

Gespeicherte Ionen in der Paulfalle:

Voruntersuchungen zur Lebensdauerermessung des metastabilen $6D_{3/2}$ -Zustands des $^{226}\text{Ra}^+$,
Speichereigenschaften von $^{138}\text{Ba}^+$ und $^{28}\text{N}_2^+$ bei Variation des Puffergasdrucks

Dissertation
zur Erlangung des Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“

am Fachbereich Physik
der Johannes Gutenberg Universität
Mainz

Vorgelegt von

Heiko Leuthner
geb. in Mainz

Mainz, den 12.05.2011

Gespeicherte Ionen in der Paulfalle:

Voruntersuchungen zur Lebensdauerermessung des metastabilen $6D_{3/2}$ -Zustands des $^{226}\text{Ra}^+$, Speichereigenschaften von $^{138}\text{Ba}^+$ und $^{28}\text{N}_2^+$ bei Variation des Puffergasdrucks

Zusammenfassung:

Auf Paulfallen basierende Experimente spielen eine wichtige Rolle in verschiedenen Bereichen der Physik, z.B. der Atomphysik zum Test theoretischer Modelle und der Massenspektroskopie. Die vorliegende Arbeit widmet sich beiden Themengebieten und gliedert sich entsprechend in zwei Teilbereiche:

1) Erdalkali-Ionen sind aufgrund ihrer Energieniveaus optimale Kandidaten für Laserspektroskopie-Experimente mit Ionenfallen und bestens geeignet, um mittels der spektroskopischen Daten die theoretischen Modelle zu testen. Lediglich für Ra^+ fehlen bislang als einzigem Erdalkali-Ion diese Daten wie z.B. die Lebensdauern der metastabilen Niveaus. Diese wären auch von Interesse für bereits geplante Radium-Experimente zur Paritätsverletzung. Im ersten Teil dieser Arbeit wird der Aufbau eines Laser-Paulfallenexperiments zur Messung der Lebensdauer des $6D_{3/2}$ Zustands von $^{226}\text{Ra}^+$ dokumentiert und es werden Testmessungen mit $^{138}\text{Ba}^+$ vorgestellt.

2) Für die Verwendung der Paulfalle in der Massenspektroskopie und zur Analyse von Reaktionsprodukten ist die Kenntnis der Lage der im Speicherbereich auftretenden nichtlinearen Resonanzen wesentlich, ebenso wie deren Veränderung durch Dämpfung und Raumladung. Im zweiten Teil dieser Arbeit werden detaillierte Untersuchungen der Speicherung großer puffergasgekühlter Ionenwolken an zwei unterschiedlichen Paulfallen-Experimenten vorgestellt. Am ersten wurden $^{138}\text{Ba}^+$ -Ionenwolken kontinuierlich durch Laserspektroskopie bzw. über einen elektronischen Nachweis beobachtet, während das zweite N_2^+ -Molekülionen automatisiert destruktiv nachwies.

Am N_2^+ -Experiment wurden zwei hochaufgelöste Messungen des ersten Speicherbereichs durchgeführt, die erstmals eine direkte Überprüfung der theoretisch berechneten Verläufe der Resonanzen mit experimentellen Daten erlauben. Die Nachweiseichung ermöglichte dabei zum ersten Mal die Angabe absoluter Ionenzahlen. Im Gegensatz zu vergleichbaren früheren Messungen wurden hierbei die sich überlagernden Speicherbereiche von 4 simultan gespeicherten Ionensorten beobachtet und zur Analyse der Resonanzen herangezogen.

Die nichtlinearen Resonanzen wurden untersucht bei Variation von Puffergasdruck und Ionenzahl, wobei kollektive Resonanzen ohne zusätzliche externe Anregung beobachtet wurden. Die gemessenen Raumladungsverschiebungen wurden mit theoretischen Modellen verglichen.

Bei Variation des Puffergasdrucks wurde mit Bariumionen die räumliche Ausdehnung der Ionenwolke gemessen und mit Stickstoffionen die Verschiebung des Punktes optimaler Speicherung bestimmt. Dabei wurde festgestellt, daß der zum Ioneneinfang optimale Puffergasdruck kleiner ist als der, bei dem die längsten Speicherdauern erzielt werden.

Mit gespeicherten N_2^+ -Ionen wurde die Position extern angeregter kollektiver und individueller Resonanzen im Frequenzspektrum bei Änderung der Parameter Ionenzahl, Puffergasdruck und Dauer der Anregung untersucht, ebenso wie die Resonanzform, die mit theoretischen Linienformen verglichen wurde. Bei Änderung der Fallenparameter wurden verstärkende Effekte zwischen nahen kollektiven Resonanzen festgestellt.

Die Beobachtung, welche der im Frequenzspektrum vorher identifizierten Bewegungs-Resonanzen sich bei Variation der Fallenparameter a bzw. q überlagern, ermöglicht eine bislang nicht beschriebene einfache Methode der Bestimmung von nichtlinearen Resonanzen im Stabilitätsdiagramm.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Speicherung von Ionen in der Paulfalle	9
2.1	Entwicklungsgeschichte	9
2.2	Die Theorie der idealen Paulfalle	11
2.2.1	Das Fallenpotential	11
2.2.2	Die Bewegungsgleichung	14
2.2.3	Stabilität der Lösungen	16
2.2.4	Das Frequenzspektrum	17
2.2.5	Näherungen	18
2.3	Die reale Paulfalle	20
2.3.1	Historischer Überblick	20
2.3.2	Abweichungen vom idealen Quadrupolpotential	22
2.3.3	Feldfehler	23
2.3.4	Raumladung	31
2.3.5	Dämpfung	34
3	Schwingungen und Resonanzformen	39
3.1	Der harmonische Oszillator	39
3.1.1	Freie Schwingung	39
3.1.2	Erzwungene Schwingung	40
3.1.3	Parametererregte Schwingung	41
3.2	Der anharmonische Oszillator	42
3.2.1	Freie Schwingung	42
3.2.2	Erzwungene Schwingung	43
3.2.3	Parametererregte Schwingung	44
3.2.4	Stabilität der Schwingung	45
3.3	Berechnung der Resonanzen in der Paulfalle	45
3.3.1	Erzwungene Schwingung mit der Methode der harmonischen Balance	45
3.3.2	Parametererregte Schwingung	47
4	Experiment zur Lebensdauer messung der metastabilen Niveaus am $^{226}\text{Ra}^+$	49
4.1	Radium	49
4.2	$^{226}\text{Ra}^+$ -Ion	50
4.3	Lebensdauer messung: Methode	50
4.4	Experimenteller Aufbau	54
4.4.1	Die Paulfalle	55
4.4.2	Laser, Monochromator und optischer Nachweis	59
4.4.3	Elektronischer Nachweis	63
4.5	Testmessungen mit $^{138}\text{Ba}^+$	66
4.5.1	Barium	66
4.5.2	Erzeugung von Bariumionen	67
4.5.3	Elektronischer Nachweis und Massenspektren	69
4.5.4	Optisches Ba-Signal und Versuch einer Lebensdauer messung des $5D_{3/2}$ Zustands des Ba^+	71
4.6	Experiment mit $^{226}\text{Ra}^+$	73
4.6.1	Radium auf Trägerfilamenten	73
4.6.2	Die Suche nach einem $^{226}\text{Ra}^+$ -Signal	76
4.6.3	Mögliche Gründe für das Scheitern des Experiments	77
4.6.4	Zusammenfassung und Ausblick	78
5	Experimente mit Ba^+-Ionenwolken mittels eines frequenzverdoppelten MOPA-Lasersystems	81
5.1	Experimenteller Aufbau	81
5.1.1	Laser	82
5.1.2	Optischer Nachweis	84
5.1.3	Erzeugung des Speicherfelds	84
5.1.4	Elektrische Spiegelverstellung	84
5.2	Fluoreszenzsignal der Ba^+ -Ionen	85
5.3	Nichtlineare Resonanzen	87

5.4	Speicherzeit.....	90
5.5	Räumliche Verteilung der Ionenwolke.....	93
5.5.1	Zeitliche Änderung der Dichteverteilung	93
5.5.2	Ionenwolkendurchmesser bei Verwendung von He- und N ₂ -Puffergas.....	94
5.6	Abhängigkeit der Makrofrequenz vom Puffergasdruck	95
5.7	Vor- und Nachteile der Meßmethode.....	96
6	Experimente an N₂⁺-Ionenwolken bei Variation von Ionenzahl und Puffergasdruck	99
6.1	Experimenteller Aufbau.....	99
6.1.1	Die Paulfalle	100
6.1.2	Vakuumaufbau.....	101
6.1.3	Speicherfeld und externe Anregung.....	103
6.1.4	Ionenerzeugung.....	103
6.1.5	Ionennachweis	105
6.1.6	Meßzyklus und Experimentsteuerung.....	107
6.2	Ionensignal	110
6.2.1	Flugzeitspektrum und Signalverarbeitung	110
6.2.2	Technische Effekte	112
6.2.3	Das Füllen der Falle.....	114
6.2.4	Druckabhängigkeit der Signalhöhe.....	118
6.2.5	Nachweiseichung	123
6.3	Systematische Untersuchung des ersten Speicherbereichs.....	127
6.3.1	Überlagerung der Speicherbereiche verschiedener Ionenmassen	130
6.3.2	Identifikation der Resonanzlinien	134
6.3.3	Raumladungsverschiebung von Speicherbereich und Resonanzen.....	140
6.3.4	Kollektive Resonanzen im Stabilitätsdiagramm	145
6.3.5	Auswirkungen des Puffergaskühlens auf den Speicherbereich.....	147
6.4	Speicherzeit.....	150
6.4.1	Auswirkungen des Puffergaskühlens auf die Speicherdauer	152
6.5	Makrofrequenzen	155
6.5.1	Das Frequenzspektrum	156
6.5.2	Das Kreuzen von Resonanzen im Frequenzbereich.....	158
6.5.3	Verhalten der kollektiven Resonanzen bei Puffergasdruckvariation	161
6.5.4	Kollektive und individuelle Resonanz bei Ionenzahländerung.....	165
6.5.5	Kollektive Resonanz bei Variation der Wartezeit.....	169
7	Zusammenfassung und Ausblick	175
	Literaturverzeichnis	179

1 Einleitung

Das menschliche Streben nach Erkenntnis ist die Triebkraft der Physik. Durch Messungen an möglichst einfachen Systemen versuchen wir Physiker den Geheimnissen der Welt auf die Spur zu kommen, um sie als mathematische Gesetzmäßigkeiten zu formulieren. Dabei wäre es unser Wunschtraum, die Objekte unserer Forschung völlig isoliert von der sie umgebenden Welt in aller Ruhe beobachten zu können.

Mit der Erfindung der Ionen- und Atomfallen ist für die Atomphysik dieser Traum nahezu Wirklichkeit geworden. Die Verleihung der einen Hälfte des Nobelpreises 1989 an Wolfgang Paul und Hans G. Dehmelt unterstreicht die Bedeutung der von ihnen entwickelten Ionenfallen.

Mit diesen Fallen ist die Speicherung elektrisch geladener Teilchen - von Metallpartikeln über Moleküle und Ionen bis hin zu Elektronen – im Vakuum über lange Zeiten möglich. Dies hat bis heute einige der genauesten und spektakulärsten Experimente der Physik ermöglicht.

Als Beispiel soll hier die berühmte Messung des g-Faktors des freien Elektrons von Dehmelt 1987 mit einer Unsicherheit von 10^{-12} [Dehm87] erwähnt werden, die vor wenigen Jahren von Gabrielse um den Faktor 6 verbessert wurde [Gabr06]. Ebenfalls mit Hilfe von Penningfallen wurde die Masse des Elektrons mit einer Genauigkeit von $2 \cdot 10^{-9}$ [Dyck95] und in unserer Arbeitsgruppe der g-Faktor des gebundenen Elektrons auf $5 \cdot 10^{-10}$ bestimmt [Häff00, Verd04]. Die erstmalige Speicherung und Beobachtung eines einzelnen Ions (Ba^+) durch Neuhauser, Toschek und Dehmelt [Neuh80] in einer Paulfalle zählt ebenso zu den herausragenden Experimenten in der Geschichte der Laserspektroskopie wie die erste direkte Beobachtung einzelner Quantensprünge an einem Ba^+ -Ion [Nago86].

Zu den präzisesten Experimenten überhaupt gehören die optischen Frequenzstandards mit Hilfe gespeicherter Ionen, deren Genauigkeit in den letzten Jahren von verschiedenen Arbeitsgruppen immer weiter verbessert wurde [Rafa00, Oska06]: inzwischen ist mit einzelnen in Paulfallen gespeicherten Ionen eine Unsicherheit von wenigen 10^{-17} erreicht [Rose08].

Und nicht zuletzt hat die Technik der Ionenfallen erst die Erzeugung von Antiwasserstoff am CERN¹ ermöglicht [Amor02, Gabr02].

Daneben haben die Ionenfallen eine Vielzahl weiterer Messungen möglich gemacht. Diese fallen zum überwiegenden Teil in die beiden Bereiche Massenspektrometrie und Spektroskopie mit Hilfe von Lasern und Mikrowellen.

Die sogenannten Penningfallen [Penn36] – nach dem von Pierce [Pier49] 1949 beschriebenen und von Dehmelt 1959 umgesetzten Speicherprinzip – sind vor allem herausragende Instrumente zur genauen Bestimmung von Massen sowie von g-Faktoren. Als Beispiel mögen hier die an ISOLTRAP² am CERN durchgeführten Massenmessungen von über 200 kurzlebigen Nukliden mit einer Massenauflösung von typischerweise 10^{-7} [Blau03, Kell03] und g-Faktor Messungen an Ba^+ und Ca^+ in der Gruppe von G. Werth stehen [Hubr91, Tomm03]. Das Speicherprinzip - die Überlagerung eines statischen elektrischen mit einem homogenen magnetischen Feld - macht die Verwendung eines (supraleitenden) Magneten nötig, womit Manipulation (z.B. mittels Lasern oder Mikrowellen) und Detektion der Ionen durch die Bohrung des Magneten erfolgen muß.

¹ CERN: centre europeenne pour la recherche nucleaire

² ISOLTRAP: Tandem-Penningfallen Massenspektrometer am "on line isotope mass separator" ISOLDE

Die nach ihrem Erfinder benannte Paulfalle¹, die in dem von Paul und Steinwedel 1953 eingereichten Patent erstmals erwähnt wird [Paul56], ist vom Aufbau her einfacher. Dank der Verwendung ausschließlich elektrischer Felder kann der Aufbau kompakt bleiben, weswegen die Paulfalle, sowie das Quadrupol-Massenfilter [Paul53], aus dem sie ursprünglich entstand, trotz einer Massenauflösung von nur 10^{-4} ein kommerzieller Erfolg wurden. Als Restgas- und Spurenanalysator von verschiedenen Firmen angeboten, dienen sie seit vielen Jahren in Physik, Chemie, Medizin, Militär und Umwelttechnik.

Nach der Entwicklung des Lasers² zeitgleich mit der der Paulfalle, führte seit den siebziger Jahren die Kombination beider Geräte zu einem enormen Fortschritt in der Atom- und Molekülphysik. Durch Laserspektroskopie an gespeicherten Ionenwolken konnte die Präzision der ehemals mittels Spektrallampen durchgeführten Experimente wesentlich gesteigert werden. Eine weitere erhebliche Steigerung der Präzision wurde durch die Erfindung des sogenannten Laserkühlens erreicht, bei dem die Bewegungsenergie der gespeicherten Ionen mittels Photonenrückstoß reduziert wird [Wine75a, Wine78]. Die Linienverbreiterung aufgrund des Dopplereffekts wird hierdurch verringert und die Bewegungsenergie der Ionenwolke soweit reduziert, daß sich ein Ionenkristall bilden kann (siehe z.B. [Died87] oder aus unserer Arbeitsgruppe [Alt98], [Bloc00] und [Seib00]; einige neuere Arbeiten finden sich von der Gruppe um Drewsen [Drew04]). Um eine noch größere Meßgenauigkeit zu erhalten, versucht man das Lamb-Dicke Kriterium [Dick53] zu erfüllen, d.h. die Amplitude der Ionenbewegung muß kleiner sein als die Wellenlänge des Übergangs. 1985 wurde das Lamb-Dicke Regime für einen optischen Übergang mit einzelnen Ba^+ -Ionen [Jani85] erreicht und 1989 konnte erstmals der quantenmechanische Grundzustand der Ionenbewegung mit Hg^+ [Died89] erreicht werden. Eine derartige Reduzierung der Bewegungsenergie ist in der klassischen Paulfalle nur mit einem einzelnen Ion möglich, da die Falle nur einen feldfreien Mittelpunkt besitzt, an dem das Speicherfeld nicht zum Aufheizen der Ionen führt. Um ähnliches auch mit mehreren Ionen erreichen zu können, ist es nötig, eine Falle zu konstruieren, bei der das Speicherfeld entlang einer Achse verschwindet, anstatt nur an einem einzigen Punkt. In solchen linearen Fallen ist es gelungen, Ketten von Ionen in den Grundzustand zu kühlen. Derart präparierte Ionen bieten optimale Voraussetzungen für Hochpräzisionsexperimente.

Nach einem Vorschlag von Cirac und Zoller 1995 [Cira95] bieten in Fallen gespeicherte Ionen auch eine Möglichkeit zur Realisierung eines Quantencomputers. Nach ersten Schritten wie dem Kühlen von Ionenketten in den Grundzustand [Sack00] und dem Adressieren einzelner Ionen in der Kette [Näge99] ist inzwischen sowohl von Gruppen am NIST als auch in Innsbruck das Verschränken der Zustände von 6 bzw. 8 Ionen gelungen [Leib05, Häff05]. Auch wurde die Miniaturisierung soweit vorangetrieben, daß auf Halbleiterchips eine größere Anzahl segmentierter Fallen Platz findet [Stic05, Amin10].

Nicht zuletzt für die präzise Messung atomphysikalischer Größen, wie die Bestimmung von Lebensdauern angeregter Zustände oder Hyperfeinaufspaltungen, sind gespeicherte "kalte" Ionen bestens geeignet:

Lebensdauer-messung am Radiumion

Die Messung atomphysikalischer Größen ist ein wichtiger Beitrag, um die bestehenden theoretischen Modelle zum Aufbau der Elektronenhülle von Atomen zu überprüfen. Dabei muß man, um den Aufwand der theoretischen Berechnungen in akzeptablen Grenzen zu halten, nach geeigneten Systemen suchen: Alkaliatome mit ihrem einzelnen Außenelektron bieten hier die

¹ Dieser Name hat sich im Bereich der Massenspektroskopie nicht durchgesetzt, siehe z.B. [Marc89], wo der Begriff QUISTOR (quadrupole ion store) gebraucht wird.

² Der erste Laser wurde 1960 von Maiman [Maim60] gebaut. Die Wegbereiter des Lasers wurden mit Nobelpreisen geehrt: 1964 Charles H. Townes, Nikolai G. Basov und Aleksandr M. Prokhorov für ihre Beiträge zur Entwicklung von Maser und Laser und 1981 Nicolaas Bloembergen und Arthur Schawlow für ihre Beiträge in nichtlinearer Optik und Laserspektroskopie.

besten Voraussetzungen. Die selbe Konfiguration findet sich aber auch bei einfach ionisierten Erdalkaliatomen. Auf diese konzentrieren sich daher die Ionenfallen-Experimente. Die dabei am einfachsten zu messenden Größen sind g_j -Faktoren und Lebensdauern der metastabilen Niveaus. In unserer Arbeitsgruppe wurden in der Vergangenheit eine ganze Reihe derartiger Experimente durchgeführt. So wurden die g_j -Faktoren von Ba^+ und Ca^+ mit einer Genauigkeit von 10^8 ermittelt [Hubr91, Knöl96, Tomm03], sowie die Lebensdauern der metastabilen Niveaus von Ba^+ [KnBe92], Sr^+ [Gerz87] und Ca^+ [Arbe94, Gudj96, Bloc99] gemessen, teilweise mit verschiedenen Methoden und über die Jahre hinweg mit immer weiter erhöhter Präzision. Für einen Vergleich mit der Theorie wäre es wichtig, wenn von allen Ionen der zweiten Hauptgruppe des Periodensystems diese Daten vorlägen. Nachdem die Lebensdauern der stabilen Erdalkalitionen gemessen wurden (mit Ausnahme von Be^+ und Mg^+ , die keine derartigen metastabilen Zustände aufweisen), stand nur noch die Messung an Ra^+ aus, um die Reihe zu vervollständigen.

Die Kenntnis derartiger Daten des Ra^+ spielen auch eine Rolle für die Durchführung von Ionenfallenexperimenten zur Messung paritätsverletzender Effekte (engl.: parity non-conservation, PNC). Ein solches Experiment wird von Fortson [Fort93, Koer03] an gespeicherten Ba^+ -Ionen durchgeführt. Das Ersetzen des Ba^+ durch Ra^+ würde die Größe des zu beobachtenden Effekts um den Faktor 20 erhöhen, da dieser mit der dritten Potenz der Kernladungszahl skaliert [Geet98]. Voraussetzung hierfür ist allerdings die Kenntnis der atomphysikalischen Daten des Ra^+ in einem ähnlichen Maße, wie sie für das Ba^+ vorliegen.

Bislang wurden an Ra und Ra^+ die Spektren vermessen [Rasm34, Rasm33] und Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung an einer Vielzahl von Isotopen untersucht [Ahma83, Wend87, Ahma88]. In den letzten Jahren wurden Energieniveaus und Lebensdauern der metastabilen Zustände berechnet [Dzub01, Dzub06, Saho07, Pal09], sowie Messungen der Lebensdauer des 3P_1 -Zustands des Ra [Scie06] und weiterer Isotopieverschiebungen und Hyperfeinstrukturkonstanten des Ra^+ durchgeführt und eine untere Grenze für die Lebensdauer des $6D_{5/2}$ -Zustands angegeben [Vers10].

Diese Arbeit

Das 2002 gestartete Experiment hatte zum ursprünglichen Ziel, die Lebensdauer der metastabilen D-Niveaus - insbesondere die des $6D_{3/2}$ -Zustands - mittels Laserspektroskopie an in einer Paulfalle gespeicherten $^{226}\text{Ra}^+$ -Ionen zu messen. Das ^{226}Ra wurde an der ISOLDE am CERN gesammelt und lag in einer nicht exakt bestimmbar Menge von maximal 10^{13} Atomen vor. Aufgrund dieser geringen Menge wurden mit der Apparatur umfangreiche Testmessungen mit Ba^+ -Ionen durchgeführt, die ein einwandfreies Funktionieren des Experiments sicherstellen sollten, um ein Verschwinden des kostbaren Radiums zu verhindern. Nach diesen Testmessungen wurde schließlich der Versuch unternommen, Radiumionen zu speichern und die Fluoreszenz zu detektieren. Dies scheiterte jedoch bedauerlicherweise ebenso wie der durch einen Besuch von Prof. B. P. Das motivierte Versuch, die Speicherung von Ra^+ -Ionen wenigstens auf elektronischem Wege nachzuweisen.

Bei den Tests mit Ba^+ -Ionen wurden einige Messungen zum Verhalten des Signals großer Ionenwolken bei Variation des Restgas- bzw. Puffergasdrucks durchgeführt. Hierbei wurden starke Schwankungen des elektronischen Signals ebenso untersucht, wie Ionenwolkendurchmesser und nichtlineare Resonanzen mittels Laserspektroskopie. Diese Messungen bilden die Basis des zweiten, umfangreicheren Teils dieser Arbeit.

Diese Untersuchungen der Druckabhängigkeit der Speichereigenschaften wurden zunächst ergänzt und dann fortgeführt an der Apparatur, die heute im F-Praktikum des Instituts steht und an der die bislang weltweit genauesten Messungen nichtlinearer Resonanzen in der Paulfalle durchgeführt worden sind (von Ruths, Hennig, Alheit, Holzki und Hofer; weitere Autoren und Referenzen in Kapitel 6). Zudem wurden die kollektiven Resonanzen, bei denen Alheit und Holzki Abweichungen von der erwarteten Kurvenform beobachteten [Alhe97, Holz97], einer genaueren Untersuchung unterzogen. Die Messungen erfolgten an dieser Apparatur mit gespeicherten Stickstoffmolekülonen (N_2^+), die destruktiv nachgewiesen wurden.

Das Ziel

"...and things that should not have been forgotten were lost..."
(Aus dem Prolog des Films "Lord of the Rings")

In einem Labor sammelt sich das spezielle Wissen über die gerätespezifischen Eigenheiten, die kleinen experimentellen Feinheiten, sowie die allgemeine experimentelle Erfahrung fast ausschließlich in den Köpfen der dort tätigen. Zwar füllen die Geräteeinstellungen die Laborbücher, die Aufbauarbeiten und Ergebnisse einzelner (Probe-) Messungen lassen sich in Diplomarbeiten nachlesen und die Ergebnisse des funktionierenden Experiments schließlich sind in Veröffentlichungen und Dissertationen verewigt. Das entscheidende Wissen aber zum Aufbau und wissenschaftlichen Betrieb eines Experiments wird meist nur von Mitarbeiter zu Mitarbeiter weitergegeben. Da ich an beiden Experimenten - dem Ba^+/Ra^+ -Lebensdauer-Experiment und der N_2^+ -Apparatur - sowohl Erster nach langjähriger Pause war als auch vorerst der Letzte bin, ist mir diese Tatsache besonders bewußt.

Damit obiges Filmzitat nicht auf die hier verwendeten Apparaturen zutrifft, enthält diese Arbeit eine für eine Dissertation sicher ungewöhnliche Menge experimenteller Details. Denn es ist ein lohenendes Unterfangen, die Experimente fortzusetzen:

Zwei der bewilligten 4 Strahlzeiten für das Sammeln von ^{226}Ra am CERN konnten während meiner Zeit des Experimentierens aus technischen Gründen nicht genommen werden. Diese noch übrigen Strahlzeiten könnten die Basis dafür sein, das in Kapitel 4 beschriebene, vom Prinzip her einfache Radiumexperiment wiederaufzunehmen und erstmals die Lebensdauer des metastabilen $6\text{D}_{3/2}$ -Zustands zu bestimmen¹. Auch eine weitere Messung der Lebensdauer des $6\text{D}_{5/2}$ -Zustands erscheint angesichts der Diskrepanz von über 20 % zwischen dem vor kurzem gemessenen Wert und den 4 theoretischen Arbeiten sinnvoll.

Wie sich in Kapitel 5 und 6 zeigen wird, sind auch nach dieser Arbeit noch einige Fragen zur Speicherung großer Ionenwolken offen. Die bestehende Apparatur ist zur weiteren Erforschung der Phänomene geeignet bzw. relativ einfach ausbaubar.

Neben der Darstellung der Ergebnisse meiner Messungen ist es das klare Ziel dieser Arbeit, die Grundlagen für das Experimentieren mit den vorhandenen Apparaturen zu liefern und zur Fortführung der bisher durchgeführten Arbeiten zu motivieren.

¹ Allerdings könnte die Arbeitsgruppe von Jungmann in Groningen, die die neuesten Messungen an Radium veröffentlichte [Vers10], dies relativ einfach durch den Einsatz eines Lasers der $\text{S}_{1/2}$ - $\text{P}_{1/2}$ -Wellenlänge (468 nm) durchführen.

2 Speicherung von Ionen in der Paulfalle

2.1 Entwicklungsgeschichte

Die Entwicklung der Paulfalle Anfang der 50er Jahre wurde durch Fortschritte in einem ganz anderen Bereich der Physik, der Beschleunigerphysik, ermöglicht. Courant, Livingston und Snyder hatten 1952 ihre Theorie des Fokussierens geladener Teilchenstrahlen mittels alternierend angeordneter Quadrupolmagneten veröffentlicht [Cour52] und Blewett [Blew52] zeigte noch im gleichen Jahr die Analogie der Fokussierung mittels elektrischer Quadrupolfelder. Die Theorie der Fokussierung war eigentlich schon 1950 von dem Griechen N. C. Christofilos [Cour53] entdeckt worden, seine Arbeit wurde aber zu dieser Zeit übersehen. W. Paul und seine Kollegen in Bonn erkannten als erste die Möglichkeit, mit elektrodynamischen Quadrupolfeldern ein Massenspektrometer zu verwirklichen [Paul53] und erwähnten in dem von ihnen 1953 darüber eingereichten Patent [Paul56] auch gleich die Möglichkeit des Baus einer Ionenfalle mit einer etwas geänderten Elektrodenkonfiguration. Im gleichen Jahr wurden nach dem selben Prinzip unabhängig davon von Post und Heinrich ein Massenspektrograph [Post53] und von Good eine Teilchenfalle [Good53] vorgeschlagen.

Von der Gruppe in Bonn wurden 1955 mit dem Massenfilter erste Experimente zur Isotopentrennung veröffentlicht [Paul55], erste Tests mit der Ionenfalle wurden im Rahmen der Diplomarbeit von Berkling 1956 durchgeführt [Berk56] und die ersten Publikationen erschienen bald darauf [Paul58a/b, Fisc59].

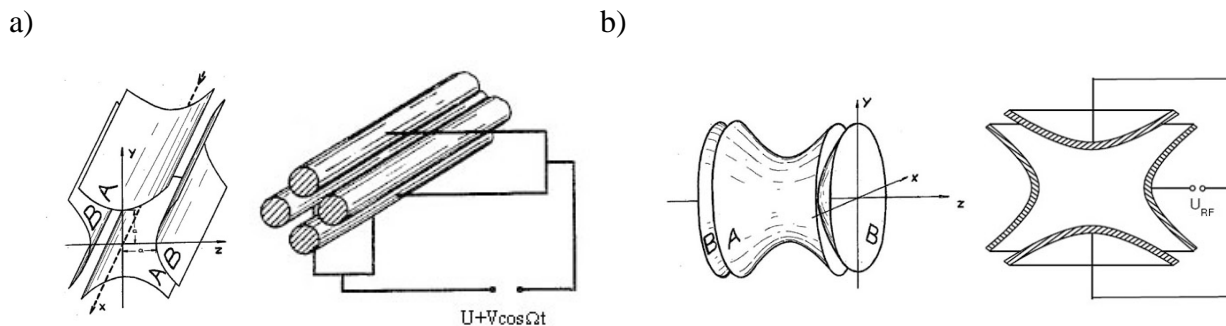


Abb. 2.1: a) Massenfilter; durch Variation der an den Elektroden anliegenden Gleich- und Wechselspannungsmplituden läßt sich erreichen, daß nur Teilchen eines bestimmten Masse-Ladungs-Verhältnisses eine stabile Bahn innerhalb des HF-Quadrupolfelds beschreiben. Sie werden also in radialer Richtung gespeichert und verlassen das Filter am Ende wieder. Die Bahnen aller übrigen Teilchen sind instabil, d.h. sie weiten sich auf, womit der Flug auf den Elektroden endet.
 b) Elektrodenanordnung einer klassischen Paulfalle, bestehend aus Ring und Kalotten.
 (Die drei Bilder links stammen aus der original Patentschrift vom 24.12.1953, rechts aus [Alt98b])

In den Folgejahren beschäftigten sich außer der Gruppe in Bonn nur wenige mit den spezifischen Eigenschaften der Paulfalle: Wuerker et al. speicherten darin geladene, makroskopische Partikel und studierten die Bewegung der Teilchen [Wuer59] und Dehmelt speicherte Ionen, um an ihnen Spektroskopieexperimente durchzuführen. Die Tendenz ging in den 60er Jahren ansonsten mehr zur praktischen Nutzung des Massenfilters und zur Erfindung neuer Elektrodengeometrien. Erwähnenswert seien hier das Monopol-Massenfilter von U. v. Zahn [Zahn63], das eine extrem schnelle Entwicklung zum kommerziellen Gerät 1966 erfuhr, und die sog. "Rennbahnfallen" [Dree64, Chur69], die quasi ein zusammengebogenes endloses Massenfilter darstellten und die Vorläufer der späteren linearen Fallen wurden.

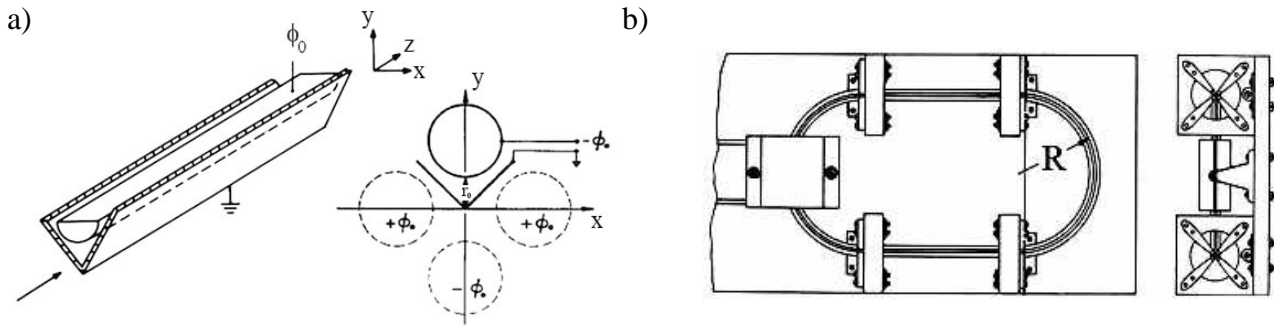


Abb. 2.2: a) Monopol von U. v. Zahn und b) Rennbahn-Falle von Church. Aus [Daws76, Zahn63, Chur69].

Erst nach der Veröffentlichung von Rettinghaus 1967 zur Analyse niedriger Partialdrücke mit Hilfe einer Paulfalle [Rett67] ist wieder eine starke Zunahme des Interesses an der Paulfalle an der Zahl wissenschaftlicher Publikationen erkennbar. Diese ist seither ständig gestiegen, wobei Anfang der 90er Jahre eine enorme Zunahme der Veröffentlichungen registriert werden kann. (Diese Entwicklung ist in der chronologisch geordneten und mit Publikationstiteln versehenen Literaturliste von Pradip K. Ghoshs Buch "Ion Traps" gut nachvollziehbar [Ghos95].)

1988 entwickelte Prestage eine neue Fallengeometrie, um eine sehr viel größere Zahl von Ionen in der Nähe des feldfreien Mittelpunkts der Falle speichern zu können [Pres88, Pres89]: Die seitdem gebauten linearen Paulfallen bestehen im Prinzip aus einem Quadrupol-Massenfilter, an dem zusätzliche Endelektroden angebracht sind. Durch Anlegen einer Gleichspannung an diese erhält man ein statisches Potential in axialer Richtung, welches die Ionen am Verlassen der Falle hindert. Dadurch verliert man zwar die Möglichkeit, simultan positiv und negativ geladene Ionen zu speichern, dies wird aber meist ohnehin nicht ausgenutzt. Dafür können in diesem Fallentyp ganze Ketten von Ionen auf der feldfreien Mittelachse gespeichert werden, anstelle von dem einzelnen Ion im Mittelpunkt der "klassischen" Paulfalle. Zudem ist der Zugang zu den Ionen sehr viel einfacher, denn die Endelektroden sind meist so ausgebildet, daß die Längsachse der Falle frei von Bauteilen ist, so daß z.B. für den Einschub von Lasern keine zusätzlichen Löcher in die Elektroden des Quadrupolfelds gebohrt werden müssen. Was die Form und Befestigung der Endelektroden betrifft, gibt es je nach Anwendungszweck und Einschubrichtung der zur Spektroskopie verwendeten Laser verschiedene Konfigurationen; beinahe jede Arbeitsgruppe hat hier ihre eigene Form entwickelt. Eine Übersicht über die bis 2000 publizierten Typen findet sich in [Seib00].

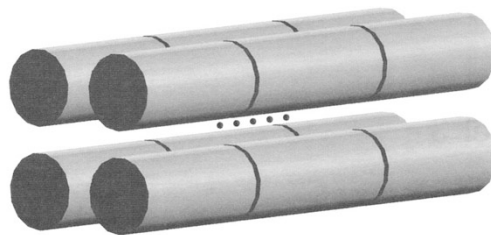


Abb. 2.3: In unserer Arbeitsgruppe eingesetzte lineare Falle [Bloc02]. Geschenkt von Takashi Nakamura vom Institute for Laser Science, University of Electro-Communications, Chofu, Tokyo. Ähnliche, noch sehr viel stärker segmentierte Paulfallen, dienen bei Beschleunigerexperimenten zum Herunterbremsen und "Portionieren" des Ionenstrahls (GSI, CERN).

Seit dem ITDTM 700 der Firma Finnigan MAT, das ab 1984 verkauft wurde, erschienen dann auch auf Paulfallen basierende Massenspektrometer und (Rest-) Gasanalysatoren neben den Quadrupol-Massenfiltern auf dem Markt und sorgten mit ihren kommerziellen Erfolgen für eine weitere Verbreitung der Falle.

Im Folgenden sollen die theoretischen Grundlagen der Speicherung von Ionen in der klassischen Paulfalle dargestellt werden:

2.2 Die Theorie der idealen Paulfalle¹

2.2.1 Das Fallenpotential

Zur Speicherung der Ionen wird eine zur Fallenmitte gerichtete Kraft benötigt,

$$F \sim -r^n. \quad 2.1$$

Mit

$$F = -e \cdot \text{grad} f \quad 2.2$$

und der Festlegung auf $n = 1$, d.h. eine lineare Kraft, folgt ein Potential der Form:

$$f(x, y, z) = \frac{f_0}{l_0^2} (ax^2 + by^2 + cz^2) \quad 2.3$$

Wobei f_0 ein Potential und l_0 eine Länge ist, so daß die prinzipiell frei wählbaren Koeffizienten a , b , c dimensionslos sind. Im als ladungsfrei angenommenen Innenraum der Falle muß das Potential der Laplace-Gleichung

$$\Delta f = 0 \quad 2.4$$

gehörchen, weswegen gilt

$$a + b + c = 0, \quad 2.5$$

woraus die zwei einfachsten Möglichkeiten für die Wahl der Koeffizienten folgen:

$$\begin{aligned} a = b \quad \text{und} \quad c = -2a \quad (\text{Ionenfalle}) \\ a = -b \quad \text{und} \quad c = 0 \quad (\text{Massenfilter}) \end{aligned} \quad 2.6$$

Das Potential (2.3) kann mit der Wahl $a = 1$ und der Einführung von Zylinderkoordinaten ($r = \sqrt{x^2 + y^2}$) in folgender Form geschrieben werden²:

$$f(r, z) = \frac{f_0}{l_0^2} (r^2 - 2z^2) \quad 2.7$$

Daraus ist ersichtlich, daß die Äquipotentialflächen durch

¹ Die Herleitung folgt in diesem Unterkapitel im Wesentlichen zunächst der Darstellung von M. Hofer [Hoef97]. Zur Darstellung der Lösung der Bewegungsgleichung waren [McLa51, Meix54, Daws76, Marc89, Ruth92, Ohle92] am hilfreichsten.

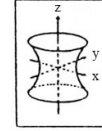
² eigentlich $f(r, \mathbf{y}, z)$, mit der Wahl in (2.6) ist jedoch schon Radialsymmetrie vorausgesetzt.

$$(r^2 - 2z^2) = C \cdot l_0^2, \quad C = \text{const.} \quad 2.7$$

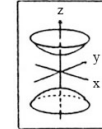
gegeben sind. Das Vorzeichen von C legt die Form der Äquipotentialflächen und damit der Elektroden fest: positives C führt zu einem einschaligen rotationssymmetrischen Hyperboloid, negatives C zu einem zweischaligen, ebenfalls rotationssymmetrischen Hyperboloid.

Die Elektrodenform erhält man mit

$$C_{\text{pos}} \cdot l_0^2 = r_0^2 = (r^2 - 2z^2) \quad (\text{Ring}) \quad , \quad 2.8$$



$$C_{\text{neg}} \cdot l_0^2 = -2z_0^2 = (r^2 - 2z^2) \quad (\text{Kalotten}), \quad 2.9$$



und r_0 für den inneren Radius der Ringelektrode, sowie $2z_0$ für den inneren Abstand der Kalotten (siehe Abb. 2.4). Hieraus ersichtlich ($C \cdot l_0^2 = C_{\text{pos}} \cdot l_0^2 = -C_{\text{neg}} \cdot l_0^2$) ist das Verhältnis von r_0 zu z_0

$$r_0 = \sqrt{2} \cdot z_0, \quad 2.10$$

das bei gefordertem reinem, rotationssymmetrischem Quadrupolfeld die einzige (technisch einfach realisierbare) Elektrodenkonfiguration darstellt, bei der Ring und Kalotten die gleichen Asymptoten aufweisen¹.

Aus den unterschiedlichen Vorzeichen der Koeffizienten in (2.6) wird deutlich, daß die dreidimensionale Speicherung nicht alleine mit Hilfe statischer Potentiale realisiert werden kann. Man benötigt daher ein sich zeitlich änderndes Potential der Form:

$$f_0(t) = U_0 + V_0 \cos \Omega t \quad 2.11$$

Dieses Potential wird auch als Führungsfeld bezeichnet, mit der Führungsfeldfrequenz $\Omega/2\pi$ und der Gleichspannungs- bzw. Wechselspannungsamplitude U_0 bzw. V_0 .

In der Praxis sind drei verschiedene Arten, die Spannungen an die Elektroden anzulegen, üblich:

- An den Ring wird das Potential ϕ_0 angelegt, an die Endkappen $-\phi_0$. Dies ist die ursprünglich von Paul für das Massenfilter vorgeschlagene Konfiguration.
- Nach Dawson und Whetten [Daws68b] kann man auch die Kalotten erden und das Potential ϕ_0 an den Ring anlegen.
- Eine weitere Methode ist das Anlegen von U_0 an beide Kalotten und von $V_0 \cos \Omega t$ an den Ring.

¹ Die Asymptoten des Hyperboloids [Bron91]

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} - \frac{z^2}{c^2} = \pm 1$$

sind gegeben durch den (Doppel-) Kegel

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} - \frac{z^2}{c^2} = 0$$

und aufgrund von Rotationssymmetrie gilt

$$a = b$$

was zur Folge hat, daß wegen der Erfüllung der Laplace-Gleichung (2.4 und 2.5) das Verhältnis zwischen a und c eindeutig festgelegt ist. Von (2.10) abweichende Verhältnisse (d.h. andere Öffnungswinkel des Asymptotenkegels) führen ebenso wie unterschiedliche Asymptoten von Ring und Kalotten zu einem Feld, das der Anfangsbedingung eines reinen Quadrupolpotentials (2.3) nicht genügt. Allerdings sind (siehe S. 13) auch noch grundsätzlich kompliziertere Arten, ein reines Quadrupolpotential zu erzeugen, möglich.

Die dritte Methode wurde von Bonner [Bonn77] vorgeschlagen, bei ihm und in [Marc89] findet sich auch eine Berechnung für alle 3 Varianten. Methode 2 bietet einige praktische Vorteile (die Endkappen sind "frei" für das Anlegen zusätzlicher Spannungen, z.B. für den Nachweis), weswegen ich nur diese von uns verwendete Konfiguration beschreibe. Zunächst sei aber darauf hingewiesen, daß man das Quadrupolpotential aus Abb. 2.4 auch z.B. mit dem gleichen Ring, aber einer Kalotte, deren Form einer anderen Äquipotentialfläche entspricht (z.B. 30 V in Abb. 2.4.) erzeugen kann. Die dieser Äquipotentialfläche entsprechende Spannung muß an einer derartigen Kalotte natürlich angelegt werden; dann ändert sich auch bei reinem Quadrupolpotential das Verhältnis r_0 zu z_0 . Weitere Möglichkeiten ergeben sich, wenn man davon abgeht, daß die Elektroden Äquipotentialflächen sein müßten. Wang und Wanczek [Wang93a] geben an, wie man die Falle aus Ringen bzw. aus Widerstandsdraht bauen könnte. Damit ändert sich das Potential über die Elektrodenoberfläche und je nach Art des Potentialverlaufs ergibt sich eine völlig andere als die hyperbolische Elektrodenform.

Zurück zu der von uns verwendeten zweiten Methode:

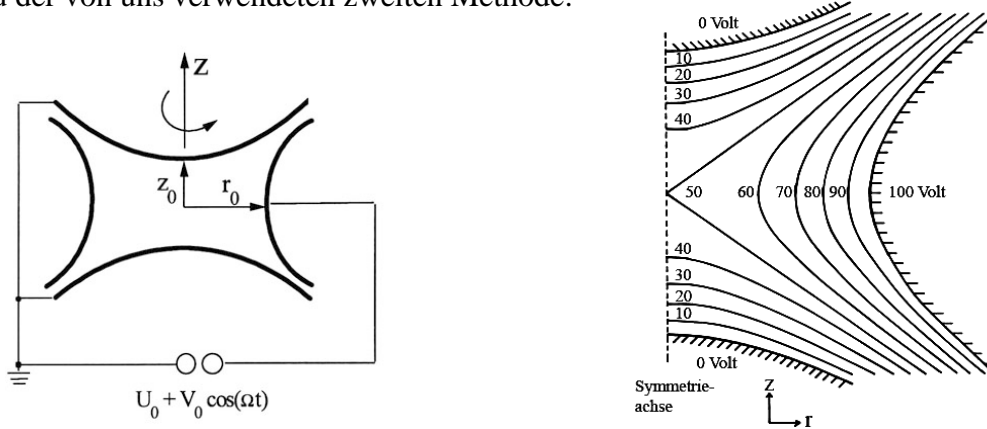


Abb. 2.4: Schematische Darstellung der Paulfalle mit geerdeten Endkappen und am Ring angelegter Spannung. Rechts: Verlauf der Äquipotentialflächen mit beispielhaften Spannungen. Grafik aus [Hoe97].

Das Speicherpotential ergibt sich aus der Form des Potentials (2.7)¹,

$$f(r, z) = \frac{f_0}{l_0^2} (ar^2 - 2az^2 + c) \quad 2.12$$

dem Ansatz einer Gleich- und Wechselspannung (2.11) und den Randbedingungen, daß das Potential am Ring ϕ_0 und an den Kalotten Null betragen muß

$$f(r_0, 0) = f_0 = \frac{f_0}{l_0^2} (ar_0^2 + c) \quad \text{und} \quad f(0, z_0) = 0 = \frac{f_0}{l_0^2} (-2az_0^2 + c), \quad 2.13$$

$$\text{woraus mit (2.10) } a = \frac{l_0^2}{2r_0^2} \text{ und } c = \frac{l_0^2}{2} \text{ folgt,} \quad 2.14$$

zu

$$f(r, z, t) = \frac{f_0(t)}{2r_0^2} (r^2 - 2z^2 + r_0^2)$$

bzw.

$$f(r, z, t) = \frac{U_0 + V_0 \cos \Omega t}{2r_0^2} (r^2 - 2z^2 + r_0^2) \quad 2.15$$

¹ noch in allgemeiner Form mit Faktor a und einer Konstante c

2.2.2 Die Bewegungsgleichung

Wird ein geladenes Teilchen der Ladung e und Masse m in das Quadrupolpotential (2.15) gebracht, so erhält man aus der Differentialgleichung

$$m\ddot{\mathbf{r}} + e\nabla f(r, z, t) = 0 \quad 2.16$$

die Bewegungsgleichungen des Teilchens:

$$\ddot{r} + \frac{e}{mr_0^2}(U_0 + V_0 \cos \Omega t) \cdot r = 0 \quad 2.17$$

$$\ddot{z} - \frac{2e}{mr_0^2}(U_0 + V_0 \cos \Omega t) \cdot z = 0 \quad 2.18$$

Mit Einführung der fünf dimensionslosen Parameter \mathbf{t} , a_r , a_z , q_r und q_z

$$\mathbf{t} = \frac{\Omega t}{2}, \quad a_z = -2a_r = -\frac{8eU_0}{mr_0^2\Omega^2}, \quad q_z = -2q_r = \frac{4eV_0}{mr_0^2\Omega^2} \quad 2.19$$

lassen sich die Bewegungsgleichungen zurückführen auf die Mathiesche Differentialgleichung:

$$\frac{d^2 u}{d\mathbf{t}^2} + (a_u - 2q_u \cos 2\mathbf{t}) \cdot u = 0, \quad u = r, z \quad 2.20$$

Die Lösung der Mathieschen Differentialgleichung¹ sowie Betrachtungen zur Stabilität der Lösungen sind nicht trivial, so daß der Rechenweg hier nur mit Angabe der wichtigsten Zwischenschritte beschrieben wird. Ausführlicher findet sich dies in [McLa51] und vor allem in [Meix54]. Die Mathiesche Differentialgleichung besitzt als DGL 2. Ordnung einen zweidimensionalen Lösungsraum mit zwei unabhängigen Lösungen u_1 und u_2 als Basis. Die allgemeine Lösung ist somit eine Linearkombination der beiden.

Aus allgemeinen Betrachtungen zur Art und zur π -Periodizität der Koeffizienten von (2.20) folgt die Anwendung des *Theorems von Floquet*:

Es gibt genau dann eine spezielle Lösung von (2.20) mit

$$u(\mathbf{t} + \mathbf{p}) \equiv e^{i\mathbf{p}\mathbf{b}_u} \cdot u(\mathbf{t}) \neq 0, \quad u = Au_1 + Bu_2, \quad (A, B) \neq (0, 0) \quad 2.21$$

wenn für \mathbf{b}_u gilt:

$$\cos(\mathbf{p}\mathbf{b}_u) = u_1(\mathbf{p}). \quad 2.22$$

Dann heißt \mathbf{b}_u *charakteristischer Exponent* zum Parameterpaar a, q und alle Werte $2k \pm \mathbf{b}_u$ (k ganzzahlig) sind ebenfalls charakteristische Exponenten. Eine Lösung mit der Eigenschaft (2.21) nennt man *Floquetsche Lösung*.

¹ Diese von É. Mathieu 1868 bei der Untersuchung von Schwingungen einer elliptischen Membran erstmals erwähnte Gleichung taucht bei einer Vielzahl von Schwingungsproblemen auf. Eine große Zahl von Arbeiten aus diesem Themenbereich entstanden um die Mitte des 20. Jahrhunderts. Im Zeitalter der Computer existieren einige (auch kommerzielle Mathematikprogramme), die die Berechnung erleichtern. Vorsicht ist jedoch bei der Benutzung geboten, da z.T. einfache Näherungen (siehe Kapitel 2.2.5) verwendet werden.

Eine Floquetsche Lösung zum charakteristischen Exponenten \mathbf{b}_u besitzt eine Fourier-Entwicklung:

$$u_1(\mathbf{t}) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n,u} \cdot e^{i(\mathbf{b}_u + 2n)\mathbf{t}}. \quad 2.23$$

Für die Koeffizienten gilt
$$\lim_{n \rightarrow \pm \infty} |c_{2n,u}|^{1/|n|} = 0 \quad 2.24$$

und durch Einsetzen von (2.23) in die DGL (2.20) erhält man die Rekursionsformel¹

$$-q \cdot c_{2n+2} + [a - (\mathbf{b} + 2n)^2] \cdot c_{2n} - q \cdot c_{2n-2} = 0 \quad 2.25$$

Die Folge der c_{2n} ist für $q \neq 0$ bis auf einen konstanten Faktor eindeutig bestimmt und konvergiert für $n \rightarrow \infty$ gegen 0. Die dreigliedrige lineare Rekursion (2.25) läßt sich umformen zu:

$$\frac{c_{2n}}{c_{2n-2}} = \frac{-q}{(\mathbf{b} + 2n)^2 - a + q \cdot \frac{c_{2n+2}}{c_{2n}}} \quad 2.26$$

d.h. durch Einsetzen erhält man den Kettenbruch:

$$\frac{c_{2n}}{c_{2n-2}} = \frac{-q}{(\mathbf{b} + 2n)^2 - a + q \cdot \frac{-q}{(\mathbf{b} + 2n + 2)^2 - a + q \cdot \frac{-q}{(\mathbf{b} + 2n + 4)^2 - a + \dots}}} \quad 2.27$$

Ersetzt man in dem Kettenbruch n durch $(n-1)$, so erhält man eine weitere Relation zwischen c_{2n} und c_{2n-2} . Mit diesen zwei Kettenbrüchen kann man dann die Beziehung zwischen a , q und \mathbf{b} erhalten:

$$\mathbf{b}^2 = a + \frac{q^2}{(\mathbf{b} + 2)^2 - a - \frac{q^2}{(\mathbf{b} + 4)^2 - a - \frac{q^2}{(\mathbf{b} + 6)^2 - a - \dots}}} + \frac{q^2}{(\mathbf{b} - 2)^2 - a - \frac{q^2}{(\mathbf{b} - 4)^2 - a - \frac{q^2}{(\mathbf{b} - 6)^2 - a - \dots}}} \quad 2.28$$

Wegen der Invarianz der Mathieschen Differentialgleichung unter der Transformation $\mathbf{t} \mapsto -\mathbf{t}$, d.h. unter Zeitumkehr, erhält man eine zweite, von 2.23 linear unabhängige, Floquetsche Lösung, so daß die allgemeine Lösung einfach durch die Linearkombination der beiden dargestellt ist:

$$u(\mathbf{t}) = A \cdot \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} \cdot e^{i(\mathbf{b}_u + 2n)\mathbf{t}} + B \cdot \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} \cdot e^{-i(\mathbf{b}_u + 2n)\mathbf{t}} \quad 2.29a$$

bzw. unter Verwendung trigonometrischer Funktionen:

$$u(\mathbf{t}) = A' \cdot \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} \cdot \cos[(\mathbf{b}_u + 2n)\mathbf{t}] + B' \cdot \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} \cdot \sin[(\mathbf{b}_u + 2n)\mathbf{t}] \quad 2.29b$$

Dabei sind A' und B' festgelegt durch die Anfangsbedingungen für den Ort

¹ der Index von β wird im Folgenden der Übersichtlichkeit halber weggelassen und erst wieder ab (2.32) eingefügt

$$u(t=0) = A' \cdot \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} \quad 2.30$$

und die Geschwindigkeit

$$u'(t=0) = B' \cdot \sum_{n=-\infty}^{+\infty} (b + 2n) c_{2n} . \quad 2.31$$

2.2.3 Stabilität der Lösungen¹

Die Betrachtung von (2.29) liefert grundsätzliche Aussagen über die Stabilität von Lösungen, sowie die Frequenzen der Ionenbewegung in Abhängigkeit von b , bzw. a und q .

- Ist b rein imaginär, so führen die Faktoren e^{ibt} bzw. e^{-ibt} unmittelbar zu instabilen, nichtperiodischen Lösungen.
- Ist b komplex und ungleich Null, so sind die Lösungen instabil und nichtperiodisch.
- Ist b reell und eine rationale, nicht ganze Zahl, so sind die Lösungen stabil und periodisch.
- Ist b reell und eine irrationale Zahl, so sind die Lösungen stabil und nicht periodisch, d.h. sie reproduzieren sich niemals exakt in irgendeinem Intervall.
- Ist b reell und eine ganze Zahl, so gibt es eine nicht-triviale, beschränkte, 2π -periodische Lösung; alle anderen Lösungen sind nicht beschränkt [Meix54]. Diese Lösungen werden Mathieu-Funktionen integraler Ordnung genannt und bilden die Grenze zwischen stabilen und instabilen Regionen im Stabilitätsdiagramm (s.unten). Die Periodizität bei geradem b ist π , bei ungeradem 2π [Daws76]. Diese Grenzen heißen auch charakteristische Kurven.

In der (a, q) -Ebene trennen somit die Linien ganzzahliger b die stabilen und instabilen Gebiete. Die sich so ergebende Stabilitätskarte (auch Struttische oder Ince-Struttische Karte genannt) ist in Abb. 2.5 dargestellt.

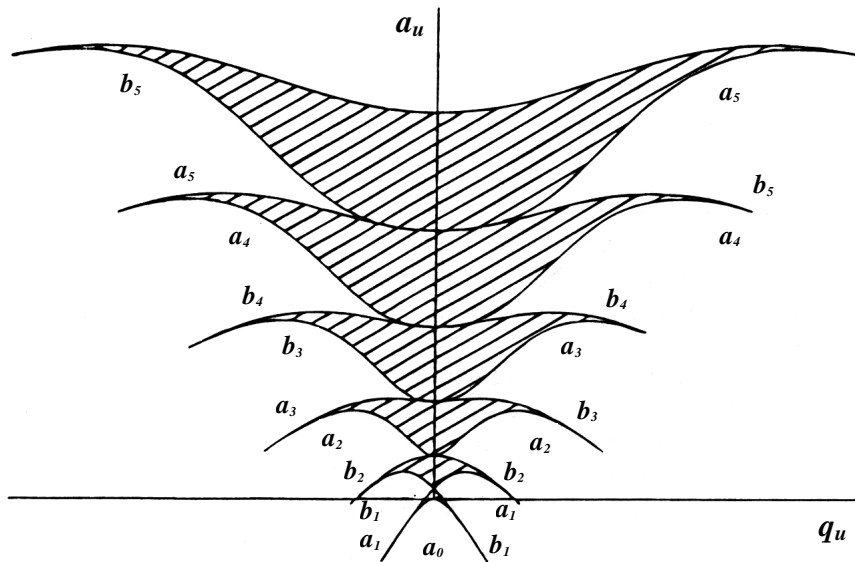


Abb. 2.5: Stabilitätskarte der Mathieschen Differentialgleichung nach [Meix54]. Die Kurven zu geradem b sind symmetrisch zur a -Achse, die zu ungeradem b asymmetrisch; dennoch ist das gesamte Diagramm symmetrisch. Die stabilen Bereiche sind schraffiert dargestellt. Die a_m bzw. b_m ($m = 0, 1, 2, \dots$) bilden die p - bzw. $2p$ -periodischen Lösungen.

¹ Siehe hierzu [McLa51] S. 59 f., [Meix54] S. 131, [Daws76] S. 16 und [Marc89] S. 41. Ob die Aussagen von [Meix54] und [Daws76] zum letzten Punkt der Stabilitätsbetrachtung miteinander vereinbar sind, bleibt offen.

Um für die Paulfalle eine anschauliche Darstellung der Stabilität von (a, q) -Parameterpaaren bezüglich aller drei Raumrichtungen zu erhalten, überlagert man die Stabilitätskarten für r- und z-Richtung. Dabei wählt man als Koordinaten üblicherweise a_z und q_z und muß die Stabilitätskarte für r-Richtung entsprechend (2.19) umskalieren.

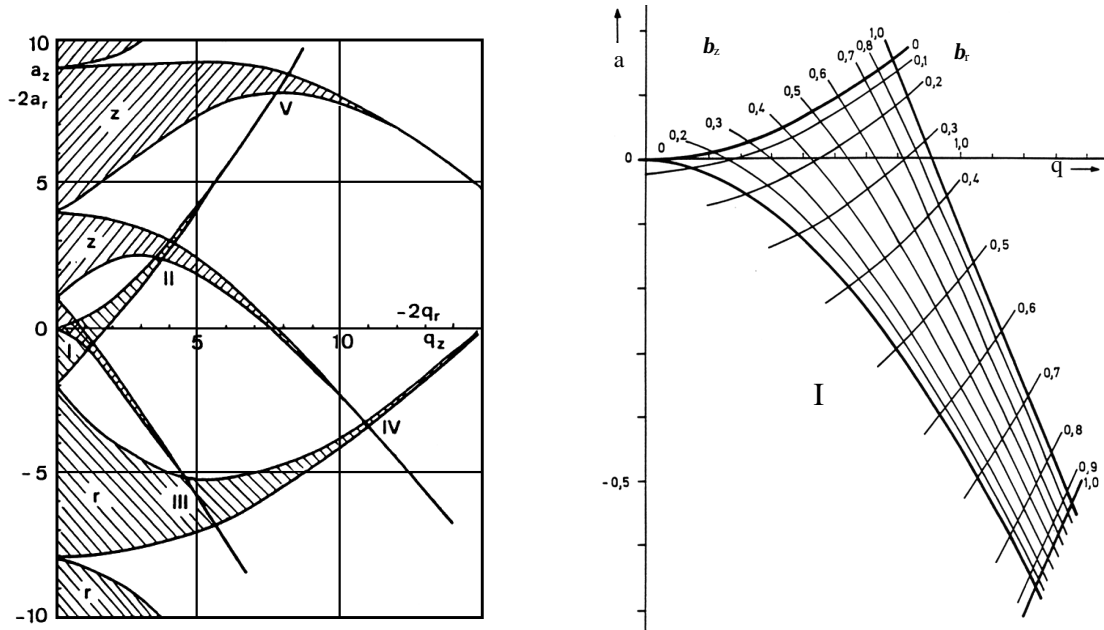


Abb. 2.6: Stabilitätsdiagramm der klassischen Paulfalle. Rechts dargestellt ist ein kleiner Ausschnitt aus dem Diagramm, der sogenannte erste Stabilitätsbereich mit den Linien mit konstantem b (Iso- b -Linien).

In Abb. 2.6 [Ruth92] ist rechts der für die Speicherung von Ionen genutzte erste Speicherbereich abgebildet. Die Speicherung von Teilchen in den anderen Überschneidungsgebieten von r- und z-stabilen Bahnen ist prinzipiell möglich, wird aber praktisch nicht durchgeführt, da wegen des größeren a und q die benötigten Spannungen (bei gleichbleibender Frequenz) deutlich größer sind als im ersten Speicherbereich¹. Zu bemerken ist noch, daß die obigen Diagramme nur den theoretisch möglichen Speicherbereich zeigen, ohne zu berücksichtigen, daß prinzipiell stabile Bahnen großer Bewegungsamplitude eventuell wegen der endlichen Fallengröße nicht gespeichert werden, d.h. der experimentelle Speicherbereich etwas innerhalb der gezeigten Grenzen liegt.

2.2.4 Das Frequenzspektrum

An der Form der allgemeinen Lösungen (2.29b) der Mathieuschen Differentialgleichung lassen sich für einen festen Arbeitspunkt (a_u, q_u) die Frequenzen der Ionenbewegung unter Verwendung von $t = \frac{1}{2} \Omega t$ (vgl. (2.19)) ablesen:

$$w_{n,u} = \left| n + \frac{b_u}{2} \right| \cdot \Omega \quad \text{mit} \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad 2.32$$

Die Anteile höherer Frequenzen nehmen allerdings wegen der bereits erwähnten Konvergenz der $c_{2n,u}$ für große $|n|$ (vgl. (2.24)) rasch ab. Insgesamt ist die Ionenbewegung kompliziert, nur unter bestimmten Umständen, d.h. wenn die Schwingungsdauern in r- und z-Richtung kleinste

¹ Experimentelle Beobachtungen der Speicherung in höheren Stabilitätsbereichen haben Fischer mit Elektronen in der Paulfalle (Bis über den 90. z-stabilen Bereich hinaus [Fisc59]) und Dawson und Bingqi mit einem Massenfilter im zweiten Stabilitätsbereich [Daws84b] gemacht. Theoretische Betrachtungen zum zweiten Stabilitätsbereich finden sich in [Daws84a, Jieb93].

gemeinsame Vielfache der Dauer einer Speicherfeldperiode sind, entsprechen die Teilchenbahnen Lissajous-Figuren. (Vgl. mit der Stabilitätsbedingung für rationale Zahlen). Abbildung 2.7 zeigt die Teilchenbewegung in einem Experiment von Wuerker [Wuer59]:

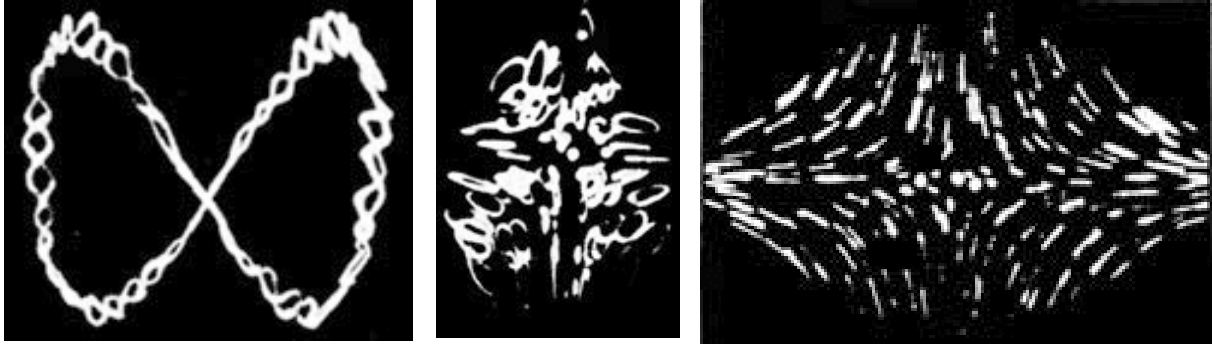


Abb. 2.7: Bewegungen von Metallpartikeln in einem Quadrupolfeld. Abbildungen aus [Wuer59].

2.2.5 Näherungen

Die zur Berechnung der an die Fallenelektroden anzulegenden Spannungen U_0 und V_0 , d.h. zur Berechnung von a_u und q_u , nötigen Kettenbruchgleichungen verlangen wegen ihrer Unhandlichkeit nach einer einfachen, für den praktischen Gebrauch geeigneten Näherung. Da die Grundfrequenz ($n = 0$) die größte Amplitude besitzt, vernachlässigt man die höheren Schwingungen und kann die Mathieusche DGL durch die gewöhnliche Schwingungsgleichung ersetzen [Fisc59 und Wuer59].

Adiabatische Näherung:

Für die von Dehmelt als *adiabatische Näherung* bezeichnete Bedingung $a, q \ll 1$ liefert eine Potenzreihenentwicklung der Beziehung zwischen a, q und b :

$$b_u^2 \approx a_u + \frac{q_u^2}{2} \quad 2.33$$

Setzt man dies nun in der Rekursionsformel (2.25) ein, so wird diese für $n = 0$ zu

$$c_2 + c_{-2} = -\frac{q_u}{2} \cdot c_0, \quad \text{und} \quad c_2 = c_{-2} = -\frac{q_u}{4} \cdot c_0 \quad 2.34$$

folgt aus der Potenzreihenentwicklung der c_{2n} [Meix54]. Unter Anwendung einiger Additionstheoreme für trigonometrische Funktionen und mit der Substitution (aus (2.19) und (2.32))

$$w_u = \frac{b_u}{2} \Omega \quad b_u t = w_u t \quad 2t = \Omega t \quad 2.35$$

ergibt sich für die Ionenbewegung im Speicherpotential

$$u(t) = c_0 \sqrt{A^2 + B^2} \left\{ 1 - \frac{q_u}{2} \cos(\Omega t) \right\} \cos(w_u t - j) \quad 2.36$$

mit der Phase

$$j = \arctan\left(\frac{A - B}{A + B}\right). \quad 2.37$$

Das Ion führt also in r - und z -Richtung jeweils eine Überlagerung zweier harmonischer Schwingungen aus, nämlich einer langsamen *Makro-* oder *Säkularbewegung* $w_{r,z}$, deren Amplitude mit der Führungsfeldfrequenz Ω , der *Mikrobewegung*, moduliert ist.

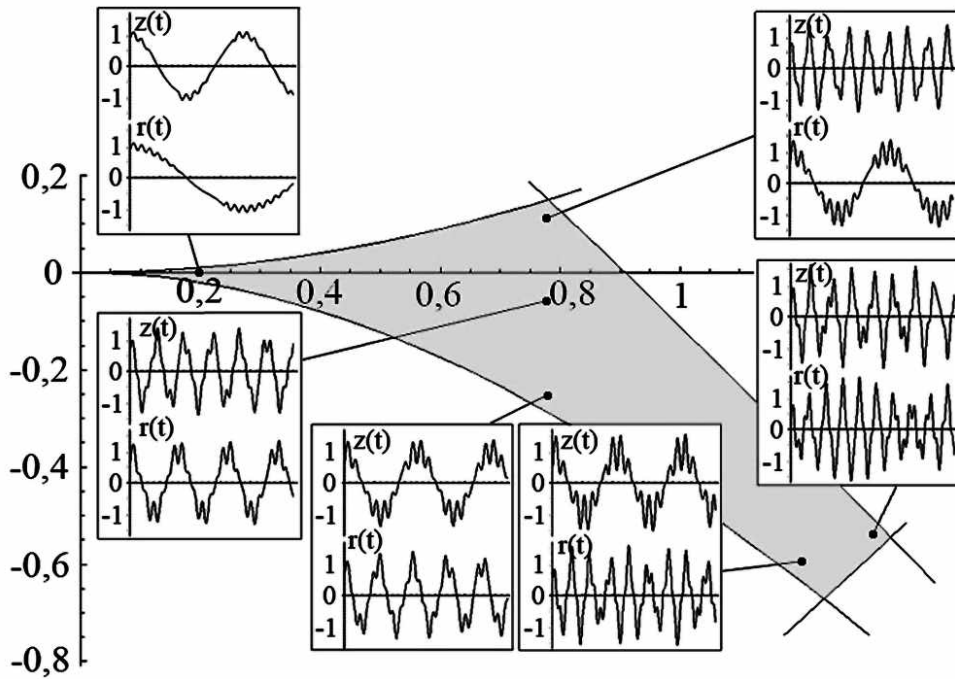


Abb. 2.8: Darstellung der Teilchenbewegung für verschiedene Wertepaare (a, q) nach der adiabatischen Näherung. Jeweils dargestellt sind $r(t)$ und $z(t)$. Anmerkung: Die Speicherbereichsgrenzen wurden nicht nach adiabatischer Näherung sondern numerisch berechnet.

Ausgehend von dieser oder ähnlichen Überlegungen existieren einige theoretische Modelle, die prinzipiell unter die Rubrik "Näherungen" fallen. Diese beschäftigen sich aber im Gegensatz zur bisherigen Betrachtung nicht mit dem Sachverhalt einer Probeladung im Fallenfeld, sondern mit Ionenwolken; sie werden daher in Kapitel 2.3 angesprochen. Anstelle von (2.33) existiert noch eine weitere, genauere Näherung für den Zusammenhang zwischen a , q und \mathbf{b} :¹

$$\mathbf{b}_u = \left[a_u - \frac{(a_u - 1)q_u^2}{2(a_u - 1)^2 - q_u^2} - \frac{(5a_u + 7)q_u^4}{32(a_u - 1)^3(a_u - 4)} - \frac{(9a_u^2 + 58a_u + 29)q_u^6}{64(a_u - 1)^5(a_u - 4)(a_u - 9)} \right]^{1/2} \quad 2.38$$

Die Güte der Näherungen soll mit einer numerischen Rechnung mittels der Mathieu-Funktionen von Mathematica®5.1 anhand des Stabilitätsdiagramms verglichen werden.

Wie in Abbildung 2.9 zu sehen ist, sind die Abweichungen zur numerischen Rechnung für größere Werte von \mathbf{b} immens. Die Näherungen sind allenfalls für kleinere bis mittlere Werte von \mathbf{b} brauchbar. Bei ihrer Verwendung stellt sich daher immer die Frage der Anwendbarkeit (auch Abb. 2.8 kann daher nur tendenzielle Ergebnisse zeigen). Auch die Näherung der Teilchenbewegung als Überlagerung zweier harmonischer Schwingungen sollte man unter Beachtung der von McLachlan gemachten Stabilitätsbetrachtung für reelle, irrationale \mathbf{b} sehen (siehe S. 16).

¹ Diese Näherung wird üblicherweise J. P. Carrico [Carr72] zugeschrieben, sie steht jedoch schon in [McLa51, S. 82], also einer noch über 20 Jahre älteren Publikation, worin verwiesen wird auf [McLa45].

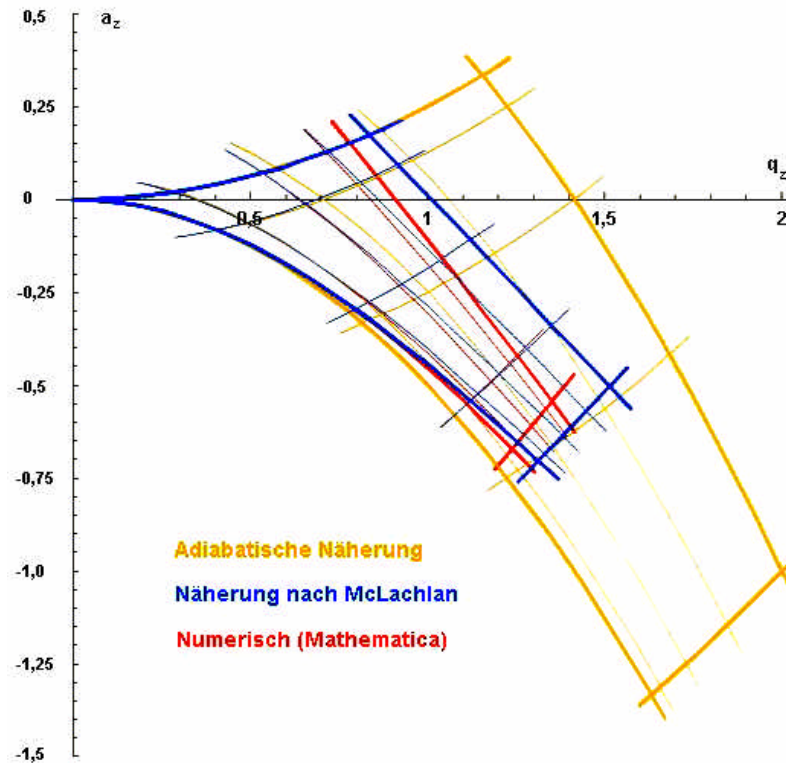


Abb. 2.9: Unterschied der berechneten Stabilitätsdiagramme: rot: numerisch (Mathematica®5.1), blau: Näherung nach McLachlan (siehe (2.38)) und gelb: adiabatische Näherung (siehe (2.33)). Jeweils gezeichnet sind die Linien $b_{z/r} = 0, \frac{1}{4}, \frac{1}{2}, \frac{3}{4}, 1$

Eine sehr anschauliche Beschreibung des Speichermechanismus von Dehmelt [Dehm67, Alt98b] soll hier noch kurz wiedergegeben werden:

Ein Teilchen in einer Paulfalle wird in z-Richtung in der einen Halbperiode des Führungsfelds zum Zentrum hin und in der nächsten vom Zentrum weg beschleunigt (in r-Richtung genauso, aber um 180° phasenverschoben). Da das Teilchen eine erzwungene Schwingung ausführt, befindet es sich – bei geeigneter Wahl der Führungsfeldfrequenz in Bezug auf seine Eigenfrequenz – weiter entfernt vom Fallenzentrum während der Beschleunigung auf die Fallenmitte hin und näher am Zentrum während der Beschleunigung von diesem weg. Weil das elektrische Feld proportional zum Abstand vom Fallenzentrum stärker wird, ist die Beschleunigung auf das Zentrum hin stets größer als die Beschleunigung vom Zentrum weg. Es resultiert also im Mittel eine auf das Fallenzentrum gerichtete Kraft.

