassung eines Linienprofils, zum Beispiel eines *Voigt*-Profils, an die einzelnen Resonanzen, deren Lage gemäß der Energieaufspaltung in Gleichung 2.22 und 2.24 berechnet wurde, erhält man über χ^2 -Minimierung zusätzlich die Übergangsfrequenz des Schwerpunkts aller Hyperfeinstrukturübergänge und somit die Isotopieverschiebung relativ zu einem Referenzisotop. Um die insgesamt fünf Parameter eindeutig bestimmen zu können, sind fünf Hyperfeinresonanzen ausreichend. Zusätzlich ist es möglich, über die Gesamtzahl der Resonanzen (ggf. zusammen mit deren relativen Intensitäten) den Kernspin zu bestimmen bzw. zu verifizieren.

Um die Momente aus den gemessenen Hyperfeinparametern bestimmen zu können, muss eigentlich das Magnetfeld B_J und der elektrische Feldgradient $\left\langle \frac{\partial^2 V_e}{\partial z^2} \right\rangle$ bekannt sein. In der Regel sind aber für mindestens ein – meist stabiles – Isotop die Momente bereits sehr präzise mit andere Messtechniken, wie zum Beispiel kernmagnetische Resonanzspektroskopie (NMR), vermessen worden. Die zu bestimmenden Momente können dann über das magnetische Moment μ_{ref} und das elektrische Quadrupolmoment Q_{ref} dieses Referenzisotops unter Berücksichtigung der Verhältnisse der spektroskopierten Hyperfeinparameter wie folgt berechnet werden:

$$\mu = \mu_{\text{ref}} \cdot \frac{A \cdot I}{A_{\text{ref}} \cdot I_{\text{ref}}} \quad (2.34)$$

$$Q = Q_{\text{ref}} \cdot \frac{B}{B_{\text{ref}}} \quad (2.35)$$

Dies gilt strenggenommen nur unter der Annahme, dass es sich um einen punktförmigen Kern handelt. Für einen ausgedehnten Kern wird der Hyperfeinparameter A zum einen durch die Ladungsverteilung im Kern (Breit-Rosenthal-Crawford-Schawlow-Effekt) und zum anderen durch die Kernmagnetisierung (Bohr-Weisskopf-Effekt) modifiziert [Per11]. Mit $A = A_{\text{punkt}} (1 + \epsilon)$ ergibt sich für das magnetische Moment

$$\mu = \mu_{\text{ref}} \cdot \frac{A \cdot I}{A_{\text{ref}} \cdot I_{\text{ref}}} (1 + \epsilon_{\text{ref}} - \epsilon) \quad (2.36)$$

Die Differenz $\Delta = \epsilon_{\text{ref}} - \epsilon$ wird allgemein als Hyperfeinanomalie bezeichnet und ist in der Regel kleiner als 10^{-3} .

Um aus der Isotopieverschiebung

$$\delta\nu_{\text{IS}}^{A,A'} = F \cdot \delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} + M \cdot \frac{m_{A'} - m_A}{m_A \cdot m_{A'}} \quad (2.37)$$

den Ladungsradius bestimmen zu können, müssen die Faktoren des Feldeffektes F und des Masseneffektes M bekannt sein. Für manche Übergänge können diese hinreichend genau theoretisch berechnet werden. Es besteht aber auch die Möglichkeit, die beiden Faktoren über einen sogenannten King Plot [Kin84] zu ermitteln. Hierzu werden die Ladungsradien von mindestens drei Isotopen, welche mit einer anderen experimentellen Technik, zum Beispiel der Analyse von Röntgenspektren (in der Regel stabiler) myonischer Atome, bestimmt wurden, benötigt. Nach dem Umformen von Gleichung 2.37

$$\underbrace{\frac{m_A \cdot m_{A'}}{m_{A'} - m_A} \cdot \delta\nu_{\text{IS}}^{A,A'}}_y = F \cdot \underbrace{\frac{m_A \cdot m_{A'}}{m_{A'} - m_A} \cdot \delta \langle r^2 \rangle_{\text{myonisch}}^{A,A'}}_x + M \quad (2.38)$$

wird der lineare Zusammenhang zwischen modifizierter optischer Isotopieverschiebung (y) und modifizierter Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien (x) deutlich. Stellt man die entsprechenden Werte in einem Graph dar und passt eine Gerade an die Datenpunkte an, so ist die Steigung gerade der gesuchte Feldeffekt-Faktor und der y -Achsenabschnitt der Masseneffekt-Faktor. Über F und M sowie die gemessenen Isotopieverschiebungen können dann die Ladungsradien der kurzlebigen Isotope bestimmt werden.

2.4. Grundlagen der kollinearen Laserspektroskopie

Die natürliche Linienbreite eines Übergangs, welche aus der Energieunschärfe der beteiligten Energieniveaus herrührt, beträgt typischerweise mehrere 10 MHz. Tatsächlich werden bei der Laserspektroskopie eines Atomensembles in Gasform Linienbreiten von bis zu mehreren GHz beobachtet. Die Hauptursache dieser Verbreiterung ist die sogenannte Dopplerverbreiterung aufgrund der Geschwindigkeitsverteilung der Atome. Die zur Anregung eines Atoms mit Geschwindigkeit v und $v \ll c$ benötigte Laserfrequenz ν ist gegenüber der Ruhfrequenz ν_0 gemäß der Dopplerverschiebung in nicht-relativistischer Näherung als

$$\nu = \nu_0 \left(1 + \frac{v}{c} \cos \theta \right) \quad (2.39)$$

gegeben. Hierbei ist θ der Winkel zwischen Laserlicht und Bewegungsrichtung der Atome. Die Geschwindigkeitsverteilung ungerichteter Atome eines Gases in z -Richtung wird durch die *Maxwell-Boltzmann*-Verteilung beschrieben

$$n(v_z) dv_z \propto e^{-(v_z/v_w)^2} dv_z . \quad (2.40)$$

Die wahrscheinlichste Geschwindigkeit beträgt $v_w = (2kT/m)^{1/2}$, wobei k die Boltzmann-Konstante ist. Unter der Annahme, dass sich die Atome parallel zum Laserlicht bewegen, d.h. $\cos \theta = 1$, ergibt sich dann für die Anzahl der Atome, die Laserlicht im Frequenzintervall $[\nu, \nu + d\nu]$ absorbieren bzw. emittieren,

$$n(\nu) d\nu \propto \exp \left(- \left(\frac{\nu - \nu_0}{\nu_0 v_w / c} \right)^2 \right) \quad (2.41)$$

[Dem07]. Hieraus resultiert eine *Gauß*-förmige Intensitätsverteilung I_G mit einer dopplerverbreiterten Halbwertsbreite (FWHM) von

$$\delta\nu_D = \nu_0 \frac{2 \ln(2) v_w}{c} . \quad (2.42)$$

Gemäß Gleichung 2.39 ist $\delta\nu_D$ zudem proportional zu δv .

Um eine Dopplerverbreiterung zu reduzieren, kann ein gerichteter Strahl von Atomen oder Ionen verwendet werden. Dann ist es zunächst naheliegend, den Laserstrahl senkrecht zur Bewegungsrichtung der Atome ($\theta = 90^\circ$) einzustrahlen und damit den Dopplereffekt 1. Ordnung komplett zu eliminieren. Dies beinhaltet allerdings gleichzeitig aufgrund der geringen Wechselwirkungszeit einen großen Verlust an Sensitivität. Da bei hohen Geschwindigkeiten zusätzlich eine Durchflugsverbreiterung auftreten kann, ist diese Methode am ehesten für thermische Atom- und Ionenstrahlen, die ausreichend langsam sind, geeignet.

Eine weitere Möglichkeit, um die starke Linienverbreiterung zu reduzieren, bietet die kollineare Laserspektroskopie an beschleunigten Ionen. Dabei wird ausgenutzt, dass die Energieverteilung

$\delta E = mv\delta v$ eines Ionenstrahls bei einer elektrostatischen Beschleunigung konstant bleibt. Mit zunehmender Geschwindigkeit $v = (2eU/m)^{1/2}$ muss deshalb die Geschwindigkeitsverteilung δv und somit die Linienbreite kleiner werden [Kau76]. Quantitativ lässt sich der Effekt wie folgt herleiten:

Es werden zwei identische Ionen mit einer Geschwindigkeit in z -Richtung, dh. der Richtung des Laserstrahls, von

$$v_1 = 0 \quad \text{und} \quad v_2 = v_w = \sqrt{\frac{2kT}{m}} \quad (2.43)$$

betrachtet. Werden diese nun durch eine Potentialdifferenz U in die gleiche Richtung beschleunigt, so ändert sich ihre Geschwindigkeit zu

$$v'_1 = v_a = \sqrt{\frac{2eU}{m}} \quad \text{und} \quad v'_2 = \sqrt{v_a^2 + v_w^2} \approx v_a + \frac{v_w^2}{2v_a} . \quad (2.44)$$

Für die Differenz ihrer Geschwindigkeiten ergibt sich dann

$$\delta v = v'_1 - v'_2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{kT}{eU}} \cdot v_w = R \cdot v_w . \quad (2.45)$$

Für Praseodymionen, die bei einer Temperatur von etwa 2500 K in einer Oberflächenionenquelle erzeugt und anschließend auf eine Energie von 10 keV beschleunigt werden, ist R zum Beispiel $2.3 \cdot 10^{-3}$. Somit verringert sich die Dopplerbreite $\delta\nu_D$ der Resonanz theoretisch von etwa 2 GHz auf 3.5 MHz. Die Energieverteilung der Atome ist allerdings nicht nur durch deren thermische Verteilung gegeben, sondern sie wird auch durch Feldinhomogenitäten innerhalb der Ionenquelle beeinflusst, was zu geringfügig unterschiedlichen Startpotentialen der Ionen führen kann. Daher werden im Experiment meist leicht größere Restdopplerbreiten beobachtet.

Bei der Spektroskopie überlagert sich die *Gauß*-förmige Intensitätsverteilung I_G der Dopplerverbreiterung mit der natürlichen Linienform des Übergangs, die durch eine *Lorentz*-Verteilung I_L beschrieben werden kann, zu einer Linienbreite von mehreren 10 MHz. Die resultierende Linienform der spektroskopierten Resonanz ergibt sich daher aus der Faltung der beiden Profile

$$I_V = \int I_G(\nu') I_L(\nu - \nu') d\nu' . \quad (2.46)$$

Dieses Profil wird *Voigt*-Profil genannt. Zusätzlich können noch weitere Verbreiterungsmechanismen auftreten, wie zum Beispiel Sättigungs- oder Stoßverbreiterung, welche gegebenenfalls berücksichtigt werden müssen.

Aufgrund der schmalen Linienbreite ermöglicht es die kollineare Laserspektroskopie, die Hyperfeinstruktur und die Isotopieverschiebung kurzlebiger seltener Isotope hochaufgelöst zu untersuchen und somit ihre magnetischen Momente und elektrischen Quadrupolmomente sowie ihre Ladungsradien sehr präzise zu bestimmen.

Für die Aufnahme der Resonanzspektren ist es üblich, den Laser auf eine feste Frequenz ν_L zu stabilisieren und die Geschwindigkeit der Ionen mithilfe einer zusätzlichen Beschleunigungsspannung in der Wechselwirkungsregion durchzustimmen. Durch die Veränderung der Geschwindigkeit v wird über die Dopplerverschiebung die eingestrahlte Laserfrequenz im Ruhesystem der Ionen variiert. Abhängig davon, ob das Laserlicht kollinear oder antikollinear mit dem Ionenstrahl überlagert wird, ergibt sich daher für die Frequenz im Ruhesystem der Ionen ν_c bzw.

ν_a :

$$\nu_c = \nu_L \gamma (1 - \beta) \quad (2.47)$$

$$\nu_a = \nu_L \gamma (1 + \beta) \quad (2.48)$$

$$\text{mit } \gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} \quad \text{und} \quad \beta = \frac{v}{c} . \quad (2.49)$$

Die Variation der Geschwindigkeit der Ionen erfolgt durch ein zusätzlich angelegtes Potential U , sodass β aus der Energieerhaltung

$$eU = mc^2 \left(\frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} - 1 \right) \quad (2.50)$$

wie folgt bestimmt werden kann:

$$\beta = \sqrt{1 - \left(\frac{mc^2}{eU + mc^2} \right)^2} . \quad (2.51)$$

Obwohl Cadmiumionen, die mit einer Spannung von 50 kV beschleunigt werden, nur eine Geschwindigkeit von etwa 0.07 % der Lichtgeschwindigkeit erreichen, muss hierbei aufgrund der gewünschten Präzision relativistisch gerechnet werden.

Die beschriebene Methode der Veränderung der von den Ionen wahrgenommenen Laserfrequenz durch die Veränderung ihrer Geschwindigkeit wird als *Doppler-tuning* bezeichnet. Sie hat den Vorteil, dass der verwendete schmalbandige Laser während der Messung auf eine feste, sehr gut bekannte Frequenz stabilisiert werden kann. Dies ist in der Regel einfacher, als einen Laser mit hoher Reproduzierbarkeit durchzustimmen. Es gibt aber durchaus kollineare Laserspektroskopie Experimente, zum Beispiel an Speicherringen, bei denen die Laserfrequenz variiert wird, da eine Veränderung der Ionengeschwindigkeit nicht oder nur schwer möglich ist [Kla94, See98, Nör13].

3. Kollineare Laserspektroskopie Experimente

Im diesem Kapitel wird zunächst anhand einer schematischen Darstellung der prinzipielle Aufbau eines kollinearen Laserspektroskopie Experiments erläutert. Anschließend wird auf die beiden für diese Arbeit relevanten Experimente, TRIGA-LASER am TRIGA Reaktor in Mainz und COLLAPS an der ISOLDE Anlage am CERN, konkret eingegangen.

3.1. Prinzipieller Aufbau einer Apparatur zur kollinearen Laserspektroskopie

In Abbildung 3.1 ist der prinzipielle Aufbau eines kollinearen Laserspektroskopie Experiments schematisch und vereinfacht dargestellt. Die zu untersuchenden Nuklide, ob stabil oder radioaktiv, werden zunächst in einer Ionenquelle erzeugt und (einfach) ionisiert. Es existiert eine Vielzahl an Produktions- und Ionisationsmöglichkeiten, auf die an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden soll. Details zu der Produktion der in dieser Arbeit spektroskopierten Praseodym- und Cadmiumisotope finden sich in den entsprechenden Spektroskopiekapiteln 5 und 6. Die Ionenquelle befindet sich in der Regel auf einem positiven Hochspannungspotential von etwa 30-60 kV, sodass die Ionen entsprechend der angelegten Spannung beschleunigt werden. Nach Erreichen der kollinearen Strahlstrecke wird der Ionenstrahl mithilfe des elektrostatischen Feldes eines

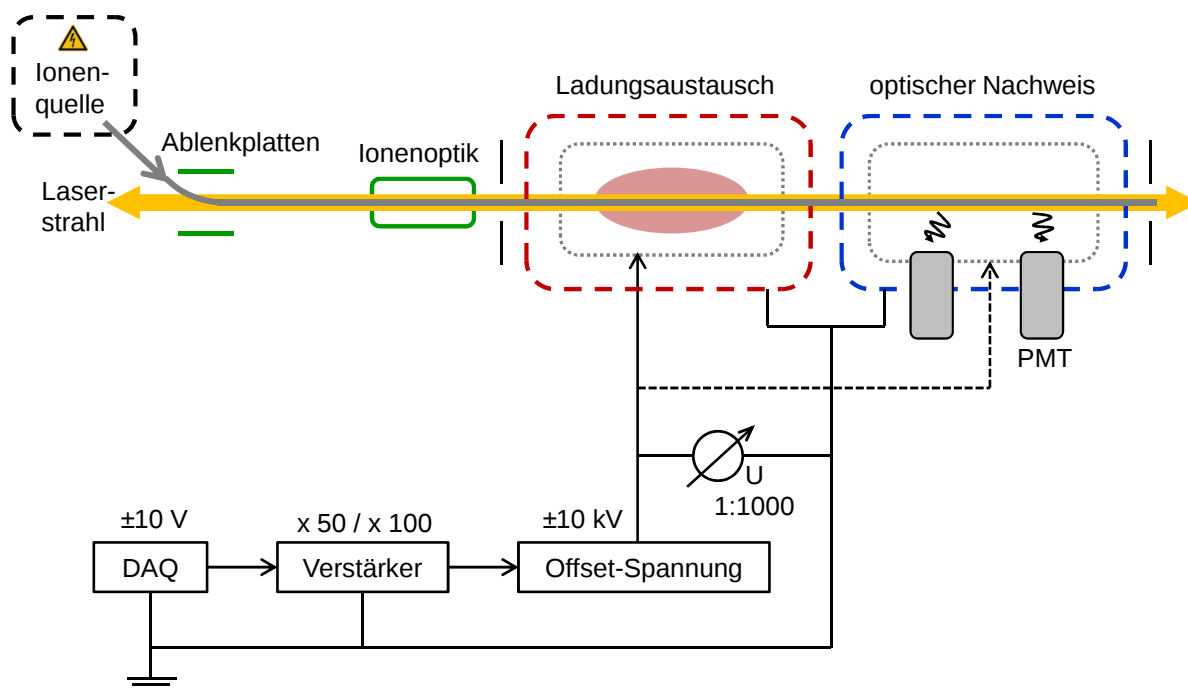


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung eines kollinearen Laserspektroskopie Experiments. Details siehe Text.

parallelen Plattenpaares abgelenkt (meist um etwa 10°) und mit dem Laserstrahl überlagert. Mithilfe zusätzlicher ionenoptischer Elemente, wie zum Beispiel Quadrupolmultiplets und Ablenkplatten, wird der Ionenstrahl anschließend geformt und auf die Laserstrahlachse ausgerichtet. Um einen bestmöglichen Überlapp zwischen Laser- und Ionenstrahl zu erhalten, ist es hilfreich, wenn innerhalb der Strahlstrecke je ein Blendensystem für die Optimierung in horizontaler und vertikaler Richtung vorhanden ist. Damit Intensität und Form des Ionenstrahls kontrolliert und gezielt optimiert werden können, werden an mehreren Stellen Strahlanalysesysteme (in der Abbildung nicht dargestellt) benötigt. Im einfachsten Fall kann es sich dabei um einen Faraday-Becher handeln. In dieser Arbeit wird ein leistungsfähiges Strahlanalysesystem vorgestellt (siehe Kapitel 4.3), dass zusätzlich einen Mikrokanalplattendetektor zur Strahlprofilmessung bereitstellt. Für die Spektroskopie wird ein kontinuierlicher Laserstrahl mit einer Leistung von einigen $100\text{ }\mu\text{W}$ über ein Fenster im *Brewster*-Winkel entweder von der kollinearen oder von der antikollinearen Seite in die Strahlstrecke eingekoppelt. Mithilfe des zuvor erwähnten Blendensystems kann die Überlagerung mit dem Ionenstrahl sichergestellt werden.

Ladungsaustauschzelle

Bei vielen Elementen ist es aufgrund der benötigten Laserwellenlänge günstiger die Spektroskopie an Atomen statt an Ionen durchzuführen. Die Ionen werden hierfür in einer sogenannten Ladungsaustauschzelle durch Ladungsaustauschreaktionen mit Alkalimetallen neutralisiert. Dies geschieht, indem der Ionenstrahl auf einer Strecke von mehreren Zentimetern durch den Dampf eines Alkalimetalls (Na, K, Rb, Cs) geleitet wird. Die Wahl des geeigneten Metalls hängt von dem Unterschied der Ionisationspotentiale der beiden Stoßpartner ab. Eine höhere Dichte im Alkalidampf führt zu einer höheren Neutralisationseffizienz aber gleichzeitig auch zu einer asymmetrischen Verbreiterung des Linienprofils der Resonanz, da vermehrt inelastische Stöße auftreten, bei denen die Ionen an kinetischer Energie verlieren. Im Experiment muss daher immer ein Kompromiss zwischen Neutralisationseffizienz und Linienform gefunden werden. Weitere Informationen zur Funktionsweise einer Ladungsaustauschzelle und ein Vergleich der Ladungsaustauschzelle des TRIGA-LASER Experiments mit einem alternativen Design findet sich in [Klo12]. Beim Ladungsaustausch können neben dem Grundzustand noch andere atomare Zustände bevölkert werden, aus denen heraus – falls sie ausreichend langlebig sind – ebenfalls Spektroskopie betrieben werden kann. Dies kann von Vorteil sein, reduziert aber häufig die Effizienz.

Optische Nachweisregion

In der optischen Nachweisregion wird das Fluoreszenzlicht des spektroskopierten Übergangs durch einen oder mehrere Photomultiplier detektiert. Streulicht des Laserstrahls, das beispielsweise an Kanten oder Blenden entsteht, die in den Laserstrahl hineinragen, führt zu einem vom Laserstrahl abhängigen unerwünschten Untergrund. Um ein möglichst gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erhalten, muss die Detektionseffizienz für die Fluoreszenzphotonen bei gleichzeitiger Unterdrückung der gestreuten Laserphotonen maximiert werden. Daher wird in der Regel ein Spiegelsystem zur Fokussierung der Fluoreszenzphotonen auf die aktive Fläche der Photomultiplier verwendet. Eine zusätzliche Blendenstrecke entlang der Strahlachse soll möglichst viele gestreute Photonen zurückhalten. Da die Transmissionseigenschaft eines Materials von der Wellenlänge abhängt, werden je nach Wellenlängenbereich unterschiedliche Spiegelmaterialien verwendet. Auch die Wahl des Photomultipliertyps muss ebenfalls der Energie der Photonen angepasst werden.

Für die Aufnahme eines Resonanzspektrums, werden für die Spektroskopie mit dem klassischen optischen Nachweis Ionenströme in der Größenordnung einiger 1000 Ionen/s benötigt.

Um den Untergrund weiter zu unterdrücken, kann der optische Nachweis durch eine Photon-Ion-Koinzidenzeinheit ergänzt werden. Ein gewünschtes Resonanzphoton wird vom Streulicht unterschieden, indem die Ionen nach dem Passieren des optischen Nachweises zum Beispiel mit einem Channeltron nachgewiesen werden. Das Ionensignal wird dann unter Berücksichtigung der Ionenflugzeit mit dem Signal des Photomultipliers in Koinzidenz geschaltet. Limitiert wird diese Technik durch isobare Verunreinigungen des Ionenstrahls, da ein detektiertes Isobar natürlich ebenfalls zur Öffnung eines Koinzidenzfensters führt und somit doch wieder Streulicht detektiert wird. Eine flexiblere Möglichkeit zur Unterdrückung des Untergrunds ist die Spektroskopie am gepulsten Ionenstrahl. Die Ionen werden hierzu für einige Millisekunden in einer linearen Paul-Falle gekühlt und gesammelt, bevor sie als *Ionenpaket* zur kollinearen Stahlstrecke weitergeleitet werden. Die Datenaufnahme wird in diesem Fall so geschaltet, dass nur dann Photonen detektiert werden, wenn sich tatsächlich Ionen in der optischen Nachweisregion befinden. Auch diese Koinzidenztechnik wird durch den Isobarenanteil im Ionenstrahl limitiert, aber erst dann, wenn der Anteil an Isobaren aufgrund der Raumladungseffekte keine effiziente Akkumulation der Ionen in der linearen Paul-Falle mehr zulässt.

Doppler-tuning

In Kapitel 2.4 wurde bereits dargelegt, dass die von den Ionen wahrgenommene Laserfrequenz über die Dopplerverschiebung von ihrer Geschwindigkeit abhängt. Um einen Übergang zu spektroskopieren, wird die Geschwindigkeit der Ionen durch Anlegen einer zusätzlichen variablen Beschleunigungsspannung durchgestimmt. Die Beschleunigungsspannung wird, wie in Abbildung 3.1 angedeutet, entweder an die Ladungsaustauschzelle oder an die Spiegel des optischen Nachweises angelegt. Aus diesem Grund sind die inneren Komponenten relativ zur äußeren Vakuumkammer isoliert. Um zu vermeiden, dass die Ionen bereits zuvor mit der Laserfrequenz in Resonanz sind und zum Beispiel dunkel gepumpt werden können, erfolgt das Nachbeschleunigen der Ionen erst kurz vor bzw. innerhalb des optischen Nachweises. Ob dies in der Ladungsaustauschzelle oder im optischen Nachweis geschieht, hängt davon ab, ob die Spektroskopie am Atom- oder Ionensystem erfolgt. Nach der Neutralisation lässt sich das Atom nicht mehr von elektrischen Feldern beeinflussen, also auch nicht mehr beschleunigen oder abbremsen. Somit muss die Endgeschwindigkeit bereits vor der Neutralisation erreicht sein und der optische Nachweis muss sich in möglichst geringem Abstand zu der Ladungsaustauschzelle befinden.

Die Hochspannungsversorgung des optischen Nachweises bzw. der Ladungsaustauschzelle ist sowohl am COLLAPS Experiment als auch am TRIGA-LASER Experiment nach dem gleichen Prinzip, das in Abbildung 3.1 dargestellt ist, aufgebaut. Die für das Doppler-tuning benötigte Spannung wird mit einer DAQ-Karte, deren Ausgangsspannung von ± 10 V mit einem linearen Spannungsverstärker um den Faktor 50 bzw. 100 verstärkt wird, erzeugt. Somit steht ein Scanbereich von $+500$ V bis -500 V bzw. $+1000$ V bis -1000 V zur Verfügung. Sowohl am TRIGA-LASER Experiment als auch am COLLAPS Experiment wird hierfür ein Kepco Spannungsverstärker (Kepco BOP 500 bzw. Kepco BOP 1000) verwendet. Um die Möglichkeit zu haben, zwischen einzelnen Isotopen zu wechseln, wird zusätzlich ein stabiles bipolares 10 kV Netzteil zur Erzeugung einer Offset-Spannung U_{Offset} verwendet. Daraus ergibt sich folgende relevante Gesamtspannung für die Dopplerverschiebung

$$U_{\text{Gesamt}} = U_{\text{Quelle}} - (U_{\text{Offset}} + f_{\text{Kepco}} \cdot U_{\text{DAQ}}) . \quad (3.1)$$

Da die effektive Frequenz im Resonanzspektrum direkt von der angelegten Spannung abhängt, ist es von Vorteil, wenn diese während des Experiments über einen Spannungsteiler möglichst genau gemessen wird. Für eine sehr präzise Bestimmung der Kerneigenschaften ist eine hohe Reproduzierbarkeit und Stabilität der beteiligten Netzgeräte und Verstärker essentiell. Bei der

Fehlerdiskussion in Kapitel 5 und 6 wird dies noch einmal genauer betrachtet werden.

3.2. Das TRIGA-LASER Experiment am TRIGA Reaktor in Mainz

Das kollineare Laserspektroskopie Experiment TRIGA-LASER bildet zusammen mit dem Penning-Fallen Experiment TRIGA-TRAP die TRIGA-SPEC Anlage am TRIGA¹ Forschungsreaktor an der Universität Mainz [Ket08]. Ziel der TRIGA-SPEC Experimente ist die präzise Bestimmung von Grundzustandseigenschaften neutronenreicher Nuklide, welche über neutroneninduzierte Spaltung von ²³⁵U, ²³⁹Pu oder ²⁴⁹Cf im Reaktor erzeugt werden. Für die kollineare Laserspektroskopie sind dabei die neutronenreichen Isotope der refraktären Elemente, wie Molybdän und Technetium, von besonderem Interesse. Mit dem TRIGA-TRAP Massenspektrometer sollen die Massen der Isotope, die für das Verständnis des schnellen Neutroneneinfangprozesses, dem sogenannten *r-Prozess*, relevant sind, bestimmt werden. Zusätzlich können über eine offline Ionenquelle langlebige Transuranisotope, wie etwa ²⁴¹Am [Ket10], vermessen werden.

Abbildung 3.2 zeigt eine schematische Darstellung des TRIGA-SPEC Experiments. Der Forschungsreaktor TRIGA hat eine stationäre thermische Leistung von 100 kW, kann aber auch gepulst mit einer maximalen Spitzenleistung von 250 MW betrieben werden. Zur Produktion der gewünschten Isotope wird ein dünnes Target aus spaltbaren Nukliden, wie zum Beispiel ²⁴⁹Cf oder ²³⁵U, in der unmittelbaren Nähe des Reaktorkerns platziert und somit einem Fluss an thermischen Neutronen von etwa $1.8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ausgesetzt. Die neutroneninduzierten Spaltprodukte werden anschließend über ein Gasjetsystem durch die Reaktorabschirmung in eine Ionenquelle transportiert [Ste80]. Dafür werden die Spaltprodukte innerhalb der Targetkammer in einem Trägergas (z.B. Stickstoff) abgebremst und von Aerosolteilchen, die z.B. aus Kaliumchlorid bestehen und eine Größe von typischerweise etwa 0.1-1 μm besitzen, aufgenommen. Der Transport zur Ionenquelle erfolgt anschließend durch eine 1-2 mm dünne Kapillare. Innerhalb der Ionenquelle werden die Aerosolteilchen mit den Spaltprodukten vom Trägergas separiert, aufgetrennt und die Radionuklide ionisiert [Ket08]. Zur Zeit wird eine Oberflächenionenquelle, die bereits früher zusammen mit einem Gasjetsystem für den HELIOS Separator betrieben wurde [Bru85], wieder aufgebaut und optimiert. Sie soll in einer nächsten Ausbaustufe in eine Plasmaionenquelle umgebaut werden. Die Ionen verlassen die Ionenquelle, die sich auf einer Hochspannungsplattform befindet, und werden gegen Massenspotential beschleunigt. Die Ionen mit einer Energie von etwa 30 keV werden anschließend mithilfe eines 90° Dipolmagneten massensepariert. Die Massenauflösung beträgt dabei etwa $m/\Delta m \approx 165$ [Bey13]. Anschließend werden die Ionen in einer linearen Paul-Falle, einem Radiofrequenz Quadrupol Kühler und Buncher (RFQ – engl. **r**adio**f**requency **q**uadrupole, to **b**unch – bündeln), gekühlt und gesammelt. Durch Stöße mit einem Puffergas verlieren die Ionen an longitudinaler und transversaler Energie. Radial werden sie durch ein Radiofrequenzwechselfeld und axial durch einen elektrischen Feldgradienten entlang der linearen Paul-Falle gefangen. Aus dem kontinuierlichen Ionenstrahl wird ein gepulster Ionenstrahl mit geringer transversaler Emittanz, einer Pulsbreite von 250 ns und bis zu 10^6 Ionen/Puls. Weitere Details zum Aufbau und der Charakterisierung des RFQs finden sich in [Bey13]. Ein gepulster Ionenstrahl ist bei den zu erwartenden Produktionsraten für beide Experimente essentiell. Bei der kollinearen Laserspektroskopie wird wie bereits beschrieben der laserinduzierte Untergrund maßgeblich reduziert. Für die Massenmessungen in der Penning-Falle muss die Energie der Ionen auf einige 100 eV reduziert werden. Dazu werden diese in einer gepulsten Laufzeitröhre (engl. pulse drift tube) abgebremst. Das Wechseln der elektrischen Felder in der Laufzeitröhre kann hierbei zeitlich auf die Ionenpulse abgestimmt werden, sodass

¹Training, Research, Isotopes, General Atomic

ein größerer Anteil der Ionen abgebremst wird und somit in den Fallen gefangen werden kann. Das TRIGA-TRAP Experiment besteht aus zwei Fallen, einer zylindrischen Reinigungsfalle und einer hyperbolischen Präzisionsfalle zur eigentlichen Massenmessung. Eine relative Genauigkeit von $\delta m/m = 10^{-6} - 10^{-7}$ wurde bereits demonstriert. Für weitere Details zum TRIGA-TRAP Experiment siehe [Ket08], [Ket10] und [Eib13].

Nach dem Verlassen des RFQs wird der Ionenstrahl über eine *Ionenweiche*, dem sogenannten

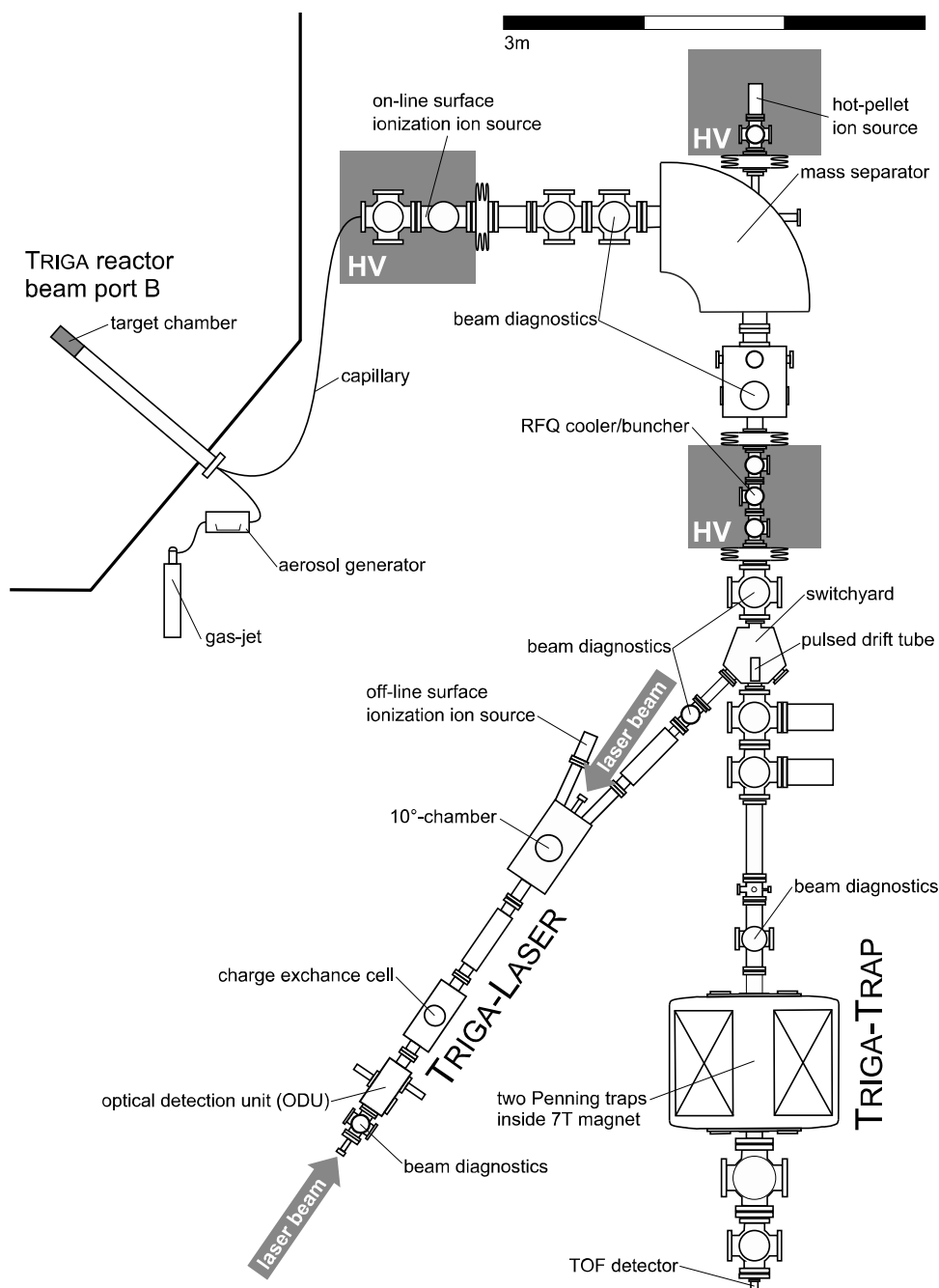


Abbildung 3.2.: Schematische Darstellung des TRIGA-SPEC Experiments. Details siehe Text. Diese Grafik wurde [Bey13] entnommen.

Swichyard, an eines der beiden Telexperimente weitergeleitet.

TRIGA-LASER Strahlstrecke

Die TRIGA-LASER Strahlstrecke besteht im Wesentlichen aus allen Elementen, die in Kapitel 3.1 diskutiert wurden. Die Ionen werden zunächst in der 10° Kammer durch statische Ablenkfelder mit dem Laserstrahl überlagert. Mithilfe von zwei Quadrupoldublets und zwei zusätzlichen Ablenkplattenpaaren kann der Überlapp zwischen Ionen- und Laserstrahl optimiert werden. Der Ionenstrahl passiert eine Ladungsaustauschzelle bevor er schließlich in den optischen Nachweis gelangt. Eine Blende, d.h. eine Metallplatte mit übereinander angeordneten Blendenöffnungen unterschiedlicher Größe, kann unmittelbar vor der Ladungsaustauschzelle vertikal in den Ionenstrahl gefahren werden. Eine zweite horizontal verfahrbare Blendenserie befindet sich direkt hinter dem optischen Nachweis. Beide Blenden sind ein wichtiges Hilfsmittel zur optimalen Ausrichtung des Ionenstrahls auf die Achse des Laserstrahls. Zusätzlich kann durch die Messung des über die Metallplatten abfließenden Stroms mit einem Picoampèremeter auch der Anteil des Ionenstrahls bestimmt werden, der die Blenden nicht passieren kann. Am Ende der Strahlstrecke befindet sich ein Strahlanalysesystem, bestehend aus einem Farraday-Becher und einer Mikrokanalplattendetektor mit eingebauten Phosphorschirm. Der Aufbau und die Charakterisierung des Strahlanalysesystems wird in Kapitel 4.3 ausführlich erläutert.

Für Testexperimente kann eine direkt an der TRIGA-LASER Strahlstrecke implementierte offline Ionenquelle verwendet werden. Die im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebaute Oberflächenionenquelle wird in Kapitel 4.1 ausführlich erläutert. Mit dieser Quelle kann ein stabiler Ionenstrahl von bis zu einigen 100 A erzeugt werden.

Für die Offset-Spannung U_{Offset} an der optischen Nachweisregion bzw. der Ladungsaustauschzelle wird ein bipolares Heinzinger PNChp10000 Hochspannungsnetzteil verwendet. Beide Spannungsnetzteile haben eine spezifizierte relative Langzeitstabilität von 10^{-5} . Über einen Julie Research Spannungsteiler mit einem Teilerverhältnis von 1 zu 1000 kann die Hochspannung mit einem Agilent Präzisionsmultimeter bei Bedarf gemessen werden. Die Spannung der 10 V 16-bit DAQ-Karte U_{DAQ} wird mit einem Kepco BOP 500 Spannungsverstärker verstärkt, sodass ein Scanbereich von ± 500 V zur Verfügung steht.

Der optische Nachweis des TRIGA-LASER Experiments besteht aus einem Spiegel mit elliptischem Querschnitt senkrecht zur Laserstrahlachse und einem sogenannten Compound-Parabolic-Concentrator [Ham10]. Letzterer ist ein Element der nichtabbildenden Optik und konzentriert die einfallenden Photonen auf die Photokathode eines dahinter installierten Photomultipliers. Die Akzeptanz des Konzentrators hängt stark vom Winkel des eintreffenden Lichtes ab, sodass mit diesem Streulicht effektiv unterdrückt werden kann – sofern es überwiegend aus anderen Winkelregionen stammt. Beide Spiegel, der elliptische Reflektor und der Konzentrator, sind mit Silber beschichtet und sind daher vom ultravioletten Bereich > 360 nm bis zum infraroten Wellenlängenbereich geeignet. Zur Zeit wird getestet, ob die Effizienz des Nachweises durch Verwendung eines mit Aluminium beschichteten Reflektors verbessert werden kann [Gor13]. In der Fokalebene des elliptischen Spiegels befindet sich zusätzlich eine Blende zur weiteren Unterdrückung des Streulichts. Die Wahl des Photomultipliertyps hängt von der Wellenlänge des spektroskopierten Übergangs ab. Für die Spektroskopie an Praseodymionen bei einer Wellenlänge von 391 nm (Kapitel 5.1) wurde ein SenseTech P25PC Photomultiplier mit einer Quanteneffizienz von mehr als 25 % im ultravioletten Bereich verwendet.

Als Lasersystem steht ein Ti:Sa-Laser (Sirah MATISSE TS), der von einem Festkörperlaser (Verdi V18 (Nd:YVO4)) bei einer Wellenlänge von 532 nm gepumpt wird, zur Verfügung. Die Stabilisierung erfolgt wahlweise auf ein High Finesse WS7 Wavemeter, das mit einem stabilisierten Helium-Neon Laser kalibriert werden kann, oder auf einen Frequenzkamm FC 1500

von Menlo Systems. Bei Bedarf kann die zweite Harmonische mit einem Tekhnoscan FD-SF-07 oder einem Spectra Physics Wavetrain Frequenzverdoppler erzeugt werden. Das gesamte Lasersystem befindet sich in einem separaten Laserlabor, um die für den Betrieb eines solchen Systems ungünstigen Bedingungen in der Reaktorhalle zu umgehen. Das Laserlicht wird über drei 150 m lange optische Fasern, eine für den roten und infraroten sowie zwei für den blauen und ultravioletten Wellenlängenbereich, zum Experiment in der Reaktorhalle transportiert. Die verschiedenen Lasersysteme sind in [Kri12] ausführlich beschrieben.

3.3. Das COLLAPS Experiment an ISOLDE am CERN

Die Spektroskopie an radioaktiven Praseodymionen und Cadmiumatomen im Rahmen dieser Arbeit wurde am kollinearen Laserspektroskopie Experiment COLLAPS² an dem on-line Isotopenseparator ISOLDE am CERN³ durchgeführt. An ISOLDE werden Radionuklide über induzierte Kernspaltung, Spallation oder Fragmentation erzeugt, indem Protonen vom Proton-Synchrotron Booster (PSB) mit einer Energie von bis zu 1.4 GeV und einer Intensität von 2 μ A auf ein dickes Target, zum Beispiel aus Urancarbid (UC_x), beschleunigt werden [ISO13]. Welche Radionuklide hierbei erzeugt werden, hängt vom gewählten Targetmaterial und der Energie des eintreffenden Protonenstrahls ab. Die Ionisation der Reaktionsprodukte erfolgt in einer direkt an das Target angeschlossenen Ionenquelle. Momentan werden an ISOLDE je nach gewünschtem Element drei verschiedene Quellentypen verwendet: eine Oberflächenionenquelle, eine Plasmaionenquelle sowie die resonante Laserionenquelle RILIS⁴. Im Gegensatz zu den beiden anderen Ionisationsmechanismen ist die resonante Laserionisation elementselektiv und somit sehr effektiv bei der

²Collinear Applied Spectroscopy

³European Organisation for Nuclear Research

⁴resonant ionisation laser ion source

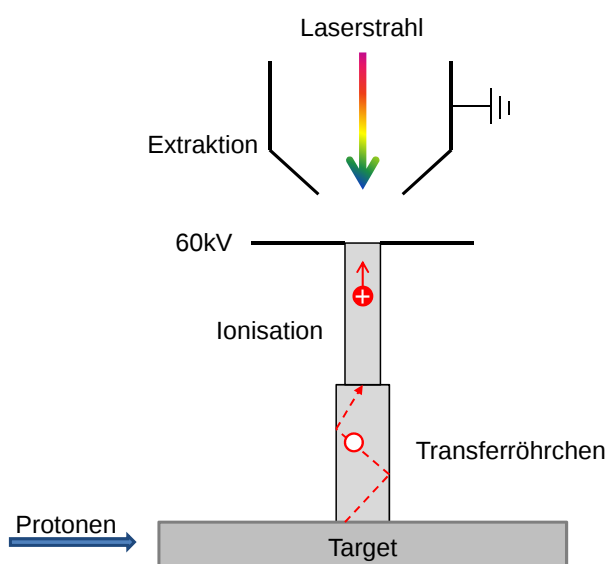


Abbildung 3.3.: Prinzipieller Aufbau der resonanten Laserionenquelle RILIS an ISOLDE gemäß [ISO13]. Über ein geheiztes Transferröhrchen gelangen die Radionuklide in die Ionisationsregion, in welcher sie ionisiert werden. Die Ionenquelle liegt gegenüber der Extraktion auf einem Potential von bis zu 60 kV.

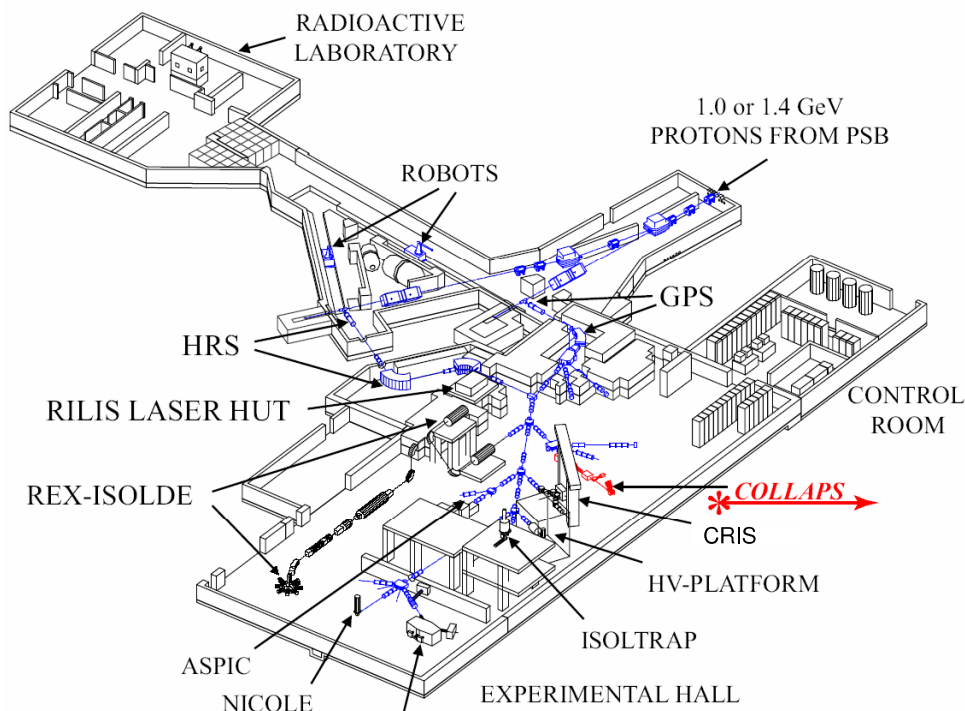


Abbildung 3.4.: ISOLDE Experimentierhalle am CERN. Nach der Massenseparation im GPS oder HRS Massenseparator wird der Ionenstrahl über eine gemeinsame Strahlstrecke an die verschiedenen Experimente geleitet.

Unterdrückung ungewünschter Isobare. In Abbildung 3.3 ist der prinzipielle Aufbau der Laserionenquelle, die für die Erzeugung der Cadmiumionen verwendet wurde, gemäß [ISO13] skizziert. Über das heiße Transferröhrchen gelangen die Radionuklide in die Ionisationsregion, in welcher sie über mehrere resonante Anregungsschritte mit gepulsten Laserstrahlen ionisiert werden. Für jedes Element wird dabei ein auf seine elektronische Struktur speziell angepasstes Anregungsschema verwendet. Der Grundaufbau der für die Erzeugung der Praseodymionen verwendeten Oberflächenionenquelle ähnelt der Laserionenquelle. Die Ionisation erfolgt hier an der Oberfläche des Ionisationsröhrchens, welches je nach verwendetem Material auf eine Temperatur von bis zu 2400 °C geheizt werden kann. Zur Beschleunigung der Ionen befindet sich die Ionenquelle gegenüber der Strahlstrecke auf einem Hochspannungspotential von bis zu 60 kV.

Die ISOLDE Anlage besitzt zwei separate Targetstationen mit sich jeweils anschließenden magnetischen Massenseparatoren, dem **g**eneral **p**urpose mass **s**eparator GPS mit einer Massenauflösung von $m/\Delta m \approx 2400$ und dem **h**igh-**r**esolution mass **s**eparator HRS mit $m/\Delta m \approx 10000$ (siehe Abbildung 3.4). Der HRS Zweig verfügt zusätzlich über einen Radiofrequenz Quadrupol RFQ zum Bündeln des Ionenstrahls. Über eine gemeinsame Strahlstrecke wird der Ionenstrahl anschließend – wie in Abbildung 3.4 dargestellt – an die verschiedenen Experimente geleitet.

COLLAPS Strahlstrecke

Seit dem Aufbau in den frühen 80er Jahren [Neu81] wurde das COLLAPS Experiment stetig weiterentwickelt und optimiert. Die jüngste Anpassung erfolgte mit einer neuen optischen Nachweisregion, die ursprünglich für die Spektroskopie an Kalium konzipiert und dafür auch erstmals eingesetzt wurde [Kre13]. Während für die Spektroskopie an Praseodym noch der alte optische

Nachweis verwendet wurde, konnte für Cadmium bereits der neue Nachweis benutzt werden. Der alte optische Nachweis verfügte über zwei nebeneinander angebrachte Photomultiplier und einen zylindrischen Spiegel auf der gegenüberliegenden Seite zur Reflexion des Fluoreszenzlichts. Die Fokussierung auf die Photomultiplier erfolgte mit zwei sphärischen Linsen. Der neue optische Nachweis hingegen besitzt je zwei Photomultiplier auf jeder Seite. Das Fluoreszenzlicht wird jeweils durch ein Teleskop, bestehend aus zwei asphärischen Linsen, auf die Photomultiplier fokussiert. Der vom Laserlicht stammende Untergrund konnte so auf durchschnittlich 1000 cts/(s mW) reduziert und gleichzeitig die Effizienz erhöht werden. Ausführlichere Details können [Kre13] entnommen werden.

Zur Erzeugung der Scanspannung (siehe Gleichung 3.1) stehen am COLLAPS Experiment zwei lineare Spannungsverstärker mit verschiedenen Verstärkungsfaktoren f_{kepcos} zur Verfügung: ein Kepco BOP 1000 sowie ein Kepco BOP 500. Für die Spektroskopie an Praseodym wurde der Kepco Bop 1000 Spannungsverstärker und für Cadmium der Kepco Bop 500 Spannungsverstärker verwendet. Die mit einem bipolaren 10 kV FLUKE 410B Spannungsnetzteil erzeugte Offset-Spannung U_{Offset} wird jeweils zu Beginn eines neuen Scans über einen Julie Research KV-10R Spannungsteiler mit einem PREMA Präzisionsmultimeter vermessen. Das Teilverhältnis des Spannungsteilers beträgt 1 zu 1000.0(1). Bei der Kalibration der ISOLDE Ionenquellenspannung mithilfe eines hochpräzisen Spannungsteilers wurde festgestellt, dass die tatsächlich anliegende Spannung kleiner als die mit dem Messprogramm aufgenommene Spannung ist [Kri11]. Bei der Auswertung ist daher der Wert für die Quellenspannung U_{Quelle} entsprechend korrigiert worden.

4. Aufbau einer offline Ionenquelle und eines Strahlanalysesystems für TRIGA-LASER

Dieses Kapitel befasst sich mit dem Aufbau und der Temperatureichung einer neuen offline Oberflächenionenquelle für das TRIGA-LASER Experiment. Die Quelle ermöglichte die Spektroskopie an stabilen Praseodymionen, da mit ihr höhere Temperaturen erreicht werden können als mit der alten Ionenquelle.

Im Anschluss wird ein Strahlanalysesystem vorgestellt, das die Möglichkeit bietet, einen Ionenstrahl sowohl integral als auch orts aufgelöst zu analysieren. Mithilfe eines neu eingebauten Strahlabschwächers und der offline Ionenquelle wurde der zugehörige Mikrokanalplattendetektor kalibriert.

4.1. Offline Ionenquelle für TRIGA-LASER

Für erste Testmessungen an der TRIGA-LASER Strahlstrecke wurde eine alte Oberflächenionenquelle zur Erzeugung eines Rubidiumionenstrahls verwendet [Krä10]. Aufgrund des Designs eignet sich diese jedoch nur für Temperaturen bis etwa 2000 °C [Gep00]. Der Vergleich der Dampfdruckkurven von Praseodym, des Erdalkalimetalls Calcium und des Alkalimetalls Rubidium in Abbildung 4.1 zeigt, dass die Dampfdruckkurve von Praseodym wesentlich flacher verläuft als die der beiden anderen Elemente [Hon69]. Obwohl die Schmelztemperatur ϑ_S von Praseodym nur etwa 100 °C höher liegt als die des Calciums werden Temperaturen von weit über 2000 °C benötigt, um einen ähnlichen Dampfdruck wie in Calcium bei 1000 °C zu erzeugen.

Neben dem Dampfdruck muss noch die Ionisationswahrscheinlichkeit des Materials an der heißen Oberfläche der Quelle betrachtet werden, um die Effizienz der Quelle zur Erzeugung eines Ionenstrahls abzuschätzen. Das Verhältnis von Oberflächenionen n_+ zu neutralen Atomen n_0 eines abgedampften Probenmaterials kann mithilfe der *Saha-Langmuir* Gleichung

$$\frac{n_+}{n_0} = \frac{g_+}{g_0} \exp\left(\frac{W_A - E_{IP}}{k_B T}\right) \quad (4.1)$$

angegeben werden [Cop35]. Hierbei bezeichnet W_A die Austrittsarbeit des Oberflächenmaterials, E_{IP} die zur einfachen Ionisation des Probenmaterials benötigte Energie, k_B die Boltzmannkonstante, g_+ und g_0 die statistischen Gewichte der ionischen und atomaren Zustände. Aus Gleichung 4.1 ergibt sich eine Ionisationswahrscheinlichkeit in der gesamten Probe von

$$\frac{n_+}{n_+ + n_0} = \left(1 + \frac{n_0}{n_+}\right)^{-1} = \left(1 + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{E_{IP} - W_A}{k_B T}\right)\right)^{-1}. \quad (4.2)$$

Im Wesentlichen wird diese von der Differenz zwischen Ionisationspotential E_{IP} und Austrittsarbeit W_A sowie der Temperatur T bestimmt. Für Elemente mit kleiner Ionisationsenergie wie zum Beispiel Rubidium werden daher schon sehr hohe Ionisationseffizienzen bei relativ kleinen Temperaturen erreicht. Das Ionisationspotential von Praseodym beträgt 5.5 eV und ist damit kleiner als das von Calcium mit 6.1 eV. Als Material für die Oberflächenionenquelle wurde Graphit gewählt, da dieses ausreichend temperaturbeständig ist und sich im Vergleich zu Tantal oder

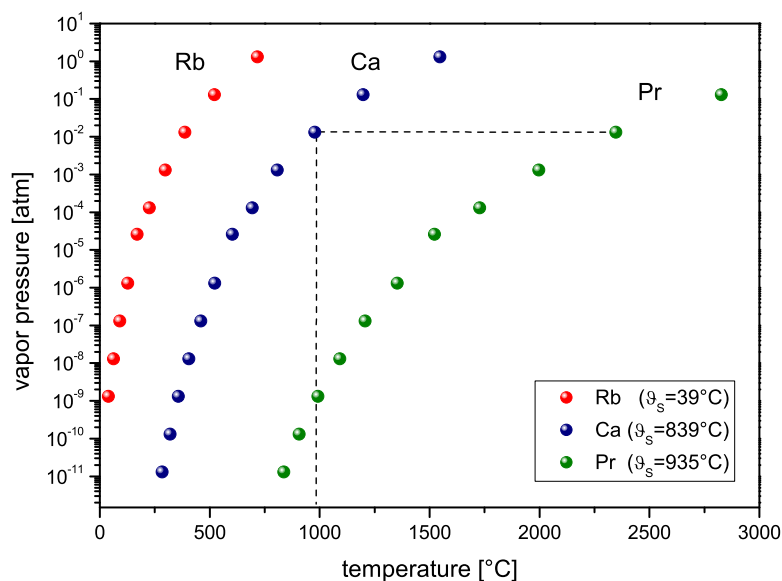


Abbildung 4.1.: Dampfdruckkurven von Rubidium, Calcium und Praseodym nach [Hon69]. Die Dampfdruckkurve von Praseodym verläuft viel flacher als die des Calciums. Daher sind wesentlich höhere Temperaturen in der Quelle zur Erzeugung eines intensiven Ionenstrahls erforderlich.

Wolfram besser verarbeiten lässt. Die Austrittsarbeit von Graphit ist sehr stark abhängig von Materialeigenschaften wie der Dichte und beträgt etwa 5 eV. Aufgrund der hohen Temperatur, die zur Verdampfung von Praseodym erforderlich ist, sollten genügend viele Praseodymatome an der Oberfläche ionisiert werden.

Die offline Ionenquelle besteht im Kern aus einem widerstandsgeheiztem Graphitröhrchen, in welches das zu ionisierende Element zum Beispiel – im Fall von Praseodym – als Nitratverbindung gefüllt wird. Der Aufbau der Ionenquelle orientiert sich im Wesentlichen am Aufbau der MABU-Quelle [Rae10]. Die Dimensionen wurden den Gegebenheiten am TRIGA-LASER Experiment angepasst. Die gesamte Quelle ist gerade so lang, dass der gleiche Abstand zwischen Extraktionsoptik und Ionenquelle erreicht wird wie bei der alten Quelle. Somit sind die Simulationen des Ionenstrahls aus [Krä10] weiterhin gültig. Abbildung 4.2 zeigt eine technische Zeichnung der Oberflächenionenquelle. Ein entsprechendes Foto der Quelle ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Zur Strom Zu- und Abführung werden drei massive Kupferdurchführungen (a) mit jeweils einem Durchmesser von 19 mm verwendet, die in einen ISO K 100 Flansch eingeschweißt wurden. Zwei der Stromdurchführungen sind über ein Tantalblech (b) miteinander verbunden. Dieses Blech hat eine runde Aussparung, in welche das Graphitröhrchen (c) mittels einer Tantalfeder (d) gedrückt wird. Hierzu werden mehrere Blechstücke unterschiedlicher Länge mit einer Dicke von 0.125 mm verwendet. Sie sollen einen permanenten Kontakt des Graphitröhrchens mit dem Tantalblech gewährleisten. Über die dritte etwas verkürzte Kupferdurchführung fließt der Strom schließlich zurück zum Heiznetzgerät. Das Graphitröhrchen hat eine Länge von 50 mm und einen Außendurchmesser von 4.3 mm. Es handelt sich hierbei um baugleiche Röhrchen, wie sie in der MABU-Quelle verwendet werden [Rae10]. Zusätzlich befindet sich an der Frontseite der Ionenquelle ein Hitzeschild (e), um die Wärmeabstrahlung in Richtung der Ionenoptik zu unterdrücken. Durch zwei zusätzliche zylindrische Hitzeschilde (f), einem stabilen 1 mm dicken Tantalzylinder und mehreren Lagen dünner Tantalfolie, rund um das Graphitröhrchen wird

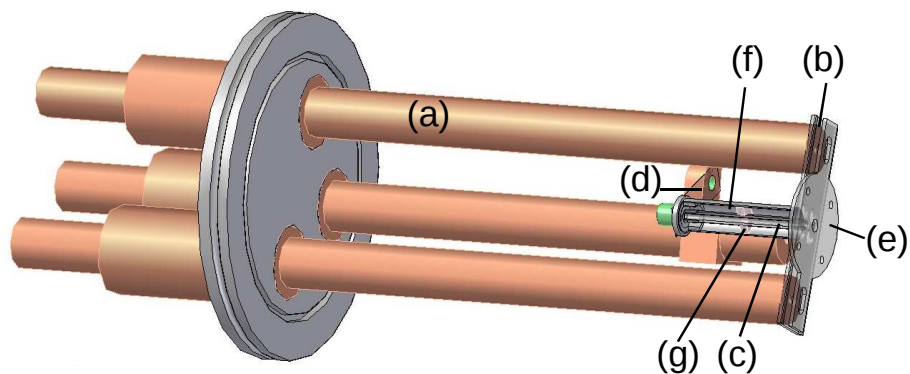


Abbildung 4.2.: Technische Zeichnung der Oberflächenionenquelle

- (a) Kupferdurchführungen zur Zu- und Abführung des Heizstroms,
- (b) Verbindungsblech aus Tantal, (c) Graphitröhrchen, (d) Tantalfeder,
- (e) Fronthitzeschild aus Tantal, (f) zylindrisches Hitzeschild um das Graphitröhrchen, (g) Abstandshalter aus Bornitrid zwischen Graphitröhrchen und Hitzeschild. Weitere Details siehe Text.

die Temperatur in diesem nochmals um einige hundert Grad Celsius erhöht. Als Abstandshalter zwischen Graphitröhrchen und Tantalblech dient eine kreisrunde, mehrere Millimeter dicke Scheibe aus Bornitrid (g). Um eine Überhitzung der Kupferdurchführungen zu vermeiden, werden diese auf der Luftseite gekühlt. Hierzu wird ein nichtleitendes Öl, das extern von einem handelsüblichen Chiller gekühlt wird, durch Kupferwendel geleitet. Zusätzlich werden noch zwei Ventilatoren zur äußeren Kühlung des Keramikisolators verwendet.

Abbildung 4.4 zeigt ein Blockschaltbild der offline Quelle. Die gesamte Quelle befindet sich gegenüber der Extraktionsoptik, welche aus mehreren ringförmigen Einzelelektroden besteht, und der restlichen Strahlstrecke auf einem positiven Hochspannungspotential von etwa 10 kV. An der zweiten Elektrode der Extraktionsoptik liegt dabei eine Spannung von etwa 7 kV an, sodass sie zusammen mit den geerdeten ersten und dritten Elektroden eine Einzellinse zur Kollimation des



Abbildung 4.3.: Fotos der Oberflächenionenquelle

- links: (a) Kupferdurchführungen zur Zu- und Abführung des Heizstroms,
- (b) Verbindungsblech aus Tantal, (c) Graphitröhrchen, (d) Tantalfeder,
- (e) Fronthitzeschild aus Tantal. Weitere Details siehe Text.
- rechts: glühende Quelle bei einer Temperatur von etwa 1800 °C.

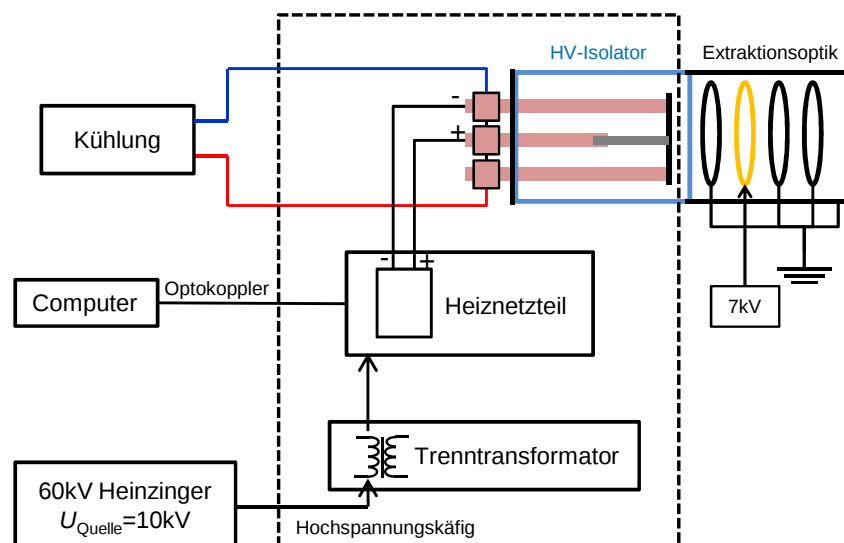


Abbildung 4.4.: Blockschaltbild der TRIGA-LASER offline Ionenquelle. Details siehe Text.

Ionenstrahls bildet. Die Beschleunigungsspannung $U_{\text{Quelle}} = 10 \text{ kV}$ (vergleiche Gleichung 3.1) wird von einem Heizinger PNChp60000 Hochspannungsnetzteil erzeugt. Die Ionenquelle und das zugehörige 100 A Heiznetzteil, das über einen Tauscher HTT-25F Trenntransformator angeschlossen ist, befinden sich innerhalb eines Hochspannungskäfigs. Die Ansteuerung des Heiznetzteils erfolgt über einen Optokoppler von außerhalb mit einem Computer. Für die Isolation zur Strahlstrecke wird ein massiver HV-Keramikisolator mit einem Innendurchmesser von 150 mm verwendet.

Das rechte Foto in Abbildung 4.3 zeigt die Ionenquelle während des Betriebs bei etwa 1800 °C. Am Glühen ist zu erkennen, dass wie gewünscht am Graphitröhrchen der Widerstand am größten ist und somit die höchste Temperatur erreicht wird. Mithilfe eines Glühfadenpyrometers wurde eine Temperatureichung der Oberflächenionenquelle durchgeführt. In Abbildung 4.5 ist die ermittelte Temperatur in Abhängigkeit des Heizstroms aufgetragen. Die zugehörige Leistung $P = U \cdot I$ wurde in der oberen x -Achse ergänzt. Sie steigt nichtlinear, da mit steigendem Strom I auch der Spannungsabfall U am Graphitröhrchen ansteigt. Weil die Verwendung des Glühfadenpyrometers einen subjektiven Farbgleich erfordert, wurde die Messung mit drei Probanden durchgeführt und anschließend gemittelt. Die eingezeichneten Fehlerbalken ergeben sich entsprechend. Die Quelle wurde erstmals für die Spektroskopie an stabilem Praseodym verwendet (siehe Kapitel 5.1). Hierbei hat sich gezeigt, dass ein Strom von etwa 85 A bzw. eine Temperatur von etwa 2300 °C ausreicht, um einen hinreichend intensiven Ionenstrom von einigen 100 pA zu erzeugen. Trotz der hohen Temperaturen war der erzeugte Ionenstrom über einen Messzeitraum von sechs Stunden stabil.

4.2. Strahlabschwächer

Um die Möglichkeit zu haben, den mit der TRIGA-LASER offline Ionenquelle erzeugten Ionenstrahl gezielt abzuschwächen, wurde unmittelbar hinter der Ionenoptik ein Strahlabschwächer eingebaut. Er besteht aus zwei Aluminiumhalterungen, zwischen die zwei verschiedene Abschwächerfolien, teiltransparente Metallgitter bzw. Gewebe, mit je einem Durchmesser von 2 cm geklemmt werden können (siehe Abbildung 4.6). Der Strahlabschwächer kann von außen mit

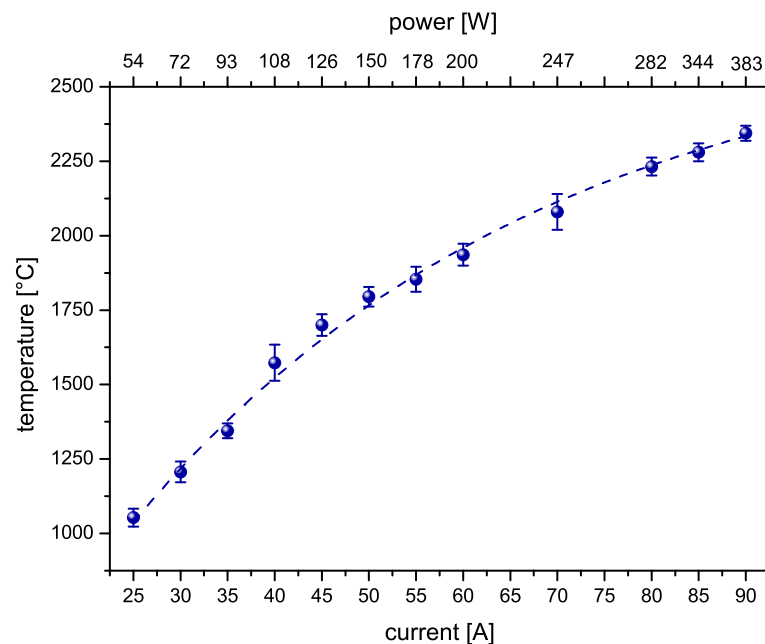


Abbildung 4.5.: Temperatureichung der offline Ionenquelle als Funktion des Heizstroms. Die zugehörigen Leistungen P sind in der oberen x -Achse eingetragen. Die Leistung steigt nichtlinear, da mit steigendem Strom I auch der Spannungsabfall U über dem Graphitröhrchen steigt. Die Temperaturen wurden mithilfe eines Glühfadenpyrometers bestimmt.

einer Lineardurchführung in den Ionenstrahl eingebracht werden. Er ist gegen die Durchführung mit einem Plastikstück isoliert und mit einem Kupferdraht, der an eine Stromdurchführung angeschlossen ist, leitend verbunden. Die Ionen, die die Abschwächerfolie nicht passieren, können über den Draht abfließen und mit einem Picoampèremeter gemessen werden.

Im Rahmen einer Bachelorarbeit wurde der Transmissionsgrad für vier verschiedene Abschwächerfolien bestimmt [Web12]: 41.4(6) %, 16.7(3) %, 1.0(1) % und 0.7(1) %. Hierzu wurde jeweils die Stromstärke des abgeschwächten und des nicht abgeschwächten Ionenstrahls bei entsprechend hohen Strömen mithilfe eines Farraday-Bechers (FC – engl. **F**arraday-**C**up) gemessen. Es kann ein genügend großer Bereich abgedeckt werden, um den Ionenstrahl für die Kalibration des Mikrokanalplattendetektors des Strahlanalysesystems hinreichend abzuschwächen.

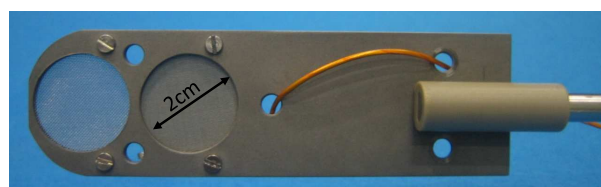


Abbildung 4.6.: Strahlabschwächer mit der Möglichkeit zwei verschiedene Abschwächerfolien von je 2 cm Durchmesser in den Ionenstrahl zu platzieren.

4.3. Strahlanalysesystem für TRIGA-SPEC

Um einen Ionenstrahl effektiv zum Experiment leiten zu können, ist es hilfreich wenn seine räumliche Ausdehnung und seine Stärke an verschiedenen Stellen gemessen und kontrolliert werden können. Hierzu wurden im Rahmen dieser Arbeit und [Bey14] am TRIGA-SPEC Experiment drei identische Strahlanalysesysteme eingebaut: hinter dem Massenseparator, hinter dem RFQ und am Ende der TRIGA-LASER Strahlstrecke (vergleiche Abbildung 3.2). Die weiter unten beschriebenen Kalibrationsmessungen des Mikrokanalplattendetektors wurden an der TRIGA-LASER Strahlstrecke durchgeführt.

Das in diesem Kapitel beschriebene System lehnt sich an ein Design des Kernfysisch Versneller Instituut der Uni Groningen für die HITRAP Anlage an dem GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung in Darmstadt an [Fed13].

Das Strahlanalysesystem besteht aus einem Faraday-Becher und einem Mikrokanalplattendetektor (MCP – engl. **m**icro **c**hannel **p**late) mit integriertem Phosphorschirm (siehe Abbildung 4.7). Während der Farraday-Becher (a) verwendet werden kann, um Ionenströme von mindestens etwa 1 pA zu messen, wird der MCP (b) für schwache Ströme im Femtoampère-Bereich benötigt. Über den Phosphorschirm des MCPs kann die räumliche Verteilung des Ionenstrahls analysiert werden. Die beiden Detektoren sind auf einem verfahrbaren Schlitten montiert, welcher per Hand oder mit einem Motor in den Ionenstrahl gefahren werden kann. Hinter dem MCP ist ein Spiegel (Abbildung 4.7(c)) im Winkel von 45° montiert, um das Bild des Phosphorschirms durch ein Vakuumfenster mit einer CCD-Kamera beobachten zu können.

Bei dem MCP handelt es sich um einen MCP in Chevron-Konfiguration, d.h. zwei im Winkel von 180° zueinander gedrehten Mikrokanalplatten zur Erhöhung des Verstärkungsfaktors, mit einem direkt montierten Phosphorschirm vom Typ P-43. Der aktive Durchmesser des MCPs und des Phosphorschirms beträgt 25 mm. Während des Betriebs wird am Eingang des MCPs eine negative Hochspannung angelegt und der Ausgang des MCPs geerdet. Der Phosphorschirm dient

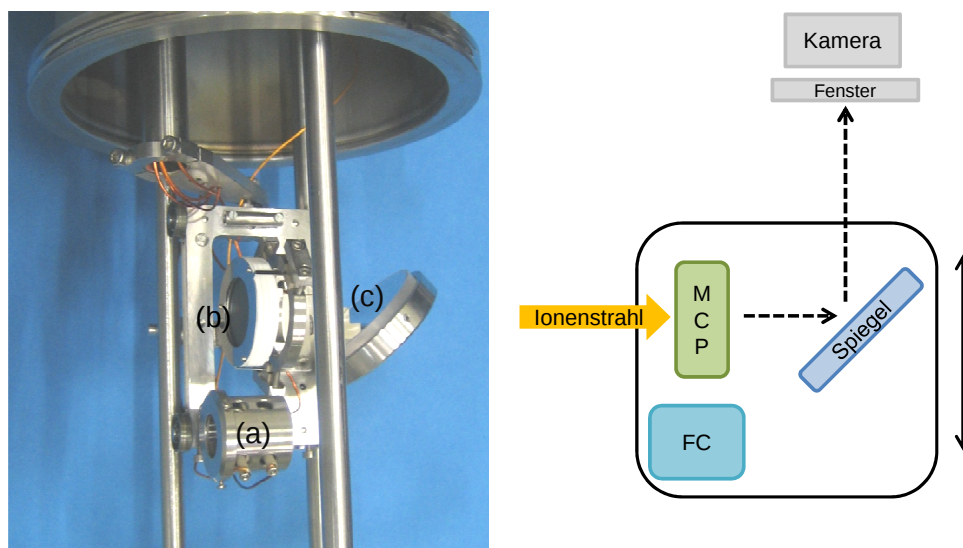


Abbildung 4.7.: Strahlanalysesystem für TRIGA-SPEC: Mithilfe eines Motors kann entweder der Faraday-Becher (a) oder der MCP (b) in den Ionenstrahl gefahren werden. Über den Spiegel (c) kann das Bild des Phosphorschirms von außen mit einer Kamera beobachtet werden.