2.3 Die reale Paulfalle

2.3.1 Historischer Überblick

Schon früh in der Entwicklungsgeschichte des Quadrupol-Massenfilters fanden Fritz von Busch und W. Paul 1961 [Busc61a/b] innerhalb des theoretisch stabilen Bereichs Signaleinbrüche, die sie analog zur Theorie der Teilchenbeschleuniger mit starker Fokussierung [Hage57, Barb58] als nichtlineare Resonanzen - hervorgerufen durch Feldfehler - deuteten. Mit der Beschreibung der Feldfehler durch höhere Multipole zusätzlich zum Quadrupolfeld und der Resonanzbedingung

$$\Omega = n_r \cdot \omega_r + n_z \cdot \omega_z, \quad |n_r| + |n_z| = N, \quad N, n_r, n_z \text{ ganz}^1 \quad 2.39$$

lieferten sie auch den theoretischen Hintergrund zur Berechnung der Lage der Resonanzen. Die Gruppe in Bonn beschrieb auch den Einfluß der Raumladung einer Ionenwolke auf das Speicherpotential [Paul58b] sowie die Auswirkungen eines überlagerten Resonanzfelds bzw. eines Magnetfelds [Fisc59].

1968 und 1969 widmeten sich P. H. Dawson und N. R. Whetten den nichtlinearen Resonanzen für den dreidimensionalen Fall der Paulfalle [Daw68a/b, Daw69a/b]. Die Lage der Resonanzen ergab sich aus der auf 3 Dimensionen erweiterten Überlegung von Busch und Paul, zusätzlich berechneten sie die Form der Resonanzen für verschiedene Feldfehler (d.h. unterschiedliche Multipolordnungen) und für unterschiedliche Stärken der Fehler. Die in den theoretischen Berechnungen eingesetzten Wichtungsfaktoren für die Stärke der Feldabweichung wurden ferner mit der Fertigungspräzision der im Experiment existierenden Falle in Beziehung gebracht. Sie entwickelten ein für die damalige Massenspektrometriemethode interessantes Verfahren, den Speicherbereich durch Anlegen einer Zusatzspannung zwischen den Endkappen gegenüber den Resonanzen zu verschieben und so eine resonanzfreie Speicherbereichspitze zu erhalten.

Für über 20 Jahre wurden dann keine weiteren Untersuchungen der nichtlinearen Resonanzen mehr vorgenommen. Erst die Beobachtung eines Punktes innerhalb des Speicherbereichs, an dem fast keine Speicherung möglich war, durch Guidugli und Traldi [Guid91] änderte dies. Ihre beim Messen mit einem Finnigan-Paulfallen-Massenspektrometer gemachte Beobachtung nannten sie "Black Hole" und später "Black Canyon" [Guid92]. Andere Autoren beobachteten ähnliches [Morr91, Yost92], worauf sich Finnigan MAT dazu entschloß, ihr Betriebsgeheimnis zu lüften und zu erklären, daß die Geometrie der Falle nicht der ideal erwarteten entsprach (Endkappendistanz um ca. 11% vergrößert). Vedel [Vede90b] hatten ähnliche Beobachtungen in einer nichtkommerziellen Falle gemacht und auch Yoda [Yoda92] hatte reduzierte Ionenzahlen und Speicherzeiten bei bestimmten Werten von q beobachtet.

1993 lieferten Eades, Johnsen und Yost das erste fast komplett aufgenommene experimentelle Speicherdiagramm mit grob erkennbaren Resonanzstrukturen [Eade93]. Die ersten hochaufgelösten Messungen eines großen Teils und die erste vollständige Messung des gesamten Speicherbereichs wurden 1995 von Alheit, Hennig und Morgenstern durchgeführt [Alhe95, Morg94]. 1996 untersuchten Alheit und Kleineidam einen größeren Bereich mit hoher Auflösung, zudem wurde erstmals die Abhängigkeit der Resonanzen von der Ionenanzahl [Alhe96b] sowie Seitenbänder der Resonanzen bei externer Anregung beobachtet [Alhe96, Klei95].

1987 beobachteten Jungmann et al., daß bei der gleichzeitigen Speicherung verschieden schwerer Ionen ein Zusammenfallen der Makrofrequenzen, d.h. kollektive Oszillation, auftritt, wenn der Massenunterschied nicht zu groß ist [Jung87].

Weitere kollektive Effekte traten zutage, als 1990 in den bei externer Anregung erhaltenen Frequenzspektren eine Aufspaltung der Bewegungsresonanzen beobachtet wurde [Vede90a, Vede90b]. Diese trat bei Überschreitung einer kritischen Anregungsamplitude auf und ließ sich als Resonanzen der kollektiven bzw. individuellen Ionenbewegung bei Anwesenheit von Dämpfung erklären [Alhe97b]. Rückblickend muß allerdings festgestellt werden, daß die kollektiven Resonanzen schon 1965 von Rettinghaus beobachtet und richtig gedeutet worden waren [Rett65].

Erstmals wurden auch Resonanzen höherer Ordnung in k beobachtet [Alhe96b, Chu98], entsprechend einer Erweiterung der obigen Resonanzbedingung zu:

¹ An den Wert N wurde noch eine hier nicht näher erläuterte Bedingung geknüpft, die die Zahl der Resonanzen einschränkte, was aus heutiger Sicht nicht korrekt erscheint. Auch Dawson und Whetten machten eine derartige Einschränkung.

$$\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\Omega} = n_r \cdot \mathbf{w}_r + n_z \cdot \mathbf{w}_z, \quad n_r + n_z = N, \quad \mathbf{k}, n_r, n_z, N \text{ ganz} \quad 2.40$$

Das Auftreten und die Stärke der Resonanzen sowie deren Mechanismus berechneten Franzen, Wang und Wanczek zu Anfang der 90er Jahre [Fran91, Wang92, Wang93b, Wang94, Fran93, Fran94, Wang93c].

Bei der Anregung der Ionenbewegung mittels eines zusätzlichen elektrischen Felds erwartet man zudem das Auftreten parametrischer Resonanzen. Diese wurden dann auch 1998 beobachtet, allerdings mit einem Unterschied in der kritischen Anregungsamplitude bei geradzahligen und ungeradzahligen Resonanzen [Razv98, Schä99]. Dieses "odd-even staggering" genannte Phänomen klärte Tommaso 2004 [Tomm04].

Ein weiterer bei Fallenexperimenten zu beobachtender Effekt ist die sogenannte Raumladungsverschiebung, d.h. die Verschiebung des Stabilitätsbereichs und der Bewegungsfrequenzen - und damit auch der Resonanzen - bei der Speicherung großer Ionenzahlen. Seit Fischer [Fisc59] gibt es hierzu eine Vielzahl von experimentellen Beobachtungen und theoretischen Modellen (siehe Kapitel 2.3.4).

2.3.2 Abweichungen vom idealen Quadrupolpotential

Bezogen auf die in Kapitel 2.2 dargestellte ideale Theorie ergeben sich für die in Experimenten verwendeten Fallen folgende Abweichungen:

- a) Da in der Falle mindestens ein Ion gespeichert sein soll, ist genaugenommen schon die Laplace-Gleichung (2.4) $\Delta f = 0$ für das gestellte Problem ungeeignet.
- b) Ring und Kalotten haben im Gegensatz zu den Rotationshyperboloiden (2.8, 2.9) eine endliche Ausdehnung.
- c) In Ring und Kalotten existieren Öffnungen für Ionenerzeugung, Lasereinschuß und Nachweis.
- d) Die Elektrodenoberflächen und die Justage der Elektroden beim Zusammenbau der Falle unterliegen gewissen Toleranzen.
- e) Durch die Ionenerzeugung können sich auf den Fallenelektroden Ablagerungen bilden, die aufgrund elektrochemischer Effekte zu lokalen Potentialen führen.
- f) Durch die Öffnungen der Fallenelektroden kann ein Durchgriff äußerer Potentiale ins Falleninnere erfolgen.
- g) Der Frequenzgenerator liefert kein exakt frequenzreines und amplitudenstabiles Speicherfeld.
- h) Wechselwirkungen zwischen den gespeicherten Ionen einerseits und zwischen Ionen und Molekülen des Restgases andererseits wurden bisher vernachlässigt.
- i) Tendenziell kleine Effekte wie die Spiegelladung der Ionen, das Erdmagnetfeld oder die Gravitation wurden nicht berücksichtigt.

Dies alles führt dazu, daß zum Einen die Rotationssymmetrie gebrochen ist, und zum Anderen das Speicherpotential nicht mehr quadratisch und damit die auf die Ionen wirkende Kraft nicht mehr linear ist. Als Folge der Nichtlinearität erhält man anstelle von (2.17 und 2.18) gekoppelte Differentialgleichungen, und damit im Endeffekt nichtlineare Resonanzen, d.h. bei bestimmten Speicherparametern nehmen die Ionen aus dem HF-Speicherfeld Energie auf, was zu einer Aufweitung der Bahn und somit zu Ionenverlust führen kann. Speichereigenschaften und Resonanzen sind dabei abhängig von der Zahl gespeicherter Ionen und vom Restgasdruck in der Apparatur.

2.3.3 Feldfehler

Wollte man die Bedingungen, denen ein Ion in einer realen Falle ausgesetzt ist, exakt modellieren, so müßte man zunächst das Potential einer solchen Falle mit allen oben genannten Eigenschaften der Elektroden und der vom Frequenzgenerator gelieferten Spannung berechnen. Damit – und mit Hinzunahme aller weiteren obigen Effekte – wäre dann die Bewegungsgleichung des Ions bzw. der Ionen aufzustellen und zu lösen. Abgesehen vom rechnerischen Aufwand und der sicher nicht exakten Lösbarkeit des Problems, wäre hiermit aber nur die Falle eines einzigen Experiments beschrieben und eine Vergleichbarkeit solcher Rechnungen für verschiedene Fallen wäre nicht von vorneherein gesichert. Daher wird üblicherweise das Fallenpotential durch eine Multipolentwicklung dargestellt, so daß sich die Unterschiede verschiedener Fallen sehr einfach durch zahlenmäßigen Vergleich der Koeffizienten der verschiedenen Multipolordnungen ergeben.

Angesichts dieses Vorteils der Methode wird üblicherweise ihr Nachteil außer acht gelassen: Vergleicht man experimentelle und theoretische Daten mit dem Ziel, Werte für die Koeffizienten der Multipolentwicklung zu erhalten, so werden auch alle Effekte (und dies kann nicht unerheblich sein), die diese Methode nicht erfassen kann, in den Koeffizienten abgebildet.

Im Folgenden werden die Resonanzbedingung, die Frequenzspektren der Ionenbewegung und der Entstehungsmechanismus der nichtlinearen Resonanzen nach Wang, Franzen und Wanczek [Wang93b, Fran94, Wang93c] dargelegt:

Jedes rotationssymmetrische¹ Potential kann in Kugelkoordinaten in einer Reihe

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{j}, \mathbf{q}) = f_0(t) \cdot \sum_{k=0}^{\infty} c_k \left(\frac{\mathbf{r}}{r_0} \right)^k P_k(\cos \mathbf{q}) \quad 2.41$$

entwickelt werden mit f_0 dem Potential (2.11) und den Legendre-Polynomen P_k . In Zylinderkoordinaten ergibt sich daraus unter Vernachlässigung des ersten, konstanten Terms:

¹ Dies ist schon die erste Einschränkung der Gültigkeit dieser Methode. Sie ist in vielen realen Fällen aufgrund von Bohrungen in den Elektroden und Justagefehlern von Kalotten und Ring nicht erfüllt.

$$\begin{aligned}
f(r, y, z) = f_0(t) \cdot & \left[c_1 \frac{z}{r_0} \right. & \text{Dipol} & \begin{array}{c} \text{---} \oplus \text{---} \\ \text{---} \ominus \text{---} \end{array} & 2 \\
& + c_2 \frac{2z^2 - r^2}{2r_0^2} & \text{Quadrupol} & \begin{array}{c} \oplus \quad \oplus \\ \ominus \quad \ominus \end{array} \\
& + c_3 \frac{2z^3 - 3zr^2}{2r_0^3} & \text{Hexapol} & \begin{array}{c} \oplus \quad \oplus \quad \oplus \\ \ominus \quad \ominus \quad \ominus \end{array} \\
& + c_4 \frac{8z^4 - 24r^2z^2 + 3r^4}{8r_0^4} & \text{Oktopol} & \begin{array}{c} \oplus \quad \oplus \quad \oplus \quad \oplus \\ \ominus \quad \ominus \quad \ominus \quad \ominus \end{array} \\
& + c_5 \frac{8z^5 - 40r^2z^3 + 15r^4z}{8r_0^5} & \text{Decapol} & \begin{array}{c} \oplus \quad \oplus \quad \oplus \quad \oplus \quad \oplus \\ \ominus \quad \ominus \quad \ominus \quad \ominus \quad \ominus \end{array} \\
& + \dots \Big] & & & 2.42
\end{aligned}$$

Die jeweils zu den c_k gehörenden Terme¹ sind die Multipolkomponenten der Ordnung $2k$. Das Potential kann als Summe aus idealem Quadrupolpotential und rotationssymmetrischem Störpotential \tilde{f} geschrieben werden. Man konstruiert nun die Hamiltonfunktion in kartesischen Koordinaten und separiert sie in einen Hauptteil H_0 und einen Störungsteil H' :

$$H = H_0 + H' \quad \text{mit} \quad 2.43$$

$$H_0 = \frac{p_x^2}{2m} + \frac{p_y^2}{2m} + \frac{p_z^2}{2m} + \frac{e}{r_0^2} (U_0 + V_0 \cos \Omega t) (x^2 + y^2 - 2z^2) \quad \text{und} \quad H' = \frac{e}{r_0^2} (U_0 + V_0 \cos \Omega t) \cdot \tilde{f}$$

Mit dem Hamiltonformalismus werden nun die Bewegungsgleichungen abgeleitet und mit (2.19) auf die Form der jetzt inhomogenen Mathieuschen Differentialgleichungen gebracht, die über die partielle Ableitung des Störpotentials gekoppelt und nicht mehr analytisch lösbar sind:

$$\begin{aligned}
\frac{d^2 x}{dt^2} + (a_x - 2q_x \cos 2t) \cdot x &= \frac{1}{4} (a_z + 2q_z \cos 2t) \frac{\partial \tilde{f}}{\partial x} \\
\frac{d^2 y}{dt^2} + (a_y - 2q_y \cos 2t) \cdot y &= \frac{1}{4} (a_z + 2q_z \cos 2t) \frac{\partial \tilde{f}}{\partial y} \\
\frac{d^2 z}{dt^2} + (a_z - 2q_z \cos 2t) \cdot z &= \frac{1}{4} (a_z + 2q_z \cos 2t) \frac{\partial \tilde{f}}{\partial z}
\end{aligned} \quad 2.44$$

¹ Es ist zu beachten, daß diese Terme je nach Autor und Publikation unterschiedlich ausfallen, da die hier dimensionslosen c_k an anderer Stelle womöglich Vorzeichen, Faktoren und r_0 in unterschiedlichen Potenzen enthalten. Die Darstellung oben folgt direkt aus den Legendrepolynomen.

² Grafiken nach [Marc95].

Davon ausgehend wird nach einer linearen und einer nichtlinearen kanonischen Transformation (die genaue Rechnung ist in [Wang93b] angegeben) eine Erzeugende der Lösung des Gleichungssystems hergeleitet, womit man eine Bedingung für \mathbf{b}_u erhält, bei der die Lösungen der Bewegung unbeschränkt anwachsen:

$$n_x \frac{\mathbf{b}_x}{2} + n_y \frac{\mathbf{b}_y}{2} + n_z \frac{\mathbf{b}_z}{2} = k \quad 2.45$$

$$\text{mit } n_x, n_y, n_z, k \in \mathbb{Z} \quad \text{und} \quad |n_x| + |n_y| + |n_z| = N$$

N ist die Resonanzordnung und kann für ein k die Werte k, k-2, k-4 ... annehmen (k ist der Index der Summe in 2.41 und 2k die Multipolordnung)¹. Bei Rotationssymmetrie des Speicherpotentials vereinfacht sich die Resonanzbedingung mit $\mathbf{b}_x = \mathbf{b}_y = \mathbf{b}_r$ und $n_r = n_x + n_y$ zu:

$$n_r \frac{\mathbf{b}_r}{2} + n_z \frac{\mathbf{b}_z}{2} = k \quad 2.46$$

und bei Multiplikation mit Ω :

$$n_r \mathbf{w}_r + n_z \mathbf{w}_z = k \Omega \quad 2.47$$

Man sieht also, daß nichtlineare Resonanzen dann auftreten, wenn eine Linearkombination der Makrofrequenzen gleich einem ganzzahligen Vielfachen der Führungsfeldfrequenz ist. Ist diese Bedingung erfüllt, nehmen die Ionen Energie aus dem Speicherfeld auf. Was dabei anschaulich geschieht, beschreibt Franzen [Fran94], auch nachzulesen in [Marc95]:

Zunächst ist es dazu nützlich, das Frequenzspektrum der Ionenbewegung im Fall unterschiedlicher Multipole kennenzulernen:

Führt man eine Fourieranalyse der Ionenbewegung (hier beschränkt auf die z-Bewegung) durch, so ergibt sich für das Speicherfeld mit reinem Quadrupolpotential das Frequenzspektrum nach (2.32):

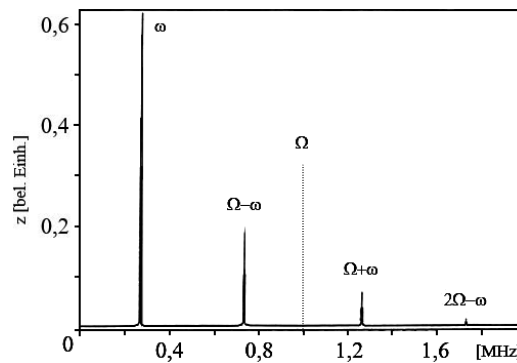


Abb. 2.10: Berechnetes Frequenzspektrum der z-Bewegung eines Ions im reinen Quadrupolfeld ($W = 1$ MHz, $m=47$ amu, $w_z = 0,27$ MHz). Außer der Grundfrequenz der Säkularbewegung w_z sind nur die sogenannten Seitenbandfrequenzen $W - w_z$, $W + w_z$ etc. zu sehen. Entnommen aus [Fran94].²

und für das Feld mit zusätzlich 20% eines ungeraden Multipols, d.h. k in (2.41) ungerade (z. B. hier Hexapol):

¹ Diese Bedingung ist, wie Franzen selbst schreibt [Fran94, S.37], nicht korrekt, da es höhere Ordnungen geben kann, die zugehörigen Resonanzen aber schwach sind.

² Zur Nomenklatur: ω_z ist die Grundfrequenz der Säkularbewegung, Frequenzen $n\omega_z$ sind die höheren Harmonischen, Frequenzen $k\Omega \pm \omega_z$ bezeichnet man als Serien der Seitenbänder der Grundfrequenz und $k\Omega \pm n\omega_z$, $n > 1$ als Seitenbänder der höheren Harmonischen (siehe auch bei Franzen, diese Nomenklatur entspricht nicht ganz der für eine modulierte Trägerfrequenz üblichen Bezeichnungsweise, da hier ω_z als "Träger" eine kleinere Frequenz als die "Modulation" Ω besitzt).

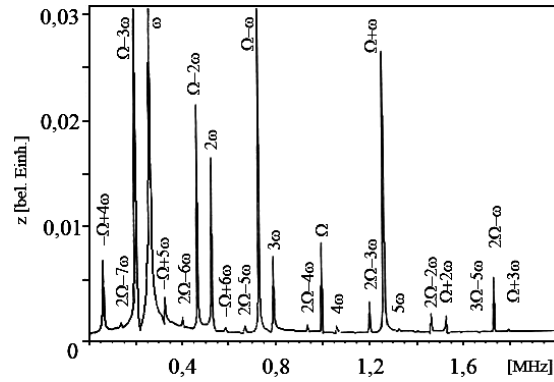


Abb. 2.11: Berechnetes Frequenzspektrum der z-Bewegung eines Ions in einem Quadrupolfeld mit 20% Hexapol-Anteil ($W = 1$ MHz). Zu sehen sind die Grundfrequenz der Säkularbewegung, noch höhere Harmonische $2w_z$, $3w_z$ etc., die Seitenbandfrequenzen $W-w_z$, $W+w_z$ etc. und Seitenbänder höherer Harmonischer. Zudem tritt die Speicherfeldfrequenz W auf. Entnommen aus [Fran94].

und für das Feld eines Quadrupols mit 20% Anteil eines geraden Multipols, d.h. k in (2.41) gerade (z. B. hier Oktopol):

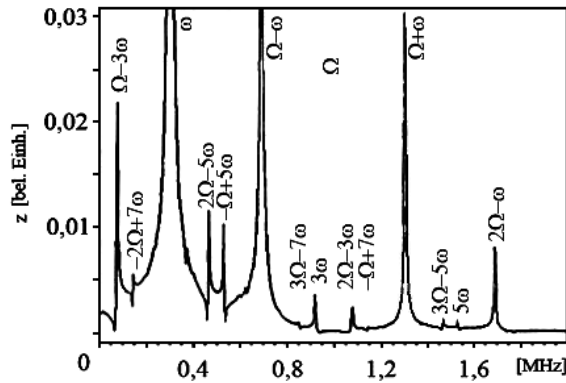


Abb. 2.12: Berechnetes Frequenzspektrum der z-Bewegung eines Ions in einem Quadrupolfeld mit 20% Oktopol-Anteil ($W = 1$ MHz). Zu sehen sind im Gegensatz zum Hexapolfeld in Abb. 2.11 wesentlich weniger Frequenzen, da nur die ungeraden höheren Harmonischen $3w_z$, $5w_z$ etc., und die entsprechenden Seitenbänder der höheren Harmonischen erzeugt werden. Aus [Fran94].

Wie man sieht, gibt es im Fall des reinen Quadrupolfelds in Abbildung 2.10 nur die Seitenbänder einer einzigen Frequenz. Stellt man sich vor, daß man im Stabilitätsdiagramm von kleinen a und q , und damit von b , zu immer höheren Werten wandert, dann erhöht sich dabei wegen (2.32) ω_z , während sich $\Omega-\omega_z$ in gleichem Maße verringert. Dies geschieht ebenso mit den Frequenz-Paaren in den Intervallen Ω bis 2Ω , 2Ω bis 3Ω usw. (siehe Abb. 2.13a)

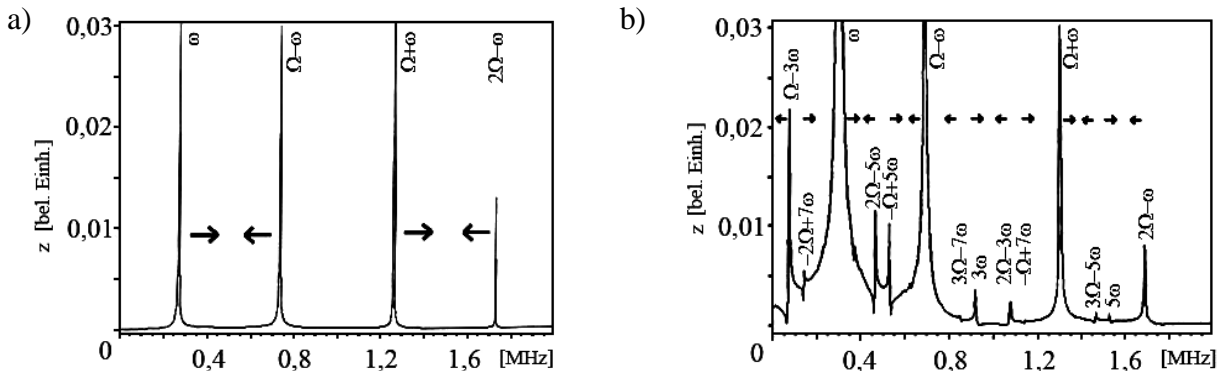


Abb. 2.13: Wandern der Frequenzen bei Erhöhung von b für a) Quadrupol und b) Oktopol. Details siehe Text.

Wenn diese Frequenz-Paare sich schließlich treffen – und sie treffen sich in allen Intervallen gleichzeitig – nimmt die Ionenbewegung Energie aus dem Speicherfeld auf und es kommt zu einer im Stabilitätsdiagramm beobachtbaren Resonanz. Beim Beispiel des Quadrupolfelds passiert dies für $\omega = \Omega/2$, d.h. für $b = 1$. Dies liegt außerhalb des Speicherbereichs, somit gibt es keine z-Resonanz (und gleichermaßen auch keine r-Resonanz) im reinen Quadrupolfeld. Stellt man sich nun vor, es gäbe im Frequenzspektrum sowohl ω_r mit Seitenbändern als auch ω_z , so ergeben sich die Möglichkeiten, daß sich die Frequenzen treffen und es zu einer Resonanz kommt für $\omega_r = \omega_z$ und $\omega_r = \Omega - \omega_z$. Letzteres liegt außerhalb des stabilen Speicherbereichs, so daß es nur eine einzige Quadrupolresonanz gibt:

$$w_r = w_z$$

Und diese Resonanz ist sicherlich extrem schwach ausgeprägt, da hier die Speicherfeldfrequenz nicht auftritt, d.h. es findet nur ein Energieaustausch zwischen r- und z- Bewegung des Ions statt und nicht mit dem Speicherfeld.

Für die gerade und ungerade Multipol-Beimischung (Abb. 2.11 und 2.12) gilt dasselbe Schema. Starke Resonanzen entstehen, wenn die Führungsfeldfrequenz beteiligt ist, d.h. wenn Resonanzen der Art $n_u \omega_u = \kappa \Omega$ (Harmonische treffen auf Seitenbänder, d, h, eigentlich $n_{u1} \omega_u = \kappa \Omega \pm n_{u2} \omega_u$ und $n_u = n_{u1} \mp n_{u2}$) auftreten. Oder wenn bei Betrachtung sowohl der r- als auch der z-Richtung $n_z \omega_z + n_r \omega_r = \kappa \Omega$ erfüllt ist (Seitenbänder einer Bewegungsrichtung treffen auf Harmonische der anderen Bewegungsrichtung). Schwache Resonanzen treten auf, wenn die Führungsfeldfrequenz nicht beteiligt ist (Harmonische bzw. Seitenbänder einer Bewegungsrichtung treffen auf Harmonische bzw. Seitenbänder der anderen). Prinzipiell gilt natürlich auch noch: Treffen sich zwei Frequenzen hoher Amplitude, so ist die Resonanz stark, umgekehrt ist sie schwach.

Die Stärke der Resonanz wird allerdings auch dadurch bestimmt, ob sie durch gerade oder ungerade Multipole erzeugt wird. Wie man an den Potentialen in Abbildung 2.14 sieht, führt ein ungerader Multipol aufgrund seiner Asymmetrie in der einen Schwingungsrichtung zu einer Verstärkung, in der anderen zu einer Schwächung des Quadrupolpotentials – unabhängig vom Vorzeichen des Multipols. Als Folge ändert sich die Schwingungsfrequenz eines Teilchens im Potential bei Änderung seiner Schwingungsamplitude nur wenig durch die Beimischung eines ungeraden Multipols. Bei geraden Multipolen hingegen ändert sich die Frequenz deutlich – und in Abhängigkeit vom Vorzeichen des Multipols. Während sich also in einer Resonanz die Schwingungsamplitude des Teilchens vergrößert, kann es passieren, daß sich gleichzeitig seine Schwingungsfrequenz so weit ändert, daß die Resonanzbedingung nicht mehr erfüllt ist, worauf die Schwingungsamplitude wieder sinkt und das ganze wieder von Neuem beginnt. Dies ist wegen der kleinen Frequenzverschiebung bei ungeraden Multipolen unwahrscheinlicher als bei geraden, weswegen die ungeraden prinzipiell zu stärkeren Resonanzen führen, da die Teilchen hier länger in Resonanz bleiben.

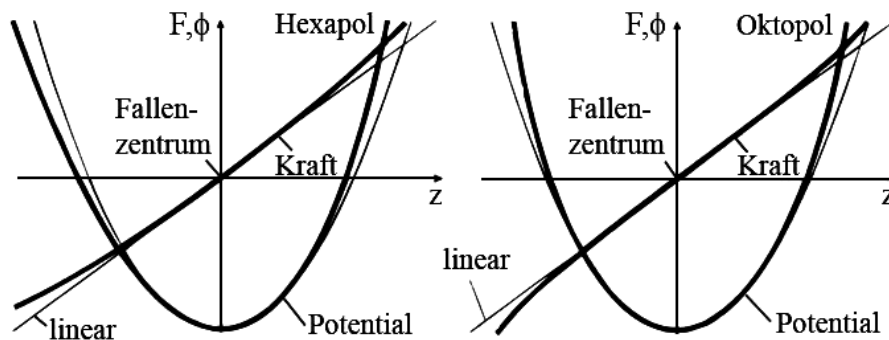


Abb. 2.14: Dünne Linien: lineare Kraft und quadratisches Potential. Dick überlagert links mit einem Hexapol-, rechts mit einem Oktopolpotential. Dargestellt ist zusätzlich dick die resultierende Kraft. Man erkennt die unterschiedliche Auswirkung gerader und ungerader Multipolbeimischungen. Bild nach [Marc95].

Auftreten und Eigenschaften der nichtlinearen Resonanzen:

Nichtlineare Resonanzen treten auf für: $n_r \mathbf{w}_r + n_z \mathbf{w}_z = \mathbf{k} \Omega$, $|n_r| + |n_z| = N$

Entsprechend lautet die Bezeichnung einer Resonanzlinie im Speicherdiagramm: $(N/n_r/n_z)$

Gekoppelte Resonanzen (Summenresonanzen, d.h. $n_r > 0$ **und** $n_z > 0$, und Differenzresonanzen, d.h. $n_r n_z < 0$) und nicht gekoppelte Resonanzen ($n_r = 0$ **oder** $n_z = 0$) mit $\mathbf{k} \neq 0$ nehmen Energie aus dem Speicherfeld auf und sind daher relativ stark. Differenzresonanzen mit $\mathbf{k} = 0$ führen nur zu einem Energieaustausch zwischen r- und z-Bewegung und sind daher sehr schwach.

Prinzipiell ist der gesamte Speicherbereich voll mit Resonanzen [Wang93c]. Bedingt durch die Stärke der Resonanzen führt jedoch nur ein kleiner Teil davon zu Ionenverlust.

Eine Resonanzlinie kann nicht einer einzelnen Multipolordnung zugeordnet werden, sie besteht aus den Beiträgen aller (geraden/ungeraden) Ordnungen. Korrekt ist daher eine Bezeichnung der Resonanzlinien nach der Resonanzordnung N und nicht nach der Multipolordnung. Höhere Ordnungen tragen allerdings immer weniger zur Resonanz bei.

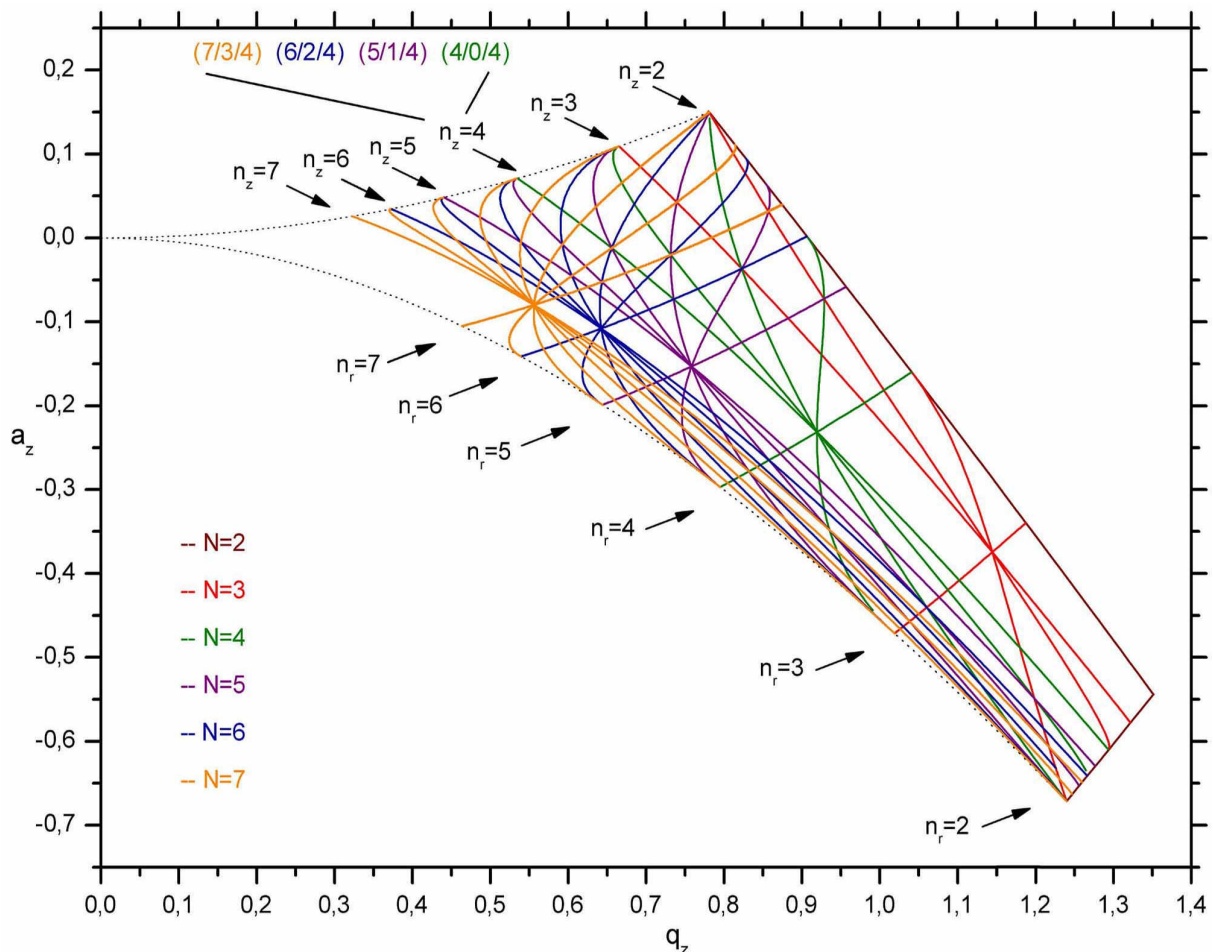


Abb. 2.15: Theoretisches Stabilitätsdiagramm mit Summenresonanzen und nicht gekoppelten Resonanzen der Ordnung $N = 3$ bis $N = 8$ für $k = 1$. Alle Resonanzen einer Ordnung N schneiden sich in einem Punkt. Oberhalb dieses Knotens sind die Linien von links nach rechts in der Reihenfolge $n_r = 0, \dots, n_r = N$ geordnet. Auf den Linien $b_r = 0$ bzw. $b_z = 0$ sind die Knoten zu sehen, an denen sich alle Linien eines n_z bzw. n_r treffen. Am Knoten $n_z = 4$ ist beispielhaft die Abfolge der sich treffenden Resonanzen entsprechend der Nomenklatur $(N/n_r/n_z)$ angegeben. Diagramm berechnet mit Mathematica®5.1.

Ist die Rotationssymmetrie der Falle schwach gebrochen, so entstehen anstelle der einzelnen Resonanzlinien der radialen Bewegung Doppellinien entsprechend $n_x \mathbf{w}_x + n_y \mathbf{w}_y + n_z \mathbf{w}_z = \mathbf{k} \mathbf{W}$

Es existieren unterschiedliche Resonanzlinien im Speicherdiagramm für gerade und ungerade Multipole entsprechend der unterschiedlichen Ausprägung der Frequenzspektren – die Spektren aller ungeraden Multipole untereinander unterscheiden sich nur in den Amplituden der Frequenzen, nicht aber in den auftretenden Frequenzen selbst. Gleiches gilt für die geraden Multipole. Bei höheren Multipolen sind die höheren Harmonischen und deren Seitenbänder stärker als bei niedrigeren Multipolen.

Die Abbildungen 2.15 bis 2.18 zeigen den Verlauf der Resonanzlinien der niedrigsten Ordnungen N im Speicherbereich, von denen ein Auftreten im Experiment wahrscheinlich ist bzw. vermutet werden kann. Dargestellt sind Summen- und Differenzresonanzen sowie nicht gekoppelte Resonanzen für $\mathbf{k} = 1$, Differenzresonanzen für $\mathbf{k} = 0$ sowie Summen- und nichtgekoppelte Resonanzen für $\mathbf{k} = 2$. Die Diagramme und Linien wurden mit Hilfe von Mathematica®5.1 numerisch berechnet, das Programm dazu stammt von A. Drakoudis, der damit die Resonanzen der linearen Paulfalle berechnete [Drak05].

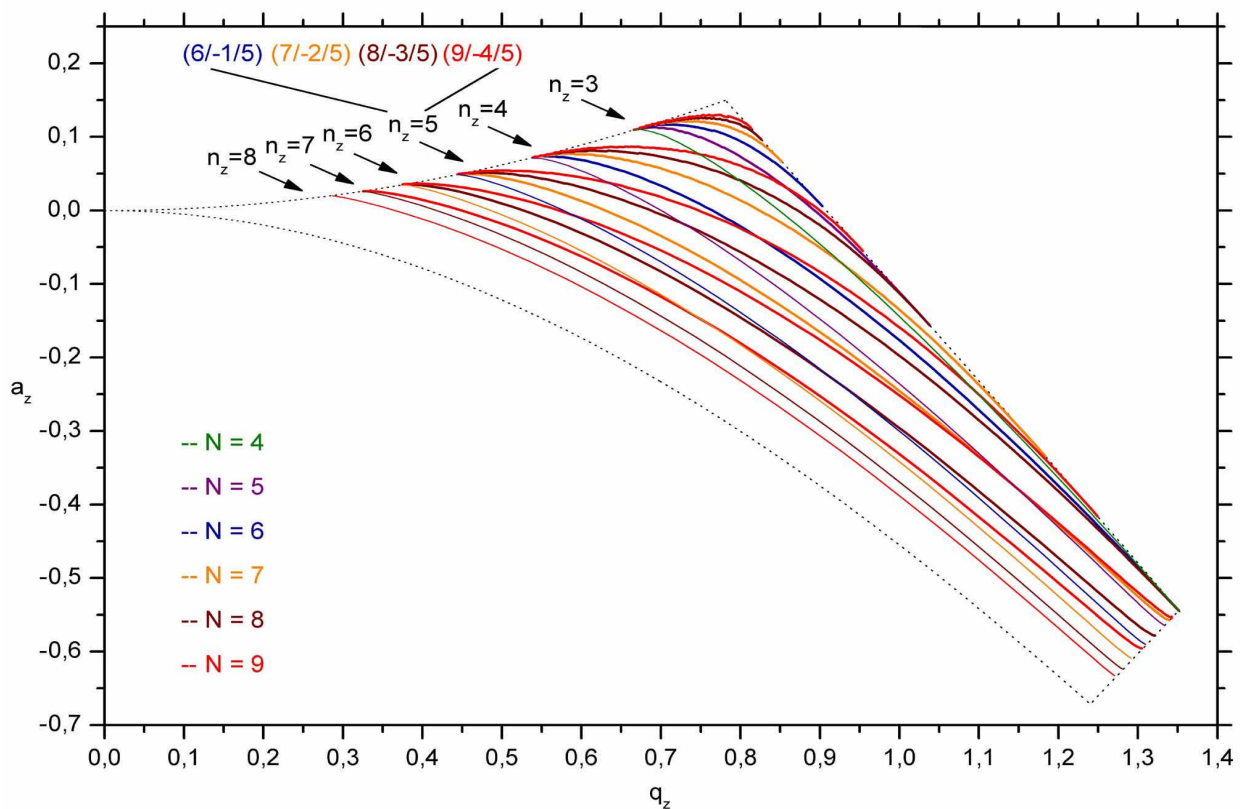


Abb. 2.16: Differenzresonanzen mit $n_r < 0$, $n_z > 0$ für $k = 1$ bis zur Ordnung $N = 9$. Auch hier treffen sich auf der Linie $b_r = 0$ alle Linien eines n_z . Am Knoten $n_z = 5$ wird die Abfolge der Resonanzen gezeigt.

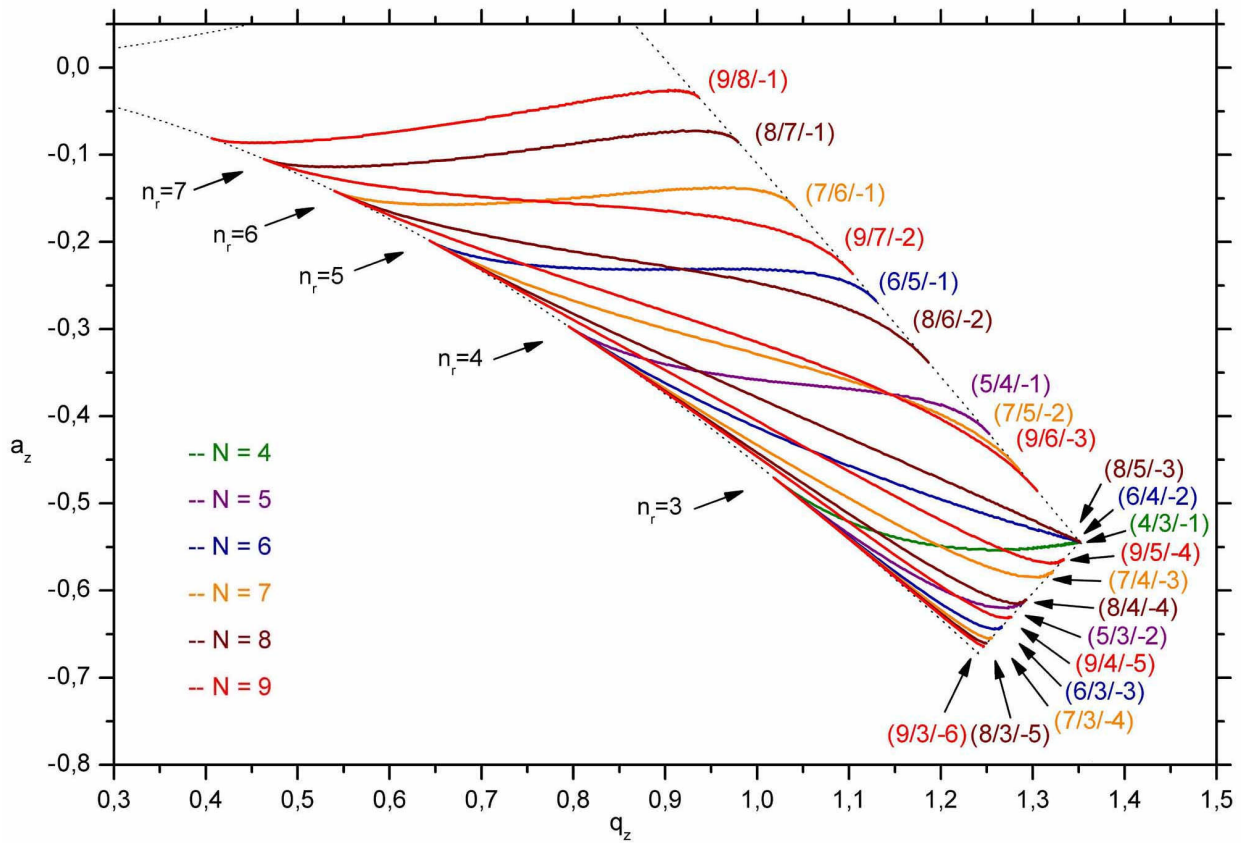
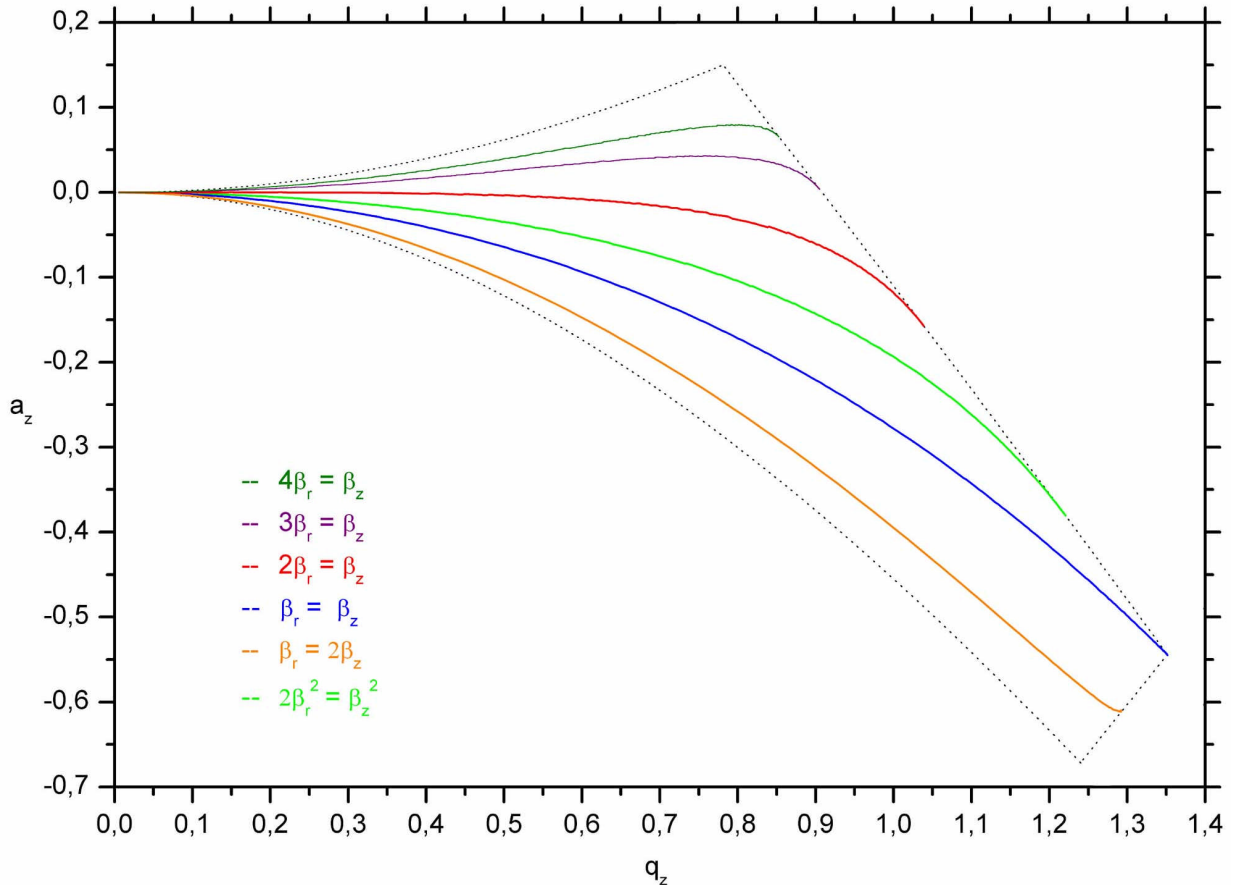


Abb. 2.17: Oben die Differenzresonanzen mit $n_r > 0$, $n_z < 0$ für $k = 1$ bis zur Ordnung $N = 9$. Bei $b_z = 0$ treffen alle Linien eines n_r aufeinander, die Knoten sind jedoch schwerer zu erkennen, ebenso die Abfolge der Linien, daher sind alle Resonanzen benannt.

Unten die Differenzresonanzen für $k = 0$, bei denen w_r und w_z gleich sind bzw. in den angegebenen Verhältnissen stehen. Dazu die Linie (keine Resonanzlinie) $2b_r^2 = b_z^2$, bei der die Potentialtopftiefen in radialer und axialer Richtung gleich sind.



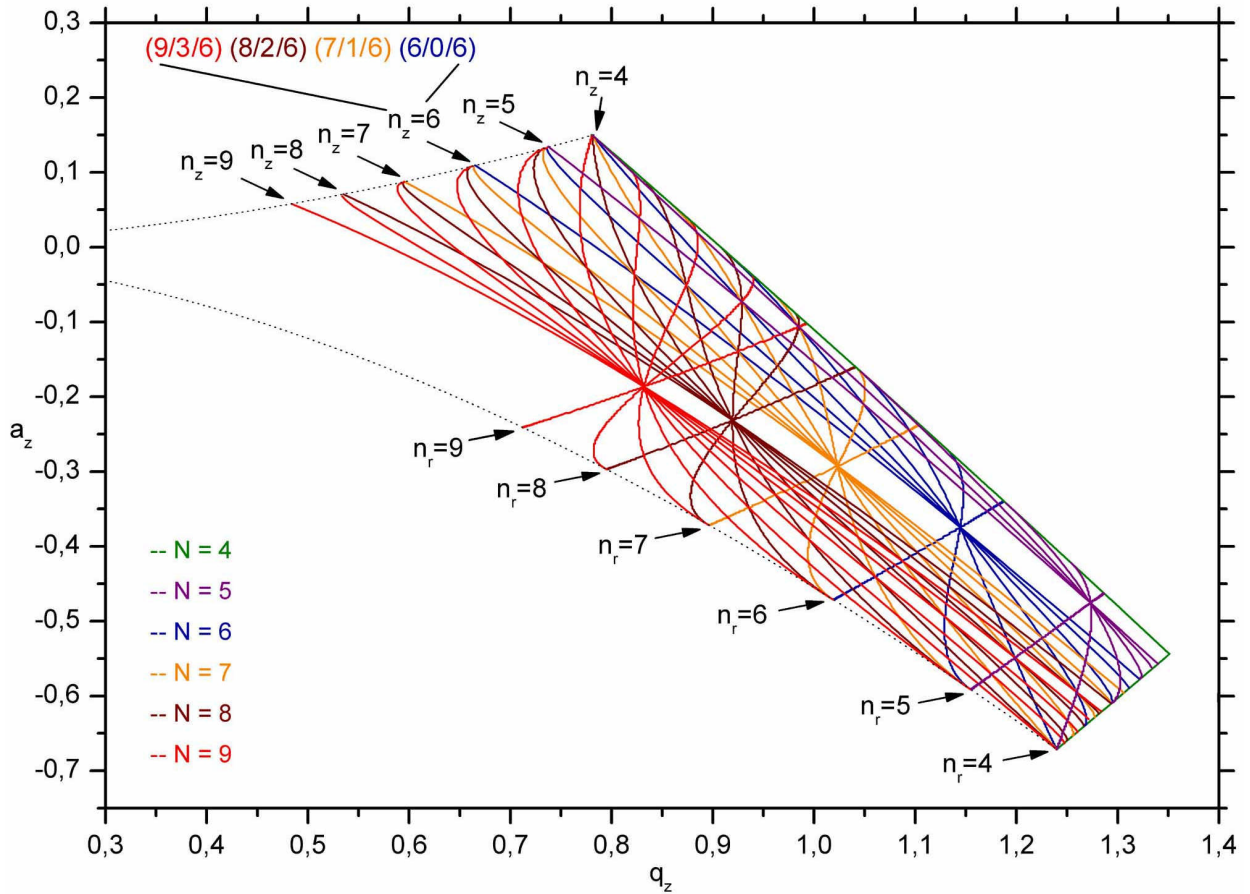


Abb. 2.18: Stabilitätsdiagramm mit Summenresonanzen und nicht gekoppelten Resonanzen für $k = 2$ bis zur Ordnung $N = 9$. Die Resonanzverläufe sind ähnlich der für $k = 1$ auftretenden Linien. Alle Linien, bei denen sowohl n_r als auch n_z durch 2 teilbar sind, entsprechen genau diesen Linien aus Abbildung 2.15.

2.3.4 Raumlading

Bei der bisherigen Betrachtung wurde stets von einer einzelnen Probeladung im Potential der Falle ausgegangen. Speichert man jedoch Ladungen, so beeinflusst deren Potential das der Falle. Die Abschwächung des Speicherpotentials durch die Raumlading, die maximale Ionendichte, die räumliche Verteilung sowie die Energie der Ionen in der Falle sind Größen, die beim Experimentieren mit Ionenwolken von Interesse sind. Zur Beschreibung existieren eine Vielzahl von theoretischen Modellen, von denen einige hier kurz angesprochen werden sollen; einen guten Überblick liefern Ruths [Ruth92] oder das Buch von Major, Gheorghe und Werth [Majo05].

Dehmeltsches Pseudopotential

Ausgehend von den Überlegungen der adiabatischen Näherung kann man in Gleichung (2.36) über die Mikrobewegung des gespeicherten Teilchens mitteln und erhält daraus eine harmonische Bewegung mit Säkularfrequenz $\omega_{r/z}$, der man ein Parabelpotential zuordnen kann.

$$\mathbf{f}_{eff} = D_r \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 + D_z \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \quad 2.48$$

mit den Potentialtopftiefen D_r und D_z , wobei die kinetische Energie der Ionen

$$eD_r = \frac{1}{2} m \mathbf{w}_r^2 r_0^2$$

$$eD_z = \frac{1}{2} m \mathbf{w}_z^2 z_0^2$$
2.49

nicht überschreiten darf, da sie sonst nicht gespeichert werden. Mit (2.10), (2.19), (2.33) und (2.35) erhält man

$$D_r = \frac{eV_0^2}{4mr_0^2\Omega^2} + \frac{U_0}{2}, \quad \text{bzw.} \quad D_r = \frac{1}{8} |q_r| V_0 + \frac{1}{2} U_0$$

$$D_z = \frac{eV_0^2}{4mz_0^2\Omega^2} - \frac{U_0}{2}, \quad \text{bzw.} \quad D_z = \frac{1}{8} |q_z| V_0 - \frac{1}{2} U_0$$
2.50

Diese Gleichungen erhält man auch mit dem von Major und Dehmelt [Majo68] stammenden und von Dawson [Daws76] weiterentwickelten Pseudopotentialtopfmodell¹. In diesem wird die Ionenbewegung zerlegt in Mikro- und Makrobewegung, d.h. einen Anteil mit kleinerer (δ) und einen mit größerer Amplitude (Z), wobei gilt $\delta \ll Z$. Nach Erhalt obiger Gleichung kann man Überlegungen zur Berechnung der maximalen Ionendichte anstellen:

Ohne Gleichspannungsoffset U_0 und mit (2.10) und (2.48) ergibt sich das Pseudopotential

$$\Psi(x, y, z) = \frac{D_z}{4z_0^2} (x^2 + y^2 + 4z^2)$$
2.51

und die Poissongleichung - unter der Bedingung, daß das Potential der Ionen maximal das des Speicherfelds aufheben kann -

$$\Delta \mathbf{f} = -\Delta \Psi = \frac{\mathbf{r}_{\max}}{\mathbf{e}_0}$$
2.52

liefert die maximale Ladungsdichte

$$\mathbf{r}_{\max} = \frac{3\mathbf{e}_0 D_z}{z_0^2}, \quad (\mathbf{e}_0: \text{elektrische Feldkonstante})$$
2.53

bzw. als maximale Ionendichte

$$n_{\max} = \frac{3\mathbf{e}_0 m \Omega^2}{16e^2} q_z^2$$
2.54

Verschiebung des Stabilitätsdiagramms und der Bewegungsfrequenzen

Bei Speicherung größerer Zahlen geladener Teilchen führen deren Ladungen dazu, daß nun jedes Ion ein effektives Speicherpotential sieht, das aus der Modifikation des Fallenpotentials durch die dieses abschwächende Raumladung entsteht. Dies hat eine Verschiebung des Speicherbereichs zur Folge. Mit dem einfachen Ansatz von Fischer [Fisc59], daß die Raumladung sich gleichmäßig über

¹ Auch Wuerker und Fischer machten bereits den Ansatz eines statischen Pseudopotentials [Wuer59, Fisc59]

das Feld verteilt, kann der Einfluß der homogenen Raumlading \mathbf{r} durch eine Zusatzgleichspannung ΔU , die in alle Richtungen die äußeren Spannungen abschwächt, ausgedrückt werden. Fischer errechnet:

$$\Delta U_z = -\Delta U_r = -\frac{\mathbf{r} r_0^2}{4\mathbf{e}_0} \quad 2.55$$

Damit ergeben sich durch die Ionenwolke neue Werte der Parameter a_r und a_z :

$$a_{r,Raumlad.} = a_r + \Delta a_r = -\frac{4e \left(U_0 - \frac{\mathbf{r} r_0^2}{4\mathbf{e}_0} \right)}{m r_0^2 \Omega^2}, \quad \text{mit} \quad \Delta a_r = \frac{e}{\mathbf{e}_0 m \Omega^2} \cdot \mathbf{r} \quad 2.56$$

$$a_{z,Raumlad.} = a_z + \Delta a_z = -\frac{8e \left(U_0 - \frac{\mathbf{r} r_0^2}{4\mathbf{e}_0} \right)}{m r_0^2 \Omega^2}, \quad \text{mit} \quad \Delta a_z = -\frac{2e}{\mathbf{e}_0 m \Omega^2} \cdot \mathbf{r}$$

Schwebel et al. [Schw75] erhalten mit der Annahme, daß das Raumladingspotential die gleiche Form wie das Pseudopotential annimmt, ein etwas anderes Ergebnis:

$$\Delta a_z = 4\Delta a_r = \frac{8}{3} \frac{e}{\mathbf{e}_0 m \Omega^2} \cdot \mathbf{r} \quad 2.57$$

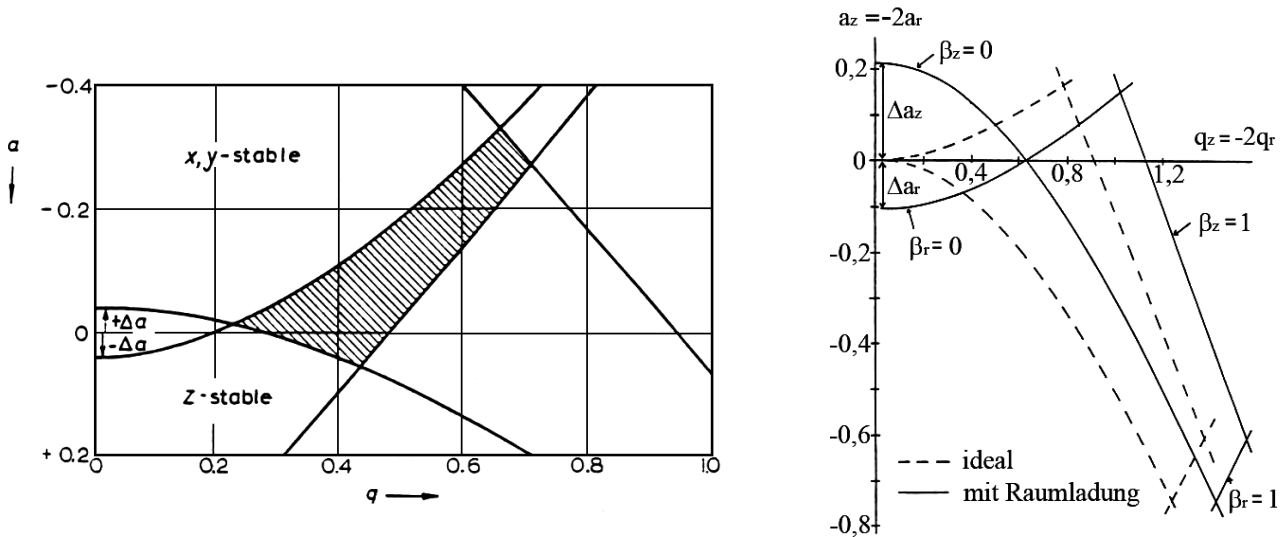


Abb. 2.19: Verschiebung des Stabilitätsbereichs aufgrund der Raumlading nach Fischer (links, [Fisc59]) und Schwebel (rechts, [Schw75]).

Der Verschiebung des Stabilitätsbereichs ist allerdings die Annahme zugrundegelegt, daß die Zahl der gespeicherten Ionen über den Speicherbereich konstant ist.

Mit der Annahme eines sphärisch symmetrischen Pseudopotentialtopfs berechnen Meis, Desaintfusci und Jardino [Meis88] die Verschiebung der Säkularfrequenz in Abhängigkeit der Ionendichte.

$$w_0^2 - w_{0,Raumlad}^2 = \frac{e^2 n \cdot 0,23}{m e_0} \quad 2.58$$

mit der Ionendichte n im Zentrum der Ionenwolke, die über Ionenenergie bzw. –Temperatur mit der Ionenzahl verknüpft ist. Formeln zur Berechnung von Wolkenradius und Temperatur, sowie von der maximalen Ionendichte werden angegeben.

Theoretische Daten zur Energie- und Geschwindigkeitsverteilung der Ionen und deren räumliche Verteilung liefern zwei weitere Modelle, die jedoch nicht eigentlich zu den Raumladungsmodellen gehören:

Das Phasenraummodell

Das von Paul, Osberghaus und Fischer [Paul58a] entwickelte Phasenraummodell beschreibt die Ionenbewegung unter vollständiger Berücksichtigung des zeitabhängigen Potentials. Geschwindigkeit und Ort eines Ions sind charakterisiert durch Ellipsen im Phasenraum. Unter Berücksichtigung von Anfangsort und –Geschwindigkeit, sowie der maximalen Auslenkung, die die Ionenbahn in der Falle erreichen kann, lassen sich die maximale kinetische Energie des Ions, die mittlere kinetische Energie, die Geschwindigkeitsverteilung und die Ortsverteilung der Ionen bestimmen.

Dieses Modell ist unabhängig von der adiabatischen Näherung und damit in seiner Gültigkeit nicht auf kleine Bereiche des Stabilitätsgebiets begrenzt.

Das Brownsche Ionengasmodell

von R. Blatt ist ein phänomenologischer Modellansatz [Blat86, Siem88], bei dem die Bewegung der Ionen in der Falle als Brownsche Bewegung infolge von Stößen bei Anwesenheit des Fallenpotentials angenommen wird. Die Mathieusche Differentialgleichung wird demnach erweitert durch einen Dämpfungsterm und durch eine fluktuierende Kraft, die die statistische Natur der Stoßprozesse beschreibt. Diese – nun Langevin-Gleichung genannte inhomogene DGL – führt unter Verwendung der adiabatischen Näherung zu Ausdrücken für die kinetische Energie der Ionen. Die Ortsverteilung der Ionen läßt sich dann als Funktion der mittleren kinetischen Energie berechnen, unter Einfluß der Dämpfung, d.h. der Stoßraten der Ionen untereinander und mit dem Restgas.

2.3.5 Dämpfung

Abgesehen vom Brownschen Ionengasmodell beschreibt keines der obigen Modelle den Einfluß einer Dämpfung auf die Ionenbewegung, die aber aufgrund von Wechselwirkungen der Ionen untereinander bzw. der Ionen mit den Restgasmolekülen in der realen Falle auftritt. Stöße in der Falle können dabei zwei Auswirkungen haben:

Zum Einen kann der Stoß quasielastisch ablaufen. Das Ion bleibt dabei in erster Näherung gespeichert [Paul58b], da die kinetische Energie eines Restgasteilchens klein gegenüber der Tiefe des Fallenpotentials ist. Eine genauere Betrachtung über viele aufeinanderfolgende Stoßprozesse von Major und Dehmelt [Majo68] zeigt, daß das Verhältnis der Massen der Stoßpartner beachtet werden muß. Ist die Masse des Restgasmoleküls sehr viel größer als die des Ions, steigt die kinetische Energie des Ions über viele Stoßprozesse hin exponentiell an. Ist sie sehr viel kleiner, so

gibt das Ion seine Energie ab, bis idealerweise seine "Temperatur" gleich der des Restgases ist. In Penningfallen trifft diese Aussage tatsächlich zu, in Paulfallen liegen die durch dieses sogenannte Puffergaskühlen erreichten Temperaturen wegen des ständigen Aufheizens der Ionen durch das Fallenwechselfeld deutlich über der des Restgases [Knig79]. Sind die Massen gleich, so ergibt sich allein aufgrund des Stoßes keine Energieänderung.

Zum Anderen kann während eines Stoßes ein Ladungsaustausch stattfinden. Hier ist es zunächst von Bedeutung, ob das Teilchen, das nach dem Stoß geladen ist, bei den vorliegenden Fallenspannungen gespeichert werden kann. Es kommt jedoch außerdem noch darauf an, ob das Teilchen die gleiche Bewegungsrichtung wie das Ion zuvor hat. Wenn nicht, dann wird es zunächst durch das Fallenfeld aufgeheizt, was zum Verlust des Teilchens aus der Falle führen kann.

Wechselwirkungen der Ionen untereinander sind durch die Coulombkraft gegeben, die für eine Kopplung der Ionenbewegung sorgt. Diese tritt immer stärker zutage, je geringer die kinetische Energie der Ionen ist. Die Auflösung von Massenspektren [Jung87] ist dadurch genauso bedingt wie die schon erwähnten kollektiven Resonanzen [Alhe97b]. Wird die Ionenwolke durch externe Mittel gekühlt, so nimmt der Einfluß der Coulombkraft im Verhältnis zur kinetischen Energie immer mehr zu, bis sich schließlich ein Ionenkristall bildet [Wine87].

Erste Berechnungen der Mathieuschen Differentialgleichung unter Berücksichtigung eines Dämpfungsterms hat Kotowski durchgeführt [Koto43]. Die von ihr berechnete Ausweitung des stabilen Bereichs bei Vergrößerung der Dämpfung spielt eine tragende Rolle bei der Erklärung des Verhaltens der parametrischen Resonanzen (siehe Kapitel 3).

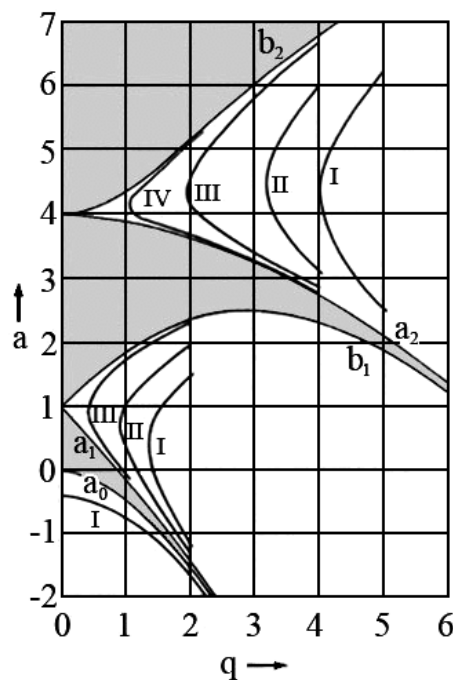


Abb. 2.20: Stabilitätskarte bei Dämpfung [Koto43, Meix54]. Grau dargestellt sind die Gebiete stabiler Lösung der Mathieuschen Differentialgleichung ohne Dämpfung (siehe auch Abb. 2.6). I, II, III und IV geben die entsprechenden Grenzklinien der Stabilität bei einer von IV nach I steigenden Dämpfung an.

Weitere Untersuchungen der Dämpfung aufgrund von analytischen Berechnungen und gewissen Näherungen bzw. numerischen Rechnungen haben Hasegawa und Uehara [Hase95] bzw. Nasse und Foot [Nass01] für jeweils sehr starke Dämpfung durchgeführt. Offensichtlich ist jedoch die Unvereinbarkeit in den Ergebnissen im Hinblick auf die Rechnung von Kotowski, denn dort ergibt sich eine Erweiterung und keine Verschiebung des stabilen Bereichs.

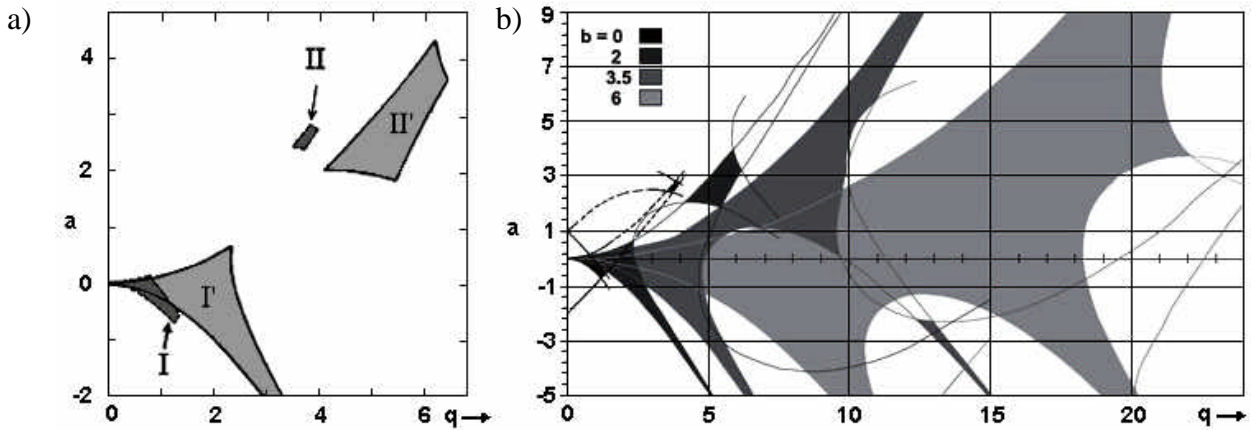


Abb. 2.21: Auswirkung der Dämpfung auf die Stabilitätsbereiche. a) Verschiebung und Vergrößerung der Speicherbereiche I und II bei Dämpfung zu I' und II' [Hase95]. b) Bei kleinen Dämpfungsparametern – hier b genannt – zeigt sich das gleiche Verhalten wie links, bei größeren verschmelzen die Speicherbereiche. Nach Nasse und Foot [Nass01].

Ein wesentlicher Aspekt der in realen Fällen auftretenden Dämpfung ist die Tatsache, daß die Angabe der dimensionslosen Parameter a und q zur Charakterisierung der Falleneinstellungen nicht mehr ausreicht und stattdessen die Angabe von V_0 , U_0 und Ω vorzuziehen ist. So hat eine Falle mit 4-fach höherer Spannung und doppelter Frequenz zwar die gleichen Parameter wie eine andere, sonst identische Falle, die Ionen legen dort aber in gleicher Zeit einen doppelt so langen Weg mit der doppelten Anzahl an Stößen mit dem Restgas zurück.

Magnetfeld

Außer bei Hochpräzisionsexperimenten oder bei Experimenten, bei denen es auf die Vermeidung einer unkontrollierten Zeemannaufspaltung atomarer Niveaus ankommt, wird selten der Aufwand betrieben, die in einem Labor unvermeidlichen Magnetfelder für den Falleninnenraum zu kompensieren. Alleine schon das Erdmagnetfeld und die zum Erreichen niedriger Restgasdrücke übliche Verwendung von Ionen-Getter-Pumpen mit ihren Magneten, macht eine Untersuchung der Auswirkung von Magnetfeldern auf das Speicherverhalten der Paulfalle sinnvoll. Fischer [Fisc59] und Schwebel [Schw75] haben für ein axiales Magnetfeld die geänderten Bewegungsgleichungen aufgestellt und festgestellt, daß sich das Magnetfeld lediglich als Verschiebung Δa_r bemerkbar macht.

$$\Delta a_r = \frac{4 w_L^2}{\Omega^2}, \quad \text{mit der Zyklotronfrequenz} \quad w_L = \frac{q \cdot B_z}{2 m} \quad 2.59$$

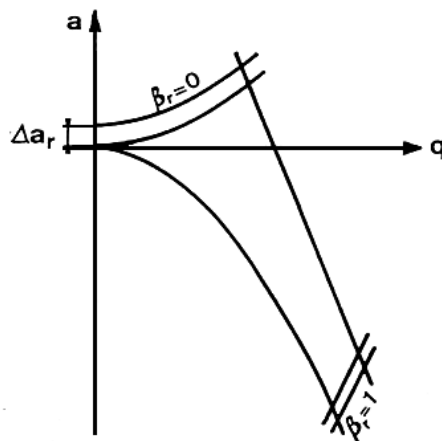


Abb. 2.22: Veränderung des Speicherbereichs der Paulfalle durch den Einfluß eines axialen homogenen Magnetfelds; aus [Schw75].