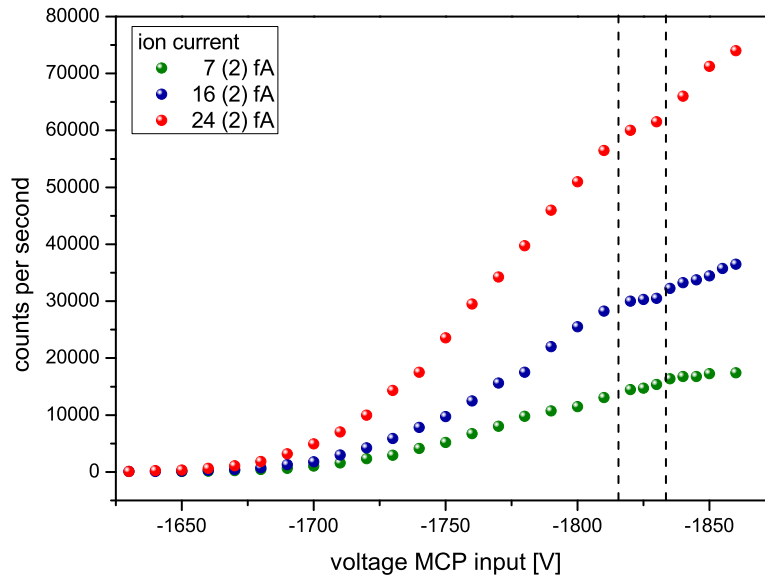


Abbildung 4.8.: Messung der Signalrate in Abhängigkeit von der Eingangsspannung des MCPs bei unterschiedlichen Ionenströmen zur Bestimmung der Arbeitsparameter. Die am Phosphorschirm angelegte Spannung betrug +1260 V.

als Anode und liegt auf positivem Potential. Trifft ein Ion auf den MCP, so werden Elektronen herausgelöst, im MCP vervielfacht und der generierte Elektronenpuls aufgrund der angelegten Spannungen zum Phosphorschirm beschleunigt. Beim Auftreffen auf den Schirm lösen die Elektronen dort Phosphoreszenzleuchten aus. Das Generieren des Elektronenpulses führt zu einem kurzzeitigem Spannungseinbruch zwischen Eingang und Ausgang des MCPs. Dieser Spannungseinbruch wird als elektronisches Signal kapazitiv ausgekoppelt. Das Signal wird anschließend verstärkt, diskriminiert und in ein TTL-Signal umgewandelt, welches mit einem PC über eine Counter-Karte erfasst wird. Die ursprüngliche Signalthöhe hängt hierbei von der am MCP angelegten Spannung ab. Mit zunehmender Spannung steigt die Signalrate (bei einer festen Anzahl eintreffender Ionen) an, bis sie ein Plateau erreicht. Die Signalthöhe ist nun groß genug, sodass theoretisch jedes eintreffende Ion registriert wird. Der MCP arbeitet daher in diesem Bereich linear.

Um die Arbeitsparameter des MCPs zu bestimmen, wurde mit der offline Ionenquelle ein Calciumionenstrahl erzeugt und dieser mit dem Strahlabschwächer in den Femtoampère-Bereich abgeschwächt. Um einer eventuellen Beschädigung des Phosphorschirms vorzubeugen, wurde für diesen eine Spannung von +1260 V gewählt. Anschließend wurde die Spannung am Eingang des MCPs sukzessive erhöht und die Signalrate bestimmt. Abbildung 4.8 zeigt das Ergebnis dieser Messung für drei verschiedene Ionenströme. Da die Signalrate zeitlich leicht schwankte, wurde jeweils die minimale und die maximale Signalrate aufgenommen und deren Mittelwert gebildet. Daraus ergab sich auch eine grobe Abschätzung der Fehler, welche allerdings zu klein sind, um in Abbildung 4.8 sichtbar zu sein. Bei etwa -1815 V bis -1830 V ist ein schwach ausgeprägtes Plateau zu erkennen. Daraus wurde für die Zukunft eine Arbeitsspannung von -1825 V festgelegt. Dies entspricht in etwa dem Wert des Herstellers, der eine Spannung von -1800 V empfiehlt. Der eigentlich typische exponentielle Anstieg des Ionenstroms bei Spannungen oberhalb des Plateaus wurde nicht beobachtet. Es ist daher durchaus möglich, dass das eigentliche Plateau erst bei höheren Spannungen auftritt. Aufgrund der Herstellerempfehlung von maximal

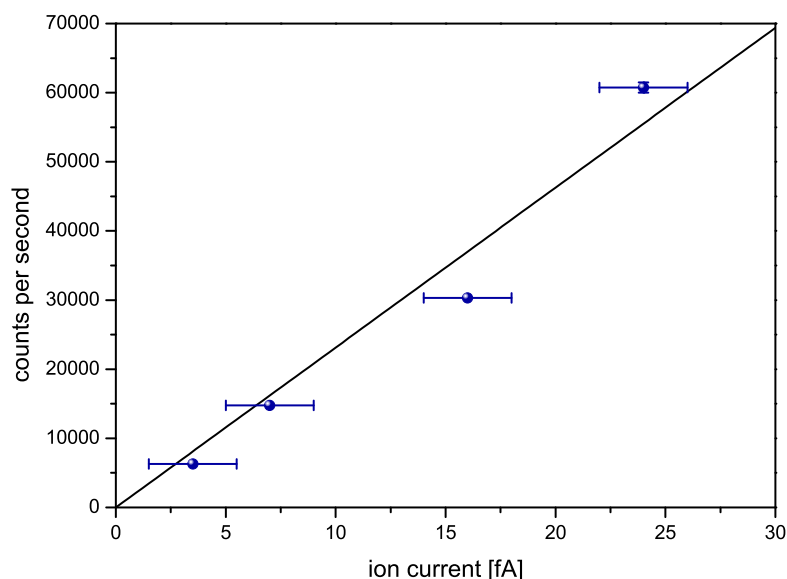


Abbildung 4.9.: Messung der Signalrate in Abhängigkeit vom auftreffenden Ionenstrom zur Kalibration des MCPs. Die eingezeichnete lineare Anpassung hat eine Steigung von 2100(200) cts/fA.

2000 V sowie der langen Lieferzeiten und hohen Kosten der verwendeten MCPs wurde auf das Anlegen von Spannungen größer als 1900 V jedoch verzichtet.

Der unabgeschwächte Ionenstrom wurde während der zuvor beschriebenen Messungen mit einem Faraday-Becher gemessen, sodass der tatsächliche eintreffende Ionenstrom über den Transmissionsgrad der verwendeten Abschwächerfolie (0.7(1) %) (siehe Kapitel 4.2) bestimmt werden konnte. Dies ermöglicht eine Kalibration des MCPs bzw. die Bestimmung seiner Effizienz (siehe Abbildung 4.9). Die eingezeichneten Fehler des Ionenstroms ergeben sich aus den Ablesungenauigkeiten des Picoampèremeters und dem Fehler des Transmissionsgrads. Die eingezeichnete lineare Anpassung hat eine Steigung von 2100(200) cts/fA. Da ein Strom von 1 fA rund 6200 einfach positiv geladenen Ionen entspricht, ergibt sich somit für den MCP eine Nachweiseffizienz von 34(3) %, d.h. jedes dritte Ion wird nachgewiesen. Falls die am MCP angelegten Spannungen nicht optimal gewählt sind, könnte eine etwas höhere Effizienz erreichbar sein. Für die hier beschriebene Anwendung ist die erreichte Effizienz aber ausreichend.

Abbildung 4.10 zeigt beispielhaft zwei Bilder des Phosphorschirms aufgenommen mit der CCD-Kamera für besonders gut optimierte Ionenstrahlen von etwa 80 fA (oben) und 5.5 fA (unten). Für einen besseren Kontrast sind die Bilder in Falschfarben dargestellt. Zusätzlich ist der Umriss der aktiven Fläche des MCPs mit einem Durchmesser von 25 mm gestrichelt eingezeichnet. Daraus lässt sich ableiten, dass der Durchmesser der Ionenstrahlen am Ende der TRIGA-LASER Strahlstrecke in diesen beiden Fällen etwa 1 cm beträgt. Zudem fällt auf, dass die Ionenstrahlen nicht exakt mittig auf den MCP treffen. An den Profilschnitten auf der rechten Seite ist zu erkennen, dass die Ionenstrahlen jeweils sowohl in x als auch in y Richtung annähernd gaußförmig sind. Für den schwächeren Ionenstrahl wurde der Strahlabschwächer verwendet. Ein Vergleich der beiden Aufnahmen zeigt, dass das Strahlprofil nicht von den Abschwächerfolien verändert wird.

Das Strahlanalysesystem kann nun verwendet werden, um auch sehr schwache Ionenströme quantitativ und räumlich zu analysieren und ist somit ein wichtiges Hilfsmittel bei der Optimierung

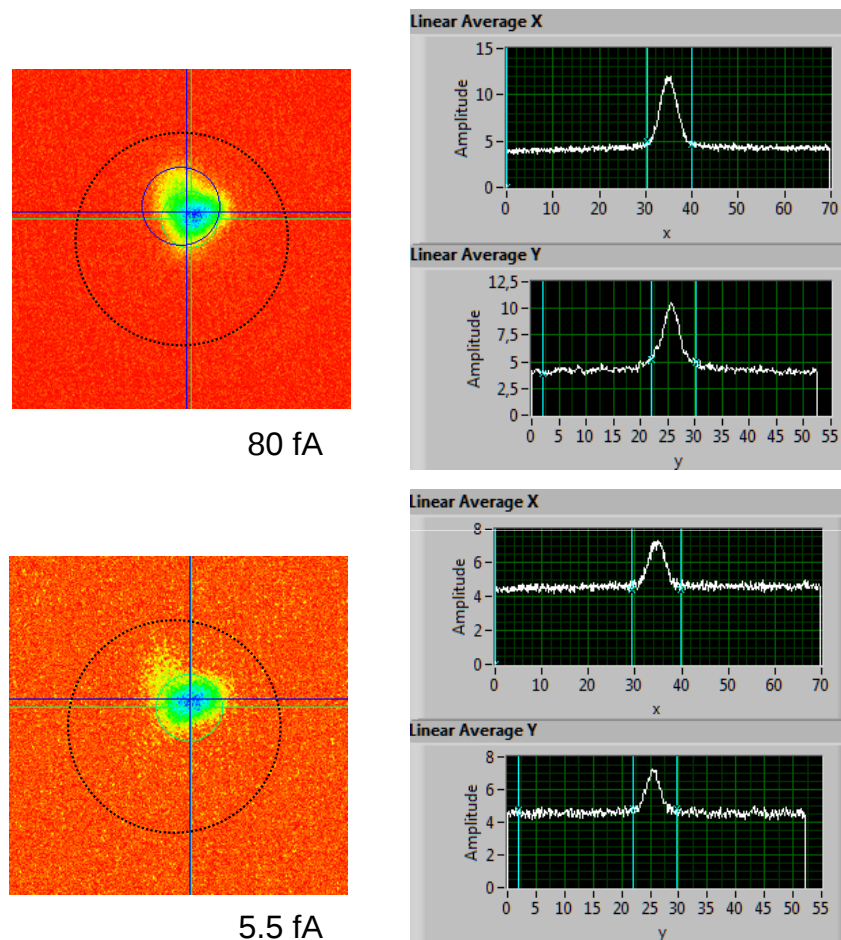


Abbildung 4.10.: Aufnahmen eines Ionstrahls von etwa 80 fA (oben) und etwa 5.5 fA (unten). Zur besseren Orientierung ist der Umriss der aktiven Fläche des MCPs gestrichelt eingezeichnet. Die Ionenstrahlen haben einen Strahldurchmesser von etwa 1 cm und sind sowohl in x - als auch in y -Richtung annähernd gaußförmig. Beim schwächeren Ionenstrahl wurde der Strahlabschwächer verwendet. Es ist keine Änderung des Strahlprofils durch die Abschwächerfolien zu erkennen.

der Transmission des Ionenstrahls zu den beiden Teilerperimenten TRIGA-TRAP und TRIGA-LASER.

5. Spektroskopie an Praseodymionen

Das Element Praseodym hat die Kernladungszahl $Z = 59$ und gehört somit zu der Gruppe der Lanthanide. Das einzige stabile und in der Natur vorkommende Isotop ist ^{141}Pr . Dieses Nuklid besitzt im Grundzustand einen Kernspin von $I^P = 5/2^+$, ein magnetisches Moment von $\mu = 4.2754(5) \mu_N$ und ein sehr kleines elektrisches Quadrupolmoment von $Q = -0.077(6)$ barn [Sto05]. Der ^{141}Pr Kern enthält 82 Neutronen und hat daher eine abgeschlossene *magische* Neutronenschale. Bislang sind nur für zwei weitere Isotope, ^{142}Pr und ^{143}Pr , die Momente im Grundzustand bekannt.

Aus der Elektronenkonfiguration von Praseodym $[\text{Xe}] 4f^3 6s^2$ ergibt sich ein kompliziertes und umfangreiches elektronisches Energieschema, das schon früh systematisch untersucht wurde [Kin28]. Ende der 80er Jahre wurden alle bis dahin bekannten Energieniveaus und Übergänge im neutralen und einfach ionisierten stabilen Praseodym von Ginibre zusammengestellt und bewertet [Gin89]. Für die in diesem Kapitel diskutierte kollineare Laserspektroskopie an Praseodymionen wurde ein intensiver Übergang aus dem Grundzustand $4f^3 6s \ ^5\text{I}_4$ in den angeregten $4f^3 6p \ ^5\text{H}_3$ Zustand gewählt. Dieser Übergang entspricht einer Energie von 25578.49 cm^{-1} und einer Wellenlänge von etwa 391 nm.

Um die periodische Modulation der Zerfallsfunktion des Elektroneneinfangs von wasserstoffähnlichem $^{140}\text{Pr}^{58+}$ und dessen im Vergleich zum neutralen Atom wesentlich kürzere EC-Halbwertszeit erklären zu können, wird unter anderem das magnetische Moment des Isotops benötigt (siehe Kapitel 1.1). Zur Vorbereitung der Spektroskopie an $^{140}\text{Pr}^+$ wurden einige Testmessungen an stabilem $^{141}\text{Pr}^+$ am TRIGA-LASER Experiment durchgeführt. Diese werden in Kapitel 5.1 vorgestellt. Kapitel 5.2 befasst sich mit dem anschließenden Versuch, das gewünschte radioaktive $^{140}\text{Pr}^+$ Isotop am COLLAPS Experiment zu untersuchen. Während dieser Strahlzeit konnten die drei Isotope ^{135}Pr , ^{136}Pr und ^{137}Pr erstmals spektroskopiert werden.

5.1. Spektroskopie an stabilen Praseodymionen an TRIGA-LASER

Um zu überprüfen, ob der gewählte Übergang für die geplante Bestimmung des magnetischen Moments von ^{140}Pr geeignet ist, wurden zuvor einige Testmessungen an stabilem Praseodym am TRIGA-LASER Experiment in Mainz durchgeführt. Hierzu wurde ein stabiler Ionenstrahl mit der in Kapitel 4.1 beschriebenen neuen TRIGA-LASER offline Oberflächenionenquelle erzeugt. Die Ionenquelle wurde mit einem Heizstrom von etwa 85 A, was einer Temperatur von ungefähr $2300 \text{ }^\circ\text{C}$ entspricht, betrieben und lieferte während den Messungen einen relativ stabilen Ionenstrom.

Das für die Spektroskopie verwendete Lasersystem wird ausführlich in [Kri12] beschrieben und charakterisiert. Es bestand aus einem Diodenlaser, dessen maximale Ausgangsleistung von 30 mW bei einer Wellenlänge von 781 nm mit einem Trapezverstärker (engl. tapered amplifier) auf eine Leistung von etwa 1430 mW verstärkt wurde. Anschließend wurde die zweite Harmonische mit einem kommerziellen Frequenzverdoppler (Tekhnoscan FD-SF-07) erzeugt. Die maximale Verdopplungseffizienz betrug 10%. Während der Messungen wurde der Diodenlaser auf ein High Finesse WS7 Wavemeter, das zuvor mit einem stabilisierten HeNe-Laser kalibriert wurde, stabilisiert. Das Wavemeter besitzt eine relative Genauigkeit von $1 \cdot 10^{-7}$. Dies entspricht bei der

verwendeten Laserwellenlänge von 781 nm einer absoluten Genauigkeit von etwa 40 MHz.

5.1.1. Bestimmung der Hyperfeinstrukturparameter von $^{141}\text{Pr}^+$

Abbildung 5.1 zeigt ein typisches gemessenes Hyperfeinstrukturspektrum von $^{141}\text{Pr}^+$ bei einer Quellenspannung von 9999 V und einer inversen Laserwellenlänge von $\lambda_L^{-1} = 25569.214 \text{ cm}^{-1}$. Die verwendete Laserleistung betrug etwa 500 μW und der Ionenstrom in der Nachweisregion 400 pA. Die Spektroskopie erfolgte in antikollinearer Anordnung. Da es sich um einen $J = 4 \rightarrow J' = 3$ Übergang handelt, ergeben sich für den Kernspin von $I = 5/2$ insgesamt 15 erlaubte Übergänge. In dem Spektrum sind deutlich 15 Resonanzen zu erkennen, die eindeutig dem jeweiligen Hyperfeinübergang zugeordnet werden können ($F - F'$). Die gesamte Hyperfeinstructuraufspaltung erstreckt sich bei einem differentiellen Dopplerfaktor von etwa 15 MHz/V (siehe Anhang A.2) über einen Scanbereich von etwa 1550 V. Da der verwendete Kepco BOP 500 Spannungsverstärker nur einen Messbereich von $\pm 500 \text{ V}$ abdecken kann, wurden drei Teilspektren mit jeweils unterschiedlichen Offsetspannungen U_{Offset} an der optischen Nachweisregion aufgenommen. Die jeweiligen Offsetspannungen wurden dabei so gewählt, dass sich die Teilspektren jeweils in mindestens zwei Resonanzen überlappen.

Durch Anpassung eines *Voigt*-Profils an die Resonanzen unter gleichzeitiger Berechnung der Resonanzpositionen aus der Hyperfeinstructuraufspaltung gemäß Gleichung 2.22 und 2.24 wurden mittels χ^2 -Minimierung die *A*- und *B*-Faktoren des Übergangs und die Lage des Linienschwerpunkts bestimmt. Die resultierende Kurvenform ist in Abbildung 5.1 grün dargestellt. Das *Voigt*-Profil hat eine volle *Lorentz*-Halbwertsbreite (FWHM – engl. **full width half maximum**) von $w_L = 54(1) \text{ MHz}$ und eine volle *Gauß*-Halbwertsbreite von $w_G = 95(1) \text{ MHz}$. Ein Vergleich der

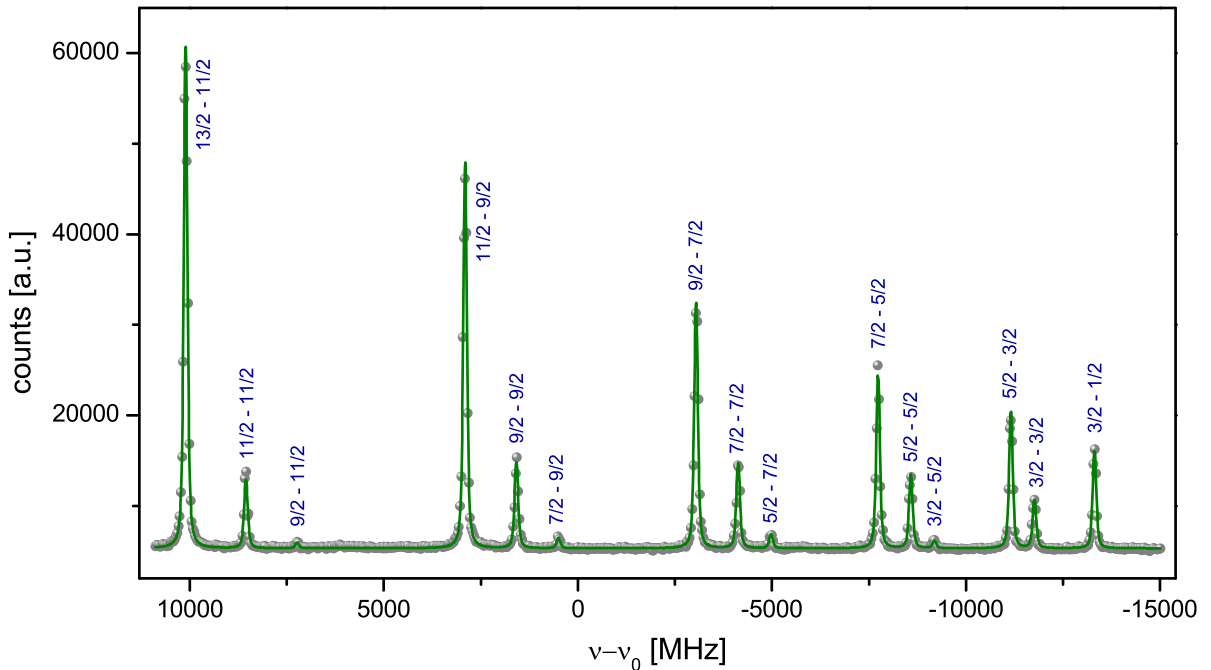


Abbildung 5.1.: Hyperfeinstrukturspektrum von $^{141}\text{Pr}^+$ für den Übergang $4f^36s \ ^5I_4 \rightarrow 4f^36p \ ^5H_3$ gemessen bei einer Beschleunigungsspannung von 9999 V. Die Spektroskopie erfolgte in antikollinearer Anordnung. Alle 15 erlaubten Hyperfeinübergänge sind deutlich zu erkennen ($F - F'$).

Tabelle 5.1.: Hyperfeinstrukturparameter des Grundzustands $4f^36s \ ^5I_4$ und des angeregten $4f^36p \ ^5H_3$ Zustands von $^{141}\text{Pr}^+$. Bei den an TRIGA-LASER bestimmten A -Faktoren gibt die erste Klammer den statistischen Fehler und die zweite Klammer den abgeschätzten systematischen Fehler an.

$4f^36s \ ^5I_4$		$4f^36p \ ^5H_3$		Referenz
A [MHz]	B [MHz]	A [MHz]	B [MHz]	
-239.7(7)(1)	8.1(53)	1030.0 (8)(3)	-28.4(48)	TRIGA-LASER
-218.8(7)		891 (17)		[Gin89]
		1031.6(22)	12.2(66)	[Mao00]
		1030.9(18)	14 (10)	[Fur01]

Lorentzbreite mit der natürlichen Linienbreite des Übergangs ist nicht möglich, da diese nicht bekannt ist.

Die extrahierten Hyperfeinstrukturparameter A und B sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst und den bekannten Literaturwerten aus [Gin89], [Mao00] und [Fur01] gegenübergestellt. In der ersten Klammer ist der statistische Fehler und in der zweiten Klammer der systematische Fehler angegeben, der sich aus mehreren Unsicherheiten zusammensetzt. Für die Bestimmung der Werte wurde der gewichtete Mittelwert aus drei Einzelmessungen bestimmt. Der statistische Fehler entspricht dem Standardfehler dieses Mittelwerts. Für die Abschätzung des systematischen Fehlers muss die Gesamtspannung $U_{\text{Gesamt}} = U_{\text{Quelle}} - U_{\text{Offset}} - f_{\text{Kepco}} \cdot U_{\text{DAQ}}$ betrachtet werden. Sie wird benötigt, um die Scanspannung über die Dopplerformel in den Frequenzraum umzurechnen. Ein fehlerhafter Verstärkungsfaktor f_{Kepco} staucht oder streckt das Spektrum und nimmt daher linear Einfluss auf die Bestimmung der A - und B -Faktoren. Um den Verstärkungsfaktor f_{Kepco} zu bestimmen, wird der Scanbereich von -500 V bis +500 V durchgestimmt und die tatsächlich angelegte Spannung über den Spannungsteiler mit dem Präzisionsmultimeter bestimmt. Normalerweise wird ein solcher Kepco-Scan mehrmals während eines Messzyklus durchgeführt. Dies wurde bei der hier diskutierten Messung leider nicht durchgeführt, sodass auf zwei Verstärkungsfaktoren, die ein halbes Jahr vor ($f_{\text{Kepco}}(-6 \text{ Monate}) = 50.027(4)$) bzw. eineinhalb Jahre nach ($f_{\text{Kepco}}(+18 \text{ Monate}) = 50.010(1)$) den Messungen bestimmt wurden, zurückgegriffen werden muss. Für die Auswertung wurde der zeitlich näherere Verstärkungsfaktor $f_{\text{Kepco}} = 50.027$ gewählt und dessen Fehler auf $\Delta f_{\text{Kepco}} = 0.01$ abgeschätzt. Dies entspricht einem relativen Fehler von $2 \cdot 10^{-4}$. Zusätzlich muss der relative Fehler des Spannungsteilers von $1 \cdot 10^{-4}$ berücksichtigt werden. Leider wurde es außerdem versäumt, die Quellenspannung und die Offsetspannung während der Messung direkt über einen Spannungsteiler zu bestimmen. In [Krä10] wurde gezeigt, dass das Spannungsnetzgerät, welches für die Ionenquelle verwendet wird, innerhalb der ersten acht Stunden nach dem Einschalten bei 10 kV um etwa 1 V driftet. Aus [Wil13] ist bekannt, dass die tatsächlich ausgegebene Spannung der beiden Netzgeräte von der im Scanprogramm eingegebenen Spannung abweicht. Der absolute Fehler auf die Differenz von U_{Quelle} und U_{Offset} wird daher auf $\Delta U_{\text{QO}} = 3 \text{ V}$ abgeschätzt. Die aus diesem Fehler resultierende Unsicherheit auf die Hyperfeinstrukturparameter kann aus Gleichung A.7, welche die Unsicherheit der Isotopieverschiebung bezüglich der Quellenspannung angibt, wie folgt abgeschätzt werden:

$$\Delta(A, B)_{U_{\text{QO}}} \approx \frac{\nu_L}{2} \sqrt{\frac{e}{2mc^2 U_{\text{QO}}}} \cdot \frac{\delta U_{A,B}}{U_{\text{QO}}} \cdot \Delta U_{\text{QO}} . \quad (5.1)$$

Die Spannungsdifferenz $\delta U_{A,B}$ entspricht den A - und B -Faktoren im Spannungsraum und wird über den differentiellen Dopplerfaktor bestimmt. Der in Tabelle 5.1 angegebene systematische Fehler Δ_{sys} ist die Wurzel aus der quadratischen Addition der drei diskutierten Unsicherheiten. Für die B -Faktoren ergibt sich ein systematischer Fehler von < 0.01 MHz. Er ist somit um Größenordnungen kleiner als die angegebene statistische Unsicherheit.

Die in Tabelle 5.1 angeführten Literaturwerte wurden mit verschiedenen experimentellen Methoden bestimmt. Bei [Mao00] handelt es sich ebenfalls um kollineare Laserspektroskopie. Allerdings wurde in diesem Fall nicht die Ionengeschwindigkeit sondern die Laserfrequenz durchgestimmt. Die Werte aus [Fur01] wurden mittels laserinduzierter Fluoreszenz in einer Hohlkathode bestimmt. Da es sich bei [Gin89] um eine Zusammenstellung bekannter Übergänge handelt, kann die genaue Messmethode nicht mehr nachvollzogen werden. Beim Vergleich des A -Faktors im angeregten Zustand fällt auf, dass der Wert von [Gin89] herausfällt. Der in dieser Arbeit bestimmte Wert stimmt innerhalb der Fehler sehr gut mit den anderen beiden Literaturwerten überein. Beim Vergleich des zugehörigen B -Faktors ist dies nicht der Fall. Allerdings muss für beide B -Faktoren angemerkt werden, dass sie aufgrund des extrem kleinen spektroskopischen Quadrupolmoments wesentlich kleiner als die A -Faktoren sind. Sie reagieren daher sehr empfindlich auf Veränderungen der relativen Positionen der Resonanzen. Dies zeigen auch die relativ großen statistischen Unsicherheiten, welche vermutlich noch als eher zu gering angenommen werden dürfen. Der gemessene A -Faktor des Grundzustands stimmt ebenfalls nicht mit dem Wert aus [Gin89] überein. Dieser Literaturwert kann jedoch aufgrund der erheblichen Abweichung für den A -Faktor des angeregten Zustands als fragwürdig angenommen werden. Überdies wurde der hier ermittelte Wert für den A -Faktor des Grundzustands in den Messungen am COLLAPS Experiment bestätigt (siehe Kapitel 5.2.2).

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der $4f^36s\ ^5I_4 \rightarrow 4f^36p\ ^5H_3$ Übergang sehr gut zur Spektroskopie an radioaktiven Praseodymionen und somit zur Bestimmung der magnetischen Momente geeignet ist. Bei den Testmessungen an stabilem Praseodym waren in der Regel die elf größten Resonanzen schon im ersten Scandurchlauf deutlich zu erkennen. Das in Abbildung 5.1 gezeigte Spektrum wurde zum Beispiel in nur zwei Durchläufen aufgenommen, allerdings bei einem recht starken Ionenstrom.

5.2. Spektroskopie an radioaktiven Praseodymisotopen an COLLAPS

Nach den erfolgreichen Testmessungen am stabilen Praseodym fand eine mehrtägige Strahlzeit zur Spektroskopie radioaktiver Praseodymionen am COLLAPS Experiment an ISOLDE statt. Oberstes Ziel war die Bestimmung des magnetischen Moments von ^{140}Pr unter Verwendung von ^{141}Pr als Referenzisotop.

Produktion der Praseodymisotope

Für die Produktion der Praseodymionen wurde ein Tantal-Target in Kombination mit einer Oberflächenionenquelle gewählt. Die Erzeugung der gewünschten Isotope erfolgt hierbei über Spallation. Durch den Beschuss mit schnellen Protonen, an ISOLDE mit einer Energie von bis zu 1.4 GeV, werden einige Nukleonen aus dem Targetkern herausgeschlagen und ein angeregter Restkern bleibt übrig. Von diesem *dampfen* anschließend weitere Neutronen und Protonen *ab*. Zusätzlich besitzt das ISOLDE-Target die Möglichkeit bis zu vier Proben stabiler Elemente, in diesem Fall ^{141}Pr , als sogenannte *Mass Marker* einzubringen. Durch Erhitzen dieser Probe war es möglich, einen stabilen ^{141}Pr -Ionenstrahl ohne Beschuss des Targets mit Protonen und somit ohne störende radioaktive Isobare zu erzeugen. Für das Experiment wurde der Zweig des GPS Massenseparators gewählt, da der HRS Massenseparator mit dem angeschlossenen RFQ

Tabelle 5.2.: Produktionsraten von Pr, Pm und Sm an ISOLDE bei Verwendung eines Tantal-Targets. Vor der Strahlzeit waren nur Produktionsraten am alten Proton Synchrocyclotron (SC) bekannt [ISO13]. In der letzten Spalte stehen die während der Strahlzeit neu bestimmten Produktionsraten.

Element	ISOLDE SC		ISOLDE PSB (neu)	
	A	Produktionsrate [Ionen/ μC]	A	Produktionsrate [Ionen/ μC]
Pr	133	$1.5 \cdot 10^7$	136	$3.7 \cdot 10^7$
	135	$2.7 \cdot 10^7$		
Pm	136	$1.1 \cdot 10^7$	142	$9 \cdot 10^7$
	141	$9.1 \cdot 10^7$		
Sm	140	$2 \cdot 10^8$		
	141g	$2.6 \cdot 10^8$		
	141m	$1.8 \cdot 10^7$		

aufgrund der erwarteten hohen Rate an Isobaren nicht geeignet erschien. In Tabelle 5.2 sind die Produktionsraten verschiedener Isotope von Praseodym, Promethium und Samarium mit einem Tantal-Target an ISOLDE zusammengestellt. Die Einheit 1 Ion/ μC entspricht in etwa 1 Ion/s. Der genaue Umrechnungsfaktor hängt von dem Protonenstrom und der Pulsstruktur der Protonen ab. Vor der Strahlzeit waren nur alte Produktionsraten am Proton Synchrocyclotron (SC) bei einer maximalen Protonenenergie von 0.6 GeV bekannt [ISO13]. Auf der Grundlage von Berechnungen des Wirkungsquerschnitts der Fragmentation bzw. Spallation von Tantal durch schnelle Protonen nach [Süm00] und der bekannten Produktionsrate von ^{140}Sm am SC von $2 \cdot 10^8$ Ionen/ μC wurde vor den Messungen eine Produktionsrate von etwa $1 \cdot 10^7$ Ionen/ μC für das gewünschte Isotop ^{140}Pr abgeschätzt [Lit10]. Das Maximum der Produktion für Praseodym unter Verwendung eines Tantal-Targets liegt etwa bei ^{136}Pr . Während der Strahlzeit wurde für ^{136}Pr eine Produktionsrate von $3.7 \cdot 10^7$ Ionen/ μC gemessen. Sie ist somit nur minimal größer als die am SC für ^{135}Pr bestimmte Produktionsrate von $2.7 \cdot 10^7$ Ionen/ μC . Die Produktionsrate des gewünschten Isotops ^{140}Pr konnte leider nicht bestimmt werden, da dieses Isotop nur eine sehr schwache γ -Linie besitzt. Selbst wenn die Produktionsrate von ^{140}Pr mehr als zwei Größenordnungen kleiner wäre als die von ^{136}Pr , sollte die Spektroskopie immer noch möglich sein. Da eine Separation der (Lanthanid-)Isobare mit dem GPS Massenseparator nicht möglich ist, wird an das jeweilige Experiment immer ein Isobarengemisch geliefert. Für die kollineare Laserspektroskopie spielt es eigentlich keine Rolle, wie hoch der Isobarenanteil am Ionenstrahl ist. Allerdings stellte in diesem Fall die durch die Isobare verursachte hohe Radioaktivität ein Problem dar. Abbildung 5.2 zeigt einen Ausschnitt der Nuklidkarte für diese Region. Die stabilen Isotope sind grau gekennzeichnet. Die radioaktiven neutronenarmen Nuklide zerfallen überwiegend über β^+ -Zerfälle. Die relevanten Isobare von ^{140}Pr sind orange markiert. Das Produktionsmaximum für diese Massenzahl liegt bei Samarium, dessen am SC gemessene Produktionsrate von $2 \cdot 10^8$ Ionen/ μC eine Größenordnung größer ist als die für ^{135}Pr . Dieses Verhältnis dürfte auch für die aktuellen Produktionsbedingungen gelten. Die hohen Produktionsraten von ^{140}Sm und ^{140}Pm in Kombination mit ihren Halbwertszeiten von etwa 15 Minuten bzw. 6 Minuten führten immer wieder zur Auslösung eines Radioaktivitätsalarm durch mehrere Detektoren an verschiedenen Standorten innerhalb der ISOLDE Experimentierhalle. Bei der Beobachtung der

137 Sm 45 s	138 Sm 3.1 m	139 Sm 2.57 m 10.7 s	140 Sm 14.82 m	141 Sm 10.2 m 22.6 m	142 Sm 72.47 m	
136 Pm 100 s 107 s	137 Pm 2.4 m	138 Pm 3.24 m	139 Pm 4.15 m	140 Pm 5.95 m 9.2 s	141 Pm 20.9 m	142 Pm 40.5 s
					9 · 10 ⁷ Ions/μC	
135 Nd 5.5 m 12.4 m	136 Nd 50.7 m	137 Nd 1.6 s 38.0 m	138 Nd 5.1 h	139 Nd 5.5 h 29.7 m	140 Nd 3.37 d	141 Nd 62 s 2.5 h
						27.13 %
134 Pr 11 m 18 m	135 Pr 25 m	136 Pr 13.1 m	137 Pr 76.6 m	138 Pr 2.02 h 1.44 m	139 Pr 4.5 h	140 Pr 3.4 m
		3.7 · 10 ⁷ Ions/μC				100 %
134 Ce 75.9 h	135 Ce 20 s 17.76 h	136 Ce 0.19 %	137 Ce 34.4 h 9.0 h	138 Ce 0.25 %	139 Ce 56.5 s 137.6 d	140 Ce 88.48 %

Abbildung 5.2.: Auszug aus der Nuklidkarte in der Region um ^{140}Pr . Die stabilen Isotope sind grau hinterlegt. Die radioaktiven Nuklide zerfallen überwiegend über β^+ -Zerfälle. Die Isobare des gewünschten ^{140}Pr sind orange und die gemessenen radioaktiven Praseodymisotope grün markiert. Für ^{136}Pr und ^{142}Pm sind zusätzlich die gemessenen Produktionsraten an ISOLDE vermerkt.