Übliche Streumagnetfelder haben wenig Einfluß auf die Stabilität und Bewegung von Ionen, je leichter die gespeicherten Teilchen jedoch sind, desto größer wird der Effekt.

Spiegelladung

Ladungen in der Nähe von elektrischen Leitern induzieren Spiegelladungen. Diese in der Elektrodynamik allgemein bekannte Tatsache führt bei Anwesenheit gespeicherter Teilchen durch die Induzierung von Ladungen in den Elektroden zu einer leichten Veränderung des Fallenpotentials. Van Dyck und Porto [VanD89, Port01] berechnen die Verschiebung der Bewegungsfrequenzen als Funktion der Ionenladung unter der Modellannahme, die Falle entspräche einer Kugel mit einem effektiven Radius um die mittige Ionenladung. Der Vergleich zwischen Modellrechnungen und gemessenen Frequenzverschiebungen berücksichtigt dort jedoch nicht die Raumladungsverschiebung.

Einige weitere Arbeiten sollen hier kurz erwähnt werden: Todd hat Anfang der 80er Jahre in [Todd80a, Todd80b, Todd80c] eine große Zahl an theoretischen und experimentellen Daten zur räumlichen Verteilung, zu Geschwindigkeit und kinetischer Energie der Ionen sowie zu Raumladungseffekten zusammengetragen. André und Vedel stellten mittels eines verallgemeinerten Phasenraummodells numerische Rechnungen unter Berücksichtigung des Einflusses von Stößen (sowohl der Ionen untereinander als auch mit dem Restgas) an. Energie und Ionendichteverteilung wurden berechnet [Vede83], in [Vede84] unter Einbeziehung der Raumladung. Weiterhin erfolgte die Betrachtung der Größen Ionendichte, Energie und Makrofrequenz bei Variation der Ionenzahl [Vede85].

Trotz der großen Zahl an Rechnungen und Modellen existieren wenige, die mehr als einen der oben genannten Störeffekte auf einmal berücksichtigen. Keines der Modelle beschreibt – unter der Randbedingung aller auf ein Ion einwirkenden Kräfte – die Ionenbewegung derart, daß aus der Rechnung die experimentell beobachtbaren Effekte reproduziert werden. Sevugarajan und Menon haben in [Sevu00] einen Versuch unternommen, eine vollständigere Berechnung durchzuführen¹.

Neben Nachteilen wie Aufheizeffekten, Ionenverlust, Verschiebung der Bewegungsfrequenzen und Dekohärenzeffekten lassen sich aber auch positive Aspekte der oben genannten "Störungen" aufzeigen: Unter Ausnutzung der nichtlinearen Resonanzen läßt sich z.B. die Auflösung bei Verwendung der Falle als Massenspektrometer erhöhen [Hoef97]. Und die in den Elektroden induzierten Spiegelladungen werden entsprechend der Idee von Wineland und Dehmelt in verschiedenen Hochpräzisionsexperimenten zur Detektion der Ionen genutzt [Wine75b].

¹ z. B. wird hier aber die Raumladung als Gleichspannung in die Berechnung hineingesteckt – sie ist in dem Sinne am Ende der Rechnung kein Ergebnis.

3 Schwingungen und Resonanzformen

Nachdem in Kapitel 2.3 die Bedingungen für das Auftreten von Resonanzen der Ionenbewegung in der Paulfalle dargelegt wurden, sollen hier ganz allgemeine theoretische Betrachtungen zu linearen und nichtlinearen Schwingungen, jeweils ohne bzw. mit Anwesenheit von Dämpfung und unter Einfluß äußerer Zwangserregung bzw. parametrischer Anregung angestellt werden. Die sich daraus ergebenden Gesetzmäßigkeiten über den Verlauf von Resonanzkurven bilden die Basis für das Verständnis der im experimentellen Teil der Arbeit (siehe Kapitel 6) gezeigten Linienformen der Resonanzen. Dieses Kapitel stellt eine Zusammenfassung der Ergebnisse aus [Land76, Hage78, Schm75, Forb66, Kneu95] dar, ohne daß dabei auf alle Herleitungen eingegangen wird.

3.1 Der Harmonische Oszillator

3.1.1 Freie Schwingung

Der frei schwingende harmonische Oszillator ist charakterisiert durch eine linear mit der Auslenkung anwachsende Kraft und die Bewegungsgleichung

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x = 0 \quad \text{mit} \quad \omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}}, \quad 3.1$$

wobei k den Koeffizienten der rücktreibenden Kraft und m die Masse des schwingenden Teilchens bezeichnet; ω_0 ist die sich daraus ergebende Eigenfrequenz des Systems. Das Frequenzspektrum weist daher eine einzige diskrete Frequenz auf, unabhängig von der Größe der Auslenkung.

Die Hinzunahme einer linearen geschwindigkeitsabhängigen Dämpfung $g \dot{x}$

$$\ddot{x} + \frac{g}{m} \dot{x} + \omega_0^2 x = 0 \quad 3.2$$

führt zu einem Abklingen der Schwingungsamplitude. Dabei ist die Stärke der Dämpfung entscheidend: bei unterkritischer Dämpfung verbreitert sich im Frequenzspektrum die oben genannte Frequenzlinie und hat nun die Form einer Lorentz-Kurve, bei kritischer oder überkritischer Dämpfung ergibt sich das Spektrum der Debye-Relaxation [Kneu95]. Im folgenden wird nur noch der unterkritische Fall betrachtet.

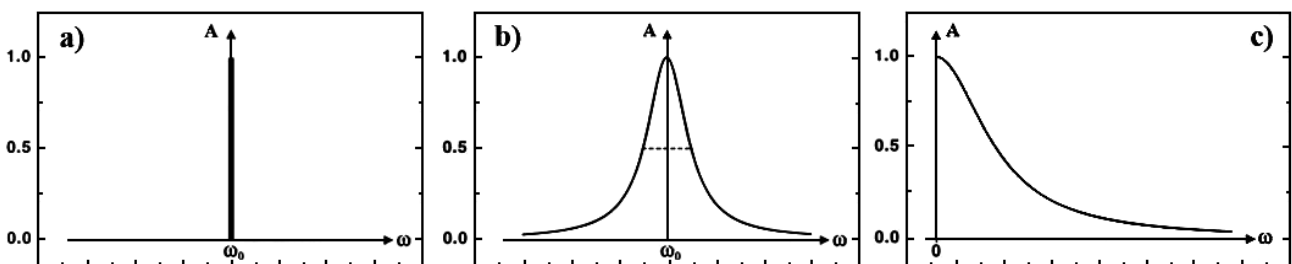


Abb. 3.1: Frequenzspektrum des harmonischen Oszillators a) ohne Dämpfung b) mit unterkritischer Dämpfung c) mit überkritischer Dämpfung.

3.1.2 Erzwungene Schwingung

Unter dem Einfluß einer äußeren periodischen Kraft $F \cos \omega t$ ergibt sich die Bewegungsgleichung der erzwungenen Schwingung:

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x = \frac{F}{m} \cos \omega t \quad 3.3$$

Die Bewegung ist durch folgende Eigenschaften charakterisiert: Nach einem Einschwingvorgang oszilliert das Teilchen mit der Frequenz der Erregung, dabei ist es im Bereich $0 \leq \omega \leq \omega_0$ in Phase mit der Erregung, im Bereich $\omega_0 \leq \omega \leq \infty$ in Gegenphase; bei $\omega = \omega_0$ tritt also ein Phasensprung von π auf. An dieser Stelle wird die Schwingungsamplitude des Systems unendlich ("Resonanzkatastrophe").

Unter bestimmten Anfangsbedingungen und bei bestimmten Verhältnissen von ω zu ω_0 können Sub- und Ultraharmonische angeregt werden [Kneu95, S.113], vergleichbar mit den bei anharmonischen Schwingungen beobachteten Resonanzen.

Ist die obige Schwingung gedämpft, also

$$\ddot{x} + \frac{g}{m} \dot{x} + \omega_0^2 x = \frac{F}{m} \cos \omega t, \quad 3.4$$

so wird der Phasensprung geglättet und die Schwingungsamplitude in Resonanz bleibt beschränkt. Bei Vergrößerung der Dämpfung sinkt die maximale Schwingungsamplitude während die Breite der Resonanzkurve zunimmt. Die Frequenz-Amplituden-Beziehung ist dabei gegeben durch:

$$\frac{\omega^2}{\omega_0^2} = 1 - \frac{F}{m \omega_0^2 A} \quad \text{ohne Dämpfung bzw.} \quad 3.5$$

$$\frac{\omega^2}{\omega_0^2} = 1 - \frac{g^2}{2m^2 \omega_0^2} \pm \frac{1}{\omega_0^2} \sqrt{\frac{F^2}{m^2 A^2} + \frac{g^2}{m^2} \left(\frac{g^2}{4m^2} - \omega_0^2 \right)} \quad \text{mit Dämpfung}$$

mit A der Schwingungsamplitude des Systems.

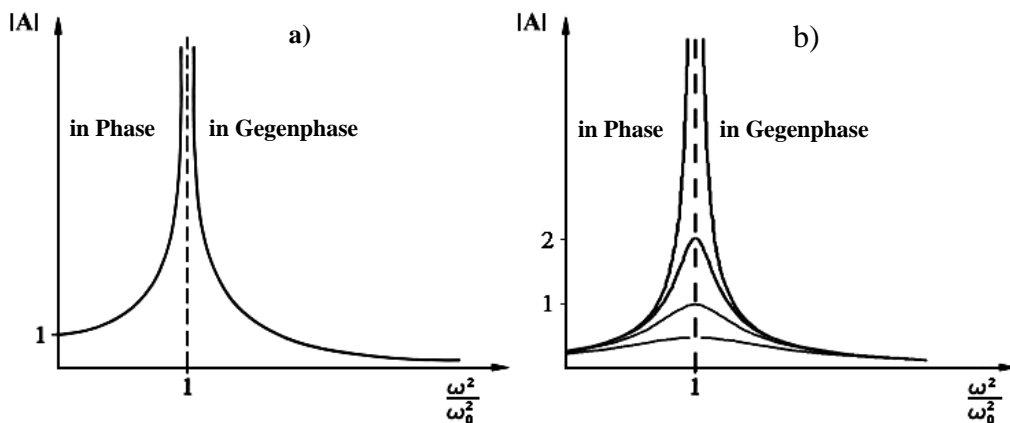


Abb. 3.2: Resonanzkurve bei erzwungener Schwingung: a) ohne Dämpfung b) mit Dämpfung unterschiedlicher Stärke.

3.1.3 Parametererregte Schwingung

Anders als bei der erzwungenen Schwingung wird hier das System durch eine periodische Änderung eines Schwingungsparameters angeregt, mit $h \ll 1$ dem Koeffizienten der Parametererregung:

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x = h \omega_0^2 x \cos \omega t, \quad (3.6)$$

Gleichung 3.6 läßt sich überführen in die Mathiesche Differentialgleichung (2.20), wobei – abgesehen von Faktoren – h dem Parameter q und ω_0/ω dem Parameter a entspricht. Parametrische Resonanzen nennt man die instabilen Lösungen von (3.6 bzw. 2.20), entsprechend den instabilen Gebieten in Abbildung 2.5: für kleine Anregungsamplituden h treten sie dort auf, wo die Spitzen der instabilen Bereiche die a - bzw. Frequenz-Achse berühren, d.h. für alle Anregungsfrequenzen

$$\omega = \frac{2\omega_0}{n}, \quad n \text{ ganzzahlig.} \quad (3.7)$$

Dies ist dargestellt in Abbildung 3.3 (vergleichbar einem gedrehten Bild von Abbildung 2.5). Für parametrische Resonanzen charakteristisch ist die beschränkte Breite der Resonanzen auf der Frequenzachse, der sogenannte Resonanzbereich. Dieser ist für $n = 1$ gegeben¹ durch das Intervall

$$2\omega_0 - \frac{h\omega_0}{2} < \varepsilon < 2\omega_0 + \frac{h\omega_0}{2}. \quad (3.8)$$

Für größer werdende n sinkt die Breite der Bereiche schnell ab, und zwar wie h^n . Außerhalb dieser Instabilitätsbereiche ist die Schwingungsamplitude des Systems gleich Null.

Allgemein gilt weiter, daß parametrische Resonanz nur auftritt, sofern das System eine beliebig kleine Verschiebung aus dem Ruhezustand aufweist. Sind x und \dot{x} zu Anfang Null, erfolgt keine Anregung [Land76].

Auch bei Dämpfung treten parametrische Resonanzen auf. Aufgrund der Ausweitung der stabilen Bereiche (vergleiche Abb. 2.20 und Abb. 3.3) ist dazu jedoch eine gewisse Schwellenamplitude der Anregung nötig

$$h_s = \frac{2g}{m\omega_0}. \quad (3.9)$$

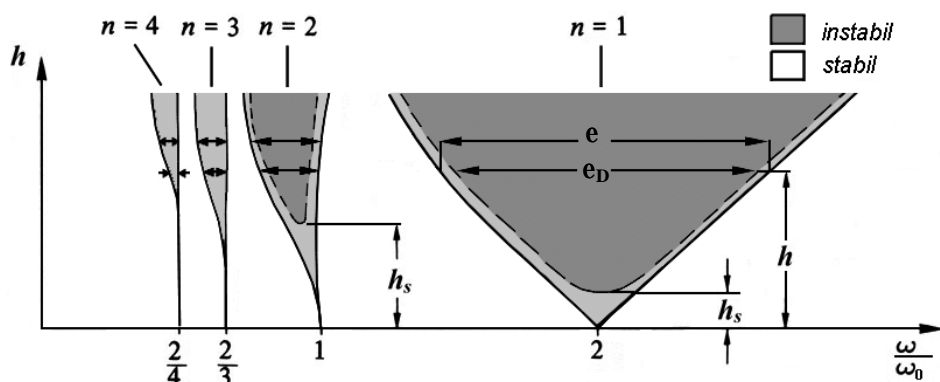


Abb. 3.3: Die Instabilitätsbereiche der Mathieschen Differentialgleichung und die sich daraus ergebenden parametrischen Resonanzen. Deutlich ist zu sehen, daß die Breite e der Resonanzbereiche mit steigendem n sinkt und bei Dämpfung (gestrichelt) eine Schwellenamplitude h_s zur Anregung nötig ist. Mit Dämpfung sinkt auch die Breite e_D des Resonanzbereichs bei gegebener Anregung h . Nach [Hage78].

¹ $n = 1$ gilt auch für die weiteren Formeln (3.9), (3.10), (3.16) und (3.27).

Diese wächst¹ mit n proportional zu $g^{1/n}$. Gleichzeitig verringert sich durch die Dämpfung die Breite des Resonanzbereichs:

$$2w_0 - \sqrt{\left(\frac{hw_0}{2}\right)^2 - \frac{g^2}{m^2}} < \varepsilon < 2w_0 + \sqrt{\left(\frac{hw_0}{2}\right)^2 - \frac{g^2}{m^2}} \quad 3.10$$

Sowohl mit als auch ohne Dämpfung wächst die Amplitude in Resonanz unbeschränkt an.

3.2 Der anharmonische Oszillator

Das Hinzufügen nichtlinearer Terme der rücktreibenden Kraft in die Bewegungsgleichung sowie auch deren Erweiterung um nichtlineare Dämpfungsterme führt dazu, daß für die Gleichung im allgemeinen keine geschlossene Lösung mehr angegeben werden kann. Dies ist nur noch in besonderen Ausnahmefällen möglich. Aufgrund unterschiedlicher Näherungsmethoden kann man bisweilen deutlich voneinander abweichende Lösungen ein und des selben Problems erhalten. Zur Bestimmung der Resonanzkurven wurde für die erzwungene Schwingung das Verfahren der harmonischen Balance verwendet (siehe [Hage78]), das für nichtlineare Terme niedriger, ungerader Potenz in der Bewegungsgleichung brauchbare Ergebnisse liefert. Zur Bestimmung der Kurven der parametrischen Resonanz wurden die durch die Methode der nichtlinearen Integrodifferentialgleichungen und sukzessiven Approximation erhaltenen Ergebnisse von Schmidt [Schm75] übernommen.² Allgemein gilt, daß bei größeren Abweichungen von der Linearität immer höhere Ordnungen der Näherungsverfahren zur Lösung nötig sind.

3.2.1 Freie Schwingung

Die allgemeine nichtlineare Schwingungsgleichung ist nun gegeben durch

$$\ddot{x} + \frac{g}{m} \dot{x} + w_0^2 \cdot \sum_{j=1}^k e_j x^j = 0 \quad 3.11$$

mit e_j den Rückstellkoeffizienten und k einer beliebigen ganzen Zahl. Die nichtlinearen Glieder in der Bewegungsgleichung führen zu höheren ungeraden Harmonischen in deren Lösung und die Schwingungsfrequenz wird nun amplitudenabhängig (siehe unten in 3.2.2 Abb. 3.4). Zudem tauchen im Frequenzspektrum bei Systemen mit mehreren Freiheitsgraden nun die sogenannten Kombinations- oder Kopplungsschwingungen auf [Land76].

¹ Bei genauerer Untersuchung zeigt sich nach [Tomm04], daß aufgrund des Verlaufs der Grenzkurven der Stabilität die ungeradzahlgigen Resonanzen bei sehr geringer Dämpfung eine verhältnismäßig höhere Schwellenamplitude benötigen als die geradzahlgigen. Bei größer werdender Dämpfung verringert sich dieser Unterschied.

² Dort wurde üblicherweise nach der zweiten Näherung abgebrochen, aufschlußreich ist der Vergleich mit den Ergebnissen dritter Näherung [Schm75, S. 50f und S. 72ff].

3.2.2 Erzwungene Schwingung

Gleichung 3.11 wird bei erzwungener Schwingung zu¹

$$\ddot{x} + \frac{g}{m} \dot{x} + \omega_0^2 \cdot \sum_{j=1}^k e_j x^j = \frac{F}{m} \cos \omega t \quad 3.12$$

und führt in harmonischer Näherung² zur Amplituden-Frequenz-Beziehung (für $k = 5$):

$$\frac{\omega^2}{\omega_0^2} = e_1 - \frac{g^2}{2m^2 \omega_0^2} + \frac{3e_3}{4} \cdot A^2 + \frac{5e_5}{8} \cdot A^4 \pm \frac{1}{\omega_0^2} \sqrt{\frac{F^2}{m^2 A^2} + \frac{g^2 \omega_0^2}{m^2} \left(-\frac{g^2}{4m^2 \omega_0^2} - e_1 - \frac{3e_3}{4} A^2 - \frac{5e_5}{8} A^4 \right)} \quad 3.13$$

Die Nichtlinearität führt zunächst dazu, daß die in Abbildung 3.2 eingezeichnete Mittenlinie der Resonanz – die sogenannte Skelett- oder Rückgratkurve – verbogen wird. Ihr Verlauf wird beschrieben durch die Terme vor der Wurzel in Gleichung 3.13. Ist außer e_1 nur ein anderer Koeffizient ungleich Null oder haben alle vorkommenden Koeffizienten das gleiche Vorzeichen, so kann man die Unterscheidung in "unter"- und "überlineare" Rückstellkraft vornehmen: bei einer unterlinearen Kraft verbiegt sich die Resonanzkurve zu niedrigeren Frequenzen hin, bei überlinearer Kraft zu größeren Frequenzen. Für unterschiedliche Vorzeichen der Koeffizienten können "umgekippte" Resonanzkurven auftreten.

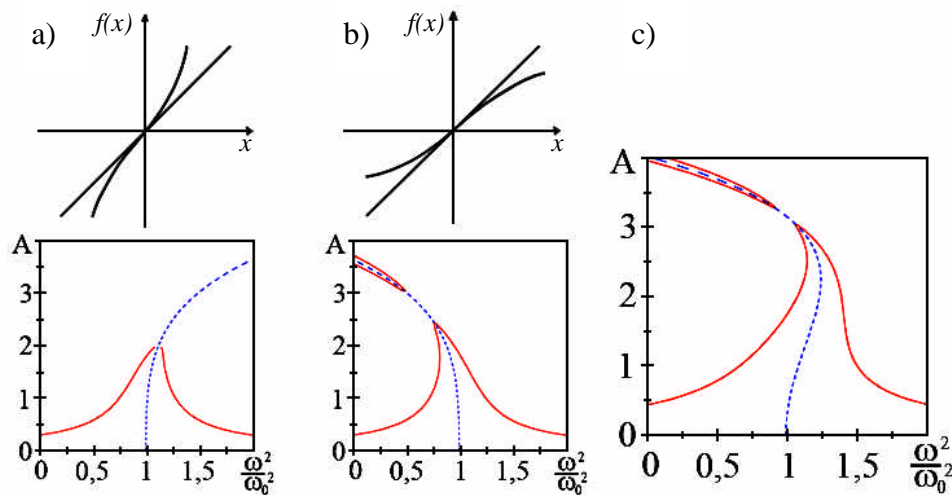


Abb. 3.4: Überlineare (a) und unterlineare (b) Kraft und die dazugehörigen Resonanzkurven. (c) "Umgekippte" Resonanzkurve für positives e_3 und negatives e_5 .

Allgemein – und nicht durch die Näherung 3.13 reproduziert – gilt, daß durch die Nichtlinearität bedingt die Schwingungsamplitude in Resonanz auch ohne Dämpfung ($g = 0$) beschränkt bleibt. Die Nichtlinearität der Schwingungsgleichung führt des weiteren dazu, daß das System Schwingungen mit seiner Eigenfrequenz ω_0 ausführt, auch wenn die Anregungsfrequenz bestimmte, deutlich von ω_0 verschiedene Werte annimmt. Dies tritt auf für

$$\omega = \frac{p}{q} \omega_0, \quad p, q \text{ ganz}, \quad 3.14$$

¹ Es sei hier angemerkt, daß die e_j nicht dimensionslos sind. Wollte man dies erreichen, müßte man eine Länge x_0 einführen und schreiben x^j/x_0^{j-1} . Dies wird hier aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht getan.

² Details zur harmonischen Näherung und zur Herleitung finden sich in Kapitel 3.3, wo diese für die nichtlineare Paulfalle durchgeführt wird.

d.h. es werden Sub- und Ultraharmonische angeregt. Die Breite und Amplitude dieser Resonanzen nimmt mit steigenden p, q ab. Deren Kurven haben genau den Charakter parametrischer Resonanzen (vgl. dazu Abb. 3.5 und 3.6). Zusätzliche Dämpfung führt zu einer Verschiebung der Resonanz zu kleineren Frequenzen hin, sowie zu einer Verringerung der Resonanzamplitude. Der Einfluß von Dämpfung und Erhöhung der Anregungsamplitude soll in Abbildung 3.5 verdeutlicht werden.

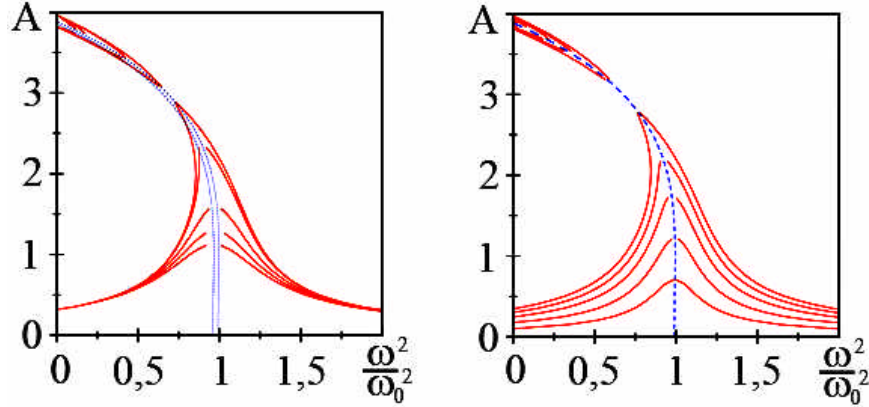


Abb. 3.5: Resonanzkurve der erzwungenen nichtlinearen Schwingung bei unterschiedlicher Dämpfung (links, eingetragen sind lediglich die Rückgratkurven bei größter und geringster Dämpfung) und bei Variation der Anregungsamplitude (rechts).

3.2.3 Parametererregte Schwingung

Die allgemeine nichtlineare Schwingungsgleichung bei parametrischer Anregung ist gegeben durch (3.15); dabei wurden noch zwei Terme nichtlinearer Dämpfung eingefügt, wobei b_3 und b_5 deren Koeffizienten sind.¹

$$\ddot{x} + \frac{g}{m} \dot{x} + \frac{b_3}{m} x^2 \dot{x} + \frac{b_5}{m} x^4 \dot{x} + \omega_0^2 \sum_{j=1}^k e_j x^j = h \omega_0^2 x \cos \omega t \quad 3.15$$

Unter Berücksichtigung aller Terme bis $k = 5$ ergibt sich in zweiter Näherung²

$$\frac{\omega^2}{\omega_0^2} = e_1 + \frac{3e_3}{4} A^2 + \frac{5e_5}{8} A^4 \pm \sqrt{\frac{h^2}{4} - \left(\frac{g}{m\omega_0^2} + \frac{b_3}{4m\omega_0^2} A^2 + \frac{b_5}{8m\omega_0^2} A^4 \right)^2}. \quad 3.16$$

Wie schon vorher bei der erzwungenen Schwingung gibt auch hier die Nichtlinearität die Rückgratkurve vor (d.h. die Terme vor der Wurzel).

Anregungsamplitude und lineare Dämpfung geben vor, ob überhaupt Resonanz stattfindet und wie breit diese ist. Ausschließlich die nichtlinearen Dämpfungsterme begrenzen die Amplitude der Schwingung in Resonanz.³ Im Gegensatz zur erzwungenen Schwingung wird diese nicht durch die Nichtlinearität beschränkt. Im Fall von sowohl parametrischer Anregung als auch Zwangserregung führt letztere zu einer Verbreiterung der Resonanz und zu einer nichtverschwindenden Schwingungsamplitude außerhalb des Resonanzbereichs.

¹ Auch diese sind, wie schon die e_j , nicht dimensionslos. Anstelle der hier gewählten Dämpfungsterme sind auch andere möglich, die entsprechend ihrer Ordnung in x aber zu ähnlichen Auswirkungen führen [Schm75 S. 61f].

² Details der Rechnung siehe [Schm75]. Im Vergleich zu (3.13) fehlt hier z.B. der Dämpfungsterm vor der Wurzel; dies kann durch die Näherungsmethode bedingt sein (siehe später in Kapitel 3.3.2).

³ Dies ist nur in zweiter Näherung richtig.

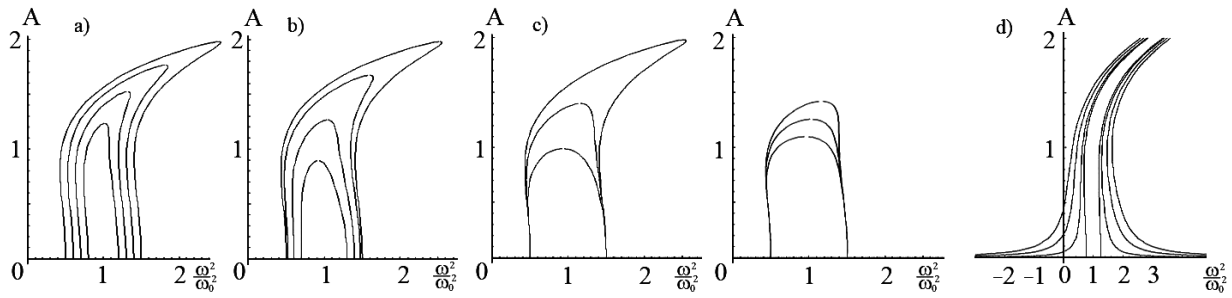


Abb. 3.6: Nichtlineare parametrische Resonanz. a) Resonanz bei Variation der Anregungsamplitude, b) bei Variation der linearen Dämpfung, c) bei Vergrößerung der höheren Dämpfungsterme (links b_3 bzw. rechts b_5) und d) bei zusätzlicher Zwangserregung.

3.2.4 Stabilität der Schwingung

Abbildung 3.4 und 3.6 zeigen Resonanzkurven, die deutlich das sogenannte Sprungphänomen aufweisen. In den überhängenden Gebieten der umgekippten Resonanzkurven wären dadurch drei unterschiedliche Schwingungsamplituden des Systems möglich (siehe auch Abb. 3.7). Stabilitätsbetrachtungen zeigen jedoch, daß die mittlere Amplitude instabil ist, d.h. durch jede beliebig kleine Störung würde das System einen der anderen Zustände annehmen. Der Wechsel zwischen den beiden stabilen Resonanzlinien ist durch geeignete endliche Störungen möglich.

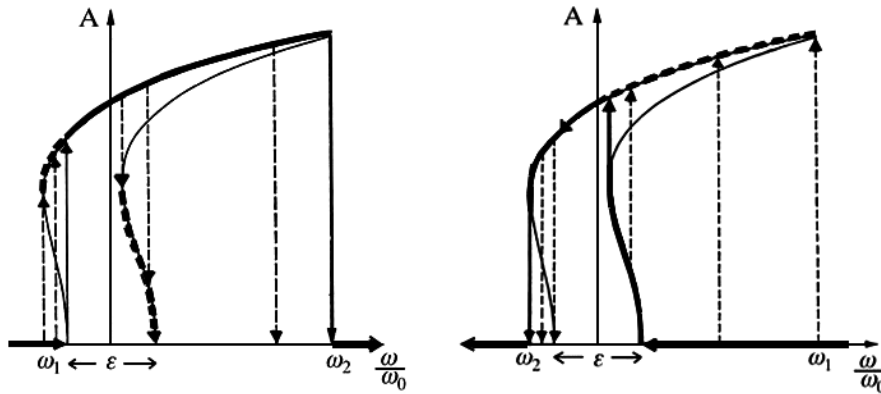


Abb. 3.7: Stabilitätsverhalten bei zunehmender (links) und abnehmender (rechts) Frequenz. Stabil sind die jeweils fett gedruckten Bereiche der Resonanzkurven. Aus [Schm75].

3.3 Berechnung der Resonanzen in der Paulfalle

Die Nichtlinearität der Paulfalle wurde in Kapitel 2.3.3 in Form einer Multipolentwicklung ausgedrückt. Um später aus experimentellen Linienformen die diese Falle charakterisierenden Koeffizienten der Entwicklung zu erhalten, wird im Folgenden die Linienform auf Basis der Bewegungsgleichung mit Multipolentwicklung berechnet.

3.3.1 Erzwungene Schwingung mit der Methode der harmonischen Balance

Bei Vereinfachung der Multipolentwicklung (2.42) für das Speicherpotential der Paulfalle durch die Einschränkung ($r = 0$) erhält man:

$$\mathbf{f}(z, r = 0) = \mathbf{f}_0(t) \cdot \left[c_1 \frac{z}{r_0} + c_2 \frac{z^2}{r_0^2} + c_3 \frac{z^3}{r_0^3} + c_4 \frac{z^4}{r_0^4} + \dots \right] \quad 3.17$$

bzw.

$$F(z) = -e\nabla f = f_0(t) \cdot \left[-c_1 \frac{e}{r_0} - c_2 \frac{2e}{r_0^2} z - c_3 \frac{3e}{r_0^3} z^2 - \dots \right] \quad \text{mit } f_0(t) = U_0 + V_0 \cos \Omega t \quad 3.18$$

Bei der Harmonischen Näherung ist es nötig, daß beim Ansatz $z = A \sin x$ sich die Näherung $z^n \approx B \sin x$ durchführen läßt, wobei sich A und B nur durch Faktoren voneinander unterscheiden. Alle Terme mit n ungerade können dies nicht erfüllen, weswegen sie vernachlässigt werden. Dies ist näherungsweise zulässig, da bei ungeraden Multipolen nur eine kleine Veränderung der Resonanz stattfindet (siehe S. 27). Die harmonische Näherung ist jedoch nur brauchbar für kleine n . Somit ergibt sich die Bewegungsgleichung der gedämpften erzwungenen Schwingung bei Entwicklung bis zum Dodecapol:

$$\ddot{z} + f_0(t) \cdot \frac{e}{m} \left[c_2 \frac{2}{r_0^2} z + c_4 \frac{4}{r_0^4} z^3 + c_6 \frac{6}{r_0^6} z^5 \right] + \frac{g}{m} \dot{z} = \frac{F_{ext}(t)}{m}. \quad 3.19$$

Um eine einfache Lösung zu ermöglichen, und da ohnehin ein harmonischer Ansatz gemacht werden soll, wird später in der Rechnung das zeitabhängige Potential $f_0(t)$ durch den Axialanteil des effektiven Potentials aus der adiabatischen Näherung (s. Gl. 2.48 und 2.49)

$$f_{z,eff} = D_z \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \quad \text{und} \quad D_z = \frac{1}{2} \frac{m}{e} \omega_0^2 z_0^2 \quad 3.20$$

unter Beachtung von (2.10) ersetzt werden. Mit

$$z = A \sin \omega t \quad 3.21$$

wird

$$\begin{aligned} z^3 &= A^3 \sin^3 \omega t = A^3 \frac{1}{4} (3 \sin \omega t - \sin 3\omega t) \approx A^3 \frac{3}{4} \sin \omega t = \frac{3}{4} A^2 z \\ z^5 &= A^5 \sin^5 \omega t = A^5 \frac{1}{16} (10 \sin \omega t - 5 \sin 3\omega t + \sin 5\omega t) \approx A^5 \frac{5}{8} \sin \omega t = \frac{5}{8} A^4 z \end{aligned} \quad 3.22$$

und durch Einsetzen des Ansatzes (3.21) in (3.19), wobei man schreibt

$$\frac{F_{ext}(t)}{m} = P_1 \cos \omega t + P_2 \sin \omega t, \quad P^2 = P_1^2 + P_2^2 \quad 3.23$$

erhält man

$$P_1 = \frac{g}{m} \omega A \quad P_2 = -\omega^2 A + \left[c_2 \frac{2}{r_0^2} + c_4 \frac{3}{r_0^4} A^2 + c_6 \frac{15}{4r_0^6} A^4 \right] A \cdot f_0(t) \frac{e}{m}. \quad 3.24$$

Nach Einsetzen in $P^2 = P_1^2 + P_2^2$, Auflösen nach ω^2/ω_0^2 und mit der in (3.20) beschriebenen Vereinfachung der Ionenbewegung ergibt sich die Amplituden-Frequenz-Beziehung

$$\frac{\omega^2}{\omega_0^2} = c_2 + c_4 \frac{3A^2}{2r_0^2} + c_6 \frac{15A^4}{8r_0^4} - \frac{g^2}{2m^2 \omega_0^2} \pm \frac{1}{\omega_0^2} \sqrt{\frac{P^2}{A^2} + g^2 \left(\frac{g^2}{4m^4} - \frac{c_2 \omega_0^2}{m^2} - \frac{3c_4 \omega_0^2 A^2}{2m^2 r_0^2} - \frac{15c_6 \omega_0^2 A^4}{8m^2 r_0^4} \right)}$$

bzw.

$$\frac{\mathbf{w}^2}{\mathbf{w}_0^2} = c_2 + c_4 \mathbf{m}_0 A^2 + c_6 \mathbf{m}_1 A^4 - \mathbf{g}_0^2 \pm \sqrt{\frac{P_0^2}{A^2} + \mathbf{g}_0^2 (\mathbf{g}_0^2 - 2c_2 - 2\mathbf{m}_0 c_4 A^2 - 2\mathbf{m}_1 c_6 A^4)} \quad 3.25$$

mit den Substitutionen $\mathbf{g}_0^2 = \frac{\mathbf{g}^2}{2m^2 \mathbf{w}_0^2}, \quad \mathbf{m}_0 = \frac{3}{2r_0^2}, \quad \mathbf{m}_1 = \frac{15}{8r_0^4}, \quad P_0 = \frac{P}{\mathbf{w}_0^2}$ 3.26

3.3.2 Parametererregte Schwingung¹

Bei dem von Schmidt verwendeten Verfahren werden die nichtlinearen Bewegungsgleichungen mittels Greenscher Funktionen in äquivalente Integrodifferentialgleichungen überführt, die mit Hilfe der sukzessiven Approximation durch eine Folge von Näherungen gelöst werden. Die Rechnungen werden in [Schm75] überwiegend nach der zweiten Näherung abgebrochen. Auf diese Weise werden dort viele allgemeine sowie einzelne Spezialfälle parametrischer Anregung berechnet. Die Rechnungen zur gleichzeitigen Parameter- und Zwangserregung [Schm75 S. 52ff] ermöglichen einen Vergleich dieser Methode mit der oben durchgeführten Rechnung nach der Methode der harmonischen Balance. Schmidt kann zwar den Term der Anregung (P^2/A^2) in obiger Lösung (3.25) reproduzieren (bei reiner Parameteranregung steht hier z.B. nur P^2 , s.u.), es fehlen jedoch der Dämpfungsterm vor der Wurzel, sowie die amplitudenabhängigen Terme unter der Wurzel völlig. Die Ergebnisse des Verfahrens werden hier für nichtlineare Terme bis c_6 und zwei zusätzliche nichtlineare Dämpfungsterme vorgestellt:

Die Bewegungsgleichung (3.15) wird mit (3.18) und (3.20) zu

$$\ddot{z} + \frac{\mathbf{g}}{m} \dot{z} + \mathbf{w}_0^2 z + c_4 \frac{2\mathbf{w}_0^2}{r_0^2} z^3 + c_6 \frac{3\mathbf{w}_0^2}{r_0^4} z^5 + \frac{b_3}{m} z^2 \dot{z} + \frac{b_5}{m} z^4 \dot{z} = h \mathbf{w}_0^2 z \cos \omega t \quad 3.26$$

womit sich die Amplituden-Frequenz-Beziehung ergibt:

$$\frac{\mathbf{w}^2}{\mathbf{w}_0^2} = c_2 + \frac{3c_4}{2r_0^2} A^2 + \frac{15c_6}{8r_0^4} A^4 \pm \sqrt{\frac{h^2}{4} - \left(\frac{\mathbf{g}}{m \mathbf{w}_0^2} + \frac{b_3}{4m \mathbf{w}_0^2} A^2 + \frac{b_5}{8m \mathbf{w}_0^2} A^4 \right)^2} \quad 3.27$$

¹ Nach G. Schmidt [Schm75]

4 Experiment

zur Lebensdauerermessung der metastabilen Niveaus am $^{226}\text{Ra}^+$

Die ursprüngliche Zielsetzung dieser Arbeit war die Messung der Lebensdauer des $6D_{3/2}$ -Niveaus am $^{226}\text{Ra}^+$. Aus verschiedenen, später in diesem Kapitel noch näher genannten Gründen ist dies nicht gelungen. In diesem Kapitel werden zunächst die Eigenschaften von Radium und $^{226}\text{Ra}^+$ charakterisiert, bevor die Meßmethode erläutert wird und die Beschreibung des experimentellen Aufbaus erfolgt. Es folgen die zur Überprüfung des Aufbaus mit $^{138}\text{Ba}^+$ durchgeführten Testmessungen und das Experiment mit $^{226}\text{Ra}^+$.

4.1 Radium

Radium ist ein radioaktives Folgeprodukt des Urans (eine der drei natürlichen Zerfallsreihen), das daher immer in sehr geringen Mengen mit diesem zusammen vorkommt (z.B. enthält eine Tonne Pechblende UO_2 0,34g Radium). Es ist das schwerste der Erdalkalimetalle und wurde 1898 von Marie und Pierre Curie entdeckt. Radium diente früher zur Definition der Einheit der Radioaktivität: die Radioaktivität von 1g ^{226}Ra wurde als 1 Curie (Ci) definiert, was $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq entspricht. Die chemischen Eigenschaften sind ähnlich denen des Bariums (siehe Kapitel 4.5), die Reaktionsfähigkeit und der Metallcharakter sind jedoch stärker. Die Salze des Radiums sind selbstleuchtend (blau) und werden durch die Wirkung der radioaktiven Strahlung zerstört. Flammen werden durch Radiumsalze karminrot gefärbt. Das weißglänzende Metall ist an der Luft äußerst unbeständig und wird sofort schwarz. [Lit: Gmel28, Dens94].

Eigenschaften von Radium:

Schmelzpunkt:	700°C
Siedepunkt:	1140°C
Dichte:	5,50 g/cm ³
Ionisierungsenergie:	5,28 eV

Radium besitzt ausschließlich instabile Isotope, das bei weitem langlebigste ist das ^{226}Ra mit einer Halbwertszeit von 1600 Jahren, das sich aufgrunddessen gut für Experimente im Labor fern von Beschleunigern oder größeren Mengen an Radioaktivität eignet und somit hier verwendet wurde. Als Isotop mit gerader Massenzahl (die Ordnungszahl von Ra ist 88) besitzt es keinen Kernspin und damit auch keine Hyperfeinstruktur-Aufspaltung, was für die Laserspektroskopie von Vorteil ist, da kein optisches Pumpen in Hyperfeinniveaus stattfindet.

<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 213 2,74 m α 6,62; 6,73; 6,52 ϵ </div>		<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 223 11,43 d α 5,7164; 5,6076 γ 270; 154; 144; 338 σ 130; σ 0,7 </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 224 3,64 d α 5,68556; 5,4489 γ 241 σ 12 </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 225 14,8 d β^- 0,3... γ 40 e^- </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 226 1600 a α 4,78450; 4,6019 γ 186, ... σ 11,5 σ <0,0001 </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 227 41 m β^- 1,3... γ 27; 300; 303... </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 228 5,75 a β^- 0,05... $g...$; e^- σ 36; σ <2 </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 229 4,0 m β^- </div>	<div style="display: inline-block; border: 1px solid black; padding: 2px; text-align: center;"> Ra 230 1 h β^- </div>
--	--	--	---	---	---	---	--	---	---

Abb. 4.1: Ausschnitt aus der Nuklidkarte mit den langlebigen Nukliden [Seel74]. Von ^{202}Ra bis ^{234}Ra sind insgesamt 33 Nuklide untersucht. Das im Experiment verwendete ^{226}Ra ist Teil der natürlichen Uran-Radium-Zerfallsreihe. Es zerfällt überwiegend durch α -Zerfall zu ^{222}Rn , zu einem sehr geringen Anteil ($3,2 \cdot 10^{-9}$ %) zerfällt es auch durch ^{14}C -Zerfall.

4.2 $^{226}\text{Ra}^+$ - Ion

Ra II , das einfach positiv geladene Radiumion, besitzt die Elektronenkonfiguration des Edelgases Radon mit einem zusätzlichen Elektron außerhalb der abgeschlossenen Schalen – d.h. $[1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 4d^{10} 4f^{14} 5s^2 5p^6 5d^{10} 6s^2 6p^6] 7s^1$. Diese wasserstoffähnliche Konfiguration vereinfacht das Termschema und erleichtert theoretische Berechnungen. In Abb. 4.2 ist der für das Experiment relevante Ausschnitt des Termschemas mit den entsprechenden optischen Übergängen dargestellt. Die Übergangswellenlängen stammen aus den Untersuchungen des Ra II -Spektrums von Rasmussen aus dem Jahr 1933 [Rasm33], die die bisher einzigen Messungen dieser Art am $^{226}\text{Ra}^+$ darstellen. Durch die Laserspektroskopie-Experimente von Neugart et al. [Ahma83, Wend87, Arno87, Ahma88] am Cern zur Messung von Hyperfeinstruktur, Isotopieverschiebung und des magnetischen Kernmoments sind diese Werte prinzipiell bestätigt worden – ebenso wie durch die neuen Messungen von Versolato [Vers10]. Bis heute existieren keinerlei experimentelle Daten zu den Verzweigungsverhältnissen beim Zerfall der P-Niveaus und außer der kürzlich gemessenen Lebensdauer des $6D_{5/2}$ -Niveaus [Vers10] auch nicht zu den Lebensdauern. Für neutrales Radium gibt es seit 2006 einen experimentellen Wert der Lebensdauer des P-Zustandes [Scie06]. Theoretische Werte der Lebensdauern des Ra^+ wurden berechnet von [Dzuba01] und später von [Saho07] und [Pal09]. Letztere sind im Termschema eingetragen:

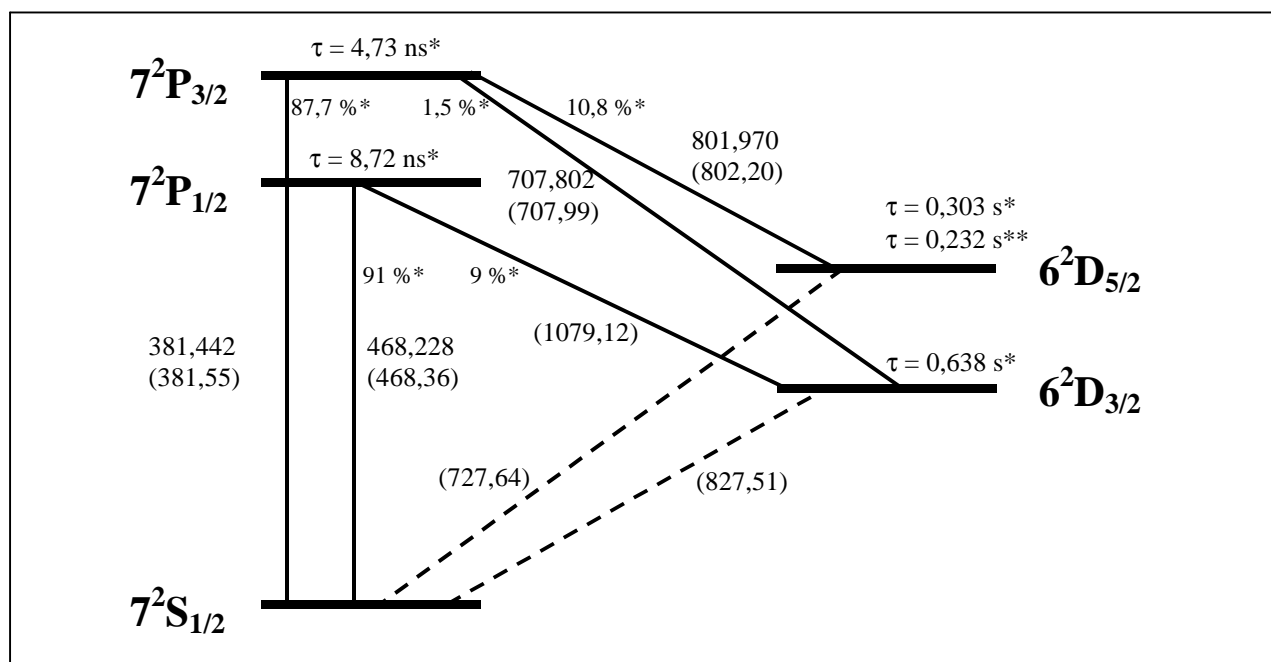


Abb. 4.2: Termschema des $^{226}\text{Ra}^+$ -Ions. Die S-P und P-D Übergänge sind elektrische Dipolübergänge (durchgezogene Linien), die S-D Übergänge sind im Wesentlichen elektrische Quadrupolübergänge (Linien gestrichelt). Eingezeichnet sind die experimentellen Wellenlängen (in nm) nach Rasmussen [Rasm33]¹ und in Klammern die aus den Energieniveaus [Moor71] berechneten Werte. Berechnete Lebensdauern und Verzweigungsverhältnisse nach *[Pal09], gemessene nach **[Vers10].

4.3 Lebensdaueremessung: Methode

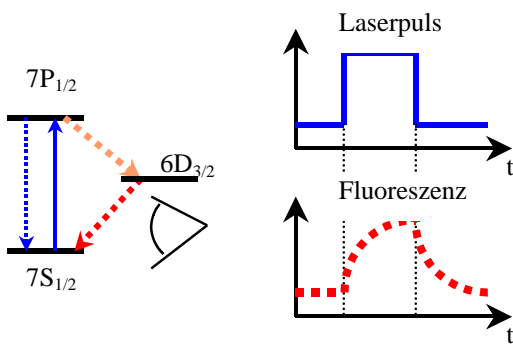
Bei mit Ionenfallen durchgeführten Lebensdaueremessungen gibt es prinzipiell 2 unterschiedliche Methoden, um Ionen in den metastabilen Zustand anzuregen und 5 grundsätzlich verschiedene Vorgehensweisen, was den Nachweis und die Bestimmung der Lebensdauer angeht:

¹ Bei Ba^+ stellten Karlsson et al. [Karl99] fest, daß die auf die gleiche Weise wie bei Ra^+ entstandenen Ba^+ -Spektralen von Rasmussen [Rasm33a] durch die Methode bedingt Lücken und falsche Intensitäten aufweisen.

Die Präparation der Ionen im $6D_{3/2}$ -Zustand kann entweder durch direkte Anregung auf dem verbotenen Übergang mittels Laserstrahlung von 827,51 nm erfolgen oder durch optisches Pumpen, wenn man den Dipolübergang bei 468,23 nm mittels Laserstrahlung anregt und sich wegen des Zerfalls des P-Niveaus in S- und D-Zustände dabei immer mehr Ionen im metastabilen Zustand "sammeln". Da man – aufgrund der geringen Menge experimenteller Daten über Ra^+ – zunächst den 468 nm-Laser benötigt, um überhaupt die Fluoreszenz von Ra^+ zu sehen, d.h. die Übergangswellenlänge zu treffen und somit Ra^+ in der Falle nachzuweisen, wurde für dieses Experiment die indirekte Art der Anregung gewählt.

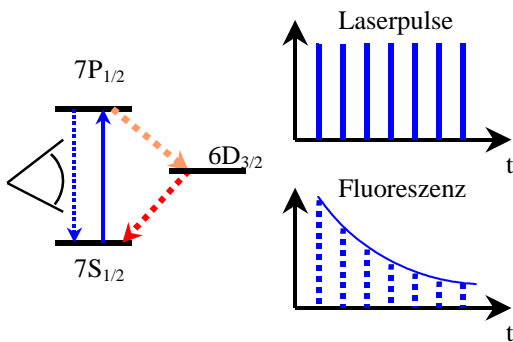
Für die Bestimmung der Lebensdauer der D-Niveaus stehen dann folgende Methoden zur Wahl:

a) Pulsasermethode 1:



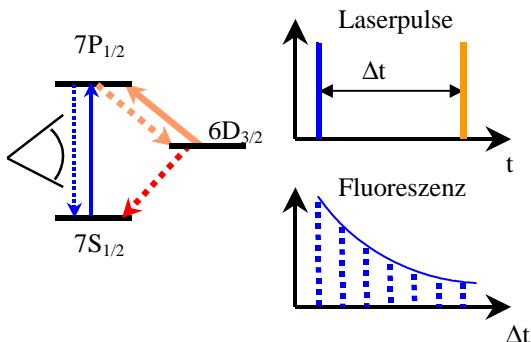
Nach Abschalten des anregenden Lasers (auch ein Pulsaser ist hier einsetzbar) direkte Beobachtung der Fluoreszenzlichtabnahme auf dem S-D Übergang. Pro Laserpuls wird eine Messung gemacht, aufgrund der geringen Fluoreszenzlichtintensität auf dem beobachteten Übergang sind – abhängig von der Sensitivität des Photomultipliers – sehr viele Messungen nötig, die dann addiert werden. Eine Lebensdauerermessung mit einer Genauigkeit im Prozentbereich dauert dadurch ca. eine Stunde, während der die experimentellen Bedingungen konstant gehalten werden müssen.

b) Pulsasermethode 2:

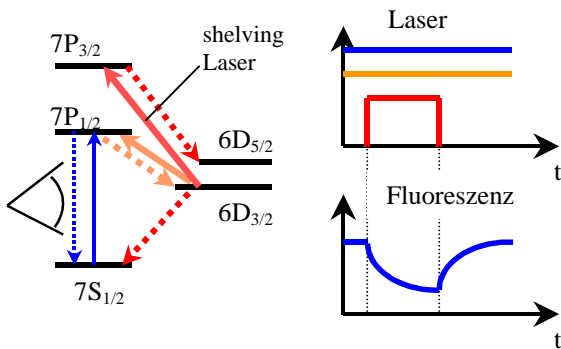


Während der Pulsaser läuft, wird fortwährend die Fluoreszenzlichtintensität des S-P Übergangs detektiert. Die während einer Pulsfolge aufgenommene Intensitätskurve ist eine Funktion von Laserpulsdauer, Puls-pause, Lebensdauer des metastabilen Niveaus und Verzweigungsverhältnis des P-Zerfalls. Die Zeit von Laserpuls zu Laserpuls muß dabei kleiner als die Lebensdauer selbst sein. Diese Methode ist die vom apparativen Aufwand her einfachste Art der Lebensdauerermessung. Der Nachweis kann auch auf dem S-D Übergang erfolgen, die Fluoreszenzlichtintensität ist dann geringer, störendes Streulicht vom Pulsaser wird jedoch dadurch vermieden.

c) Pump-Probe-Methode:

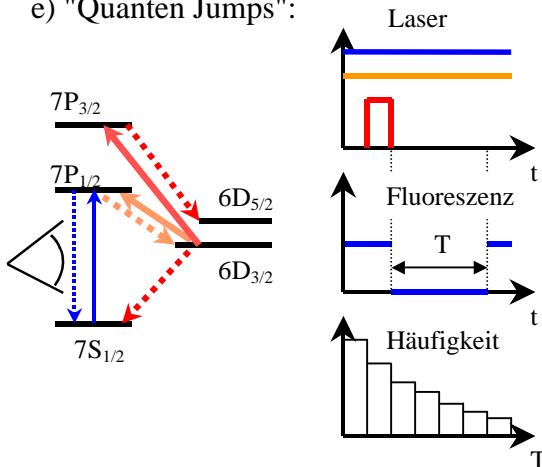


Hier wird für die Messung ein zweiter Laser auf dem D-P Übergang – der Probelaser – benötigt. Nach dem Anregungspuls erfolgt nach einer Wartezeit Δt der Probelaser, während die Fluoreszenzlichtintensität auf dem S-P Übergang aufgenommen wird. Viele derartige Messungen werden durchgeführt, während dabei Δt von Messung zu Messung variiert wird. Wird der Probelaser statt zwischen $D_{3/2} - P_{1/2}$ zwischen $D_{5/2} - P_{3/2}$ eingesetzt, kann zusätzlich der Wirkungsquerschnitt für stoßinduziertes Feinstrukturmischen bestimmt werden.

d) "Electron shelving" (Messung $\tau_{D_{5/2}}$):

Während sowohl auf dem S-P als auch auf dem $D_{3/2}$ - $P_{1/2}$ ("Rückpumplaser") Übergang die kontinuierlichen Laser permanent eingeschaltet sind, und so eine hohe Fluoreszenzlichtintensität detektiert wird, erfolgt beim Einschalten des "shelving" Lasers optisches Pumpen in den $D_{5/2}$ Zustand und die detektierte Intensität sinkt. Der beim Ausschalten des $D_{3/2}$ - $P_{3/2}$ – Lasers erfolgende Fluoreszenzlichtanstieg ist eine direkte Funktion der $D_{5/2}$ -Lebensdauer. Die Dauer der Gesamtmessung ist sehr kurz und entspricht etwa der Lebensdauer. Laserkühlen der Ionen erfolgt jedoch nur, wenn der $D_{3/2}$ - $P_{3/2}$ Laser aus ist, während die Ionenwolke sich in der übrigen Zeit wieder aufheizen und expandieren kann.¹

e) "Quanten Jumps":



Diese 1975 von Dehmelt vorgeschlagene Methode entspricht Methode d), wobei nun das Experiment jedoch mit einem einzelnen Ion durchgeführt wird (bei allen oben erwähnten Methoden werden Ionenwolken verwendet). Daraus ergibt sich, daß man statt einer Fluoreszenzkurve Dunkel- und Hell-Zeiten des Ions detektiert, je nachdem, ob das Ion sich im $D_{5/2}$ Zustand befindet oder am Kühlzyklus teilnimmt. Die Messung vieler Dunkelzeiten und deren Auftragung in einem Histogramm ergibt die Lebensdauer. Da ein einzelnes Ion im Fallenmittelpunkt vergleichsweise geringe Störungen erfährt, ist dies die genaueste Methode zur Bestimmung der Lebensdauer metastabiler Zustände.

Vor Beginn aller Arbeiten war geplant, Methode d) anzuwenden, da diese in unserer Arbeitsgruppe am $^{40}\text{Ca}^+$ im Vergleich zu e) nicht wesentlich schlechtere Ergebnisse geliefert hatte [Gudj96, Bloc99], dabei aber einfacher zu realisieren ist. Die Diode für den Rückpumplaser, sowie das für dessen Aufbau im Littrow-Design (siehe [Alt98b], der den in unserer Arbeitsgruppe bewährten Aufbau beschreibt) notwendige optische Gitter waren schon gekauft, als klar wurde, daß der für den Kühlübergang gedachte, an einem anderen Experiment vorhandene Titan-Saphir-Laser nicht zur Verfügung stehen würde². Da jedoch ein seit längerer Zeit ungenutzter Puls laser vorhanden war, wurde das Experiment entsprechend Methode b) aufgebaut. Dies hat den prinzipiellen Vorteil, daß anhand der Meßdaten sowohl die Lebensdauer als auch das Verzweigungsverhältnis des P-Niveaus bestimmt werden können. Außerdem ist nicht nur die Bestimmung der Lebensdauer des $D_{3/2}$ -Niveaus samt Verzweigungsverhältnis des $P_{1/2}$ -Zustands möglich, sondern bei Verwendung des Rückpumplasers und Anregen des 381,4 nm-Übergangs auch die Lebensdauer von $D_{5/2}$ und das Verzweigungsverhältnis von $P_{3/2}$. Bei der erstmaligen Anwendung dieser Methode bei Ba^+ in unserer Arbeitsgruppe erhielt Schneider 1979 für die Lebensdauer des $D_{3/2}$ Zustands 17,5 s [Schn79]³ und Knab-Bernardini 1992 mit einer verbesserten Methode 48,0 s [KnBe92]. Die Diskrepanz zu Dehmelts Messung 1997 von 79,9 s mit Methode e) [Yu97] erklärt sich durch das bei den verschiedenen verwendeten Arbeitsdrücken unterschiedlich große Feinstrukturmischen.

¹ Diese Methode wurde kürzlich zur Bestimmung der $D_{5/2}$ -Lebensdauer beim Ra^+ angewendet [Verso10].

² An diesem wäre für das Ra^+ -Experiment ein Umbau der Frequenzverdopplung und ein Umrüsten des Spiegelsatzes auf den neuen Wellenlängenbereich nötig gewesen, so daß ein kurzfristiger Einsatz dieses Lasers ausgeschlossen war. Zudem wäre es nötig gewesen, den Titan-Saphir-Laser unter Stickstoff- oder Edelgas-Atmosphäre zu betreiben, da die unverdoppelte Wellenlänge von 936 nm in der Nähe der Absorptionslinien von Wasser liegt.

³ Im gleichen Jahr führte auch Blatt eine Lebensdauerermessung durch, allerdings am $D_{5/2}$ -Niveau und mit einer leicht abgewandelten Form dieser Methode: Aus der unterschiedlichen Gleichgewichtsfluoreszenz nach vielen Laserpulsen läßt sich bei Variation der Repetitionsrate des Lasers ebenfalls die Lebensdauer bestimmen. Er erhielt $\tau = 23$ s [Blatt79].

Schneider maß bei $2 \cdot 10^{-7}$ bis $2 \cdot 10^{-6}$ mbar ohne genauere Untersuchung des Restgases; Knab-Bernardini im Druckbereich von $6,2 \cdot 10^{-6}$ bis $3,4 \cdot 10^{-5}$ mbar bei recht genauer Kenntnis der Restgas-Partialdrücke und unter Verwendung der Quenchquerschnitte von Hermann [Herm86]. Dehmelt et al. maßen dagegen bei $3 \cdot 10^{-11}$ mbar. Ein möglichst geringer Restgasdruck ist daher für die Genauigkeit der Messung entscheidend. Die Methode soll nun noch genauer betrachtet werden:

Während des Laserpulses werden möglichst alle Ionen in der Falle vom Grundzustand in den $P_{1/2}$ Zustand angeregt, der nur eine sehr kurze Lebensdauer hat. Ein Teil der Ionen zerfällt zurück in den Grundzustand, wobei dessen Fluoreszenzlicht detektiert wird, der andere Teil zerfällt in den langlebigen metastabilen Zustand (siehe Abbildung 4.3). Beim nächsten Laserpuls stehen nun weniger Ionen für die Anregung zur Verfügung und entsprechend ist auch die Fluoreszenzlichtintensität geringer als beim letzten Puls. Dies setzt natürlich voraus, daß die Zeit zwischen den Pulsen deutlich kürzer ist als die Lebensdauer des metastabilen Zustands. So geht dies

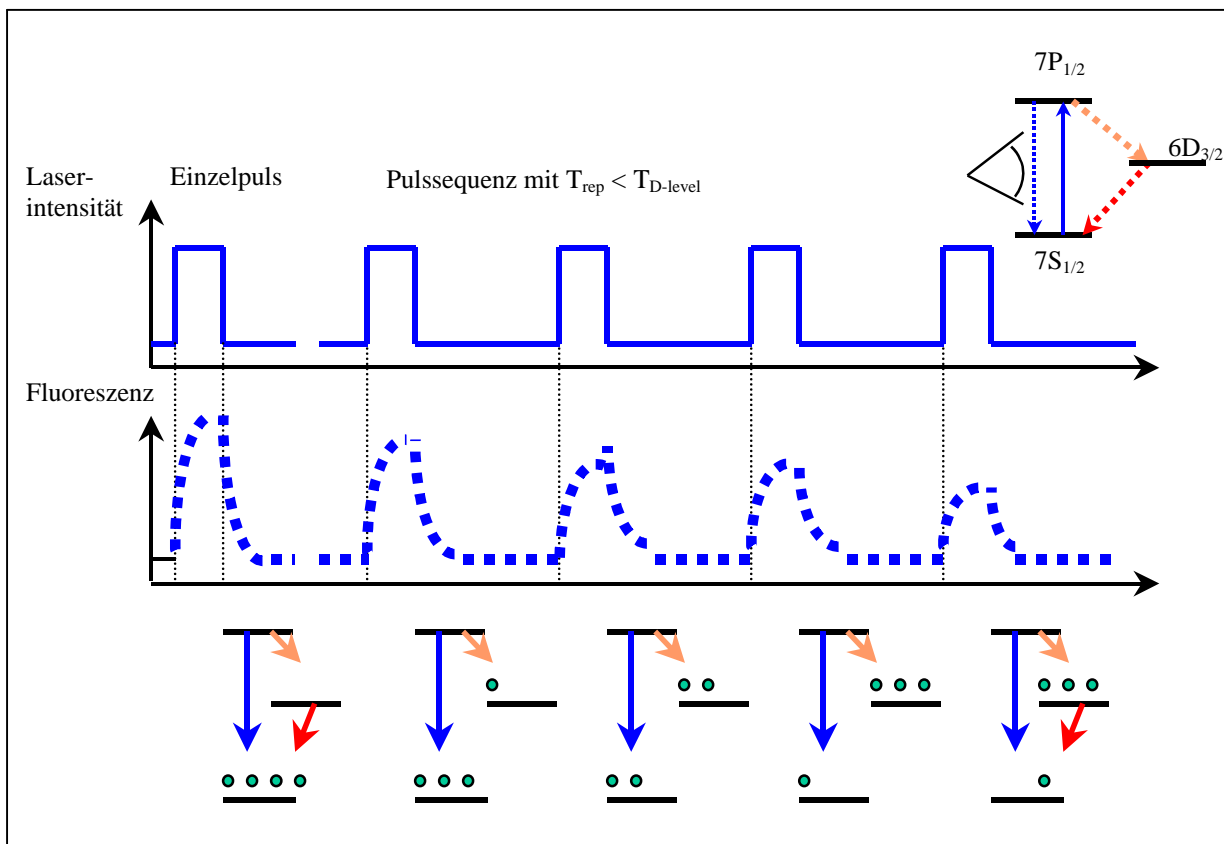


Abb. 4.3: Schema der Puls-lasermethode. Von Puls zu Puls steigt die Zahl der Ionen im metastabilen D-Zustand, bis schließlich ein Gleichgewicht erreicht wird zwischen der Neubildung von Ionen dieses Zustands und dem Zerfall von Ionen dieses Zustands in den Grundzustand. In gleichem Maße nimmt die Fluoreszenzlichtintensität auf dem S-P Übergang ab. Die Intensität pro Puls ist dabei im Wesentlichen eine Funktion von der Pulsrate, dem Verzweungsverhältnis des Zerfalls des P-Niveaus und der Lebensdauer des D-Niveaus.

nun von Puls zu Puls weiter, bis schließlich ein Gleichgewicht erreicht wird zwischen dem Füllen des metastabilen Niveaus aus dem Zerfall des P-Zustands und seinem Zerfall in den Grundzustand. Zur Detektion kann man entweder den S-P oder den P-D Übergang wählen: ersterer hat aufgrund des Verzweungsverhältnisses (das ist so bei Ba^+ , Ca^+ , Sr^+ [Gall67]) eine höhere Intensität, dafür jedoch auch einen höheren Untergrund aufgrund des Laser-Streulichts, während letzterer keine Störungen durch den Laser aber auch eine niedrigere Intensität aufweist.

Nimmt man an, der S-P Übergang wäre bei der Anregung durch den Laserpuls gesättigt und beim nächsten Laserpuls befänden sich keine Ionen mehr im P-Zustand, so erhält man [Knab92]¹

¹ Die genaue Formel ohne vereinfachende Annahmen findet sich in [Schn79, bzw. Schn79a].

$$N_{1,n}(T) = \frac{1 - e^{-gT}}{1 - e^{-(gT - \ln(1-p))}} \cdot N_0 + \left(1 - \frac{1 - e^{-gT}}{1 - e^{-(gT - \ln(1-p))}}\right) \cdot N_0 \cdot e^{-n(gT - \ln(1-p))} \quad 4.1$$

mit: $N_{1,n}(T)$: Zahl der Ionen im $S_{1/2}$ -Niveau direkt vor dem $(n + 1)$ ten Laserpuls,

- g : Zerfallsrate des metastabilen $D_{3/2}$ -Niveaus,
- p : Verzweigungsverhältnis $(P_{1/2} \rightarrow D_{3/2}) / (P_{1/2} \rightarrow S_{1/2})$
- T : Zeit zwischen zwei Laserpulsen
- n : Nummer des Laserpulses
- N_0 : Gesamtzahl der Ionen im Käfig

Knab-Bernardini gibt in ihrer Arbeit eine detaillierte Auflistung der Schwächen dieses Verfahrens, sowie eine verbesserte Variante an [Knab92]. Aufgrund des anfangs schon erwähnten Ausgangs meiner Messungen, wird darauf hier verzichtet. Allerdings soll noch bemerkt werden, daß die Anwesenheit von Restgas in der Apparatur die Lebensdauer verkürzt, so daß die Lebensdaueremessung bei verschiedenen Restgasdrücken durchgeführt werden muß, um eine Extrapolation der Lebensdauer auf Druck Null durchführen zu können.

Die Schwierigkeit des Experiments lag – das war von Beginn an klar – nicht alleine in der Lebensdaueremessung selbst, sondern vor allem in der Erzeugung und Detektion von Ra^+ in der Falle. Noch erwähnt werden soll, daß bei Verwendung des 1079 nm-Lasers ein Umbau auf Pump-Probe-Technik c) relativ einfach möglich gewesen wäre.

4.4 Experimenteller Aufbau

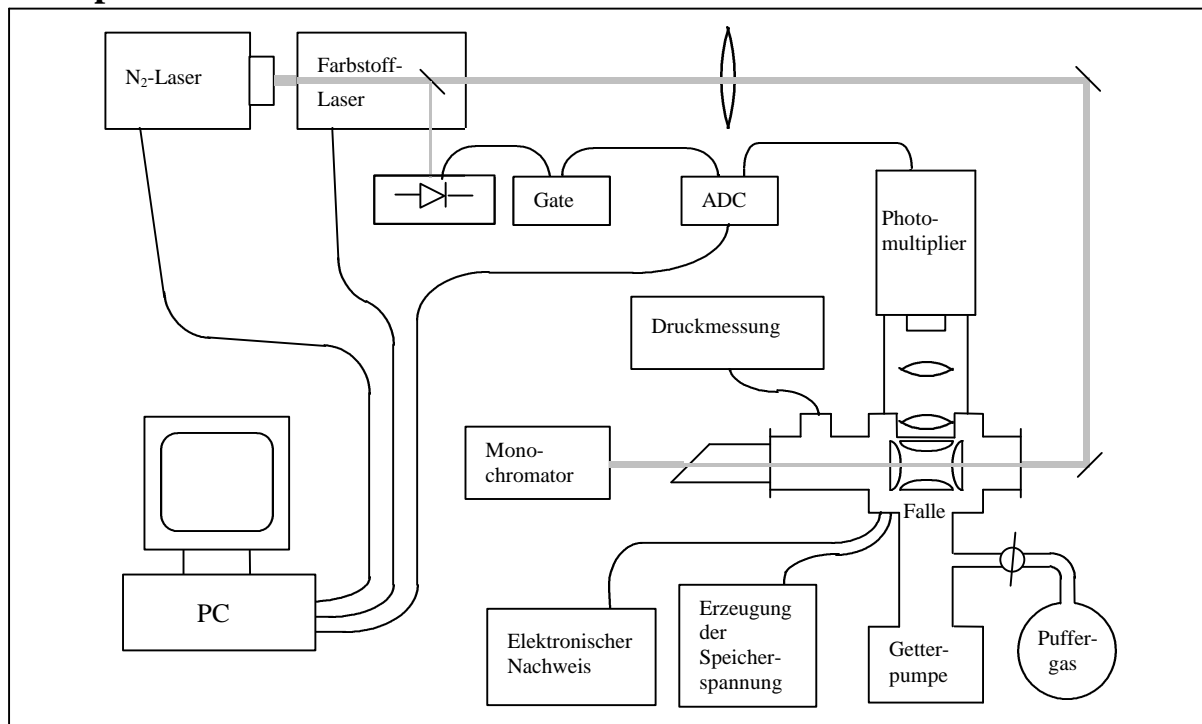


Abb. 4.4: Schematische Darstellung des Gesamtaufbaus.

Der Versuchsaufbau des Experiments besteht im Wesentlichen aus der Paulfalle in einer Vakuumapparatur, dem optischen und elektronischen Nachweis und dem Lasersystem. Die Laserstrahlung zur Anregung des S-P Übergangs wird in die Falle fokussiert, die Detektion des Fluoreszenzlichts geschieht zur Verminderung von Streulicht senkrecht dazu. Der Zeitpunkt des Laserpulses wird von einer schnellen Photodiode registriert, die die Nachweiselektronik auf NIM-Basis triggert. Das von

einem ADC digitalisierte Photomultipliersignal wird von einem PC weiterverarbeitet. Dieser kann auch Pulsfolgenbeginn und -ende einer Laserpulssequenz des Pumpasers und bei Bedarf auch Gitter- und Etalonwinkel des Farbstofflasers zur Veränderung der Laserwellenlänge steuern. Der elektronische Nachweis ist ein völlig unabhängiges System und nicht an den PC gekoppelt. Eine relativ grobe Messung der Laserwellenlänge ist mittels eines Monochromators möglich.

4.4.1 Die Paulfalle

Die in diesem Experiment verwendete klassische Paulfalle hat einen Radius r_0 von 2 cm und das Verhältnis r_0 zu z_0 beträgt $\sqrt{2}$. Die Falle wurde 1979 bzw. 1980 von Schaaf und Schmeling dazu benutzt, die räumliche Verteilung einer Ba^+ -Ionenwolke bei verschiedenen Arbeitspunkten der Falle zu bestimmen [Scha81]. Dazu waren 7 mm breite Kreuzschlitze aus der Ringelektrode der Falle gesägt worden [Scha79, Schm80], die irgendwann später wieder mit entsprechend passend eingesetzten und verschweißten Stahlstücken aufgefüllt worden waren. Daraus resultieren Oberflächenunebenheiten von bis zu 0,3 mm. In diesen Verfüllungen existieren in Laserstrahlrichtung zwei Bohrungen von 8 mm Durchmesser. Dazu in senkrechter Richtung befinden sich Löcher mit 6

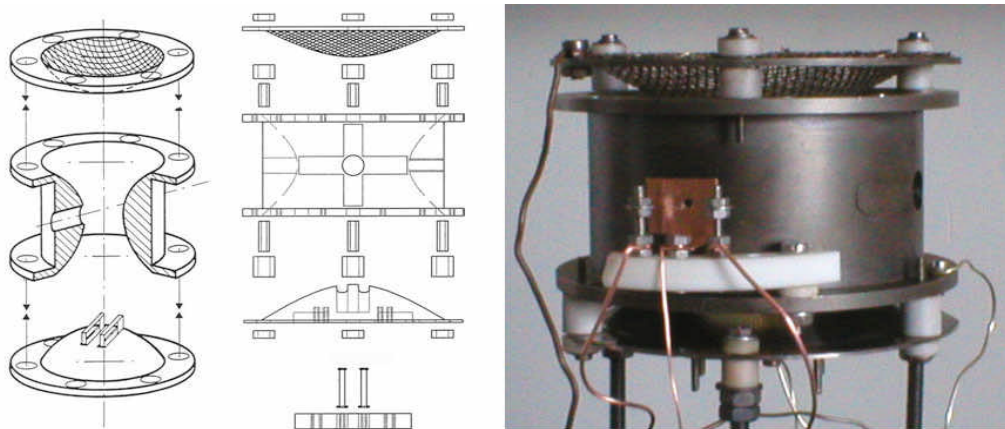


Abb. 4.5: Die Falle: Schema [Blat81], technische Zeichnung und Photo (im Vordergrund die Elektronenkanone).

und 5 mm Durchmesser. Eines dieser Löcher wurde für eine Elektronenkanone genutzt. Die obere Endkappe besteht aus einem von einem Ring eingefassten Stahlnetz, dessen Asymmetrie und Abweichung von der idealen Form bis 0,5 mm beträgt. Dieses Stahlgitter weist eine effektive Transmission von etwa 58,5 % auf¹. Die untere Endkappe besteht aus Stahl und ist im Gegensatz zur Ringelektrode poliert. In ihr befinden sich in der Mitte zwei längliche Öffnungen zur Aufnahme der Filamente oder "Schiffchen" zur Ionenerzeugung. Die Befestigung der Falle am Vakuumtopf erfolgte mit Gewindestangen und mit durch Keramikhülsen isolierten Verschraubungen. Auch die Elektroden der Falle selbst sind mittels mit Keramikhülsen isolierten Schrauben miteinander verbunden, dabei bilden jeweils 3 der Hülsen die Abstandhalter zwischen Endkappe und Ring.

Vakuumaufbau

Die Falle befindet sich im Zentrum eines Vakuumtopfs mit 6 Anschlüssen. Unten am Topf angebracht ist ein Adapterstück mit Stromdurchführungen, darunter ein Kreuzstück mit dem Nadelventil für Puffergasinlaß und dem Ventil zur Turbopumpe zum Evakuieren der Apparatur.

¹ Die Dicke der Stahldrähte beträgt 0,4 mm, ihr Abstand 1,7 mm. Unter der Annahme, daß nur Lichtstrahlen, die nicht auf die Gitteroberfläche treffen, so transmittiert werden, daß sie vom Nachweis verwertet werden, ergibt sich obiger Wert. Bei Reflexionen sind Strahlen denkbar, die solchen, die direkt aus der Falle kommen, ähneln, was die Transmission erhöht. Die Fertigungsweise der Kalotte - ein ebenes Gitter mit quadratischen Maschen wird auf eine hyperbolische Form angepaßt und an einen Ring angeschweißt - bedingt eine Verzerrung der Maschen und eine Vergrößerung der Maschendichte bei Draufsicht, was die Transmission verringert. Die Größe dieser Effekte wird als klein eingestuft.

Darunter befindet sich eine Ionengetterpumpe (Saugvermögen 50 l/s). Am Nadelventil für den Puffergaseinlaß ist ein mit dem entsprechenden Puffergas gefüllter Ballon angebracht, sowie ein System mit zwei weiteren Ventilen, das es gestattet, den Bereich zwischen Nadelventil und Ballon mit Hilfe einer Drehschieberpumpe zu evakuieren, um die Reinheit des Puffergases zu gewährleisten. Außerdem bestand die Möglichkeit, das Puffergas zunächst durch ein mit flüssigem Stickstoff gekühltes Kupferrohr zu leiten, um eventuell vorhandenen Wasserdampf auszukondensieren; da dies jedoch bei den Messungen mit Ba^+ keinen Unterschied machte, wurde die Vorrichtung nicht weiter verwendet. Die Einkopplung der Laserstrahlen erfolgt durch das Rohr mit Glasfenster (in Abb. 4.6 rechts), die Laserstrahlen verlassen die Apparatur auf der anderen Seite durch

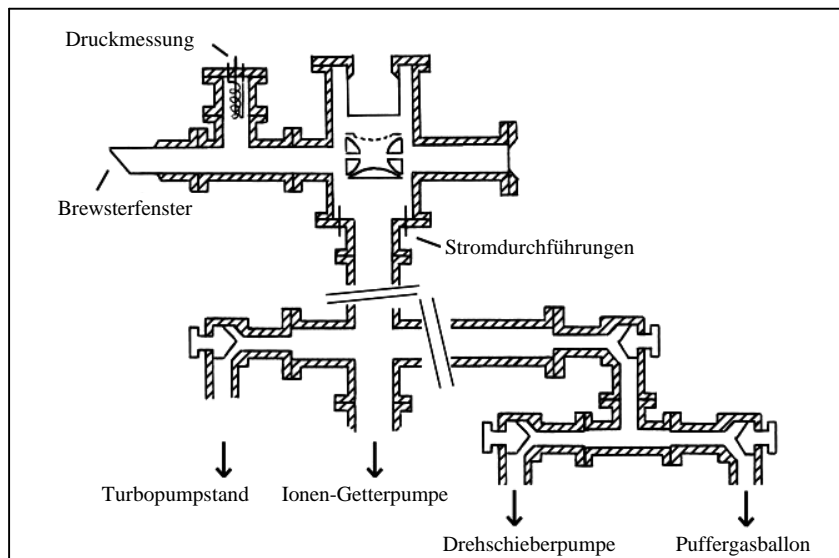


Abb. 4.6: Vakuumaufbau; der untere Teil ist um 90° gedreht gezeichnet, ebenso wie das Druckmeßgerät eigentlich nicht nach oben, sondern nach hinten angebaut ist.

ein Glasrohr, das zur Vermeidung von Reflexionen mit einem Fenster im Brewsterwinkel abschließt. Im oberen Flansch ist ein Glasrüssel mit eingelassen, dessen großflächiges Sichtfenster sich dicht über der oberen Fallenelektrode befindet. An einem der zwei restlichen Flansche des Vakuumtopfs befindet sich ein Sichtfenster zur Kontrolle von Elektronenkanone und den Filamenten, an dem anderen ist ein Blindflansch befestigt. Zwischen dem Vakuumtopf und dem Brewsterfenster befindet sich ein Rohr mit längerem Abzweig, an dem ein Druckmeßgerät des Typs Varian Multi Gauge installiert ist¹. Da die Apparatur zuvor über mehrere Jahre belüftet gewesen war, wurde die Getterpumpe (Varian VACION 50 l/s, Modell 912-6002) zunächst separat und ohne Magnete bei ca. 420°C ausgeheizt. Nach Ausheizen der gesamten Apparatur bei 240-290°C ließ sich ein Restgasdruck von $9 \cdot 10^{-10}$ mbar erreichen². Durch Einlaß von Puffergas – es wurde entweder Helium oder Stickstoff verwendet – während des Betriebs der Ionengetterpumpe waren beliebige, zeitlich stabile Drücke zwischen $1,2 \cdot 10^{-3}$ und $3 \cdot 10^{-9}$ mbar einstellbar³. Die Verwendung

¹ Dieses befand sich – noch vom Vorgängerexperiment – ursprünglich an der Stelle des seitlichen Sichtfensters. Die Glühemission des Druckmeßgeräts führte hier jedoch zu einer erheblichen Erhöhung des Streulichts in der Falle. Zudem wurde seine Funktion durch das an der nur ca. 1 cm entfernten Ringelektrode anliegende Fallenfeld derart gestört, daß während des Betriebs der Falle keine Druckmessung möglich war.

² Die Temperaturen wurden mit FeCuNi-Thermodrähten gemessen. Bedingt durch das langsame Aufheizen und Abkühlen der Apparatur, um ein Springen der Glasfenster zu vermeiden, dauert ein Ausheizen 4 bis 5 Tage. Der Enddruck stellt sich nach Abkühlen und Umschalten von Turbo- auf Ionengetterpumpe üblicherweise nach mehreren Wochen ein. Dies kann beschleunigt werden, wenn man nach dem ersten Tag des Pumpens mit der Getterpumpe für einige Minuten Stickstoff bis ca. 10^{-5} mbar einläßt. Darunter kann jedoch die Gesamtlebensdauer der Getterpumpe leiden.

³ Bei Einlaß von Puffergas bei ausgeschalteter Getterpumpe ließen sich zuvor bestimmte Puffergasdrücke nur ungenau erreichen, zudem dauerte es sehr lange (über eine halbe Stunde), bis sich ein stabiler Druck eingestellt hatte. Die von [Knab92] empfohlene zusätzliche Verwendung der Turbopumpe zum Einstellen eines Puffergasdrucks hatte trotz Beachtung des Druckgefälles immer eine Verunreinigung des Gases in der Apparatur und damit schlechtere Enddrücke zur Folge.

von Helium als Puffergas bewirkt eine deutliche Verschlechterung des erreichbaren Enddrucks, daher wurde – wann immer möglich – Stickstoff eingesetzt.

Erzeugung des Speicherfelds

Die Endkappen wurden extern entweder geerdet oder mit dem elektronischen Nachweis verbunden, der Ring wurde außerhalb der Apparatur mit einem Koaxialkabel niedriger Kapazität und minimaler Länge an den Führungsfeldverstärker angeschlossen. Die Kapazität der Falle (Ring gegen geerdete Kalotten) zusammen mit der des Koaxialkabels lag dabei mit 44 pF weit unter dem kritischen Wert von 100 pF der zur Verfügung stehenden Führungsfeldverstärker. Der für das Experiment ausgewählte Führungsfeldverstärker GAF760907(3) mit Hochspannungsröhre ist eine Entwicklung des institutseigenen Elektroniklabors von 1976 und erlaubt als einziges der vorhandenen Geräte die Einspeisung einer Sägezahnspannung von bis zu 30 Hz über den DC-Eingang, was für die Verwendung des elektronischen Nachweises benötigt wurde. Bei den moderneren Führungsfeldverstärkern war nur eine Einkopplung über einen externen Tiefpaß möglich gewesen, dies führte aber zu starken Aufladungseffekten der Ringelektrode während der Ionenerzeugung. Mit GAF760907(3) wurde üblicherweise ein Fallenfeld der Frequenz $\Omega/2\pi = 400$ kHz erzeugt, wobei je nach Abstimmung bis zu 2,5 kV_{pp} erreicht werden konnten. Der DC-Anteil des Feldes war von 0 V bis +100 V variierbar. Zeitliche Amplitudenschwankungen der Hochspannung während der ersten Betriebsstunde betrugen bis zu 20%, was durch ein frühzeitiges Einschalten vor dem Experimentieren verbessert werden konnte.

Erzeugung von Ba⁺- und Ra⁺-Ionen

In den zwei Öffnungen der unteren Kalotte befindet sich auf Höhe der inneren Endkappenoberfläche je ein Filament, das mit Hilfe eines Stromnetzgerätes (Dual Power Supply GAN 740814) geheizt werden kann und das als Träger des zu untersuchenden Materials dient. Die genaue Anordnung ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Beim Heizen des Filaments werden sowohl Ionen als auch Atome abgedampft, in einem durch die Saha-Langmuir-Gleichung ausgedrückten Verhältnis,

$$\frac{N^+}{N} \sim \exp\left(\frac{W_A - I}{k_B T}\right) \quad 4.2$$

mit N⁺ bzw. N der Anzahl abgedampfter Ionen bzw. Atome, I der Ionisierungsenergie des Atoms, W_A der Austrittsarbeit für Elektronen aus dem verwendeten Metall, k_B der Boltzmann-Konstante und T der Temperatur des Metalls¹. Zudem werden, abhängig von der Filamenttemperatur, auch Elektronen emittiert, wobei die Stromdichte der Glühemission I_{GE} gegeben ist durch

$$I_{GE} = AT^2 \exp\left(-\frac{W_A}{k_B T}\right) \quad 4.3$$

mit A der Richardson-Konstante. Dadurch sind zwei Prozesse der Ionenerzeugung möglich. Zum Einen kann das Ion direkt durch Oberflächenionisation entstehen, zum Anderen können von der Filamentoberfläche auch neutrale Atome abgedampft werden. Letztere können durch die ebenfalls vom glühenden Filament emittierten Elektronen in der Falle ionisiert werden. Zu diesem Zweck ist auch zusätzlich der Einsatz der Elektronenkanone möglich (ihr Einsatz ist aber nicht grundsätzlich

¹ Zusätzlich spielen auch noch die Oberflächenbeschaffenheit, der Bedeckungsgrad der Oberfläche mit dem abzudampfenden Material und die Stärke äußerer Felder eine Rolle.

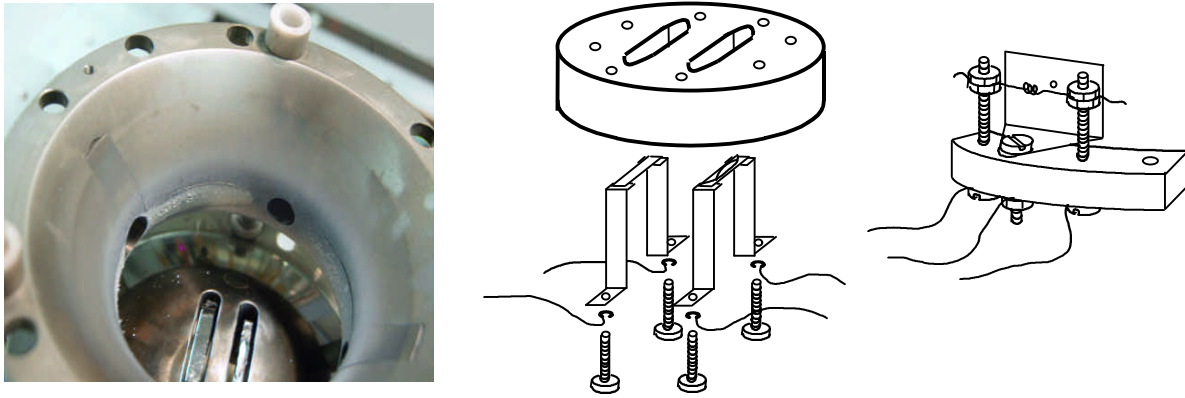


Abb. 4.7: Linkes Bild: Anordnung der Filamente in der unteren Endkappe; links ein Rheniumband, rechts ein Rhenium-Schiffchen. Die Filamente sind an Stahlhaltern festgeschweißt, die zusammen mit den Stromzuführungen an einer Scheibe aus Makor angeschraubt sind (siehe Darstellung in der Mitte). Die Filamente liegen auf gleicher Höhe mit der Elektrodenoberfläche, um das Fallenfeld möglichst wenig zu stören. Rechtes Bild: Die Elektronenkanone, bestehend aus einem Draht aus thoriiertem Wolfram ($d = 0,1 \text{ mm}$) und einer Ziehblende aus Kupfer; beides montiert auf einem Makorträger, der hinter einem der Löcher in der Ringelektrode angebracht wird (siehe auch Abb. 4.5).

notwendig). Die beiden Prozesse treten in einem hier nicht bekannten Verhältnis auf. Die Ionen werden dabei am Rand des Potentials gebildet oder haben eine so hohe Anfangsenergie, daß sie nur aufgrund von Stößen mit dem Puffergas in der Falle gespeichert werden. Ionen, die so nicht genügend abgebremst werden, treffen entsprechend des Verlaufs der Feldlinien in der Falle an zwei charakteristischen Punkten auf die Fallenelektroden auf und bilden dort einen Niederschlag (siehe Abbildung 4.8).

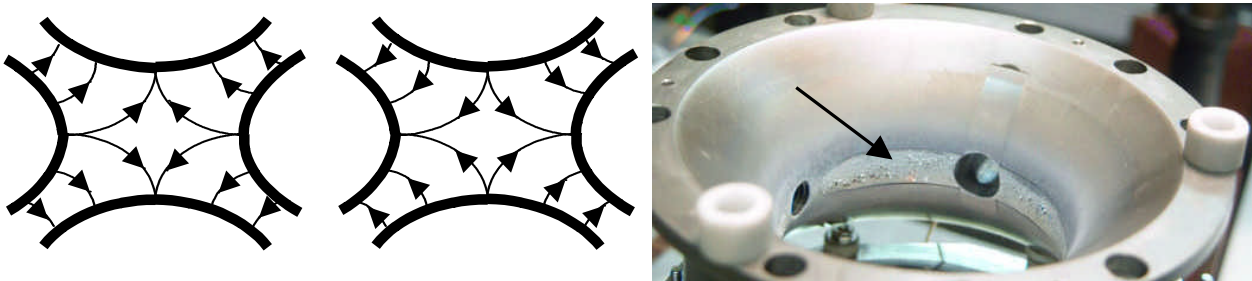


Abb. 4.8: Durch die Ionenerzeugung bildet sich ein schwacher Niederschlag des verdampften Materials auf der oberen Kalotte und ein starker Niederschlag auf der Mitte der Ringelektrode, was aus den zwei Feldlinienverläufen (links) während einer Führungsfeldperiode klar wird. Barium-Niederschlag auf der Ringelektrode (rechts).

Für die Erzeugung von Bariumionen wurden zwei verschiedene Arten von Filamenten und auch zwei Methoden der Aufbringung von Barium verwendet:

- Die Filamente bestanden aus ca. 2 mm breiten und ca. 2 cm langen Platin- bzw. Rheniumblechen der Dicke 0,015 mm bzw. 0,001 inch. Die Filamente wurden mit 2 bis 3 Ampere geheizt, während mehrere Tropfen einer BaCl_2 -Lösung aufgetropft wurden. Die mit weißem Niederschlag überzogenen Filamente wurden dann in die Falle eingebaut.
- 4 mm breite Bleche des gleichen Materials wie oben wurden zu einer "Tasche" oder einem "Schiffchen" gebogen (siehe Abbildung 4.7). In die Öffnung wurde ein Stück metallischen Bariums gelegt. Die Ergebnisse der zwei Methoden sind in Kapitel 4.5 dargestellt.

¹ Durch die Thorierung wird die Austrittsarbeit der Elektronen verringert. Austrittsarbeit von Wolfram: 4,52 eV, von Thorium: 3,40 eV und von thoriiertem Wolfram: 2,63 eV

Um die Nachteile der Radiochemie, d.h. die Handhabung größerer Mengen radioaktiven Materials, zu vermeiden, wurde das Radium an ISOLDE am CERN auf die Filamente aufgebracht. Durch einen auf ein Urancarbid-Target treffenden Protonenstrahl und die anschließende Massenseparation wurden während zweier Strahlzeiten die Fragmente der Masse 226 auf zwei¹ nebeneinanderliegende Filamenten des erstgenannten Typs fokussiert. Da zu diesem Zeitpunkt noch keine Ergebnisse aus den Tests der mit Barium belegten Filamente vorlagen, bestand eines der Filamente aus Rhenium, das andere aus Platin. Platin hat mit 5,66 eV eine höhere Austrittsarbeit als Rhenium (4,97 eV). Aufgrund seiner hohen Austrittsarbeit ist der Effekt der Oberflächenionisation bei Verwendung von Platinfilamenten sehr viel größer als mit Rhenium (Ionisierungsenergie von Ra: 5,28 eV, von Ba: 5,21 eV)². Es muß jedoch beachtet werden, daß Pt mit einigen Metallen niedrigschmelzende Legierungen bildet, was zu frühzeitigem Reißen solcher Filamente führen kann (weiteres dazu in Kapitel 4.5), und daß die Legierungsbildungen des Radiums größtenteils unerforscht sind. In dieser Hinsicht ist Re unproblematischer und besitzt ohnehin auch in reiner Form einen sehr viel höheren Schmelzpunkt (3350 K anstelle von 2040 K bei Platin). Auch werden von einem Rheniumfilament wegen der niedrigeren Austrittsarbeit mehr Elektronen emittiert, so daß der zweite Prozeß der Ionenerzeugung hier größer ist.

In der Planungsphase des Experiments war die maximal zu erwartende Gesamtmenge an Radium mit 10^{13} Atomen abgeschätzt worden (siehe Kapitel 4.6.1). Eine derartige Zahl an Ra-Atomen sollte prinzipiell ausreichen, um die Falle für das Experiment einige Male füllen zu können. Schupp [Schu87, Knab87] hat z.B. mit Pt- und Re-Filamenten mit $4,5 \cdot 10^{13}$ bzw $3 \cdot 10^{13}$ ^{133}Ba -Atomen seine Falle jeweils ca. 100 Mal füllen können. Ähnliches gelang Knab [Knab90] mit 10^{13} Atomen ^{131}Ba und Marx [Marx94] mit 10^{12} Atomen ^{150}Eu .

Demgegenüber stehen die Versuche von Arbes [Arbe94], der mit auf Platinfilamenten aufgebrachten ca. 10^{11} ^{43}Ca -Atomen keine detektierbaren Ionenzahlen speichern konnte und die Experimente von Gudjons [Gudj93], dem dasselbe trotz detaillierter Untersuchungen mit 10^{14} Atomen nicht gelang. Dabei zu beachten ist, daß all diesen Experimenten erfolgreiche Versuche mit den jeweils stabilen bzw. häufig vorkommenden Isotopen vorangegangen waren.

Dies macht deutlich, daß es aufgrund der wenigen möglichen Fallenfüllungen mit Radium unbedingt notwendig war, die Apparatur und die Meßmethode mit Hilfe eines in größeren Mengen vorhandenen ähnlichen Materials - Barium - zu testen und zu optimieren.

4.4.2 Laser, Monochromator und optischer Nachweis

Für das Experiment zur Anregung des S-P Übergangs wurde ein kommerzieller Laseraufbau der Firma Lambda Physik verwendet. Dieser ist eine Kombination aus einem mit einem He-N₂-Gemisch betriebenen Excimerlaser EMG101 MSC und einem von diesem gepumpten Farbstofflaser FL2001. Der Pulslaser verfügt über eine ILC-Einheit (intelligent laser control), die an diesem Experiment allerdings lediglich zum Einstellen der Entladungsspannung und zur Kontrolle des Gasdrucks in der Laserröhre (neben der etwas groben Manometeranzeige am Laser selbst) verwendet wurde. Die Option der Leistungsstabilisierung konnte nicht genutzt werden, da hierfür die Laserpulsleistung bei Stickstoffbetrieb nicht ausreicht. Die Anteile von Stickstoff und Helium an der Lasergasfüllung bei einem Gesamtdruck von etwa 1 bar sowie die Entladungsspannung wurden innerhalb der von Lambda Physik genannten Grenzen variiert, um eine möglichst hohe Laserleistung bei akzeptabler Beanspruchung des Lasers zu erhalten (s. Abb. 4.9). Die Laserpulsleistung wurde dabei mit Hilfe eines aus der Arbeitsgruppe von Professor Huber ausgeliehenen Powermeters bestimmt. Für eine grobe Kontrolle der Laserleistung während der Experimente stand ein Coherent 210 Pulslaser Power Meter zur Verfügung. Aufgrund der während

¹ Eigentlich 4 Filamente, der Strahlfleck war jedoch klein genug, um auf die zwei mittleren Filamente zu passen.

² Bei Verwendung eines Platinfilaments bei einer Temperatur von 1000 K beträgt der Ionisierungsgrad über 98%, bei einem Rheniumfilament der selben Temperatur nur knapp 3%.

des Betriebs absinkenden Pulsleistung muß die Gasfüllung je nach Beanspruchung des Lasers bis zu einem Mal pro Tag ausgetauscht werden. Die maximal erzielbare gemessene Pulsenergie lag mit neuer Gasfüllung bei 5 mJ^1 , die maximale Repetitionsrate war mit 30 Hz angegeben.

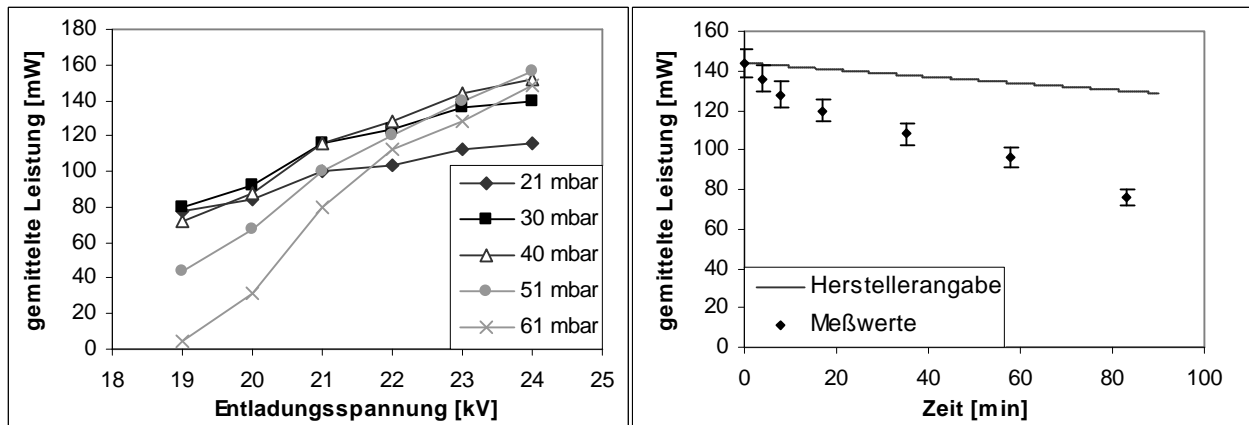


Abb. 4.9: Links: Optimierung der Laserpulsleistung bei Variation des Stickstoff-Partialdrucks bei ca. 940 mbar Helium in der Gasfüllung sowie bei Variation der Entladungsspannung. Veränderungen der Strahlqualität und der Leistungsschwankungen wurden dabei nicht festgestellt. Üblicherweise wurde der Laser nun mit einer Füllung von 940 mbar Helium und 30 mbar Stickstoff bei 21 kV betrieben. Rechts: Abnahme der Laserleistung bei Dauerbetrieb (30 Hz) mit einer Gasfüllung (experimentelle Meßpunkte und vom Hersteller angegebene Kurve).

Der Laserstrahl mit dem rechteckigen Querschnitt von 10 mal 26 mm und einer Wellenlänge von 337 nm tritt in den Farbstofflaser ein. Dieser ist so konstruiert, daß sowohl der Laseroszillatorstrahl als auch der Vorverstärkerstrahl durch dieselbe Farbstoff-Küvette verlaufen. Dies ist hier auch die einzige Küvette, da in diesem Fall kein Hauptverstärker verwendet wurde. Der entsprechende Strahlengang der vom Puls laser kommenden Strahlen ist in Abbildung 4.10 schematisch dargestellt. Die Wellenlänge des sich im Oszillator ausbildenden Laserstrahls kann über die Verkippung eines optischen Gitters variiert werden. Ebenfalls innerhalb der Oszillatorcavity befindet sich ein Etalon zur Reduzierung der Bandbreite des Lasers. Sowohl Gitter- als auch Etalonwinkel lassen sich mit Hilfe einer Steuerungselektronik² über Schrittmotoren variieren. Die Steuerung ist über den PC zur Experimentsteuerung ansprechbar, Gitter- und Etalonwinkel lassen sich aber auch manuell am Laser verstellen. Zum Betrieb bei den S-P-Übergangswellenlängen von Barium (493 nm) bzw. Radium (468 nm) wurde als Laserfarbstoff Coumarin 307 bzw. 47 verwendet. Die Bandbreite des Lasers beträgt laut Herstellerangaben 6 GHz ohne und 1,2 GHz mit Intracavity-Etalon.

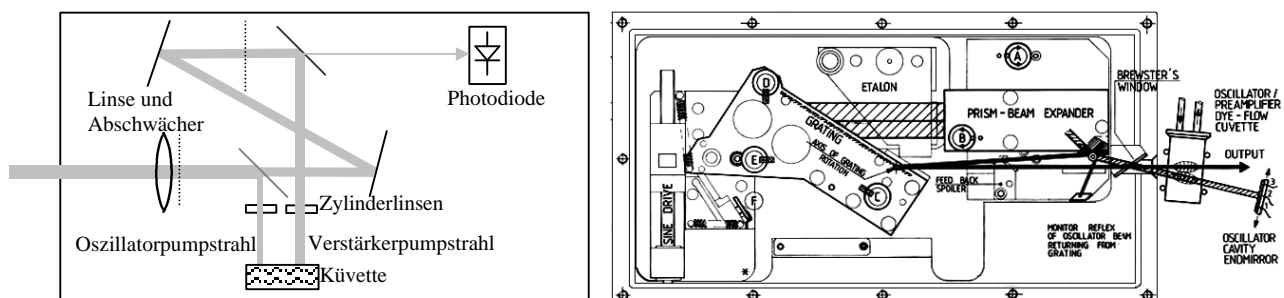


Abb. 4.10: Pumpstrahlverlauf innerhalb des Farbstofflasers FL2001 in Draufsicht (links). Rechts der Oszillator mit Gitter, Etalon und "Prism-Beam-Expander".

Zur Variation der Laserleistung besitzt der FL2001 sowohl im Oszillatorpumpestrahl als auch im Vorverstärkerpumpestrahl ein Abschwächungsgitter. Das erstere kann wegen der geringen

¹ Berechnet unter Verwendung der vom Hersteller angegebenen Laserpulsdauer von 4-6 ns. Herstellerangabe: 7 mJ.

² Stepmotor Control for Dye Laser FL2002

Pulsenergie des Stickstofflasers nicht verwendet werden. Da das zweite Gitter keine stufenlose Verstellung der Laserausgangsleistung erlaubt, wurde zusätzlich hinter der Küvette eine drehbare Polarisatorfolie als Abschwächer installiert. Die maximal erreichbare Pulsenergie bei Verwendung von Coumarin 307 lag bei 60 mJ ohne und 7 mJ mit Etalon und ohne jegliche Abschwächer. Vor der Gehäuseöffnung für den Austritt des Laserstrahls wurde eine Sammellinse installiert, so daß sich der Strahlfokus in der Falle befindet. Hinter dem Laser dienen zwei Spiegel zur Justage des Strahls durch die Falle, unmittelbar vor dem Vakuumfenster sorgt eine variable Blende für eine Reduzierung des Streulichts¹, hinter der Apparatur schließt dann ein Beamdump den Strahlengang ab.

Monochromator

Die Wellenlänge des Farbstofflasers läßt sich prinzipiell bei Kenntnis der Gitterordnung und dem Wellenlängenbereich des jeweils verwendeten Laserfarbstoffs über die Gitterwinkel-Anzeige bestimmen. Für Barium existierten hier bereits Werte dieser Anzeige aus früheren Experimenten [Laborbücher des Ba⁺-Experiments von G. Tommaseo und A. Drakoudis]. Um hier im Hinblick auf das Radium eine bessere Kontrollmöglichkeit zu schaffen, wurde ein Monochromator der Firma Jarrell-Ash, Model N°5 mit Hilfe von drei in der Arbeitsgruppe verfügbaren bekannten Laserwellenlängen geeicht und zur Bestimmung der Wellenlängen dieses Experiments verwendet.

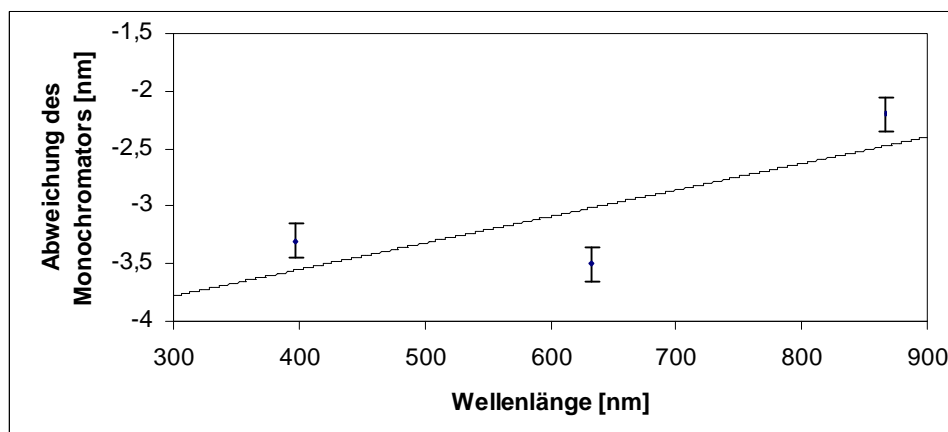


Abb. 4.11: Eichung des Monochromators mit Hilfe der Wellenlängen eines Helium-Neon-Lasers (632,8 nm) und zweier zum Treiben der Übergänge an $^{40}\text{Ca}^+$ (S-P Übergang 397,0 nm, P-D Übergang 866,5 nm) an einem anderen Experiment der Arbeitsgruppe verwendeten Laser. Zur Korrektur wurde eine lineare Abweichung des Monochromators angenommen.

Optischer Nachweis

Der optische Nachweis der Ionen erfolgte senkrecht zur Laserstrahlrichtung. Um einen möglichst großen Anteil des Fluoreszenzlichts der Ionen auf die Photokathode des Photomultipliers zu leiten, wurde eine aus insgesamt 4 Linsen bestehende Optik aufgebaut. Die Anforderungen an die Konstruktion waren einen möglichst großen Raumwinkel zu erfassen, eine maximale Transmission durch das Linsensystem selbst zu erhalten und dabei eine geringe Gesamtvergrößerung zu erzielen, da möglichst die gesamte Ionenwolke auf der Photokathode des Photomultipliers abgebildet werden sollte.

Aufgrund des Vakuumaufbaus mit dem bis kurz über die Falle reichenden Glasrüssel mit planem Glasfenster wurden alle Linsen außerhalb der Vakuumapparatur angebracht. Dabei wurde ein

¹ Es hat sich als vorteilhaft erwiesen, die Öffnung der Blende etwa zweimal so groß wie den Strahldurchmesser zu wählen, um eine optimale Streulichtunterdrückung zu erzielen. Bei kleineren Blendenöffnungen erhöht sich das Streulicht wieder aufgrund von Beugung an der Blende.

zweilinsiges Objektiv möglichst großen Linsendurchmessers so nahe, wie es der Glasrüssel erlaubte, über der Falle installiert. Auf diese Weise werden 11% des gesamten Raumwinkels erfaßt. Knapp 10 cm über dem Objektiv entsteht das reelle Zwischenbild der Ionenwolke. An dieser Stelle kann eine Blende eingesetzt werden, um das Streulicht zu reduzieren. Direkt über der Blende dient ein Interferenzfilter für 493 nm bzw. bei Radium für 468 nm zur Restlichtunterdrückung. Das Zwischenbild wird vom ebenfalls zweilinsigen Okular auf die Photokathode abgebildet, wobei Brennweite und Linsendurchmesser des Okulars daraufhin optimiert wurden, einen möglichst großen Teil des ankommenden Lichts zu transmittieren. Die Gesamttransmission der in Abbildung 4.12 gezeigten Optik liegt bei 71% bei einer Vergrößerung von 4. Daraus ergibt sich mit Berücksichtigung des Raumwinkels eine Gesamteffizienz von ca. 8% (ohne Interferenzfilter).

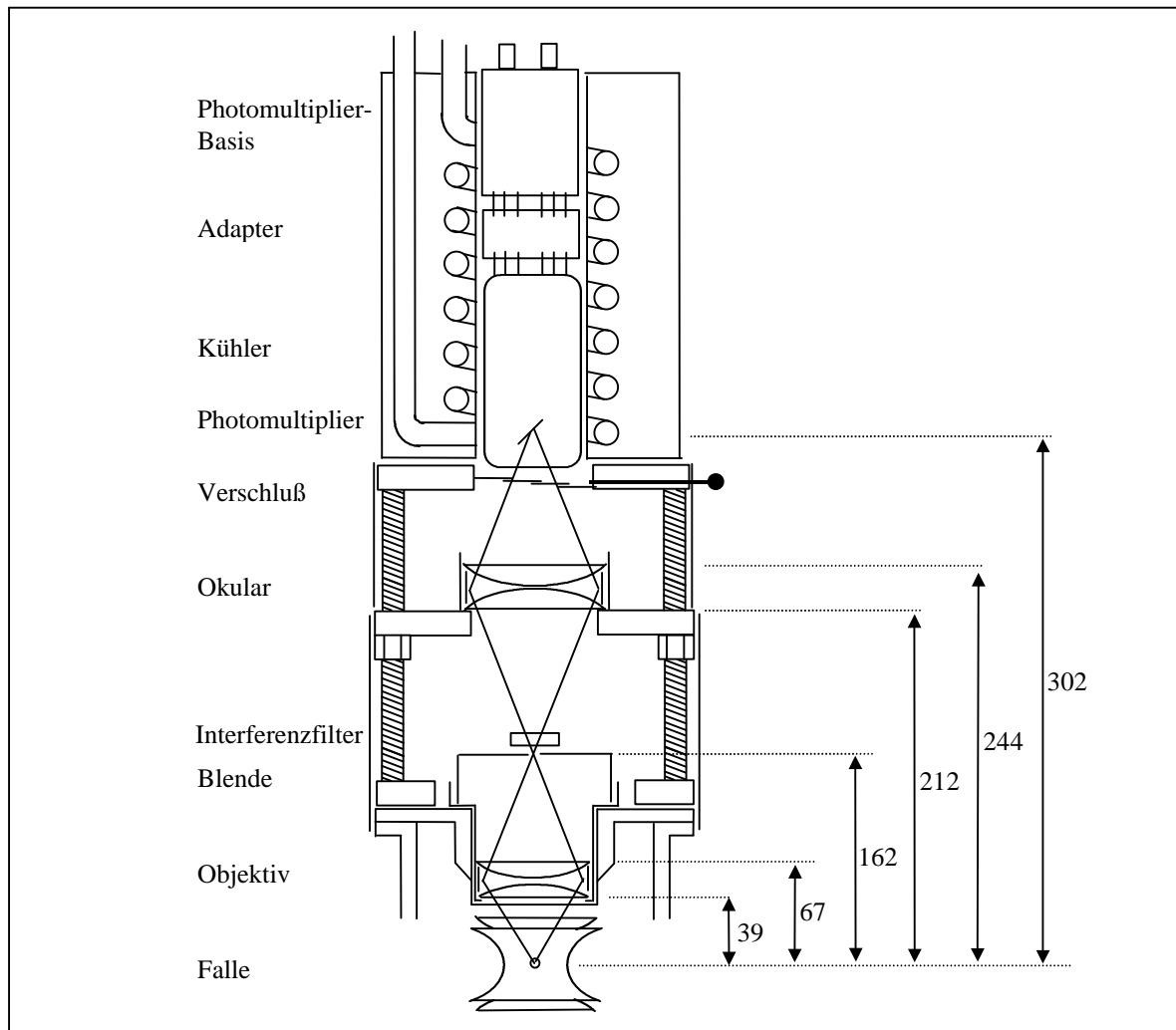


Abb. 4.12: Aufbau des optischen Nachweissystems: Falle, Linsensystem und Photomultiplierhalterung. Maße in mm.

Als Photomultiplier diente ein Hamamatsu R464, der Aufbau war jedoch darauf ausgelegt worden, auch einen empfindlicheren Hamamatsu R943-02 aufnehmen zu können. Dieser muß im Betrieb mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden, daher beinhaltet die Halterung des Photomultipliers einen Kühler sowie eine Möglichkeit, den Raum zwischen Photomultiplierfrontfläche und dem Okular zur Verhinderung von Kondenswasser mit einem wasserfreien Gas – zum Beispiel Stickstoff – fluten zu können. Ein Verschuß zum Schutz des Photomultipliers komplettiert den Aufbau. Entsprechend dem unterschiedlichen internen Abstand von der Photomultiplierfrontfläche zur Kathode bei den beiden Typen wurde für den R464 ein Adapterstück verwendet, um den korrekten Abstand zum Okular herzustellen.

Das vom Photomultiplier gelieferte elektrische Signal wird von einem ADC (Modell EHM 820718, vom Elektroniklabor des Instituts gebaut) in einen 16,5 MHz-Pulszug umgewandelt, dessen Länge proportional zur Ladung des Analogpulses ist. Nach Umwandlung von NIM zu TTL-Standard erfolgt über eine Vielkanalzählerkarte (Eigenentwicklung unserer Arbeitsgruppe) die Datenaufnahme im PC. Da der Pumplaser zu Beginn eines Pulses extrem hohe elektromagnetische Störungen aussendet, sind diese trotz zusätzlicher Abschirmung auch auf der Signalleitung vom Photomultiplier zum ADC zu finden. Die Störungen sind von der Größenordnung des Signals selbst und erfolgen direkt vor diesem (siehe Abb. 4.13). Es ist daher nötig, dem ADC ein Zeitfenster (Gate) zu liefern, während dem die Datenumwandlung erfolgt. Allerdings funktionierte der Pumplaser bei externer Triggerung durch den PC nicht korrekt und auch bei freilaufendem Laser war die Zeitspanne zwischen dem lasereigenen Triggersignal und dem Laser-Lichtpuls nicht konstant, sondern schwankte um 100 bis 200 ns, so daß ein Triggern des Gates auf diese Weise nicht möglich war. Es wurde daher eine schnelle Photodiodenschaltung (Eigenentwicklung des Ca⁺-Labors) im Gehäuse des Farbstofflasers installiert, von der ein Reflex des Oszillatorpumpstrahls aufgenommen wird. Das Photodiodensignal durchläuft ein Filter (da auch hier erhebliche Störungen auf der Leitung existieren), wird durch einen ORTEC-100 MHz Diskriminator in ein NIM-Signal umgewandelt und liefert mit Hilfe eines variablen Delays (EDF750602) das benötigte Gate für den ADC. Die gesamte Schaltung ist schnell genug, um das Gate bis zu 30 ns vor dem Photomultipliersignal beginnen zu lassen.

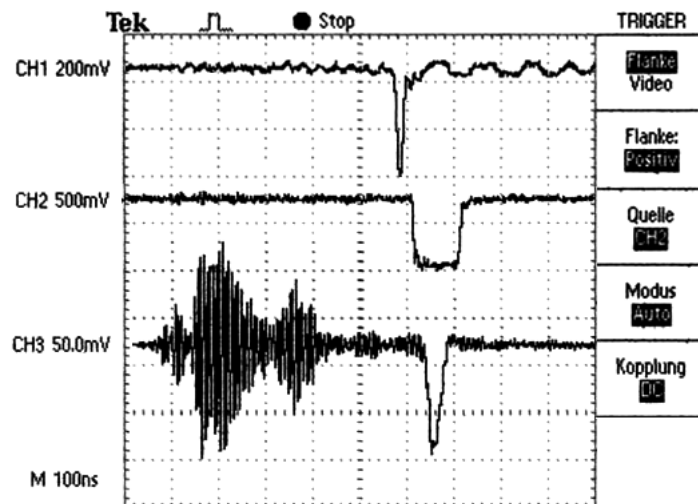


Abb. 4.13: Photodiodensignal (Ch 1), das Gate für den ADC (Ch 2), sowie das Signal des Photomultipliers mit den durch den Pumplaser verursachten Störungen (Ch 3).

4.4.3 Elektronischer Nachweis

Um das mögliche Szenario, daß man kein optisches Signal von Radium erhält und daher einfach erneut Ionen erzeugt – ohne zu wissen, ob nun wirklich keine Ionen gespeichert waren – zu verhindern und also das wenige vorhandene Radium nicht für überflüssiges Erzeugen zu verschwenden, wurde ein elektronischer Nachweis installiert. Mit dieser von Fischer [Fisc59] entwickelten Methode läßt sich die Existenz größerer gespeicherter Ionenwolken nachweisen, sowie eine grobe Massenbestimmung durchführen. Dabei nutzt man die Makrobewegung (s. Kapitel 2.2.4 bzw. 2.2.5) der geladenen Teilchen – in diesem Fall in axialer Richtung – aus:

Legt man an die Kalotten eine Wechselspannung an und variiert die Frequenz, so nehmen die Ionen Energie auf und ihre Schwingungsamplitude vergrößert sich, wenn die Frequenz der äußeren

Anregung gleich der Makrofrequenz der Ionen ist¹, d.h. die gespeicherten Ionen bilden einen frequenzabhängigen Widerstand. Dieser entspricht elektrisch gesehen einem Serienschwingkreis (auch Siebkette genannt), bei dem die Impedanz in Resonanz sinkt. Gleichzeitig entsteht beim extern anregenden System ein Spannungseinbruch. Allerdings ist der Effekt sehr klein und die Impedanz in Resonanz immer noch in der Größenordnung von $\text{M}\Omega$ (weiterführende Details finden sich in [Stah94, Stah98, Rett65, Ohle92]). Um den Effekt beobachtbar zu machen, geschieht die externe Anregung über einen Parallelschwingkreis gleicher Resonanzfrequenz und möglichst hoher Güte, dessen Kapazität durch die Fallenendkappen gebildet wird. Bei diesem wird die Impedanz in Resonanz maximal, so daß der kleine Spannungsunterschied über einen großen Widerstand abfällt und beobachtbar wird. Technisch geschieht dies, indem dieser Spannungsunterschied über einen zweiten, induktiv gekoppelten Schwingkreis nachgewiesen wird. Anschließend wird das Signal verstärkt und durchläuft einen Tiefpaß oder Demodulator (Abbildung 4.14).

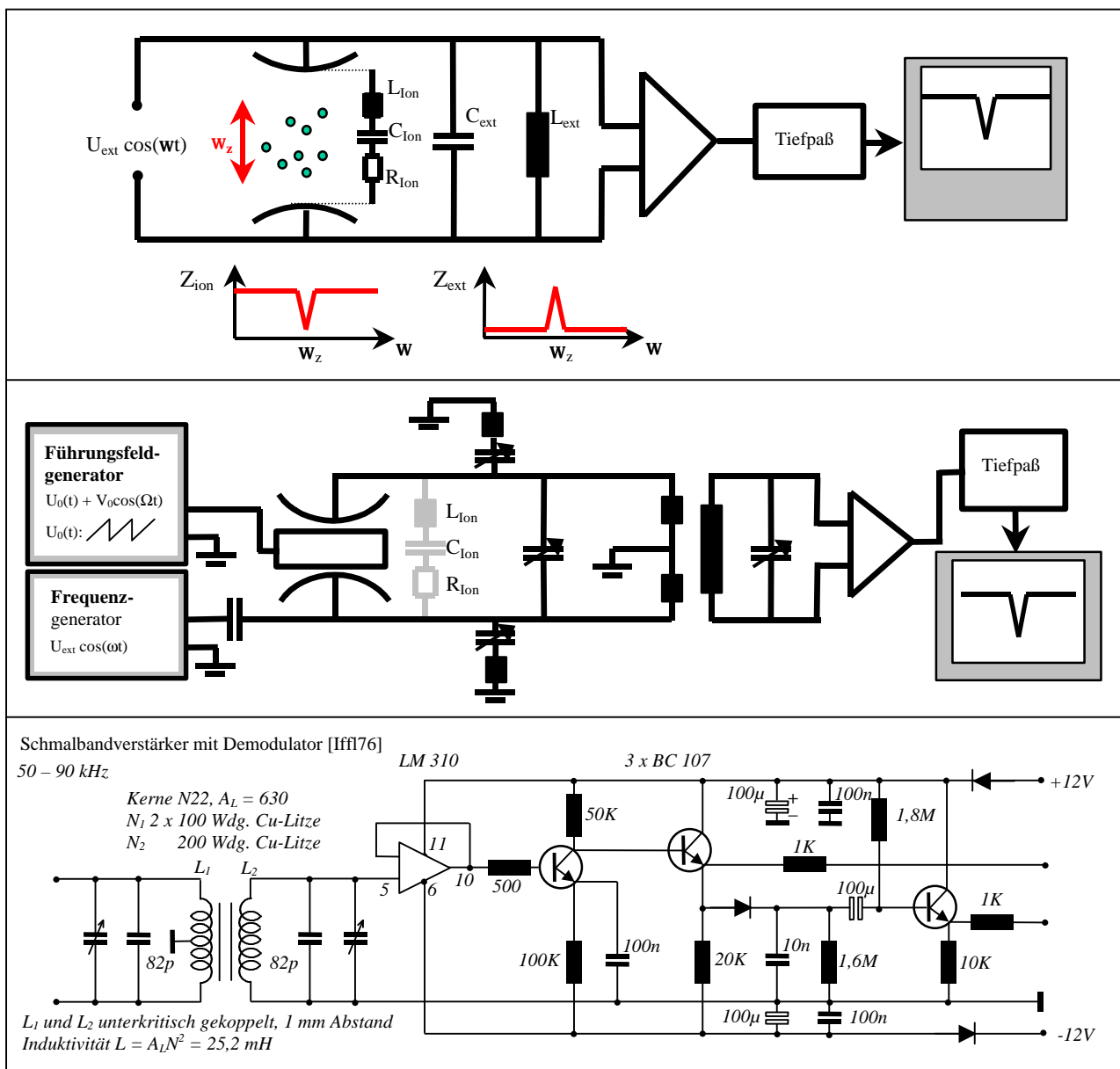


Abb. 4.14: Ionenbewegung und elektronischer Nachweis. Oben: In Resonanz verursacht die größer werdende Ionenbewegung eine Spannungsänderung, ähnlich einem Schwingkreis. Der sehr kleine Spannungsabfall wird über die hohe Impedanz eines externen Parallelschwingkreises (dabei werden andere Frequenzen stark unterdrückt) nachweisbar. Darunter experimentelle Realisierung und Schaltplan.

¹ Prinzipiell ist nach Kapitel 2.3 natürlich auch die Anregung bei anderen Frequenzen möglich, dort ist der Effekt jedoch kleiner.

Statt, wie bisher beschrieben, die Frequenz der externen Anregung zu variieren [Gabo81], kann man auch die Frequenz der Ionen verändern, z. B. indem man U_0 mit einem Rampengenerator variiert. Dies ist technisch einfacher zu realisieren, da somit die Schwingkreise des Nachweises, genauso wie Verstärker und Demodulator, für eine feste Frequenz optimiert werden können. In Abbildung 4.14 (Mitte) sind zusätzlich im Nachweisschwingkreis Siebketten zur Erde eingezeichnet. Diese dienen der Unterdrückung der auf den Kalotten auch zu findenden Frequenz des Führungsfelds.

Da die Rampenspannung der Führungsfeldgleichspannung, bei der eine Ionensorte die Makrofrequenz des Nachweisschwingkreises aufweist, massenabhängig ist, ergibt sich nun eine Möglichkeit der Massenbestimmung. Aus den Gleichungen (2.35), (2.33) und (2.19) folgt in adiabatischer Näherung die Spannungsabhängigkeit der Bewegungsfrequenz der Ionen

$$w_z = \sqrt{\frac{2e}{mr_0^2} \left(\frac{eV_0^2}{mr_0^2 \Omega^2} - U_0 \right)}, \quad 4.4$$

woraus sich die Masse der detektierten Ionen bei einer Rampen-Gleichspannung U_0 ergibt:

$$m = \frac{e}{r_0^2 w_z^2} \left(\sqrt{U_0^2 + 2 \left(\frac{V_0 w_z}{\Omega} \right)^2} - U_0 \right) \quad 4.5$$

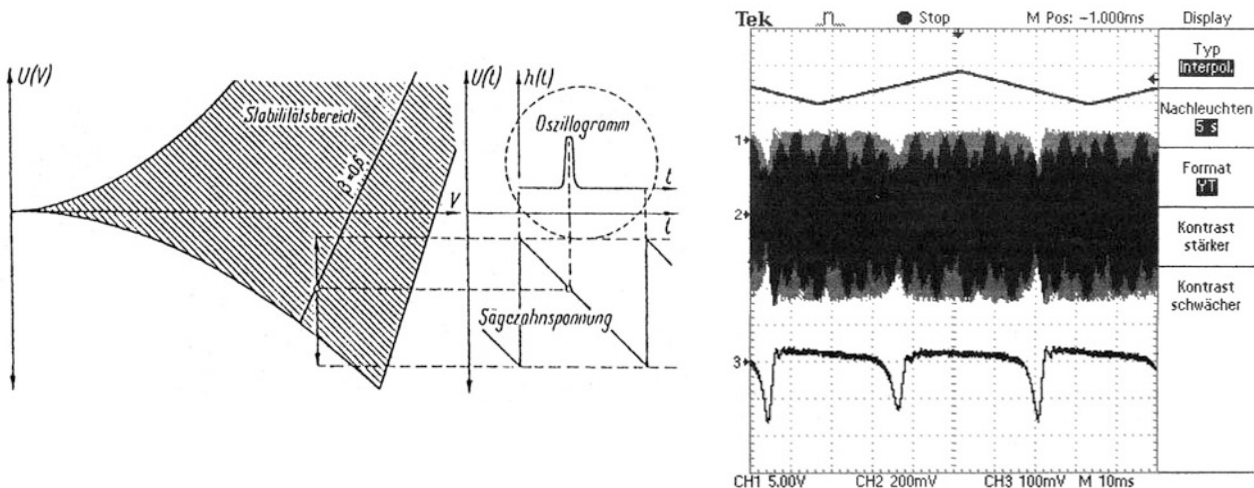


Abb. 4.15: Schema des elektronischen Nachweises [Fisc59] sowie die Spannungsrampe, das nicht demodulierte und das demodulierte Signal einer Barium-Ionenwolke. Die Struktur im nicht demodulierten Signal ist ein Darstellungsfehler des digitalen Oszilloskops.

Der in diesem Experiment verwendete elektronische Nachweis mit der Bezeichnung NV01 (Nachweisverstärker 01) ist ein Eigenbau der Arbeitsgruppe und entspricht dem Gerät von Iffländer [Iffl76] (weiterentwickelt aus [Beck75]). Die für elektronische Nachweisschwingkreise angegebene Güte muß man differenziert betrachten: Der Nachweis mit in der Falle gespeicherten Ionen besteht aus 3 gekoppelten Schwingkreisen (Serienschwingkreis der Ionen, paralleler Nachweisschwingkreis und Verstärkerschwingkreis). Die so durch Variation der Anregungsfrequenz bei Beobachtung der Ionensignalamplitude erhaltenen Güten lagen zwischen $Q = 224$ und $Q = 180$ [Ferr04]. Eine Messung ohne Ionen – d.h. nur die zwei Schwingkreise des Nachweises bei Beobachtung der Signalthöhe des nicht demodulierten Ausgangs – ergab $Q = 166 \pm 4$ ¹. Letzteres entspricht etwa dem

¹ In einem Testaufbau wurde auch die Güte der einzelnen Nachweisspule zusammen mit einer Testkapazität bestimmt: $Q = 21,9$. Hier enthalten sind jedoch auch noch Einflüsse aus der Testkapazität. Ebenfalls aus den Messungen eines Testaufbaus stammt der Wert für die Nachweisspulenkapazität, die im Prinzip für alle frequenzabhängigen Störwiderstände einer Spule steht: 49 ± 15 pF, diese ist etwa so groß wie die Kapazität von Falle und Zuleitungen (44pF).

Impedanzpeak in Abb. 4.14 oben, während ersteres grob dem Impedanzdip der Ionen zugeordnet werden kann. Die externe Anregung erfolgte mit einem kommerziellen Frequenzgenerator Stanford Research Systems SRS Model DS340, dessen Amplitude durch einen Π -Abschwächer reduziert wurde. Als Rampengenerator diente ein GAF94091 Dreiecksgenerator des Elektroniklabors. Als günstige Werte im Betrieb erwiesen sich eine Rampenfrequenz von 12 bis 15 Hz bei einem Rampenhub von ca. 10 V. Die Amplitude der externen Anregung lag dabei üblicherweise bei 7 mV_{pp} bei einer Anregungsfrequenz von 58,3 kHz.

4.5 Testmessungen mit $^{138}\text{Ba}^+$

Aufgrund der geringen Menge an Radium und der vielfältigen Probleme, die beim Aufbau einer Apparatur auftreten können, wurde vor den eigentlichen Messungen mit Radium (s. Kapitel 4.6) zunächst eine Testmessung mit Barium durchgeführt, die die Funktionsfähigkeit des experimentellen Aufbaus sicherstellen sollte.

4.5.1 Barium

Das Element Barium wurde 1774 von van Gahn entdeckt und kommt in der Erdkruste mit einer Häufigkeit von $2,6 \cdot 10^{-2}$ Gewichtsprozent vor. Barium, das zweitschwerste der Erdalkalimetalle, ist ein silberweißes weiches Metall, das an der Luft schnell anläuft und daher in Öl aufbewahrt werden muß. Die löslichen Bariumsalze – zum Beispiel BaCl_2 – sind sehr giftig (Rattengift), die unlöslichen dienen unter anderem als Röntgenkontrastmittel. Bariumnitrat $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ erzeugt eine grüne Flammenfärbung [Dens94].

Schmelzpunkt:	726°C
Siedepunkt:	1696°C
Dichte:	3,62 g/cm ³
Ionisierungsenergie:	5,21 eV

Schmelzpunkt und Ionisierungsenergie, die beiden für die Ionenerzeugung maßgeblichen Größen, sind fast identisch mit denen des Radium.

Es existieren 9 Bariumisotope, von denen die sieben stabilen in folgenden Anteilen im natürlichen Gemisch vorkommen:

Ba 130	Ba 131	Ba 132	Ba 133	Ba 134	Ba 135	Ba 136	Ba 137	Ba 138
0,10	14,5 m	0,095	38,9 h	7,8	28,7 h	7,8	2,55 m	71,9
$\sigma 2,5 + 11$	$\begin{matrix} \text{fy 108,} \\ 79 \\ \text{e}^- \end{matrix}$	$\sigma 0,68 + 7,8$	$\begin{matrix} \text{fy 276; 12} \\ \text{e}^- \\ \gamma 355; \\ 81, \\ 303... \end{matrix}$	$\sigma 0,158 + 1,8$	$\begin{matrix} \text{fy 258} \\ \text{e}^- \end{matrix}$	$\sigma 0,010$ + ~0,4	$\begin{matrix} \text{fy 552} \\ \sigma 5,1 \end{matrix}$	$\sigma 0,35$

Abb. 4.16: Ausschnitt aus der Nuklidkarte mit den Häufigkeitsverhältnissen der stabilen Isotope. [Seel74]

Barium hat die Ordnungszahl 56, wodurch die geraden Isotope keinen Kernspin und daher auch keine Hyperfeinstruktur besitzen. Das mit 71,9 % am häufigsten vorkommende ^{138}Ba besitzt mit 82 Neutronen einen einfach magischen Kern.

Das einfach geladene Bariumion (Ba^+ oder Ba II) ist isoelektronisch zum Cäsiumatom. Es besitzt die abgeschlossene Elektronenkonfiguration des Edelgases Xenon mit einem Leuchtelektron im $6^2\text{S}_{1/2}$ -Niveau: $[1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 4d^{10} 5s^2 5p^6] 6s^1$. In Abb. 4.17 ist der für das Experiment relevante Ausschnitt des Termschemas mit den entsprechenden optischen Übergängen dargestellt.

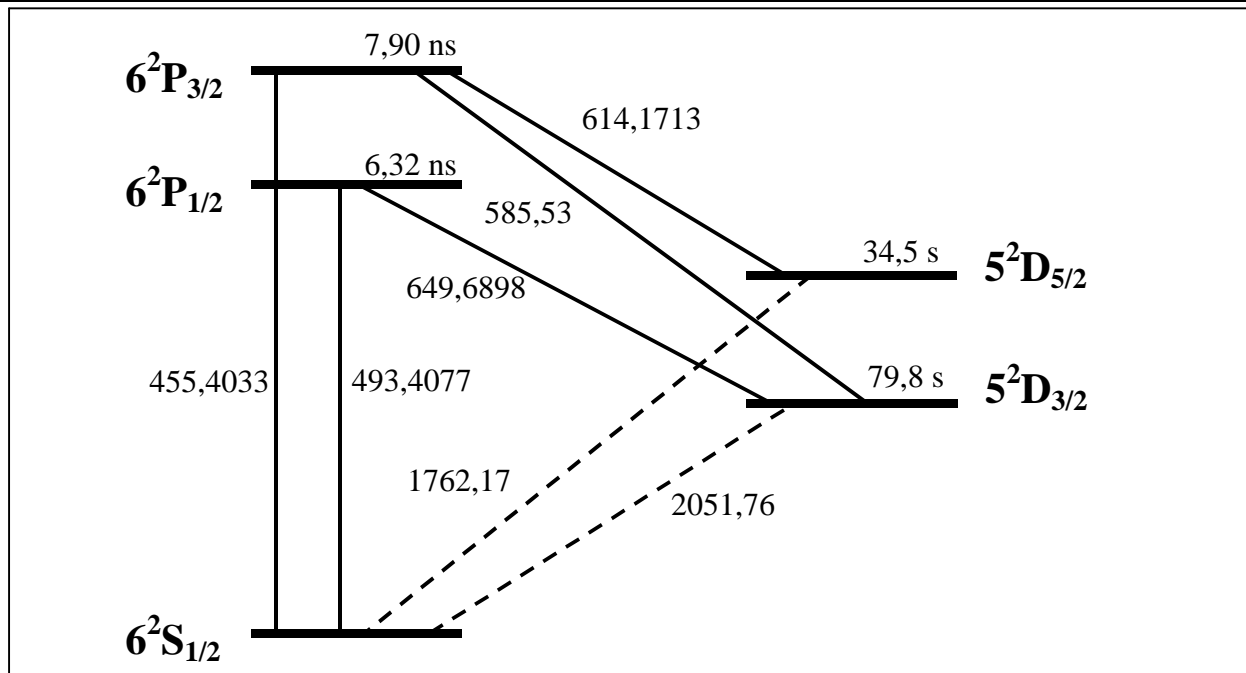


Abb. 4.17: Dargestellt sind die untersten Feinstrukturniveaus des Bariumions mit deren Übergangswellenlängen (in Luft) in nm nach [Karl99]. Aufgrund der Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge sind die 5D-Niveaus metastabil. Im Termschema eingetragen sind die Lebensdauern der Niveaus nach [Pinn95, Yu97, Made90].

Dem Radium-Experiment entsprechend wird mit dem Puls laser der Übergang $S_{1/2}-P_{1/2}$ angeregt, dazu wird statt des Laserfarbstoffs Coumarin 47 Coumarin 307 verwendet (das Lösungsmittel ist in beiden Fällen Methanol).

4.5.2 Erzeugung von Bariumionen

Wie schon beim experimentellen Aufbau beschrieben, wurden zwei verschiedene Ausgangsmaterialien (metallisches Barium und BaCl_2) auf zwei unterschiedlichen Trägerfolien (Platin und Rhenium) getestet. Da die Art der Auftragung des Ausgangsmaterials sich ohnehin nicht mit der Aufbringung von Radium auf die Filamente vergleichen läßt, wurden keine detaillierten Vergleichsmessungen durchgeführt, jedoch die folgenden grundsätzlichen Erfahrungen gemacht: Nach anfänglichen Versuchen mit BaCl_2 wurde später nur noch metallisches Barium verwendet, da sich so die Falle problemloser und schneller füllte und das elektronische Signal auf eine viel größere Anzahl gespeicherter Ionen schließen ließ. Das liegt sicherlich daran, daß sich bei den metallischen Stückchen eine wesentlich größere Menge Barium auf den Filamenten befindet, als bei den eingedampften BaCl_2 -Tropfen. Ein Barium-Stückchen typischer Größe wog 13 ± 2 mg, das sind etwa $6 \cdot 10^{19}$ Atome.

In den insgesamt 2 Jahren des Experimentierens mit mehr als tausend Mal Erzeugen und zeitweise mehreren Stunden kontinuierlichen Erzeugens wurden 3 solcher Stückchen verbraucht, ein weiteres war längere Zeit in Benutzung, bevor das Filament wegen zu hohen Stroms riß.

Was das verwendete Filamentmaterial angeht, wurden folgende Beobachtungen gemacht: Die Platin-Filamente bedürfen natürlich schon aufgrund ihrer niedrigeren Schmelztemperatur wesentlich größerer Vorsicht. Die 0,015 mm dicken und 2 mm breiten Filamente schmolzen in leerem Zustand bei Strömen von ca. 6,5 A, bei Belegung mit BaCl_2 jedoch schon bei 4 bzw. 5 A. Ein Schiffchen-Filament aus dem 4 mm breiten, gefalteten Platin gleicher Dicke überstand leer 7 A problemlos, nach Einfüllen eines Barium-Stückchens schmolz dieses bei 6 A, das Filament leuchtete kurz zuvor an dieser Stelle grün auf und brannte durch¹. Der ganze Vorgang dauerte

¹ Alle diese Beobachtungen wurden im Vakuum bei Restgasdrücken niedriger als 10^{-5} mbar gemacht.

wenige Sekunden. Ähnliche Erfahrungen mit Platin als Trägermaterial waren in unserer Arbeitsgruppe schon früher mit Kalzium [Benz94, Abel90] gemacht wurden. Platin bildet – soweit bekannt [Mass90] – mit den Erdalkalimetallen Be, Ba, Ca niedrigschmelzende Legierungen. Im Gegensatz zu Ca-Pt, wo ein komplettes Phasendiagramm existiert, ist das in Abbildung 4.18 gezeigte Phasendiagramm für Ba-Pt jedoch nur für hohe Pt-Anteile vorhanden, was auf den Bereich eines geschmolzenen Ba-Stückchens nicht zutrifft.

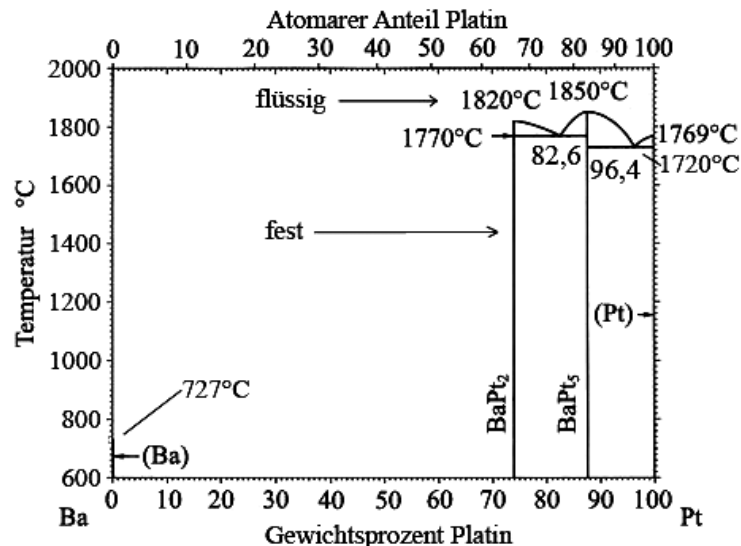


Abb. 4.18: Phasendiagramm der Ba-Pt Legierung (Schmelzpunktkurve bei Variation des Mischungsverhältnisses) nach [Mass90]. Ähnliche Diagramme gibt es auch für die Pt-Erdalkalimetall-Mischungen Pt-Be, Pt-Ca; für Pt-Ra fehlen derartige Daten. Dennoch ist beim Radiumexperiment wegen der geringen Zahl implantierter Ra-Atome ein Schmelzen des Pt-Filaments aufgrund von Legierungsbildung unwahrscheinlich.

Mit dem verwendeten Stromnetzgerät GAN 740814 (Dual Power Supply) und den damit maximal verfügbaren 10 A war es nicht möglich, die Rhenium-Filamente – mit oder ohne Barium – durchzubrennen. Die Filamente hatten eine Dicke von 0,001 inch und ansonsten die gleichen Abmessungen wie die aus Platin. Hierbei konnte gut beobachtet werden, daß das Barium bei einer Filamenttemperatur von 600 ± 100 °C schmilzt, was prinzipiell mit der Schmelztemperatur von Barium von 726 °C verträglich ist¹. Rhenium scheint hier keine Legierung zu bilden – in [Mass90] existieren auch keine derartigen Daten. Im Lauf vieler Erzeugungsvorgänge bildet das Barium im Rheniumschiffchen eine dunkelgraue bis schwarze spröde Masse, die, wieder an die Luft gebracht, wie Barium zu einem hellweißen Pulver zerfällt.

Aufgrund ihrer Robustheit wurden im Experiment fast ausschließlich Re-Filamente eingesetzt, die als Schiffchen mit Barium-Stückchen bei Strömen von 3 bis 7 A betrieben wurden.

Der Nachteil der Re-Filamente, bei hohen Strömen selbst Material abzdampfen und so die Umgebung mit einem grauen Niederschlag zu versehen, wurde angesichts der großen Mengen an Barium-Bedampfungen (siehe Abb. 4.7) in Kauf genommen. Durch den Niederschlag auf dem für den optischen Nachweis genutzten Glasfenster des Vakuumaufbaus verringert sich natürlich die in 4.4.2 berechnete Transmission.

Bei Strömen von typischerweise 6,5 A (Rhenium-Schiffchen) genügt eine Erzeugungsdauer von ca. 10 Sekunden, um die Falle mit Ionen zu füllen, dies geschieht am besten bei einem Puffergasdruck von etwa 10^{-5} mbar N_2 , um die heißen Ionen zu thermalisieren. Bei kontinuierlicher Ionenerzeugung wurden Ströme zwischen 4 und 6 A verwendet.

¹ Der große Fehler resultiert daraus, daß zwischen dem arbeitsgruppeneigenen und einem aus der Arbeitsgruppe von Prof. Huber entliehenen Pyrometer je nach Meßbereich zwischen 80 und 150°C Anzeigendifferenz bestand. Abhängig vom Dichteunterschied flüssigen und festen Bariums ist auch eine Schmelztemperaturniedrigung aufgrund des niedrigen Drucks denkbar.

4.5.3 Elektronischer Nachweis und Massenspektren

Nach dem Abstimmen¹ des in Kapitel 4.4.3 vorgestellten elektronischen Nachweises lassen sich die Massen der während des Erzeugens vom Filament emittierten Ionen bestimmen. Die mit BaCl_2 belegten Filamente lieferten folgende Massen:

Rhenium-Filament:	Masse [amu]	31		83	141	170	261
Platin-Filament:	Masse [amu]	28	43	72	137	176	
	Zuordnung	N_2^+	K^+		Cs^+/Ba^+		

Dabei können N_2^+ , K^+ und Cs^+ oder Ba^+ identifiziert werden. In früheren Barium-Experimenten hat Stahl [Stah94] bei Re-Filamenten die Erzeugung großer Mengen Kaliumionen beobachtet² und den Massenpeak bei 175 amu als BaCl_2^+ gedeutet. Blatt [Blat79] und Schupp [Schu87] stellten bei Pt-Filamenten die störende Erzeugung von Cäsiumionen fest³. Das unbekannte, schwere, negative Molekulation mit der Masse 261 trat bei Re-Filamenten sowohl bei Verwendung von N_2 als auch bei He als Puffergas und auch bei leerem Filament auf. Masse 75 kann eventuell eine Zink-Verunreinigung sein, wie sie bei Rasmussen bei BaCl_2 auftrat.

Die Fehler der Massenmessung liegen bei ca. $\pm 5\%$. Dabei spielen Größen wie Restgasdruck, Ionenzahl, DC-Rampengeschwindigkeit, die Spannungsstabilität des Führungsfeldgenerators und die Feinabstimmung der Schwingkreise eine Rolle. Wie in Abbildung 4.19 am Beispiel eines Barium-Signals zu sehen ist, hat das Nachweissignal eine asymmetrische Linienform, zudem unterscheiden sich die Rampenspannungen, bei denen das Ionensignal auftritt, bei auf- und absteigender Rampe. Beides wird durch Signallaufzeiten und Nachschwingen der Elektronik, die Abstimmung der Schwingkreise, den Tiefpaßfilter des Nachweises, sowie die durch den DC-Rampenoffset nötige AC-Kopplung des Oszilloskops verursacht⁴.

Ritter [Ritt88] hat 1988 in unserer Arbeitsgruppe die Signalformen elektronisch nachgewiesener Europium- und Bleiionen mit Simulationsrechnungen verglichen. Die mit unterschiedlichen Ionenzahlen durchgeführten Messungen und Rechnungen zeigen, daß die Signalform des elektronischen Nachweises in höchstem Maße von der Feinabstimmung des Nachweisschwingkreises abhängt. So kann durch Verstimmen des Drehkondensators in beliebiger Weise ein Absorptions- oder Dispersionssignal erzeugt werden. Letzteres bildet den Allgemeinfall des Nachweissignals.

Während der Ionenerzeugung findet eine Verschiebung des Ionensignals zu niedrigeren DC-Spannungen bzw. höheren Massen statt, dies wird durch die große Zahl der sich in der Falle befindenden Ladungen - Ionen und Elektronen - und durch den Fluß größerer Ladungsmengen über die Fallenelektroden verursacht. Bei hohen Filamentströmen kann ein Absinken der Fallenspannungen über die Spannungsanzeigen des Führungsfeldverstärkers beobachtet werden. Die Elektronen-

¹ Sowohl der Nachweis- als auch der Verstärkerschwingkreis müssen dazu mit den Drehkondensatoren so abgestimmt werden, daß man am nicht demodulierten Ausgang die maximale Signalamplitude der Anregungsfrequenz erhält. Dies gelingt am Besten bei ausgeschalteten Fallenspannungen (eine an den Nachweiseingängen anstelle der Falle angeschlossene Testkapazität in Größe der Fallkapazität erleichtert das erstmalige Abstimmen). Ist der Nachweis soweit grob abgestimmt, werden bei eingeschaltetem Fallensfeld die Drehkondensatoren der an den Zuleitungen angebrachten Siebketten so eingestellt, daß hier die Einflüsse der Fallenwechselspannung minimiert sind. Danach müssen gegebenenfalls die Schwingkreise des Nachweises noch einmal korrigiert werden.