Abklingkurve der Radioaktivität konnten Samarium und Promethium eindeutig anhand ihrer Halbwertszeiten identifiziert werden. Dies führte dazu, dass die Messungen immer wieder nach etwa 15 Minuten zum Abklingen der Radioaktivität unterbrochen werden mussten. Das Verhältnis von Messzeit zu Wartezeit betrug dabei etwa 1 zu 2. Unter diesen Umständen war die Aufnahme eines Hyperfeinstrukturspektrums des nur schwach produzierten Isotops ^{140}Pr nicht mehr möglich, da die Statistik einfach zu schlecht wurde. Eine Aussage über die tatsächliche Produktionsrate von ^{140}Pr kann nicht getroffen werden.

Ähnliches konnte bei dem stabilen Isotop ^{141}Pr , welches als Referenzisotop für die Bestimmung der magnetischen Momente dringend benötigt wurde, beobachtet werden. Auch hier wurde durch die produzierten Samarium- und Promethiumisobare relativ schnell Radioaktivitätsalarm ausgelöst. Die in Kapitel 5.2.2 ausgewerteten Spektren wurden daher ohne Protonenbeschuss des Targets aufgenommen. Der Ionenstrahl wurde wie oben beschrieben durch Erhitzen einer Probe von ^{141}Pr in einem der *Mass Marker* erzeugt.

Anstelle des geplanten Isotops ^{140}Pr konnten während der Strahlzeit Hyperfeinstrukturspektren der in Abbildung 5.2 grün unterlegten radioaktiven Isotope ^{135}Pr , ^{136}Pr und ^{137}Pr aufgenommen werden. Diese wurden in ausreichender Anzahl produziert. Zudem war die Radioaktivitätsbelastung durch ihre Isobare geringer, sodass mit kleineren Unterbrechungen die Aufnahme der Hyperfeinstrukturspektren möglich war.

Lasersystem

Für die Spektroskopie am COLLAPS Experiment wurde ein Coherent 899 Ti:Sa-Laser, der auf ein temperaturstabilisiertes Fabry-Pérot-Interferometer stabilisiert wurde, verwendet. Das Interferometer wiederum wurde auf einen stabilisierten HeNe-Laser stabilisiert. Die Laserwellenlänge wurde während den Messungen mit einem Bristol Wavemeter, das gelegentlich gegen einen stabilisierten HeNe-Laser kalibriert wurde, überwacht. Die zweite Harmonische der Ausgangswellenlänge von 781 nm wurde mit einem kommerziellen Spectra Physics Wavetrain Frequenzverdoppler erzeugt. Die inverse Laserwellenlänge betrug $\lambda_L^{-1} = 25600.808 \text{ cm}^{-1}$.

Der Ionenstrahl wurde auf eine Energie von 50 keV beschleunigt und der Laserstrahl zur Spektroskopie kollinear überlagert.

5.2.1. Bestimmung des Verstärkungsfaktors des Kepco BOP 1000

Die Testmessungen am TRIGA-LASER Experiment haben gezeigt, dass sich die Hyperfeinstrukturaufspaltung von $^{141}\text{Pr}^+$ bei einer Beschleunigungsspannung von 10 kV über einen Scanbereich von etwa 1550 V erstreckt. Für eine Quellenspannung von 50 kV, wie sie für die Spektroskopie am COLLAPS Experiment verwendet wurde, ergibt sich daraus mit dem zugehörigen differentiellen Dopplerfaktor von 6.7 MHz/V ein Scanbereich von etwa 3500 V. Um die Anzahl an Teilspektren möglichst gering zu halten, wurde daher der Kepco BOP 1000 Spannungsverstärker mit einem Verstärkungsfaktor von 100 zur Verstärkung der DAQ-Spannung verwendet. Zur Bestimmung des exakten Verstärkungsfaktors f_{Kepco} wurden während der Strahlzeit mehrere sogenannte Kepco-Scans durchgeführt. Hierzu wurde der Scanbereich von -1000 V bis +1000 V durchgestimmt und die tatsächlich angelegte Spannung über den Spannungsteiler mit dem Präzisionsmultimeter gemessen. Abbildung 5.3 zeigt beispielhaft einen dieser Kepco-Scans. Die rote Kurve ist eine lineare Anpassung an die Datenpunkte. Das zugehörige Residuum zeigt, dass die Verstärkung nicht – wie erwartet – linear erfolgt. Die Datenpunkte weichen bis zu 10 V von der linearen Anpassung ab. Dies entspricht in diesem Beispiel einer maximalen Abweichung von 4 % (bei einer DAQ-Spannung von etwa 2.5 V). Ungünstigerweise stellte sich der genaue Verlauf der Nichtlinearität in den einzelnen Kepco-Kalibrationsscans auch noch als stark veränderlich heraus, sodass eine systematische Korrektur nicht möglich ist. Leider wurde der Defekt des Verstärkers während der Strahlzeit nicht bemerkt. Das beobachtete nichtlineare

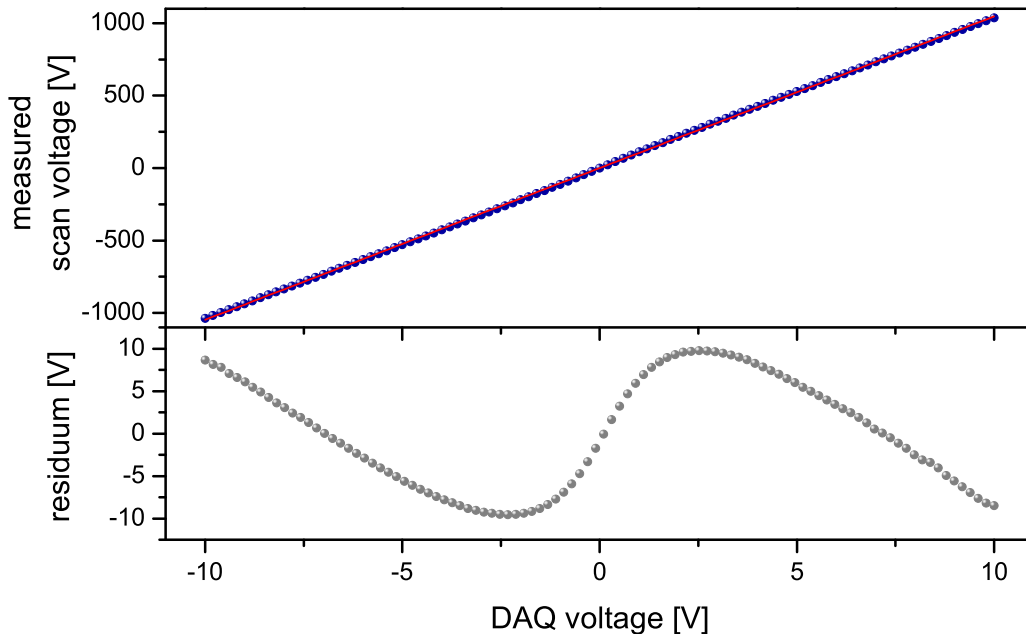


Abbildung 5.3.: Kepco-Scan aufgenommen während der Spektroskopie an Praseodymionen am COLLAPS Experiment. Die rote Kurve ist eine lineare Anpassung an die Datenpunkte. Das zugehörige Residuum zeigt, dass die Verstärkung der DAQ-Spannung nicht linear erfolgt.

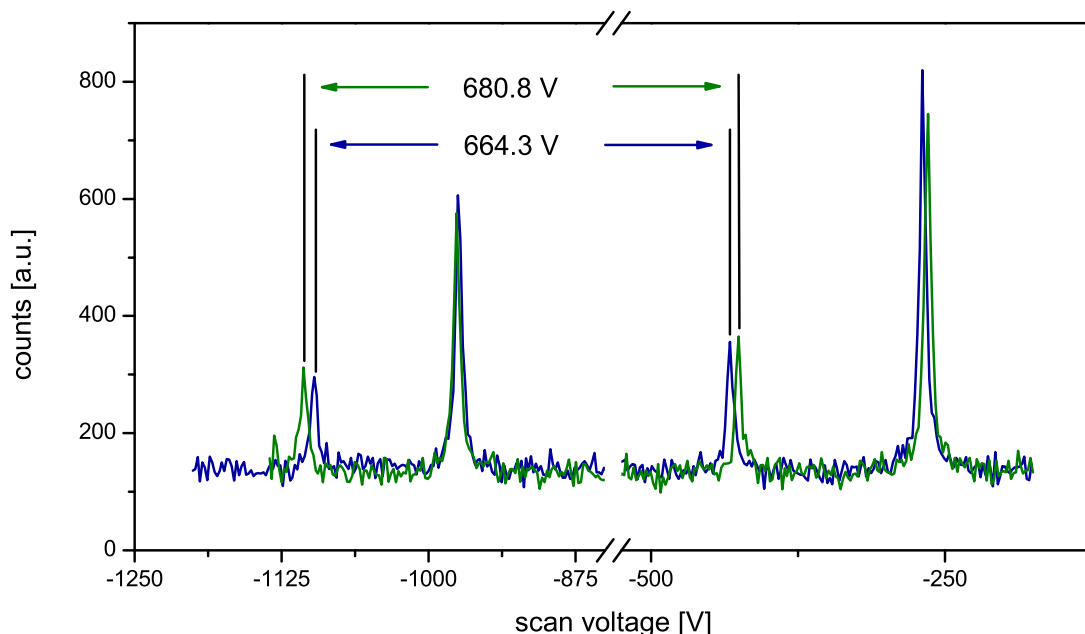


Abbildung 5.4.: Überlagerung zweier Teilspektren von $^{141}\text{Pr}^+$ aufgenommen mit dem defekten Kepco BOP 1000 Spannungsverstärker. In dem grünen Spektrum haben die beiden markierten Peaks einen Abstand von 680.8 V, in dem blauen Spektrum von 664.3 V. Dies ergibt eine Differenz von 16.5 V, die ungefähr 110 MHz entspricht.

Verhalten des Spannungsverstärkers ist sehr problematisch, denn dies führt zu einer Verzerrung der aufgenommenen Hyperfeinstrukturspektren. In Abbildung 5.4 ist beispielhaft die Überlagerung zweier Teilspektren des Referenzisotops $^{141}\text{Pr}^+$ dargestellt. Für jedes Teilspektrum wurde eine andere Offset-Spannung verwendet. Die Abhängigkeit des Verstärkungsfaktors von der DAQ-Spannung führt in den beiden Teilspektren zu unterschiedlichen Abständen zwischen denselben Resonanzen. Während die beiden markierten Resonanzen in dem grünen Spektrum 680.8 V voneinander entfernt sind, beträgt ihr Abstand zueinander im blauen Spektrum 664.3 V. Die Differenz von 16.5 V entspricht etwa 2.4 % des Abstandes bzw. etwa 110 MHz. Die mittlere etwas größere Resonanz hat dagegen in beiden Spektren die gleiche Position. Für die Auswertung der Hyperfeinstrukturspektren ist es daher leider nicht möglich, mehrere Teilspektren zu einem Gesamtspektrum zusammenzusetzen. Die Auswertung muss für jedes Teilspektrum einzeln erfolgen und erfordert somit jeweils eine Mindestanzahl an erfassten Resonanzen pro Teilspektrum. In Kapitel 5.2.2 und 5.2.3 wird auf diese Problematik jeweils konkret eingegangen.

Während der Strahlzeit wurden insgesamt elf Kepco-Scans aufgenommen. Die ermittelten *linearen* Verstärkungsfaktoren streuen zwischen $f_{\text{Kepco}}^{\min} = 103.52(7)$ und $f_{\text{Kepco}}^{\max} = 104.73(11)$. Ein zeitlicher definierter Verlauf ist nicht zu erkennen. Um die Hyperfeinstrukturparameter der gemessenen Isotope dennoch – wenn auch recht ungenau – bestimmen zu können, wurde der gewichtete Mittelwert der Verstärkungsfaktoren $f_{\text{Kepco}}^{\text{MW}} = 104.02$ bestimmt. Damit der Einfluss der nichtlinearen Verstärkung auf die Bestimmung der Hyperfeinstrukturparameter abgeschätzt werden kann, wurden zwei Teilspektren von $^{141}\text{Pr}^+$ jeweils zweimal ausgewertet. Während in einem Fall die Gesamtspannung, unter der Annahme der Spannungsverstärker hätte sich linear verhalten, gemäß Gleichung 3.1 ganz *normal* mit dem gemittelten Verstärkungsfaktor bestimmt wurde, wurde im anderen Fall die Gesamtspannung gemäß des Residuums aus Abbildung 5.3

korrigiert. Ein Vergleich der ermittelten A - und B -Faktoren ergab eine maximale Abweichung von 6 %. Der systematische Fehler bei der Bestimmung der Hyperfeinstrukturparameter wurde daher in den folgenden Kapiteln entsprechend auf 6 % abgeschätzt.

5.2.2. Bestimmung der Hyperfeinstrukturparameter von $^{141}\text{Pr}^+$

Aufgrund der großen Hyperfeinaufspaltung musste die Aufnahme des Hyperfeinstrukturspektrums des stabilen Isotops $^{141}\text{Pr}^+$ in drei Teilspektren gegliedert werden. In Abbildung 5.5 wird ein Set dieser Teilspektren dargestellt und die einzelnen Resonanzen den entsprechenden Übergängen zugeordnet ($F - F'$). Die drei schwächsten Übergänge konnten nicht detektiert werden. Da die Spektren ursprünglich zu einem Gesamtspektrum zusammengesetzt werden sollten, wurde darauf geachtet, dass sie sich in mindestens zwei Resonanzen überlagern. Leider musste aufgrund der diskutierten Problematik mit dem defekten Kepco BOP 1000 Spannungsverstärker jedes Teilspektrum separat ausgewertet werden. Die Anzahl der zu bestimmenden Parameter erforderte für die Auswertung mindestens fünf Resonanzen pro Teilspektrum. Daher konnten in Abbildung 5.5 nur aus den Teilspektren 1 und 2 durch χ^2 -Minimierung die A - und B -Faktoren bestimmt werden. Das an die Resonanzen angepasste *Voigt*-Profil hat im Mittel eine volle *Lorentz*-Halbwertsbreite von $w_L = 47(3)$ MHz. Dies ist vergleichbar mit der gemessenen Linienbreite am TRIGA-LASER Experiment. Die volle *Gauß*-Halbwertsbreite ist hingegen mit $w_G = 28(8)$ MHz wie erwartet kleiner. Der größere relative Fehler der Linienbreiten resultiert aus der Nichtlinearität des Spannungsverstärkers.

Für den Grund- bzw. den angeregten Zustand wurden die folgenden Hyperfeinstrukturparameter bestimmt: $A(4f^36s) = -244(1)(15)$ MHz, $B(4f^36s) = -15(40)(1)$ MHz, sowie $A(4f^36p) = 1024(2)(61)$ MHz, $B(4f^36p) = -268(54)(16)$ MHz. Die erste Klammer gibt die statistische Unsicherheit des Fits an. Die systematische Unsicherheit in der zweiten Klammer entspricht dem im vorangegangenen Kapitel diskutierten Fehler aufgrund des defekten Spannungsverstärkers und beträgt 6 % des Absolutwerts.

Die recht ungenauen Werte lassen nur einen groben Vergleich mit den Literaturwerten und den am TRIGA-LASER Experiment bestimmten Parametern aus Tabelle 5.1 zu. Der A -Faktor des angeregten Zustands passt zum TRIGA-LASER Experiment sowie zu den Literaturwerten aus [Mao00] und [Fur01]. Der A -Faktor des Grundzustands bestätigt den Wert des TRIGA-LASER Experiments gegenüber dem Wert aus [Gin89]. Die B -Faktoren lassen sich nur sehr ungenau aus den Spektren bestimmen, da sie sehr empfindlich auf geringe Verschiebungen der Resonanzen untereinander sind.

5.2.3. Bestimmung der magnetischen Momente von ^{135}Pr , ^{136}Pr und ^{137}Pr

Bei der Auswertung der Hyperfeinstrukturspektren von $^{135}\text{Pr}^+$, $^{136}\text{Pr}^+$ und $^{137}\text{Pr}^+$ wurde das Verhältnis der A -Faktoren aus Grund- und angeregten Zustand gemäß den Ergebnissen am TRIGA-LASER Experiment auf $A_{\text{Ratio}} = -0.2327(7)$ festgehalten. Dadurch reduzierte sich die Anzahl freier Parameter um einen und es konnten auch Spektren mit nur vier Resonanzen ausgewertet werden.

Zum Vergleich wurde das fehlende dritte Teilspektrum des stabilen Isotops $^{141}\text{Pr}^+$ aus dem vorangegangenen Kapitel 5.2, das ebenfalls nur vier Resonanzen zeigt, mit diesem A -Faktor-Verhältnis ausgewertet. Für den A -Faktor des Grundzustands ergibt sich ein Wert von $A(4f^36s) = -243(1)(15)$ MHz. Dieser stimmt innerhalb der Unsicherheiten mit dem aus den anderen beiden Teilspektren bestimmten Wert überein.

Die bestimmten A -Faktoren des Grundzustands der radioaktiven Praseodymisotope sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Die statistische Unsicherheit in der ersten Klammer berücksichtigt

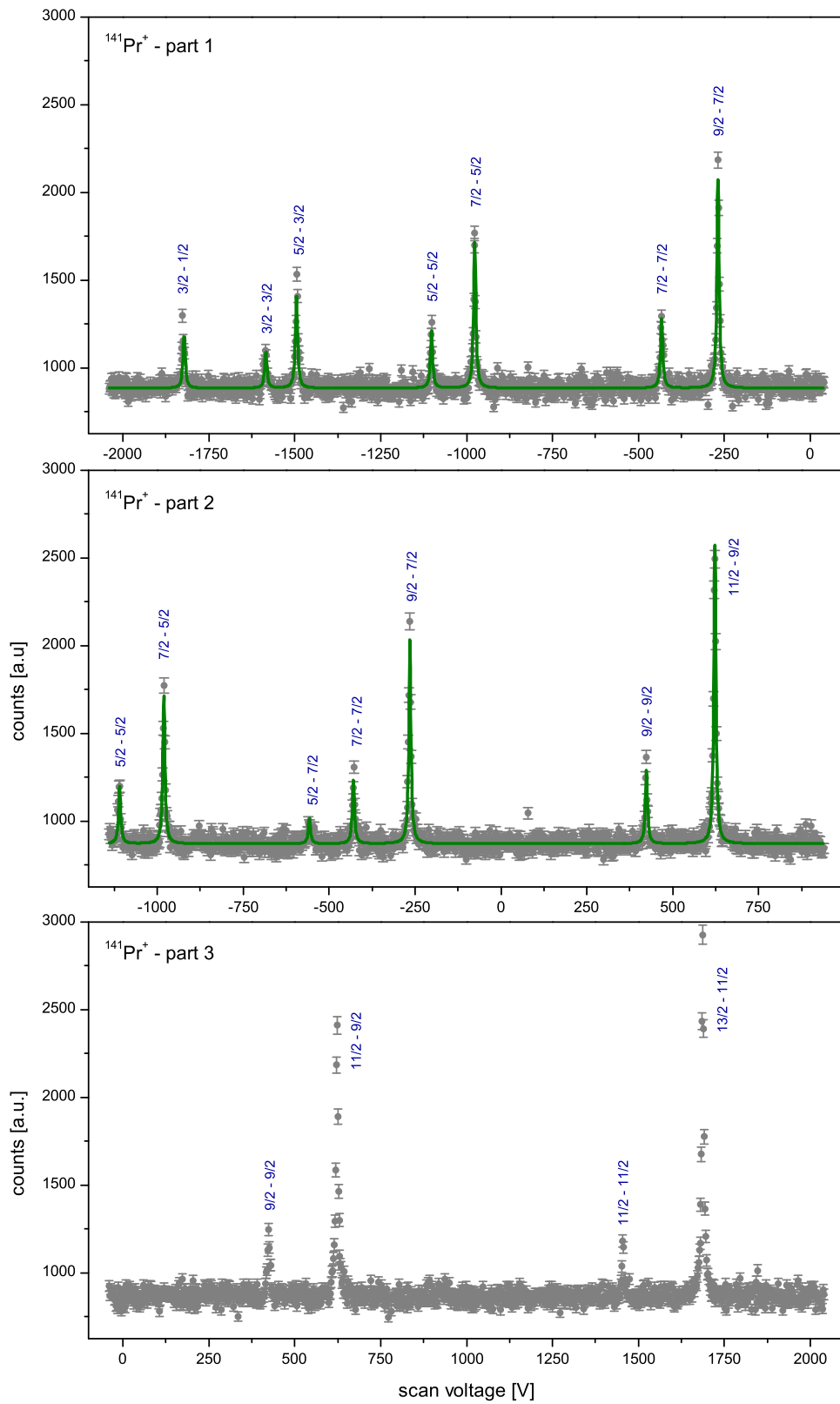


Abbildung 5.5.: Hyperfeinstrukturspektrum von $^{141}\text{Pr}^+$ aufgenommen in drei Teilspektren am COLLAPS Experiment bei einer Beschleunigungsspannung von 50 kV.

neben dem Fitfehler den Fehler des festgehaltenen A -Faktor-Verhältnisses. Der systematische Fehler aus dem Spannungsverstärker beträgt analog zur Auswertung des stabilen Isotops 6 % des Absolutwertes. Der angenommene Fehler sollte auch eine mögliche Hyperfeinanomalie berücksichtigen. Die B -Faktoren des spektroskopierten Übergangs konnten für diese drei Isotope nicht bestimmt werden. Sie wurden zwar als freie Parameter bei der Auswertung berücksichtigt, ergaben aber vollkommen unphysikalische Werte. Da nichtverschwindende B -Faktoren ähnliche Änderungen der Peakabstände hervorrufen wie die Nichtlinearität des Spannungsverstärkers, ist es verständlich, dass die Fitroutine diese nutzt, um die Variation auszugleichen.

Im Folgenden finden sich einige zusätzliche Kommentare zur Auswertung der in den Abbildungen 5.6, 5.7 und 5.8 dargestellten Hyperfeinstrukturspektren der einzelnen Isotope:

$^{135}\text{Pr}^+$

Aus dem Kernspin von $I = 3/2$ [Eks72] des Isotops ^{135}Pr ergeben sich für den spektroskopierten Übergang ($J = 4 \rightarrow J' = 3$) neun erlaubte Hyperfeinstrukturübergänge. Während der Strahlzeit konnten zwei unabhängige Spektren aufgenommen werden, in denen jeweils die vier stärksten Übergänge sichtbar sind. Abbildung 5.6 zeigt eines der beiden Spektren. Der in Tabelle 5.3 angegebene A -Faktor des Grundzustands entspricht dem Mittelwert aus beiden Spektren. Die Struktur des Spektrums sollte der des stabilen Isotops $^{141}\text{Pr}^+$ (Abbildung 5.5) ähneln. Die fünf im Spektrum fehlenden Resonanzen werden zwischen den vier beobachteten Resonanzen erwartet. Die Intensität der stärksten fehlenden Resonanz sollte etwa 7 % der Intensität des $F = 11/2 \rightarrow F' = 9/2$ Übergangs betragen.

$^{136}\text{Pr}^+$

Das Isotop ^{136}Pr hat einen Kernspin von $I = 2$ [Eks72] und somit zwölf erlaubte Hyperfeinstrukturübergänge. In Abbildung 5.7 ist zu erkennen, dass auch hier nur die vier stärksten Übergänge beobachtet werden konnten. Die schwächste der detektierten Resonanzen ist zusätz-

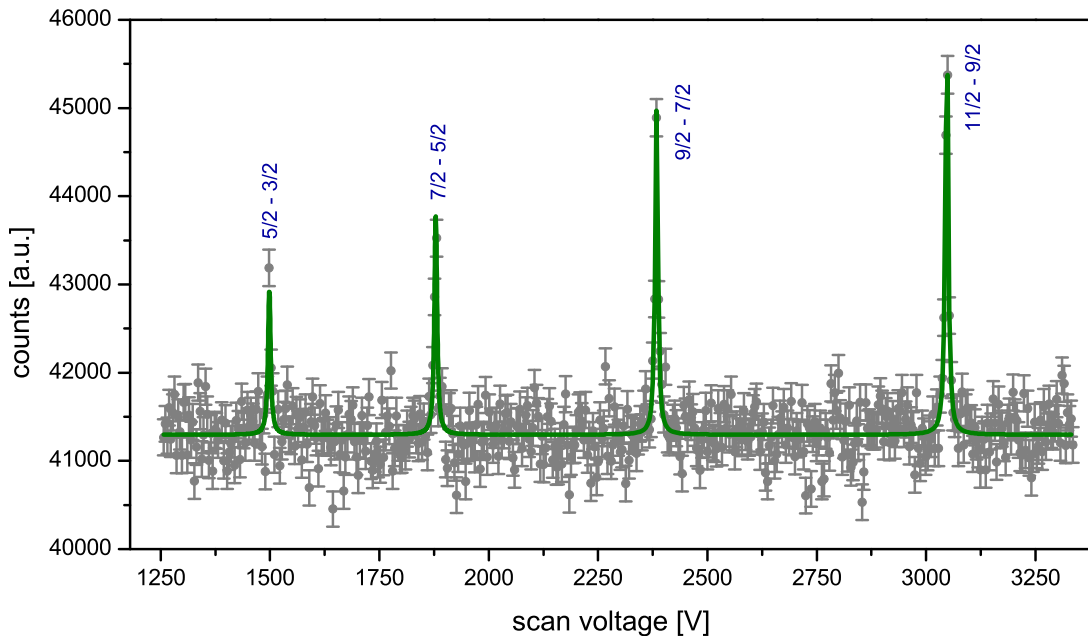


Abbildung 5.6.: Hyperfeinstrukturspektrum von $^{135}\text{Pr}^+$. Nur die vier stärksten Übergänge konnten beobachtet werden.

lich noch einmal vergrößert dargestellt. Zwar wurden während des Experiments drei unabhängige Spektren aufgenommen, jedoch konnte nur dieses eine Spektrum ausgewertet werden. Die Nichtlinearität des Spannungsverstärkers war bei den anderen beiden Spektren zu stark ausgeprägt. Auch für dieses Isotop wird eine ähnliche Struktur erwartet wie für das stabile Isotop $^{141}\text{Pr}^+$. Die zwei stärksten der acht nicht beobachteten Resonanzen sollten im Bereich von 1000 V bis 1400 V auftreten. Die übrigen im Spektrum fehlenden Resonanzen werden zwischen den vier detektierten erwartet. Ihre erwartete Intensität ist zu gering, um im aufgenommenen Spektrum sichtbar zu sein.

$^{137}\text{Pr}^+$

^{137}Pr hat den gleichen Kernspin ($I = 5/2$) wie das stabile Isotop ^{141}Pr [Eks72]. Von den 15 erlaubten Übergängen konnten in insgesamt drei Teilspektren die stärksten zehn Übergänge beobachtet werden. Analog zum stabilen Isotop wurden die Teilspektren separat ausgewertet und ihre Ergebnisse gemittelt.

Die magnetischen Momente der radioaktiven Isotope wurden aus den A -Faktoren des Grundzustands gemäß Gleichung 2.34 ($\mu = (\mu_{\text{ref}} \cdot A \cdot I) / (A_{\text{ref}} \cdot I_{\text{ref}})$) berechnet. Als Referenzisotop wurde das stabile Isotop ^{141}Pr verwendet mit $\mu_{\text{ref}}(^{141}\text{Pr}) = 4.2754(5) \mu_{\text{N}}$ und dem am TRIGA-LASER Experiment bestimmten Wert für $A_{\text{ref}} = -239.7(7)(1) \text{ MHz}$. Die statistischen und systematischen Fehler wurden jeweils mittels Gaußscher Fehlerfortpflanzung aus den Fehlern der beiden A -Faktoren ermittelt. Der Fehler des magnetischen Moments des Referenzisotops kann in diesem Fall vernachlässigt werden.

Die resultierende Ungenauigkeit der magnetischen Momente ist groß im Vergleich zur üblicherweise erreichten Genauigkeit bei der kollinearen Laserspektroskopie. Jedoch muss angemerkt werden, dass die Ergebnisse aus Tabelle 5.3 die einzigen Werte sind, welche bislang für diese

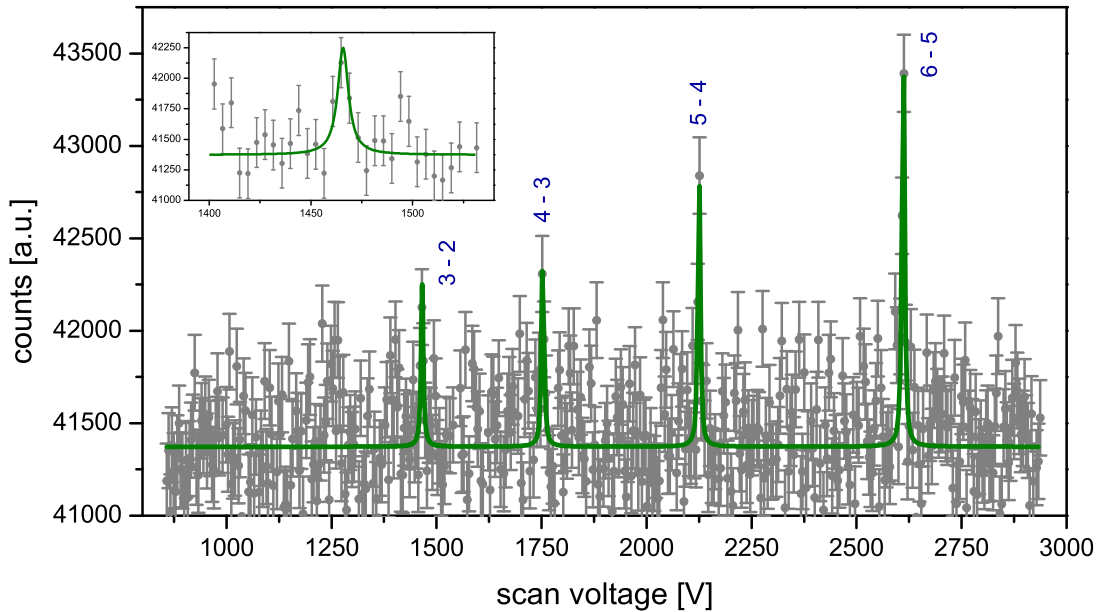


Abbildung 5.7.: Hyperfeinstrukturspektrum von $^{136}\text{Pr}^+$. Nur die vier stärksten Übergänge konnten beobachtet werden. Die schwächste detektierte Resonanz ist zusätzlich vergrößert dargestellt.

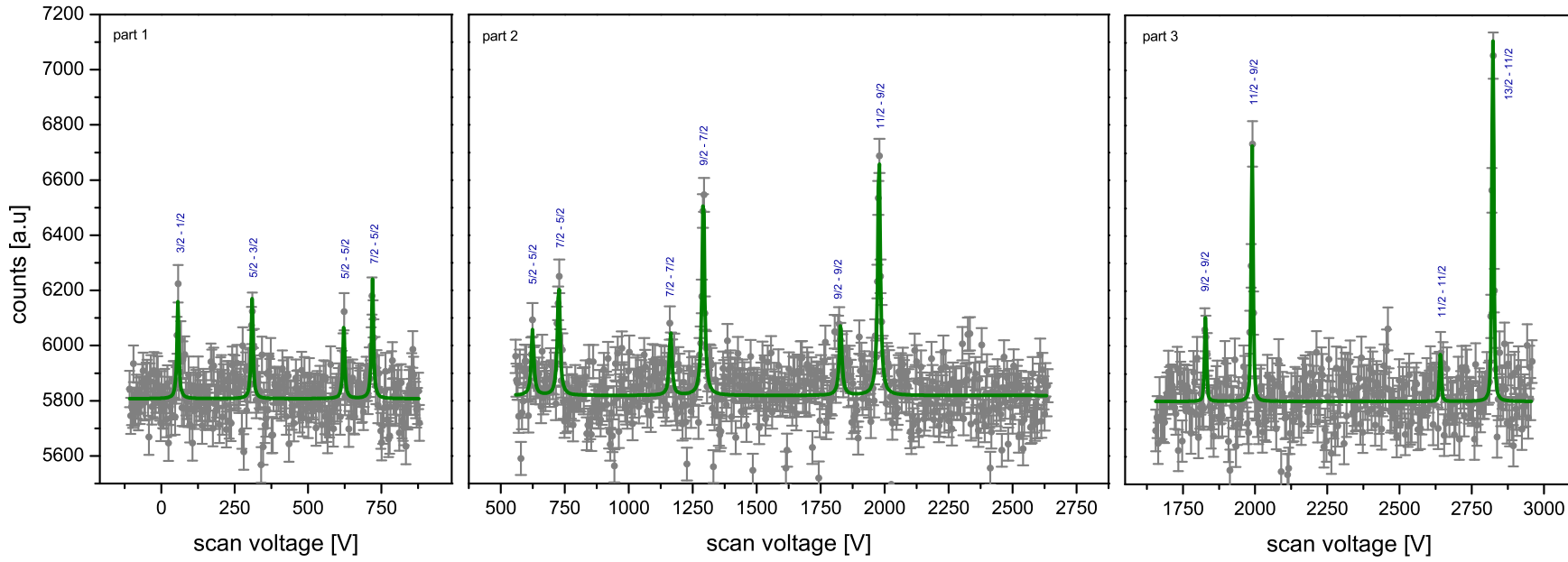


Abbildung 5.8.: Hyperfeinstrukturspektrum von $^{137}\text{Pr}^+$. Insgesamt wurden in den drei Teilspektren 10 der 15 Hyperfeinübergänge beobachtet.

Tabelle 5.3.: A -Faktoren des Grundzustands $4f^3 6s^5 I_4$ und magnetische Momente von $^{135}\text{Pr}^+$, $^{136}\text{Pr}^+$ und $^{137}\text{Pr}^+$. Die erste Klammer gibt die statistische Unsicherheit, die zweite Klammer den systematischen Fehler an. Der A -Faktor wurde unter Verwendung eines festen Verhältnisses der A -Faktoren $A_{\text{Ratio}} = -0.2327(7)$ ermittelt. Der angenommene systematische Fehler von 6 % sollte auch eine mögliche Hyperfein-anomalie berücksichtigen.

Isotop	Kernspin	A [MHz]	μ [μ_N]
135	3/2	-187(1)(11)	2.00(1)(12)
136	2	-123(1) (7)	1.76(1)(11)
137	5/2	-206(3)(12)	3.67(6)(22)

Isotope bestimmt wurden. Theoretische Berechnungen der magnetischen Momente liegen auch nicht vor.

5.2.4. Zusammenfassung und Ausblick

Ziel der kollinearen Laserspektroskopie an Praseodymionen war die Bestimmung des magnetischen Moments von ^{140}Pr , welches für die Erklärung der sogenannten *GSI Oszillationen* benötigt wird. Zunächst wurde dazu am stabilen Ion $^{141}\text{Pr}^+$ ein geeigneter Übergang am TRIGA-LASER Experiment in Mainz erfolgreich getestet. Jedoch war es nicht möglich, das gewünschte Isotop am COLLAPS Experiment an der ISOLDE Anlage am CERN zu spektroskopieren. Ob die Produktionsrate von $^{140}\text{Pr}^+$ für die Spektroskopie zu gering war, ist unklar, da sie aufgrund der schwachen γ -Linie des Isotops nicht bestimmt werden konnte. Der große Anteil an Samarium- und Promethiumisobaren im Ionenstrahl erzeugte zudem eine so hohe Radioaktivität in der Experimentierhalle, dass die Messungen immer wieder für längere Zeit unterbrochen werden mussten und somit keine ausreichende Statistik gesammelt werden konnte. Anstelle von $^{140}\text{Pr}^+$ konnten jedoch die Isotope $^{135}\text{Pr}^+$, $^{136}\text{Pr}^+$ und $^{137}\text{Pr}^+$ erstmals spektroskopiert und ihre magnetischen Momente – wenn auch sehr ungenau – bestimmt werden.

Da die Spektroskopie von ^{140}Pr an ISOLDE nicht möglich ist, wurde inzwischen ein Letter of Intend (LOI) an der ISAC¹ Anlage am TRIUMF² eingereicht [Frö12]. Dieser wurde von dem Bewertungskomitee mit höchster Priorität genehmigt. Zur Unterdrückung des radioaktiven Isobaren Untergrunds soll zunächst von der TRILIS³ Gruppe ein Anregungsschema zur Laserionisation auf der Grundlage von [Got10] entwickelt und getestet werden. Wenn die anschließenden Tests ergeben, dass die Produktionsrate an ISAC ausreichend hoch ist, ist geplant, ein Proposal zur Spektroskopie am kollinearen Laserspektroskopie Experiment CFBS⁴ einzureichen.