² Abel [Abel90] hat die Abdampfraten von K^+ von Platinfilamenten bei Variation des Heizstroms vermessen.

³ Schupp beobachtete, daß die Cs-Emission bei niedrigen Filamenttemperaturen überwiegt, bei höheren Temperaturen sinkt sie wieder, während die Emission von Ba weiter steigt. Blatt untersuchte die Stärke und den zeitlichen Verlauf des abgedampften Barium-Ionenstroms bei unterschiedlichen Filamentmaterialien.

⁴ Das Rauschen rührt zum großen Teil aus dem Betrieb der Ionen-Getterpumpe her. Noch deutlich größere Störungen verursacht der Einsatz der Turbopumpe. Die Höhe des Nachweissignals ist tatsächlich auch unterschiedlich, je nachdem, ob das Filament - aufgrund der jeweiligen Erdung des Stromnetzgerätes - gegenüber der Kalotte positiv oder negativ ist, oder frei "floated". Das jeweils nicht verwendete Filament wurde zur Verringerung von Feldstörungen immer geerdet.

kanone emittiert, ebenso wie das Pt-Filament, K^+ -Ionen; interessant ist, daß bei Kanonenströmen über 1,45 A die Signale der negativen Molekülonen zum Verschwinden gebracht werden.

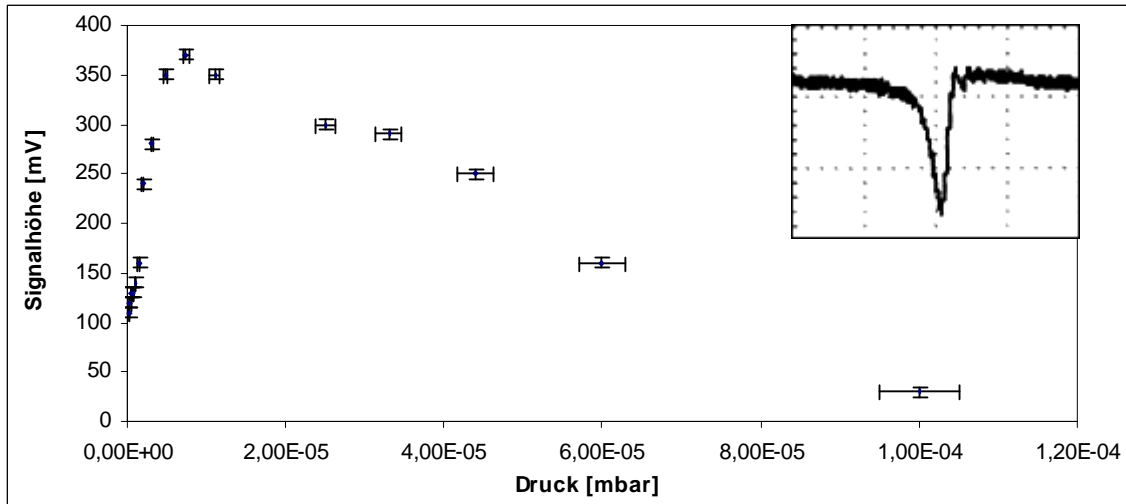


Abb. 4.19: Druckabhängigkeit des elektronischen Nachweissignals einer gespeicherten Ba^+ -Ionenwolke. Beim Durchlaufen des Ionensignals wird die Ionenwolke aufgeheizt, da sie in Resonanz mit der externen Anregung ist. Puffergaskühlen durch das Restgas (N_2) verhindert den Verlust der Ionen. Bei ständig eingeschaltetem elektronischem Nachweis tritt Ionenverlust bei niedrigen Drücken - ab 10^{-7} mbar - ein. Bei höheren Drücken als 10^{-4} mbar genügt wegen der starken Dämpfung durch das Restgas die hier eingestellte Anregungsamplitude nicht mehr, um ein Ionensignal zu sehen.

Ein Versuch mit einem leeren und einem mit einem Ba-Stück belegten Re-Filament zeigte, daß mit beiden die Falle mit Ionen der Masse 136 ± 7 amu gefüllt werden kann. Im Fall des leeren Filaments können dies entsprechend der Beobachtungen von Blatt und Schupp nur Cäsiumionen sein, die wegen der geringen Massenauflösung des elektronischen Nachweises nicht von den Bariumionen

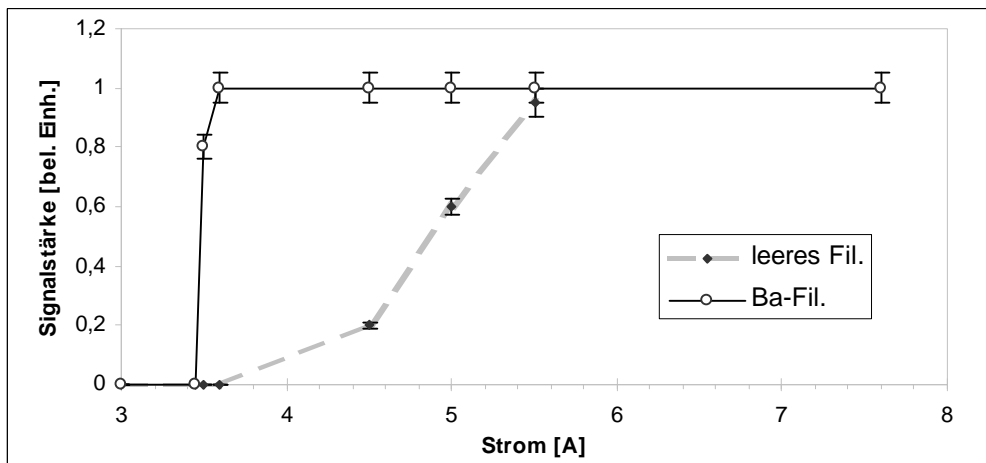


Abb. 4.20: Ionensignal bei Masse 136 ± 7 : Füllung der Falle mit Ionen dieser Masse mittels eines leeren und eines mit Barium gefüllten Filaments.

unterschieden werden können. Bei dem mit Barium belegten Filament füllte sich die Falle zwar bei deutlich niedrigeren Filamenttemperaturen, jedoch war hier keine Aussage über das Verhältnis der Zahl von Barium- und Cäsiumionen möglich. Eine große Zahl miterzeugter Cs^+ -Ionen hätte natürlich eine niedrige Fluoreszenzausbeute beim optischen Nachweis zur Folge.

4.5.4 Optisches Bariumsignal und

Versuch einer Lebensdaueremessung des $5D_{3/2}$ Zustands des Ba^+

Wegen der langen Lebensdauer des $5D_{3/2}$ Niveaus und der relativ hohen Wahrscheinlichkeit, dieses nach dem Anregen des $6P_{1/2}$ Zustands zu bevölkern (das Verzweigungsverhältnis ($6P_{1/2}$ - $6S_{1/2}$) zu ($6P_{1/2}$ - $5D_{3/2}$) beträgt 2,77(30) [Gall67]), ist zum Auffinden der Fluoreszenz ein Mechanismus zum Entleeren des metastabilen Niveaus nötig. Dies kann durch einen Rückpumplaser bei 649,7 nm geschehen oder einfacher durch Stoßrelaxation mittels des ohnehin zur Kühlung der Ionen anwesenden Puffergases. Die Rate der so durch Stöße induzierten Übergänge ist abhängig von der Anzahl Stöße induzierender Teilchen pro Volumen (n), der Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner (v_R) und dem Wirkungsquerschnitt des Übergangs $S_{if}^{\text{Stoß}}$:

$$g_{if}^{\text{Stoß}} = n \langle v_R \cdot S_{if}^{\text{Stoß}} \rangle, \quad \text{mit der Quenchrates } \langle v_R \cdot S_{if}^{\text{Stoß}} \rangle \quad 4.6$$

Hermanni [Herm86, Herm89] hat an Bariumionen die Quenchraten und die Wirkungsquerschnitte für Helium, Neon, Wasserstoff und Stickstoff bestimmt. Wasserstoff und Stickstoff haben danach eine um etwa zwei Größenordnungen höhere Quenchrates. Die für das Experiment entscheidende Messung der Fluoreszenzrate einer Bariumionenwolke in Abhängigkeit vom Puffergasdruck wurde von Drakoudis mit Stickstoff durchgeführt [Drak99].

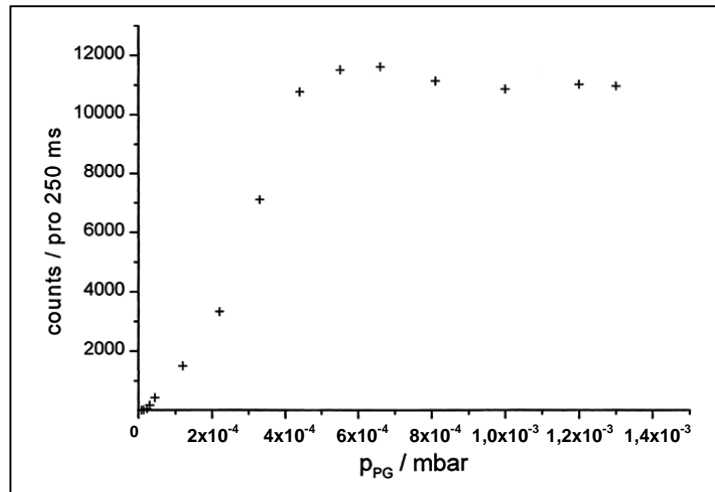


Abb. 4.21: Ba^+ -Fluoreszenz in Abhängigkeit vom Stickstoff-Puffergasdruck [Drak99].

Somit wurden für die Signalsuche Stickstoff-Drücke im Bereich von 10^{-5} bis 10^{-4} mbar eingestellt. Nach Austausch des wenig sensitiven Photomultipliers gegen einen besseren gleichen Typs und einer starken Abschwächung des Lasers mit Hilfe der Polarisatorfolie wurde das optische Barium-Signal gefunden¹. Die Abweichung der Fluoreszenz von der mit Hilfe des Monochromators errechneten Wellenlänge betrug 200 GHz bzw. 0,15 nm.

Mit optimierten Bedingungen (Strahljustage, Streulichtunterdrückung, Einstellung des ADC-Gates) war es möglich, ein deutlich verbessertes optisches Signal zu erhalten.

¹ Dem vorausgegangen war wochenlanges Suchen mit einem Photomultiplier, der an ca. 50 mit cw-Lasern angeregten Ca^+ -Ionen getestet, diese mit einem Signal-zu-Rausch Verhältnis von 1 nachwies, der aber gepulstes Streulicht erst detektierte, wenn dieses mit bloßem Auge problemlos zu beobachten war. Die Sensitivität des neueren Photomultipliers war hier um mehr als eine Größenordnung höher.

Die Energie des Laserpulses genügt auch bei starker Abschwächung zur Anregung der Ionen. Nach G. Werth erhält man bei ansonsten optimierten Bedingungen noch Fluoreszenz, wenn der Laser soweit abgeschwächt ist, daß man ihn mit bloßem Auge nicht mehr sehen kann.

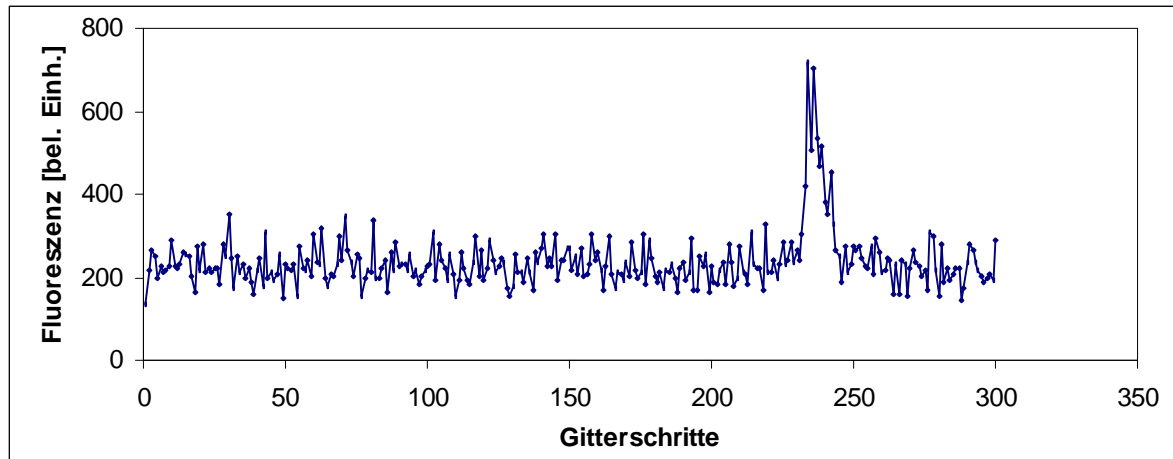


Abb. 4.22: Fluoreszenz einer Barium-Ionenwolke bei einem N_2 -Puffergasdruck von $7,5 \cdot 10^{-5}$ mbar nach Optimierung aller Einstellungen. Der Scanbereich von 300 Gitterschritten entspricht 0,23 nm bzw. 288 GHz. Das bei der Fluoreszenzsuche zuerst erhaltene Signal war um den Faktor 10 schwächer und kaum zu identifizieren.

Verglichen mit früheren Experimenten mit Ba^+ und Pulslasern, z. B. bei [Iffl76, Knab92, Drak99], ist jedoch die Signalstärke ebenso wie das Signal-zu-Rausch Verhältnis deutlich schlechter. Die Ursachen liegen in dem verwendeten Lasersystem bzw. in der bedingten Eignung des optischen Nachweises (Photomultiplier und Elektronik) im Zusammenspiel mit dem Puls laser.

Der verwendete Pump laser (EMG101 MSC, Baujahr 85, 2002 Einstellung des technischen Supports seitens Lambda-Physik) zeigte extreme Schwankungen der Pulsenergie, die bis zum kompletten Aussetzen einzelner Pulse ging. Der Laser hatte zuvor schon an einem anderen Experiment bei der Verwendung als mit KrF bzw. ArF betriebener Excimer-Laser durch hohe elektronische Störungen und starke Pulsschwankungen zu Problemen und zum Scheitern eines Experiments geführt (siehe [Wein90, Fink90, Sche91, Ruth92]). Die Signalverarbeitung des optischen Nachweises zeigte aufgrund der starken elektronischen Störungen im Raum eine Neigung zu Fehlmessungen wie falschem Triggern, Gate-Sprüngen, Mehrfach-Gates etc. und auch der Einsatz von Verstärkern hinter dem Photomultiplier erwies sich hier trotz sorgfältiger Abschirmmaßnahmen als problematisch. Ein weiteres Problem stellt die Tatsache dar, daß die Wellenlänge von 493 nm nicht im Konversionsmaximum von Coumarin 307 liegt. Bei Pulsen niedriger Energie kann es somit passieren, daß der Farbstoff-Laser nur Fluoreszenzlicht, aber keine Laserstrahlung emittiert. Unter Umständen können so durch den Pumpvorgang die Energieschwankungen verstärkt werden.

Ein Einsatz der Methode b) zur Lebensdaueremessung funktioniert nur, sofern die schwankende Laserleistung dennoch zur Sättigung des Übergangs ausreicht. Ist dies nicht der Fall, so müßte die Pulsenergie während der Lebensdaueremessung mit aufgenommen und der Fitkurvenverlauf unter Berücksichtigung der zur Sättigung nötigen Energie Puls für Puls simuliert werden. Dies ist wegen der Komplexität der Formel (Gleichung 4.1 gibt die Fluoreszenz unter vereinfachten Bedingungen an) nur schwer durchführbar. Effektiv könnte hier nur die Pump-Probe Methode bei gleichzeitiger Pulsenergiemessung zu sinnvollen Ergebnissen führen.

Abbildung 4.23 zeigt den "ernüchternden" Versuch einer Lebensdaueremessung. Dabei kann nicht gänzlich ausgeschlossen werden, daß möglicherweise die Wellenlänge des Farbstofflasers während einer Messung nicht konstant blieb. Hier lag jedoch keine Testmöglichkeit vor. Die Messung der Ausbleichung des Laser-Farbstoffs bei ausgefallener Farbstoffpumpe zeigt zumindest, daß bei stabileren Signalen die prinzipielle Aufnahme einer Lichtabnahme wohl möglich gewesen wäre.

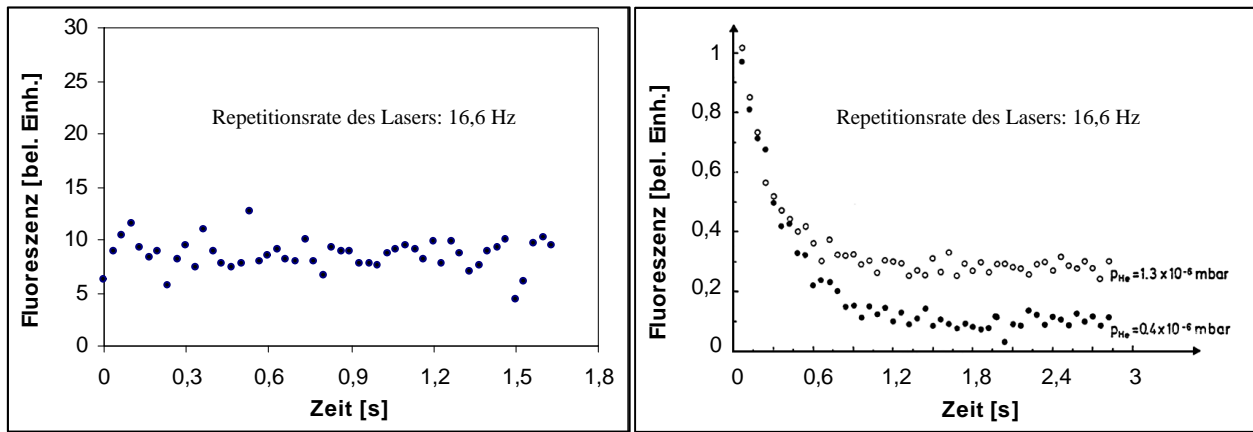


Abb. 4.23: Links: Versuch der Lebensdaueremessung bei einem N_2 -Puffergasdruck von $1,05 \cdot 10^{-6}$ mbar. Gemittelte Fluoreszenz aus 21 Messungen. Zum Vergleich rechts die Messung von Schneider [Schn79] unter ähnlichen Bedingungen.

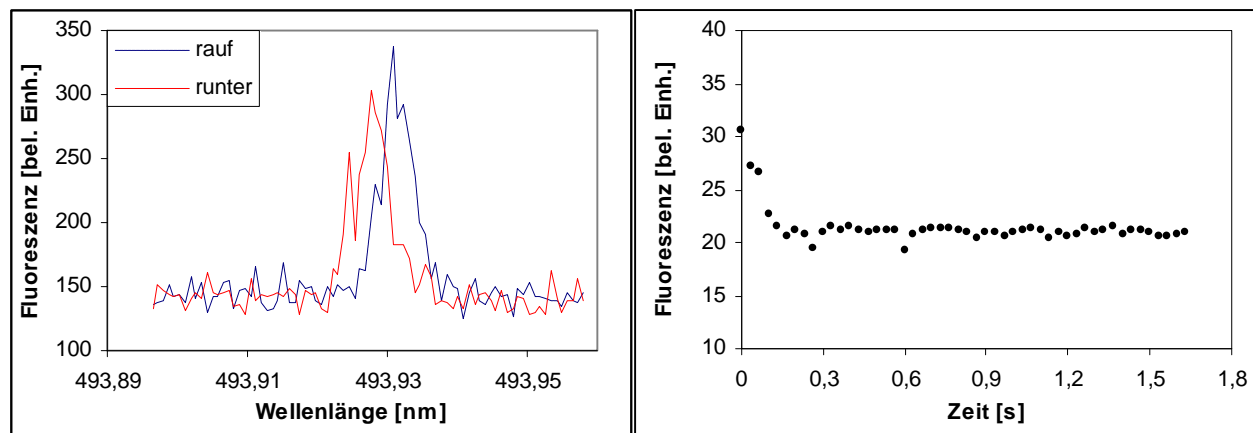


Abb. 4.24: Links Spiel des Lasergitters; Barium-Fluoreszenzsignal bei Gitterscan auf- und ab. Rechts: Messung der Ba^+ -Fluoreszenz bei gleichzeitiger Ausbleichung des Laser-Farbstoffs (bedingt durch einen Defekt der Farbstoffpumpe), was einen Rückgang der Laserleistung bewirkte.

Offen bleibt, ob der Photomultiplier vom Typ Hamamatsu R464 eine gute Wahl war. Frühere Experimente verwendeten Valvo XP 2233B Photomultiplier. Der Nachweis erfolgte in diesem Experiment immer auf dem mit Laserstreulicht verbundenen S-P Übergang, da die Quanteneffizienz des R464 bei 493 nm um etwa den Faktor 40 höher ist, als bei Nachweis auf dem P-D Übergang bei 650 nm (siehe Datenblatt Hamamatsu [Hama98]).

4.6 Experiment mit $^{226}\text{Ra}^+$

Nachdem die Testversuche mit Barium nicht zufriedenstellend verlaufen waren und gezeigt hatten, daß mit dem vorhandenen System die erfolgreiche Durchführung der Lebensdaueremessung an Ra^+ -Ionen unwahrscheinlich war, wurde die Falle mit den Radium enthaltenden Filamenten bestückt, um die Methode der Ionenerzeugung zu testen und – wenn möglich – die Speicherung von Ra^+ elektronisch oder optisch nachzuweisen.

4.6.1 Radium auf Trägerfilamenten

An ISOLDE am CERN können mit einem auf ein Target auftreffenden hochenergetischen Protonenstrahl aus dem Proton-Synchrotron Booster (PSB) durch Massenseparation der Fragmente eine Vielzahl von radioaktiven Nukliden produziert werden. An diesen können Experimente online

durchgeführt werden oder die gewünschten Fragmente an zwei Probenstationen gesammelt werden. In diesem Fall traf der Protonenstrahl auf ein Urancarbid(UC_2)-Target und die Fragmente der Masse 226 wurden auf 2 Filamenten (Re und Pt) implantiert. Bei Verwendung des UC_2 -Targets geben die CERN-Tabellenwerke (ISOLDE-homepage 2006) folgende Ausbeuten an:

$$\begin{aligned}^{226}\text{Ra}: & 2,2 \cdot 10^8 \text{ Atome/s} \\^{226}\text{Fr}: & 7,2 \cdot 10^5 \text{ Atome/s}\end{aligned}$$

Die Daten errechnen sich aus den Tabellenangaben bei Berücksichtigung eines Protonenstroms von 2 mA und können um den Faktor 2-3 (nahe der Stabilität) bzw. um eine Größenordnung (weitab von der Stabilität) von den tatsächlichen Werten abweichen. Daten zur Produktion von ^{226}Th , ^{226}Ac und ^{226}Rn liegen nicht vor.

Damit läge die Gesamtmenge an ^{226}Ra in zwei 8-Stunden Schichten bei $1,3 \cdot 10^{13}$ Atomen. Die insgesamt tatsächlich gesammelte Menge Radium ist nur ungenau bestimmbar. Einen ersten Anhaltspunkt lieferte am CERN die Kalibration eines in den Strahl einfahrbaren Faraday-Cups¹ mittels ^{238}U und der Messung des ^{238}U -Stroms am Strahlrohrende (am Ort des Probenhalters)². Damit ließ sich aus der Messung des Stroms der Masse 226 am Faraday-Cup der Strom an der Probe zu 18 pA d.h. $1,8 \cdot 10^8$ Teilchen/s berechnen. Dies enthält alle produzierten Teilchen der Masse 226 und liegt etwas unter dem für ^{226}Ra tabellierten Wert.

Etwa 2 Stunden nach den ersten 8 Stunden Bestrahlung wurde die Radioaktivität der Probe gemessen: 120 kBq – zu diesem Zeitpunkt ist von den $5 \cdot 10^{12}$ Atomen ^{226}Ra nach Gleichung 4.7 eine Aktivität von 68 Bq zu erwarten und die $2 \cdot 10^{10}$ Atome ^{226}Fr sind bereits zu ^{226}Ra zerfallen und tragen zu keiner meßbaren Radioaktivität mehr bei; die recht hohe Aktivität muß also von anderen Nukliden der Masse 226 stammen. Eine Auflistung der möglicherweise gebildeten Radionuklide mit ihren Zerfallsreihen zeigt Abbildung 4.25.

Für die Aktivität A einer Probe von ursprünglich N_0 Teilchen nach einer Zeit t gilt:

$$A = I \cdot N_0 \cdot e^{-I t} \quad \text{mit} \quad I = \frac{1}{t} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}, \quad 4.7$$

wobei I die Zerfallskonstante, t die Lebensdauer und $T_{1/2}$ die Halbwertszeit bezeichnet. Nach der zweiten Bestrahlung wurde die Aktivität (Energieaufgelöste Gammaspektroskopie) an den einzelnen, offenen Filamenten grob bestimmt. Dabei wurden die Intensitäten dreier Linien gemessen:

90 keV: 5600 Bq (Pt-Filament) bzw. 5000 Bq (Re-Filament)
158 keV: 2800 Bq (Pt-Filament) bzw. 2800 Bq (Re-Filament)
230 keV: 4000 Bq (Pt-Filament) bzw. 4000 Bq (Re-Filament)

Die Aktivität ergibt sich dabei unter Berücksichtigung des Raumwinkels und der Effizienz des Detektors zu:

158 keV: 100 kBq
230 keV: 140 kBq

Diese beiden Linien stammen aus dem Zerfall des ^{226}Ac , womit sich zumindest die Actiniumausbeute mit Hilfe der Zerfallswahrscheinlichkeiten in [Fire96] auf ca. $1 \cdot 10^{11}$ Atome zurückrechnen läßt. Die 90 keV-Linie paßt hier eigentlich gar nicht (siehe auch die Linienangaben in Abb. 4.25), sollte dies die 72 keV-Linie des Ac-Zerfalls sein, müßte sie eigentlich die gleiche Aktivität aufweisen wie die 158 keV-Linie.

¹ Bezeichnung: FC90

² Diese Messung darf aus Strahlenschutzgründen nicht mit den Fragmenten der Masse 226 durchgeführt werden.

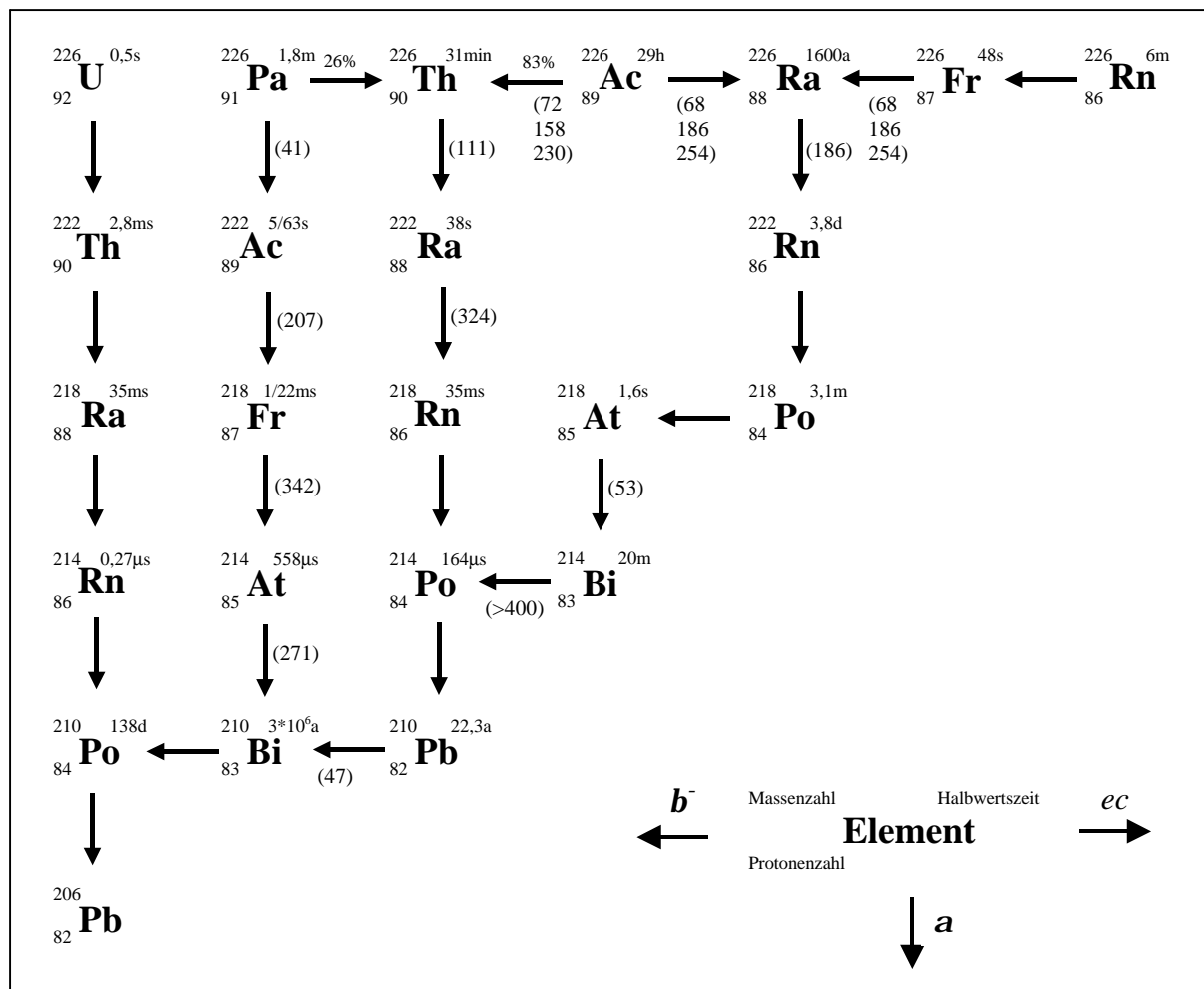


Abb. 4.25: Zerfallsschemata der produzierten Nuklide der Masse 226 mit Angabe von Zerfallsart (a nach unten, b^- nach links, electron capture nach rechts), Halbwertszeit, Verzweungsverhältnis und den stärksten g-Linien der Zerfälle angeregter Tochterkerne nach [Fire96]. Die Werte in Klammern geben die g-Energien in keV an, wo sie fehlen, erfolgt ein Zerfall mit mind. 98% in den Grundzustand. Man sieht, daß die Linie von ^{226}Ra quasi identisch ist mit den Linien von ^{226}Fr und ^{226}Ac (bei electron capture).

Der Strahlenschutz des CERN führte eine ähnliche, detailliertere Messung durch – bei allerdings bereits in einem Vakuumrohr verpackter Probe. Die Vermessung der Linien ca. 30 Stunden nach Bestrahlungsende führte zu keinem Wert für die Zahl der Radiumatome, da die starke Linie des Actinium-Zerfalls die demgegenüber sehr schwache Linie des Radium-Zerfalls überdeckte (siehe auch im Zerfallsschema oben). Die Messung wurde 2 Wochen später wiederholt mit der Angabe der berechneten Aktivitäten zum Zeitpunkt der ersten Messung von nun

$$200 \text{ Bq aus } ^{226}\text{Ra-Zerfall} (N \approx N_0 = 10^{13} \text{ Atome Ra}) \text{ und} \\ 600 \text{ kBq aus } ^{226}\text{Ac-Zerfall} (N_0 = 2 \cdot 10^{11} \text{ Atome Ac})$$

Die beiden zurückgerechneten Ausbeuten für Ac stimmen somit recht gut überein. Über die Ausbeuten anderer möglicher Nuklide mit Masse 226 können jedoch keine Angaben gemacht werden. Die kompletten Gammaspektren des Strahlenschutzes verblieben leider beim CERN, so daß eine genaue Klärung, was in welcher Menge auf das Filament aufgebracht wurde, hier nicht möglich ist.

Eine Messung mit einem Handmonitor ergab eine Woche später – bei Berücksichtigung des Raumwinkels – eine Gesamtaktivität von noch etwas über 2000 Bq. Mehr als 2 Jahre später beim

Einbau der Filamente in die Falle betrug die mittels Handmonitor gemessene Gesamtaktivität der Filamente:

Pt-Filament: ca. 160 Bq

Re-Filament: ca. 140 Bq

Zwar stehen somit insgesamt Messungen der Aktivität der Probe zu 5 verschiedenen Zeitpunkten zur Verfügung, daraus läßt sich aber wegen der größtenteils unbekannten Ausbeuten, der sehr ungenauen Messungen und der fehlenden Gesamtspektren keine definitive Zahl an Radiumatomen auf den Filamenten berechnen. Da in den Zerfallsreihen einige längerlebige Nuklide vorhanden sind (^{226}Rn , ^{210}Pb , ^{226}Pa und ^{210}Po) läßt sich aus diesen auch bei Abwesenheit von ^{226}Ra ein ähnliches Abklingverhalten erzielen. Schon hypothetisch angenommene Rn-Ausbeuten von 10^3 Atomen/s oder ähnliche Ausbeuten für ^{226}U (und damit ^{210}Po) würden die errechnete Zahl an Radiumatomen drastisch reduzieren.

Aus den letztgenannten Gesamtaktivitäten läßt sich lediglich eine Obergrenze für das Pt-Filament von $1,2 \cdot 10^{13}$ und für das Re-Filament von $1,0 \cdot 10^{13}$ Atomen Radium berechnen. Die tatsächliche Zahl kann deutlich niedriger sein.

4.6.2 Die Suche nach einem $^{226}\text{Ra}^+$ -Signal

Nach den Ergebnissen der Tests mit Barium wurden die beiden oben beschriebenen Filamente mit dem Radium in die Apparatur eingebaut, um die Erzeugungsparameter zu testen und – sofern möglich – die Speicherung von Radiumionen nachzuweisen.

Beim Erzeugen mit dem Rhenium-Filament konnten zwar auch recht schnell Ionen der Radium entsprechenden Masse elektronisch nachgewiesen werden, die Polarität der Ionen stellte sich jedoch beim Variieren der Fallenspannungen als negativ heraus, so daß man wegen der umgekehrten Polarität nun mit Gleichung 4.4 eine Masse von ca. 260 amu erhält. Dies entspricht den schon in 4.5.3 beschriebenen unbekannten Molekülionen. Zunächst wurde versucht, ein optisches Fluoreszenzsignal zu erhalten bei Speicherparametern, bei denen sowohl das Molekülion als auch Ra^+ gespeichert werden können. Jedoch auch nachdem die Fallenspannungen derart eingestellt worden waren, daß nur noch Ra^+ gespeichert werden sollte, war kein eindeutiges optisches Signal zu finden.

Mit dem Platin-Filament wurde das störende Molekülion nicht nachgewiesen. Allerdings konnte auch hier kein Radium-Signal identifiziert werden (elektronische Signale waren bei ca. 30 und ca. 140 amu zu beobachten, entsprechend den auf S. 69 gemachten Angaben) und das Filament brannte schließlich bei einem Heizstrom von 5 A durch.

Insgesamt waren die Ströme bei beiden Filamenten mit 2 A beginnend von Erzeugungsversuch zu Erzeugungsversuch sukzessive erhöht worden. Beim Rhenium-Filament wurde dies bis 6,7 A weitergeführt¹. Die Experimente wurden zunächst durchgeführt bei Helium-Puffergasdrücken von 10^{-5} bis 10^{-6} mbar und danach – auch wenn hier laut Gmelin [Gmel28] die Gefahr einer Reaktion mit Radium besteht - bei Stickstoff-Puffergasdrücken von $2 \cdot 10^{-4}$ bis $3 \cdot 10^{-5}$ mbar. Der Scanbereich um die mittels Monochromatoreichung (siehe Kapitel 4.4.2) errechnete Lasereinstellung für die S-P Übergangswellenlänge betrug 2 nm, was bei einer Abschätzung der Ungenauigkeit aus der Eichung und aus der Kenntnis der Übergangswellenlänge von insgesamt maximal 0,5 nm völlig ausreichend sein sollte.

Nachdem es auf diese Weise nicht gelungen war, ein Signal von Radiumionen zu beobachten, sollte zuletzt noch getestet werden, ob während des Erzeugungsprozesses überhaupt in größerer Menge Radiumatome vom Filament abgedampft werden. Einen solchen Test hat auch Iffländer bei seiner Suche nach Fluoreszenz bei Barium durchgeführt [Iffl76]. Für diesen Versuch stand nur noch das Rheniumfilament zur Verfügung, bei dem dies wegen der geringen Wahrscheinlichkeit der

¹ Die mit dem Pyrometer bestimmte Filamenttemperatur betrug hier 1050 ± 100 °C

Oberflächenionisation aber auch den meisten Sinn ergibt. Die Wellenlänge des Lasers wurde bei Beibehaltung des Farbstoffs Coumarin 47 auf die des atomaren S-P Übergangs, d. h. auf 482,6 nm [Moor71¹], eingestellt und bei den Scans um etwa 2,4 nm variiert. Auch hier konnte keine Fluoreszenz beobachtet werden, allerdings liegt die Wellenlänge auch am oberen Ende des mit Coumarin 47 möglichen Bereichs² (436-486 nm, Maximum bei 453 nm, nach [Brac00]). Bei Coumarin 307 ergäben sich jedoch ähnliche Schwierigkeiten am unteren Ende des Wellenlängenbereichs (478-547 nm, Maximum bei 504 nm, nach [Brac00]).

Zum Abschluß des Experiments wurden mittels Handmonitor noch einmal die Aktivitäten der Filamente bestimmt:

Rest des Pt-Filaments:	5 Bq (entspricht dem Untergrund)
Re-Filament:	28 Bq

Der zu den vorangegangenen Messungen fehlende Rest an Aktivität läßt sich hauptsächlich auf dem Ring und der oberen Kalotte der Falle nachweisen. Radium ist somit von den Filamenten abgedampft worden.

4.6.3 Mögliche Gründe für das Scheitern des Experiments

1) Es wurden keine Ra^+ -Ionen erzeugt

Auch wenn die oben beschriebene Abnahme an Radioaktivität auf den Filamenten zeigt, daß hier entsprechende Teilchen erfolgreich abgedampft wurden, bleibt natürlich die Möglichkeit, daß hier kein Ra oder Ra^+ sondern eine Radiumverbindung in die Falle emittiert wurde. Aufgrund der Reaktivität von Radium könnte es schon in der Zeit, in der die Filamente der Luft ausgesetzt waren³, zur Bildung einer solchen Verbindung gekommen sein. Eine Reaktion mit Stickstoff (nach [Gmel28] führt die Reaktion von Ra mit Stickstoff zu einem schwarzen Pulver) kann hier nicht ausgeschlossen werden. Aufgrund der schon erwähnten früheren erfolgreichen Experimente mit ^{131}Ba und ^{133}Ba , (die an der Luft auch reagieren,) erscheint dieser Grund jedoch unwahrscheinlich.

2) Erzeugte Ra^+ -Ionen wurden nicht gespeichert

Daß überhaupt keine Ra^+ -Ionen gespeichert worden wären, ist höchst unwahrscheinlich, da während der Suche nach Fluoreszenz auch die Speicherspannungen variiert wurden, so daß ausgeschlossen werden kann, daß Radiumionen während aller Versuche wegen nichtlinearer Instabilitäten der Falle nicht gespeichert worden wären. Funktionsstörungen durch Nichtanliegen von Fallenspannungen an den Elektroden können ebenso ausgeschlossen werden, da N_2^+ , Cs^+ und das negative Molekülion elektronisch nachgewiesen wurden. Allerdings ist bei der verwendeten Erzeugungsmethode denkbar, daß nur ein sehr geringer Anteil der vom Filament abgedampften Teilchen von der Falle eingefangen wird. Schmeling erreichte zwar Einfangeffizienzen bis zu 2% [Blat79a], Schupp erzielte jedoch nur 10^{-5} bis 10^{-6} [Schu87]. Die von mir bei den Testmessungen gemachte Erfahrung, daß bei Verwendung eines Bariumstückchens die Falle deutlich besser zu

¹ die Werte aus [Moor71] beruhen auf einem 1934 von Russel durchgeführten Vergleich der Daten von Rasmussen [Rasm34a] mit theoretischen Modellen und dem Bariumspektrum [Russ34].

² Experimentell wurde ein Ende des "Lasens" bei 484,3 nm festgestellt, ab dieser Wellenlänge emittiert der Laser nur noch diffuses blaues Licht. Im verwendeten Wellenlängenbereich von 481,7 bis 484,1 nm fällt die Intensität des Laserpunktes innerhalb des Lichtflecks stark ab.

³ Bei der Entnahme aus dem Strahlrohr am CERN, bei der dortigen Messung der Aktivität, bei Ankunft in Mainz und beim Einbau in die Falle waren die Filamente jeweils kurzzeitig der Luft ausgesetzt. Während der restlichen Zeit befanden sie sich in einem mit einer Turbopumpe evakuierten Behälter.

füllen war, als mit den mit gelöstem BaCl_2 beträufelten Filamenten, sowie die starken Bedampfungen der Elektroden aufgrund nicht gespeicherten Bariums (s. Abb. 4.7) bestätigen die schlechte Einfangeffizienz. Es ist daher wahrscheinlich, daß Ra^+ nicht in den Mengen gespeichert wurde, wie es bei den Barium-Testexperimenten der Fall war.

3) Gespeicherte Ra^+ -Ionen werden nicht detektiert

Daß mit dem elektronischen Nachweis kein Signal einer Radium-Ionenwolke detektiert wurde, zeigt, daß die Falle auf keinen Fall vollständig gefüllt war. Nimmt man an, daß die Fläche des Nachweissignals nach [Stah94] proportional¹ zur Ionenanzahl ist, und ferner, daß das maximale Signal einer Fallenfüllung etwa 10^6 Ionen entspricht, so muß eine Ionenwolke mindestens 10^4 Ionen enthalten, um mit dem verwendeten Nachweis überhaupt detektiert zu werden. Die Zahl der gespeicherten Radiumionen muß demnach geringer gewesen sein.

Bei Betrachtung des optischen Signals von Ba^+ (siehe Abb. 4.22) bei vollständig gefüllter Falle² wird klar, daß auch der optische Nachweis nicht sensitiv genug war, um eine derart kleine Zahl von Ionen gepulst zu detektieren. Es ist nicht auszuschließen, daß die bei früheren Experimenten verwendeten Photomultiplier³ vom Typ Valvo XP 2233B hier besser geeignet gewesen wären. Allerdings führten die vom Pumplaser verursachten starken elektronischen Störungen auf der Signalleitung vom Photomultiplier zum ADC auch zu einem schlechten Signal-zu-Rausch Verhältnis. In dem letzten vorangegangenen Bariumexperiment in der Arbeitsgruppe erhielten Tommaseo und Drakoudis 1999 [Tomm97, Drak99] mit anderem Pumplaser und anderem Photomultiplier genügend gute Signal-zu-Rausch Verhältnisse.

4.6.4 Zusammenfassung und Ausblick

Prinzipiell hätte das angestrebte Ziel, die Lebensdauer der metastabilen Niveaus des $^{226}\text{Ra}^+$ zu messen, mit den zur Verfügung stehenden Geräten funktionieren können. Aufgrund von Problemen des Lasersystems und eventuell des Nachweises in Verbindung mit der Möglichkeit, daß Ra^+ in nicht ausreichender Menge von den Filamenten erzeugt werden kann, ist dies jedoch nicht gelungen.

Sollte das Experiment in ähnlicher Form wiederaufgenommen werden, wäre es sinnvoll, einige Verbesserungen durchzuführen:

- Will man bei der Erzeugungsmethode bei den bestrahlten Filamenten bleiben, so ließen sich die bei dem Rhenium-Filament sehr störenden Verunreinigungen durch vorheriges, ausreichendes Ausheizen verringern. Wieviel "ausreichend" ist, läßt sich am besten ermitteln, wenn das Ausheizen mit in der Falle eingebauten Filamenten bei eingeschaltetem elektronischem Nachweis durchgeführt wird. Auf jeden Fall muß der Ausheizstrom höher sein, als der später für das Erzeugen geplante Strom⁴.
- Als Erzeugungsmethode erscheint die von Scielzo [Scie06] vielversprechend, d.h. die Verwendung eines Ofens mit Radium aus der chemischen Abtrennung aus einer Thoriumquelle bei zusätzlicher Verwendung einer zur Ionisierung eingesetzten Elektronen-

¹ Bei großen Ionenzahlen ist dies nach Stahl jedoch nicht mehr ohne weiteres gültig.

² Der Nachweis dazu wird in Kapitel 5.1 erbracht.

³ Photomultiplier dieses Typs standen allerdings diesem Experiment nicht zur Verfügung.

⁴ Mit "ausreichend" ausgeheizten Filamenten kam es leider zu keiner Ra-Sammlung mehr. Die Sammlung 2004 scheiterte am Defekt des Urancarbid-Targets und 2005 war vor dem Abbau des Experiments kein Sammlungstermin mehr möglich.

kanone. Dies hätte jedoch eine viel höhere zu handhabende Radioaktivität zur Folge. Das gleiche gilt für das von Rasmussen 1933 in einer Menge von "ein Paar Milligramm" verwendete RaCl_2 , das entsprechend den Versuchen mit BaCl_2 eingesetzt werden könnte. Versolato [Vers10] speichert direkt die hinter Beschleuniger, Target und Massenseparator produzierten, ionisierten Radiumatome.

- Bei Beibehaltung der Pulslasermethode, die hier angewendet wurde, sollte der Excimerlaser wegen der hohen Pulsschwankungen nicht mehr als Stickstofflaser betrieben werden. Bei Betrieb mit ArF oder KrF wäre es möglich – und zu testen – ob die von Ruths [Ruth92] angegebenen geringeren Schwankungen erreicht werden können. Dabei sind natürlich eventuell andere als die hier verwendeten Laserfarbstoffe nötig. Die hohen elektronischen Störungen blieben aber auf jeden Fall; daher wäre der Einsatz eines anderen Pumpasers von Vorteil.
- Bei Umstieg auf eine der Meßmethoden mit cw-Lasern ist der Nachweis weniger oder auch einzelner Ionen möglich. Dies wäre eine große Verbesserung, da zumindest bei der Erzeugungsmethode mit den Filamenten nur relativ wenig Radium zur Verfügung steht. Insgesamt ist hier jedoch ein höherer apparativer Aufwand vonnöten. Der nötige Rückpumplaser (Diode und Gitter) ist jedoch schon vorhanden.
- Der ADC und die übrige auf NIM-Einschüben basierende Elektronik ist sehr anfällig gegen elektronische Störungen. Eine Weiterverwendung ist nur bei Beseitigung der Störungsquelle (Pumplaser) sinnvoll.

Weitere, vertiefende Details für die Pulslasermethode finden sich in den Arbeiten von Blatt, Schneider und Knab [Blat79, Schn79, Knab92].

5 Experimente mit Ba^+ -Ionenwolken mittels eines frequenzverdoppelten MOPA-Lasersystems

"Laß uns das mal schnell ausprobieren..."¹

Alexandros Drakoudis

Der Einsatz eines Lasers aus einem früheren Bariumexperiment mit fester, für den S-P-Übergang bei Ba^+ geeigneter Wellenlänge war lediglich als kurzer Test gedacht. In diesem sollte die Frage geklärt werden, ob das in Kapitel 4 gezeigte Fluoreszenzsignal möglicherweise wegen einer zu großen Anzahl miterzeugter und mitgespeicherter Cäsiumionen so niedrig ausfiel (siehe Kapitel 4.5.3). Ein Einsatz dieses Lasers für das Ra^+ -Experiment selbst war aufgrund der Wellenlänge nicht möglich. Das mit dem MOPA-Lasersystem erhaltene starke Fluoreszenzsignal zeigte, daß für das in Kapitel 4 geplante Experiment prinzipiell genügend Ba^+ -Ionen gespeichert wurden, d.h. die dortige niedrige Signalhöhe durch technische Probleme des Lasers und des Nachweises bedingt waren. Weiteres Ziel der experimentellen Arbeit wurde nun die Untersuchung der Speichereigenschaften puffergas-gekühlter Ionenwolken bei Variation des Drucks. Diese hier erstmals durchgeführten Messungen erfolgten an zwei unterschiedlichen Apparaturen: In diesem Kapitel werden die Arbeiten an der bereits beschriebenen und nun auf den MOPA-Laser umgerüsteten Apparatur vorgestellt.

5.1 Experimenteller Aufbau

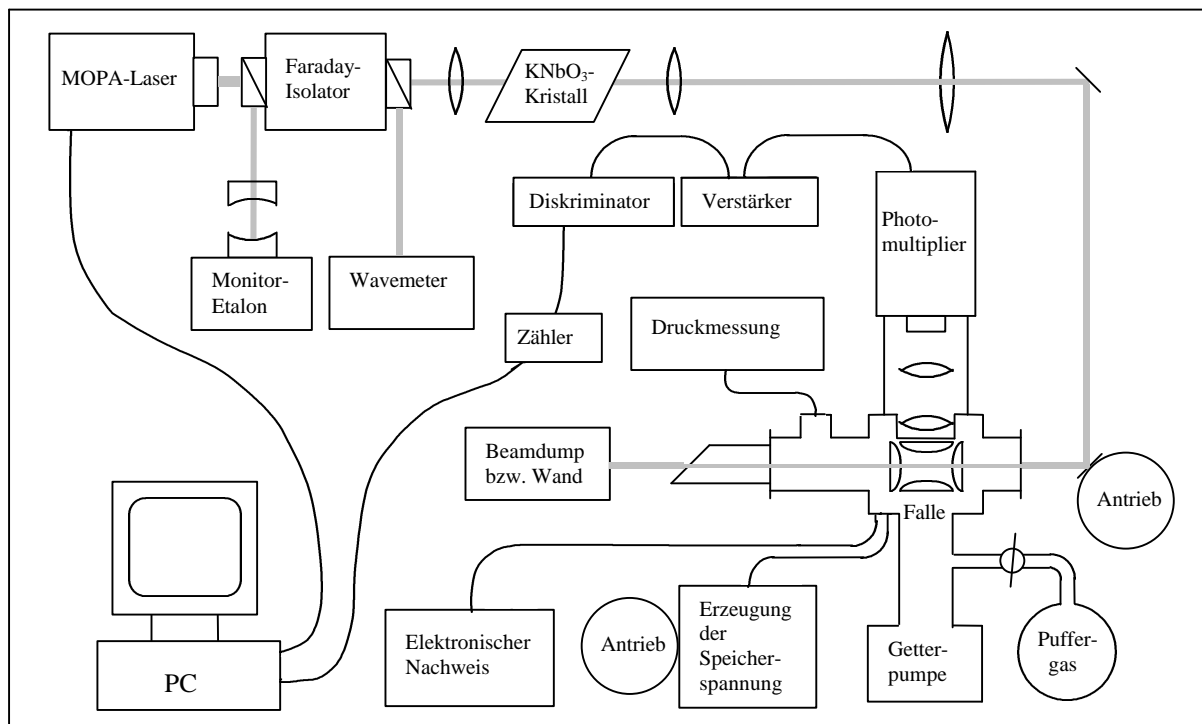


Abb. 5.1: Schematische Darstellung des Gesamtaufbaus. Im Vergleich zu Abbildung 4.4 wurden folgende Änderungen vorgenommen: das PulsLasersystem wurde durch einen kontinuierlichen, frequenzverdoppelten MOPA-Laser ersetzt, dadurch wird die vorher eingesetzte Triggerelektronik überflüssig und der Nachweis geschieht kontinuierlich durch single photon counting. Die Laserwellenlänge wird nun über ein Michelson-Interferometer bestimmt. Weitere Änderungen sind die elektrische Steuerung der Fallenwechselfeldamplitude sowie die elektrische Verstellung des Einkoppelspiegels.

¹ In den zwei Stunden vor einer Geburtstagsfeier in der Arbeitsgruppe wurde ein 5 Jahre lang nicht mehr verwendeter MOPA-Laser aus dem Keller geholt, angeschlossen, neu justiert und damit phänomenalerweise sofort beim ersten Versuch ein starkes Ionensignal gesehen.

Die größte Änderung zu dem im vorherigen Kapitel beschriebenen Aufbau besteht im Austausch des gepulsten gegen ein kontinuierliches Lasersystem bei gleicher Wellenlänge. Der Tausch des Lasers bedingt auch eine Änderung des Detektionsschemas. Der optische Nachweis erfolgt nun durch "single photon counting", d.h. die kontinuierlich auftretenden Fluoreszenzphotonen erzeugen Photomultiplierpulse, die verstärkt und über einen Diskriminator und Zähler pro Zeiteinheit aufgenommen werden. Durch den Einsatz des cw-Lasers (cw: continuous wave) ist es möglich, bei der Wellenlängenmessung den relativ ungenauen Monochromator durch ein Michelson-Interferometer zu ersetzen. Zusätzliche Änderungen wurden für einzelne Meßreihen eingebaut: So wurde der Einkoppelspiegel mit einem Motorantrieb versehen, um die Ionenwolke räumlich abtasten zu können. Zur kontinuierlichen Variation der Fallenparameter wurde zeitweise ein anderer Führungsfeldverstärker verwendet, der mit einer Steuerung für die Fallenwechselspannungsamplitude versehen wurde. Der Vakuumaufbau mit Falle, Ionenerzeugung¹, elektronischem und optischem Nachweis (Optik und Photomultiplier) wurden beibehalten, so daß im Folgenden nur die Änderungen zum vorherigen Aufbau genauer beschrieben werden.

5.1.1 Laser

Zur Anregung des S-P Übergangs bei Barium bei 493 nm wurde ein kommerzieller MOPA-Laser SDL 5762 aus einem früheren Bariumexperiment verwendet. Dieser war zur Erzeugung der nötigen Wellenlänge von Tommaseo und Drakoudis frequenzverdoppelt worden [Tomm97, Drak99]. Ein optischer Isolator zur Reduzierung von Feedback, ein Monitor-Etalon sowie ein Wavemeter auf Basis eines Michelson Interferometers komplettieren den Laseraufbau.

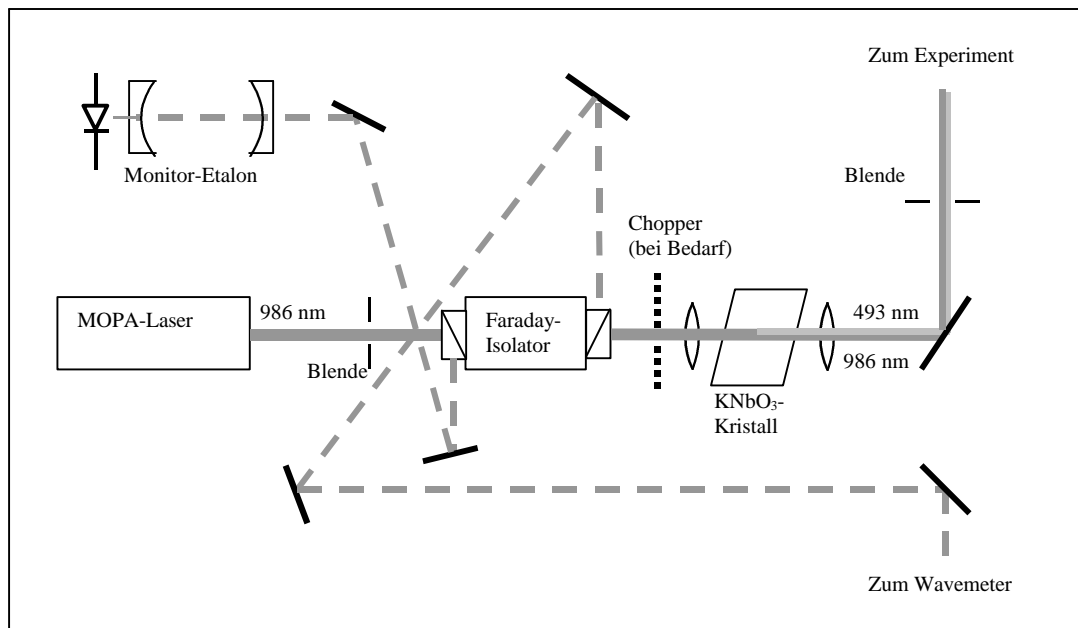


Abb. 5.2: Aufbau des Lasersystems

Die Wellenlänge des Lasers ist mittels eines ILX Lightwave LDC 3900 Laserdioden Controllers über Dioden- und Verstärkerstrom sowie über die Lasertemperatur einstellbar. Eine grobe Einstellung der Laserwellenlänge ist mit Hilfe der Lasertemperatur in einem Bereich von etwa 0,5 nm möglich. Zum feineren Durchfahren der Wellenlänge ist der Diodenstrom vom PC über das Turbo-Pascal-Programm, das auch die Datenaufnahme des Experiments durchführt, ansteuerbar. Eine mögliche, noch feinere Einstellung der Wellenlänge über den Verstärkerstrom ist nicht sinnvoll, da sich hierbei auch die Laserleistung stark und vor allem nichtlinear ändert [Tomm97]. Die obigen

¹ Die Erzeugung der Ba^+ -Ionen erfolgte ausschließlich mit dem zu einem "Schiffchen" gebogenen Rhenium-Filament mit Barium-Stückchen.

Laserparameter müssen jedoch so gewählt werden, daß der Laser einmodig läuft. Die hier üblicherweise angewendete Änderung der Wellenlänge durch Variation des Diodenstroms verläuft nicht völlig linear, was jedoch bei den durchgeführten Experimenten wenig störte; die aufgenommenen optischen Resonanzen können leicht verzerrt sein. Die Laserleistung nimmt bei Erhöhung des Diodenstroms leicht zu, weswegen bei den Messungen – je nach Effektivität der Streulichtunterdrückung - eine Erhöhung des Streulichtuntergrunds auftrat.

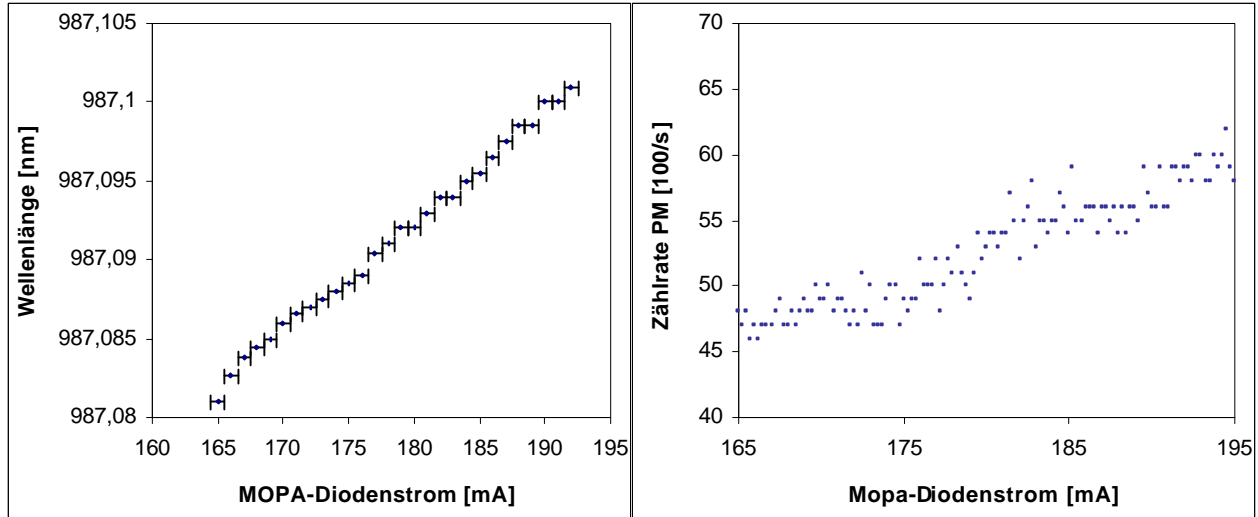


Abb. 5.3: Veränderung der Laserwellenlänge über den Diodenstrom des MOPA: Nichtlinearität der Wellenlängenänderung links und rechts dabei ansteigender Untergrund durch die sich vergrößernde Laserleistung bei nicht optimaler Streulichtunterdrückung.

Die Ausgangsleistung des MOPA beträgt nach Herstellerangaben 1 W bei 986,8 nm, hinter der Frequenzverdopplung stehen noch etwa 400 μ W [Tomm97], bei 493 nm zur Verfügung¹. Dazu ist es nötig, außer dem Winkel auch die Temperatur des Kaliumniobat-Verdopplungskristalls mit Hilfe eines Peltierelements zu optimieren. Aufgrund stark unterschiedlicher früherer Angaben wurde die Temperaturabhängigkeit der Konversionseffizienz mit einer zuvor geeichten Meßanordnung aus einem Pt100 Temperaturfühler samt Multimeter aufgenommen. Die optimale Konversion wird bei 24,2°C erreicht (siehe Abb. 5.4), was den Wert von Drakoudis bestätigt.

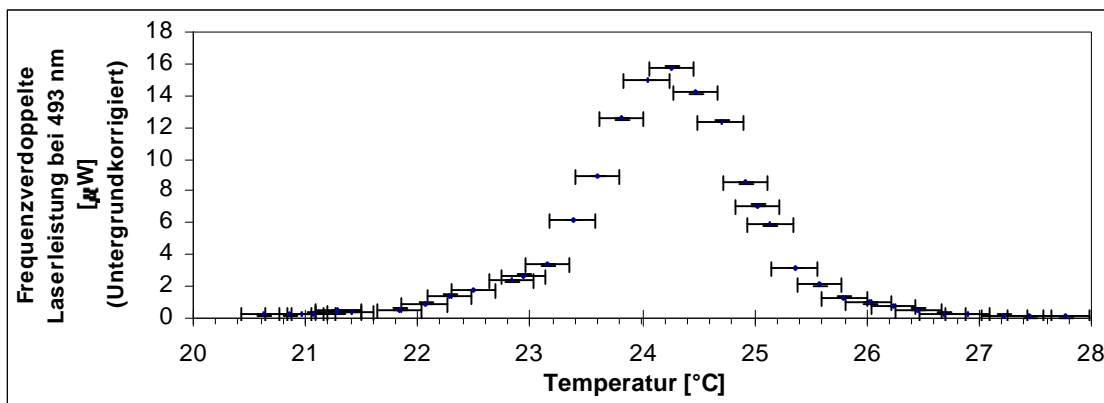


Abb. 5.4: Leistung der frequenzverdoppelten Laserstrahlung bei Variation der KNbO_3 -Kristalltemperatur.

Zwischen MOPA-Laser und Frequenzverdopplung ist zur Reduzierung von optischem Feedback ein Isolator FR 985/5 der Firma Gsänger aufgebaut. Das verbleibende Feedback war dennoch so störend, daß alle optischen Aufbauten im Strahlengang leicht dejustiert werden mußten. Auch das Feedback von der Isolatoroberfläche selbst störte den Laser im Betrieb; als Abhilfe wurde zwischen

¹ Bei der Leistungsmessung müssen verdoppelter und unverdoppelter Strahl voneinander getrennt werden, die Verluste durch Reflexion am dazu verwendeten Prisma wurden nicht berücksichtigt.

Laser und Isolator eine kleine Blende eingesetzt. Nach diesen Maßnahmen zur Feedback-Reduzierung betrug die Laserleistung noch maximal 40 μW bei 493 nm. Die vom Isolator ausgekoppelten Teilstrahlen wurden zur Wellenlängenmessung des unverdoppelten Strahls sowie zur Kontrolle des Lasers durch das Monitor-Etalon verwendet.

Die Wellenlängenmessung erfolgte mit einem am Institut für Quantenoptik der Universität Hannover im Rahmen einer Diplomarbeit entwickelten Michelson-Interferometer mit einer relativen Genauigkeit von mindestens $1 \cdot 10^{-6}$. Zur Kontrolle, ob der Laser "single-mode" oder "multi-mode" läuft, wurde auf einem Oszilloskop das von einem Melles Griot optical spectrum analyzer mit Cavity gelieferte Signal beobachtet.

Die Linienbreite des MOPA-Lasers wird vom Hersteller mit 1 MHz angegeben, entsprechend beträgt die des frequenzverdoppelten Strahls 2 MHz.

5.1.2 Optischer Nachweis

Der optische Nachweis erfolgt weiterhin auf dem auch für die Anregung genutzten S-P Übergang bei 493 nm. Alle optischen Teile blieben dabei zum in Kapitel 4.4.2 beschriebenen Aufbau unverändert. Da die Laserstrahlung nun kontinuierlich erfolgt, und damit auch die Emission von Fluoreszenzphotonen durch die gespeicherten Ionen, wird nun das "single photon counting" genannte Nachweisverfahren angewandt, d.h. es wird die Zahl der Fluoreszenzphotonen pro Zeiteinheit bestimmt. Dazu werden die typischerweise zwischen 3 und 20 mV hohen Photomultiplierpulse mit Hilfe eines Fast Amplifier/Discriminator 7011 verstärkt und in TTL-Pulse umgewandelt. Diese werden an einen externen Zähler vom Typ HP 5245L sowie an die Vielkanalzählerkarte im PC weitergeleitet, wo sie vom Turbo-Pascal Programm ausgelesen werden.

5.1.3 Erzeugung des Speicherfelds

Für Messungen, bei denen der elektronische Nachweis (siehe Kapitel 4.4.3) eingesetzt werden sollte, wurde weiterhin der schon vorher beschriebene Führungsfeldverstärker GAF 760907-3 verwendet, da sich hier die DC-Spannung verzerrungsfrei rampen ließ. Dieser eignet sich jedoch nicht für Experimente, bei denen die Fallenspannung kontinuierlich verändert werden soll. Für die Beobachtung von nichtlinearen Resonanzen wurde daher der Führungsfeldverstärker GHF 961028 (vom Versuch "Paulfalle" aus dem Fortgeschrittenen-Praktikum II) verwendet. Bei diesem kann über den Drehknopf die Spannungsamplitude kontinuierlich und linear verändert werden. Eine Ansteuerung der Spannung über den PC wie im Praktikum (siehe Kapitel 6) ist hier leider nicht möglich gewesen, da die Fallenspannung bei der Kommunikation zwischen PC und Führungsfeldverstärker kurzzeitig auf Null zusammenbricht. Somit mußte der Drehknopf der Spannungseinstellung kontrolliert variiert werden, was durch Einsatz und Umbau der weiter unten beschriebenen elektrischen Spiegelverstellung realisiert wurde.

5.1.4 Elektrische Spiegelverstellung

Zur Messung der räumlichen Dichteverteilung der Ionenwolke muß die Position des Laserstrahls in horizontaler oder vertikaler Richtung variiert werden. Schaaf und Schmeling [Scha79, Schm80, Scha81] haben dies manuell bei sehr großen Ionenwolken durchgeführt. Um eine deutlich feinere und schnellere Abtastung zu erhalten, wurde am Einkoppelspiegel ein Motorantrieb installiert. Zum Einsatz kam ein Toshiba DGM-043-2A Motor mit Getriebe, der mit Hilfe eines großen Treibrads weiter untersetzt wurde und die Justageschraube des Spiegelhalters antrieb. Durch Variation der Motorspannung (DC-Power Supply: Veltron Mod. 405) ließ sich die Drehgeschwindigkeit an der Justageschraube bis auf 210 Sekunden pro Umdrehung herabsetzen. Der Betrieb des Motors führte

durch die Funkenbildung an den Kohlen je nach Drehrichtung und -geschwindigkeit zu einer Störung des Photomultipliersignals, so daß eine Entstörung nötig wurde (siehe Abbildung 5.5). Zur Messung von Dichteverteilungen der Ionenwolke wurde der Beamdump hinter dem Auskoppelfenster entfernt und Start- und Endposition des Laserpunkts auf der Wand hinter der Apparatur abgelesen. Daraus errechnet sich der in der Falle vom Laser überstrichene Bereich.

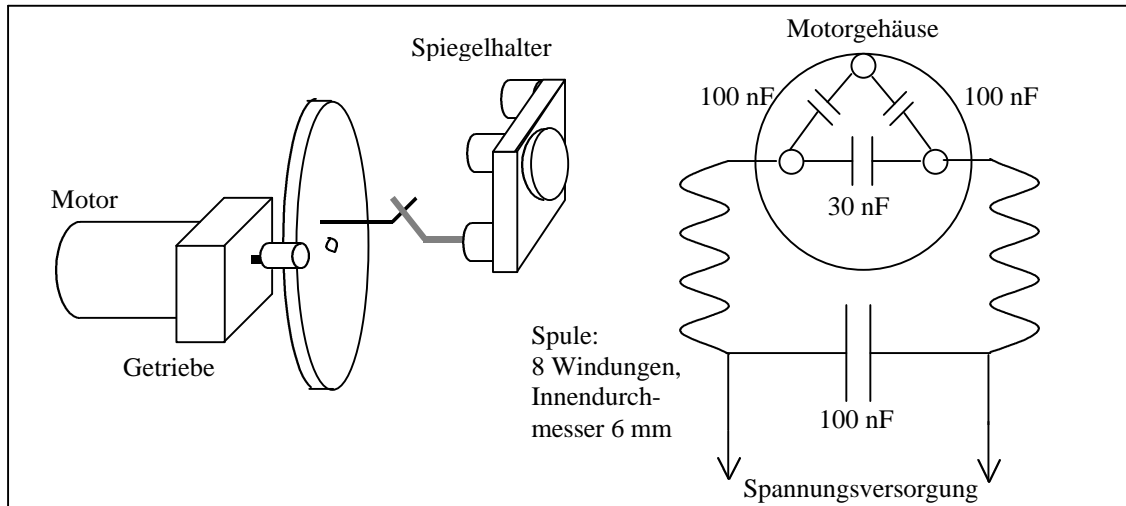


Abb. 5.5: Elektrische Spiegelverstellung: Schema und Entstörung des Motors.

5.2 Fluoreszenzsignal der Ba⁺-Ionen

Mit dem beschriebenen experimentellen Aufbau war es möglich, in der Falle gespeicherte Ba⁺-Ionenwolken mit gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis optisch zu detektieren. Abbildung 5.6 zeigt das Fluoreszenzsignal der Bariumionen.

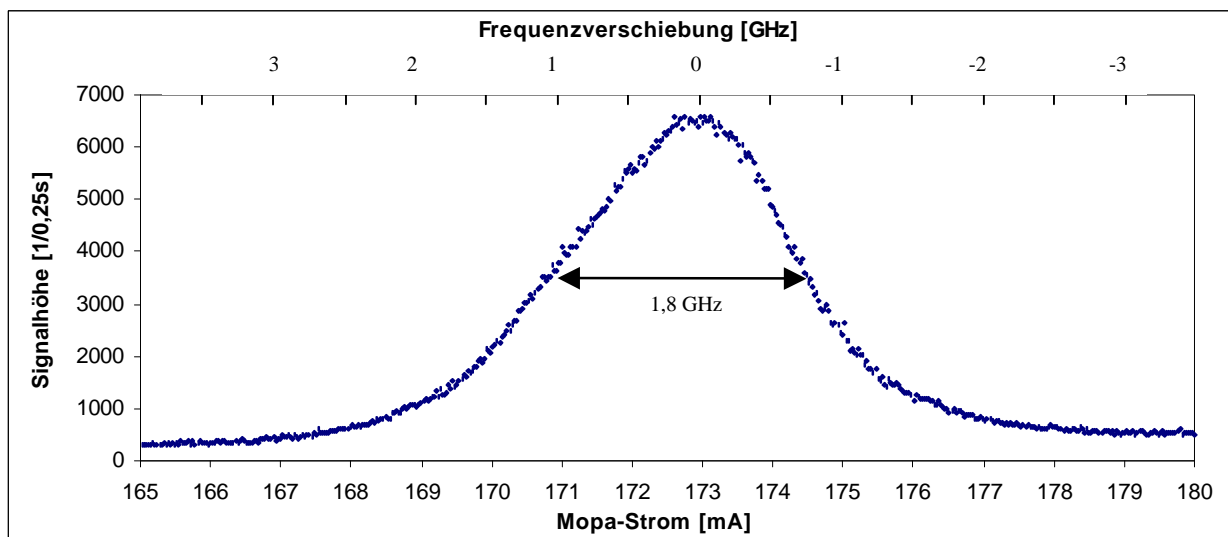


Abb. 5.6: Fluoreszenz gespeicherter Ba⁺-Ionen. Der Laserscan über 7,5 GHz zeigt ein Signal-zu-Rausch-Verhältnis von etwa 100. Laserbedingt sind die Verzerrung und der Anstieg des Streulichtuntergrunds.