¹Isotope Separator and Accelerator

²Tri University Meson Facility - Canada's national laboratory for particle and nuclear physics

³TRIUMF Resonant Ionization Laser Ion Source

⁴Collinear Fast-Beam Laser Spectroscopy

6. Spektroskopie an Cadmiumatomen

In der Natur existieren insgesamt acht Cadmiumisotope. Die sechs Isotope mit den Massenzahlen $A = 106, 108, 110, 111, 112, 114$ sind stabil und die zwei Isotope $A = 113, 116$ haben Halbwertszeiten, die mehrere Größenordnungen über dem Alter der Erde liegen. Das am häufigsten vorkommende Isotop ist mit 28.73 % ^{114}Cd . Da der Cadmiumkern aus 48 Protonen besteht, fehlt ein Protonenpaar zum *magischen* Schalenabschluss bei $Z = 50$. Zwischen den *magischen* Neutronenzahlen $N = 50$ und $N = 82$ werden entlang der Isotopenreihe mit zunehmender Neutronenzahl gemäß dem Schalenmodell die Neutronenschalen $1g_{7/2}, 2d_{5/3}, 3s_{1/2}, 2d_{3/2}$ und $1h_{11/2}$ sukzessive aufgefüllt (siehe Abbildung 2.1). Die geraden Cadmiumisotope haben eine gerade Anzahl an Protonen und Neutronen und somit alle einen Kernspin von $I^P = 0^+$. Der Kernspin der ungeraden Isotope ergibt sich aus dem Gesamtdrehimpuls j des ungepaarten Neutrons. Abbildung 6.1 zeigt eine Übersicht über die ungeraden Cadmiumisotope. Neben dem Grundzustand sind die langlebigen Isomere mit Kernspin $I^P = 11/2^-$ dargestellt. Die Neutronenzahlen der Isotope, deren Kernspin zuvor noch nicht experimentell bestimmt wurde, sind rot dargestellt. Ihr Kernspin wurde ihnen aufgrund der Rechnungen des Schalenmodells zugeordnet. Es fällt auf, dass nur drei der fünf möglichen Kernspins im Grundzustand vorkommen. Zudem gibt es mehr Isotope, die denselben Kernspin aufweisen, als gemäß der $(2j + 1)$ -fachen Entartung der Energieniveaus erwartet wird. Die zusätzlichen Neutronenpaare befinden sich wie in Kapitel 2.1.2 beschrieben aufgrund der höheren Paarungsenergie in einem anderen Energieniveau mit größerem Gesamtdrehimpuls j . Für die in Abbildung 6.1 farblich hinterlegten Isotope waren die magnetischen Dipolmomente und die elektrischen Quadrupolmomente vor den hier beschriebenen Untersuchungen bereits bekannt [Sto05].

Das folgende Kapitel befasst sich mit der systematischen Untersuchung der Kerneigenschaften der Cadmiumisotope mittels kollinearer Laserspektroskopie. Zunächst werden die für die Spektroskopie der Cadmiumatome speziellen experimentellen Gegebenheiten am COLLAPS Experiment erläutert. Anschließend wird ein Überblick über die Auswertung der Resonanzspektren

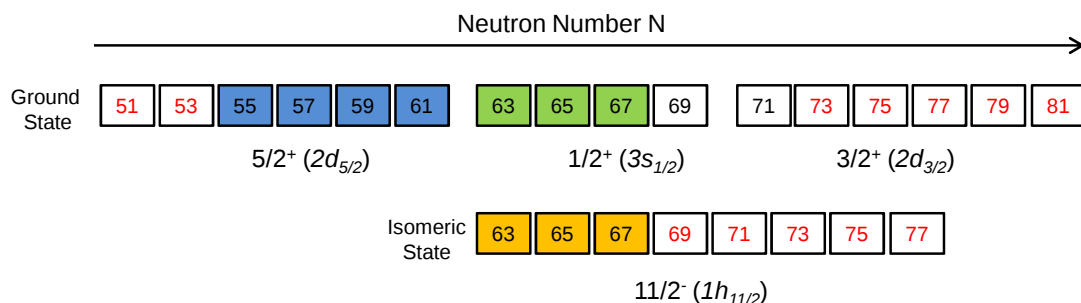


Abbildung 6.1.: Übersicht über die ungeraden Cadmiumisotope zwischen den *magischen* Neutronenzahlen $N = 50$ und $N = 82$. Neben dem Grundzustand sind auch die langlebigen Isomere mit Kernspin $I = 11/2^-$ dargestellt. Die Isotope, deren Kernspin zuvor noch nicht experimentell bestimmt wurde, sind rot dargestellt. Für die bunt hinterlegten Isotope waren die Momente bereits bekannt [Sto05].

gegeben. Die aus den Spektren extrahierten Kernspins, Hyperfeinstrukturparameter und Isotopieverschiebungen sowie die daraus bestimmten Hyperfeinanomalien, magnetischen Momente, elektrischen Quadrupolmomente und Ladungsradien werden schließlich in Kapitel 6.3 ausführlich diskutiert und interpretiert.

6.1. Spektroskopie an Cadmiumatomen an COLLAPS

Im August 2011 und April 2012 fanden insgesamt drei Strahlzeiten zur kollinearen Laserspektroskopie von Cadmium am COLLAPS Experiment an ISOLDE statt. In der ersten Strahlzeit wurde am Atom, in den beiden anderen Strahlzeiten am ionischen System spektroskopiert. Insgesamt konnten die Grundzustände der Isotope $^{100-130}\text{Cd}$ sowie die langlebigen Isomere $^{111\text{m}-129\text{m}}\text{Cd}$ untersucht werden. Hierbei konnte der $I = 11/2^-$ Zustand der Isotope ^{127}Cd und ^{129}Cd erstmals *direkt* nachgewiesen werden. Für die Spektroskopie am Atom wurde der Übergang aus dem metastabilen $5s5p\ ^3\text{P}_2$ Zustand (31826.952 cm^{-1}) in den angeregten $5s6s\ ^3\text{S}_1$ Zustand (51483.980 cm^{-1}) gewählt (siehe Abbildung 6.2). Die Energiedifferenz von $\lambda^{-1} = 19657.028\text{ cm}^{-1}$ entspricht einer Übergangswellenlänge von 508.7 nm. Die Laserspektroskopie am Ion erfolgte am Übergang $5s\ ^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 5p\ ^2\text{P}_{3/2}$ mit einer Wellenlänge von 215 nm. Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Spektroskopie am Atom, bei der die Isotope $^{106-124,126}\text{Cd}$ und die $I = 11/2^-$ Isomere $^{111\text{m}-123\text{m}}\text{Cd}$ untersucht werden konnten. Bei den Messungen am Atom muss beachtet werden, dass der Ladungsaustausch immer mit Verlusten einhergeht, da nicht alle Ionen neutralisiert werden. Außerdem resultiert der Ladungsaustausch in der Besetzung zahlreicher elektronischer Zustände, wodurch die Effizienz der Laserspektroskopie weiter reduziert wird. Um auch die Isotope mit kleinerer Produktionsrate untersuchen zu können, wurde daher in den beiden folgenden Strahlzeiten ein ionischer Übergang gewählt. Hierzu war zuvor die Entwicklung eines Lasersystems mit Frequenzvervierfachung nötig [Kri12, Ham13]. Die Ergebnisse der Spektroskopie am Cadmiumion sind in [Yor13a] und [Ham13] ausführlich besprochen.

Für die Spektroskopie am Atom wurden die Cadmiumisotope an ISOLDE mit einem Target aus Urancarbid (UC_x) erzeugt. Die Ionisation erfolgte mit der resonanten Laserionenquelle RILIS über ein dreistufiges Ionisationsschema [ISO13]. Während der Strahlzeit wurde für ^{111}Cd eine Produktionsrate von $5 \cdot 10^7$ Ionen/ μC bestimmt. Die Ionen wurden auf eine Energie von 50 keV beschleunigt und anschließend über den GPS Massenseparator zum COLLAPS Experiment geleitet. In der COLLAPS Strahlstrecke wurden die Ionen schließlich unmittelbar vor dem optischen Nachweissystem durch Wechselwirkung mit Natriumdampf in einer Ladungsaustauschzelle neutralisiert. Bei dem Ladungsaustausch wurde neben dem atomaren Grundzustand unter anderem der für die Spektroskopie verwendete metastabile $5s5p\ ^3\text{P}_2$ Zustand bevölkert. Die Energie dieses elektronischen Zustands relativ zum Grundzustand beträgt 3.95 eV [Kra13]. Daraus ergibt sich eine Energiedifferenz zum einfachen Ionisationspotential von $\Delta E = 5.04\text{ eV}$ (siehe Abbildung 6.2). Da dies annähernd der Ionisationsenergie von Natrium von 5.14 eV [Kra13] entspricht, ist der Ladungsaustausch in diesem Fall nahezu resonant. Dies gilt allerdings auch für die beiden anderen Feinstrukturzustände dieses Niveaus $5s6s\ ^3\text{P}_0$ und $5s6s\ ^3\text{P}_1$. Der für die Spektroskopie gewählte $5s5p\ ^3\text{P}_2$ Zustand hat von diesen drei Zuständen jedoch die höchste Multiplizität. Zudem besitzt der gewählte Übergang aus dem $5s5p\ ^3\text{P}_2$ in den $5s6s\ ^3\text{S}_1$ Zustand gemäß der LS-Kopplungsregeln mit $\Delta J = \Delta L$ die größte Intensität. Die Beteiligung des s -Zustands wiederum ist von großer Bedeutung für die Sensitivität des Übergangs auf die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius. Die Spektroskopie aus dem $5s5p\ ^3\text{P}_0$ Zustand hätte zudem den Nachteil, dass in diesem Zustand das spektroskopische Quadrupolmoment nicht bestimmt werden kann.

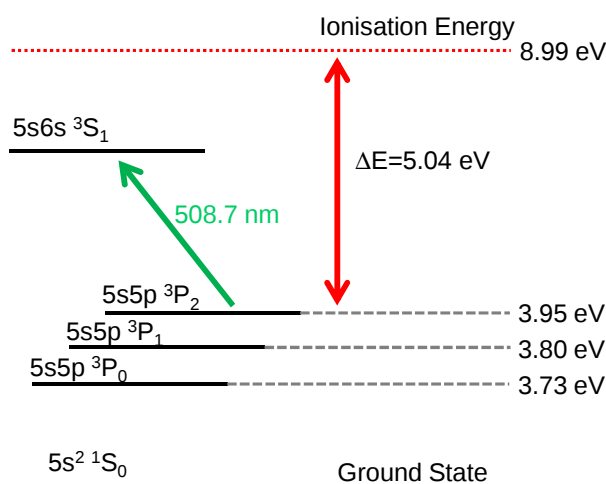


Abbildung 6.2.: Schematische Darstellung der relevanten Energieniveaus im Cadmiumatom (nicht maßstabsgetreu). Für die Spektroskopie wurde der Übergang aus dem metastabilen $5s5p\ ^3P_2$ Zustand in den angeregten $5s6s\ ^3S_1$ Zustand gewählt. Die für den Ladungsaustausch relevante Energiedifferenz zwischen Ionisationspotential und $5s5p\ ^3P_2$ Zustand beträgt 5.04 eV und entspricht somit annähernd der Ionisationsenergie von Natrium. Weitere Details siehe Text. Die Energien sind aus [Kra13] entnommen.

Das für die Spektroskopie benötigte Laserlicht der Wellenlänge von 508.7 nm wurde mit einem Farbstofflaser erzeugt, der mit dem Farbstoff Coumarin 521 betrieben und mit der 488 nm-Linie eines Argon-Ionen-Lasers gepumpt wurde. Stabilisiert wurde der Laser ebenso wie bei der Spektroskopie an Praseodym auf ein temperaturstabilisiertes Fabry-Pérot-Interferometer. Die Laserwellenlänge wurde während den Messungen mit einem Bristol Wavemeter gemessen, das gelegentlich gegen einen stabilisierten HeNe-Laser kalibriert wurde.

6.2. Auswertung der Hyperfeinstrukturspektren

Als Referenzisotop für die Isotopieverschiebung wurde das am häufigsten natürlich vorkommende Isotop ^{114}Cd gewählt. Um Effekte durch die Langzeitdrift der angelegten Spannungen oder der Laserwellenlänge zu eliminieren, wurden die anderen Isotope immer im Wechsel mit ^{114}Cd spektroskopiert. Bei den ungeraden Isotopen wurde zudem die Aufnahme der komplexen Hyperfeinstruktur immer wieder unterbrochen, um ein Referenzspektrum aufzunehmen. Dies war möglich, da der GPS Massenseparator einen schnellen Wechsel zwischen den einzelnen Isotopen erlaubt.

Abbildung 6.3 zeigt ein Beispielspektrum des Referenzisotops ^{114}Cd . Es ist eine leichte Asymmetrie zu erkennen. Vermutlich kommt diese von Energieverlusten beim Ladungsaustausch, beispielsweise durch zusätzliche Stöße mit dem Natriumdampf. Für die Auswertung wurde daher ein Linienprofil bestehend aus zwei *Voigt*-Profilen mit identischen Linienbreiten gewählt. Die einzelnen Kurvenformen und das Summenspektrum (grün) sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Zunächst wurden alle Referenzspektren ausgewertet, wobei der Abstand zwischen den beiden *Voigt*-Profilen als freie Parameter in der χ^2 -Minimierung verwendet wurde. Als mittlerer Abstand aller Spektren ergab sich eine Energiedifferenz von 13.5 eV in der Scanspannung. In der

endgültigen Auswertung wurde für alle Resonanzen der Abstand der beiden *Voigt*-Profile auf diesen Wert festgehalten, um die Zahl der freien Parameter zu reduzieren und eine künstliche Verschiebung des Hauptmaximums durch die Variation des Nebenpeaks zu vermeiden. Die Residuen im unteren Teil der Abbildung 6.3 zeigen, dass die Resonanz sehr gut durch das resultierende Linienprofil angepasst werden kann. Dennoch ist eine geringfügige systematische Struktur im Peakzentrum zu erkennen. Diese kann durch Erhöhung der Anzahl an Nebenpeaks minimiert werden. Da dies aber gleichzeitig die Zahl der Fitparameter erhöht, wurde hier darauf verzichtet.

Die relative Amplitude des asymmetrischen Ausläufers variierte jedoch während der Strahlzeit. Dieser Umstand wird auf leichte Druckänderungen innerhalb der Ladungsaustauschzelle zurückgeführt. Um dies zu berücksichtigen, wurden für die Auswertung der Spektren die Linienbreiten und das Amplitudenverhältnis der beiden *Voigt*-Profile aus den unmittelbaren Referenzspektren übernommen. Da jeweils mindestens zwei Referenzspektren aufgenommen wurden, wurde jedes Spektrum mehrmals ausgewertet. Die über χ^2 -Minimierung extrahierten Hyperfeinstrukturparameter und der Schwerpunkt der Resonanzen wurden anschließend gemittelt und der größte Einzelfehler σ_i aus dem Fit als statistische Unsicherheit übernommen.

Für fast alle Isotope wurden mehrere Spektren aufgenommen. Aus den Ergebnissen der Einzelmessungen x_i wurde der gewichtete Mittelwert

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^N x_i \cdot \frac{1}{\sigma_i^2}}{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i^2}} \quad (6.1)$$

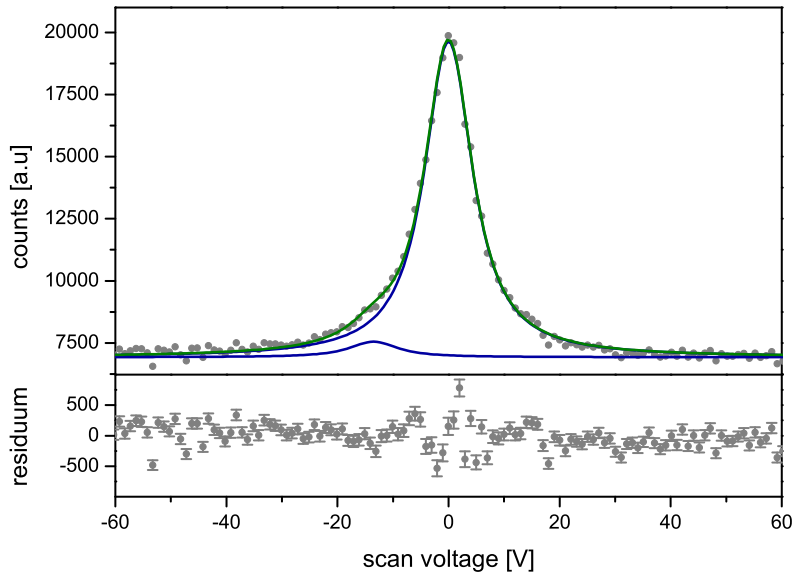


Abbildung 6.3.: Spektrum des Referenzisotops ^{114}Cd . Die grüne Kurve ist die Summe aus zwei *Voigt*-Profilen, die eine relative Position von 13.5 eV zueinander haben. Die Linienbreiten der beiden *Voigt*-Profile sind identisch.

gebildet und χ_{red}^2 gemäß

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \frac{(\bar{x} - x_i)^2}{\sigma_i^2} \quad (6.2)$$

$$\chi_{\text{red}}^2 = \frac{\chi^2}{N - 1} \quad (6.3)$$

bestimmt. Insbesondere bei den Isotopen mit hoher Statistik ergab sich häufig ein $\chi_{\text{red}}^2 > 1$, was bedeutet, dass in diesen Fällen der Fehler der Einzelmessungen unterschätzt wurde. Der Standardfehler des gewichteten Mittelwerts

$$\Delta\bar{x} = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\sigma_i^2}}} \quad (6.4)$$

wurde für diese Parameter mit $\sqrt{\chi_{\text{red}}^2}$ multipliziert, um die tatsächliche statistische Streuung zu erfassen. Für die Isotope $^{113\text{m}}\text{Cd}$, ^{119}Cd und $^{119\text{m}}\text{Cd}$ konnte jeweils nur ein Hyperfeinstrukturspektrum aufgenommen werden. Die statistischen Unsicherheiten ihrer Parameter wurden mit einem $\sqrt{\chi_{\text{red}}^2}$ von $\sqrt{6}$ skaliert. Dies ist der mittlere Wert aller Spektren, die eine ähnliche Statistik wie die Spektren der drei Isotope aufweisen.

Der Verstärkungsfaktor des Kepco BOP 500 Spannungsverstärkers wurde aus mehreren sogenannten Kepco Scans, bei denen die DAQ Spannung U_{DAQ} variiert und die tatsächlich auftretende Spannung $U_{\text{Offset}} + f_{\text{Kepco}} \cdot U_{\text{DAQ}}$ (siehe Abbildung 3.1) über einen Spannungsteiler gemessen wurde, zu $f_{\text{Kepco}} = 50.4277(24)$ bestimmt. Der angegebene Fehler berücksichtigt noch nicht die Unsicherheit des Julie Research Spannungsteilers, dessen Teilerverhältnis 1 zu 1000.0(1) beträgt. Für die Bestimmung des Verstärkungsfaktors f_{Kepco} ergibt sich daher insgesamt ein relativer Fehler von $1.2 \cdot 10^{-4}$. Die angelegte Offsetspannung U_{Offset} wurde jeweils zu Beginn eines Messdurchlaufs über den Julie Research Spannungsteiler bestimmt. Vor der Auswertung wurde die an die Quelle angelegte Beschleunigungsspannung U_{Quelle} von etwa 50 kV gemäß der Kalibration in [Kri11] um +11.7 V korrigiert.

Die Hyperfeinstrukturspektren aller Isotope bis auf ^{119}Cd wurden unter Variation der A - und B -Faktoren beider elektronischer Zustände ausgewertet. Bei der Auswertung der Spektren des Grundzustands und des Isomers von ^{119}Cd wurde die Zahl der freien Parameter um eins reduziert, indem das Verhältnis der A -Faktoren der beiden elektronischen Zustände auf den Mittelwert der übrigen Isotope fixiert wurde. Eine detaillierte Betrachtung folgt in Kapitel 6.3.2, in dem die Hyperfeinstrukturparameter ausführlich diskutiert werden.

6.3. Ergebnisse und Diskussion

6.3.1. Kernspins

Der Kernspin kann aus der Anzahl der erlaubten Übergänge und somit aus der Anzahl der Resonanzen in einem Hyperfeinstrukturspektrum bestimmt werden. Bei dem verwendeten Übergang $5s5p \ ^3\text{P}_2 \rightarrow 5s6s \ ^3\text{S}_1$ handelt es sich um einen $J = 2 \rightarrow J' = 1$ Übergang. In Abbildung 6.4 ist die daraus resultierende Hyperfeinstrukturaufspaltung für Cadmiumisotope mit Kernspin $I = 1/2$ und $I = 3/2$ schematisch dargestellt. Für einen Kernspin von $I = 1/2$ ergeben sich aufgrund der Auswahlregel $\Delta F = 0, \pm 1$ drei und für $I = 3/2$ acht erlaubte Hyperfeinstrukturübergänge. Die übrigen Kernspins von $I = 5/2$, $I = 7/2$ und $I = 11/2$, die aufgrund der

beteiligten Neutronenschalen für die untersuchten Cadmiumisotope denkbar sind, führen zu jeweils neun erlaubten Übergängen. Sie können im günstigsten Fall durch die Intensitätsverhältnisse und relativen Positionen der einzelnen Resonanzen des Spektrums oder der Systematik der ermittelten Momente unterschieden werden.

Abbildung 6.5 zeigt ein Hyperfeinstrukturspektrum des Grundzustands und des Isomers von ^{119}Cd . Die neun hellblau eingefärbten Resonanzen können eindeutig dem langlebigen Isomer mit $I = 11/2$ zugeordnet werden. Zum Vergleich ist in Abbildung 6.6 ein Hyperfeinstrukturspektrum von $^{121,121\text{m}}\text{Cd}$ dargestellt. In beiden Spektren findet sich für den isomeren Zustand die gleiche Struktur, das heißt annähernd gleiche Amplitudenverhältnisse und relative Positionen der Resonanzen. Die übrigen Resonanzen, die folglich zum Grundzustand gehören, sind in beiden Spektren dunkelblau gekennzeichnet. Auf der Grundlage von γ -Spektren von ^{119}In wurde bislang ein Kernspin von $I = 1/2$ für den Grundzustand von ^{119}Cd ausgeschlossen und daher ein Kernspin von $I = 3/2$ angenommen [Sto05]. Jedoch konnten mit der Laserspektroskopie eindeutig nur drei Resonanzen nachgewiesen werden. Dies entspricht einem Kernspin von $I = 1/2$. Über die Stärke und die relative Lage der Resonanzen zueinander können sie eindeutig den einzelnen Hyperfeinstrukturübergängen zugeordnet werden. Zudem passt auch das ermittelte magnetische Moment in die Systematik der gesamten Isotopenreihe (siehe Abbildung 6.8). Der Kernspin von ^{119}Cd muss daher zu $I = 1/2$ korrigiert werden.

In Abbildung 6.6 ist deutlich zu erkennen, dass zwischen ^{119}Cd und ^{121}Cd ein Wechsel des Kernspins im Grundzustand stattfindet. Der Kernspin von ^{121}Cd ist wie erwartet $I = 3/2$. Sechs der acht erwarteten Resonanzen sind deutlich zu erkennen. Die beiden schwächsten Resonanzen würden bei etwa 2500 MHz bzw. 7500 MHz erwartet werden. Gemäß des Schalenmodells befindet sich das ungepaarte Neutron des ^{119}Cd Kerns noch in dem $3s_{1/2}$ Energieniveau. Für die Kerne ab ^{121}Cd befindet sich das ungepaarte Neutron im $2d_{3/2}$ Niveau.

Alle übrigen bereits zuvor experimentell bekannten [Sto05] oder aufgrund des Schalenmodells vorhergesagten Kernspins (siehe Abbildung 6.1) konnten anhand der Anzahl der Resonanzen und der Struktur der Spektren verifiziert werden. Eine Zusammenstellung der experimentell bestimmten Kernspins findet sich zusammen mit den bestimmten Momenten in Kapitel 6.3.4 Tabelle 6.3.

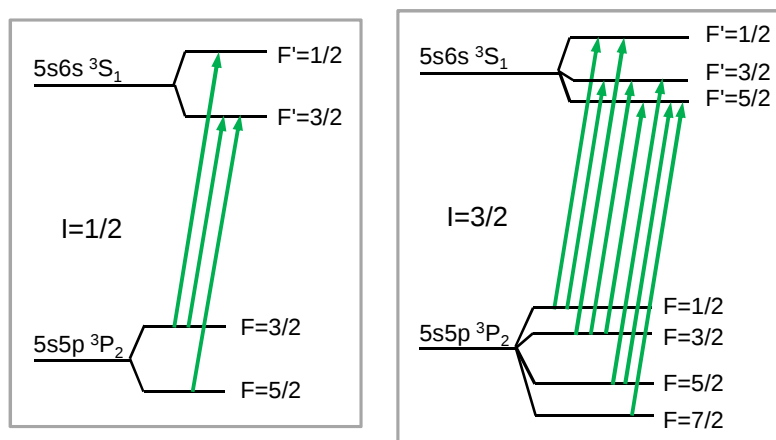


Abbildung 6.4.: Schematische Darstellung der Hyperfeinstrukturaufspaltung im Übergang $5s5p\ ^3P_2 \rightarrow 5s6s\ ^3S_1$ für Cadmiumisotope mit Kernspin $I = 1/2$ (links) und $I = 3/2$ (rechts).

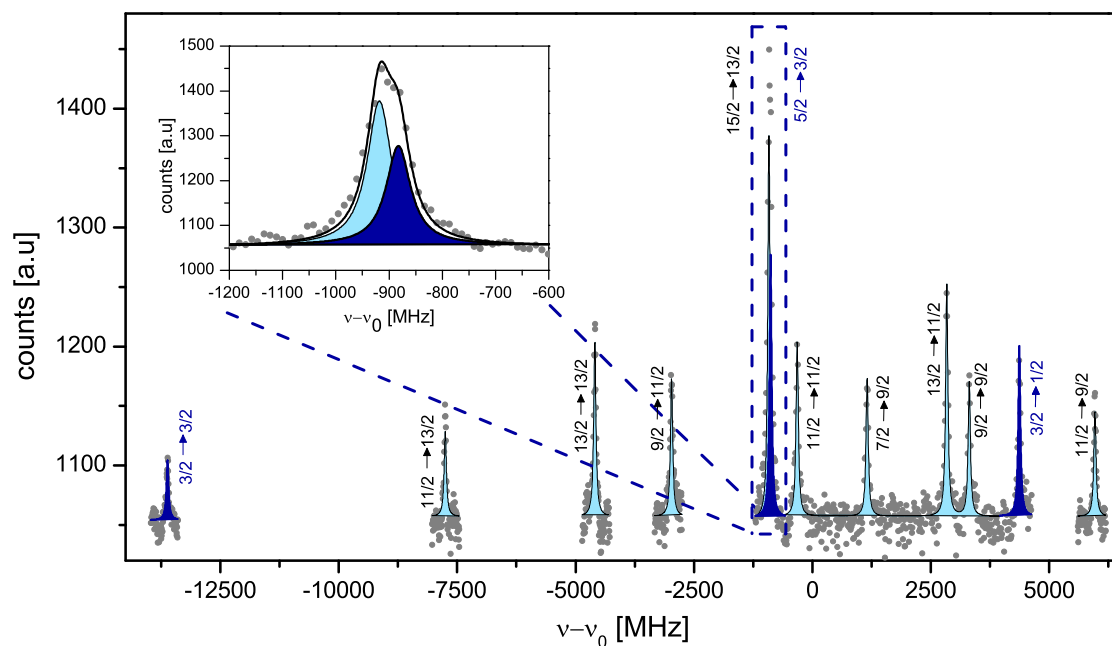


Abbildung 6.5.: Hyperfeinstrukturspektrum des Grundzustands (dunkelblau) und des Isomers (hellblau) von ^{119}Cd . Die Resonanzen sind gemäß $F \rightarrow F'$ beschriftet. Aufgrund der Anzahl der beobachteten Übergänge lässt sich dem Grundzustand eindeutig ein Kernspin von $I = 1/2$ zuordnen. Zur besseren Übersichtlichkeit wurden die Fehlerbalken der Datenpunkte nicht eingezeichnet.

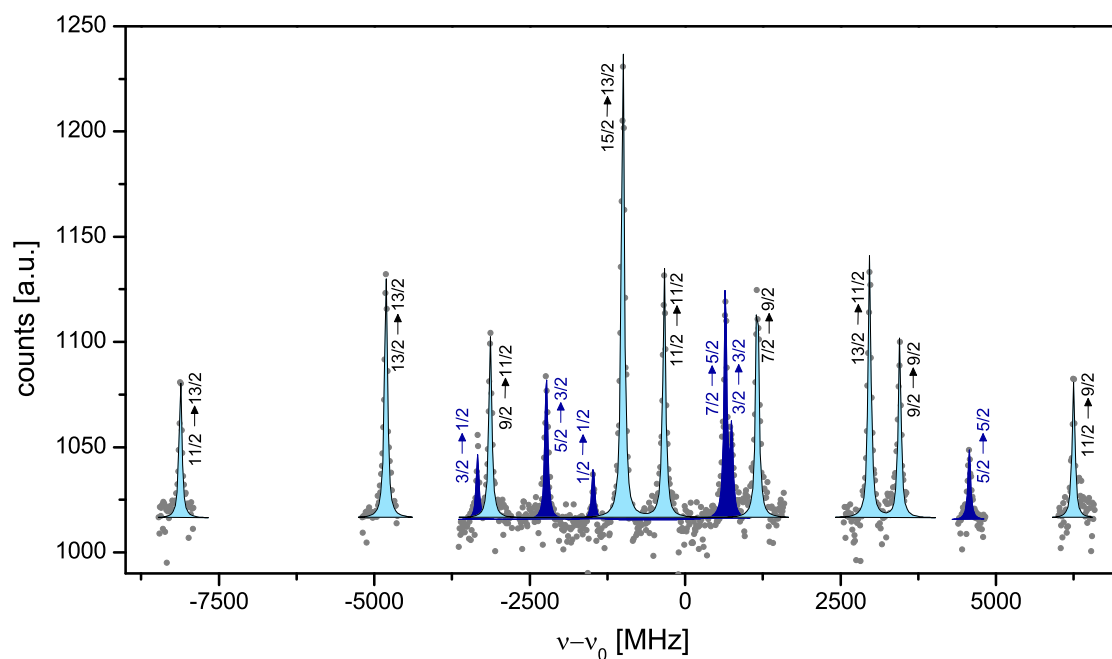


Abbildung 6.6.: Hyperfeinstrukturspektrum des Grundzustands (dunkelblau) und des Isomers (hellblau) von ^{121}Cd ($F \rightarrow F'$). Zur besseren Übersichtlichkeit wurden die Fehler der Datenpunkte nicht eingezeichnet.

6.3.2. Hyperfeinstrukturparameter

In Tabelle 6.1 sind die aus den Hyperfeinstrukturspektren extrahierten A - und B -Faktoren der ungeraden Cadmiumatome zusammengefasst. Die erste Klammer gibt den statistischen, die zweite Klammer den systematischen Fehler an. Letzterer wurde aus dem Einfluss eines fehlerhaft bestimmten Verstärkungsfaktors f_{kepcO} abgeschätzt. Ein solcher Fehler staucht bzw. streckt das Hyperfeinstrukturspektrum und wirkt sich damit linear auf die bestimmten Hyperfeinstrukturparameter aus. Der Beitrag wurde daher gemäß des relativen Fehlers von f_{kepcO} auf $\Delta A_{\text{sys}} = 1.2 \cdot 10^{-4} \cdot A$ bzw. $\Delta B_{\text{sys}} = 1.2 \cdot 10^{-4} \cdot B$ abgeschätzt. Der B -Faktor des oberen Zustands ist mit Null verträglich und besitzt eine um ein Vielfaches größere Unsicherheit. Dieser konnte deshalb mit der erreichten Auflösung nicht bestimmt werden.

In Abbildung 6.7 ist das Verhältnis der A -Faktoren der beteiligten Zustände für alle Isotope dargestellt. Bis auf den Fall ^{119}Cd ist dieses sowohl im Grund- (●) als auch im isomeren Zustand (▲) innerhalb der statistischen Unsicherheit konstant. Die gestrichelte horizontale Linie repräsentiert den gewichteten Mittelwert des Verhältnisses $A_{\text{Ratio}} = A(5s5p\ ^3P_2) / A(5s6s\ ^3S_1) = 0.42479(3)$ ohne die beiden Werte von ^{119}Cd . Für ^{119}Cd fallen die beiden stärksten Komponenten der Hyperfeinstruktur des Grundzustands und des Isomers nahezu zusammen (siehe vergrößerter Ausschnitt in Abbildung 6.5). Die Spektren des Grundzustands und des Isomers wurden wie bei den übrigen Isotopen getrennt ausgewertet. Die beiden besagten Resonanzen konnten jedoch aufgrund ihrer starken Überschneidung nicht jeweils einem Zustand klar zugeordnet werden. Die Anpassung des Linienprofils erfolgte daher an den *Doppelppeak*. Eine genauere Betrachtung der beiden resultierenden Linienprofile hat ergeben, dass die beiden Resonanzen nur schlecht erfasst werden. Zudem konvergierte in einigen Fällen der Fit nicht. Deshalb wurde eine neue Auswertung der Hyperfeinstrukturspektren des Grundzustands und des Isomers von ^{119}Cd durchgeführt, bei der das Verhältnis der A -Faktoren auf den Mittelwert der übrigen Isotope fixiert und somit die Anzahl der freien Parameter reduziert wurde. Abbildung 6.5 zeigt, dass mit dieser zusätzli-

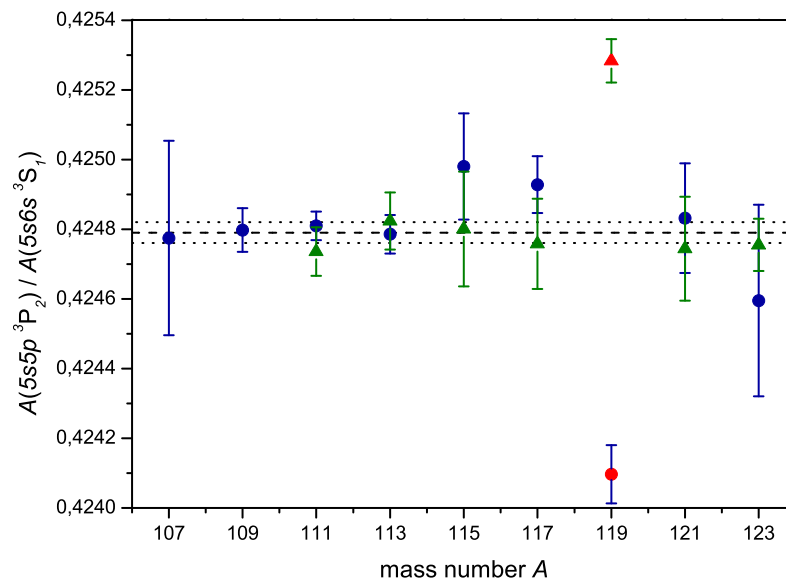


Abbildung 6.7.: Verhältnis der A -Faktoren im Grund- (●) und isomeren Zustand (▲). Die Fehlerbalken entsprechen den statistischen Unsicherheiten. Die gestrichelte horizontale Linie repräsentiert den gewichteten Mittelwert ohne die Werte von ^{119}Cd und $^{119\text{m}}\text{Cd}$.

Tabelle 6.1.: A - und B -Faktoren der Hyperfeinstrukturaufspaltung für die beiden elektronischen Zustände $5s5p\ ^3P_2$ und $5s6s\ ^3S_1$ im Cadmiumatom. Die erste Klammer gibt die statistische Unsicherheit, die zweite Klammer die systematische Unsicherheit an. Der B -Faktor des oberen Zustands ist mit Null verträglich und besitzt eine um ein Vielfaches größere Unsicherheit. Zum Vergleich sind in den letzten Zeilen zuvor bereits bekannte Literaturwerte angegeben.

$Z + N$	$5s5p\ ^3P_2$ A [MHz]	$5s6s\ ^3S_1$ A [MHz]	$5s5p\ ^3P_2$ B [MHz]	Referenz
107	-682.0 (4)(1)	-1605.6 (7) (2)	290 (3)	
109	-917.5 (1)(1)	-2159.9 (2) (3)	296 (2)	
111	-3292.7 (3)(4)	-7750.9 (4) (9)		
113	-3444.5 (4)(4)	-8108.8 (6)(10)		
115	-3588.6 (6)(4)	-8444.3(27)(10)		
117	-4116.7 (6)(5)	-9687.9(13)(12)		
119	-5091.8(10)(6)			
121	1156.4 (4)(1)	2722.0 (6) (3)	-141 (7)	
123	1457.2 (8)(2)	3431.9(13) (4)	31 (4)	
111m	-556.5 (1)(1)	-1310.3 (1) (2)	-363 (2)	
113m	-547.8 (1)(1)	-1289.5 (1) (2)	-299 (2)	
115m	-524.3 (2)(1)	-1234.2 (2) (1)	-234 (2)	
117m	-502.0 (1)(1)	-1181.8 (2) (1)	-156 (1)	
119m	-485.3 (2)(1)		-67 (1)	
121m	-508.5 (1)(1)	-1197.2 (3) (1)	3 (3)	
123m	-504.0 (3)(1)	-1186.5 (5) (1)	63 (6)	
111	-3292.9364 (2)			[Fau60]
111		-7750.5(18)		[Bri76]
113	-3444.6344(16)			[Fau60]
117	-4116.1(63)	-9698 (10)		[Boo89]
117m	-501.4 (6)	-1181.5 (8)	-144(15)	[Boo89]

chen Bedingung die beiden besagten Resonanzen sehr gut angepasst werden können. Für ^{119}Cd und $^{119\text{m}}\text{Cd}$ kann daher nur jeweils ein A -Faktor angegeben werden. Der systematische Fehler berücksichtigt in diesen beiden Fällen auch die Unsicherheit des A -Faktorverhältnisses.