Das Fluoreszenzsignal entspricht einer Gaußkurve und somit dem durch Dopplereffekt verbreiterten Linienprofil

$$I(\mathbf{w}) = I_0 \cdot \frac{c}{\mathbf{w}_0} \sqrt{\frac{m}{2p k_B T}} \cdot \exp\left(-\frac{mc^2}{2k_B T} \left(\frac{\mathbf{w} - \mathbf{w}_0}{\mathbf{w}_0}\right)^2\right) \quad 5.1$$

mit I_0 der Gesamtintensität, c der Lichtgeschwindigkeit, \mathbf{w}_0 der Resonanzfrequenz, k_B der Boltzmannkonstante sowie m der atomaren Masse und T der durch die Temperatur ausgedrückten kinetischen Energie des Ions. Die natürliche Linienbreite des betrachteten S-P Übergangs beträgt 25 MHz.

Aus der Dopplerbreite des Fluoreszenzsignals läßt sich somit die Temperatur der Ionenwolke bestimmen. Die Breite des abgebildeten Signals von 1,8 GHz entspricht einer Temperatur von 2400 K. Dies ist ein typischer Wert für puffergasgekühlte Ionenwolken in Paulfallen. Daß die Temperatur der Ionen höher liegt, als die des Puffergases von etwa 300 K, liegt an der außerhalb des Fallenmittelpunkts stattfindenden Aufheizung der Ionenwolke durch das Fallenwechselfeld. Die Iontemperatur läßt sich reduzieren, indem man die Zahl der Ionen verringert, da sich dann ein kleinerer Anteil der Ionen weit vom Fallenmittelpunkt entfernt befindet. Auch eine niedrigere Fallenwechselsamplituden U_0 bzw. ein kleinerer Fallenparameter q führen zu einer niedrigeren Temperatur der Ionen. Bei Werten von q zwischen 0,42 und 0,66 (bei $a \approx 0$) und unterschiedlichen Ionenzahlen wurden Temperaturen zwischen 600 K und 2500 K bestimmt.

Bei Variation der Laserleistung durch Abschwächung wurden im Bereich der mit diesem Laser-aufbau möglichen Leistung keine Anzeichen einer Sättigung des Fluoreszenzsignals festgestellt.

Von Abbildung 5.6 abweichende, zunächst beobachtete Signalformen ließen sich auf Störungen durch optische Rückkopplung sowie auf multimode-Betrieb des Lasers zurückführen (Abb. 5.7).

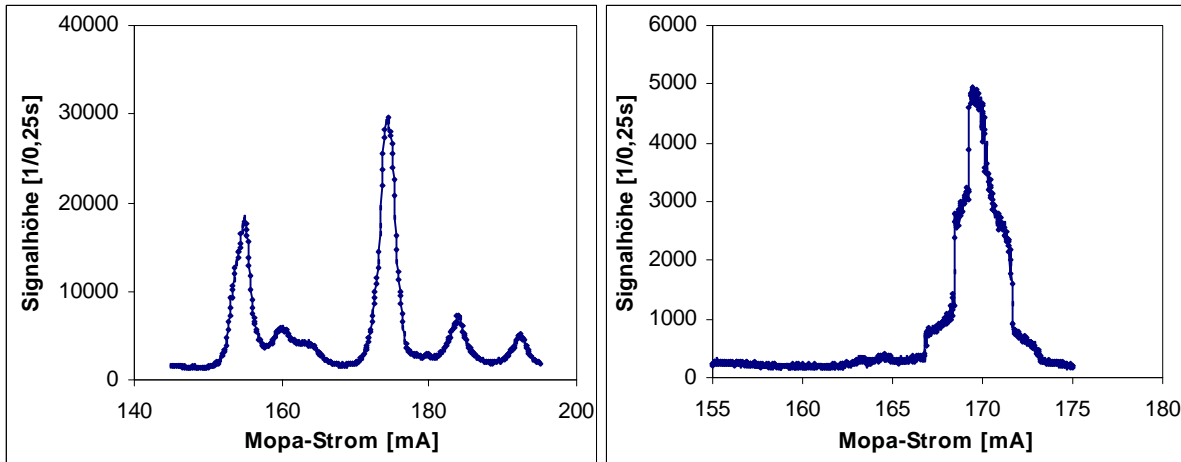


Abb. 5.7: Signalform bei multimode-Betrieb des Lasers links sowie bei starkem optischem Feedback rechts.

Barium liegt in der Falle im natürlichen Isotopengemisch vor, somit wäre bei der Linienbreite des Lasers von 2 MHz und den kleinsten erreichten Dopplerbreiten von ca. 900 MHz eine Beobachtung der Hyperfeinstruktur der Isotope 135 und 137 wie bei Iffländer [Iffl77] von der Auflösung her möglich gewesen; da hier jedoch ein cw-Laser verwendet wurde (Iffländer: Puls laser) tritt bei den Isotopen mit Hyperfeinstruktur optisches Pumpen auf, so daß die Signalhöhe der Hyperfeinlinien relativ zur Fluoreszenz von $^{138}\text{Ba}^+$ so gering ist, daß man sie in Abb. 5.6 nicht sieht. Die Isotopieverschiebung im Bereich von ca. 200 MHz bei $^{136}\text{Ba}^+$ und $^{134}\text{Ba}^+$ [Wend84] ist dagegen von der Auflösung her nicht detektierbar gewesen.

Ein Vergleich der Signalstärke mit früheren Experimenten [Drak99, Tomm97], die ebenfalls sowohl den MOPA-Laser als auch einen (anderen) Puls laseraufbau verwendeten, zeigt, daß für das Lebensdauerexperiment mit gepulster optischer Detektion prinzipiell genügend Bariumionen in der

Falle waren. Dabei kann ein größerer Anteil an Cs-Ionen zwar nicht ausgeschlossen werden (s. Kapitel 4.5.3), er fällt aber als Grund für die niedrige Signalhöhe bei den Experimenten mit Puls laser aus¹.

Mit Hilfe des MOPA-Lasersystems wurden nun einige – als Einzelexperiment schon bekannte – Messungen an Ba^+ -Ionenwolken systematisch durchgeführt, wobei hier erstmals speziell der Einfluß des Puffergasdrucks auf die Meßergebnisse untersucht werden sollte. Es wurde die Speicherzeit der Ionen in der Falle bestimmt, nichtlineare Resonanzen im Speicherbereich beobachtet sowie die räumliche Verteilung der Ionen in der Falle aufgenommen.

5.3 Nichtlineare Resonanzen

Zur Aufnahme von Schnitten durch den Speicherbereich, d.h. der Aufnahme des Fluoreszenzlichts bei Variation von V_0 bzw. q wurde der Führungsfeldverstärker GHF 961028 entsprechend 5.1.3 am Poti der Wechselspannungsamplitude mit dem in 5.1.4 beschriebenen Antrieb versehen. Bei derartigen Messungen wurden Start- und Endspannung jeweils notiert und durch Blocken des Laserstrahls kenntlich gemacht (siehe Abbildung 5.8). Die Spannungen dazwischen ergeben sich unter der Annahme einer gleichmäßigen Drehbewegung und so zeitlich linearen Spannungsänderung. In der Nachbearbeitung der Daten wurde nur der Bereich zwischen den "Blockstellen" berücksichtigt und entsprechend skaliert.

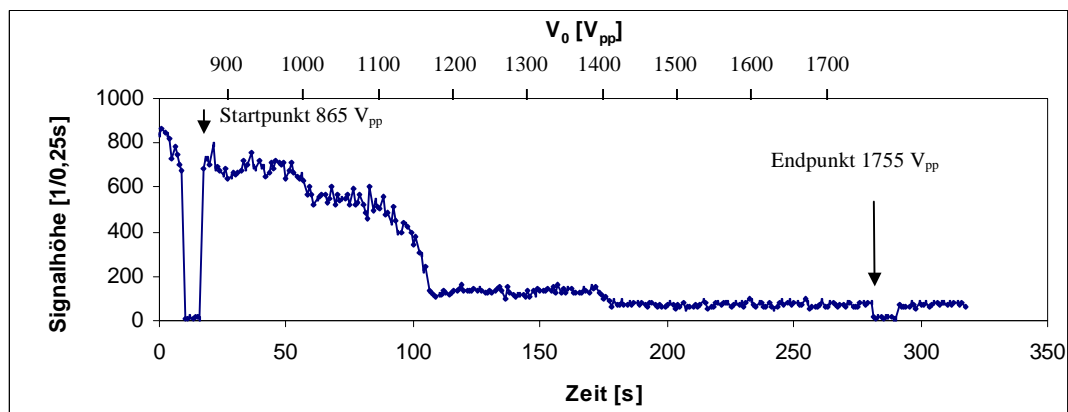


Abb. 5.8: Rohdaten der bei den Schnitten durch das Stabilitätsdiagramm eingesetzten Meßmethode: Blocken des Laserstrahls kennzeichnet den Start- und Endpunkt der Messung, dazwischen wird V_0 kontinuierlich geändert, während jede Sekunde die Zahl der Fluoreszenzphotonen aufgenommen wird.

Bei den in Abbildung 5.9 gezeigten Schnitten durch das Speicherdiagramm wurde jeweils vorher der Puffergasdruck durch Öffnen eines Nadelventils bei laufender Getterpumpe eingestellt. Die Falle wurde dann bei einem q -Wert guter Speicherung mit Ionen gefüllt und dann q vergrößert bzw. verkleinert, so daß jedes Einzeldiagramm aus zwei Messungen zusammengesetzt ist. Deutlich ist zu erkennen, daß sich bei Veränderung des Puffergasdrucks sowohl die Signalhöhe, als auch die Ausprägung des q -Schnittes ändert. Resonanzen sind z.B. bei 1150 V und 1400 V durch den dort stattfindenden Ionenverlust erkennbar. Die Form der Fluoreszenzkurve – bei niedrigem Druck mehr oder weniger konstant abfallend und bei hohem Druck treppenförmig – ist auf die Dämpfungseigenschaften des Puffergases (Puffergaskühlen) zurückzuführen: bei niedrigem Druck ist die Speicherzeit in der Falle kürzer (siehe 5.4) und es werden auch beim Scan über schwache Resonanzen Ionen verloren. Bei hohem Druck wird die Ionenbewegung stärker gedämpft, wodurch sich die Speicherzeit verlängert und nur bei starken Resonanzen Ionenverlust auftritt. Die Änderung der maximalen Signalhöhe ist durch die Zentrierung der Ionenwolke durch das Puffergaskühlen und durch die druckabhängige Quenchrage (siehe Abb. 4.21) bedingt. Die Messungen sind jedoch recht ungenau

¹ Vergleiche dazu die Signal-zu-Rausch-Verhältnisse von Abb. 4.22 und Abb. 5.6

und lassen daher keine quantitativen Schlüsse zu. So ist in Abb. 5.10 auch nicht feststellbar, ob und wie sich bei einer Resonanz deren Breite mit der Dämpfung durch Puffergas ändert.

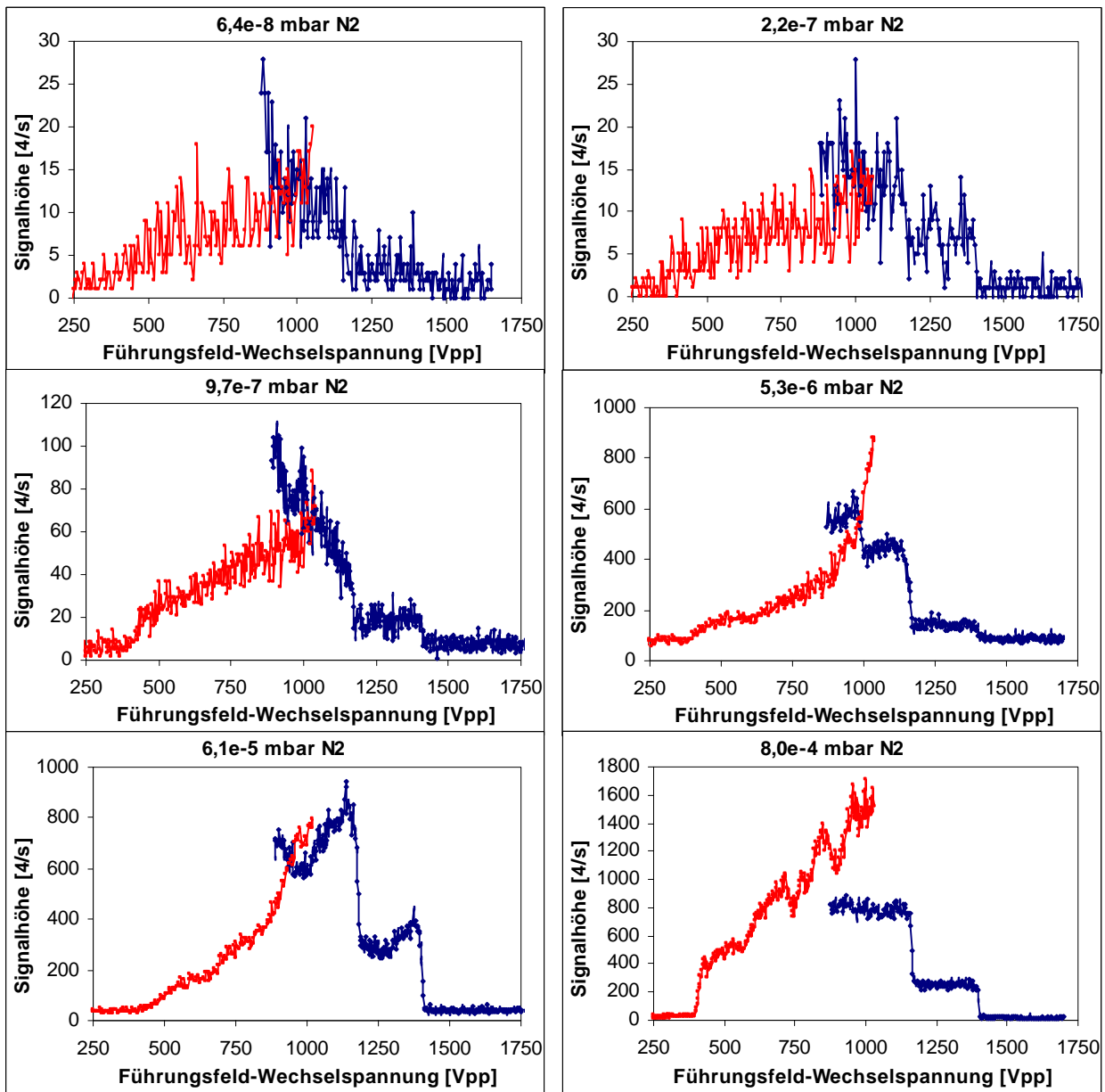


Abb. 5.9: Schnitte durch das Stabilitätsdiagramm bei $a = 0$ bei unterschiedlichen N_2 -Puffergasdrücken. Jedes Diagramm besteht aus zwei Messungen, die jeweils etwa in der Mitte des Speicherbereichs bei voller Falle begonnen wurden.

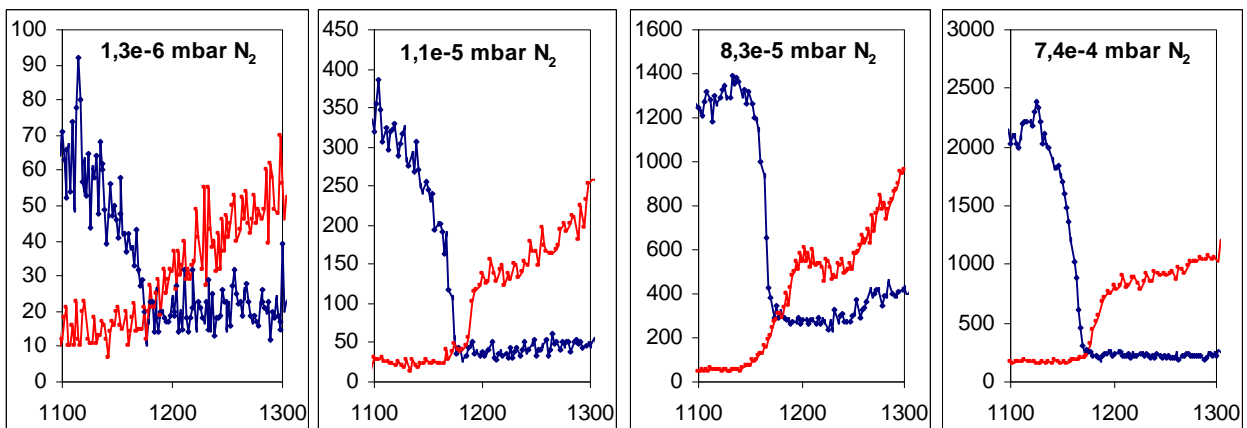


Abb. 5.10: Einzelne Resonanz. Eine Abhängigkeit der Resonanzbreite vom N_2 -Druck ist hier nicht bestimmbar.

Mit Hilfe mehrerer q -Schnitte bei jeweils unterschiedlichem a kann grob der Speicherbereich bestimmt sowie die Lage der Resonanzen mit der Theorie (s. Kapitel 2.3.3) verglichen werden. Eine eindeutige Zuordnung der Resonanzordnung ist nur bedingt möglich, wie in Abbildung 5.11 deutlich wird. Während dieser Messungen wurden permanent Ionen erzeugt.

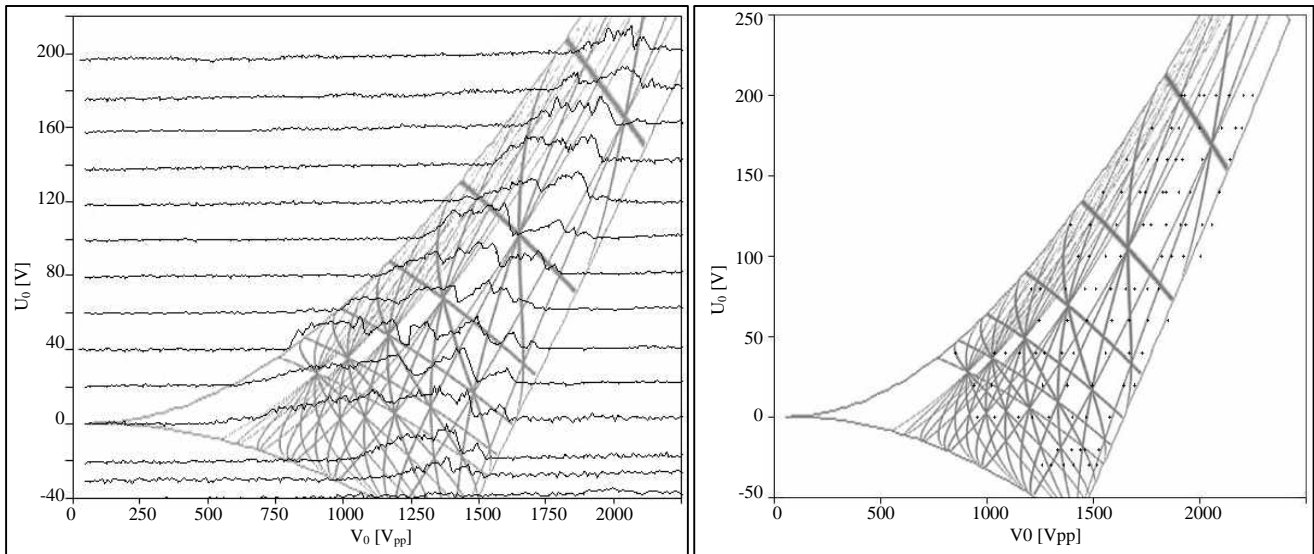


Abb. 5.11:Links: Die bei jeweils konstantem a und variiertem q durchgeführten Messungen der Fluoreszenzintensität ergeben ein grobes Bild des Speicherbereichs, in dem nichtlineare Resonanzen deutlich erkennbar sind. Rechts: Darstellung der Resonanzen als Punkte. Grau hinterlegt ist jeweils das Abb. 2.15 entsprechende theoretische U - V -Diagramm mit nichtlinearen Resonanzen (nach [Söll03]).

Beim kontinuierlichen Erzeugen wird allerdings das Fallenfeld durch eine große Zahl emittierter Elektronen und die am Filament anliegende Spannung verzerrt. Um die Auswirkungen einer lokalen Spannung (z.B. einem Kontaktpotential vergleichbar) auf den Speicherbereich zu untersuchen,

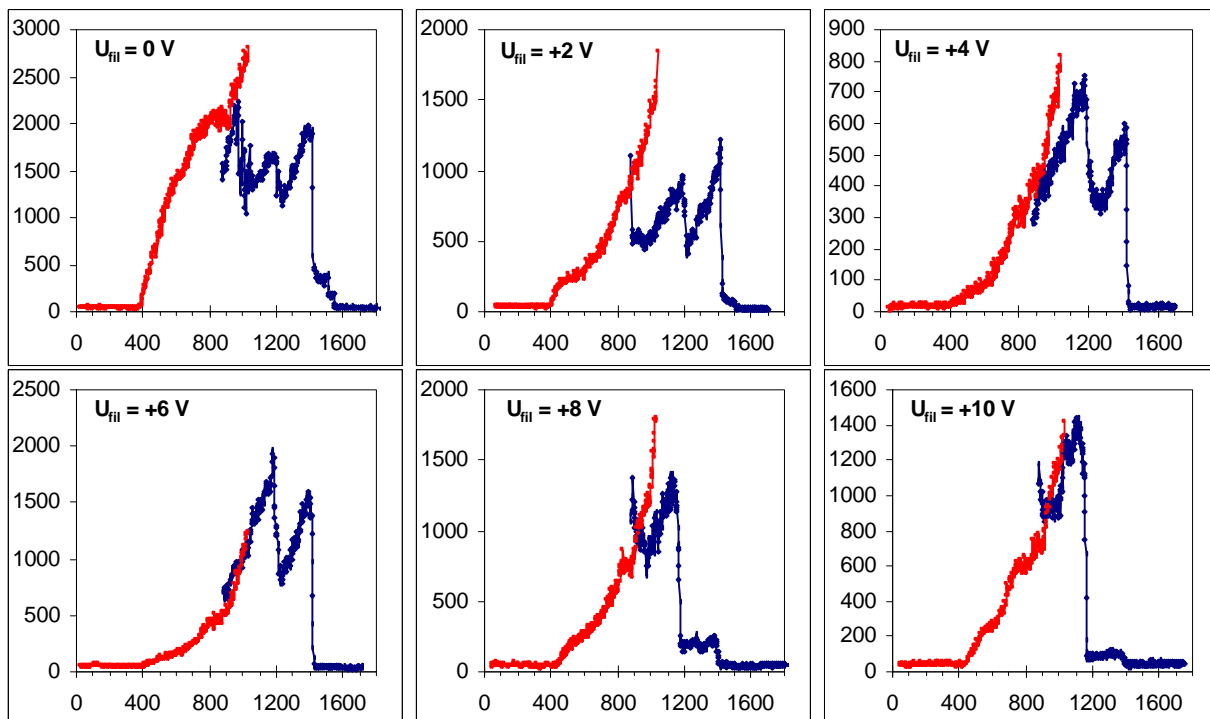


Abb. 5.12:Effekt einer Zusatzspannung an einem der Filamente. Während eine kontinuierliche Verschiebung der Resonanzen nicht beobachtet wird, ist die Verkleinerung des Speicherbereichs deutlich erkennbar. Aufgetragen ist bei $a = 0$ und einem Stickstoff-Puffergasdruck von $2 \cdot 10^{-4}$ mbar jeweils die Signalhöhe [4/s] gegen die Fallenwechselspannung [V_{pp}].

wurde an eines der Filamente eine Zusatzspannung angelegt (siehe Abb. 5.12). Durch die zusätzliche Spannung wird der Speicherbereich verkleinert. Ein ähnlicher Effekt läßt sich bei dem Anlegen einer Zusatzspannung an eine Kalotte beobachten. Bei negativer Spannung ist eine Vergrößerung des Speicherbereichs zu erkennen, dies könnte jedoch gerade eine Kompensation der Effekte der permanenten Ionenerzeugung bedeuten. Dawson und Whetten haben 1968 empirisch bei der Untersuchung von Massenspektren mittels einer Paulfalle festgestellt, daß die Aufspaltung der Massenpeaks, die von durch die Spitze des Speicherbereichs laufenden nichtlinearen Resonanzen verursacht wird, bei Anlegen einer zusätzlichen Spannung ("Bias"-Spannung) an eine Kalotte verschwindet [Daws68b]. Dies passiert, da sich dadurch das Speicherdiagramm relativ zu den Resonanzen verschiebt, so daß die Speicherbereichsspitze frei wird von starken Resonanzen [Daws69a]. Da Dawson und Whetten die Verschiebung qualitativ und nur für einen kleinen Bereich des Speicherdiagramms angeben, wurde hier eine Messung mit 10 % Biasspannung (das heißt, $U_{\text{bias}} = 0,1 \cdot U_0$) durchgeführt und mit dem normalen Speicherbereich aus Abb. 5.11 verglichen. Die

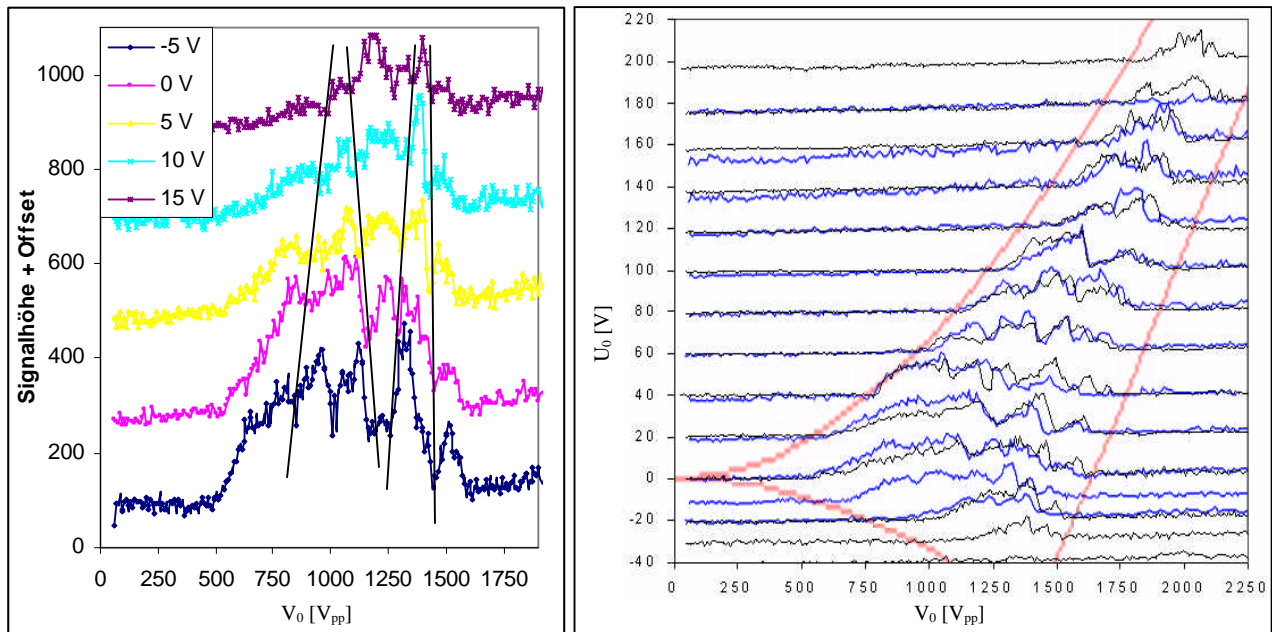


Abb. 5.13: Effekt einer Biasspannung an einer der Kalotten. Links: Auswirkung verschiedener DC-Zusatzspannungen auf den Schnitt durch das Speicherdiagramm bei $a = 0$: Verkleinerung des Speicherbereichs und Verschiebung der stärksten Resonanzen. Rechts: Verschiebung des Speicherbereichs samt Resonanzen bei 10 % Biasspannung (blau); zum Vergleich grau der Speicherbereich aus Abb. 5.11.

Messung bestätigt prinzipiell die von Dawson und Whetten beschriebene Verschiebung bei $\beta_r = 0$, allerdings scheint sich auch die Stabilitätsbereichsgrenze bei $\beta_r = 1$ zu verschieben. Die Verschiebung und Stauchung des stabilen Bereichs ähnelt dem von Drakoudis für lineare Paulfallen berechneten Einfluß der axialen Speicherspannung auf das Stabilitätsdiagramm [Drak05]. Eine systematische Verschiebung der Resonanzen nach [Daws69a] ist hier – eventuell auch durch die zu geringe Auflösung und zu kleine Anzahl von Schnitten durch das Diagramm bedingt – nicht gut zu erkennen. Der entscheidende Effekt auf die Diagrammspitze (in Abb. 5.13 die obere) ist wegen des schon vorher einsetzenden starken Ionenverlusts nicht nachprüfbar.

5.4 Speicherzeit

Der Puffergasdruck beeinflusst die Speicherzeit der Ionen in der Falle maßgeblich. Bei geringen Drücken ist die Dämpfung der Ionenbewegung durch das Puffergas gering, so daß die Speicherzeiten großer Ionenwolken relativ kurz sind. Bei Erhöhung des Drucks wird das Puffergaskühlen effektiver und die Speicherzeiten länger. Dabei nimmt aber auch der Ionenverlust durch Ladungsaustausch zwischen Ionen und Puffergas zu, so daß bei hohen Drücken die Speicher-

zeit wieder kürzer wird. Dabei hängt die Speicherzeit ab von der Masse der Ionen und Puffergasmoleküle sowie von den Wirkungsquerschnitten für Stöße und Ladungsaustauschreaktionen. Weiterhin hängt die Speicherzeit von den Speicherparametern a und q der Falle und der Nähe dieser Parameter zu den Speicherbereichsgrenzen oder nichtlinearen Resonanzen ab (siehe [Alhe97]).

Iffländer [Iffl76] beobachtete bei Speicherzeitmessungen puffergasgekühlter Ionenwolken ein Phänomen, das Gudjons 20 Jahre später auch bei lasergekühlten Ionenwolken sah und erklärte [Gudj96b]: Auf dem exponentiellen Abfall der Fluoreszenz sind Oszillationen erkennbar, die unterschiedlich regelmäßig auftreten, bisweilen mit nahezu konstanter Frequenz. Diese erklären sich dadurch, daß eine Ionenwolke am Rand einer nichtlinearen Resonanz durch Energieaufnahme eine Aufweitung erfährt – die Fluoreszenz nimmt ab. Durch die Aufweitung verändern sich jedoch die effektiven Speicherparameter, so daß sich die Ionen nicht mehr in Resonanz befinden, worauf sich die Ionenwolke wegen Laser- oder Puffergaskühlung wieder verdichtet und die detektierte Fluoreszenz wieder zunimmt, dabei kommt sie aber wieder in Resonanz usw. Es wurde von Gudjons beobachtet, daß die Oszillationsfrequenz der Ionenwolke davon abhängt, wie nahe die Speicherparameter an einer Resonanz gewählt werden [Wert07].

Auch in diesem Experiment wurden Fluoreszenzänderungen, die den langsamen Schwankungen bei Iffländer ähneln, beobachtet. Rund um den Resonanzknoten $N = 5$ (s. Abb. 2.15) wurden 49 Speicherzeitmessungen bei unterschiedlichen q im Bereich von 0,535 bis 0,580 ($a = 0$) durchgeführt. Dabei konnte keine Korrelation zwischen Schwingungsfrequenz und Nähe zur Resonanz festgestellt werden, da die Fluoreszenzänderungen unregelmäßig und schwach ausgeprägt blieben. Es ist möglich, daß diese Korrelation nur bei lasergekühlten Ionenwolken deutlich genug hervortritt. Bei der gesamten Messung kann jedoch auch ein Schwanken der Laserfrequenz durch temperaturbedingte Drifts samt Modensprüngen nicht völlig ausgeschlossen werden.

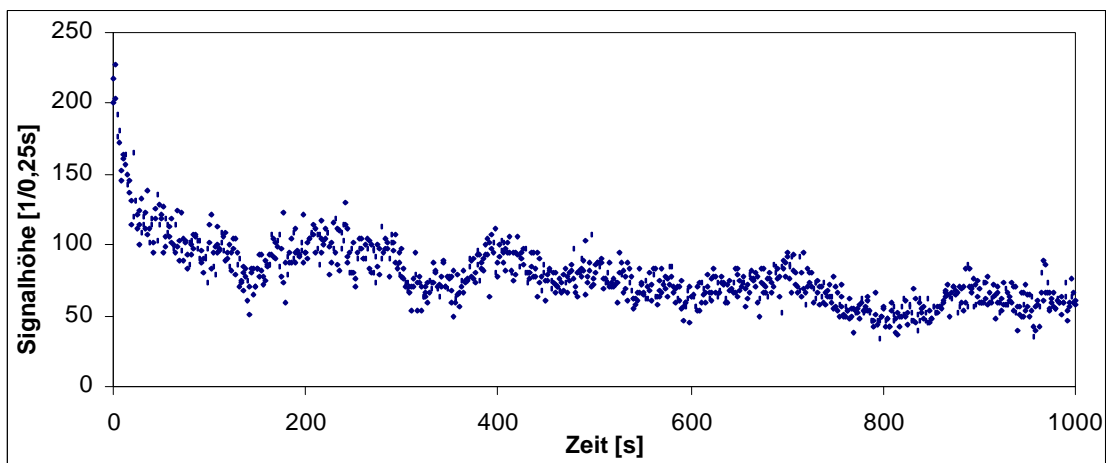


Abb. 5.14: Schwankungen der Fluoreszenz während der Speicherzeitmessung. Diese können durch die am Rand einer Resonanz auftretenden periodischen Dichteschwankungen der Ionenwolke entstehen.

Bei den Speicherzeitmessungen ist in der Zeit unmittelbar nach dem Erzeugen der Ionen ein unterschiedliches Verhalten der Fluoreszenzausbeute bei niedrigen und hohen Puffergasdrücken zu beobachten (siehe Abbildung 5.15). Bei niedrigem Druck sinkt die Fluoreszenz zunächst schneller als während des danach erfolgenden exponentiellen Abfalls. Bei hohem Druck hingegen steigt die Fluoreszenzrate nach Abschalten der Erzeugung zunächst an, bevor ein exponentieller Abfall erfolgt. Mehrere Effekte spielen hier kurz nach der Ionenerzeugung eine Rolle:

- Die Ionenwolke ist zu Anfang sehr heiß und die Ionenverlustrate ist abhängig von der Iontemperatur – je höher die Temperatur, desto größer der Ionenverlust.
- Während einer Speicherzeitmessung ist der Puffergasdruck fest eingestellt. Jedoch emittiert das Filament beim Erzeugen auch viele neutrale Atome und durch seine Hitze gast das umgebende Material aus, so daß sich direkt nach dem Erzeugen außer dem Puffergas noch

weitere zur Kühlung geeignete Stoßpartner in der Falle befinden. Dieser "Dreck" erhöht den effektiven Puffergasdruck, verschwindet aber nach dem Erzeugen relativ schnell wieder.

- Mitgespeicherte negative Ionen können nach [Majo71] dazu führen, daß mehr positive Ionen gespeichert werden können, da die Limitierung der Speicherkapazität der Falle durch die Raumladung (siehe Gleichung 2.53) nun erst bei einer höheren Zahl an Ionen erreicht wird. Die beim Glühen des Filaments zusammen mit den Ionen emittierten und durch die Falle fliegenden Elektronen könnten einen ähnlichen Effekt haben. Demgegenüber stehen allerdings die Aussagen von [Repr94], daß Elektronen in der Falle zu einem erhöhten Ionenverlust führen.
- Die beobachtete Fluoreszenz ist nicht alleine von der Zahl der gespeicherten Ionen abhängig: zum Einen hängt sie von der Ionendichte in dem vom Laser getroffenen Bereich der Ionenwolke innerhalb des durch die Optik beobachteten Fallenausschnitts ab. Zum Anderen erhöht sich die Quenchrage – und damit die Fluoreszenzausbeute – bei Vergrößerung des Puffergasdrucks (siehe Abb. 4.21) oder durch den oben erwähnten "Dreck".

Daraus lassen sich folgende Interpretationen des in Abbildung 5.15 gezeigten Verhaltens ableiten: Bei niedrig eingestelltem Puffergasdruck verlassen wegen der geringen Kühlung anfangs sehr viele heiße Ionen die Falle. Zudem sinkt die Quenchrage nach dem Erzeugen stark, da die im Verhältnis zum Puffergas relativ große Menge "Dreck" rasch abnimmt. Damit ergibt sich ein sehr starker anfänglicher Fluoreszenzabfall.

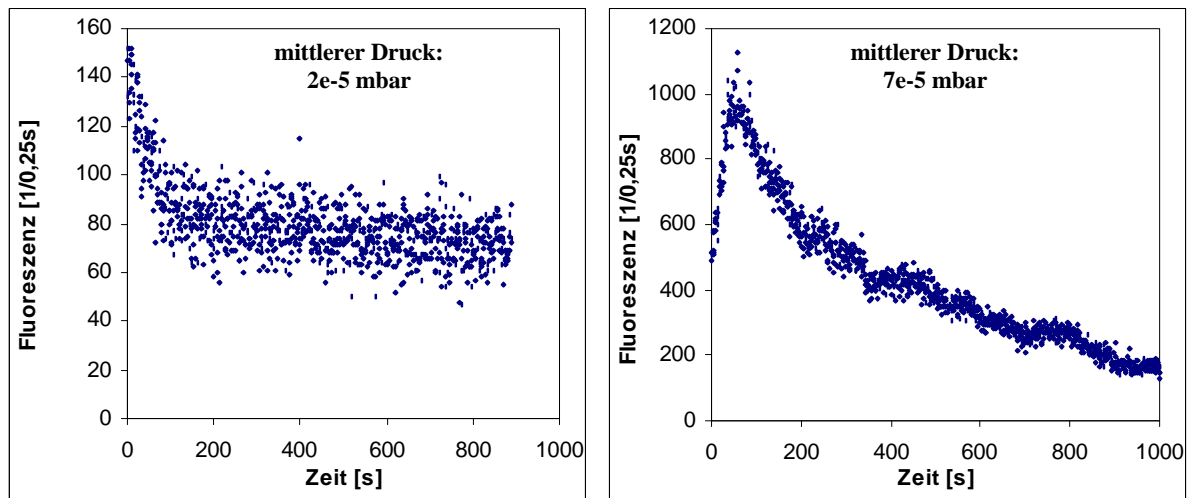


Abb. 5.15: Bei den Speicherzeitmessungen sinkt die Fluoreszenz bei niedrigen Puffergasdrücken anfangs sehr stark, während bei relativ hohen Drücken, (z. B. bei Stickstoff-Drücken über $3 \cdot 10^{-5}$ mbar) zunächst ein Anstieg der Fluoreszenz beobachtet wird¹.

Bei hohen Puffergasdrücken spielt der "Dreck" im Verhältnis zum Puffergas praktisch keine Rolle; somit erfolgt kein Absinken der Quenchrage. Beobachtbar wird dadurch die Fluoreszenzzunahme durch Zentrierung und Verdichtung der Ionenwolke.

¹ Dies tritt nur bei optischer Detektion auf. Bei dem später in Kapitel 6 verwendeten destruktiven Nachweis ist dies nicht zu beobachten, somit muß der Effekt über die Sensitivität der Detektionsmethode auf Ionendichte und Quenchrage begründet sein.

5.5 Räumliche Verteilung der Ionenwolke

Die bisher ausführlichsten Messungen zur räumlichen Verteilung großer Ionenwolken haben 1979/80 Schaaf und Schmeling an genau der in diesem Experiment verwendeten Falle durchgeführt¹. Die Messungen erfolgten damals manuell und mit relativ wenigen Datenpunkten, so daß die einfache Montage eines elektrischen Antriebs an den Justagespiegel genauere und schnellere Messungen erhoffen ließ.

5.5.1 Zeitliche Änderung der Dichteverteilung

Bei den zunächst mit Stickstoff als Puffergas durchgeführten Messungen fiel sofort die im Vergleich zum früheren Experiment [Scha79, Schm80] deutlich kleinere Ionenwolkengröße auf (siehe auch später) und bei einer der ersten Messungen wurde eine doppelhöckrige Dichteverteilung beobachtet:

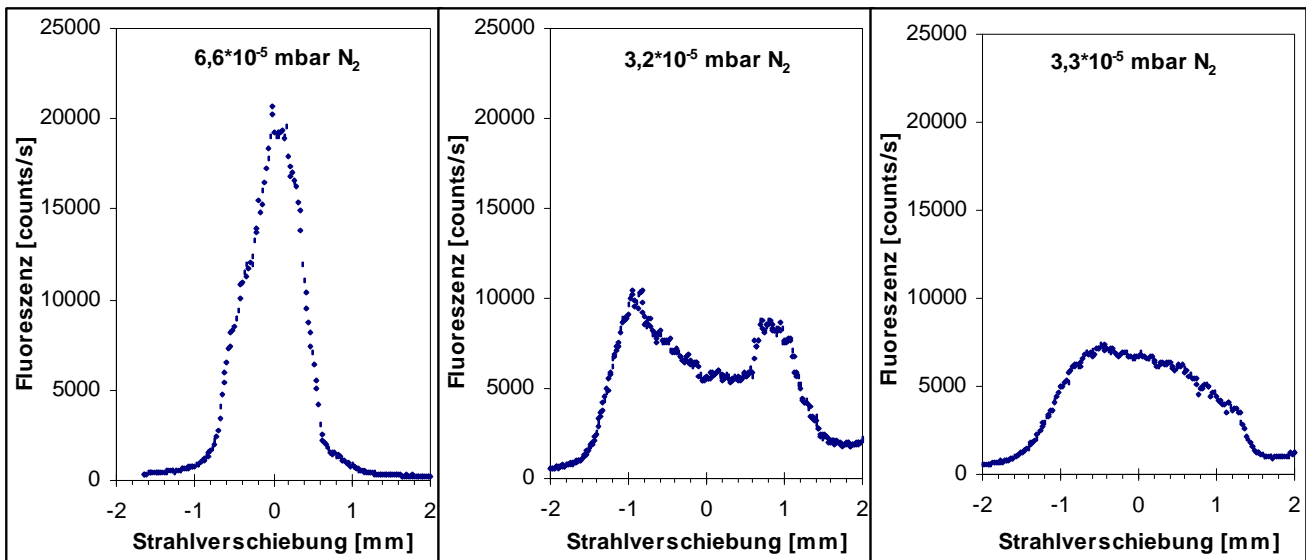


Abb. 5.16: Drei aufeinanderfolgende Messungen der räumlichen Dichteverteilung einer Ionenwolke bei Änderung des Puffergasdrucks. Anomale Verteilung der Ionenwolke bei einem Stickstoff-Puffergasdruck von $3,2 \cdot 10^{-5}$ mbar. Der Laserstrahldurchmesser betrug ca. 2 mm, die Scan-Dauer jeweils ca. 3 Min.

Aufgrund der Laserbreite von 2 MHz im Vergleich zur Dopplerbreite von ca. 1 GHz (siehe Abb. 5.6) tritt eine Selektion von Geschwindigkeitsklassen auf, d.h. nur Ionen einer bestimmten Geschwindigkeit in Bezug auf die Laserstrahlrichtung werden angeregt und die so erhaltene Fluoreszenzverteilung entspricht nicht zwangsläufig der Dichteverteilung der Ionenwolke. Es ist jedoch deutlich eine Veränderung der räumlichen Verteilung der beobachteten Geschwindigkeitsklasse bei Variation des Puffergasdrucks zu erkennen. Ein Vergleich mit danach durchgeführten Messungen läßt auf eine Ausdehnung und nachfolgende Verdichtung der Wolke schließen. Dies wäre z.B. vergleichbar mit Berechnungen und Messungen aus der Plasmaphysik für Nichtneutrales Plasma in einer Penningfalle, wo sich nach einer Anregung torusförmige Verteilungen ausbilden können, die nach kurzer Zeit wieder in eine Gaußverteilung übergehen [Dris90, Malm88]. Eine derartige Änderung der Verteilung in Paulfallen wurde auch von Schaaf und Toschek [Scha79] beobachtet, jedoch dort nicht als direkte Folge einer Variation des Puffergasdrucks. Die hier

¹ In den Fallenring waren damals Kreuzschlitze gesägt worden, um die Position des Laserstrahls in der Falle über mehr als 15 mm variieren zu können. Diese Schlitze wurden inzwischen wieder verfüllt (siehe Kapitel 4.4.1, auch Abb. 4.5 und 4.7).

gemachte Beobachtung wurde jedoch im Rahmen weiterer Messungen nicht reproduziert, was entweder an für diesen Effekt schwierig zu treffenden experimentellen Bedingungen liegt, oder daran, daß die Beobachtung möglicherweise durch einen nicht festgestellten Meßfehler verursacht wurde.

Die Änderung der Dichteverteilung – und die These der Ausbildung eines Torus – wird allerdings durch den Dichteanstieg zu Beginn der Speicherzeitmessungen (siehe Abbildung 5.15) bei vergleichbar hohem Puffergasdruck unterstützt. Auch die hier im Anschluß in Kapitel 5.6 beschriebenen, mit dem elektronischen Nachweis gemachten Beobachtungen bei Druckvariation im ähnlichen Puffergasdruckbereich können als Hinweis auf dieses Phänomen gedeutet werden.

5.5.2 Ionenwolkendurchmesser bei Verwendung von He- und N_2 -Puffergas

Die Dichteverteilung einer Ionenwolke verändert sich mit ihrer Temperatur. Cutler berechnete in den 80er Jahren die Dichteverteilung einer Ionenwolke in einer Paulfalle für verschiedene Ionentemperaturen [Cutl85, Cutl86]. Damit lassen sich aus gemessenen Dichteverteilungen Rückschlüsse auf die Ionentemperatur ziehen bzw. zusätzliche verteilungsverändernde Effekte beobachten, wenn man die Temperatur über das Dopplerprofil bestimmt und die gemessene Dichteverteilung mit der für die Temperatur erwarteten vergleicht.

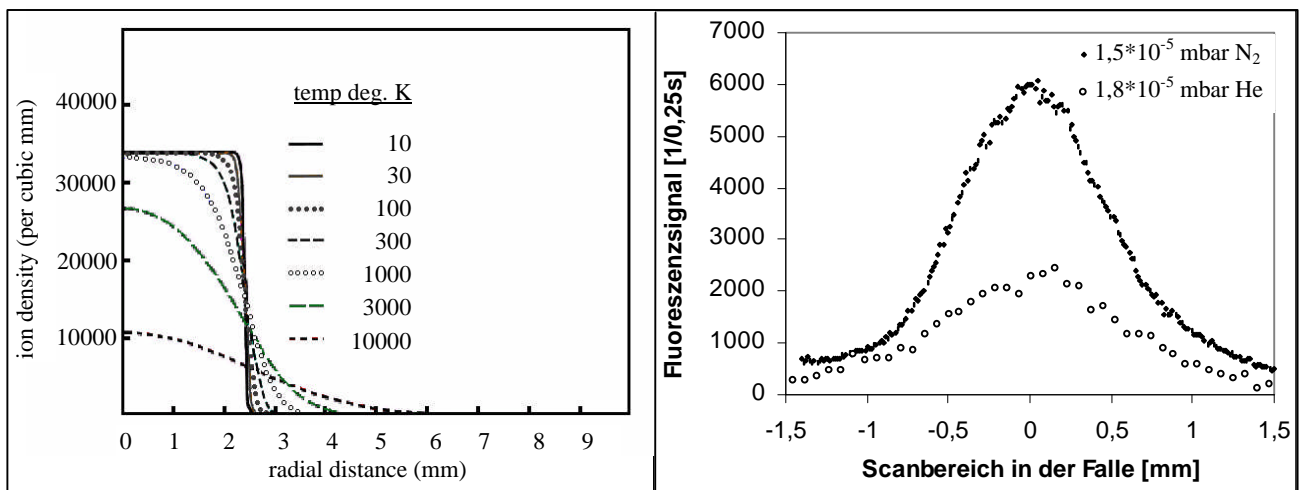


Abb. 5.17: Links: Dichteverteilung einer Ionenwolke in einer Paulfalle nach Cutler [Cutl85]. Rechts das Beispiel zweier typischer, im Experiment gemessener radialer Dichteverteilungen.

Um die Auswirkungen des Puffergasdrucks auf die Dichteverteilung zu studieren, wurden daher experimentell die Verteilungen bei Stickstoff-Puffergasdrücken zwischen $1 \cdot 10^{-6}$ mbar und $2 \cdot 10^{-4}$ mbar bestimmt. Bei einem Laserstrahldurchmesser von nun 1 mm erbrachten die Messungen mit radialen Ionenwolkendurchmessern¹ zwischen 0,94 mm und 1,24 mm (FWHM) jedoch keine signifikante Druckabhängigkeit. Zwei typische Dichteverteilungen sind in Abbildung 5.17 gezeigt. Aus der Form der Verteilungen läßt sich durch Vergleich mit Cutlers Diagrammen keine eindeutige Ionentemperatur ablesen². Es ist nur deutlich, daß Cutlers Kurve für 1000 K zu abgeplattet ist, und die Kurven für höhere Temperaturen sich in der Form ähneln, so daß man von mehr als 1000 K, eher 3000 K ausgehen kann, was im Einklang mit den Berechnungen aus 5.2 steht.

Um herauszufinden, ob die Größe der Ionenwolke merklich vom Puffergas abhängt, und vor allem, um die Ergebnisse mit denen von Schaaf und Schmeling vergleichen zu können, wurde die

¹ Auch hier ist nur eine Geschwindigkeitsklasse selektiert.

² Der Vergleich ist eher qualitativ, da im Experiment die Zahl der Ionen nicht bekannt ist und sich die Masse der Ionen in Experiment und Berechnung unterscheiden.

Dichteverteilung der Ionenwolke nun mit Helium als Puffergas gemessen. Mit etwas größerem Laserstrahldurchmesser als zuvor wurden bei einem Helium-Puffergasdruck von ca. $2 \cdot 10^{-5}$ mbar radiale Ionenwolkendurchmesser (FWHM) von 1,1 mm bis 1,7 mm gemessen. Die gegenüber der Messung mit Stickstoff etwas größeren Werte entsprechen der bei diesem Versuch schlechteren Laserstrahlqualität. Ein Unterschied in der Dichteverteilung ist zwischen Helium und Stickstoff als Puffergas somit nicht feststellbar.

Die hier gemessenen Wolkengrößen sind damit deutlich kleiner als bei Schaaf und Schmeling: Schaaf hatte ohne Puffergas in radialer Richtung 11 mm und in axialer 7 mm als Wolkendurchmesser gemessen. Dabei waren allerdings permanent mittels eines Bariumofens Ionen erzeugt worden, was zu einer Aufheizung der gespeicherten Ionen führte. Bei der vorliegenden Arbeit erfolgten die Messungen jeweils mehrere Minuten nach dem Erzeugen. Schmeling erhielt in radialer Richtung bei Heliumdrücken zwischen $2 \cdot 10^{-7}$ Torr und $5 \cdot 10^{-6}$ Torr Wolkendurchmesser von 3,6 mm bis 2,5 mm und maß hier eine entsprechende Druckabhängigkeit. Er stellte allerdings fest, daß eine weitere Erhöhung des Heliumdrucks zu einem Aufheizen der Ionen und zu Ionenverlusten führte. Dies wurde von mir nicht beobachtet, zudem sind die von mir gemessenen Werte des Wolkendurchmessers kleiner als die Druckabhängigkeit von Schmeling erwarten läßt. Da die Falle ansonsten mit der damaligen identisch ist, kann man darauf schließen, daß die damalige Aufweitung der Ionenwolke, ebenso wie der erhöhte Ionenverlust, durch die Feldfehler bedingt waren, die die damals in die Ringelektrode geschnittenen (und inzwischen zugeschweißten) Schlitze verursachten.

5.6 Abhängigkeit der Makrofrequenz vom Puffergasdruck

Beim Arbeiten mit dem elektronischen Nachweis fällt auf, daß die hiermit erhaltenen Signale keinesfalls stabil sind – weder was die Rampenspannung, bei der sie auftreten, noch was ihre Form und Amplitude angeht. Einiges hierzu ist in Kapitel 4.5.3 bereits beschrieben. Ändert man bei permanent eingeschaltetem elektronischem Nachweis den Puffergasdruck, so zeigen sich verschiedene Effekte (das hier verwendete Puffergas ist Stickstoff):

- Bei Drücken niedriger als 10^{-7} mbar verliert man die Ionen relativ schnell, da die Puffergaskühlung zu gering im Vergleich mit der Anregung der Ionen durch den Nachweis ist.
- Bei Erhöhen des Puffergasdrucks ist zunächst ein Anstieg der Signalstärke zu beobachten, was darauf zurückzuführen ist, daß sich aufgrund der Kühlung mehr Ionen in der Nähe des Fallenzentrums aufhalten, die gleichzeitig angeregt werden.

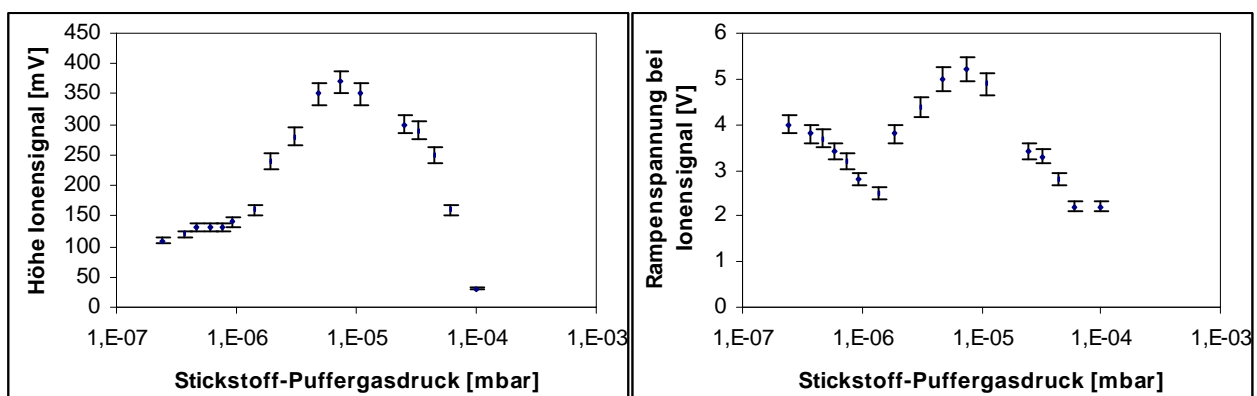


Abb. 5.18: Elektronischer Nachweis: in Abhängigkeit vom Puffergasdruck ändert sich die Signalthöhe (links) und (rechts) die Rampenspannung U_0 , bei der das Ionensignal auftritt (= Makrofrequenzänderung).

- Bei weiterer Erhöhung des Drucks führt die Dämpfung der Ionenbewegung durch die Stöße mit den Puffergasatomen zu einer Verringerung der Schwingungsamplitude der Ionen bei Anregung durch den Nachweis. Die Signalthöhe verringert sich nun wieder. Gleichzeitig ändert sich die Makrofrequenz ω_z der Ionen bei Änderung der Dämpfung (s. Abb. 5.18).

Mehrfach aufgetreten ist bei Druckänderungen um $3 \cdot 10^{-5}$ mbar eine sehr starke und relativ plötzlich einsetzende Wanderung des Signals zu anderen Rampenspannungen, d.h. eine Änderung der Makrofrequenz der Ionen. Bei Verringern des Drucks vergrößert sich ω_z plötzlich, erhöht man dann den Druck wieder, so verkleinert sich ω_z wieder bis zum Erreichen des vorherigen Werts – d.h. eine größere Änderung der Raumladung durch Ionenverlust hat nicht stattgefunden. Der gesamte Vorgang zeigt ein Hystereseverhalten. Hier wurde lediglich der Druck – und damit die Kühlleistung – geändert, was bei den eingestellten Fallenparametern offensichtlich zu einer kritischen Änderung der Wolkenform führte. Interessanterweise geschah dies bei dem gleichen Puffergasdruck, bei dem in einer anderen Messung die in Abb. 5.16 gezeigte Änderung der Dichteverteilung auftrat.

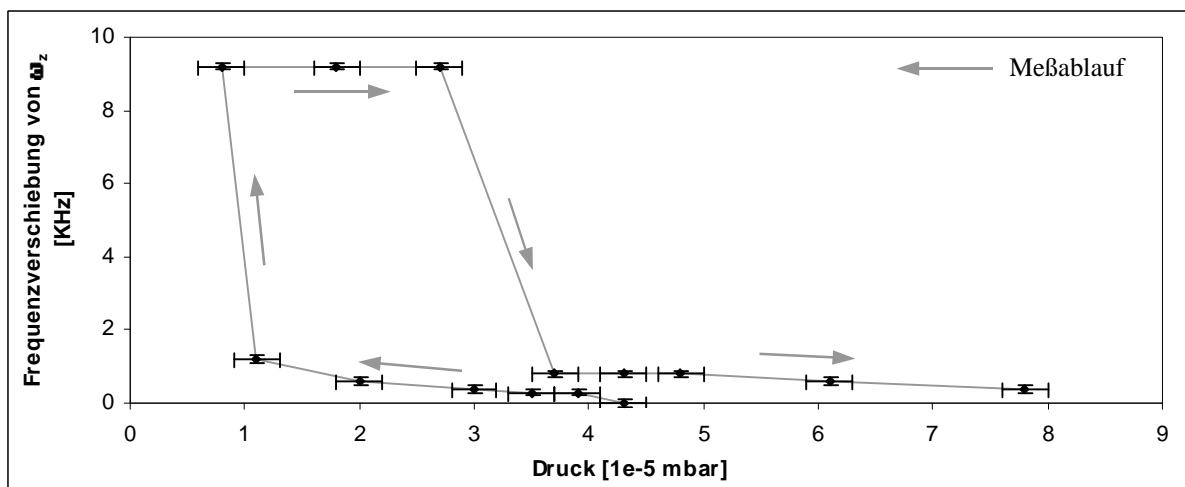


Abb. 5.19: Hystereseverhalten des elektronischen Nachweissignals: die Makrofrequenz der Ionen ändert sich bei einem bestimmten kritischen Druck (d.h. bei einer bestimmten Kühlleistung) sprunghaft. Da kein merklicher Ionenverlust auftritt, muß eine Änderung der Form der Ionenwolke stattgefunden haben.

5.7 Vor- und Nachteile der Meßmethode

Die Apparatur weist (auch im Vergleich zu der im nächsten Kapitel beschriebenen) einige prinzipiell vorteilhafte Eigenschaften auf, wie z.B. die puffergasunabhängige Erzeugung von Ionen, die über weite Bereiche nicht destruktiven Nachweise (elektronisch und optisch) und die daraus folgende, für manche Untersuchung praktische Möglichkeit, kontinuierlich mit der gleichen Ionenwolke zu arbeiten. Auch die grundsätzliche Möglichkeit, Größe und Dichte von Ionenwolken zu messen, ist nicht unerheblich. Jedoch auch die prinzipiellen Vorzüge beinhalten Schwierigkeiten im Detail, vor allem bei dem Ziel, die jeweilige Meßgröße in Abhängigkeit vom Puffergasdruck zu bestimmen.

a) Detektionsmethode

Die elektronische Nachweismethode hat den Nachteil, relativ ungenau zu sein. So ist die Masse, bei der ein Ionenpeak nachgewiesen wird, nicht präzise, zusätzlich können bei größeren Ionenwolken kollektive Effekte nicht ausgeschlossen werden, z.B. daß schwache Massenpeaks durch die Anwesenheit einer großen Zahl von Ionen einer anderen Masse verschwinden [Stah94] bzw. daß zwei getrennte Massenpeaks ab einer bestimmten Wolkengröße nur noch ein Signal bilden

[Jung87]. Daß die Signalhöhe mehr von der Abstimmung des Schwingkreises als von der Zahl der Ionen abhängt, macht zusätzlich die Vergleichbarkeit von Messungen problematisch.

Der optische Nachweis dagegen ist völlig unsensitiv auf andere, möglicherweise mitgespeicherte Ionensorten, die das Verhalten einer Ionenwolke aber mitbestimmen. Auch wird – zumindest bei einem schmalbandigen Laser – nur eine Geschwindigkeitsklasse von Ionen selektiert. Zudem ist bei der Variation des Puffergasdrucks die Signalhöhe nicht nur durch die Ionendichte, sondern auch durch zwei andere druckabhängige Effekte bestimmt: Zum Einen ändert sich die Quenchrates der metastabilen Niveaus mit dem Druck, so daß die aufgenommene Fluoreszenz bei Druckänderung eine Funktion von Quenchrates und Kompression der Wolke durch das Puffergaskühlen ist. Zum Anderen war die Einstellung eines gewünschten Drucks nur möglich – dann allerdings sehr präzise – wenn die Ionen-Getterpumpe permanent lief. Die Entladung der Ionengetterpumpe brennt jedoch bei Erhöhung des Drucks mit immer größerer Lichtintensität (Abb. 5.20), was trotz Interferenzfilter zu einem merklichen Streulichtuntergrund führt. Ein Knick im Vakuumsystem zwischen Falle und Pumpe würde allerdings das Problem leicht beheben.

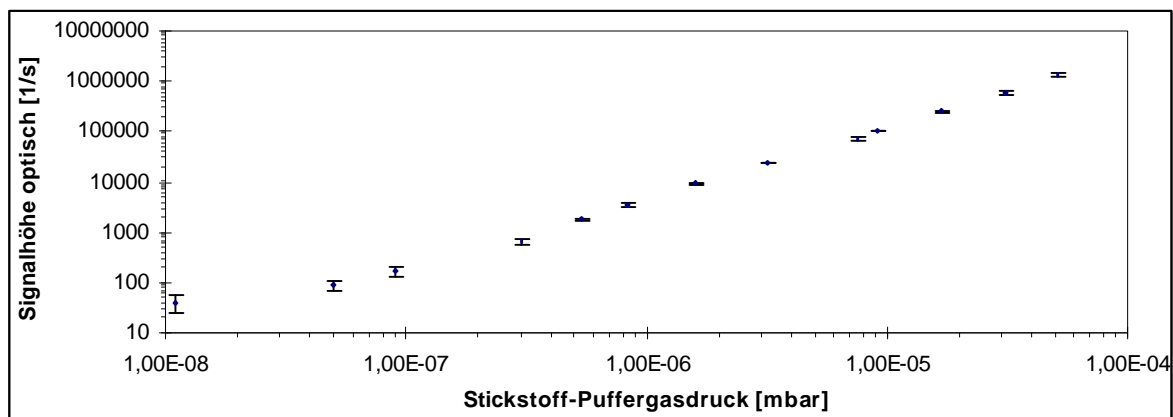


Abb. 5.20: Licht der Ionen-Getterpumpe bei Variation des Stickstoff-Puffergasdrucks

b) Lasersystem

Mit dem MOPA-Lasersystem konnte zwar ein Ionensignal mit sehr viel besserem Signal-zu-Rausch-Verhältnis erhalten werden, ganz unproblematisch war die Einstellung geeigneter Laserparameter für einen störungsfreien Betrieb aber nicht: Laserströme und –Temperatur mußten immer wieder korrigiert werden, um einen Multimode-Betrieb des Lasers zu vermeiden. Modensprünge und Multimode-Betrieb wurden dadurch begünstigt, daß die Temperatur im Labor trotz Klimaanlage und verspiegelter (und abgedunkelter) Fenster täglich um mehrere Grad schwankte.

c) Meßablauf mit einer Ionenwolke

Die Messungen wurden alle so durchgeführt, daß zu Beginn die Ionen erzeugt wurden (oder sich schon eine Weile in der Falle befanden) und dann die Messung durchgeführt wurde. Währenddessen findet gemäß der Speicherzeit ein permanenter Ionenverlust statt, der natürlich druckabhängig ist. Beim Scannen von q kommt noch Ionenverlust in den Resonanzen dazu, so daß zum Beispiel eine Folge von Resonanzen nicht als solche, sondern als treppenförmiger Signalverlauf aufgenommen wird. Dabei wirkt sich die Scangeschwindigkeit wegen der unterschiedlichen Verweildauer in den Resonanzen auch auf die Form des Signals einer Resonanz aus. Dazu kommt, daß nicht garantiert ist, daß jede Messung mit der gleichen Anzahl von Ionen startet. Die Effizienz des Ioneneinfangs in die Falle ist wegen der Puffergasstöße druckabhängig. Zumindest für einige Messungen hätte eine Erzeugung von immer der gleichen

Menge Ionen für jeden einzelnen Meßpunkt (und nachfolgendes Leeren der Falle) deutlich besser interpretierbare Ergebnisse geliefert. Das im nächsten Kapitel beschriebene Experiment erfüllt diese Anforderungen zumindest teilweise.

6 Experimente an N_2^+ -Ionenwolken bei Variation von Ionenzahl und Puffergasdruck

Im letzten Kapitel wurden bei Untersuchungen des Puffergaseinflusses auf das Speicherverhalten großer Ionenwolken einige interessante Effekte beobachtet. Das dort verwendete Meßprinzip setzte den Beobachtungen, insbesondere der Einflüsse des Drucks auf die nichtlinearen Resonanzen, jedoch deutliche Grenzen. Deshalb wurden diese Messungen nun an einer Apparatur mit anderem Meßablauf und Ionennachweis durchgeführt, die hier besser geeignet war, mit der jedoch die Meßgrößen Ionentemperatur und –dichte nicht zugänglich waren:

Mit diesem experimentellen Aufbau konnten außer den nichtlinearen Resonanzen im Speicherbereich und den Speicherzeiten zusätzlich auch Resonanzen im Frequenzspektrum der Ionen – wie Makrofrequenzen, deren Linearkombinationen und parametrische Resonanzen – bei Änderung von Druck und Ionenzahl untersucht werden. Die erreichte Genauigkeit bei der Betrachtung all dieser Resonanzen lag hier weit über der in Kapitel 5 gezeigten.

Die Untersuchungen wurden mit gespeicherten N_2^+ -Ionenwolken bei Verwendung von Helium oder Stickstoff¹ als Puffergas durchgeführt.

Dieses Kapitel beschreibt zunächst in 6.1 ausführlich den Aufbau des Experiments, Unterkapitel 6.2 erläutert dann detailliert das Zustandekommen des Ionensignals vom Prozeß der Ionenerzeugung bis zur Abspeicherung der digitalen Daten unter Betrachtung einer Vielzahl von beeinflussenden Parametern. Am Ende wird die Eichung des Nachweises auf absolute Ionenzahlen durchgeführt. In 6.3 wird der experimentell aufgenommene erste Speicherbereich mit theoretischen und früheren experimentellen Daten verglichen, der Einfluß von Puffergas und Ionenzahl auf Speicherbereich und Resonanzen untersucht und erstmals das Auftreten kollektiver Resonanzen im Stabilitätsscan gezeigt. Kapitel 6.4 widmet sich der Speicherdauer der Ionen in der Falle; bei unterschiedlichen Puffergasdrücken und mehreren gespeicherten Massen auftretende Effekte werden beschrieben. Kapitel 6.5 zeigt Untersuchungen extern angeregter Resonanzen bei Beobachtung des Frequenzspektrums. Massenbestimmungen und die Bestimmung von Resonanzordnungen werden mittels der Resonanzen getestet, Mutter-Tochter-Resonanzen detailliert untersucht und kollektives Verhalten der Ionen beobachtet. Auch hier werden wieder die Einflüsse von Ionenzahl und Puffergasdruck gezeigt.

6.1 Experimenteller Aufbau

Die Messungen wurden an einer schon seit vielen Jahren in Betrieb befindlichen Apparatur durchgeführt. Ursprünglich aufgebaut von H. Knobloch [Knob87] und weiterentwickelt von H. Weinreuter [Wein90], T. Fink [Fink90] und nachfolgend K. Scheler [Sche91] wurde sie im Verlauf der Doktorarbeit von R. Alheit [Alhe97] mehrfach verändert, was am Besten in den währenddessen entstandenen Diplomarbeiten von T. Ruths [Ruth92], C. Henning [Henn94], S. Kleineidam [Klei95], M. Hoefer [Hoef97] und M. Holzki [Holz97] nachvollzogen werden kann. Während der ganzen Zeit war die Apparatur Bestandteil eines Experiments zur Photodissoziation von H_2^+ und wurde dabei gleichzeitig sehr erfolgreich bei der Erforschung der nichtlinearen Instabilitäten der Paulfalle eingesetzt [Alhe95, Alhe96, Alhe96b, Alhe97b, Chu98, Razv98]. Danach zog die Apparatur um in das Fortgeschrittenen Praktikum Teil 2 für Physiker und wird dort seitdem verwendet. Im Wintersemester 2002/2003 wurden Umbaumaßnahmen nötig, die von Stefan Krause

¹ Bei der Verwendung von Helium als Puffergas verbessert sich der Restgasdruck in der Apparatur nach einer Messung nur sehr langsam, so daß im Laufe der Zeit mit immer schlechteren (d.h. höheren Drücken) gearbeitet werden muß, will man nicht viele Tage zwischen einzelnen Messungen warten. Wegen der höheren Pumprate der Getterpumpe für Stickstoff wurden die Experimente auch mit Stickstoff als Puffergas durchgeführt, was die Betrachtung eines größeren Druckbereichs möglich macht, jedoch den hier nicht quantitativ erfaßbaren Effekt des Ladungsaustauschs zur Folge hat.

und mir durchgeführt wurden. Dabei wurde ein neues Programm zur Experimentsteuerung geschrieben [Krau04]¹ und die externe Beschaltung des Experiments überarbeitet. Der zum Zeitpunkt dieser Arbeit aktuelle Stand des experimentellen Aufbaus wird im Folgenden beschrieben.

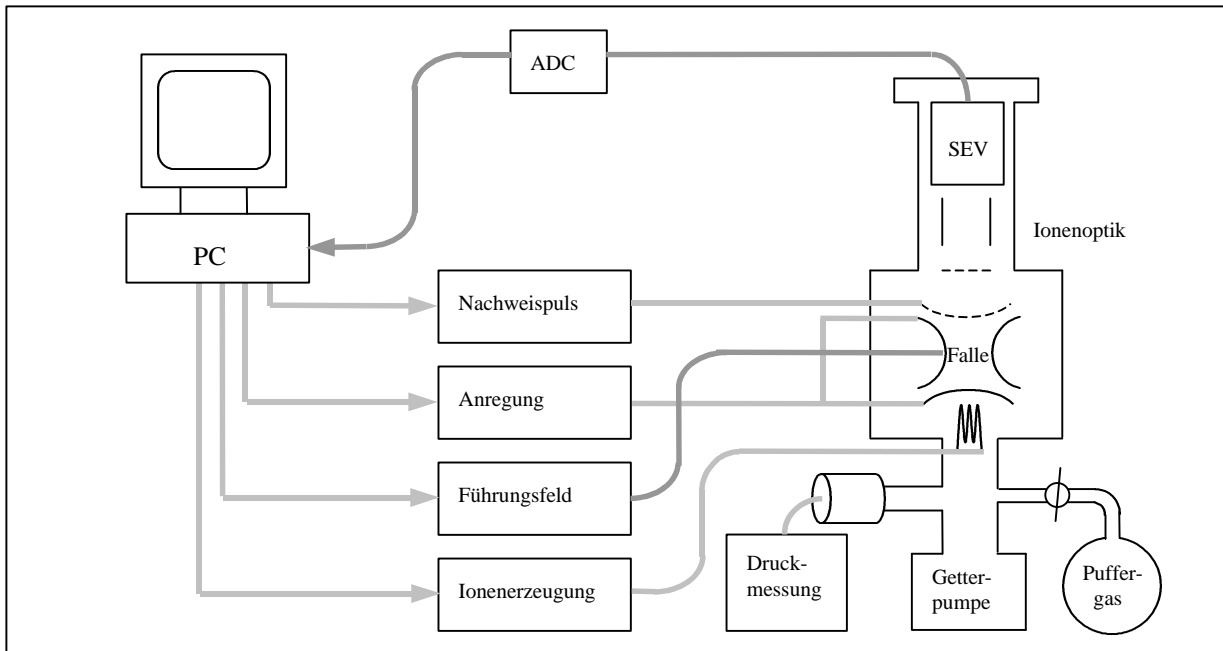


Abb. 6.1: Schematischer Gesamtaufbau des Experiments

Der Versuchsaufbau besteht im Wesentlichen aus einer Paulfalle in einer Vakuumapparatur, einer Elektronenkanone zur Erzeugung der Ionen und einem destruktiven, massenselektiven Ionennachweis (siehe Abb. 6.1).

Die Ionen werden mit Hilfe der Elektronenkanone durch Elektronenstoßionisation aus dem in der Falle vorhandenen Restgas erzeugt. Nach einer gewissen Speicherzeit, in der die Ionen z.B. einem Anregungsfeld ausgesetzt werden, werden sie durch Anlegen einer Extraktionsspannung aus der Falle entfernt und zum Nachweis auf einen Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) fokussiert. Dessen Signal wird von einem ADC digitalisiert und vom Meßrechner verarbeitet. Dieser steuert den Ablauf des Experiments, d.h. die Dauer der Ionenerzeugung (künftig Erzeugungszeit genannt), die Verweildauer der Ionen in der Falle, d.h. die Zeit zwischen Erzeugung und Extraktion der Ionen (Wartezeit), die Fallenspannungen und bei Bedarf die Frequenz und Amplitude einer externen Ionenanregung. Im Meßprogramm kann eine Sequenz von Messungen eingestellt werden, in deren Verlauf der Computer einen der folgenden Versuchsparameter fortlaufend ändert: Erzeugungszeit, Wartezeit, Anregungsfrequenz oder Fallenwechselspannungsamplitude. Das nach der Detektion erhaltene Ionensignal wird gespeichert und graphisch gegen den sich ändernden Parameter aufgetragen.

6.1.1 Die Paulfalle

Die in diesem Experiment verwendete klassische Paulfalle hat einen Radius r_0 von 2 cm und das Verhältnis r_0 zu z_0 beträgt $\sqrt{2}$. Die aus Kupfer bestehende Ringelektrode weist zwei gegenüberliegende Bohrungen von 8 mm Durchmesser für den im früheren Experiment benötigten Laser auf. Im rechten Winkel dazu existiert eine weitere Bohrung von 4 mm Durchmesser, die

¹ Dies wurde nötig, da das Steuerprogramm von Michael Holzki (Vorgängerprogramme für unterschiedliche Meßanwendungen stammten von Thorsten Ruths und Raimund Alheit, verbessert von Carsten Henning und Stephan Kleineidam) wegen Rechnerdefekt an einen neuen PC hätte angepaßt werden müssen, was jedoch unmöglich war, da das alte Pascal-Programm nur noch als ausführbare exe-Datei und nicht mehr als Quellcode vorlag.

einmal zum Elektroneneinschuß verwendet wurde. All diese Bohrungen sind für den momentanen Einsatz der Falle nicht mehr nötig, sie tragen aber zu einem verstärkten Auftreten von nichtlinearen Resonanzen bei. Die untere Endkappe besteht ebenso wie der Ring aus Kupfer und weist in der Mitte eine Bohrung von 3 mm Durchmesser zum Einschuß von Elektronen in die Falle auf. Die obere Endkappe besteht aus poliertem Stahl. In ihr befindet sich zur Ionenextraktion in der Mitte ein Loch von 20 mm Durchmesser, in das ein Drahtnetz eingeschweißt ist. Dessen Oberfläche führt näherungsweise die hyperbolische Form der Endkappe fort. Ring und Kalotten sind mittels mit Keramikhülsen isolierten Schrauben miteinander verbunden, dabei bilden jeweils 3 der Hülsen die Abstandhalter zwischen Endkappe und Ring. Die gesamte Falle ist mit Gewindestangen mit durch Keramikhülsen isolierten Verschraubungen an einer Stahlplatte befestigt, die ihrerseits mit Gewindestangen am Vakuumtopf befestigt ist und die auch den Aufbau der Elektronenkanone trägt (siehe Abbildung 6.2). Im Vergleich zu der in Kapitel 4 beschriebenen Falle sind hier in den Elektroden selbst weniger Öffnungen vorhanden, jedoch ist die Lücke zwischen Ring und Kalotten sehr viel größer, so daß nicht ohne weiteres von einer Konfiguration mit geringeren Feldfehlern ausgegangen werden kann.

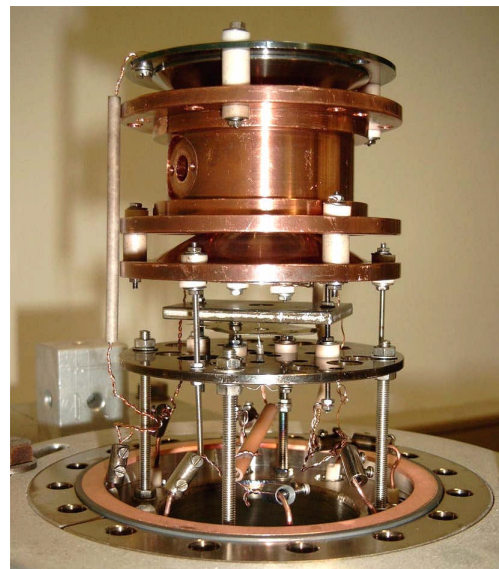
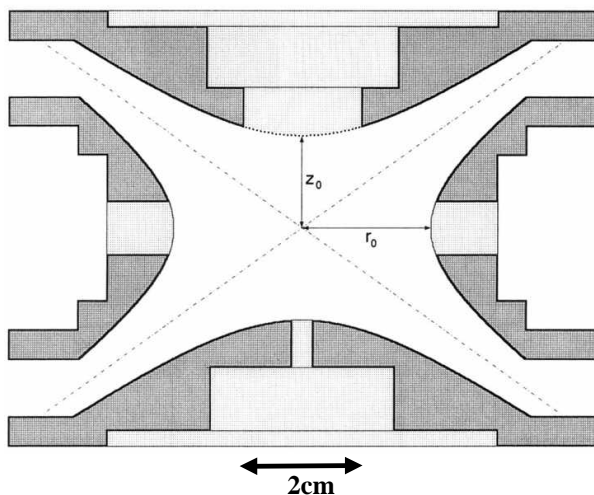


Abb. 6.2: Schnittzeichnung der verwendeten Falle. Das Foto zeigt den Aufbau samt Elektronenkanone.

6.1.2 Vakuumaufbau

Die Falle befindet sich im Zentrum eines Vakuumtopfs, um den sich eine größere Zahl von Vakuumbauteilen gruppieren (siehe Abbildung 6.3):

Am oberen Flansch des Topfes schließt sich ein Rohr gleichen Durchmessers an, in dem der Nachweis untergebracht ist. Der obere Flansch des Rohres enthält Stromdurchführungen, über die der destruktive Ionen-Nachweis mit den Spannungsversorgungen und der Elektronik zur Datenaufnahme verbunden ist.

An zwei seitlichen Anschlüssen des Vakuumtopfs befinden sich vom früheren Experiment zur Dissoziation von H_2^+ noch Flansche mit Glas-Metall-Übergängen, die auf der einen Seite ein Einkoppelfenster und auf der entgegengesetzten Seite ein Brewsterfenster tragen. Diese Fenster werden beim jetzigen Experiment nicht mehr benötigt. Unten am Vakuumtopf angebracht ist ein Adapterstück mit Stromdurchführungen, darunter schließen sich noch zwei Vakuumrohre bis zur Ionengetterpumpe (Saugvermögen 30 l/s) an¹.

¹ Die lange Strecke von ca. 1 m zwischen Getterpumpe und Falle und die Verwendung einer Pumpe mit kleinem Magnetfeld war im früheren H_2^+ -Experiment nötig, um den störenden Einfluß des Pumpenmagnetfelds zu minimieren (siehe [Hoef97]). Heute wäre das untere Rohr überflüssig und es könnte wieder eine stärkere Pumpe eingesetzt werden, da das Magnetfeld im F-Praktikumsbetrieb und bei den hier beschriebenen Experimenten keine meßbare Rolle spielt.

Das obere dieser Vakuumrohre besitzt einen seitlichen Anschluß, an dem sich ein T-Stück befindet. An dem einen Anschluß des T-Stücks ist über Ventile und einen Rohrbogen der Wellschlauch eines mobilen Turbopumpstands zum Evakuieren der Apparatur angebracht. Am anderen T-Stück-Anschluß ist ein weiteres T-Stück angeschraubt, das zum Einen einen Restgasanalysator VG ARGA und zum Anderen ein Nadelventil und einen Ballon für den Puffergaseinlaß trägt. Nadelventil und ARGA waren am F-Praktikumsexperiment bei Beginn meiner Messungen noch nicht vorhanden, so daß einige wenige erste Messungen zunächst ohne Kenntnis des Restgasdrucks erfolgten. Mit Hilfe einiger charakteristischer, druckabhängiger Größen, wie z.B. der Zeit bis die Falle mit Ionen gefüllt ist und der Signalhöhe bei gefüllter Falle, kann jedoch nachträglich auf den damals herrschenden Druck geschlossen werden. Nach teilweisem Ausheizen der Apparatur wurde ein Restgasdruck von $3 \cdot 10^{-9}$ mbar erreicht. Durch Einlaß von Puffergas bei gleichzeitig laufender Getterpumpe konnten beliebige, zeitlich stabile Drücke bis üblicherweise $1 \cdot 10^{-5}$ mbar (das ARGA fällt aus bei ca. $5 \cdot 10^{-5}$ mbar) eingestellt werden. Als Puffergas wurden Stickstoff und Helium verwendet. Der ARGA-Restgasanalysator auf Basis eines Massensfilters ermöglicht es, die Partialdrücke der häufigsten Restgasbestandteile bei Einlaß eines Puffergases aufzunehmen (Abb. 6.4).

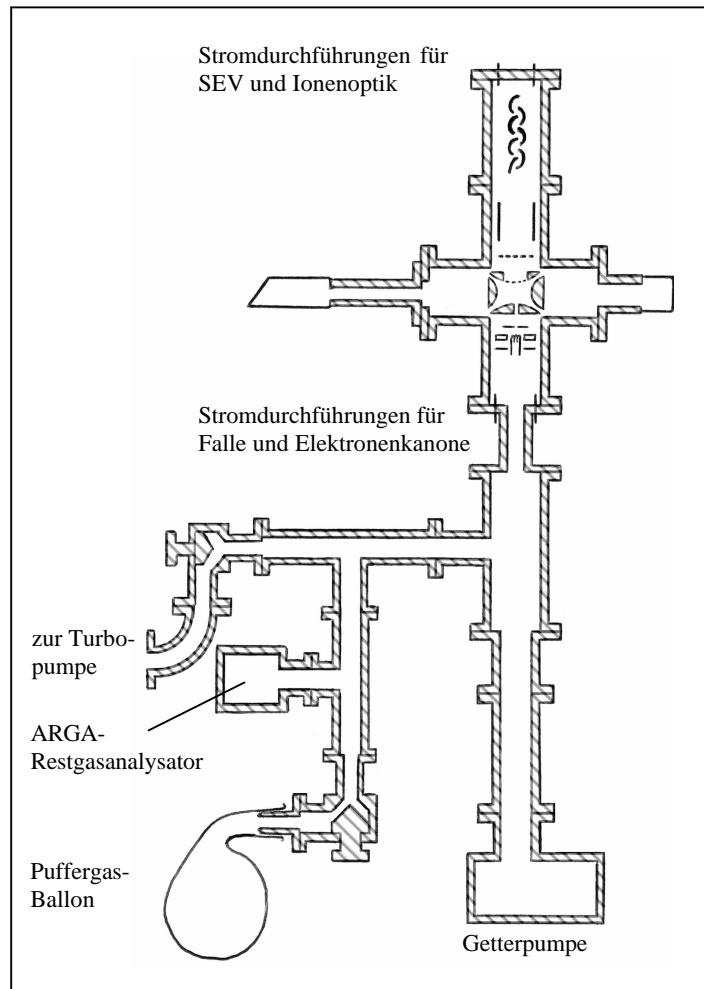


Abb. 6.3: Vakuumaufbau. Einzelne Bauteile sind zur besseren Übersicht gegenüber dem tatsächlichen Aufbau um 90° bzw. 45° gedreht dargestellt.

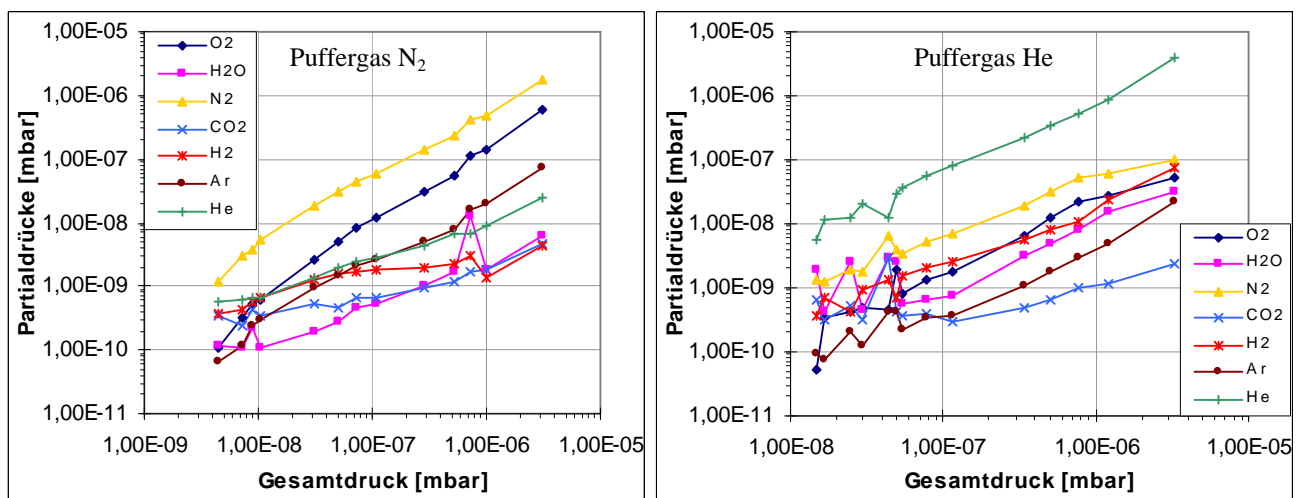


Abb. 6.4: Mit dem ARGA gemessene Partialdrücke des Restgases bei Einlaß von Helium (rechts) und Stickstoff (links) als Puffergas. Auffallend ist in beiden Fällen der Anstieg des Sauerstoffpartialdrucks.

6.1.3 Speicherfeld und externe Anregung

Die Speicherspannung wird auf den Ring der Falle gegeben und durch den Führungsfeldverstärker GHF961028 (Eigenentwicklung des Elektronik-Labors des Instituts) erzeugt, der einen AC-Spannungsbereich von 0 bis 2500 V_{pp} und einen DC-Spannungsbereich von –200 V bis +200 V bei 748,8 kHz aufweist. Über den Experimentrechner kann die AC-Spannung vom Programm aus variiert werden¹. Beide Spannungsanteile können auch manuell am Führungsfeldverstärker eingestellt und mittels der umschaltbaren Anzeige kontrolliert werden. Die vom Programm eingestellte, die angezeigte und die tatsächlich anliegende Spannung stimmen dabei nicht perfekt überein, wobei die Abweichung von der Abstimmung des Geräts auf die Fallenkapazität abhängt. Bei der für die Experimente dieses Kapitels gewählten Abstimmung betrug die Abweichung bis zu 5 %. Mit Hilfe der Funktion

$$V_{0,\text{tatsächlich}}[V_{PP}] = 0,96 \cdot V_{0,\text{Meßprogramm}}[V_{PP}] + 10,6 [V_{PP}]$$

können die abgespeicherten Datensätze bei Spannungen ab 150 V_{pp} korrigiert werden, so daß nur noch eine geringe Restabweichung von ca. 0,8 % bleibt.

Die beiden Endkappen sind über jeweils 100 Ω-Widerstände geerdet. Um die Ionen nach dem Speichern extrahieren zu können, ist an der oberen Endkappe ein HV-Schalter samt Spannungsversorgung (Oltronix 0 bis -500V) für den negativen Extraktionspuls angeschlossen.

An beide Endkappen kann zudem ein Wechselfeld zur Quadrupolanregung der Ionenwolke angelegt werden. Dazu dient ein vom Experimentrechner über GPIB-Verbindung² angesteuerter SRS-Funktionsgenerator (Model DS 335), der gegen die an den Endkappen bei der Extraktion der Ionen auftretenden Spannungen durch Relais geschützt wird³. Mit diesem lassen sich über den PC Wechselfrequenzen mit Frequenzen von 0 – 3,1 MHz und Amplituden von 0,04 – 10 V_{pp} entweder als Festfrequenz oder als Sweep einstellen.

6.1.4 Ionenerzeugung

Die Erzeugung der Ionen geschieht durch Elektronenbeschuß des in der Falle befindlichen Restgases, das zu einem großen Teil aus molekularem Stickstoff besteht. Der Einschuß der Elektronen in die Falle geschieht mit Hilfe einer Elektronenkanone durch die Bohrung in der unteren Kalotte. Die e⁻-Kanone besteht aus einem 0,1 mm starken, thorierten Wolframdraht mit 7 Wicklungen⁴ als Glühfaden, einer Ziehblende zur Beschleunigung der Elektronen in Richtung Falle, einer Fokusblende in unmittelbarer Nähe des Glühfadens zur Fokussierung des Elektronenstrahls durch die Kalottenbohrung und einer unter dem Faden angebrachten Elektrode, an die eine Gegenspannung angelegt werden kann. Die Ziehblende und die Elektrode unterhalb der Glühfadenwicklung sind aus dünnem VA-Blech, die Fokusblende ist aus einem ca. 4 mm starken Stück Stahl gefertigt (siehe Abb. 6.5).

¹ Der GAF 961028 besitzt zwei analoge Eingänge zur externen Steuerung von AC – und DC- Spannungsanteil des Führungsfelds. Der Steuerungs-PC beinhaltet eine DAC-Karte, somit ist prinzipiell die Steuerung beider Spannungen über das Programm möglich, jedoch ist momentan das Rampen der DC-Spannung fehlerhaft. Der AC-Spannungsanteil läßt sich bei den derzeitigen Programmparametern über den Computer von 0 - 2000 V_{pp} variieren.

² Eingestellte Adresse: 19

³ Das Relais an der unteren Kalotte ist inzwischen eigentlich überflüssig, da das Anlegen eines zusätzlichen positiven Extraktionspulses dort zu keiner Erhöhung des Ionensignals führte [Hoef97, Alhe97]. Nur während der Arbeit von S. Kleineidam wurde die Kombination von zwei Pulsen verwendet [Klei95]. Davor wurde ein positiver Puls zum sicheren endgültigen Leeren der Falle verwendet [Ruth92].

⁴ Nach Abschluß der Messungen für diese Arbeit brannte während des F-Praktikums der Glühfaden durch. Er wurde durch einen Faden mit 4 Wicklungen ersetzt, was für das bestehende Experiment im Gegensatz zum H₂⁺-Experiment, wo eine möglichst kurze Erzeugungszeit, d.h. möglichst hohe Erzeugungseffizienz benötigt wurde, unerheblich ist.

Während des Experimentierens wird der Glühfaden mit Hilfe eines Präzisions-Stromgebers (Digistant 6422, Instabilität¹ $<10^{-5}$, siehe auch [Sche91]) permanent mit einem Strom von 1,4 A geheizt. Mittels einer Spannungsquelle (Oltronix B505, 0 – 400 V) wird die unter dem Faden befindliche Elektrode auf eine gegenüber dem Faden negative Spannung gelegt, so daß die emittierten Elektronen nach oben in Richtung Falle gedrückt werden. Die Fokusblende liegt ebenfalls gegenüber dem Faden auf leicht negativem Potential (Spannungsquelle: Oltronix B504, 0 – 100 V), die Ziehblende ist geerdet. Das Gesamtsystem aus Glühfaden, Gegenspannungs-

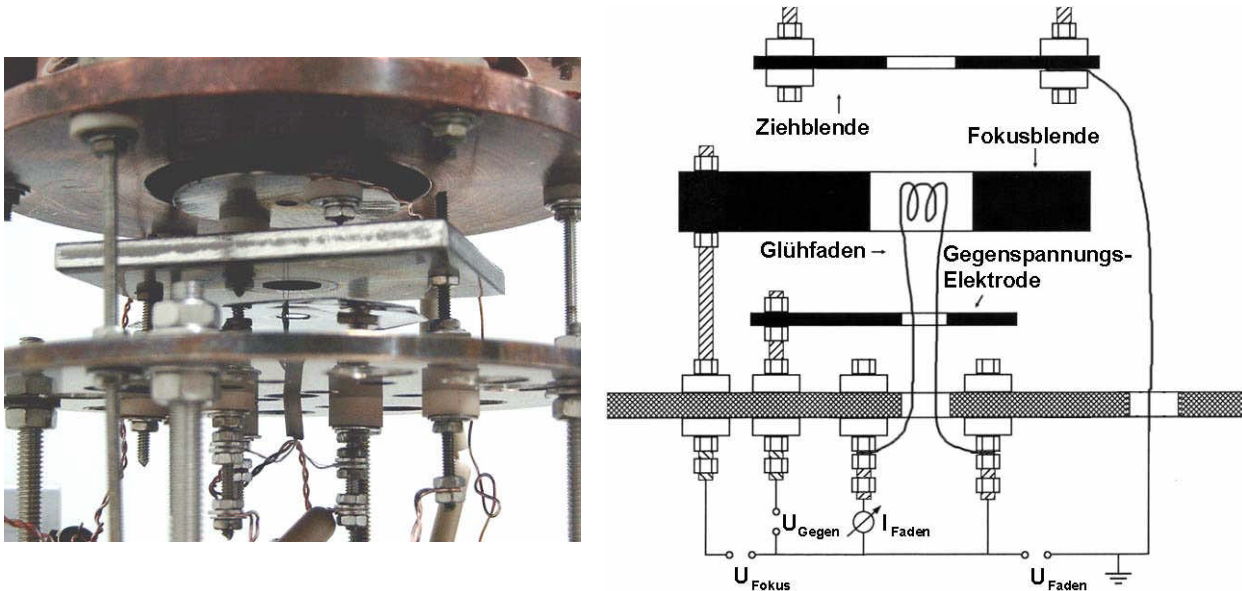


Abb. 6.5: Elektronenkanone. Foto und schematische Darstellung. Die Ziehblende ist – elektrisch isoliert – an der unteren Kalotte befestigt, darunter sind auf der Trägerplatte (siehe auch Abb. 6.2) die dicke Fokusblende, der Faden und die Gegenspannungsblende montiert.

Elektrode und Fokusblende wird im Meßzyklus für die Zeitdauer der Ionenerzeugung auf ein gegenüber Ziehblende und Falle negatives Potential von etwa -300 V gelegt, so daß die vom Faden emittierten Elektronen mit ausreichender kinetischer Energie in die Falle beschleunigt werden. Da die Ionisierungsenergie von N_2 15,58 eV beträgt, kann die Ionisierung sowohl durch die Elektronen aus der Kanone als auch durch Sekundärelektronen erfolgen. Nach, bzw. vor dem Elektroneneinschuß wird das Potential auf 0 V geschaltet, so daß in dieser Zeit keine Elektronen in die Falle gelangen. Die Schaltung des Potentials (Spannungsquelle: Oltronix B505, 0 - 400 V) erfolgt durch einen Hochspannungsschalter, der vom Experimentrechner durch TTL-Pulse variabler Länge gesteuert wird. Die Dauer der Erzeugungszeit ist so am Rechner zwischen 9 und 30000 ms einstellbar. Da die Erzeugungszeit auf jeden Fall lang im Vergleich zur Führungsfeldperiode ist, erfolgt hier keine Synchronisation mit der Phase des Führungsfelds.

Die Anordnung zur Ionenerzeugung entspricht im Prinzip der von Thorsten Ruths gebauten und ausführlich getesteten [Ruth92]. Carsten Henning hat diese während seiner Diplomarbeit weiter verbessert und die aktuell im Experiment verwendete Kanone gebaut [Henn94]. In seiner Arbeit finden sich Messungen zur Optimierung der Spannungen der Elektronenkanone, bei Stephan Kleineidam [Klei95] Messungen zur Emission des Fadens bei unterschiedlichen Strömen.

¹ Diese Konstanz war beim H_2^+ -Experiment nötig, vor allem im Hinblick auf das durch den Glühfaden erzeugte Magnetfeld. Zur heutigen Untersuchung von Resonanzen gespeicherter Ionenwolken würde auch eine geringere Konstanz der Stromquelle genügen.

6.1.5 Ionennachweis

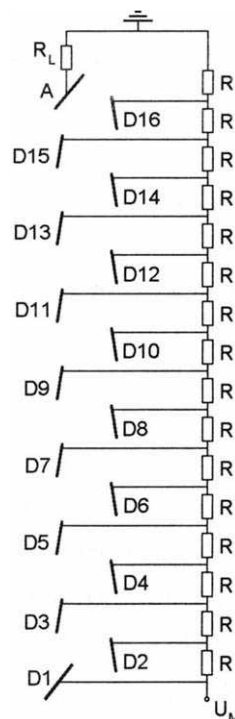
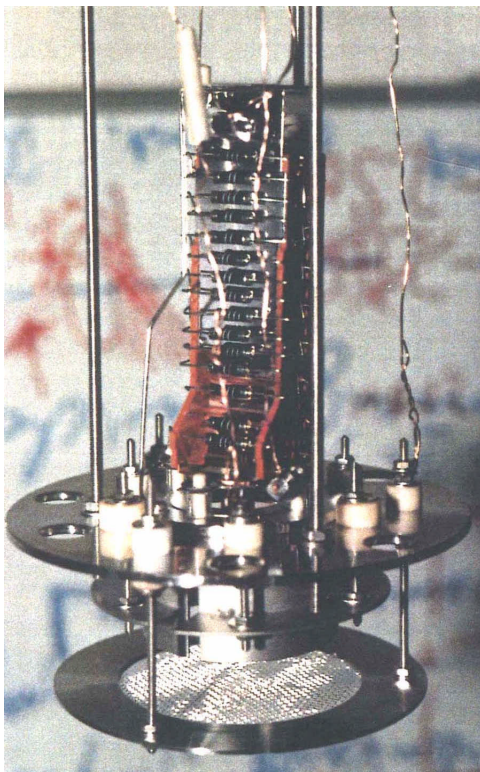
Zum Nachweis der Ionen wird ein destruktiver TOF-Nachweis (time of flight) verwendet. Die sich in der Falle befindlichen positiven Ionen werden durch Anlegen eines negativen Spannungspulses an die obere Kalotte aus der Falle beschleunigt. Die Ionen werden dann nach einer gewissen Flugstrecke, die zur zeitlichen Trennung unterschiedlicher Ionensorten dient, von einer Ionenoptik auf einen Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) fokussiert. Der auch als Ionenmultiplier bezeichnete SEV erzeugt ein zur Anzahl der primär auftreffenden Ionen proportionales Signal, das groß genug ist, daß es direkt ohne weitere Verstärkung von einem ADC digitalisiert werden kann und an den Meßrechner zur Speicherung weitergeleitet wird.

Das Meßprinzip des destruktiven Nachweises wurde an dieser Apparatur seit 1992 [Ruth92] verwendet¹, 1994 wurde das anfangs dazu verwendete Channeltron durch den jetzt noch verwendeten SEV ersetzt.

Der Nachweis, bestehend aus Sekundärelektronenvervielfacher und Ionenoptik ist an drei Gewindestangen am oberen Flansch hängend in der Apparatur eingebaut (siehe [Henn94], S. 50)

Sekundärelektronenvervielfacher:

Der Nachweis der Ionen geschieht mittels eines Ionenmultipliers der Marke Philips (XP 1600 series). Dieser besteht aus 16 Dynoden, die über eine Spannungsteilerkette miteinander verbunden sind (siehe Abb. 6.6). Die Widerstände des Spannungsteilers sind dabei in Glas eingeschmolzen, um ihre Vakuumtauglichkeit zu gewährleisten. An die erste Dynode des SEV wird eine negative Spannung von typischerweise -1300 bis -2000 V angelegt, hinter der letzten Dynode befindet sich die Anode, die auf Erdpotential liegt. Die auf die erste Dynode auftreffenden Ionen lösen aus dem Dynodenmaterial (CuBe) Sekundärelektronen aus, die zur nächsten Dynode beschleunigt werden,



Dn: n-te Dynode
A: Anode
 U_M : Multiplierspannung

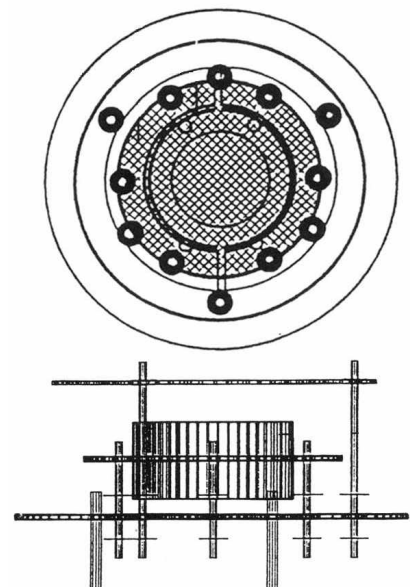


Abb. 6.6: Foto des Nachweissystems bestehend aus Ionenoptik (Netz und Zylinder, unten im Bild) sowie dem SEV mit den Widerständen des Spannungsteilers [Henn94]. Daneben schematische Darstellung des SEVs [Klei95] und Zeichnung des ionenoptischen Systems aus Netz und Zylinder [Henn94].

¹ Davor wurde ein elektronischer Nachweis verwendet, ähnlich dem in Kapitel 4.4.3 beschriebenen.

wo sie wiederum Sekundärelektronen erzeugen. Laut Spezifikation beträgt der Verstärkungsfaktor des gesamten Multipliers 10^7 bei einer Kathodenspannung von -2500 V, die Quanteneffizienz liegt für positive Ionen mit einer Energie von 1 keV bis 3 keV zwischen 15% und 30%¹. S. Kleineidam, der den SEV zahlreichen Tests unterzogen hat, erhielt bei seinen Abschätzungen für H^+ einen um den Faktor 15 höheren als den angegebenen Verstärkungsfaktor [Klei95]. Die Gesamtzahl an Sekundärelektronen trifft während etwa 5 ns an der Anode ein, was mit einem Oszilloskop über einen 50 Ω -Widerstand gemessen als Spannungspuls mit einer Anstiegszeit von ca. 3 ns und einer Höhe von einigen hundert Millivolt beobachtet werden kann.

Um die Lebensdauer des SEV zu erhöhen, wird die Hochspannung beim Meßablauf nur während der Nachweisphase von ca. 30 ms Dauer an der Kathode angelegt. Nach Alheits Abschätzung [Alhe97, S. 61] verlängert diese Maßnahme² die Lebensdauer etwa um den Faktor 1000.

Der Umstieg von einem Channeltron auf den SEV brachte damals laut Henning eine Vergrößerung der Ionensignale um mehr als eine Größenordnung. Allerdings verschlechterte sich das Vakuum durch die glasgekapselten Widerstände des SEV um eine Größenordnung.

Ionenoptik:

Der Abstand von der oberen Kalotte bis zur Kathode des SEV beträgt 70 mm. Daraus ergeben sich Laufzeitunterschiede unterschiedlicher Ionensorten, die eine zeitliche Signaltrennung und Diskriminierung möglich machen. Wegen der langen Flugstrecke müssen jedoch die Ionen auf die Kathode des SEV fokussiert werden. Dazu dient eine Ionenoptik bestehend aus einem Netz und einem Zylinder³ (beides aus VA-Stahl). An beide werden negative Spannungen angelegt, wobei nach Tests von Henning [Henn94] eine hohe Netzspannung (ab -700 V) alleine schon genügt, um alle extrahierten Ionen auf die SEV-Kathode zu lenken. Bei geringeren Netzspannungen wird eine zusätzliche Zylinderspannung benötigt, um eine vergleichbare Ionenausbeute zu erhalten.

Im Experiment liegen die Spannungen an der Ionenoptik permanent an. Die Spannung am Beschleunigungsnetz wird durch ein DC-Power Supply HP Harrison 6110 A (0 V bis -3000 V) bereitgestellt, die am Zylinder von einem HV Power Supply Canberra 3002 (0 V bis -2000 V). Der Spannungspuls an der oberen Kalotte und die SEV-Spannung werden für den Nachweis der Ionen auf die Phase des Führungsfelds getriggert geschaltet. Wie Tests von M. Holzki [Holz97] gezeigt haben (siehe auch [Wald79]), hat die Phase des Führungsfelds einen großen Einfluß auf Form und Größe des Ionensignals. Die Spannung für die Endkappe wird von einer Oltronix B 605 D Spannungsquelle (0-500 V) erzeugt und über einen vom Experimentrechner über TTL-Pulse ansteuerbaren HV-Schalter an die obere Kalotte angelegt. Der SEV erhält seine Spannung von einer Fluke 408 B Hochspannungsquelle, ebenfalls durch einen Hochspannungsschalter (2 Elektronik-Boxen) vom Rechner gesteuert.

Das Signal des SEV wird weitergeleitet an einen ADC (EHM 820713, Eigenbau des Elektroniklabors, ähnlich SEN FE 286). Dieser erhält von der Experimentelektronik ein Steuergate, das zeitlich mit dem Eintreffen des SEV-Signals abgeglichen werden muß. Der ADC erzeugt einen NIM-Pulszug mit einer Frequenz von ca. 15 MHz und einer Dauer, die proportional der während des Gates eingetroffenen elektrischen Ladung ist. Dieser Pulszug wird in einen TTL-Pulszug umgewandelt und an die Vielkanalzählerkarte im Rechner weitergeleitet, wo die Anzahl der Pulse gezählt, abgespeichert und graphisch dargestellt wird.

¹ Nach R. Alheit [Alhe97, S. 61]. Der Wert deckt sich mit dem von M. Holzki [Holz97, S. 29] angegebenen von ca. 20%, wohingegen S. Kleineidam, der eine Nachweiseichung durchgeführt hat, die Nachweiseffizienz des SEV mit 30-45% für Betriebsspannungen zwischen -1400 V und -2800 V angibt [Klei95, S. 39].

² Ohne diese Maßnahme würde bei der Ionenerzeugung ein nicht geringer Ionenstrom auf die SEV-Kathode treffen.

³ Der Zylinder besteht aus zwei separaten Halbschalen, die extern elektrisch verbunden sind.

6.1.6 Meßzyklus und Experimentsteuerung

Eine Messung besteht an diesem Experiment bedingt durch die destruktive Art des Nachweises aus vielen Einzelmessungen, wobei der Meßzyklus (Abb. 6.7) bestehend aus Erzeugungszeit, Wartezeit und Nachweiszeit fortlaufend wiederholt wird:

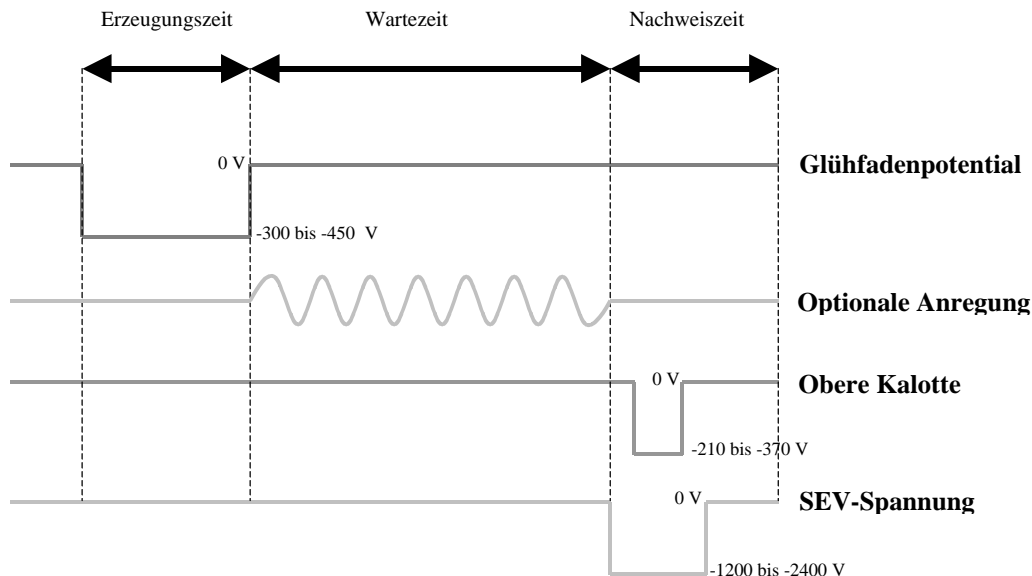


Abb. 6.7: Zyklus einer Einzelmessung. Erzeugungszeit und Wartezeit können vom Anwender eingestellt werden, die Nachweiszeit ist gekennzeichnet durch den ca. 1,3 ms langen Extraktionspuls, die während ca. 30 ms anliegende SEV-Spannung sowie die vom PC zur Datenverarbeitung benötigte Zeit, bevor dieser einen neuen Zyklus startet.

Der gesamte Meßablauf ist dabei automatisiert und wird von einem PC mit Hilfe eines von Stefan Krause [Krau04] geschriebenen Turbo-Pascal-Programms gesteuert. Als Schnittstelle zwischen PC und Experiment dient eine von Christoph Gerz entwickelte Vielkanalplatine, über die die zeitliche Steuerung von Erzeugung, Wartezeit und Nachweis sowie die Datenaufnahme erfolgt. Die Ansteuerung des Führungsfeldverstärkers erfolgt über eine DAC-Karte, die Steuerung des Frequenzgenerators über eine GPIB-Karte. Am Experimentrechner können im Turbo-Pascal-Steuerprogramm unterschiedliche Meßabläufe eingestellt werden:

Signalhöhenmessung: Diese Art von Messung ist zur manuellen Einstellung und Optimierung der Experimentparameter¹ (Spannungen und Phasenlage von Erzeugung und Nachweis) gedacht. Im Programm werden daher lediglich die Parameter Erzeugungszeit, Wartezeit² und optional eine externe Ionenanregung mit festen Werten von Frequenz und Amplitude sowie die gewünschte Anzahl von Datenpunkten eingestellt, so daß der Rechner den Meßzyklus immer wieder mit konstanten Parametern wiederholt, so daß alle externen Einstellungen justiert werden können, während man das Ionensignal auf dem Oszilloskop oder dem Monitor beobachtet.

Sättigungsmessung: Diese Messung dient dazu, das Füllen der Falle mit Ionen zu beobachten und die SEV-Verstärkung mit Hilfe der SEV-Hochspannung auf den ADC

¹ Dies sind die Spannungen der Ionenerzeugung (Fadenpotential, Fokussierung, Gegenspannung) und des Nachweises (Extraktionspuls, Zylinderspannung, Beschleunigungsnetz) sowie die Phase des Extraktionspulses. Außerdem muß das Gate für den ADC auf das Ionensignal abgestimmt sowie das "Pedestal" des ADC eingestellt werden.

² Die Auswurfzeit wird immer auf den Wert 30 ms gesetzt.

abzustimmen¹. Im Programm einstellbar sind daher minimale und maximale Erzeugungszeit (einstellbare Werte zwischen 9 ms und 30000 ms) sowie die Zahl der Datenpunkte. Der Computer erhöht nun von Meßzyklus zu Meßzyklus die Erzeugungszeit um einen konstanten Wert. Im Programm eingestellt wird außerdem die (konstante) Wartezeit und optional eine externe Ionenanregung mit festen Werten von Frequenz und Amplitude.

Stabilitätsdiagramm: Mit diesem Programm lassen sich Schnitte durch das Stabilitätsdiagramm durchführen, vergleichbar denen in Kapitel 5.3. Dabei werden vom Rechner wahlweise V_0 oder U_0 von Meßzyklus zu Meßzyklus schrittweise vom eingegebenen minimalen bis zum eingegebenen maximalen Spannungswert erhöht (maximale V_0 -Auflösung ca. 1 V)². Erzeugungszeit, Wartezeit und eine optionale externe Ionenanregung werden als feste Parameter angegeben.

Speicherzeit: Um Speicherzeitmessungen vergleichbar denen in Kapitel 5.4 durchführen zu können, wird hier bei sonst festen Parametern (Erzeugungszeit, optionale externe Anregung) die Wartezeit von einem eingegebenen Minimalwert schrittweise bis zu einem eingegebenen Maximalwert vergrößert.

Makrofrequenzen: Mit dieser Messung kann das Anregungsspektrum der Ionen aufgenommen werden. Die Anregungsfrequenz wird vom Programm zwischen den eingegebenen Minimal- und Maximalwerten schrittweise vergrößert. Feste Parameter der Messung sind die Anregungsamplitude des Funktionsgenerators³ sowie Erzeugungs- und Wartezeit.

In Abbildung 6.8 ist der Schaltplan des Experiments im Gesamtüberblick dargestellt. Der zeitliche Ablauf einer Meßsequenz soll kurz anhand des Schaltplans erklärt werden. Dabei wird von einer Stabilitätsdiagramm-Messung mit eingeschalteter externer Anregung ausgegangen, um alle Funktionen miteinzubeziehen. Alle Spannungsversorgungen und das Fallenfeld seien eingeschaltet, ebenso der Fadenstrom und der Funktionsgenerator.

Über die Vielkanalzählerkarte gibt der PC das TTL-Signal zum Ionenerzeugen. Das Signal läuft in den mit LED-Anzeigen bestückten Buffer ("Lichterkeite"), wo während anliegendem TTL-Signal die oberste LED ("Erzeugungszeit") leuchtet. Das Signal wird über ein LEMO-Kabel (alle TTL- und NIM-Signale laufen im Experiment über LEMO-Kabel) an den Schaltverstärker⁴ für das negative Fadenpotential gegeben. Somit wird das Potential der Elektronenkanone für die Dauer des TTL-Signals auf negative Spannung gelegt und die Elektronen gelangen in die Falle, wo sie Restgasmoleküle ionisieren. Wenn das TTL-Signal des Rechners nach der im Meßprogramm eingestellten Erzeugungszeit endet, stoppt auch die Ionenerzeugung. Gleichzeitig mit dem Ende des "Erzeugungssignals" wird vom Computer das nächste TTL-Signal gesendet und am Buffer leuchtet die 2. LED der "Lichterkeite" auf. Das weitergeleitete TTL-Signal öffnet, solange es anliegt, die Relais an den Endkappen, so daß die externe Ionenanregung durch den SRS-Funktionsgenerator während der Wartezeit eingeschaltet ist⁵. Beendet der Rechner das TTL-Signal für die Wartezeit, so trennen die Relais den SRS von den Kalotten⁶. Der Rechner sendet das nächste TTL-Signal "Auswurfzeit" für 30 ms an den Buffer, worauf die dritte LED aufleuchtet. Das TTL-Signal

¹ Der SEV kann deutlich höhere Signale produzieren als der ADC verarbeiten kann.

² Die Variation von U_0 funktioniert momentan aufgrund des Programms nur innerhalb bestimmter Spannungsbereiche. Für V_0 können Werte zwischen 50 und 2000 V_{pp} eingestellt werden.

³ Die Spannung kann zwischen 0,04 und 10 V_{pp} eingestellt werden. Dies entspricht jedoch nicht den tatsächlich an den Kalotten anliegenden Amplituden, da diese über 100 Ω (statt über vom SRS-Ausgang verlangte 50 Ω) geerdet sind.

⁴ Schaltplan bei [Holz92, Anhang]

⁵ Soll der Funktionsgenerator zum massenselektiven Entleeren der Falle während der Erzeugungszeit verwendet werden, muß das TTL-Signal für die Relais am Buffer in die oberste Buchse gesteckt werden.

⁶ Ohne Trennung zerstört der dann folgende Extraktionspuls den Endstufentransistor des SRS.

durchläuft einen Pulsformer¹ (30 ms auf 330 ns), wird in ein NIM-Signal umgewandelt und teilt sich auf. Zum Einen erzeugt es ein Gate (zunächst NIM, dann umgewandelt in TTL), das über einen Schalter und ein HV-Relais die Hochspannung für den SEV für eine fest eingestellte Zeit an diesen anlegt. Zum Anderen läuft es über einen Gate-Generator (geschaltet als Delay) in einen weiteren, den es wiederum verzögert verläßt, wobei es erneut aufgeteilt wird, wovon wieder ein Teil einen Gate-Generator passiert. Alle Gate-Generatoren haben die vom Führungsfeldverstärker als TTL-Signal gelieferte und dann in NIM-Signale umgewandelte Führungsfeldfrequenz als Zeitbasis.

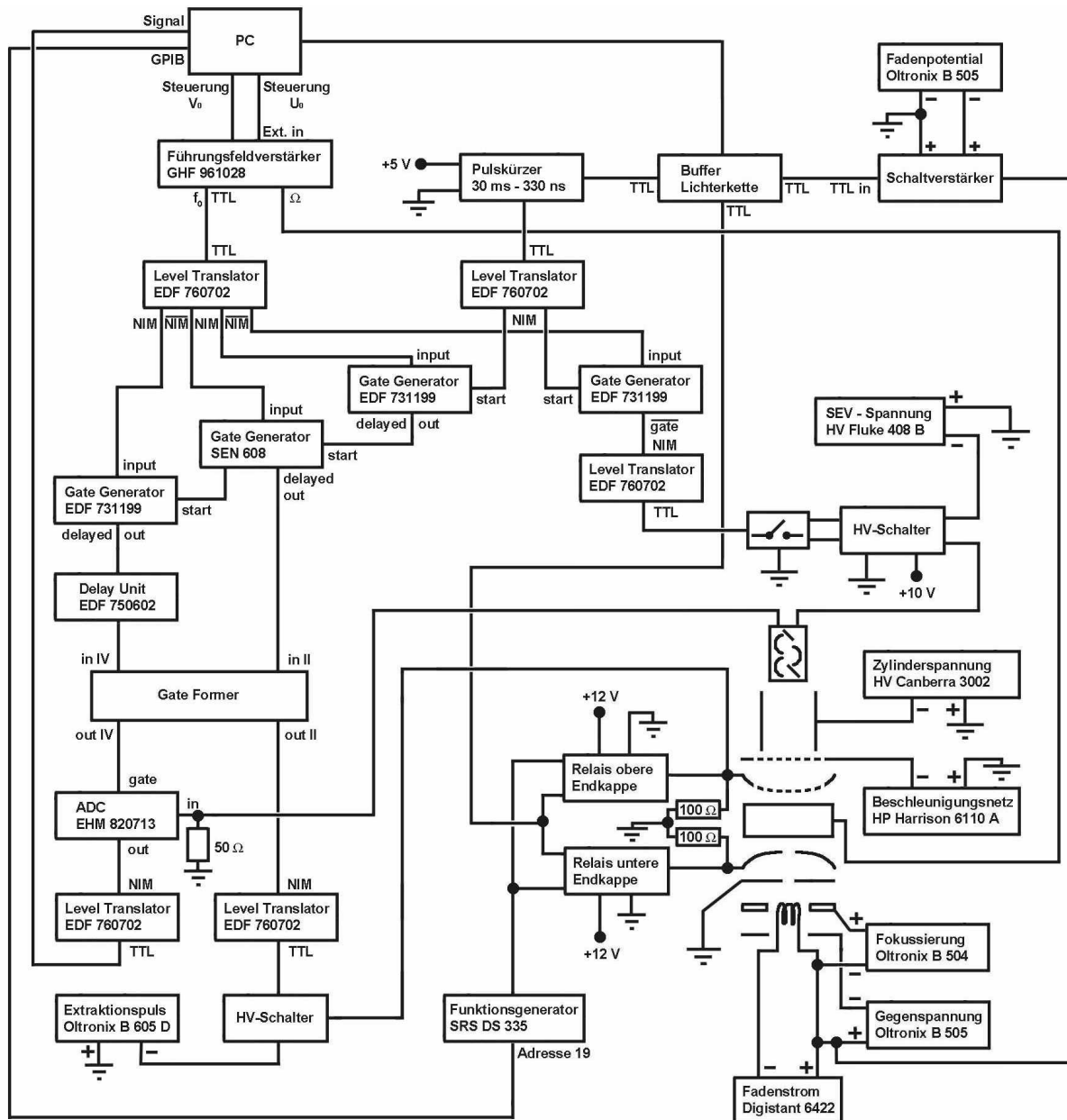


Abb. 6.8: Gesamtschaltplan des Experiments (Spannungsquellen für 5 V und 12 V nicht eingezeichnet).

Die zwei verbliebenen Signale laufen nun beide – eines noch weiter verzögert durch eine Delay-Einheit – in den Gate-Former. Ein Signal verläßt den Gate-Former, um – wieder in ein TTL-Signal verwandelt – den Hochspannungsschalter für den Extraktionspuls zu öffnen, wodurch an der oberen Kalotte die Spannung zur Extraktion der Ionen anliegt. Das andere der beiden den Gate-Former verlassenden Signale ist das Zählgate für den ADC. Gibt man dieses Zählgate und das vom SEV gelieferte Ionensignal auf ein Oszilloskop und nimmt zum Triggern den Extraktionspuls, so kann

¹ Nötig, da die Vielkanalzählerkarte nur Pulse im ms-Bereich ausgeben kann; Schaltung bei [Holz92, Anhang].

man mit Hilfe der Drehknöpfe am Gate-Former zwei Dinge tun: Durch Einstellen der Phase des Extraktionspulses bezüglich der Führungsfeldperiode läßt sich die Ionensignalhöhe optimieren. Außerdem kann das Zählgate innerhalb gewisser Grenzen stufenlos in Dauer und zeitlicher Position bezüglich des Extraktionspulses variiert werden, wodurch das mit dem ADC aufzunehmende Ionen-Signal von den Signalschwingungen durch die Extraktion und unerwünschten Ionensorten selektiert werden kann (siehe auch 6.2). Der ADC wandelt das Ionensignal mit einer kurzen Verzögerung¹ in einen NIM-Pulszug, der – umgewandelt in TTL – von der Vielkanalzählerkarte im Rechner eingelesen wird. Das Einlesen wird nicht über einen Trigger extern aktiviert, sondern die Kanäle werden nach einer bestimmten Warteschleifenzahl nach dem "Auswurfzeit"-Steuersignal vom Computer geöffnet, ausgelesen² und gespeichert.

Der Computer stellt die Daten als Meßpunkt im Diagramm dar und zeigt den "count" des letzten Meßpunkts und die "counts" der jeweiligen Kanäle (optional³) an. Entsprechend der Vorgaben des Speicherdiagramm-Menüs ändert der Rechner nun die SRS-Frequenz, die über GPIB an den Funktionsgenerator gegeben wird und die Spannungen des Führungsfeldes. Dazu wird über eine DAC-Karte eine analoge Steuerspannung an die Steuereingänge des Führungsfeldverstärkers gelegt. Dann beginnt der nächste Zyklus.

6.2 Ionensignal

Ein experimentelles Signal ist niemals frei von gewissen Eigenschaften der Meßmethode und zusätzlich immer belastet durch Einflüsse des technischen Aufbaus. So zeigen bei diesem Experiment die am Ende auf dem Computermonitor dargestellten Signalthöhenverläufe bei Änderung von Meßparametern - insbesondere dem Puffergasdruck - niemals die reinen funktionellen Zusammenhänge der Ionenspeicherung. In den Meßdaten enthalten sind auch immer die Charakteristika von Ionen-erzeugung und -nachweis und deren Abhängigkeit von den verwendeten Meßparametern. In diesem Unterkapitel wird zunächst das Signal erklärt, danach Ionenerzeugung und Nachweis vor allem im Hinblick auf Puffergasdruckänderungen betrachtet und einige technische Probleme erörtert.

6.2.1 Flugzeitspektrum und Signalverarbeitung

In Abb. 6.9 wird das vom SEV gelieferte Ionensignal mit dem Oszilloskop betrachtet. Ebenfalls dargestellt sind dort das TTL-Signal des Extraktionspulses, das Datenaufnahme-Gate für den ADC sowie der vom ADC gelieferte 15 MHz-Pulszug. Das Signal zeigt das Flugzeitspektrum der gespeicherten Ionensorten, wobei der Zeitpunkt des Eintreffens der Ionen entsprechend der Beschleunigung

$$a = \frac{e\nabla U}{m},$$

die ein geladenes Teilchen im elektrischen Feld erfährt und der zurückgelegten Wegstrecke

$$s = \frac{1}{2}at^2 \quad \text{nach} \quad t = \sqrt{\frac{2sm}{e\nabla U}} \quad \text{proportional zu} \quad \sqrt{\frac{m}{e}} \quad \text{ist.}$$

¹ Die Verzögerung kann Gerätintern durch Einlöten eines Kondensators variiert werden.

² Sollte irgendwann der Rechner gewechselt werden müssen, so muß auch die Schleifenzahl geändert werden, da diese von der Rechnergeschwindigkeit abhängt. Die Änderung erfolgt über das "Versuchsleiter-Menü". Dies ist auch nötig, wenn der ADC durch einen der anderen baugleichen oder durch SEN FE 286 ersetzt werden sollte, da deren interne delay-Kapazitäten meist unterschiedlich sind (natürlich könnten auch die Kapazitäten angeglichen werden).

³ Im "Versuchsleiter-Menü" einstellbar.

Aus dieser groben Abschätzung erhält man für die in Abbildung 6.9 im Flugzeitspektrum gezeigten Peaks die Massen 22, 28, 30 und 35¹ (28 und 30 praktisch zusammen).

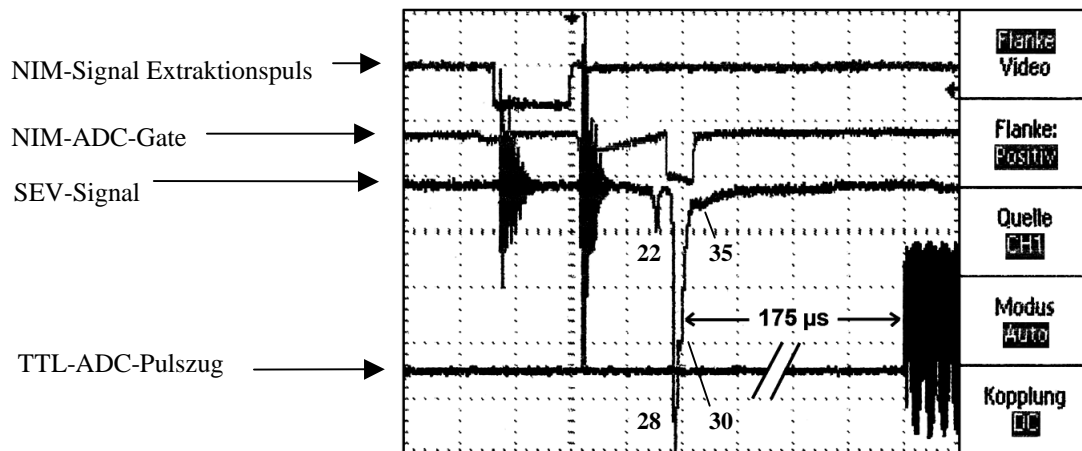


Abb.6.9: Von oben nach unten: NIM-Signal des Extraktionspulses, Datenaufnahme-Gate für den ADC, Flugzeitspektrum der Ionen mit Peaks der Massen 22, 28, 30 und 35 (mit Störungen durch das Schalten des Extraktionspulses), sowie 15 MHz-Pulszug des ADC. Daten zusammengestellt aus mehreren Oszilloskop-Aufnahmen (1ms/Div, SEV-Signal 50 mV/Div, sonst 1 V/Div).

Wie in der Abbildung zu sehen ist, wird das Gate um die zu betrachtende Ionensorte gelegt, so daß der ADC nur die in diesem Fenster eintreffende Ladung aufsummiert und eine der Ladungsmenge proportionale Anzahl von Pulsen ausgibt. Diese werden von der Vielkanalzählerkarte gezählt² und der Zahlenwert dann vom PC ausgelesen. Das Ergebnis dieser Einzelmessung wird dann auf dem Monitor als Datenpunkt entsprechender Signalthöhe in einem Diagramm dargestellt. Abbildung 6.10 zeigt eine Messung aus vielen Einzeldaten, etwa vergleichbar den in Kapitel 5 durchgeführten Sweeps über q (vgl. Abb. 5.9 – 5.13).

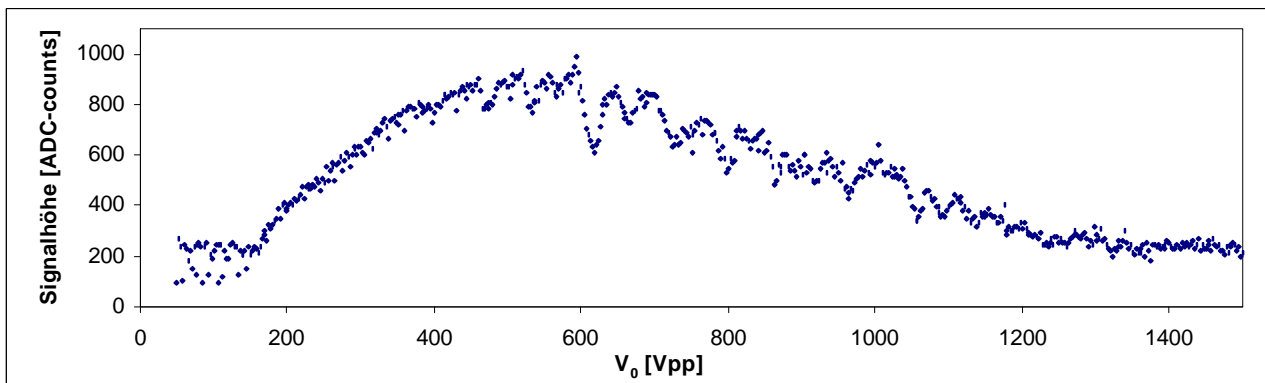


Abb. 6.10: Ergebnis einer Messung mittels automatisierter Datenaufnahme über ADC, Vielkanalzählerkarte und PC. Dargestellt ist das Ergebnis eines q -sweeps, wie er auch schon in Kapitel 5 gezeigt wurde. Während dort jedoch kontinuierlich gemessen wurde, ist hier jeder Einzelpunkt das Ergebnis eines Meßzyklus' bestehend aus Erzeugung, Speichern und Nachweis.

¹ Nach grober Berechnung wurde der 2. Peak als N_2^+ mit $m = 28$ festgesetzt, woraus sich die Massenverhältnisse aus den Flugzeitverhältnissen ergeben (siehe auch später). M. Holzki hat für diese Apparatur eine detailliertere Berechnung durchgeführt, die jedoch wegen Auswirkungen des Führungsfelds, nicht genau bekannter elektrischer Felder des Nachweises und aufgrund von Dämpfung Diskrepanzen zwischen Berechnung und Messung von ca. 20 % ergab [Holz97].

² Die Vielkanalzählerkarte zählt zunächst in den ersten Kanal, nach einer im Programm eingestellten Zeit wird auf den nächsten Kanal gewechselt, da der erste Kanal beim Erreichen der Maximalzahl wieder bei 0 beginnen würde. Das Wechselintervall zwischen den Kanälen ist so gewählt, daß bei der Pulsfrequenz des ADC (ca. 15 MHz) kein Kanal "überlaufen" kann. Der PC liest dann die Karte aus und summiert dabei über die verwendete Anzahl von Kanälen.

6.2.2 Technische Effekte

Verschiedene der technischen Lösungen am Experimentaufbau führen zu unerwünschten Effekten, diese werden hier – von der Erzeugung bis zur Datenspeicherung – erläutert:

Glühfadenpotential:

Bei der Ionenerzeugung sollte idealerweise die gesamte Ionenkanone während der Erzeugungszeit auf konstantes, negatives Potential gelegt werden (vgl. Abb. 6.7). Durch den Schaltverstärker¹ bedingt ändert sich jedoch die Lage dieses Spannungspulses bezüglich Erde bei Variation der Erzeugungszeit. Bei Vergrößerung der Erzeugungszeit zeigt sich eine zunehmende Verschiebung des gesamten Pulses zu positiven Spannungen hin, so daß der Puls nun einen immer größer werdenden positiven und einen immer kleineren negativen Anteil hat. Bei einer Gesamtpulshöhe von z. B. üblichen 356 V pendelt sich der positive Anteil bei größeren Erzeugungszeiten bei etwa 205 V ein (siehe Abb. 6.11, links), so daß die effektiv gegenüber der geerdeten Kalotte der Falle wirksame Beschleunigungsspannung für die Elektronen auf ca. 150 V abgesunken ist. Diese Eigenart des Schaltverstärkers hat zur Folge, daß bei anderen Erzeugungszeiten als der, bei der die Einstellungen² optimiert wurden, die Erzeugungseffizienz geringer ist. Die Größe des Effekts ist nicht direkt meßbar, man kann ihn aber mit einer entsprechenden Veränderung der Gesamtpulshöhe

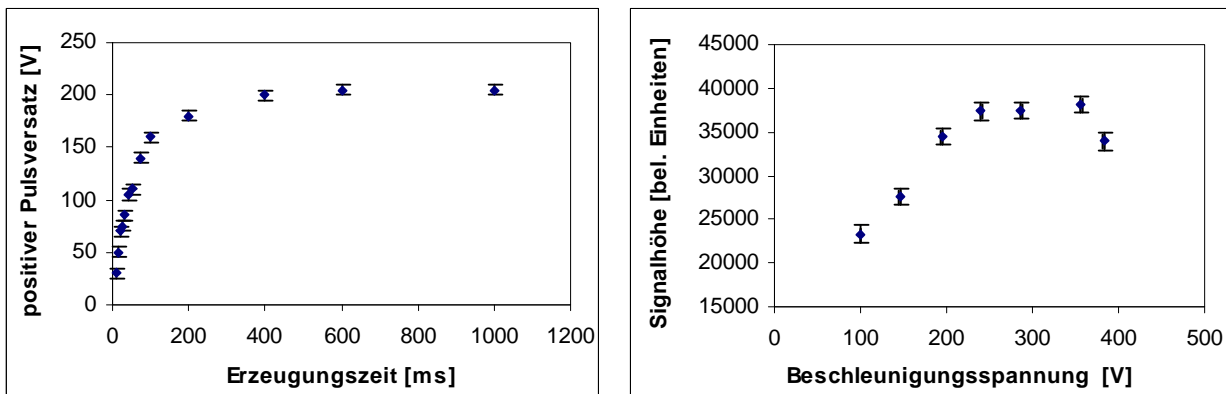


Abb. 6.11: Links: Positiver Versatz der Spannung zur Beschleunigung der Ionen vom Glühfaden zur Falle. Verwendet wurde die übliche Höhe des Spannungspulses von -356 V. Rechts: Veränderung der Signalthöhe bei Variation der Gesamtpulshöhe (Beschleunigungsspannung) und konstanter Erzeugungszeit.

vergleichen, die zu einer Signalthöhenverringerung von bis zu 25% führen kann. Sowohl eine Vergrößerung als auch eine Verringerung der Spannung bewirken einen Rückgang der Signalthöhe; eine Verringerung von 356 V auf 150 V bedeutet hier einen Signlrückgang um etwa ein Viertel. Dies kann aber nur als grobe Abschätzung dienen. In den Sättigungsmessungen müßte dieser Effekt tendenziell dazu führen, daß die Signalthöhe bei längeren Erzeugungszeiten gegenüber sehr kurzen Erzeugungszeiten etwas abgeschwächt wird.

Führungsfeldamplitude:

Bei der Extraktion der Ionen aus der Falle tritt das Problem auf, daß der an die obere Kalotte angelegte Extraktionspuls von der selben Größenordnung wie die Fallenwechselspannungsamplitude ist, so daß letztere einen Einfluß auf die kinetische Energie der die Falle verlassenden Ionen hat. Da die Extraktion bei einer Phase von ca. 180° geschieht, d.h. gerade wenn die Ionen im Fallenfeld ohnehin nach oben beschleunigt werden, führt eine Erhöhung der Fallenwechsel-

¹ Dies gilt für den alten Schaltverstärker, mit dem alle in dieser Arbeit beschriebenen Experimente durchgeführt wurden. Nach dessen Defekt während des F-Praktikums wurde er durch einen neuen, baugleichen ersetzt. Dessen Charakteristik wurde hier nicht mehr getestet.

² Optimieren der Ionenerzeugung: Das Signal vom SEV wird auf ein Oszilloskop gegeben und die Signalthöhe beobachtet, während Gegenspannung und Fokussierungsspannung bei ca. 350 V Fadenspannung auf maximales Signal einjustiert werden.

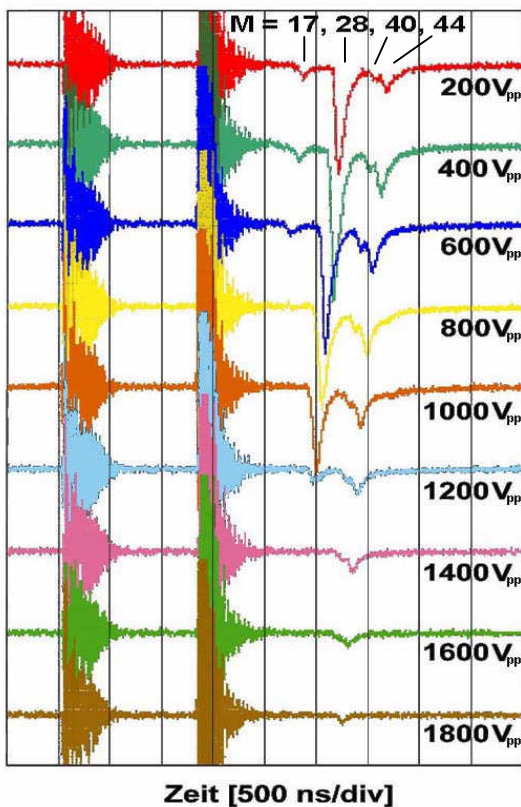


Abb. 6.12: Zeitliche Verschiebung der Massenpeaks des Flugzeitspektrums bei Variation der Fallenwechselspannungsamplitude V_0 . Vor den Ionensignalen elektronische Störungen durch das Schalten der Extraktionsspannung. Der 17 amu-Peak verschwindet bei ca. 800 V ebenso wie der Stickstoffpeak bei über 1200 V aufgrund des jeweiligen Speicherbereichsendes. Die hier zusammengesetzten Oszilloskopausdrucke wurden bei den Messungen zu Kapitel 6.3.1 durchgeführt, daraus ergibt sich die Massenzuordnung. Alle Einzelbilder wurden mit identischen Oszilloskopeinstellungen aufgenommen. $U_0 = 0$ V, $U_{SEV} = -1850$ V, $P = 5 \cdot 10^{-9}$ mbar.

SEV-Spannung:

Eine weitere Größe, die die Flugzeit der Ionen von der Falle zum Detektor beeinflusst (allerdings in sehr viel geringerem Maße als die Führungsfeldamplitude), ist die am Detektoreingang anliegende negative Verstärkungsspannung. Ihre Erhöhung verkürzt die Flugzeit. Bei Variation der Verstärkungsspannung ändert sich allerdings vor allem die Signalform (siehe Abbildung 6.13). Offensichtlich nimmt bei den später eintreffenden Ionen schwererer Masse die Verstärkung beim Erhöhen der SEV-Spannung nicht im gleichen Maß zu, wie bei den zuerst eintreffenden Ionen. Der Effekt erschwert die Interpretation von Signalhöhen, zu denen mehrere Ionensorten beitragen.

Abstimmung SEV-ADC:

Der SEV ist dank seiner großen möglichen Verstärkung in der Lage, Ausgangssignale von etwas über einem Volt Peakhöhe zu liefern. Der ADC verträgt jedoch maximal Eingangsladungen, die bei den hier üblichen Peakformen etwa 170 mV Signalthöhe entsprechen. Somit kann die Verstärkung des SEV selten ausgenutzt werden und das Auflösungsvermögen des Nachweises wird durch den

spannung zu einer Verkürzung der Flugzeit. In Abbildung 6.12 sieht man, daß sich der Stickstoff-Peak bei Vergrößerung von V_0 von 200 V_{pp} auf 1000 V_{pp} um ca. 200 ns verschiebt, der 4. Peak (Masse 44) verschiebt sich bei einer Änderung von V_0 von 200V_{pp} auf 1800 V_{pp} um ca. 400 ns.

Problematisch ist diese zeitliche Verschiebung im Hinblick auf die Massenselektion mit Hilfe des an den ADC angelegten Gates. Da das Gate in festem zeitlichem Abstand auf den Extraktionspuls folgt, verändert sich während eines Scans von V_0 durch das Stabilitätsdiagramm die im Gate befindliche Massenverteilung, was zu Verfälschungen der Signalthöhe führt und alle später bei den Messungen beschriebenen Probleme verursacht, die dadurch entstehen, daß man effektiv statt einer Ionensorte mehrere beobachtet, die Signalhöhen aber nicht trennen kann.

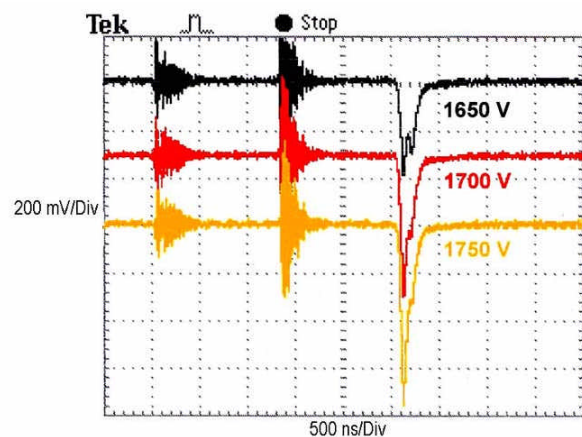


Abb. 6.13: Änderung der Signalform bei Variation der am Detektoreingang anliegenden negativen Verstärkungsspannung. $U_0 = 0$ V, $V_0 = 600$ V_{pp}, $P = 2 \cdot 10^{-6}$ mbar N₂.

ADC beschränkt. Die Tatsache, daß man nicht am Limit des SEV arbeitet, kommt allerdings seiner Lebensdauer zugute.

ADC-Gate und Pedestal:

Die derzeit eingesetzte Steuerungs-Elektronik zeigt ein mehr oder weniger regelmäßiges zeitliches Springen des Gates am ADC gegenüber Extraktionspuls und Ionensignal. Dieses Springen ist mit ca. 50-80 ns nicht unerheblich gegenüber der Gatelänge von meist etwa 300-400 ns, weswegen in vielen Meßdatensätzen ein breites „Band“ von Signalthöhen beobachtbar ist. Im schlimmsten Fall kommen Probleme mit der Einstellung des Pedestal des ADC hinzu, die „Aussetzer“ in Höhe des gerade eingestellten Pedestal-Werts zur Folge haben. Das Pedestal wird daher meist nicht so eingestellt, daß der Untergrund oder Offset klein ist bzw. bei dem im Datenblatt angegebenen Wert liegt, sondern daß die „Aussetzer“ und das Rauschen des ADC minimal sind¹. Abbildung 6.14 zeigt eine Messung mit stark ausgeprägtem "Band" und einer großen Anzahl von Aussetzern.

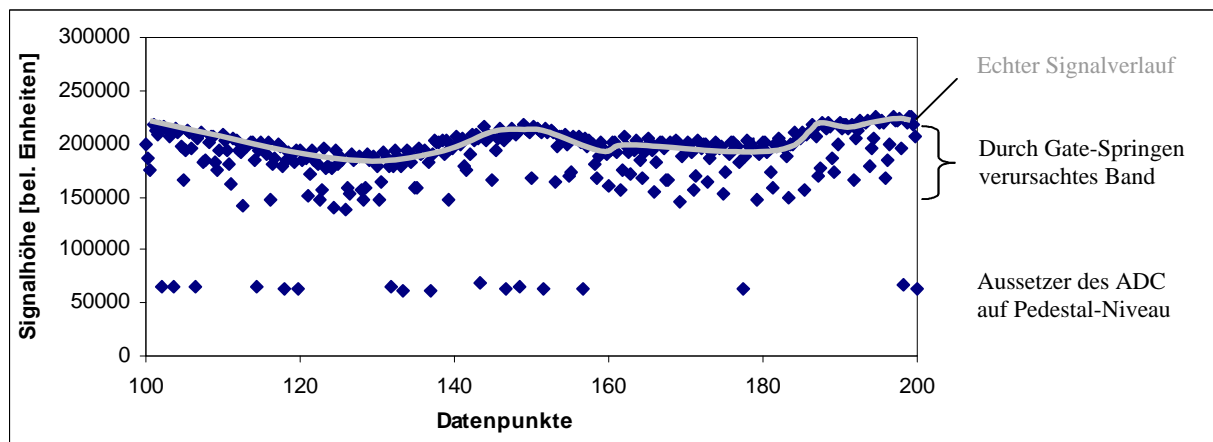


Abb. 6.14: Durch häufiges zeitliches Springen des Gates für den ADC verursachtes Meßwerte-„Band“, sowie durch die Einstellung des ADC bedingte „Aussetzer“. Das ADC-Pedestal war bei dieser Messung auf ca. 60000 eingestellt.

Datenaufnahme:

Funktioniert die Datenaufnahme computerseitig nicht, wird für diesen Datenpunkt der unphysikalische Signalthöhen-Wert „-1“ abgespeichert. Dies geschieht etwa alle 100 bis 200 Datenpunkte einmal. In einigen Diagrammen, wo die "-1" als Meßwert stört, wurde sie durch den jeweils vorangegangenen Meßwert ersetzt, in den meisten taucht sie jedoch nur deshalb nicht auf, weil die Diagramme nur den physikalisch relevanten Bereich ab 0 zeigen.

6.2.3 Das Füllen der Falle

Abbildung 6.15 zeigt fünf typische Ergebnisse von Sättigungsmessungen, bei denen von Meßpunkt zu Meßpunkt die Erzeugungszeit erhöht wurde. Bei den mit den SEV-Spannungen 1550, 1525 und 1500 V durchgeführten Messungen ist die Verstärkung des SEV so groß, daß die maximale ADC-Eingangsladung erreicht und überschritten wird. Der ADC liefert dann ca. 1250 counts. Bei den Messungen mit geringerer SEV-Spannung – und damit Vertärkung – ist der gesamte Verlauf des Fallefüllens sichtbar.