Zum Vergleich sind in den letzten fünf Zeilen von Tabelle 6.1 alle zuvor bekannten Literaturwerte des untersuchten Übergangs dargestellt. Sie wurden mittels Atomstrahlresonanz [Fau60], Fabry-Pérot-Interferometrie [Bri76] bzw. bereits 1989 am COLLAPS Experiment mittels kollinearer Laserspektroskopie [Boo89] bestimmt. Die hier ermittelten Werte stimmen mit diesen Literaturwerten innerhalb der Unsicherheit sehr gut überein.

6.3.3. Hyperfeinanomalien

Falls sowohl die magnetischen Momente als auch die A -Faktoren zweier Isotope mit ausreichender Genauigkeit bekannt sind, kann die differentielle Hyperfeinanomalie, der Einfluss der endlichen Ausdehnung des Kerns auf die Hyperfeinstruktur-Wechselwirkung, über die folgende Beziehung

bestimmt werden (siehe Kapitel 2.3):

$${}^1\Delta^2 = \epsilon_1 - \epsilon_2 = \frac{A_1}{A_2} \cdot \frac{I_1}{I_2} \cdot \frac{\mu_2}{\mu_1} - 1 . \quad (6.5)$$

In Tabelle 6.2 sind die differentiellen Hyperfeinanomalien der Isotope, deren magnetischen Momente sehr präzise durch Kernmagnetresonanz (NMR – engl. **n**uclear **m**agnetic **r**esonance) bekannt sind [Sto05], relativ zum Cadmiumisotop ${}^{111}\text{Cd}$ zusammengestellt. Die Genauigkeit der in dieser Arbeit ermittelten A -Faktoren ist für eine sinnvolle Bestimmung gerade ausreichend. Wie erwartet sind die Hyperfeinanomalien von ${}^{113}\text{Cd}$ und ${}^{115}\text{Cd}$ sehr klein, da diese Isotope den gleichen Kernspin besitzen und somit in erster Näherung eine ähnliche Kernmagnetisierung aufweisen sollten wie das Referenzisotop ${}^{111}\text{Cd}$. In beiden atomaren Zuständen werden die tabellierten Literaturwerte aus [Per11] für ${}^{113}\text{Cd}$ bestätigt. Größere Anomalien ergeben sich erwartungsgemäß für die Isotope mit einem anderen Kernspin. Der größte Wert wurde für ${}^{107}\text{Cd}$ ($I = 5/2$) beobachtet. Vergleicht man dies mit den Hyperfeinanomalien im $5s5p\ {}^3\text{P}_1$ Zustand aus [Per11] (siehe rechte Spalte der Tabelle 6.2), so ergibt sich auch dort ein deutlich größerer Wert für ${}^{107}\text{Cd}$ als für ${}^{113}\text{Cd}$. Allerdings wird dieser von dem Wert für ${}^{115}\text{Cd}$ übertroffen. Dies ist erstaunlich, denn die Isotope ${}^{111}\text{Cd}$ und ${}^{115}\text{Cd}$ besitzen wie bereits erwähnt den gleichen Kernspin. Der hier bestimmte Wert für den $5s5p\ {}^3\text{P}_2$ Zustand ist mehr als eine Größenordnung kleiner und innerhalb der Unsicherheit mit Null verträglich. Der große Wert für die differentielle Hyperfeinanomalie ${}^{111}\Delta^{115}$ stammt ursprünglich aus [Cha69] und wurde dort auf einen zu kleinen Wert für den A -Faktor des $5s5p\ {}^3\text{P}_1$ Zustands aus [McD64] zurückgeführt. Die Beobachtung, dass im $5s5p\ {}^3\text{P}_2$ Zustand in der Tat nur eine sehr kleine differentielle Anomalie gemessen wurde, stützt diese These. Für die Isomere ergibt sich aus dieser Analyse wie erwartet aufgrund des anderen Kernspins ($I = 11/2$) eine etwas größere Hyperfeinanomalie. Sie ist für alle Isomere etwa gleich groß und vergleichbar zu der in [Per11] angegebenen und ebenfalls aus [Cha69] stammenden differentielle Hyperfeinanomalie ${}^{111}\Delta^{113\text{m}}$ des $5s5p\ {}^3\text{P}_1$ Zustands. Der im gleichen Experiment gewonnene Wert für das Isomer ${}^{115\text{m}}\text{Cd}$ ist etwa einen Faktor 3 größer und fällt somit genau wie der Grundzustand heraus.

Weiterhin fällt auf, dass die Hyperfeinanomalien eines Isotops in den beiden untersuchten Zuständen $5s5p\ {}^3\text{P}_2$ und $5s6s\ {}^3\text{S}_1$ innerhalb der Fehler gleich groß sind. Dies erklärt, warum die

Tabelle 6.2.: Differentielle Hyperfeinanomalien der atomaren Zuständen $5s5p\ {}^3\text{P}_2$ und $5s6s\ {}^3\text{S}_1$ relativ zum Referenzisotop ${}^{111}\text{Cd}$. Die verwendeten magnetischen Momente sind in Tabelle 6.3 aufgelistet. In der rechten Spalte sind zum Vergleich die Hyperfeinanomalien des atomaren Zustands $5s5p\ {}^3\text{P}_1$ aus [Per11] dargestellt.

A	I^P	$5s5p\ {}^3\text{P}_2$	$5s6s\ {}^3\text{S}_1$	Referenz	$5s5p\ {}^3\text{P}_1$
		${}^{111}\Delta^A$ [%]	${}^{111}\Delta^A$ [%]		${}^{111}\Delta^A$ [%] [Per11]
107	$5/2^+$	-0.17(5)	-0.18(4)		-0.0958 (8)
109	$5/2^+$	-0.12(1)	-0.12(1)		-0.0912 (7)
113	$1/2^+$	0.00(1)	-0.01(1)		-0.00023(40)
115	$1/2^+$	0.01(2)	0.05(3)		0.244(65)
111m	$11/2^-$	-0.08(4)	-0.10(4)		
113m	$11/2^-$	-0.08(2)	-0.08(1)		-0.0773 (5)
115m	$11/2^-$	-0.09(4)	-0.09(2)		-0.236(90)
113	$1/2^+$	-0.00143(6)	-0.01(4)	[Per11]	

Verhältnisse der A -Faktoren für alle Isotope praktisch konstant sind, obwohl eine geringe Hyperfein-anomalie vorliegt. Dies rechtfertigt im Nachhinein das Vorgehen bei der Auswertung der Spektren von $^{119,119\text{m}}\text{Cd}$.

6.3.4. Magnetische Momente und elektrische Quadrupolmomente

Unter Vernachlässigung der Hyperfein-anomalie können die magnetischen Momente und elektrischen Quadrupolmomente über ein Referenzisotop direkt aus den A - und B -Faktoren der Hyperfeinstrukturaufspaltung berechnet werden (Gleichung 2.34 und 2.35):

$$\mu = \mu_{\text{ref}} \frac{A \cdot I}{A_{\text{ref}} \cdot I_{\text{ref}}} \quad \text{und} \quad Q = Q_{\text{ref}} \frac{B}{B_{\text{ref}}}.$$

Die Betrachtung der Hyperfein-anomalie in Kapitel 6.3.3 hat jedoch gezeigt, dass diese im untersuchten Übergang nicht vernachlässigt werden darf. Für Isotope mit gleichem Kernspin sind die differentiellen Hyperfein-anomalien relativ zu ^{111}Cd innerhalb der Fehler konstant, unterscheiden sich aber zu den Isotopen mit anderem Kernspin deutlich. Um den dadurch verursachten Fehler zu minimieren, sollte für die Berechnung der magnetischen Momente jeweils ein Resonanzisotop mit gleichem Kernspin verwendet werden.

Mithilfe der Kernmagnetresonanz (NMR) sind bereits einige magnetische Momente sehr präzise bestimmt worden. Die in Tabelle 6.3 aufgeführten Werte stammen aus [Sto05] und wurden aus dem Verhältnis der NMR Frequenzen relativ zum Proton unter Berücksichtigung der diamagnetischen Korrektur berechnet. Als Referenzisotope für die Isotope mit Kernspin $I = 3/2^+$, $I = 1/2^+$ und $I = 11/2^-$ wurden ^{109}Cd , ^{111}Cd und $^{115\text{m}}\text{Cd}$ ausgewählt, da ihre Momente jeweils den kleinsten relativen Fehler aufweisen. Weil kein magnetisches Moment eines Cadmiumisotops mit Kernspin $I = 3/2^+$ bekannt ist, wurde für diese Isotope ebenfalls ^{111}Cd als Referenz verwendet. Um die dadurch verursachte zusätzliche Unsicherheit zu berücksichtigen, wurde zu der statistischen Unsicherheit der $I = 5/2^+$ Isotope zusätzlich 0.17% des Moments quadratisch addiert. Dies entspricht der maximal beobachteten Hyperfein-anomalie aus Tabelle 6.2. Die aus den A -Faktoren der beiden elektronischen Zustände berechneten magnetischen Momente sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst. Der angegebene Fehler beinhaltet die statistische Unsicherheit der A -Faktoren. Die systematischen Unsicherheiten der A -Faktoren kompensieren sich bei der Quotientenbildung nahezu, solange keine Nichtlinearitäten in der Scanspannung auftreten – wie bei den Messungen an Praseodym (siehe Kapitel 5.2).

Wie bereits aufgrund des konstanten Verhältnisses der A -Faktoren der beiden elektronischen Zustände zu erwarten war, stimmen die beiden aus den A -Faktoren berechneten magnetischen Momente sehr gut überein. In der letzten Spalte der Tabelle 6.3 ist der gewichtete Mittelwert der beiden Werte μ_{Atom} angegeben. Es wurde jeweils die größte statistische Unsicherheit als Unsicherheit des Mittelwerts übernommen. Die ermittelten magnetischen Momente stimmen für die Isotope, bei denen ebenfalls NMR Messungen durchgeführt wurden, mit diesen überein. Die Ergebnisse der kollinearen Laserspektroskopie am Cadmiumion aus [Yor13a] sind mit den hier bestimmten Werten im Einklang (siehe Anhang A.4).

In Abbildung 6.8 sind die magnetischen Momente μ_{Atom} in Abhängigkeit von der Massen- bzw. der Neutronenzahl graphisch dargestellt. Hierbei wurden die am Cadmiumatom bestimmten magnetischen Momente μ_{Atom} aus Tabelle 6.3 durch die Ergebnisse der Spektroskopie am Ion aus [Yor13a] und [Ham13] ergänzt. Letztere sind durch die Verwendung von offenen Symbolen ($\circ$) gekennzeichnet. Die statistischen Unsicherheiten sind kleiner als die verwendeten Symbole und sind daher nicht dargestellt.

Im Einteilchenbild des Schalenmodells werden die magnetischen Momente unter der Annahme,

dass sie von dem einzelnen ungepaarten Neutron bestimmt werden, gemäß Gleichung 2.13 und 2.14 abgeschätzt. Die sogenannten *Schmidt-Werte* sind für die Zustände $2d_{5/3}$, $3s_{1/2}$ und $1h_{11/2}$ identisch und mit $\mu_{\text{sp}} = -1.91 \mu_{\text{N}}$ wesentlich kleiner als die hier gemessenen magnetischen Momente. Diese liegen wie dargestellt zwischen 30 % und 60 % des *Schmidt-Wertes*. Für den $2d_{3/2}$ Zustand liegt der *Schmidt-Wert* bei $\mu_{\text{sp}} = +1.146 \mu_{\text{N}}$. Die hier bestimmten Werte betragen zwischen 50 % und 80% dieses Wertes. Somit reproduziert das Modell lediglich den Vorzeichenwechsel zwischen $I = 1/2^+$ und $I = 3/2^+$ korrekt. Sowohl die zwei fehlenden Protonen zum magischen Schalenabschluss bei $Z = 50$ als auch die gepaarten Neutronen in den offenen Schalen werden im Einteilchen-Schalenmodell nicht berücksichtigt. Für eine bessere theoretische Beschreibung der magnetischen Momente muss die resultierende Polarisation des Restkerns durch das einzelne ungepaarte Neutron betrachtet werden.

Für die Bestimmung der elektrischen Quadrupolmomente aus den B -Faktoren wurde das elektrische Quadrupolmoment $Q_{109, \text{Ion}} = 0.604(1)(25)$ barn von ^{109}Cd , das mittels kollinearer Laserspektroskopie am Ion ermittelt wurde [Yor13a], verwendet. Die resultierenden Quadrupolmomente sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst. Die Berechnung des Referenz-Quadrupolmoments Q_{109} erfolgte mit einem elektrischen Feldgradienten für den $5p \ ^2P_{3/2}$ Zustand im Cadmiumion von $eV_{JJ}/h = 666(27)$ MHz/barn. Dieser wurde über *Dirac-Hartree-Fock* Rechnungen [Gra07] ermittelt. Hierzu wurde der atomare Strukturcode *GRASP* [Jöh07] verwendet, um die Wellen-

Tabelle 6.3.: Magnetische Momente der ungeraden Cadmiumisotope, bestimmt aus den A -Faktoren der beteiligten Zustände. Für die Berechnung der magnetischen Momente wurden abhängig vom Kernspin verschiedene Referenzisotope verwendet. Diese sind durch # gekennzeichnet. Für die Isotope mit Kernspin $I = 3/2^+$ wurde mangels einer Referenz mit gleichem Spin das magnetische Moment von ^{111}Cd gewählt. Die letzte Spalte gibt den gewichteten Mittelwert der für die beiden Zustände ermittelten Werte an.

A	I^P	$\mu_{\text{NMR}} [\mu_{\text{N}}][\text{Sto05}]$	$5s5p \ ^3P_2$	$5s6s \ ^3S_1$	$\mu_{\text{Atom}} [\mu_{\text{N}}]$
			$\mu [\mu_{\text{N}}]$	$\mu [\mu_{\text{N}}]$	
107	$5/2^+$	-0.6150554(11)	-0.6154 (3)	-0.6154 (3)	-0.6154 (3)
109	$5/2^+$	-0.8278461(15)#			
111	$1/2^+$	-0.5948861 (8)#			
113	$1/2^+$	-0.6223009 (9)	-0.6223 (1)	-0.6224 (1)	-0.6224 (1)
115	$1/2^+$	-0.6484259(12)	-0.6484 (2)	-0.6481 (2)	-0.6483 (2)
117	$1/2^+$		-0.7438 (1)	-0.7435 (2)	-0.7437 (1)
119	$1/2^+$		-0.9199 (2)		-0.9199 (2)
121	$3/2^+$		0.6268(11)	0.6267(11)	0.6268(11)
123	$3/2^+$		0.7898(14)	0.7902(14)	0.7900(14)
111m	$11/2^-$	-1.1051 (4)	-1.1051 (4)	-1.1052 (2)	-1.1052 (4)
113m	$11/2^-$	-1.0877842(17)	-1.0877 (4)	-1.0877 (2)	-1.0877 (4)
115m	$11/2^-$	-1.0410343(15)#			
117m	$11/2^-$		-0.9968 (4)	-0.9969 (2)	-0.9969 (4)
119m	$11/2^-$		-0.9636 (5)		-0.9636 (5)
121m	$11/2^-$		-1.0097 (5)	-1.0098 (3)	-1.0098 (5)
123m	$11/2^-$		-1.0007 (6)	-1.0008 (5)	-1.0008 (6)

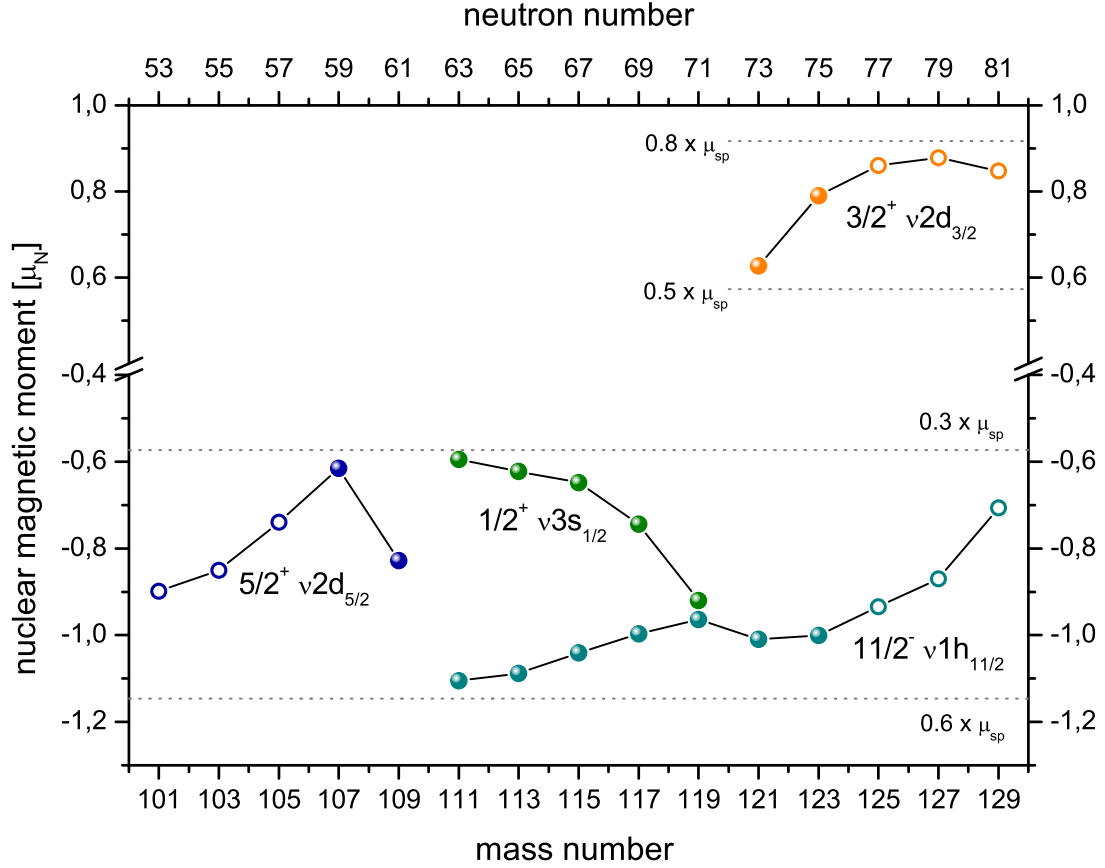


Abbildung 6.8.: Magnetische Momente von Cadmium. Die Werte der offenen Symbole (○) sind aus [Yor13a] und [Ham13] entnommen. Die Unsicherheiten der Daten sind kleiner als die verwendeten Symbole. Weitere Details siehe Text.

funktionen zu berechnen, aus denen dann die Hyperfeinfelder ermittelt werden [Bie96, Bie08]. Insgesamt wurden drei verschiedene Rechenmodelle angewendet und die Streuung der Ergebnisse für die Abschätzung der Größe des Fehlers verwendet. Für den in dieser Arbeit untersuchten $5s5p\ ^3P_2$ Zustand im Cadmiumatom wurde auf die gleiche Weise ein elektrischer Feldgradient von $eV_{JJ}/h = 500(30)$ MHz/barn berechnet. Zusammen mit dem gemessenen B -Faktor des $5s5p\ ^3P_2$ Zustands aus Tabelle 6.1 ergibt sich daraus für das Isotop ^{109}Cd ein elektrisches Quadrupolmoment von $Q_{109, \text{Atom}} = 0.592(4)(36)$ barn. Die zweite Klammer gibt den systematischen Fehler aus dem Feldgradienten an. Ein Vergleich dieses Wertes mit dem aus der Spektroskopie am ionischen System ermittelten $Q_{109, \text{Ion}} = 0.604(1)(25)$ barn [Yor13a] zeigt, dass diese innerhalb ihrer Unsicherheiten übereinstimmen. Somit sind die Berechnungen der elektrischen Feldgradienten für das Cadmiumion und das Cadmiumatom zueinander konsistent. Aufgrund des größeren systematischen Fehlers wurde der elektrische Feldgradient des elektronischen $5s5p\ ^3P_2$ Zustands für die Bestimmung der elektrischen Quadrupolmomente hier nicht verwendet. Die Berechnung erfolgte wie bereits erwähnt über den Referenzwert $Q_{109, \text{Ion}}$ und somit indirekt über den elektrischen Feldgradienten des ionischen Zustands. Die genannten Werte für die elektrischen Feldgradienten wurden von J. Bieroń [Bie13] und S. Fritzsche [Fri13] berechnet. Weitere Details finden sich in [Frö13].

Die erste Klammer der elektrischen Quadrupolmomente in Tabelle 6.4 gibt die statistische Unsi-

cherheit aus den B -Faktoren an und die zweite Klammer den systematischen Fehler, der aus der Unsicherheit des Feldgradienten bei der Berechnung des Referenzwerts resultiert. Die Isotope mit Kernspin $I = 1/2$ besitzen kein spektroskopisches Quadrupolmoment. Sie fehlen folglich in der Aufzählung. Ein Vergleich mit den Literaturwerten aus [Sto05] zeigt, dass diese vom Betrag etwa 13 % größer sind als die hier ermittelten Werte. Dies ist direkt auf die Verwendung des neu berechneten Feldgradienten zurückzuführen. Erfolgt die Berechnung der elektrischen Quadrupolmomente stattdessen mit dem 1969 bestimmten Quadrupolmoment $Q_{\text{Lit}} = 0.69(7)$ barn von ^{109}Cd als Referenzwert, werden die übrigen Literaturwerte reproduziert.

Abbildung 6.9 zeigt die elektrischen Quadrupolmomente in Abhängigkeit von der Massen- bzw. der Neutronenzahl. Ebenso wie beim magnetischen Moment wurden die Daten durch Werte aus [Yor13a] und [Ham13] ergänzt (offene Symbole $\circ$). Die statistischen Unsicherheiten sind kleiner als die verwendeten Symbole. Die Literaturwerte aus [Sto05] sind durch ($\diamond$) Symbole dargestellt. Die schon erwähnte Differenz zwischen diesen Werten und den in dieser Arbeit bestimmten ist deutlich zu erkennen. Lediglich das elektrische Quadrupolmoment von ^{103}Cd passt nicht zu dieser Systematik. Dieses besitzt allerdings auch eine wesentlich größere Unsicherheit. Abbildung 6.9 zeigt eindrucksvoll, dass die elektrischen Quadrupolmomente des $1h_{11/2}$ Zustands mit zunehmender Neutronenzahl linear ansteigen. Dies wurde bereits von M. Goepfert Meyer und J. H. D. Jensen im Rahmen des Schalenmodells wie folgt beschrieben [Goe55]: Für Kerne mit einer ungeraden Anzahl an Protonen p , die jeweils einen Gesamtdrehimpuls j besitzen und diesen zu einem Kernspin $I = j$ koppeln, ist das elektrische Quadrupolmoment gegeben durch

$$Q(p) = \frac{2j + 1 - 2p}{2j - 1} \cdot Q_{\text{sp}} . \quad (6.6)$$

Q_{sp} entspricht hierbei dem Einteilchen-Quadrupolmoment aus Gleichung 2.17. Die lineare Abhängigkeit von der Anzahl der Protonen p in der Schale ist direkt ersichtlich. Aus Gleichung 6.7 folgt unmittelbar, dass das Quadrupolmoment in der Mitte der Schale bei $p = (2j + 1)/2$ ver-

Tabelle 6.4.: Elektrische Quadrupolmomente von Cadmium – bestimmt aus den B -Faktoren des elektronischen Zustands $5s5p\ ^3\text{P}_2$. Als Referenz wurde $Q_{109} = 0.604(1)(25)$ barn aus der kollinearen Laserspektroskopie am Cadmiumion [Yor13a] verwendet. Der Fehler in der ersten Klammer entspricht der statistischen Unsicherheit der beiden B -Faktoren, der Fehler in der zweiten Klammer der systematischen Unsicherheit des Referenzwerts.

A	I^P	Q [barn]	Q_{Lit} [barn] [Sto05]
107	$5/2^+$	0.593 (7)(25)	0.68(7)
109	$5/2^+$		0.69(7)
121	$3/2^+$	-0.288(15)(12)	
123	$3/2^+$	0.063 (7) (3)	
111m	$11/2^-$	-0.742 (5)(31)	-0.85(9)
113m	$11/2^-$	-0.612 (4)(25)	-0.71(7)
115m	$11/2^-$	-0.477 (4)(20)	-0.54(5)
117m	$11/2^-$	-0.319 (2)(13)	
119m	$11/2^-$	-0.136 (3) (6)	
121m	$11/2^-$	0.007 (6) (1)	
123m	$11/2^-$	0.128(11) (5)	

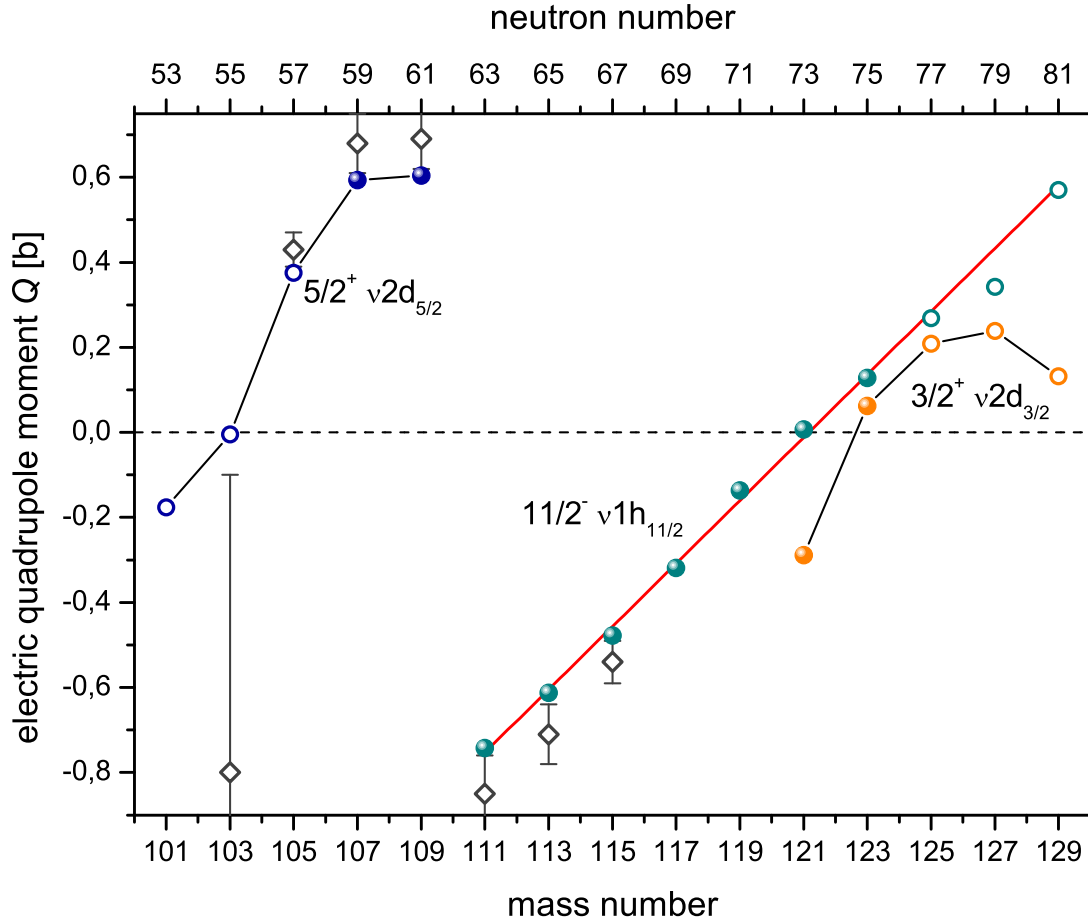


Abbildung 6.9.: Elektrische Quadrupolmomente von Cadmium. Die Werte der offenen Symbole (o) sind aus [Yor13a] und [Ham13] entnommen. Die Literaturwerte aus [Sto05] sind durch (◇) Symbole dargestellt. Die Unsicherheiten der Daten sind kleiner als die verwendeten Symbole. Weitere Details siehe Text.

schwindet. Zudem ist das elektrische Quadrupolmoment für ein Proton in der Schale ($p = 1$) gleich dem Einteilchen-Quadrupolmoment Q_{sp} und $-Q_{sp}$ für ein Loch in der Schale ($p = 2j$). Da das Einteilchen-Quadrupolmoment gemäß Gleichung 2.17 negativ ist, ergibt sich für eine weniger als halbvolle Schale ($p < (2j + 1)/2$) $Q(p) < 0$ und umgekehrt für eine mehr als halbvolle Schale ($p > (2j + 1)/2$) $Q(p) > 0$. Dies passt zu der anschaulichen Vorstellung aus dem Einteilchenbild in Abbildung 2.2.

Die hier untersuchten Cadmiumisotope besitzen allerdings eine gerade Anzahl an Protonen p und eine ungerade Anzahl an Neutronen n . Wie bereits in Kapitel 2.1.2 besprochen, wird aufgrund der verschwindenden Ladung des freien Neutrons für diese kein elektrisches Quadrupolmoment erwartet. Die Neutronen einer nicht abgeschlossenen Unterschale wechselwirken jedoch mit den Nukleonen des Restkerns und polarisieren diesen. Der Kern besitzt folglich dennoch ein nicht verschwindendes elektrisches Quadrupolmoment. Im Einteilchenbild wird dies durch die Einführung einer effektiven Ladung $e_n \neq 0$ berücksichtigt. Das elektrische Quadrupolmoment $Q(n)$ eines Kerns mit einer ungeraden Anzahl an Neutronen n kann dann ebenfalls durch Gleichung 6.6 beschrieben werden.

Allgemein lässt sich das Verhalten der elektrischen Quadrupolmomente in Abhängigkeit der

Anzahl äquivalenter Nukleonen n im Formalismus des *Seniority Schemas* wie folgt beschreiben [deS63]:

$$\langle j^n; \nu I | \widehat{Q} | j^n; \nu I \rangle = \frac{2j+1-2n}{2j+1-2\nu} \langle j^\nu; \nu I | \widehat{Q} | j^\nu; \nu I \rangle . \quad (6.7)$$

Die Zahl ν , *Seniority* genannt, ist definiert als die Anzahl ungepaarter Nukleonen. Im konkreten Fall der elektrischen Quadrupolmomente der Cadmiumisotope mit Kernspin $I = 11/2^-$ liegt folglich $\nu = 1$ vor. Somit reduziert sich Gleichung 6.7 hier zu Gleichung 6.6.

Die maximale Kapazität der $1h_{11/2}$ Schale beträgt $n_{\max} = 2j+1 = 12$ Neutronen. Dies entspricht insgesamt einer Anzahl an sechs Neutronenpaaren und folglich müssten sechs Quadrupolmomente zu beobachten sein, die dieser Linearität folgen. Erstaunlicherweise geht die Gerade mit zehn Quadrupolmomenten jedoch weit über die maximale Kapazität der Schale hinaus. Dies lässt sich unter der Annahme deuten, dass die benachbarten Unterschalen $3s_{1/2}$, $2d_{3/2}$, $2d_{5/2}$ und die $1h_{11/2}$ Schale für Neutronenpaare energetisch nahezu entartet sind und eine Art *Superschale* bilden. Das einzelne ungepaarte Neutron muss sich aufgrund des Kernspins und der Parität jedoch immer in der $1h_{11/2}$ Schale befinden. Unter der Voraussetzung, dass die Schale bei der magischen Zahl $N = 82$ abgeschlossen ist, kann nach [Yor13a] eine effektive Neutronenbesetzungszahl

$$n' = 1 + p(A - A_0) \quad (6.8)$$

mit $A = N + Z$, $A_0 = 111$ und $p = 5/9$ eingeführt werden. Letzteres ist dann als Wahrscheinlichkeit für die Anwesenheit eines Neutronenpaares in der $1h_{11/2}$ Unterschale zu interpretieren. Sie ist gleich der maximal möglichen Anzahl an Neutronenpaaren zusätzlich zu dem ungepaarten Neutron in der $1h_{11/2}$ Schale geteilt durch die Anzahl an möglichen Neutronenpaaren zwischen ^{111}Cd und ^{129}Cd . Während sich für $A = 111$ genau wie gefordert ein Neutron in der Schale befindet, fehlt für $A = 129$ mit $n' = 11$ ein Neutron zum Schalenabschluss. Alternativ können die Unterschalen zu einer *Superschale* zusammengefasst gedeutet werden. Aus der Anzahl der beobachteten Quadrupolmomente und der Annahme eines Schalenabschlusses bei $N = 82$ beträgt die maximale Kapazität dieser *Superschale* 20 Neutronen. Wird die maximale Besetzung einer Unterschale $2j+1$ in Gleichung 6.6 durch diese Zahl ersetzt, so ergibt sich

$$Q(n) = \frac{20-2n}{18} \cdot Q_{\text{sp}} . \quad (6.9)$$

Das Quadrupolmoment sollte wie oben diskutiert in der Mitte der Schale bei $A = 120$ ($n = 10$) verschwinden und Q_{111} ($n = 1$) sollte gleich $-Q_{129}$ ($n = 19$) sein. Dies ist in Abbildung 6.9 nicht ganz der Fall. Bei der Bestimmung des Einteilchen-Quadrupolmoments Q_{sp} aus den Daten wurde dies durch einen konstanten Offset Q_{const} berücksichtigt. Aus den mittels linearer Anpassung (rote Gerade in Abbildung 6.9) ermittelten Werten $Q_{111} = -0.752(32)$ barn und $Q_{120} = Q_{\text{const}} = -0.085(8)$ barn [Yor13a] ergibt sich ein Einteilchen-Quadrupolmoment von $Q_{\text{sp}} = -0.667(31)$ barn. Im Schalenmodell wird das Quadrupolmoment Q_{sp} gemäß Gleichung 2.17 über das radiale Moment des Nukleons im Orbital, das heißt den mittleren quadratischen Radius des Orbitals, $\langle r_j^2 \rangle$ berechnet. Unter der Annahme, dass es sich um einen sphärischen Kern mit gleichförmiger Ladungsverteilung handelt, kann dieser auf $5/3$ des mittleren quadratischen Ladungsradius von ^{111}Cd $\langle r^2 \rangle^{111} = 20.986 \text{ fm}^2$ [Fri95] abgeschätzt werden. Für Q_{sp} folgt daraus ein Wert von $-e_j \cdot (2j-1)/(2j+2) \langle r_j^2 \rangle = -0.269$ barn. Ein Vergleich mit dem aus den gemessenen Daten bestimmten Quadrupolmoment ergibt eine recht große effektive Ladung von $e_n = 2.5 e$. Dies zeigt, wie bereits aufgrund der magnetischen Momente schon vermutet, dass sich der Restkern durch das einzelne Neutron scheinbar sehr leicht polarisieren lässt.

Für ^{127}Cd wird eine kleine Abweichung vom linearen Verlauf beobachtet. Dies korreliert mit

der Beobachtung von Kautzsch *et al.* [Kau00], die in dieser Region, genauer für ^{128}Cd , mittels Gammaspektroskopie eine ungewöhnlich niedrige erste $E(2^+)$ Anregungsenergie gemessen haben (siehe Abbildung 1.5). Der Ursprung und die Bedeutung dieser beiden Abweichungen muss noch genauer untersucht werden.

6.3.5. Isotopieverschiebungen

Die Isotopieverschiebung zwischen zwei Isotopen mit Masse m_1 und m_2 lässt sich aus den Gesamtspannungen U_1 und U_2 , bei denen die Ionen mit der Laserfrequenz ν_L über die Dopplerverschiebung in Resonanz sind, gemäß der Gleichungen 2.47 bis 2.51 wie folgt berechnen:

$$\delta\nu_{\text{IS}} = \nu_L \left[\frac{eU_1 + m_1c^2}{m_1c^2} \left(1 \pm \sqrt{1 - \left(\frac{m_1c^2}{eU_1 + m_1c^2} \right)^2} \right) - \frac{eU_2 + m_2c^2}{m_2c^2} \left(1 \pm \sqrt{1 - \left(\frac{m_2c^2}{eU_2 + m_2c^2} \right)^2} \right) \right], \quad (6.10)$$

wobei das Pluszeichen einer antikollinearen Überlagerung und das Minuszeichen einer kollinearen Überlagerung des Laserstrahls mit dem Ionenstrahl entspricht.

In Tabelle 6.5 werden die entsprechend berechneten Isotopieverschiebungen $\delta\nu_{\text{IS}}^{114,A} = \nu^A - \nu^{114}$ des spektroskopierten Übergangs $5s5p \ ^3P_2 \rightarrow 5s6s \ ^3S_1$ relativ zum Grundzustand des Isotops ^{114}Cd zusammengefasst. Die erste Klammer gibt die statistische Unsicherheit aus dem Fit und die zweite Klammer die systematische Unsicherheit aus der Bestimmung der Spannungen (siehe Anhang A.3) an.

Die Literaturwerte, die in der vierten Spalte angegeben sind, stammen von Boos *et al.* [Boo89] und wurden 1989 ebenfalls am COLLAPS Experiment mittels kollinearer Laserspektroskopie gemessen. Sie stimmen mit den hier bestimmten Werten gut überein; die Genauigkeit konnte um eine Größenordnung verbessert werden. Die von Brimicombe *et al.* [Bri76] mittels Fabry-Pérot-Spektrometrie aus dem Emissionsspektrum einer Hohlkathode bestimmten Isotopieverschiebungen weichen dagegen von den Werten dieser Arbeit deutlich ab. In Abbildung 6.10 ist die Differenz der Daten aus [Bri76] und denen aus dieser Arbeit in Abhängigkeit von der Isotopieverschiebung dargestellt. Es ist eindeutig ein linearer Verlauf zu erkennen. Dies deutet auf eine fehlerhafte Kalibrierung des Fabry-Pérot-Interferometers (FPI) hin. Bei einem senkrechten Einfall des Lichts gilt für konstruktive Interferenz m -ter Ordnung die Bedingung $m\lambda_m = 2nd$. Die Aufnahme des Interferenzmusters erfolgte in [Bri76] durch Detektion der Intensität mit einem Photomultiplier wobei zur Variation des Brechungsindex n im FPI der Druck im Interferometer geändert wurde. Der Abstand d der beiden Spiegel des FPIs blieb währenddessen konstant. Die Isotopieverschiebung zwischen zwei Isotopen kann mit $\nu_m = c/\lambda_m = c m/(2nd)$ direkt aus den relativen Lagen der Maxima m -ter Ordnung im Intensitätsspektrum bestimmt werden:

$$\Delta\nu = \nu_1 - \nu_2 = \frac{c}{2d} \left(\frac{1}{n_1} - \frac{1}{n_2} \right). \quad (6.11)$$

Sowohl ein fehlerhafter Abstand d als auch ein Fehler in der Berechnung des Brechungsindex n aus dem Druck führt zur beobachteten linearen Abhängigkeit. Eine entsprechende lineare Anpassung in Abbildung 6.10 (gestrichelte Linie) ergibt eine Steigung von 0.073(9). Somit müssen die Isotopieverschiebungen aus [Bri76] mit einem Faktor von 0.927(9) korrigiert werden, damit sie mit den beiden kollinearen Laserspektroskopie Messungen übereinstimmen. Letztere wurden

in einem Abstand von rund 24 Jahren mit einem in vielerlei Hinsicht veränderten und verbesserten Aufbau durchgeführt. Eine lineare Abweichung wie hier festgestellt, könnte auch durch eine fehlerhafte Spannungsbestimmung bei der kollinearen Laserspektroskopie verursacht sein. Allerdings fand vor kurzem eine Kalibration der verwendeten Hochspannungsnetzgeräte statt [Kri11], die in die Auswertung dieser Messungen eingeflossen ist. Eine exakt gleiche Miskalibration in beiden laserspektroskopischen Messungen ist daher extrem unwahrscheinlich. Zudem kann die Übereinstimmung der Ergebnisse als starkes Indiz für die Korrektheit der kollinearen Messungen gelten.

Im Gegensatz zur Isotopieverschiebung stimmt der ebenfalls aus [Bri76] stammende A -Faktor von ^{111}Cd des elektronischen Zustands $5s6s\ ^3\text{S}_1$ mit dem mittels Laserspektroskopie bestimm-

Tabelle 6.5.: Isotopieverschiebung im Übergang $5s5p\ ^3\text{P}_2 \rightarrow 5s6s\ ^3\text{S}_1$ relativ zum Grundzustand des Isotops ^{114}Cd . Die erste Klammer gibt den statistischen Fehler und die zweite Klammer den systematischen Fehler aus der Unsicherheit in der Spannungsbestimmung an. In der dritten und vierten Spalte sind bekannte Literaturwerte angegeben.

A	$\delta\nu_{\text{IS}}^{114,A}$ [MHz]		
	diese Arbeit	[Bri76]	[Boo89]
106	-804.6 (3)(28)	-869(16)	
107	-725.7(10)(25)		
108	-591.0 (2)(21)	-638(13)	
109	-518.3 (6)(18)		
110	-384.6 (7)(14)	-417 (8)	
111	-336.7 (7)(11)	-354 (8)	
111m	-303.8 (9)(11)		
112	-183.3 (6) (7)	-201 (6)	
113	-134.8 (3) (3)	-138 (7)	
113m	-121.7 (5) (3)		
114	0.0	0	0
115	45.0 (6) (4)		
115m	44.6 (2) (4)		
116	153.3 (4) (7)	171 (6)	154 (4)
117	191.7 (6)(11)		
117m	187.1 (1)(11)		
118	276.7 (6)(14)		284(10)
119	316.7(20)(18)		
119m	310.9(19)(18)		
120	386.8(14)(21)		393(12)
121	424.5(12)(25)		
121m	415.9 (2)(25)		
122	484.9 (3)(29)		498(26)
123	515.0(12)(32)		
123m	511.4(21)(32)		
124	575.5 (9)(36)		
126	660.8(20)(42)		

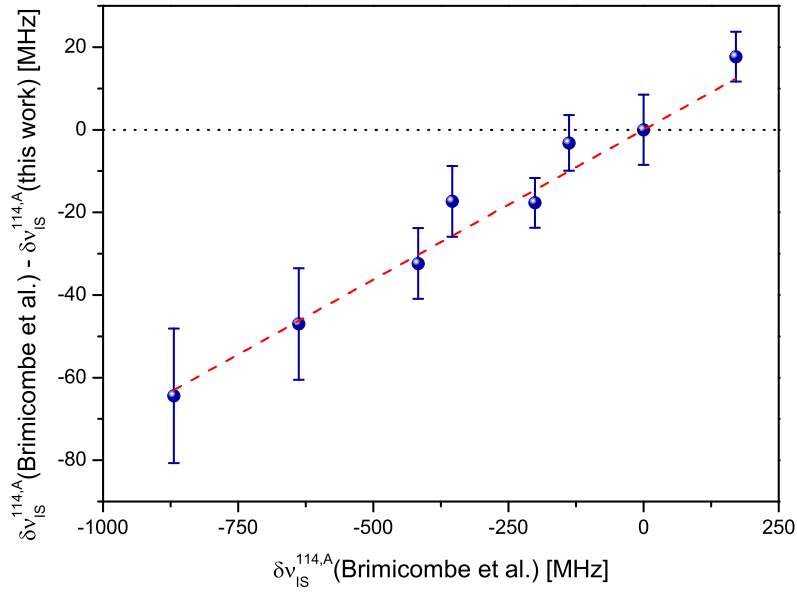


Abbildung 6.10.: Differenz der Isotopieverschiebungen aus [Bri76] und dieser Arbeit in Abhängigkeit von der Isotopieverschiebung. Die lineare Anpassung hat eine Steigung von 0.073(9).

ten Wert überein (siehe Tabelle 6.1). Dies lässt sich vermutlich dadurch erklären, dass bei der Auswertung des Hyperfeinstrukturspektrums der A -Faktor des anderen Zustands auf den sehr präzisen Wert aus [Fau60] festgehalten wurde. Daher war eine absolute Kalibrierung der Frequenzachse in diesem Fall nicht nötig.

6.3.6. Ladungsradien

Um die Differenz der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle^{114,A}$ aus den Isotopieverschiebungen $\delta\nu_{\text{IS}}^{114,A}$ bestimmen zu können, werden die Faktoren des Feldeffekts F und des Masseneffekts M benötigt. Damit diese über einen King Plot [Kin84] ermittelt werden können, müssen die Kernladungsradien von mindestens drei Isotopen bekannt sein. Die Ladungsradien der acht in der Natur vorkommenden Cadmiumisotope wurden bereits durch elastische Streuung hochenergetischer Elektronen sowie durch Spektroskopie an myonischen Atomen untersucht. Die Ergebnisse dieser Messungen wurden in [Fri95] kombiniert, um möglichst zuverlässige Ladungsradien zu erhalten. Die Analyse der Röntgenenergien myonischer Atome liefert zunächst keine zuverlässigen Ladungsradien, da diese modellabhängig sind. Die ermittelten mittleren quadratischen Ladungsradien $\langle r^2 \rangle$ hängen sehr stark von den Details der verwendeten Kernladungsverteilung ab. So ergeben sich bereits für unterschiedlich gewählte *Hautdicken* einer Fermiverteilung variierende Werte für $\langle r^2 \rangle$. R. C. Barrett konnte zeigen, dass die sogenannten *Barrett*-Momente

$$\langle r^k e^{-\alpha r} \rangle = \frac{4\pi}{Ze} \int \rho_{\text{N}}(r) r^k e^{-\alpha r} r^2 dr \quad (6.12)$$

weit weniger sensitiv auf die gewählte Form der Ladungsverteilung sind [Bar70]. Die *Barrett*-Momente können genutzt werden, um *modellunabhängig* mittels der impliziten Relation

$$\langle r^k e^{-\alpha r} \rangle = \frac{3}{R_{k\alpha}^3} \int_0^{R_{k\alpha}} r^k e^{-\alpha r} dr \quad (6.13)$$

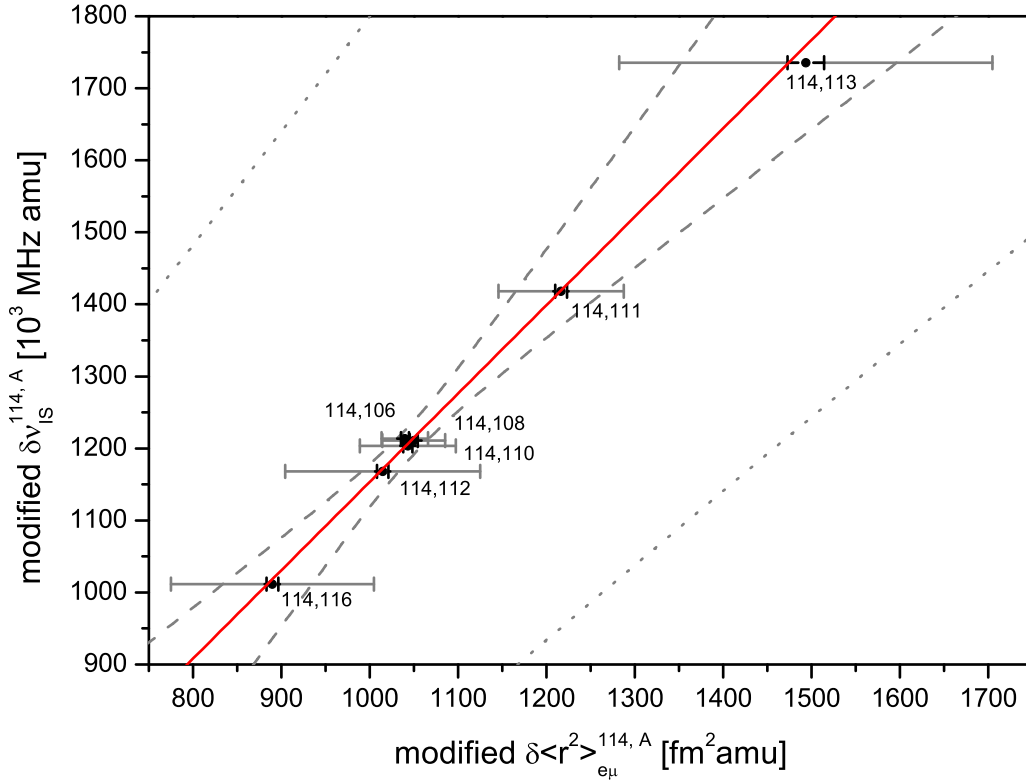


Abbildung 6.11.: King Plot des $5s5p\ ^3P_2 \rightarrow 5s6s\ ^3S_1$ Übergangs im Cadmiumatom. Die verwendeten Ladungsradien stammen aus [Fri95] und wurden aus Daten der hochenergetischen Elektronenstreuung und der Spektroskopie an myonischen Atomen berechnet. Weitere Details siehe Text.

einen äquivalenten *Barrett*-Radius $R_{k\alpha}$ zu bestimmen. Dieser entspricht dem Radius einer Kugel mit homogener Ladungsdichte, der das gleiche *Barrett*-Moment besitzt wie der reale Kern. Die Analyse der elastischen Elektronenstreuung ergibt im Prinzip alle radialen Momente $\langle r^n \rangle^{1/n}$, jedoch mit relativ großen systematischen Unsicherheiten. Sehr viel genauer lässt sich das Verhältnis $V_n^e = R_{k\alpha}^e / \langle r^n \rangle^{1/n}$ aus elektronischen *Barrett*-Radien und den n -ten radialen Momenten bestimmen. Diese Information über die radiale Abhängigkeit der Ladungsverteilung wird mit den myonischen *Barrett*-Radien $R_{k\alpha}^\mu$ zu einem mittleren quadratischen Ladungsradius

$$\langle r^2 \rangle_{e\mu}^{1/2} = R_{k\alpha}^\mu / V_2^e \quad (6.14)$$

verknüpft. Die so erhaltenen Daten für die Cadmiumisotope sind in [Fri95] tabelliert und wurden für die folgende Analyse herangezogen.

In Abbildung 6.11 ist der aus den Differenzen dieser mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta \langle r^2 \rangle_{e\mu}^{114,A}$ und den gemessenen Isotopieverschiebungen aus Tabelle 6.5 resultierende King Plot dargestellt. Gemäß Gleichung 2.38 wurden sowohl die Isotopieverschiebungen als auch die Differenzen der Ladungsradien mit dem Faktor $(m_{114} \cdot m_A) / (m_A - m_{114})$ modifiziert und gegeneinander aufgetragen. Die kleinen Fehlerbalken geben die statistische Unsicherheit der Daten, die größeren grauen Fehlerbalken die systematische Unsicherheit an. Die systematische Unsicherheit entspricht hierbei dem systematischen Fehler der *Barrett*-Radien, der auf 30 % der Kernpolarisationskorrektur abgeschätzt wurde [Fri95].

Da Cadmium über recht viele natürlich vorkommende Isotope verfügt und deren Ladungsradien mittels alternativer Methoden bestimmt waren, standen für den King Plot außergewöhnlich viele Datenpunkte zur Verfügung. Die rote Gerade in Abbildung 6.11 ist eine lineare Anpassung der Form $y = ax + b$ an die Datenpunkte. Alle sechs Datenpunkte liegen innerhalb ihrer statistischen Fehler sehr gut auf dieser Gerade. Um die Genauigkeit bei der Bestimmung der Ladungsradien aus den Isotopieverschiebungen zu erhöhen, wurde für die lineare Anpassung der Koordinatenursprung entlang der x -Achse mit $x' \rightarrow x - 1050$ in den Bereich der Datenpunkte verschoben. Zunächst wurden nur die statistischen Unsicherheiten für die lineare Anpassung berücksichtigt und daraus die Werte der Steigung a und des y -Achsenabschnitts b bestimmt. Die Abschätzung der Unsicherheiten dieser beiden Parameter erfolgte anschließend durch Wiederholung der linearen Anpassung, diesmal jedoch unter Berücksichtigung der systematischen Fehler der Isotopieverschiebungen und der wesentlich größeren systematischen Fehler der Ladungsradien. Diese wurden hierbei als vollkommen unkorreliert angenommen. Die ermittelte Steigung der Geraden entspricht dem Faktor des Feldeffekts und beträgt $a = F = 1227(349) \text{ MHz/fm}^2$. Aus dem resultierenden y -Achsenabschnitt $b = 1\,214\,910(22\,256) \text{ MHz} \cdot \text{amu}$ ergibt sich für den Masseneffekt ein Faktor von $M = b - F \cdot 1050 = (-73\,577 \pm 366\,475) \text{ MHz} \cdot \text{amu}$. Das zugehörige Konfidenzband der Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle^{114,A}$ ist in Abbildung 6.11 gestrichelt eingezeichnet. Zum Vergleich ist das Konfidenzband, das sich ergibt, wenn der Koordinatenursprung für die lineare Anpassung nicht verschoben wird, ebenfalls gepunktet dargestellt. Es wird ersichtlich, dass durch die Verschiebung des Koordinatenursprungs die Genauigkeit der aus den Isotopieverschiebungen bestimmten Ladungsradien der radioaktiven Isotope deutlich verbessert wird. Dies ist letztlich darauf zurückzuführen, dass ohne die Verschiebungen die Korrelationsinformationen verloren gehen.

Der über den King Plot bestimmte Faktor des Masseneffekts M ist die Summe aus dem Faktor des speziellen Masseneffekts S und des normalen Masseneffekts N (siehe Kapitel 2.2.2). Letzterer ist im gewählten Übergang gleich $N = m_e \cdot \nu = 323 \text{ GHz}$. Der Faktor des speziellen Masseneffekts ergibt sich somit zu $S = M - N = -397(366) \text{ GHz}$. Die große resultierende Unsicherheit zeigt, dass die beschriebene Methode zur genauen Bestimmung des speziellen Masseneffekts nicht geeignet ist. Üblicherweise ist der Faktor in diesem Massenbereich $|N| \leq |S|$. Die hier bestimmten Werte sind damit verträglich.

Die aus den Isotopieverschiebungen mit den Parametern a und b berechneten Änderungen der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle^{114,A}$ relativ zu ^{114}Cd sind in Tabelle 6.6 zusammengefasst. Wie üblich gibt der Wert in der ersten Klammer die statistische Unsicherheit, in der zweiten Klammer die systematische Unsicherheit an. Letztere setzt sich aus den Unsicherheiten der Fitparameter a und b und der systematischen Unsicherheit der Isotopieverschiebung zusammen. In Abbildung 6.12 werden die Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien im Grundzustand in Abhängigkeit von der Massenzahl bzw. der Neutronenzahl graphisch dargestellt. Die statistischen Fehler sind dabei kleiner als die verwendeten Symbole. Das hellblaue Band entspricht den systematischen Unsicherheiten. Deren Asymmetrie bzgl. des Referenzisotops mit der Massenzahl 114 rührt aus der Tatsache her, dass die Isotope mit niedriger Massenzahl im King Plot in der Nähe der stabilen Isotope und somit in der Nähe des verschobenen Koordinatenursprungs liegen. Die neutronenreichen Isotope hingegen entfernen sich mit zunehmender Massenzahl wesentlich von diesem Zentrum hin zu größeren modifizierten Isotopieverschiebungen, woraus sich die Zunahme der systematischen Unsicherheit ergibt.

Zum Vergleich sind in Abbildung 6.12 die Daten aus [Buc87] ebenfalls dargestellt (graue Datenpunkte). Diese verlaufen flacher als die hier ermittelten Werte. In [Buc87] werden die Ladungsradien aus den in einer Resonanzzelle spektroskopierten Isotopieverschiebungen des atomaren Übergangs $5s^2\ ^1S_0 \rightarrow 5s5p\ ^3P_1$ berechnet. Hierfür werden theoretische Werte des Feldeffekt-

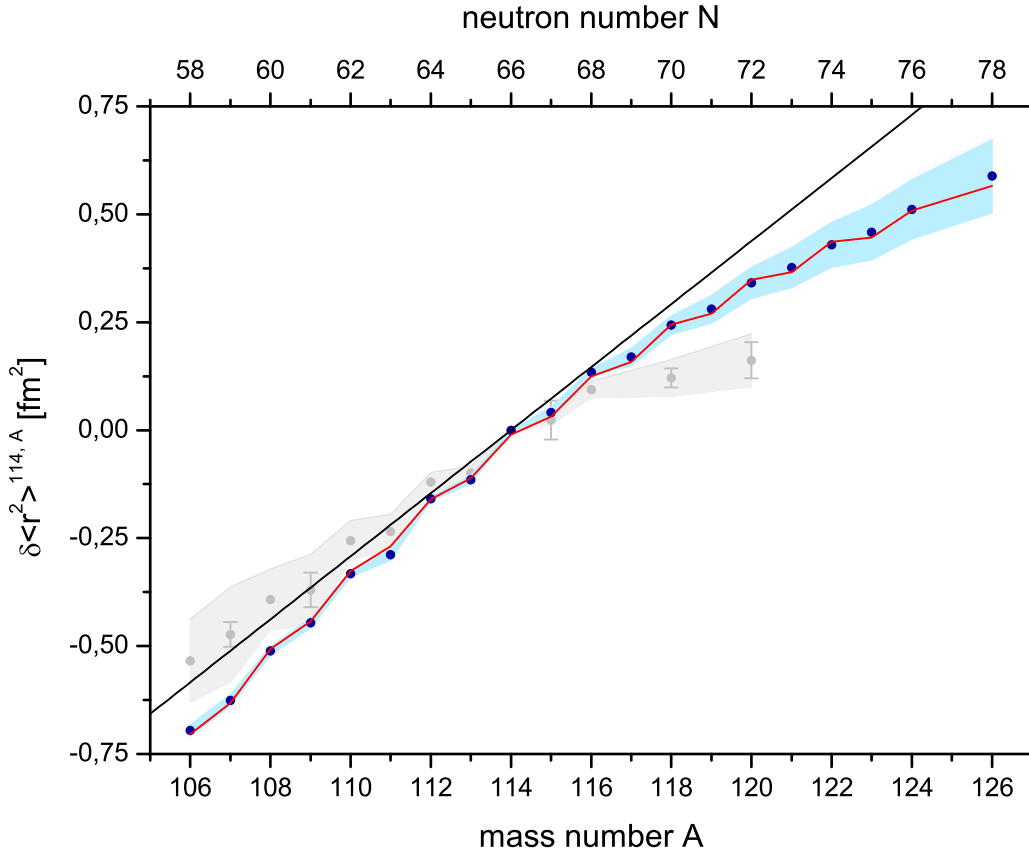


Abbildung 6.12.: Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien relativ zu ^{114}Cd (blaue Datenpunkte). Das hellblaue Band entspricht den systematischen Unsicherheiten. Die statistischen Fehler sind kleiner als die verwendeten Symbole. Die Daten aus [Buc87] sind ebenfalls dargestellt (graue Datenpunkte). Weitere Details siehe Text.

und Masseneffekt-Faktors aus [Bau85] und mehrere King Plots zwischen verschiedenen atomaren Übergängen, deren Isotopieverschiebungen aus [Bri76] stammen, verwendet. Ein direkter Vergleich der Isotopieverschiebungen aus Tabelle 6.5 und [Buc87] ist nicht möglich, da jeweils unterschiedliche atomare Übergänge spektroskopiert wurden.

Die Ladungsradien nehmen wie erwartet in einer parabolischen Form mit zunehmender Neutronenzahl zu. Der Wechsel zwischen geraden und ungeraden Isotopen (engl. odd-even staggering) ist deutlich zu erkennen. Der Verlauf von $\delta\langle r^2 \rangle^{114,A}$ in Abhängigkeit der Massenzahl A kann daher durch eine Parametrisierung der Form

$$\begin{aligned} \delta\langle r^2 \rangle^{114,A} &= \delta\langle r^2 \rangle_{\text{sph}}^{A,114} + \delta\langle r^2 \rangle_{\text{quad}}^{A,114} \\ &= a(A - 114) + b(A - 114)^2 + c + \frac{1}{2}d(1 - (-1)^A) \end{aligned} \quad (6.15)$$

beschrieben werden. Die in Abbildung 6.12 rot eingezeichnete Kurve entspricht dieser Parametrisierung. Sie wurde relativ zu ^{114}Cd durchgeführt, da dieses Isotop sich mit $N = 66$ exakt in der Mitte zwischen den beiden Schalenabschlüssen bei $N = 50$ und $N = 82$ befindet. Aus dem in Kapitel 2.1.1 beschriebenen Tröpfchenmodell nach [Mye83] mit der Parametrisierung von [Ber85] lässt sich für den untersuchten Massenbereich eine lineare Steigung von

etwa $0.073 \text{ fm}^2/\text{Neutron}$ berechnen. Die in Abbildung 6.12 zur Veranschaulichung eingezeichnete Linie entspricht dieser Abschätzung. Der lineare Parameter der angepassten Parametrisierung passt mit $a = 0.0713(4) \text{ fm}^2$ gut zu diesem Wert. Der quadratische Anteil wird durch $b = -1.94(8) \cdot 10^{-3} \text{ fm}^2$ beschrieben. Es ergibt sich ein Offset von $c = -9.8(40) \cdot 10^{-3} \text{ fm}^2$. Das *odd-even staggering* wird durch den Parameter $d = -0.028(5) \text{ fm}^2$ berücksichtigt.

Während der lineare Anteil den sphärischen Teil der Ladungsradien beschreibt, wird die Deformation durch den quadratischen Term beschrieben. Für diesen ergibt sich nach Umformen von Gleichung 6.15 relativ zu $N = 50$

$$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{quad}}^{A,114} = b(N - 50)(82 - N) = \frac{5}{4\pi} \langle r^2 \rangle_{\text{sph}} \langle \beta_2^2 \rangle^N, \quad (6.16)$$

wobei $\langle \beta_2^2 \rangle^{N=50} = \langle \beta_2^2 \rangle^{N=82} = 0$. Mit $\langle r^2 \rangle_{\text{sph}}^{N=66} = 20.576 \text{ fm}^2$ aus dem Tröpfchenmodell ergibt sich für die Massenzahl $A = 114$ ein Deformationsparameter von $\langle \beta_2^2 \rangle^{N=66} = 0.061(3)$. Buchinger *et al.* erhalten aus ihren Daten einen etwas größeren Deformationsparameter von $\langle \beta_2^2 \rangle^{N=66} = 0.078(6)$ [Buc87]. Zum Vergleich haben Buchinger *et al.* aus den $B(E2)$ Werten aus [Esa76] ebenfalls einen Deformationsparameter $\langle \beta_2^2 \rangle^{N=66} = 0.0351(3)$ berechnet. Dieser weicht stark von dem aktuellen Wert aus [Nat13] ($\langle \beta_2^2 \rangle^{N=66} = 0.0130(4)$) ab. Beide Werte jedoch sind deutlich kleiner als die aus den Ladungsradien bestimmten Deformationsparameter. Dies ist für Kerne ohne wohldefinierte Deformation nicht unüblich.

Tabelle 6.6.: Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius relativ zum Grundzustand von ^{114}Cd . Die erste Klammer gibt den statistischen Fehler, die zweite Klammer den systematischen Fehler an. Dieser setzt sich aus der Unsicherheit der Fitparameter des King Plots und aus der systematischen Unsicherheit der Isotopieverschiebung zusammen.

A	$\delta \langle r^2 \rangle^{114,A} [\text{MHz}]$	$\delta \langle r^2 \rangle^{114,Am} [\text{MHz}]$
106	-0.6954 (3)(122)	
107	-0.6258 (8)(124)	
108	-0.5109 (2) (90)	
109	-0.4466 (5)(100)	
110	-0.3326 (5) (60)	
111	-0.2886 (6)(120)	-0.2618 (7) (57)
112	-0.1588 (5) (34)	
113	-0.1145 (3) (95)	-0.1038 (4) (65)
115	0.0413 (5)(112)	0.0409 (2)(113)
116	0.1340 (3) (77)	
117	0.1698 (5)(195)	0.1660 (1)(206)
118	0.2433 (5)(206)	
119	0.2802(16)(314)	0.2755(15)(327)
120	0.3415(12)(351)	
121	0.3764 (9)(459)	0.3694 (2)(479)
122	0.4297 (3)(511)	
123	0.4582(10)(630)	0.4553(17)(121)
124	0.5115 (8)(677)	
126	0.5887(17)(842)	

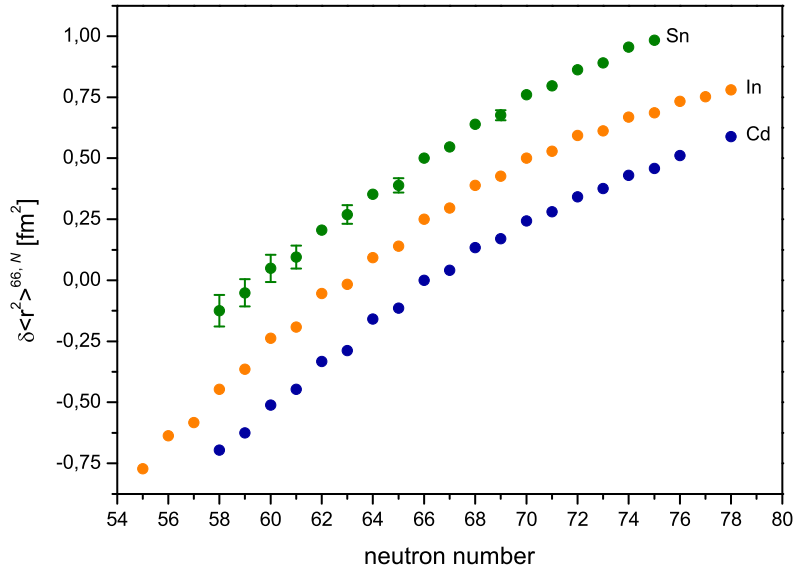


Abbildung 6.13.: Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien der Cadmium-, Indium- und Zinnisotope jeweils relativ zu dem Isotop mit Neutronenzahl $N = 66$. Zur besseren Darstellung sind die Daten der Indium- und Zinnisotope mit einem zusätzlichen Offset gegenüber den Cadmiumisotopen dargestellt. Die Daten der Indium- und Zinnisotope stammen aus [Fri95]. Die Unsicherheiten sind teilweise kleiner als die verwendeten Symbole. Alle drei Elemente zeigen eine ähnliche Abhängigkeit bzgl. der Neutronenzahl.

Zum Vergleich sind in Abbildung 6.13 die Änderungen der mittleren quadratischen Ladungsradien der Cadmiumisotope zusammen mit denen der Indium- und Zinnisotopen jeweils relativ zu dem Isotop mit Neutronenzahl $N = 66$ dargestellt. Die Daten der Indium- und Zinnisotope stammen aus [Fri95]. Sie sind jeweils mit einem zusätzlichen Offset gegenüber den Cadmiumisotopen eingezeichnet. Die Unsicherheiten der Daten sind teilweise kleiner als die verwendeten Symbole. Wie erwartet zeigt sich für alle drei Elemente ein ähnlicher Verlauf in Abhängigkeit von der Neutronenzahl.

In Abbildung 6.14 sind die hier bestimmten Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien sowie *Hartree-Fock-Bogoliubov* (HFB) Berechnungen von 2001 aus [Gor01] dargestellt. Ein Vergleich der theoretischen Rechnungen mit den experimentellen Daten zeigt, dass diese den Verlauf – bis auf das *odd-even staggering* – bis Massenzahl 112 in etwa reproduzieren. Dafür tritt für die nächsten Isotope ein viel zu stark ausgeprägtes *odd-even staggering* auf. Experimentell wurde beobachtet, dass die Änderungen der Ladungsradien mit zunehmender Neutronenzahl flacher werden. Dies kann für die HFB Berechnungen nicht festgestellt werden. Generell zeigt Abbildung 6.14, dass die theoretischen Berechnungen recht ungenau sind und die experimentellen Daten daher dringend zur Weiterentwicklung kernphysikalischer Modelle benötigt werden. In Abbildung 6.15 sind die Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien zwischen Grundzustand und Isomer

$$\delta\langle r^2 \rangle^{A, Am} = \langle r^2 \rangle^{Am} - \langle r^2 \rangle^A \quad (6.17)$$

dargestellt. Für die Isotope mit Massenzahl $A = 111$ und $A = 113$ ist die Wurzel des mittleren quadratischen Ladungsradius $\langle r^2 \rangle^{1/2}$ im isomeren Zustand größer als im Grundzustand. Allgemein ist ein parabolischer Verlauf mit einem Minimum zwischen $A = 119$ und $A = 121$ bzw.

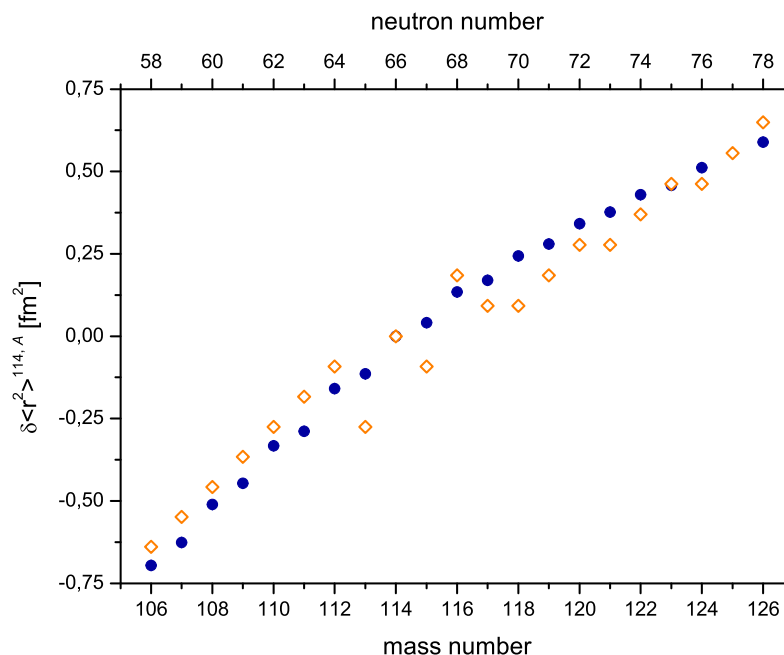


Abbildung 6.14.: Vergleich von *Hartree-Fock-Bogoliubov* Berechnungen (◇) aus [Gor01] mit den experimentell bestimmten Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien (●).

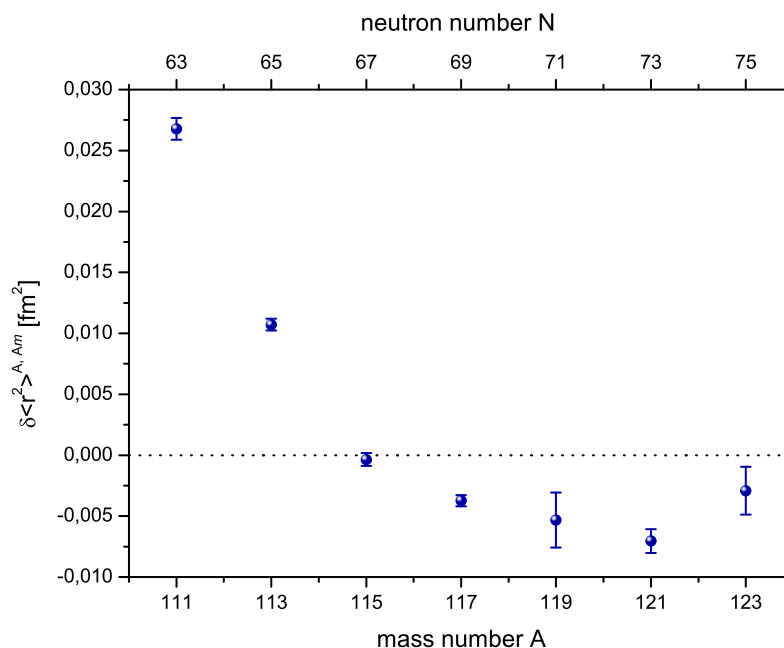


Abbildung 6.15.: Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien zwischen Grundzustand und Isomer.

$N = 71$ und $N = 73$ zu beobachten. In Kapitel 6.3.4 wurde bereits diskutiert, dass bei $A = 120$ die $h_{11/2}$ Unterschale gerade zur Hälfte mit Neutronen gefüllt ist. Für diese Beobachtungen gibt es bislang noch keine schlüssigen Erklärungen. Theoretische Berechnungen der Ladungsradien

im Grund- und isomeren Zustand werden zur Zeit durchgeführt [Rei13, Rod13]. An dieser Stelle soll angemerkt werden, dass die Anregungsenergien der Isomere bis einschließlich $^{123\text{m}}\text{Cd}$ ebenfalls einen parabolischen Verlauf zeigen – allerdings mit einem Minimum zwischen $A = 117$ und $A = 119$ [Nat13] (siehe Abbildung 1.4). Die Anregungsenergie von $^{125\text{m}}\text{Cd}$ weicht von dieser Tendenz ab.

Eine ausführlichere Diskussion der mittleren quadratischen Ladungsradien und der Differenzen zwischen Grundzustand und Isomer findet sich in [Ham13]. In dieser Arbeit werden die Ergebnisse der Laserspektroskopie am Cadmiumion präsentiert. Wie bereits zu Beginn dieses Kapitels erwähnt, konnten hierbei die Cadmiumisotope bis hin zum *magischen* Schalenabschluss bei $N = 82$ untersucht werden. Von besonderem Interesse sind die Ladungsradien der Isotope mit $N > 82$, d.h. über den *magischen* Schalenabschluss hinaus. Diese konnten aber leider bislang noch nicht spektroskopiert werden.

7. Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden erstmals neutronenarme Praseodymisotope mittels kollinearer Laserspektroskopie untersucht. Um einen geeigneten Übergang für die Spektroskopie zu bestimmen, wurden zunächst Testmessungen am TRIGA-LASER Experiment in Mainz am stabilen Isotop ^{141}Pr durchgeführt. Hierzu war zunächst der Aufbau einer neuen offline Oberflächenionenquelle zur Erzeugung eines stabilen Praseodymionenstrahls erforderlich. Diese wurde inzwischen auch erfolgreich für weitere Elemente eingesetzt. Bei den anschließenden Messungen am COLLAPS Experiment an ISOLDE konnten die magnetischen Momente von ^{135}Pr , ^{136}Pr und ^{137}Pr bestimmt werden. Leider war die Untersuchung des im Zusammenhang mit den *GSI Oszillationen* interessanten Isotops ^{140}Pr aufgrund zu geringer Produktionsraten und zu hoher radioaktiver Kontamination durch Isobare nicht möglich. Ein Letter of Intent (LOI) zur Entwicklung eines Anregungsschemas zur Laserionisation und zur Bestimmung der Produktionsrate von $^{140}\text{Pr}^+$ an der ISAC Anlage am TRIUMF wurde bereits eingereicht und genehmigt [Frö12]. Bei einer ausreichend großer Produktionsrate wird ein Proposal zur kollinearen Laserspektroskopie am CFBS Experiment eingereicht.

Neben der Entwicklung und Charakterisierung der neuen TRIGA-LASER offline Oberflächenionenquelle wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Strahlanalysesystem zur Untersuchung des Ionenstrahls am TRIGA-SPEC Experiment aufgebaut. Dieses besteht aus einem Faraday-Becher und einem Mikrokanalplattendetektor (MCP) mit eingebautem Phosphorschirm. Für die Kalibration des MCPs wurde der mit der offline Ionenquelle erzeugte Ionenstrahl gezielt mit einem Strahlabschwächer aus teiltransparenten Metallgittern bzw. Geweben abgeschwächt. Die insgesamt drei Strahlanalysesysteme, die im Rahmen dieser Arbeit und [Bey14] gebaut wurden, ermöglichen somit sowohl die Bestimmung der Stärke des Ionenstrahls als auch seine räumliche Ausdehnung. Sie sind damit ein wichtiges Hilfsmittel bei der Optimierung der Transmission des Ionenstrahls zu den beiden Telexperimenten TRIGA-LASER und TRIGA-TRAP.

Am COLLAPS Experiment wurden in insgesamt drei Strahlzeiten, eine am Atom und zwei am ionischen System, die kernphysikalischen Größen der Cadmiumisotope von $N = 52$ bis zum *magischen* Schalenabschluss bei $N = 82$ mittels kollinearer Laserspektroskopie untersucht. In dieser Arbeit werden die Ergebnisse der Spektroskopie im $5s5p\ ^3\text{P}_2 \rightarrow 5s6s\ ^3\text{S}_1$ Übergang in neutralen Cadmiumatomen vorgestellt. Unter Verwendung des GPS Massenseparators wurden die Resonanzspektren der Isotope $^{106-124,126}\text{Cd}$ und der $I = 11/2^-$ Isomere $^{111\text{m}-123\text{m}}\text{Cd}$ aufgenommen. Für alle Isotope bis auf ^{119}Cd konnten die bereits zuvor experimentell bekannten oder aus dem erweiterten Schalenmodell und den Anregungsenergien der beteiligten Niveaus abgeleiteten Kernspins bestätigt werden. Der Kernspin des Isotops ^{119}Cd wurde aufgrund der Anzahl der beobachteten Resonanzen eindeutig zu $I = 1/2$ bestimmt. Die magnetischen Dipolmomente und elektrischen Quadrupolmomente der ungeraden Cadmiumisotope wurden aus den A - und B -Faktoren der Hyperfeinstrukturaufspaltung berechnet. Als besonders interessant stellten sich die Quadrupolmomente der $I = 11/2^-$ Isomere heraus. Diese zeigen mit zunehmender Neutronenzahl einen nahezu linearen Anstieg – ein Effekt, der bereits in der Frühzeit des Schalenmodells vorgeschagt wurde, in der hier vorliegenden Güte jedoch noch niemals beobachtet wurde. Bei der Spektroskopie am Ion stellte sich heraus, dass dieses Verhalten sich sogar bis zu $^{129\text{m}}\text{Cd}$ fortsetzt [Yor13a, Ham13] und damit weit über die eigentliche Kapazität

der $1h_{11/2}$ Unterschale hinausgeht. Es wird angenommen, dass die benachbarten Unterschalen $3s_{1/2}$, $2d_{3/2}$, $2d_{5/2}$ und die $1h_{11/2}$ Unterschale für Neutronenpaare energetisch entartet sind. Das einzelne ungepaarte Neutron muss sich aufgrund des Kernspins und der Parität jedoch immer in der $1h_{11/2}$ Unterschale befinden. Eine leichte Abweichung von der Linearität ist nur für das Isomer ^{127m}Cd zu beobachten und könnte mit den in der Motivation beschriebenen Irregularitäten des $B(E2)$ Wertes für ^{128}Cd verknüpft sein.

Die aus den Isotopieverschiebungen bestimmten Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien der Grundzustände nehmen – wie auch schon für Zinn- und Indiumisotope beobachtet – in einer parabolischen Form mit zunehmender Neutronenzahl zu. Der lineare Anteil passt ausgezeichnet zu den Berechnungen des Tröpfchenmodells nach [Mye83] mit der Parametrisierung von [Ber85]. Die Radien zeigen ein leicht ausgeprägtes reguläres *odd-even staggering*. Für die Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien zwischen Grundzustand und Isomer wurde ein parabolischer Verlauf mit einem Minimum zwischen den Massenzahlen $A = 119$ und $A = 121$ beobachtet. Für die Isotope mit Massenzahl $A = 111$ und $A = 113$ ist hierbei der mittlere quadratische Ladungsradius des Isomers größer als der des Grundzustands. Aus der Spektroskopie am Ion ergibt sich auch hier eine konstante Fortsetzung dieses Verhaltens bis einschließlich ^{129}Cd [Ham13]. Dies kann bislang noch nicht erklärt werden. Theoretische Berechnungen der Radien der Grundzustände und Isomere werden zur Zeit durchgeführt [Rod13, Rei13]. Eine ausführliche Diskussion der Änderungen der mittleren quadratischen Ladungsradien bis hin zum *magischen* Schalenabschluss bei $N = 82$ findet sich in [Ham13].

Leider konnten keine Isotope mit $N > 82$, das heißt über den *magischen* Schalenabschluss hinaus, untersucht werden. Das Verhalten der kernphysikalischen Größen, insbesondere des Ladungsradius, über den Schalenabschluss hinaus ist jedoch besonders interessant, da die Frage nach einem möglichen Verschwinden des $N = 82$ Schalenabschlusses aufgeworfen wurde. Dies hätte Konsequenzen für den *r-Prozess*, wie es bereits in [Pfe97] bei der Berechnung globaler Isotopenhäufigkeiten gezeigt wurde. Daher ist geplant, die Spektroskopie an Cadmium am COLLAPS Experiment fortzuführen. Ziel ist es, neben den erwähnten neutronenreichen Isotopen die zwei fehlenden neutronenarmen Isotope zum *magischen* Schalenabschluss bei $N = 50$ zu untersuchen. Desweiteren sollen sowohl auf der neutronenarmen als auch auf der neutronenreichen Seite die Kenntnis der Grundzustandseigenschaften der *magischen* Zinnisotope ($Z = 50$) mittels kollinear Laserpektroskopie erweitert werden. Ein entsprechendes Proposal wurde bereits an ISOLDE eingereicht [Yor13b]. Aus dem Vergleich der kernphysikalischen Größen der Zinn- und Cadmiumisotope – insbesondere über die Schalenabschlüsse hinaus – können wichtige Erkenntnisse über die Kernstruktur weit ab der Stabilität gewonnen werden.

A. Anhang

A.1. Abschätzung des magnetischen Moments von ^{140}Pr

^{140}Pr besitzt 59 Protonen und 81 Neutronen und hat somit sowohl eine ungerade Anzahl an Protonen als auch an Neutronen. Sein magnetisches Moment kann daher unter Verwendung von Gleichung (2.15) über die beiden benachbarten Kerne ^{141}Pr und ^{137}Ba abgeschätzt werden:

$$\begin{aligned}
 \mu(^{140}\text{Pr}) &= \frac{I}{2} \left[\frac{\mu_p}{I_p} + \frac{\mu_n}{I_n} + \left(\frac{\mu_p}{I_p} - \frac{\mu_n}{I_n} \right) \frac{I_p(I_p + 1) - I_n(I_n + 1)}{I(I + 1)} \right] \\
 &= \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_p}{5/2} + \frac{\mu_n}{3/2} + \left(\frac{\mu_p}{5/2} - \frac{\mu_n}{3/2} \right) \frac{5/2 \cdot 7/2 - 3/2 \cdot 5/2}{1 \cdot 2} \right] \\
 &= \frac{\mu_p}{5} + \frac{\mu_n}{3} + \left(\frac{\mu_p}{5} - \frac{\mu_n}{3} \right) \frac{5}{2} \\
 &= \frac{7}{10} \mu_p - \frac{1}{2} \mu_n \\
 &\approx +2.5 \mu_N
 \end{aligned}$$

mit

$$\begin{aligned}
 I(^{140}\text{Pr}) &= 1, \\
 I_p &= I(^{141}\text{Pr}) = 5/2, \\
 I_n &= I(^{137}\text{Ba}) = 3/2, \\
 \mu_p &= \mu(^{141}\text{Pr}) = +4.2754(5) \mu_N \\
 \mu_n &= \mu(^{137}\text{Ba}) = +0.93737(2) \mu_N
 \end{aligned}$$

[Sto05].

A.2. Differentieller Dopplerfaktor

Der differentielle Dopplerfaktor $\partial\nu/\partial U$, d.h. die differentielle Änderung der Frequenz pro Änderung der Beschleunigungsspannung, ergibt sich aus der klassischen Dopplerverschiebung

$$\nu = \nu_L \left(1 \pm \frac{v}{c} \right) \quad (\text{A.1})$$

und der Näherung der Geschwindigkeit der Ionen $v \approx \sqrt{\frac{2eU}{m}}$ zu

$$\frac{\partial\nu}{\partial U} = \nu_L \cdot \frac{e}{\sqrt{2eUm}c^2} \cdot \quad (\text{A.2})$$

Für Praseodym und Cadmium ergeben sich folgende differentiellen Dopplerfaktoren:

$$\begin{aligned} \text{für } ^{141}\text{Pr bei 10 kV: } \frac{\partial \nu}{\partial U} &= 15 \frac{\text{MHz}}{\text{V}} \\ \text{für } ^{141}\text{Pr bei 50 kV: } \frac{\partial \nu}{\partial U} &= 6.7 \frac{\text{MHz}}{\text{V}} \\ \text{für } ^{114}\text{Cd bei 50 kV: } \frac{\partial \nu}{\partial U} &= 5.7 \frac{\text{MHz}}{\text{V}} \end{aligned}$$

A.3. Systematische Unsicherheiten in der Isotopieverschiebung

Im Folgenden sollen die systematischen Unsicherheiten bei der Bestimmung der Isotopieverschiebung $\delta\nu$ ausgehend von der nicht-relativistischen Dopplerformel diskutiert werden. Die Isotopieverschiebung ist nicht-relativistisch gegeben durch

$$\delta\nu = \nu_L \left(\sqrt{\frac{2eU_1}{m_1c^2}} - \sqrt{\frac{2eU_2}{m_2c^2}} \right), \quad (\text{A.3})$$

wobei $m_{1,2}$ die Massen der beiden Isotope und $U_{1,2}$ die zugehörigen Beschleunigungsspannungen in Resonanz, bzw. im Schwerpunkt des Hyperfeinübergangs, sind. Der Index 1 steht hierbei immer für das Isotop mit der größeren Massenzahl A . Mit $U_{1,2} = U_{\text{Quelle}} + U_{\text{R},2}$ und $m_2 = m_1 + \delta m$ ergibt sich

$$\delta\nu = \nu_L \sqrt{\frac{2e}{mc^2}} \left(\sqrt{U_{\text{Quelle}} + U_{\text{R}1}} - \sqrt{\frac{U_{\text{Quelle}} + U_{\text{R}2}}{1 + \delta m/m}} \right). \quad (\text{A.4})$$

Aus der Taylorentwicklung dieses Ausdrucks in U_{Quelle} und unter Verwendung der Näherung $1 - \frac{\delta m}{2m} \approx 1$ folgt

$$\delta\nu \approx \nu_L \sqrt{\frac{eU_{\text{Quelle}}}{2mc^2}} \left(\frac{\delta m}{m} - \frac{\delta U_{\text{R}}}{U_{\text{Quelle}}} \right) \quad (\text{A.5})$$

mit $\delta U_{\text{R}} = U_{\text{R}2} - U_{\text{R}1}$.

Basierend auf Gleichung A.5 kann nun der systematische Fehler in der Isotopieverschiebung bezüglich U_{Quelle} , δU_{R} , ν_L und m abgeschätzt werden. An dieser Stelle sollen nur die Unsicherheiten bzgl. U_{Quelle} und δU_{R} angegeben werden:

$$\Delta(\delta\nu)_{U_{\text{Quelle}}} = \frac{\partial(\delta\nu)}{\partial U_{\text{Quelle}}} \cdot \Delta U_{\text{Quelle}} \quad (\text{A.6})$$

$$= \frac{\nu_L}{2} \sqrt{\frac{e}{2mc^2 U_{\text{Quelle}}}} \left(\frac{\delta m}{m} + \frac{\delta U_{\text{R}}}{U_{\text{Quelle}}} \right) \cdot \Delta U_{\text{Quelle}} \quad (\text{A.7})$$

$$\Delta(\delta\nu)_{\delta U_{\text{R}}} = \frac{\partial(\delta\nu)}{\partial(\delta U_{\text{R}})} \cdot \Delta(\delta U_{\text{R}}) \quad (\text{A.8})$$

$$= \nu_L \sqrt{\frac{e}{2mc^2 U_{\text{Quelle}}}} \cdot \Delta(\delta U_{\text{R}}) \quad (\text{A.9})$$

A.4. Momente der neutronenreichen Cadmiumisotope aus der Spektroskopie am Ion

In Tabelle A.1 werden die magnetischen Momente und elektrischen Quadrupolmomente der neutronenreichen Cadmiumisotope aus [Yor13a], die durch kollineare Laserspektroskopie am Cadmiumion bestimmt wurden, zusammengefasst. Die Spektroskopie erfolgte hier aus dem Grundzustand $5s\ ^2S_{1/2}$ in den angeregten $5p\ ^2P_{3/2}$ Zustand. Als Referenzisotope für die magnetischen Momente wurden ähnlich wie beim Atom die Isotope ^{109}Cd , ^{111}Cd und $^{115\text{m}}\text{Cd}$ verwendet. Die Berechnung der elektrischen Quadrupolmomente erfolgte mit einem theoretischen elektrischen Feldgradienten von $e \cdot V_{JJ}/h = 666(27)$ MHz/barn. Die $I = 11/2^-$ Zustände der Isotope mit Massenzahl $A = 127$ und $A = 129$ wurden erstmals direkt beobachtet. Auf Grundlage der Laserspektroskopie ist eine Zuordnung, welcher der Grund- und welcher der isomere Zustand ist, nicht möglich.

Tabelle A.1.: Magnetische Momente und elektrische Quadrupolmomente der neutronenreichen Cadmiumisotope aus der Spektroskopie am Ion [Yor13a].

A	I^P	$\mu\ [\mu_N]$	$Q\ [\text{barn}]$
107	$5/2^+$	-0.6151(2)	0.601 (3)(24)
109	$5/2^+$		0.604 (1)(25)
113	$1/2^+$	-0.6224(2)	
115	$1/2^+$	-0.6483(2)	
117	$1/2^+$	-0.7436(2)	
119	$1/2^+$	-0.9201(2)	
121	$3/2^+$	0.6269(7)	-0.274 (7)(11)
123	$3/2^+$	0.7896(6)	0.042 (5) (2)
125	$3/2^+$	0.8603(6)	0.209 (4) (9)
111m	$11/2^-$	-1.1052(3)	-0.747 (4)(30)
113m	$11/2^-$	-1.0883(3)	-0.612 (3)(25)
115m	$11/2^-$		-0.476 (5)(19)
117m	$11/2^-$	-0.9975(4)	-0.320 (6)(13)
119m	$11/2^-$	-0.9642(3)	-0.135 (3) (5)
121m	$11/2^-$	-1.0100(4)	0.009 (6)
123m	$11/2^-$	-1.0015(3)	0.135 (4) (6)
125m	$11/2^-$	-0.9347(2)	0.269 (7)(11)
127	$3/2^+$	0.8783(7)	0.239 (5)(10)
127	$11/2^-$	-0.8702(3)	0.342(10)(14)
129	$3/2^+$	0.8481(8)	0.132 (7) (5)
129	$11/2^-$	-0.7063(5)	0.570(13)(23)

Literaturverzeichnis

- [Arn07] M. Arnould *et al.*, *The r-process of stellar nucleosynthesis: Astrophysics and nuclear physics achievements and mysteries*, Physics Reports **450** (2007), 97–213.
- [Bar70] R. C. Barrett, *Model-Independent Parameters of the Nuclear Charge Distribution from Muonic X-Rays*, Phys. Lett. B **33** (1970), 388–390.
- [Bau85] J. Bauche *et al.*, *Analysis of Optical Isotope Shifts in Cadmium*, Z. Phys. A - Atoms and Nuclei **320** (1985), 157–163.
- [Ber85] D. Berdichevsky und F. Tondeur, *Nuclear Core Densities, Isotope Shifts, and the Parametrization of the Droplet-Model*, Z. Phys. A - Atoms and Nuclei **322** (1985), 141–147.
- [Bey13] T. Beyer *et al.*, *An RFQ cooler and buncher for the TRIGA-SPEC experiment*, submitted to Applied Physics B: SI *Frontiers of Ion Trap and Atomic Physics: Wolfgang Paul 100* (2013).
- [Bey14] T. Beyer, Doktorarbeit, Institut für Physik, Universität Heidelberg, in Vorbereitung, 2014.
- [Bie96] J. Bieroń, P. Jönsson und C. Froese Fischer, *Large-scale multiconfiguration Dirac-Fock calculations of the hyperfine-structure constants of the $2s\ 2S_{1/2}$, $2p\ 2P_{1/2}$, and $2p\ 2P_{3/2}$ states of lithium*, Phys. Rev. A **53** (1996), 2181.
- [Bie08] J. Bieroń, C. F. Fischer, P. Jönsson und P. Pyykkö, *Comment on the magnetic hyperfine dipole interaction in the gold atom ground state*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **41** (2008), 115002.
- [Bie13] J. Bieroń, *private communication*, Instytut Fizyki imienia Mariana Smoluchowskiego, Uniwersytet Jagielloński, Krakau, Polen, 2013.
- [Bla13] K. Blaum, J. Dilling und W. Nörtershäuser, *Precision atomic physics techniques for nuclear physics with radioactive beams*, Physica Scripta **T152** (2013), 014017.
- [Boh69] A. Bohr und B. R. Mottelson, *Nuclear Structure, Vol. I*, Benjamin, New York, 1969.
- [Boo89] N. Boos, *Kollineare Laserspektroskopie an neutronenreichen Cadmiumisotopen*, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Mainz, 1989.
- [Bri76] M. S. W. M. Brimicombe *et al.*, *Optical isotope shifts and hyperfine structure in Cd*, Proc. R. Soc. Lond. A. **352** (1976), 141–152.
- [Bru85] M. Bruegger *et al.*, *Operation of a high temperature ion source at the helium-jet on-line isotope separator facility HELIOS*, Nuc. Inst. Meth. A **234** (1985), 218.
- [Buc87] F. Buchinger *et al.*, *The N-dependence of Cd mean square charge radii ($54 \leq N \leq 72$) and the nuclear moments of ^{103}Cd* , Nuclear Physics **A462** (1987), 305–332.

- [Cha69] R. L. Chaney und M. N. McDermott, *Nuclear Orientation of $^{113}\text{Cd}^m$, ^{115}Cd and $^{115}\text{Cd}^m$* , Phys. Lett. **A 29** (1969), 103.
- [Che10] B. Cheal und K. T. Flanagan, *Progress in laser spectroscopy at radioactive ion beam facilities*, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. **37** (2010), 113101.
- [Cop35] M. J. Copley und T. E. Phipps, *The Surface Ionization of Potassium on Tungsten*, Phys. Rev. **48** (1935), 960–968.
- [Dem07] W. Demtröder, *Laserspektroskopie - Grundlagen und Techniken*, 5. Auflage, Springer-Verlag, 2007.
- [deS63] A. deShalit and I. Talmi, *Nuclear Shell Theory*, Academic Press, New York, 1963.
- [Dra06] G. W. F. Drake, *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 2. Auflage, Springer-Verlag, 2006.
- [Eib13] M. Eibach, *High precision mass measurements in the realm of the deformed shell closure $N = 152$* , Doktorarbeit, Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2013.
- [Eks72] C. Ekström *et al.*, *Nuclear Spins of Neutron-deficient Pr and Nd Isotopes*, Nuclear Physics A **196** (1972), 178–196.
- [Esa76] M. T. Esat, *et al.*, *Mass dependence of the static quadrupole moments of the first 2^+ states in the cadmium isotopes*, Nucl. Physics A **274** (1976), 237–252.
- [Fau60] W. Faust *et al.*, *Hyperfine Structure of the Metastable 3P_2 State of Cd^{111} and Cd^{113}* , Phys. Rev. **120** (1960), 469.
- [Fed12] V. N. Fedosseev, Yu. Kudryavtsev und V. I. Mishin, *Resonance laser ionization of atoms for nuclear physics*, Phys. Scr. **85** (2012), 058104.
- [Fed13] S. Fedotova, *Experimental characterization of the Hitrap Cooler trap with highly charged ions*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2013.
- [Frö12] N. Frömmgen, C. Geppert, W. Nörtershäuser, M. R. Pearson, *Determination of the Magnetic Moment of ^{140}Pr by Collinear Laser Spectroscopy*, Letter of Intent to the Subatomic Physics Experiments Evaluation Committee Meeting, S1368LOI, TRIUMF, Juli 2012.
- [Frö13] N. Frömmgen *et al.*, *Collinear Laser Spectroscopy of Atomic Cadmium*, to be submitted to EPJ, 2013.
- [Fri95] G. Fricke *et al.*, *Nuclear ground state charge radii from electromagnetic interactions*, Atomic Data and Nuclear Data Tables **60** (1995), 177–285.
- [Fri13] S. Fritzsche, *private communication*, Helmholtz-Institut Jena und Theoretische-Physikalisches Institut, Universität Jena, 2013.
- [Fur01] B. Furmann *et al.*, *Hyperfine-structure measurements and new level evaluation in singly ionized praseodymium*, Eur. Phys. J. D **17** (2001), 275–284.
- [Gep00] Ch. Geppert, *Optimierung der Atomstrahlquelle und der Laser-Ionisationsregion für die resonante Laserionisations-Massenspektrometrie*, Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 2000.

- [Gin89] A. Ginibre, *Fine and Hyperfine Structures of Singly Ionized Praseodymium: I. Energy Levels, Hyperfine Structures and Zeeman Effect, Classified Lines*, Physica Scripta **39** (1989), 694–709.
- [Goe50] M. Goeppert Mayer, *Nuclear Configurations in the Spin-Orbit Coupling Model. I. Empirical Evidence*, Phys. Rev. **78** (1950), 16–21.
- [Goe55] M. Goeppert Mayer und J. H. D. Jensen, *Elementary Theory of Nuclear Shell Structure*, John Wiley & Sons, New York, 1955.
- [Gor01] S. Goriely, F. Tondeur und J. M. Pearson, *A Hartree-Fock Nuclear Mass Table*, Atomic Data and Nuclear Data Tables **77** (2001), 311–381.
- [Gor13] C. Gorges, *Verbesserung des optischen Nachweises und Charakterisierung gebunchter Ionenstrahlen am TRIGA-SPEC Experiment*, Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 2013.
- [Got10] T. Gottwald, *Studium hochkomplexer atomarer Spektren mittels Methoden der Laserresonanzionisation*, Doktorarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 2010.
- [Gra07] I. P. Grant, *Relativistic Quantum Theory of Atoms and Molecules: Theory and Computation*, Springer, New York, 2007.
- [Hak04] H. Haken und H. C. Wolf, *Atom- und Quantenphysik*, 8. Auflage, Springer-Verlag, 2004.
- [Ham10] M. Hammen, *Development, Construction and Test of an Efficient Fluorescence Detection Region for Collinear Laser Spectroscopy at TRIGA-Mainz*, Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 2010.
- [Ham13] M. Hammen, *Spins, Moments and Charge Radii of Cadmium Isotopes*, Doktorarbeit, Institut für Kernchemie, Universität Mainz, 2013.
- [Hey94] K. L. G. Heyde, *The Nuclear Shell Modell*, 2. Auflage, Springer-Verlag, 1994.
- [Hon69] R. Honig und D. Kramer, *Vapor pressure data for the solid and liquid elements*, RCA Review **30** (1969), 285–305.
- [ISO13] ISOLDE homepage, <http://isolde.web.cern.ch/ISOLDE>, 2013.
- [Jöh07] P. Jönsson, X. He and C. Froese Fischer, Comput. Phys. Commun. **176** (2007), 597.
- [Kau76] S. L. Kaufmann, *High-resolution laser spectroscopy in fast beams*, Optics Communications **17** (1976), 309–312.
- [Kau00] T. Kautzsch et al., *New states in heavy Cd isotopes and evidence for weakening of the N=82 shell structure*, Eur. Phys. J. A **9** (2000), 201–206.
- [Ket08] J. Ketelaer et al., *TRIGA-SPEC: A setup for mass spectrometry and laser spectroscopy at the research reactor TRIGA Mainz*, Nuc. Instr. Meth. A **594** (2008), 162–177.
- [Ket10] J. Ketelaer, *The construction of Triga-Trap and direct high-precision Penning trap mass measurements on rare-earth elements and americium*, Doktorarbeit, Universität Mainz, 2010.

- [Kin28] A. S. King, *Temperature Classification of the Stronger Lines of Cerium and Praseodymium*, *Astrophys. J.* **68** (1928), 194.
- [Kin84] W. H. King, *Isotope Shifts in Atomic Spectra*, Plenum Press, New York, 1984.
- [Kla94] I. Klaft *et al.*, *Precision Laser Spectroscopy of the Ground State Hyperfine Splitting of Hydrogenlike $^{209}\text{Bi}^{82+}$* , *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994), 2425–2427.
- [Klo12] A. Klose *et al.*, *Tests of atomic charge-exchange cells for collinear laserspectroscopy*, *Nucl. Instr. Meth. A* **678** (2012), 114–121.
- [Krä10] J. Krämer, *Construction and Commissioning of a Collinear Laser Spectroscopy Setup at TRIGA Mainz and Laser Spectroscopy of Magnesium Isotopes at ISOLDE (CERN)*, Doktorarbeit, Institut für Kernchemie, Universität Mainz, 2010.
- [Kra13] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader und NIST ASD Team, NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.1), <http://physics.nist.gov/asd>, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2013.
- [Kre13] K. Kreim, *Collinear Laser Spectroscopy of Potassium - Nuclear Charge Radii beyond $N = 28$* , Doktorarbeit, Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2013.
- [Kri11] A. Krieger *et al.*, *Calibration of the ISOLDE acceleration voltage using a high-precision voltage divider and applying collinear fast beam laser spectroscopy*, *Nucl. Instrum. and Meth. A* **632** (2011), 23–31.
- [Kri12] A. Krieger, *Laser systems for collinear spectroscopy and the charge radius of ^{12}Be* , Doktorarbeit, Institut für Kernchemie, Universität Mainz, 2012.
- [Lam13] G. Lambiase *et al.*, *GSI anomaly and spin-rotation coupling*, arXiv:1205.0684v2 [nucl-th], 2013.
- [Lit07] Yu. A. Litvinov *et al.*, *Measurement of the β^+ and Orbital Electron-Capture Decay Rates in Fully Ionized, Hydrogenlike, and Heliumlike ^{140}Pr Ions*, *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007), 262501.
- [Lit08] Yu. A. Litvinov *et al.*, *Observation of non-exponential orbital electron capture decays of hydrogen-like ^{140}Pr and ^{141}Pm ions*, *Phys. Lett. B* **664** (2008), 162–168.
- [Lit10] Yu. A. Litvinov, *private communication*, GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung, Darmstadt und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg, 2010.
- [Lit11] Yu. A. Litvinov and F. Bosch, *Beta decay of highly charged ions*, *Rep. Prog. Phys.* **74** (2011), 016301.
- [Mao00] Li Maosheng *et al.*, *Hyperfine-structure measurements in $^{141}\text{Pr II}$ and $^{143,145}\text{Nd II}$ by collinear laser-ion-beam-spectroscopy*, *Phys. Rev. A* **62** (2000), 052504.
- [McD64] M. N. McDermott *et al.*, *Spin and Nuclear Moments of 2.3-Day Cd^{115} and of 43-Day Cd^{115m}* , *Phys. Rev.* **134** (1964), B 25.
- [Mye83] W. D. Myers und K.-H. Schmidt, *An update on droplet-model charge distributions*, *Nuclear Physics* **A410** (1983), 61–73.

- [Nat13] National Nuclear Data Center, Information extracted from the NuDat 2.6 database, www.nndc.bnl.gov/nudat2, 2013.
- [Neu81] R. Neugart, *Laser spectroscopy on mass-separated radioactive beams*, Nucl. Instr. Meth. **186** (1981), 165–175.
- [Nör13] W. Nörtershäuser *et al.*, *First observation of the ground-state hyperfine transition in $^{209}\text{Bi}^{80+}$* , Phys. Scr. **T156** (2013), 014016.
- [Ott89] E. W. Otten, *Nuclear Radii and Moments of Unstable Isotopes in Treatise on heavy-ion science*, Plenum Publishing Corporation **8** (1989), 515–638.
- [Pat08] Z. Patyk *et al.*, *Orbital electron capture decay of hydrogen- and helium-like ions*, Phys. Rev. C **77** (2008), 014306.
- [Per11] J. R. Persson, *Table of hyperfine anomaly in atomic systems*, arXiv:1110.5991 (2011).
- [Pfe97] B. Pfeiffer, K.-L. Kratz und F.-K. Thielemann, *Analysis of the solar-system r-process abundance pattern with the new ETFSI-Q mass formula*, Z. Phys. A **357** (1997), 235.
- [Pov06] B. Povh *et al.*, *Teilchen und Kerne*, 7. Auflage, Springer-Verlag, 2006.
- [Rae10] S. Raeder, *Spurenanalyse von Aktiniden in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*, Doktorarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 2010.
- [Rei13] P. G. Reinhard, *private communication*, Institut für Theoretische Physik II, Universität Erlangen-Nürnberg, 2013.
- [Rod08] T. Rodríguez, J. L. Egido und Andrea Jungclaus, *On the origin of the anomalous behaviour of 2^+ excitation energies in the neutron-rich Cd isotopes*, Phys. Lett. B **668** (2008), 410–413.
- [Rod13] T. Rodríguez, *private communication*, Institut für Kernphysik, TU Darmstadt, 2013.
- [See98] P. Seelig *et al.*, *Ground State Hyperfine Splitting of Hydrogenlike $^{207}\text{Pb}^{81+}$ by Laser Excitation of a Bunched Ion Beam in the GSI Experimental Storage Ring*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), 4824–4827.
- [Süm00] K. Sümmerer und B. Blank, *Modified empirical parameterization of fragmentation cross sections*, Phys. Rev. C **61** (2000), 034607.
- [Ste80] E. Stender, N. Trautmann und G. Herrman, *Use of alkali halide clusters in a gas-jet recoil-transport system*, Radiochem. Radioanal. Lett. **42** (1980), 291.
- [Sto05] N. J. Stone, *Table of nuclear magnetic dipole and electric quadrupole moments*, Atomic Data and Nuclear Data Tables **90** (2005), 75–176.
- [Sym09] D. M. Symochko *et al.*, *Nuclear Data Sheets for $A=119$* , Nucl. Data Sheets **110** (2009), 2945–3105.
- [Ure32] H. C. Urey, *A Hydrogen Isotope of Mass 2*, Phys. Rev. **39** (1932), 164.
- [Web12] J. Weber, *Quantitative Abschwächung eines Ionenstrahls und Spezifikation eines Strahlanalysesystems*, Bachelorarbeit, Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik, Universität Mainz, 2012.

-
- [Wil13] E. Will, *Hochspannungsmessung mittels kollinearer Laserspektroskopie nach dem Zweikammerprinzip am TRIGA-LASER Experiment*, Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, 2013.
- [Win09] N. Winckler *et al.*, *Orbital electron capture decay of hydrogen- and helium-like ^{142}Pm ions*, Phys. Lett. B **679** (2009), 36–40.
- [Yor13a] D. T. Yordanov *et al.*, *Spins, Electromagnetic Moments, and Isomers of $^{107-129}\text{Cd}$* , Phys. Rev. Lett. **110** (2013), 192501.
- [Yor13b] D. T. Yordanov *et al.*, *Laserspectroscopy of Tin and Cadmium: Across $N = 82$ and Closing in on $N = 50$* , Proposal to the ISOLDE and Neutron Time-of-Flight Committee, INTC-P-378, European Organization for Nuclear Research, Juni 2013.

Danksagung

An erster Stelle möchte ich mich bei Prof. Dr. Wilfried Nörtershäuser recht herzlich dafür bedanken, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat, bei ihm zu promovieren. Vielen Dank für die Unterstützung während der letzten dreieinhalb Jahre, für die Hilfe und die Anregungen beim erstellen dieser Arbeit und für alles was ich von dir lernen durfte.

Mein Dank gilt zudem Prof. Dr. Klaus Blaum für seine Bereitschaft diese Arbeit als zweiter Berichterstatter zu begutachten. Insbesondere möchte ich mich noch einmal für deine Unterstützung im Rahmen der beiden Experimente an COLLAPS bedanken.

Elisa, Andreas, Christian, Christopher, Michael, Simon und den Kollegen von TRIGA-TRAP danke ich für die sehr gute und humorvolle Zusammenarbeit am TRIGA-LASER Experiment. Elisa, es hat mich sehr gefreut weibliche Unterstützung zu bekommen – und das gleich eine so liebe. Andreas, dir danke ich zu aller erst für deine Hilfe bei allem was mit Lasern zusammen hängt. Zudem möchte ich mich bei dir für die schönen Teepausen und die kleinen Leckereien, die du manchmal gebacken hast, bedanken. Unvergessen wird mir die von dir angeleierte Aktion *Black Mamba* bleiben. Christian, es hat mir sehr viel Spaß gemacht dich mit den Tücken und Eigenheiten des TRIGA-LASER Experiments vertraut zu machen. Schön, dass wir uns gleich so gut verstanden haben. Ich weiß, dass *mein* Ofen bei dir in guten Händen ist. Christopher, vielen lieben Dank für deinen unermüdlichen Einsatz – ob in Mainz oder in Genf. Ich weiß es sehr zu schätzen, dass man sich auf dich immer verlassen kann. Michael, vielen Dank für die vielen lustigen gemeinsamen Momente. Es war schön, dass wir diese Zeit gemeinsam erleben durften. Christian Novotny und Benjamin Botermann, ich habe mich immer gefreut, wenn ihr unser Büro betreten habt. Rodolfo, danke für deine Hilfsbereitschaft und für die beiden Voodoofiguren, die noch immer auf meinem Schreibtisch stehen. Den übrigen Kollegen aus der Lasersphere Gruppe möchte ich für das gute Miteinander danken. Ich habe mich stets sehr wohl gefühlt bei euch allen.

A special thank you to the COLLAPS collaboration for your support during the beamtimes. It was a great experience to work with you. Deyan, thank you for your help with all the cadmium stuff. Kim, vielen Dank für deine Herzlichkeit. Ich werde dir niemals vergessen, dass du Michael und mich vor dem Hungertod an Ostern bewahrt hast. Herr Neugart, vielen Dank für Ihre große Hilfe bei der Interpretation der Daten und die vielen anregenden Diskussionen.

Ein großer Dank geht an die Werkstätten des Institut für Kernchemie in Mainz und der GSI in Darmstadt.

Besonders herzlich möchte ich mich bei meinen Eltern, Christa und Werner, bei meinem Bruder Alexander und bei meinem Freund Martin bedanken. Es ist wundervoll zu wissen, dass ihr immer für mich da seid.