¹ Am Pedestal des ADC sollte normalerweise laut Datenblatt – ohne Signal am ADC-Eingang – eine Einstellung gefunden werden, so daß der ADC-Ausgang ca. 1000 counts liefert. Je nach verwendeter Vielkanalzählkarte (es existieren mehrere) wird vom PC ein um den Faktor 256 höherer Wert eingelesen (dies ist momentan am Experiment der Fall), so daß das Pedestal eigentlich auf 25000 counts justiert werden müßte.

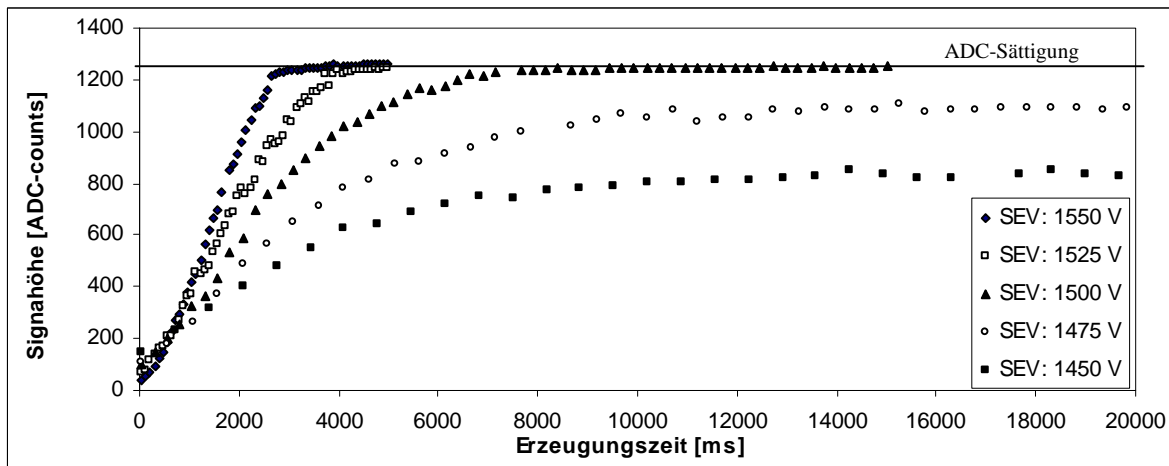


Abb. 6.15: Sättigungsmessungen zur zeitlichen Beobachtung der Fallenfüllung. Bei den ersten drei Graphen wird das Signal des SEV so groß, daß der ADC in Sättigung geht und seinen Maximalwert von ca. 1250 counts liefert (Pedestal von den Meßwerten abgezogen und durch 256 geteilt, um die tatsächlichen ADC-counts zu erhalten). Die anderen beiden Graphen zeigen den zeitlichen Verlauf der Fallenfüllung unter den eingestellten Bedingungen (Speicherparameter: $U_0 = 0$ V, $V_0 = 396$ V_{pp}, $P = 1 \cdot 10^{-9}$ mbar). Die Falle ist voll ab ca. 10 s Erzeugungszeit.

Die Falle ist hier ab etwa 10000 ms Erzeugungszeit gefüllt und auch eine weitere Verlängerung der Erzeugungszeit erhöht die gespeicherte Ionenzahl nicht. Verändert man jedoch den Fadenstrom der Elektronenkanone, so ändert sich die maximal erreichbare Fallenfüllung (siehe Abbildung 6.16).

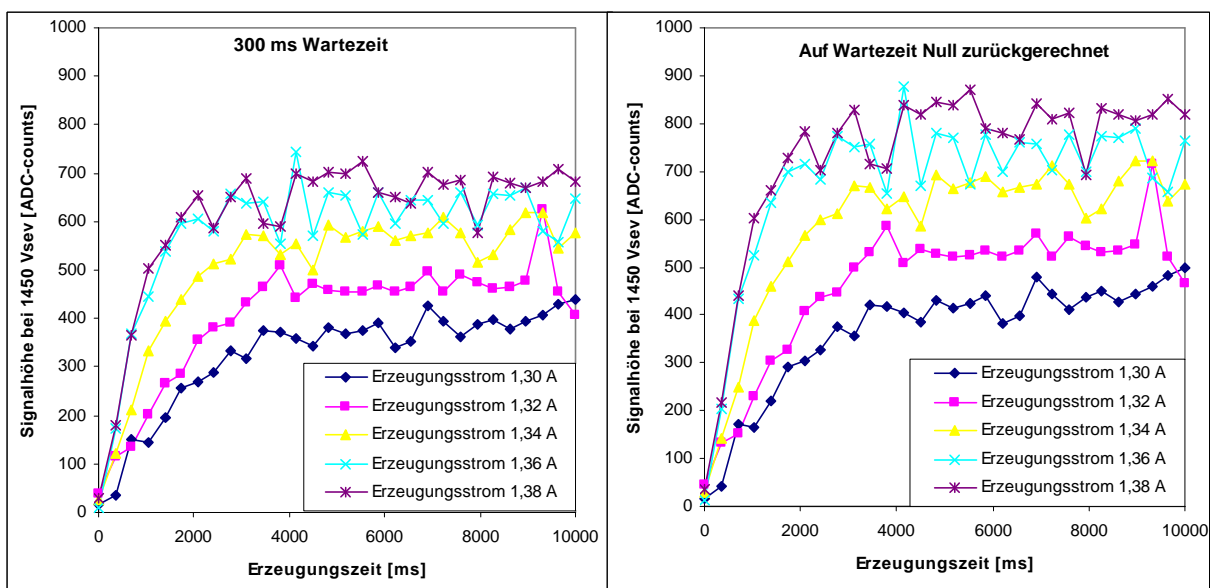


Abb. 6.16: Sättigungsmessung bei verschiedenen Strömen der Elektronenkanone. Links Meßdaten bei 300 ms Wartezeit (Pedestal abgezogen und durch 256 geteilt, um die tatsächlichen ADC-counts zu erhalten). Rechts auf Zeitpunkt 0 zurückgerechnete Meßkurven. $U_0 = -4,2$ V, $V_0 = 618$ V_{pp}, $P = 1 \cdot 10^{-8}$ mbar N₂.

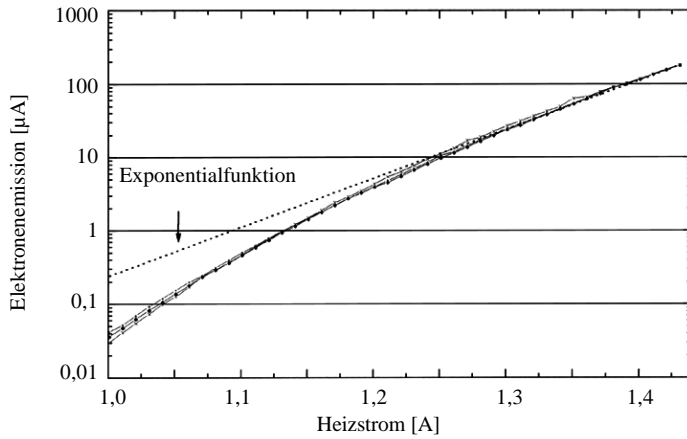
Allerdings zeigen die Sättigungsmessungen in den Abbildungen 6.15 und 6.16 links nicht die tatsächliche Fallenfüllung, da die Ionen zwischen Erzeugungszeit und Nachweis für eine Weile gespeichert werden¹ und währenddessen ein Teil bereits verloren geht. Wiederholt man die in Abb. 6.16 links gezeigte Messung bei unterschiedlichen Wartezeiten, so kann man die Signalthöhen auf Wartezeit Null zurückrechnen² (siehe Abb. 6.16 rechts).

Nun einige Details zur Ionenerzeugung und den dabei eine Rolle spielenden Größen:

¹ Technische Gründe des experimentellen Aufbaus bedingen eine Mindestlänge des Meßzyklus.

² Bei dieser Rückextrapolation wurde vereinfachend ein exponentieller Abfall der Signalthöhe während der Wartezeit angenommen. In Kapitel 6.4 wird die Speicherzeit ausführlicher betrachtet.

Für die Messung oben (Abb. 6.16) wurden Fadenströme zwischen 1,30 A und 1,38 A verwendet. Nach Messungen von S. Kleineidam zur Fadenemission [Klei95, S. 34] entspricht dies Elektronenströmen von 23 μ A bis 88 μ A, die in die Falle eingeschossen werden (siehe Abb. 6.17).



Heizstrom	Elektronenemission
1,30 A	23 μ A
1,32 A	32 μ A
1,34 A	45 μ A
1,36 A	73 μ A
1,38 A	88 μ A
Alle Werte	($\pm 1 \mu$ A)

Abb. 6.17: Fadenemission der im Experiment verwendeten Elektronenkanone nach S. Kleineidam [Klei95], rechts die für die Sättigungswerte in Abb. 6.16 relevanten Daten.

Dies entspricht einem Strahl von $1,4 \cdot 10^{14}$ bis $5,5 \cdot 10^{14}$ Elektronen pro Sekunde, die die Falle durchqueren. Bei typischen Beschleunigungsspannungen von 200 bis 350 V haben sie Geschwindigkeiten von etwa 8000 bis 11000 km/s und werden vom Fallenfeld aufgrund von dessen Radialsymmetrie nur unwesentlich abgelenkt. Auf ihrem Weg durch die Falle treffen sie auf Restgasatome und -moleküle, die je nach Anzahl, Stoßwirkungsquerschnitt und Ionisationsenergie in unterschiedlicher Menge ionisiert werden. Bei der Messung oben betrug der Restgasdruck $1 \cdot 10^{-8}$ mbar, d.h. die Dichte der Gasmoleküle ca. $2,7 \cdot 10^8$ Moleküle/cm³. Unter der vereinfachenden Annahme, nur die innerhalb eines Kubikzentimeters um das Fallenzentrum erzeugten Ionen würden gespeichert, werden im Folgenden nur die Moleküle innerhalb dieses Bereichs betrachtet. Die mittlere freie Weglänge der Elektronen ist nach [Wutz88] gegeben durch

$$\bar{l}_{e^-} = 4\sqrt{2} \cdot \bar{l}_{Gas} \quad \text{mit} \quad \bar{l}_{Gas} = \frac{6,65 \cdot 10^{-5}}{p} \text{ m} \cdot \text{mbar} \quad \text{für Luft}^1 \quad 6.1$$

und die Kollisionsrate beträgt
$$\dot{n} = \frac{v}{\bar{l}_{e^-}} \quad 6.2$$

mit v der Geschwindigkeit der Elektronen. Die Zahl der Stöße entlang der Flugstrecke s ist damit

$$N = \dot{n} \cdot t = \frac{v}{\bar{l}_{e^-}} \cdot \frac{s}{v} = \frac{s}{\bar{l}_{e^-}} \quad 6.3$$

Bei 10^{-8} mbar beträgt die mittlere freie Weglänge der Elektronen in Luft $3,8 \cdot 10^4$ m und die Kollisionsrate 220 bis 290 pro Sekunde. Damit ergeben sich für ein Elektron auf der Flugstrecke von einem Zentimeter im Mittel $2,6 \cdot 10^{-7}$ Kollisionen mit Restgasmolekülen. Bei obigem Elektronenstrom sind es somit $3,7 \cdot 10^7$ bis $1,5 \cdot 10^8$ Kollisionen pro Sekunde innerhalb des Kubikzentimeters. Die kinetische Energie der Elektronen ist mit 200 bis 350 eV groß im Verhältnis zur Ionisationsenergie der Moleküle (N_2 : 15,58 eV, O_2 : 12,07 eV, [Gmel36, Gmel58]), und es besteht – berechnet mit den Daten von [Inter29] bei einer Kollision im Mittel eine Ionisationswahrscheinlichkeit von ca. 13 %. Ob die gebildeten Ionen gespeichert werden, hängt nun wesentlich von den

¹ Angesichts der Restgaszusammensetzung (siehe Abb. 6.4) erscheint es sinnvoll, den Wert für Luft zu verwenden.

Speicherparametern sowie dem Anfangsort des Ions und der Führungsfeldphase zum Zeitpunkt der Ionisation ab [Fisc59]. Außer durch den Elektronenstoß werden die Ionen nun durch das Führungsfeld aufgeheizt, so daß eine Speicherung vieler Ionen nur stattfindet, wenn diese durch Stöße mit anderen Restgasmolekülen thermalisiert werden. Durch derartige Stöße kann es auch zu Sekundärionisation oder Ladungsaustauschreaktionen kommen. Bei gerader Bewegung des Primärions käme es innerhalb eines Zentimeters Flugstrecke zu etwa $1,5 \cdot 10^{-6}$ derartigen Kollisionen, der Weg wird jedoch durch den Einfluß des Fallenfelds auf das Ion um ein vielfaches verlängert.

Das Ion wird nun – sofern seine kinetische Energie die Potentialtopftiefe der Falle (siehe Kapitel 2.3.4) nicht übersteigt und je nach dem, wie gut die Speicherbedingungen für seine Masse erfüllt sind – gespeichert. Wie viele Ionen gespeichert werden, hängt von mehreren Faktoren ab, bei genügend langen Erzeugungszeiten stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Erzeugung- und Verlustmechanismen ein:

Erzeugung & Kühlung: Ionen werden mit etwa konstanter Rate erzeugt. Auch die Kühlrate bleibt während der Erzeugung theoretisch konstant, in der Praxis ist meist eine Druckerhöhung und damit eine steigende Kühlrate feststellbar.

Verlustmechanismen:

Coulombabstoßung: Während die Falle sich füllt, sinkt aufgrund des Potentials der gespeicherten Ionen die noch "freie" Potentialtopftiefe der Falle und damit die maximale kinetische Energie, die ein Ion noch haben darf, um gespeichert zu werden. Zudem nimmt die Zahl der Ion-Ion-Kollisionen zu.

kinetische Energie: Stöße mit Elektronen, Ionen und Atomen können die kinetische Energie der gespeicherten Ionen so erhöhen, daß sie nicht mehr gespeichert werden können.

Speicherbedingung: Gespeicherte Ionen können durch Stöße neutralisiert oder mehrfachionisiert werden und erfüllen dann nicht mehr die Speicherbedingungen.

Phase des Feldes: Trotz relativ geringer Energie werden Ionen nicht mehr gespeichert, wenn ein Umladungsprozeß oder niederenergetischer Stoß zu ungünstiger Phase des Führungsfelds geschieht.

Für ein einzelnes Ion ist die Wahrscheinlichkeit, daß es aufgrund eines hochenergetischen Stoßes, der Änderung des Ionisationszustands oder eines Ereignisses bei unpassender Phase nicht mehr gespeichert wird, über die Erzeugungszeit konstant, die Wahrscheinlichkeit insgesamt für ein solches Ereignis wächst proportional mit der Ionenzahl.

Das Potential der gespeicherten Ionen reduziert pro hinzukommendem Ion die Tiefe des noch übrigen, effektiven Speicherpotentials und damit die maximale kinetische Energie, mit der Ionen noch gespeichert werden. Dabei verläuft die Abnahme der Restpotentialtiefe linear mit der Zunahme der gespeicherten Ionen (siehe lineare Abhängigkeit zwischen gefüllter Potentialtopftiefe und Ladungsdichte, Gleichungen 2.48 bis 2.54). Entsprechend verkleinert sich der speicherbare Ausschnitt aus der Energieverteilung der Ionen.

Um Messungen an der Apparatur zu vergleichen oder die Geschwindigkeit des "Fallefüllens" zu ermitteln, genügt das Anpassen einer Exponentialfunktion bzw. einer linearen Funktion, sofern es um die Anfangssteigung der Sättigungskurve geht.

Am Ende bleiben z.B. ca. 25000 puffergasgekühlte Ionen in der Falle (volle Falle in Abb. 6.16 bei 1,38A und mit Nachweiseichung¹ nach S. Kleineidam). Dafür, daß bei unterschiedlichen

¹ Die Zahl bezieht sich jedoch nur auf die letztendlich nachgewiesenen Ionen.

Erzeugungsströmen die Falle am Ende unterschiedlich voll ist, gibt es theoretisch zwei Erklärungsmöglichkeiten:

- Die vielen beim Erzeugungsvorgang in der Falle befindlichen Elektronen kompensieren durch ihre Ladung etwas die abstoßende Wirkung der Coulombkraft zwischen den positiven Ionen, wodurch sich bei mehr anwesenden Elektronen - d.h. höherem Fadenstrom - mehr speicherbare Ionen in der Falle sammeln können.
- Wahrscheinlicher ist, daß unterschiedlich starkes Puffergaskühlen zu den Unterschieden in der maximal speicherbaren Ionenzahl führt. Verlängert man während einer Messreihe die Erzeugungszeit, so kann man währenddessen einen Druckanstieg feststellen. Dieser rührt daher, daß die Elektronen am Ende ihrer Bahn durch die Falle auf das Metall der Endkappe treffen und dort adsorbierte Atome und Moleküle herausschlagen. Bei einem höheren Elektronenstrom werden entsprechend mehr Atome und Moleküle freigesetzt, die in der Falle als Stoßpartner zur Ionenkühlung beitragen. Die freigesetzten Teilchen können auch direkt ionisiert aus der Oberfläche treten und so entsprechend ihrer kinetischen Energie zum Teil selbst gespeichert werden.

6.2.4 Druckabhängigkeit der Signalthöhe

Wie schnell und mit wie vielen Ionen sich die Falle füllt, hängt, wie oben schon angedeutet, auch vom Restgas- bzw. Puffergasdruck in der Apparatur ab. Dabei spielt es eine wesentliche Rolle, ob Stickstoff oder Helium als Puffergas verwendet wird¹. Die Signalthöhe, die man am Ende eines Meßzyklus erhält, zeigt jedoch nicht nur die Druckabhängigkeit der Ionenerzeugung, sondern hängt auch von der Druckabhängigkeit der Speichereigenschaften und des Nachweises ab.

Ionenerzeugung:

Bei der Verwendung von Stickstoff als Puffergas steigt die Erzeugungseffizienz, wenn sich mehr Moleküle im Raum der Falle befinden, da der von der Elektronenkanone kommende Elektronenstrahl auf eine größere Anzahl Stickstoffmoleküle treffen kann. Die Kollisionsrate hängt dabei linear vom Restgas-Druck ab. Einsetzen von Gleichung 6.1 in 6.2 ergibt für Stickstoff:

$$\dot{n} = \frac{v}{4\sqrt{2} \cdot 5,9 \cdot 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{mbar}} \cdot p \quad 6.4$$

Modifiziert wird die Anzahl der pro Zeiteinheit in der Falle eintreffenden Elektronen durch Ionisation von Restgasmolekülen schon vor der Falle; die Flugstrecke vom Glühfaden bis zur unteren Endkappe ist etwas länger als die Flugstrecke der Elektronen in der Falle, daher werden vor der Falle etwas mehr Restgasmoleküle ionisiert, als in ihrem Inneren. Dies beeinflusst die Bewegung der Elektronen in Richtung Falle und die Anzahl dieser Elektronen ($e^- + N_2 \rightarrow 2 e^- + N_2^+$). Die Ionisation vor der Falle ist jedoch auch linear vom Druck abhängig, so daß insgesamt die Ionenerzeugung in der Falle weiterhin eine lineare Abhängigkeit vom Druck behält. Diese läßt sich gut in den Anfangssteigungen von Sättigungsmessungen beobachten, wenn die Speicherparameter für Stickstoff günstig sind (s. Abb. 6.18). Dann spielen die Speichereigenschaften noch keine große Rolle und die Druckabhängigkeit des Nachweises ändert nichts an der Kurvenform.

¹ Wenn in diesem Kapitel von Stickstoff oder Helium als Puffergas geschrieben wird, sind immer die Gasgemische der Partialdruckdiagramme (Abb. 6.4) gemeint. Druckangaben beziehen sich immer auf den Gesamtdruck.

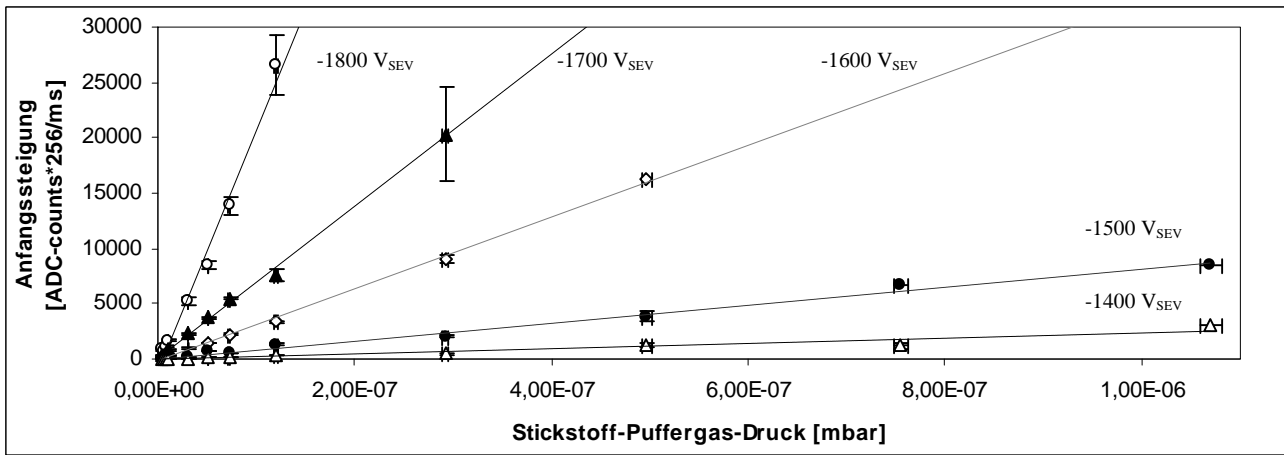


Abb. 6.18: Anfangssteigungen (d.h. Steigungen der Graphen aus Sättigungsmessungen bei kleinen Erzeugungszeiten) mit linearen Fits bei unterschiedlichen SEV-Spannungen bei Variation des Stickstoffdrucks. Bei für die Speicherung der Masse 28 guten Speicherparametern von $V_0 = 398 \text{ V}_{pp}$, $U_0 = 0 \text{ V}$ zeigt die Anfangssteigung hier die lineare Abhängigkeit der Erzeugungsrate vom Stickstoffdruck¹.

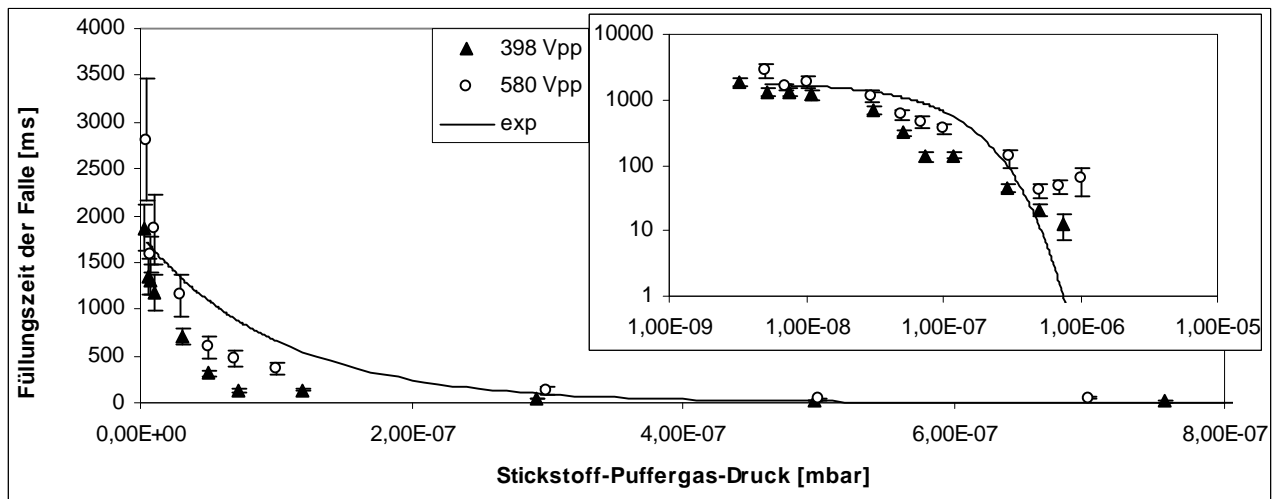


Abb. 6.19: Füllungszeit² der Falle aus Sättigungsmessungen bei $U_0 = 0 \text{ V}$ und $V_0 = 398 \text{ V}_{pp}$ bzw. 580 V_{pp} , doppelt-logarithmischen Auftragung im Inlet. Die Füllungszeit sinkt mit steigendem Puffergasdruck zunächst stärker als eine Exponentialfunktion, zu hohen Drücken hin jedoch deutlich schwächer.

Die Zeit, die zur Füllung der Falle benötigt wird, ist ebenfalls stark druckabhängig (Abb. 6.19). Sowohl die Kühlleistung als auch die Ionenbildung erhöhen sich bei Verwendung von Stickstoff-Puffergas mit dem Druck, so daß die Füllungszeit nahezu exponentiell abfällt. Bei höheren Drücken ist dies den Messungen jedoch nicht mehr anzusehen, da dann der druckabhängige Ionenverlust in der Wartezeit zwischen Erzeugung und Nachweis das Ionensignal dominiert.

Speichereigenschaften:

Mit dem Druck ändert sich die Zahl der Kollisionen der gespeicherten Ionen mit Puffergas- bzw. Restgasmolekülen. Dabei findet je nach Masse der Kollisionspartner und deren kinetischer Energie eine Verbesserung ("Kühlung") oder Verschlechterung ("Aufheizung") der Speicherbedingungen statt [Majo68]. Direkte Auswirkungen hat dies auf die Speicherdauer der Ionen und auf die Anzahl an Ionen, bei der die Falle voll ist. Verwendet man bei der Speicherung von Stickstoffionen

¹ Bei anderen Speicherbedingungen (z.B. bei $U_0 = 0 \text{ V}$ und $V_0 = 580 \text{ V}_{pp}$ bzw. 1250 V_{pp} – d.h. Masse 40) zeigen die Anfangssteigungen ein Maximum bei ca. $5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$, da dann der Ionenverlust während der Wartezeit die Messung bereits deutlich beeinflusst.

² Die Füllungszeit wurde durch Fit einer einfachen Exponentialfunktion an die Sättigungsmessungen bestimmt.

Stickstoff als Puffergas, so zeigt sich innerhalb des untersuchten Druckbereichs wegen der verhältnismäßig großen Masse des Puffergases eine auffällige Druckabhängigkeit der maximalen Signalthöhe: von niedrigen Drücken ausgehend, werden während der Erzeugungsphase nicht nur mehr Ionen erzeugt, sondern auch mehr Ionen aufgrund einer zunächst besser werdenden Kühlrate von der Falle eingefangen. Mit zunehmendem Druck steigt aber auch die Zahl an Kollisionen, die einen Ionenverlust zur Folge haben. Die Kurven zeigen daher ein Maximum bei einem charakteristischen Puffergasdruck und einen Abfall zu höheren Drücken, bei denen die Verlustmechanismen immer stärker dominieren (Abb. 6.20). Dieser Effekt wurde auch von Schwebel [Schw75] bei der Speicherung von Ar^+ in Argon-Puffergas beobachtet. Dieselbe Kurvenform mit Maximum erhält man auch, wenn man die Signalthöhen nach einer nicht maximalen Erzeugungszeit bei verschiedenen Drücken vergleicht.

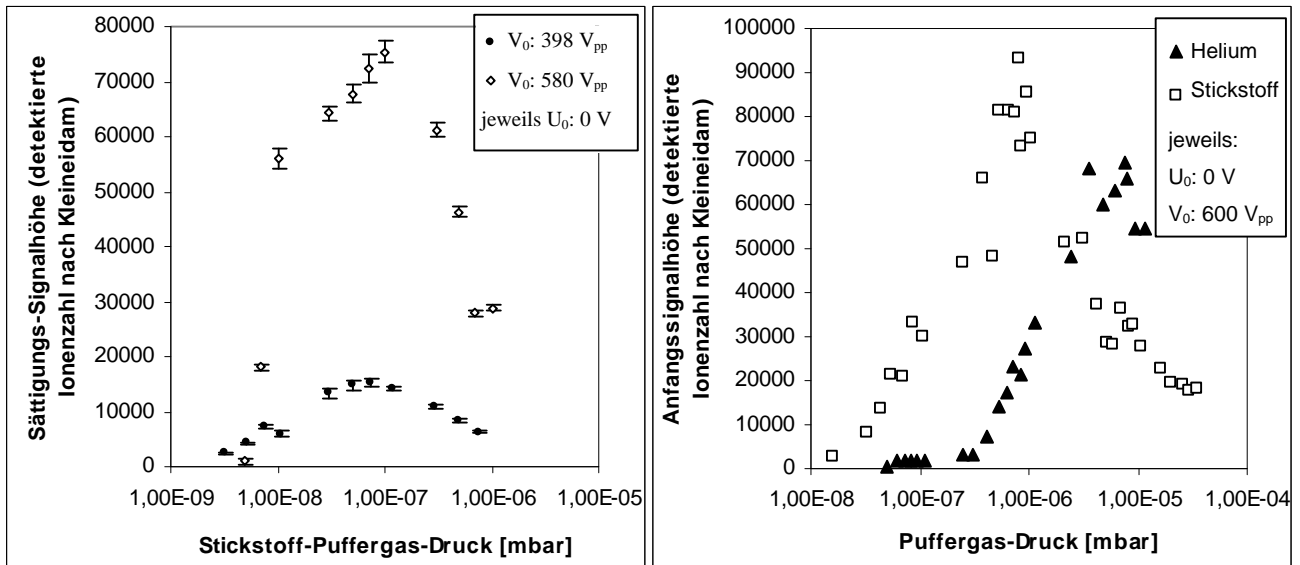


Abb. 6.20: Druckabhängigkeit der maximal speicherbaren Ionenzahl (links) und der Ionenzahl nach einer kurzen Wartezeit¹, hier Anfangssignalthöhe genannt (rechts). Bei der Speicherung von Stickstoffionen und der Verwendung von Stickstoff-Puffergas wird die maximale Signalthöhe bei zwei verschiedenen Arbeitspunkten im Speicherdiagramm jeweils beim gleichen Puffergasdruck erreicht. Die größte Anfangssignalthöhe wird jedoch bei einem höheren Druck erreicht. Bei Verwendung von Helium als Puffergas zeigt sich das Maximum bei noch höherem Druck, was durch die niedrigere Kühlleistung des leichteren Helium bedingt ist.

Bei einem sehr viel leichteren Puffergas wie Helium liegt dagegen die maximale Signalthöhe bei einem deutlich höheren Puffergasdruck, was entsprechend dem Massenunterschied zu Stickstoff plausibel ist. Der Abfall der Signalthöhe bei weiter steigenden Drücken deutet sich in der Kurve von Helium nur leicht an. Hier ist die Grenze des mit der Apparatur untersuchbaren Druckbereichs erreicht, da der ARGAS-Restgasanalysator nur für Drücke kleiner als $5 \cdot 10^{-5}$ mbar geeignet ist. Wie man in Abbildung 6.20 sehen kann, ist bei niedrigen Drücken das Puffergaskühlen mit Helium deutlich ineffizienter als mit Stickstoff.

Nach Ende der Erzeugungszeit führt das Puffergaskühlen zu einer Druckabhängigkeit der Speicherdauer. In Abbildung 6.21 sind die Speicherzeiten bei Stickstoff- und Helium-Puffergas gegenübergestellt. Die Kurve von Stickstoff zeigt im Gegensatz zu der von Helium kein ausgeprägtes Maximum. Entsprechend der schwereren Masse und dem oben beschriebenen Maximum bei der erreichbaren Signalthöhe kann man vermuten, daß bei sehr geringen Drücken ein Maximum existiert, die Daten sind in diesem Druckbereich jedoch nicht aussagekräftig genug,

¹ Die Werte nach einer kurzen Wartezeit entsprechen dem jeweils ersten Meßwert einer Speicherzeitmessung, d.h. dem Wert 10 ms nach Ende der Erzeugungsphase. Die Meßwerte wurden entsprechend der Nachweiskalibration von S. Kleineidam in detektierte Ionenzahlen umgerechnet (siehe später in diesem Kapitel).

zumal sich bei niedrigen Drücken auch die Restgaszusammensetzung beim Einlaß von Puffergas am stärksten ändert, da man nahe am mit der Apparatur erreichbaren Minimaldruck arbeitet (siehe auch Abb. 6.4). Eine ausführlichere Betrachtung der Speicherzeiten findet sich in Kapitel 6.4.

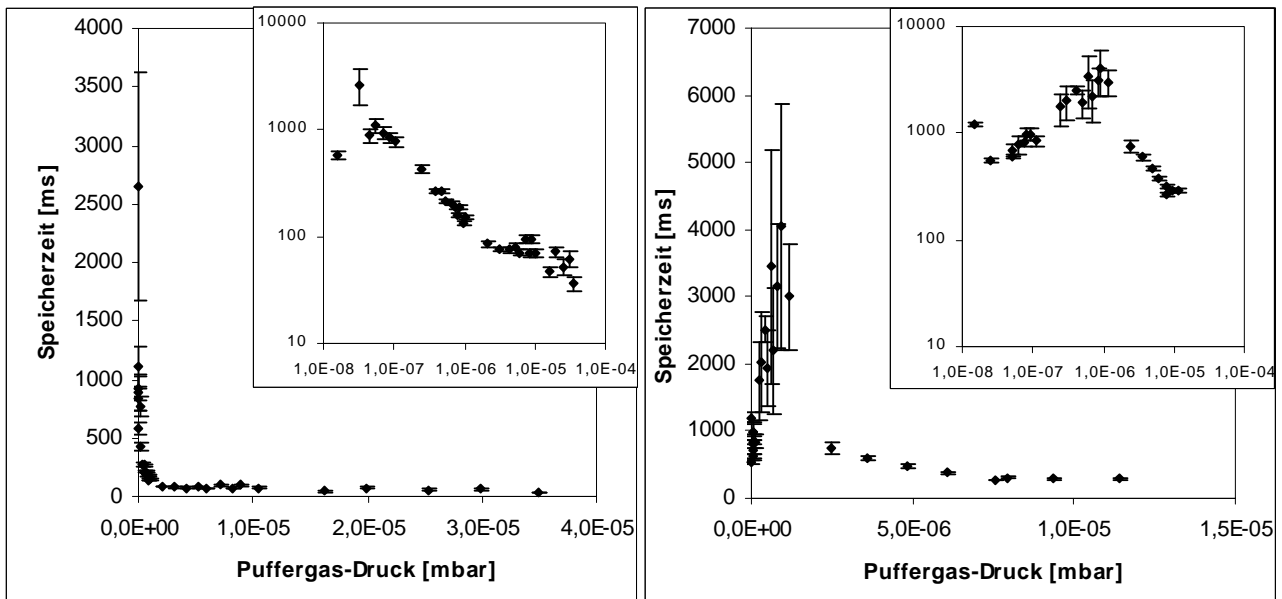


Abb. 6.21: Druckabhängigkeit der Speicherdauer von N_2^+ bei Verwendung von Stickstoff (links) und Helium (rechts) als Puffergas (normale und doppelt-logarithmische Auftragung). $U_0 = 10$ V, $V_0 = 590$ V_{pp}.

Die unterschiedlichen Drücke, bei denen Sättigungshöhe und Anfangssignalhöhe einerseits und Speicherdauer andererseits ihre Maxima aufweisen, zeigen, daß Ionenerzeugung und Speicherung nicht bei dem gleichen Druck am Effektivsten sind. Für eine wirkungsvolle Ionenerzeugung wird – z.B. bei Helium – ein um eine Größenordnung höherer Druck benötigt, als für eine lange Speicherdauer günstig wäre.

Bei Messungen an einem Arbeitspunkt der Falle, an dem überwiegend die Masse 40 gespeichert wurde (s. Abb. 6.22), zeigt die Kurve der Anfangssteigung im Gegensatz zu Abbildung 6.18 ein ausgeprägtes Maximum, was darauf hindeutet, daß hier die Speicherung nicht so gut ist und daher bei der Beobachtung des Fallefüllens bereits früher Verlustmechanismen eine dominante Rolle spielen. Die Messung der Füllzeit ähnelt den bereits gezeigten Messungen.

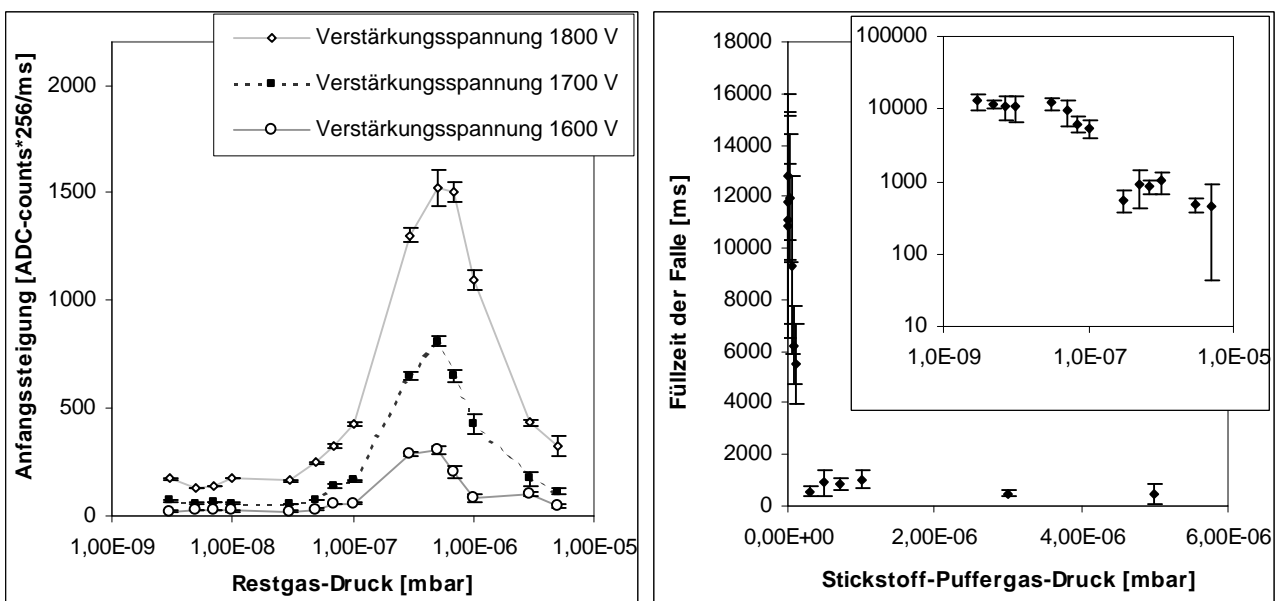


Abb. 6.22: Speicherung von Ionen der Masse 40 ($U_0 = 0$ V und $V_0 = 1250$ V_{pp}) bei Verwendung von Stickstoff als Puffergas. Die Anfangssteigung (links) zeigt im Gegensatz zu Abb. 6.18 ein deutliches Maximum. Die Füllzeit (rechts) ist vergleichbar mit Abbildung 6.19.

Nachweis:

Auch der Nachweis ist in der selben Weise vom Restgasdruck in der Apparatur abhängig wie die Ionenerzeugung, da auch hier wieder geladene Teilchen stark beschleunigt durch das Restgas bewegt werden. Über die freie Weglänge eines Stickstoff-Moleküliions in Stickstoff-Atmosphäre [Wutz88], bzw. den $l \cdot p$ -Wert:

$$l \cdot p = 5,9 \cdot 10^{-5} \text{ m mbar}$$

läßt sich abschätzen, wie groß bei den am Detektor eintreffenden Ionen der Anteil von erst auf der Flugstrecke gebildeten Ionen ist. Gemäß Abbildung 6.23 zeigt sich, daß dieser Effekt bei allen hier verwendeten Drücken gegenüber der bei den Messungen erkennbaren Genauigkeit (siehe z. B. Abbildung 6.14) vernachlässigbar ist.

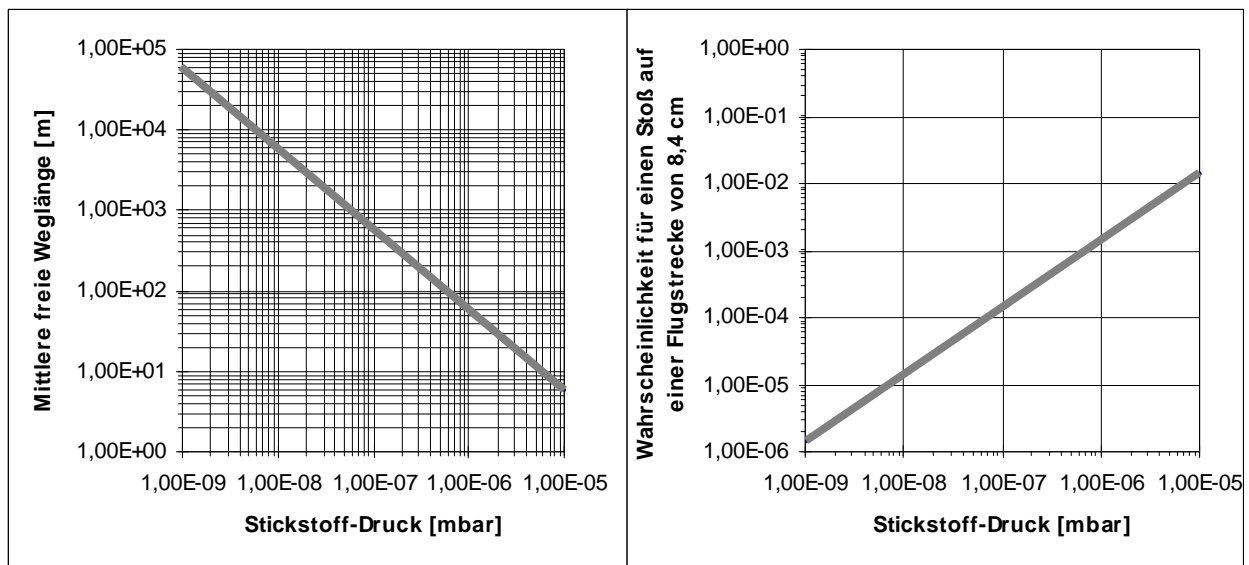


Abb. 6.23: Links: Mittlere freie Weglänge von Stickstoff-Moleküliionen in molekularem Stickstoff. Rechts: Kollisionswahrscheinlichkeit berechnet für die Flugstrecke von der Fallenmitte bis zum Detektor.

Nach [Syka92] ist die Extraktion der Ionen durch ein mittiges Loch in der oberen Kalotte puffergasdruckabhängig, da bei einem gewissen Druck die Ionen durch den Kühleffekt besser in der Falle zentriert werden und daher mit höherer Effizienz extrahiert werden können. Da auch schon die Ionenerzeugung und -speicherung hier am Experiment druckabhängig sind, ist die Existenz eines solchen Effekts nicht überprüfbar. Eventuell tritt der Effekt jedoch auch wegen der mit 20 mm Durchmesser relativ groß gewählten Kalottenöffnung nicht auf.

Manche der zuvor gezeigten Diagramme werden durch den Nachweis nicht eindeutig wiedergegeben: z.B. zeigt Abb. 6.22 bei den drei unterschiedlichen SEV-Spannungen eine leichte Verschiebung des Maximums. Wenn sich mit der SEV-Spannung lediglich – wie erwünscht – die

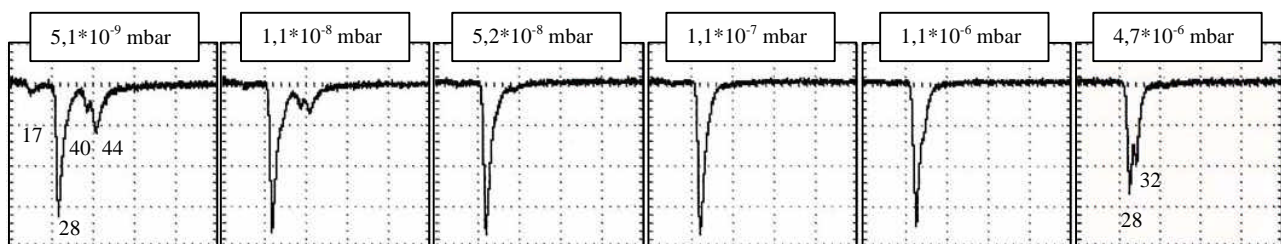


Abb. 6.24: Änderung der Ionenzahlverhältnisse im Flugzeitspektrum bei Variation des Puffergasdrucks. Der Stickstoff-Druck wurde von $5,1 \cdot 10^{-9}$ mbar (linkes Bild) bis $4,7 \cdot 10^{-6}$ mbar (rechtes Bild) sukzessive erhöht, dabei wurden SEV-Spannung und Oszilloskop-Verstärkung jeweils so justiert, daß die abgebildete Signalgröße etwa gleich blieb. Tatsächlich ist die Peakhöhe beim Enddruck ca. 7 mal größer als zu Anfang. Rechts die Peaks der Massen 17, 28, 40, 44, ganz links die Massen 28 und 32. Speicherparameter: $U_0 = 0 \text{ V}$, $V_0 = 590 \text{ V}_{pp}$.

Verstärkung ändern würde, würde sich das Maximum immer beim gleichen Druck zeigen. Die Verschiebung liegt wahrscheinlich in der veränderten Beschleunigungsspannung und der schon in Abb. 6.13 gezeigten Änderung der Signalform.

Bei der Variation des Drucks ändert sich, wie anhand der Partialdrücke schon in Abb. 6.4 dargestellt, die Zusammensetzung des Restgasgemischs. Dies ist auch direkt anhand der sich ändernden Ionenzahlverhältnisse zwischen den Massen im Flugzeitspektrum sichtbar (Abb. 6.24).

6.2.5 Nachweiseichung

Will man Raumladungseffekte, zum Beispiel die Verschiebung von Resonanzen, charakterisieren, so ist die Kenntnis der absoluten Ionenzahlen nötig. Diese ist auch ansonsten vorteilhaft, etwa wenn man Meßergebnisse mit denen anderer Arbeitsgruppen an anderen Fällen vergleichen möchte.

Die relativen Verstärkungen unterschiedlicher SEV-Spannungen zueinander kann man experimentell leicht aus den Anfangssteigungen von Sättigungsmessungen oder vergleichenden Messungen von Signalhöhen bestimmen. Einen absoluten Test des SEV hat S. Kleineidam durch Ausmessen der SEV-Signale einzelner Ionen bei hohen Verstärkungsspannungen am Oszilloskop und durch Weiterführung dieser Messung bei kleineren Spannungen unter Verwendung des ADC¹

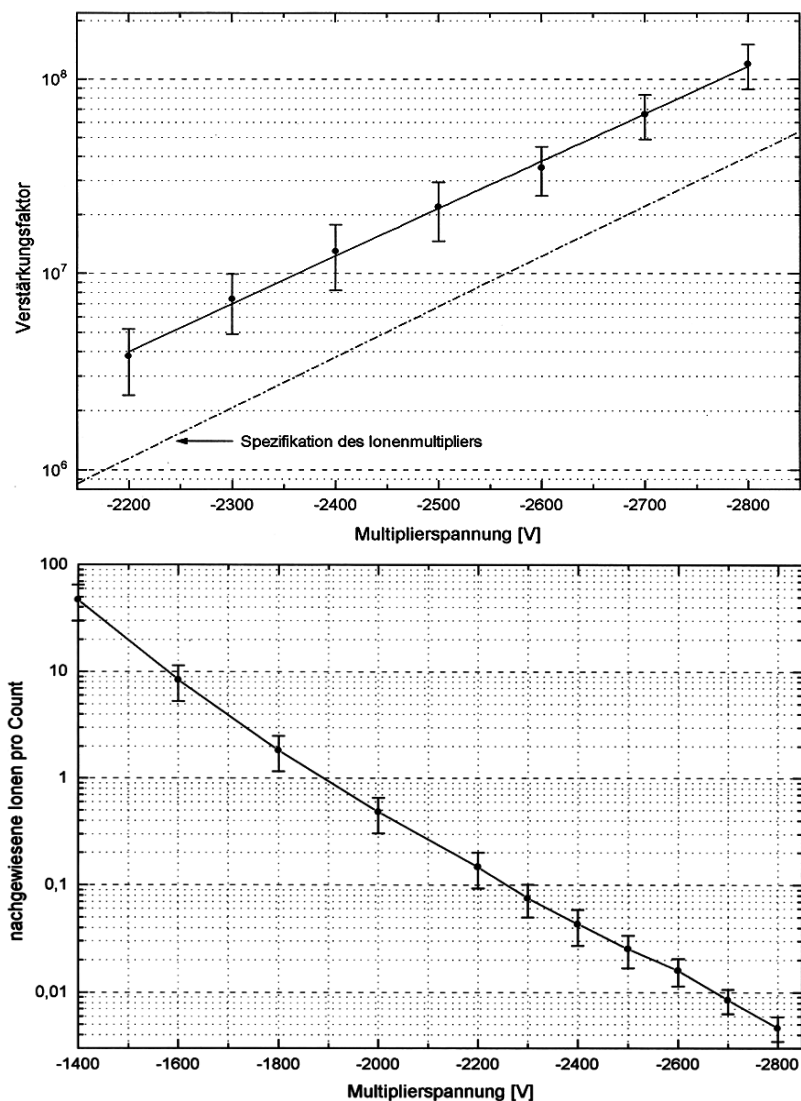


Abb. 6.25: Oben die von S. Kleineidam gemessene Verstärkung des XP 1600-SEV im Vergleich mit dem im Datenblatt von Philips angegebenen Wert [Klei95]. Unten die Eichung des Nachweises auf absolute, vom SEV detektierte Ionenzahlen von S. Kleineidam [Klei95].

¹ Dabei wurde zuvor die Linearität des ADC getestet (siehe [Klei95] S. 37).

durchgeführt. Zusammen mit der Eichung des ADC ermöglichte dies, die am Bildschirm des Experiment-PCs angezeigten counts in die vom SEV detektierte Ionenzahl umzurechnen. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.25 gezeigt, wo auch die dem Datenblatt des Philips XP 1600 Ionenmultipliers entnommene Verstärkung eingetragen ist. Kleineidam stellte bei der Nachweiseichung fest, daß die gemessene Verstärkung des SEV systematisch um den Faktor 3 höher ist als die im Datenblatt angegebene¹. Unter Berücksichtigung des Spannungsabfalls am Hochspannungsrelais vor dem SEV von ca. 10 % ist diese sogar um den Faktor 15 größer als angegeben.

Die absolute Eichung von Kleineidam wurde getestet, indem bei kleinen Ionenzahlen die Schwankung des Signals in Abhängigkeit der SEV-Verstärkungsspannung aufgenommen wurde. Die Signalschwankungen können zwar nicht völlig eindeutig per Histogramm den erwarteten Signalhöhenänderungen von einem, zwei, drei etc. Ionen bei den entsprechenden Verstärkungen zugeordnet werden, die Standardabweichung der Signalschwankungen verhält sich jedoch sehr ähnlich der erwarteten counts/Ion, so daß sich die für H_2^+ durchgeführte Eichung von Kleineidam auch für N_2^+ bestätigt (siehe Abb. 6.26) und somit auch der Verlauf bis 1100 V_{SEV} fortgeführt ist.

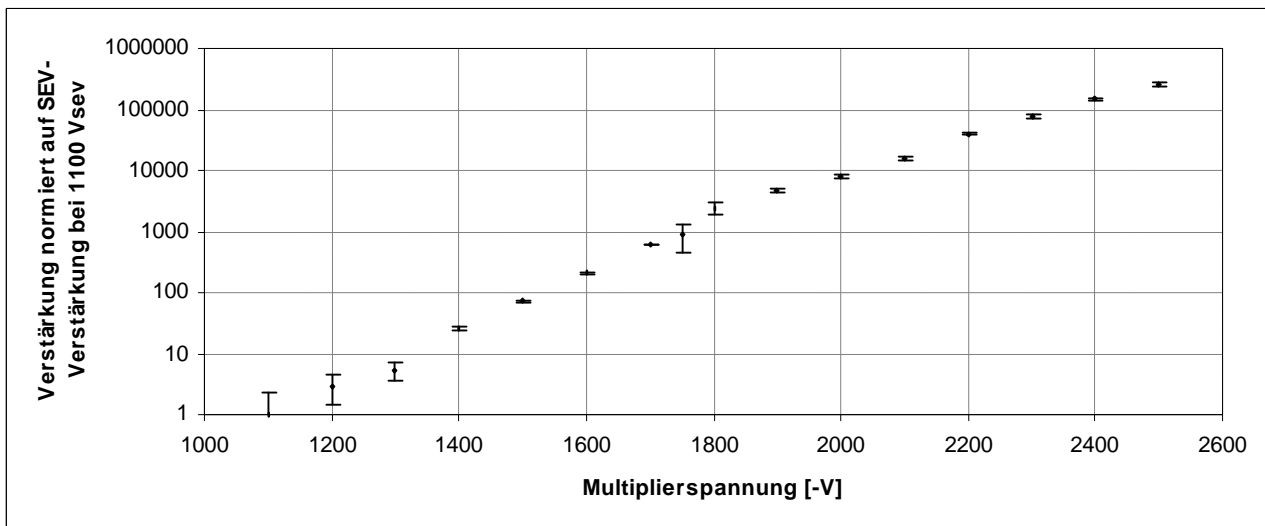


Abb. 6.26: Relative Eichung aus Signalschwankungen

Die Eichkurve (Abb. 6.25 unten) gibt jedoch nur die Zahl der Ionen an, die an der ersten Dynode des SEV Sekundärelektronen produzieren, d.h. stellt nur einen Bezug zwischen der Signalhöhe und den detektierten Ionen her. Um eine absolute Eichung zu erhalten, müßten auch die im Folgenden beschriebenen Verluste auf dem Weg der Ionen von der Falle bis zum SEV sowie die Konversionseffizienz des SEV (siehe 1. Fußnote S. 106) bekannt sein.

Kalottenöffnung und Phasenlage der Extraktion

Nach Waldren und Todd ([Holz97, S. 40], vgl. auch dort mit den Messungen von M. Holzki) erhält man die vollständigste Extraktion der Ionen, wenn der Puls bei einer Führungsfeldphase von ca. 180° beginnt², was aus Abbildung 6.27 anschaulich hervorgeht. Bei dieser Phasenlage erhält man allerdings häufig zwei oder mehrere Ionensignale (sog. Echopulse) oder relativ breite Nachweispeaks. Im Experiment wurde daher häufig eine Phase von ca. 135° bei einer Extraktionsspannung von -300 V verwendet.

¹ Auch C. Henning hatte schon eine höhere Verstärkung als spezifiziert vermutet.

² Je nach Ionenmasse, Extraktionsspannung und Führungsfeldperiodendauer – d.h. je nachdem, innerhalb welcher Zeit im Vergleich zur Führungsfeldperiode die Ionen bis zur Kalotte fliegen – kann sich die Phase optimaler Extraktion auch verschieben.

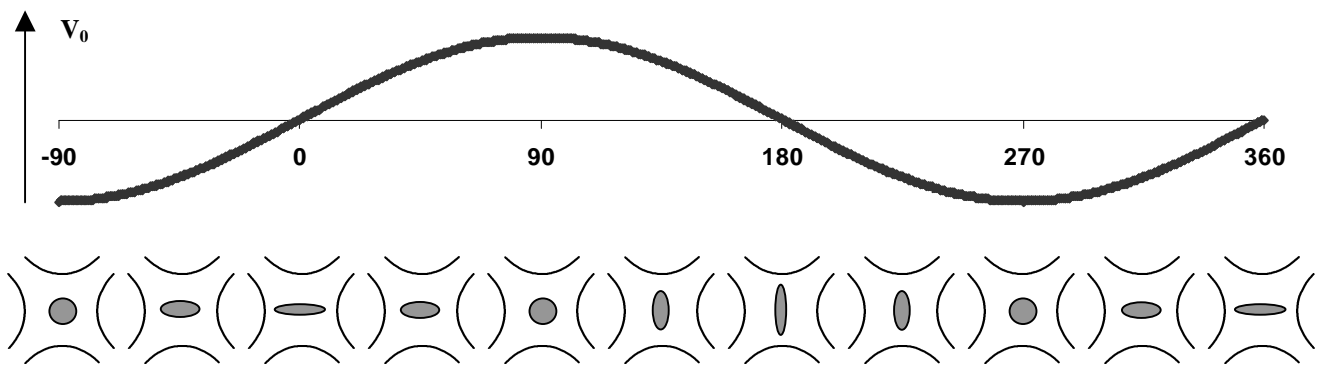


Abb. 6.27: Führungsfeldphase und vereinfachte Darstellung der Bewegung der Ionenwolke in der Falle. Ist der Ring der Falle negativ, so erfahren die Ionen eine Kraft auf den Ring zu, die um so stärker ist, je weiter die Ionen vom Fallenzentrum entfernt sind. Gleichzeitig drücken die geerdeten und somit im Vergleich zum Ring positiveren Kalotten die Ionenwolke von oben und unten flach. Bei positivem Ring verringert sich entsprechend die radiale Ausdehnung der Wolke, während die achsiale zunimmt. Die Extraktion der Ionen geschieht am vollständigsten, während die radiale Ausdehnung gering ist. Allerdings bewegt sich zu diesem Zeitpunkt die Hälfte der Ionen nach oben und die andere Hälfte nach unten, weshalb es zu einer unvollständigen Extraktion kommen kann, bei der der Rest der Ionen erst in der nächsten Führungsfeldperiode die Falle verläßt.

Ob die Ionenwolke bei der Extraktion vollständig durch die 2 cm im Durchmesser messende Öffnung in der oberen Kalotte paßt, hängt überwiegend mit der Ausdehnung der Wolke und der radialen Bewegungskomponente der Ionen zusammen. Bei Verwendung von Helium als Puffergas liegt das Verhältnis von Ionenmasse zu Puffergasmasse bei 7, was zumindest ähnlich dem Verhältnis in Kapitel 5 von Bariumionen zu Stickstoff von 4,9 ist. Da auch die Abmessungen der Fallen bei beiden Experimenten nahezu identisch sind, kann man den maximalen Durchmesser der Stickstoffionenwolke mit ebenfalls ca. 3 mm abschätzen¹. Bei der bei Phasenlagen zwischen 90° und 180° vorhandenen Radialbeschleunigung der Ionen genügt eine Extraktionsspannung von 300 V dann sicher, um praktisch alle Ionen durch die Kalottenöffnung aus der Falle zu entfernen.

Beschleunigungsgitter und Ionenoptik

Auf dem Weg zum Detektor passieren die Ionen zwei Gitter, zunächst das in der Kalottenöffnung und kurz dahinter das Beschleunigungsnetz. Die geometrische Transmission des Gitters in der Kalotte beträgt ca. 64 %, die des Beschleunigungsnetzes ca. 90 %². Die tatsächliche Transmission ist geringer und abhängig von den Beschleunigungsspannungen, da je nach Potentiallage der Gitterdrähte im Verhältnis zum durch SEV-Spannung und geerdeter unterer Kalotte gegebenen Potentialverlauf von den Gitterdrähten anziehende oder abstoßende Kräfte auf die Ionen wirken, wodurch die Ionen transversale Ablenkungen erfahren können. Bei Transmissionsmessungen an einer Testapparatur wurden für Elektronen beim Durchtritt durch ein Gitter mit 90 % geometrischer Transmission beim am Experiment üblichen Bereich von Beschleunigungsspannungen Werte zwischen 60 % und 80 % erhalten³.

Die meisten der durch das Netz gelangten Ionen werden anschließend durch den Zylinder auf die Kathode des SEV fokussiert. R. Alheit gibt den Ionenverlust auf dieser Strecke auf Basis einer

¹ Vergleiche Kapitel 5.5.2, dort wurde auch mit Puffergas Helium und einem Massenverhältnis von 34 kein wesentlich größerer Wolkendurchmesser festgestellt.

² Vom Gitter der Kalotte existieren keine Angaben von Drahtdicke und Maschengröße. Aufgrund von Fotos wurden für die Drahtdicke 0,4 mm und für die Maschengröße 2 mm ermittelt, was obigen Transmissionswert ergibt. Das Beschleunigungsnetz weist eine gemessene Drahtdicke von 0,06 mm und eine Maschengröße von 1,20 mm auf.

³ Hierbei wurde nur die einfangende Wirkung des Gitters getestet, indem der über das Gitter abfließende Strom ins Verhältnis zum am dahinterliegenden Auffänger gemessenen Strom gesetzt wurde.

Simulation mit SIMION mit 10 bis 20 % an¹. Der Verlust von Ionen auf der gesamten Flugstrecke von der Fallenmitte bis zur SEV-Kathode beträgt damit etwa 76 ± 6 %².

Konversionseffizienz des SEV

Für die Quanteneffizienz des verwendeten SEV (Philips XP 1600 series) existieren in den Arbeiten zu diesem Experiment unterschiedliche Angaben: nach R. Alheit liegt sie für das Kathodenmaterial CuBe für positive Ionen mit einer Energie von 1 keV bis 3 keV zwischen 15 % und 30 % [Alhe97, S. 61], nach M. Holzki beträgt die Nachweiseffizienz des SEV ca. 20 % [Holz97, S. 29], während S. Kleineidam für Betriebsspannungen zwischen –1400 V und –2800 V einen Wert von 30 % bis 45 % angibt [Klei95, S. 39]. Insgesamt muß damit als Konversionseffizienz 27 ± 6 % als Mittelwert angenommen werden, da bei Philips keine Daten zu diesem SEV mehr erhältlich sind.

Aus den vorangegangenen Überlegungen errechnet sich somit eine Gesamteffizienz des Nachweises von

$$6,5 \pm 2 \%$$

Die Anzahl der detektierten Ionen, die man aus der SEV-Eichung erhält, muß daher mit einem Faktor 15 multipliziert werden, um die Zahl der zum Extraktionszeitpunkt in der Falle befindlichen Ionen zu errechnen. Dies wurde bei allen in den folgenden Unterkapiteln angegebenen Ionenzahlen getan.

Vergleich der maximalen Ionenzahl mit der Theorie

Im Stabilitätsbereich wurde an einem Punkt guter Speicherung zwischen zwei Resonanzen ($U_0 = 0$ V, $V_0 = 580$ V_{pp}, 10^{-7} mbar Stickstoffdruck) eine detektierte Ionenzahl von 50300 ± 1700 Ionen bei einer Sättigungsmessung bei gefüllter Falle gemessen. Aufgrund der eingestellten Wartezeit von 300 ms bei dieser Messung und der Gesamtnachweiseffizienz von 6,5 % kann man von ca. 900000 Ionen nach Ende des Erzeugens ausgehen.

Mittels des Dehmelt'schen Pseudopotential-Modells läßt sich die maximale Ionendichte nach Gleichung 2.54 berechnen. Für die obigen Spannungen erhält man eine Dichte von $1,4 \cdot 10^7$ Ionen/cm³, mit der der gesamte Raum, den das Pseudopotential erfüllt, gefüllt ist. Als diesen kann man das Volumen des einbeschriebenen Ellipsoids, das gerade die Fallenelektroden berührt, ansehen. Das Volumen eines Ellipsoids ist gegeben durch

$$V = \frac{4}{3} \pi \cdot abc, \text{ hier mit } a = b = 2\text{ cm und } c = \sqrt{2}\text{ cm},$$

womit sich ein Volumen von $23,7$ cm³ ergibt und eine maximale Ionenzahl von $3,2 \cdot 10^8$. Die Diskrepanz von mehr als 2 Größenordnungen zeigt, daß dieses einfache Modell nicht zur

¹ R. Alheit schreibt in seiner Arbeit (S. 61) von einem 6 cm langen Zylinder, dies muß jedoch ein Schreibfehler sein, da der Zylinder 1994 eingebaut wurde und eine Länge von 19 mm besitzt (dieser ist noch heute eingebaut), die Distanz vom Netz bis zum SEV jedoch tatsächlich seit damals knapp 6 cm mißt. – Vor 1994 war die Flugstrecke geringer und keine Ionenoptik vor dem damaligen Channeltron vorhanden. Unabhängig davon, mit welcher Zylinderlänge die Simulation durchgeführt wurde, kann das Ergebnis als korrekt betrachtet werden, da im Experiment sichtbar ist und in der Arbeit von C. Hennig nachgelesen werden kann, daß die Fokussierspannung bei den üblicherweise verwendeten hohen Netzspannungen quasi keinen Effekt auf die Größe des Ionensignals hat und lediglich bei niedrigeren Beschleunigungsspannungen überhaupt eine Fokussspannung nötig ist.

² Bei der Rechnung wurde die Annahme miteinbezogen, von den gespeicherten Ionen würden bis zu 20 % auf dem Weg zur Kalottenöffnung verlorengehen.

Abschätzung der Ionenzahl geeignet ist, da es die erhöhte Kollisionswahrscheinlichkeit der Ionen in äußeren Bereichen der Wolke mit den Fallenelektroden ebenso wenig wie Effekte durch das Puffergas berücksichtigt und von einer konstanten Ionendichte in der Falle ausgeht.

Nach Fischer kann man die Raumladung über die Verschiebung des Stabilitätsdiagramms (siehe Gleichung 2.56) berechnen. Die (6/0/6) Resonanz (bei $U_0 = 0$ V, $V_0 = 605$ V_{pp}) ist bei voller Falle um $\Delta q_z = 0,019$ gegenüber ihrer Lage bei fast leerer Falle verschoben. Daraus errechnet sich eine Verschiebung der entsprechenden iso- β_z -Linie¹ um $\Delta a_z = 0,0094$, was nach Fischer einer Ladungsdichte von $2,7 \cdot 10^{-7}$ C/m³ bzw. Ionendichte von $1,7 \cdot 10^6$ Ionen/cm³ entspricht. Auf das Volumen des obigen Ellipsoids bezogen erhält man bei dieser Rechnung eine Maximalzahl von $4,0 \cdot 10^7$ Ionen. Nach Schwebel (Gleichung 2.57) erhält man ein um 4/3 größeres Ergebnis.

Auch hier sind die Abweichungen zur mit der Nachweiseichung erhaltenen Ionenzahl noch erheblich. Die errechneten Ionendichten hingegen sind durchaus realistische Werte, wenn man diese mit in Ionenkristallen gemessenen Abständen vergleicht: als mittleren Ionenabstand erhält man 40 µm (Dehmelt), 80 µm (Fischer) und 75 µm (Schwebel) nach obigen Rechnungen; für lasergekühlte, kristallisierte Ionenwolken hat Gudjons in einer klassischen Paulfalle Abstände von 30 µm, Seibert in einer linearen Paulfalle 15-20 µm gemessen [Gudj96b, Seib00]. Plausible Ionenzahlen errechnen sich mit obigen theoretischen Methoden - wie schon von Werth durchgeführt [Wert83] - nur bei der Wahl von realistischen Wolkenausdehnungen, z. B. 0,5 cm³.

Meis et al. [Meis88] berechnen die Ionendichte in der Mitte der Wolke aufgrund der Verschiebung der Makrofrequenzen. Für eine Ionenwolke von ca. 200000 Ionen und deren gemessene Verschiebung der $2w_z$ -Resonanz erhält man mit Gleichung 2.58 als Ergebnis eine Ionendichte von $6,1 \cdot 10^5$ Ionen/cm³, was etwas niedriger als die obigen Werte ist. Um dann zwei der Parameter Ionenzahl, Temperatur oder Wolkenradius ausrechnen zu können, benötigt man einen der Parameter als Meßwert. Dies eignet sich also nicht zur Berechnung der Ionenzahl. Jedoch 200000 als Ionenzahl vorausgesetzt², erhält man als Wolkenradius 3,9 mm und als Ionentemperatur 860 K, was durchaus plausible Werte sind.

Sämtliche dieser relativ einfachen Modelle führen zu realistischen Werten der Ionendichte im Fallenzentrum. Allen fehlt jedoch zur Berechnung absoluter Ionenzahlen ein theoretischer Zugang zur Wolkengröße.

6.3 Systematische Untersuchung des ersten Speicherbereichs

Das experimentell aufgenommene Speicherdiagramm bietet eine Vielzahl von Vergleichsmöglichkeiten mit der Theorie, wie zum Beispiel die Lage der Stabilitätsgrenzen, die Verteilung der gespeicherten Ionenzahl über den Speicherbereich sowie den Verlauf der auftretenden nichtlinearen Resonanzen. Zusätzlich kann der Einfluß von Puffergas und Ionenzahl auf die obigen Meßgrößen untersucht werden. In diesem Unterkapitel geschieht dies – abgesehen von einer manuellen Messung – mit Hilfe des Meßprogramms "Stabilitätsdiagramm" (siehe Kapitel 6.1.6). Hierbei wird U_0 jeweils für eine Meßreihe manuell fest eingestellt und der Meßrechner variiert V_0 in der eingegebenen Schrittweite und startet bei jedem V_0 einen Meßzyklus. Das Zusammenfügen vieler derartiger Meßreihen ergibt dann eine Aufnahme des gesamten

¹ Berechnet mit Hilfe der Mathieufunktionen von Mathematica

² Formeln für die Berechnung in [Meis88]

Speicherbereichs. In der Vergangenheit wurden bereits einige derartige Untersuchungen von größeren Teilen des Speicherbereichs mit unterschiedlichen Auflösungen durchgeführt¹. Eine nahezu komplette Messung des ersten Speicherbereichs existiert in [Holz97], zudem wurden von Ruths [Ruth92] und Morgenstern [Morg94] die Stabilitätsgrenzen manuell ermittelt und Iffländer [Iffl76] maß bereits grob die Ionendichte über einen großen Teil des stabilen Bereichs.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden bei einem Restgasdruck² von ca. $1 \cdot 10^{-9}$ mbar zwei fast komplette Speicherdiagramme von N_2^+ bei zwei unterschiedlichen Erzeugungszeiten aufgenommen. Der gemessene Ausschnitt war durch die maximale Gleichspannung U_0 des Führungsfeldverstärkers von 200 V begrenzt³ und entspricht somit etwa dem von Holzki gemessenen, bislang komplettesten Diagramm. Die Auflösung der Diagramme beträgt $\Delta U_0 = 2,5$ V, $\Delta V_0 = 2,5$ V_{pp} und somit (für N_2^+) $\Delta a_z = 0,0078$ und $\Delta q_z = 0,0019$. Bei dem in Abbildung 6.28 gezeigten Diagramm betrug die Erzeugungszeit 200 ms und die Wartezeit 300 ms.

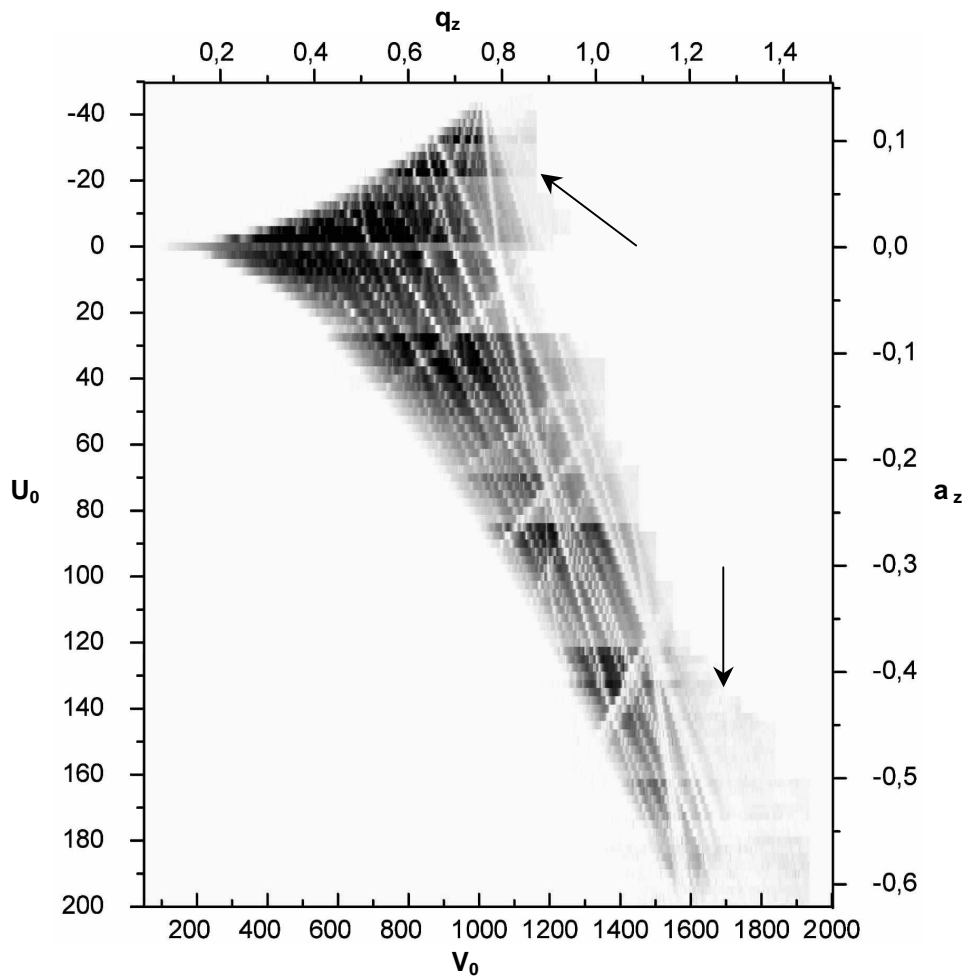


Abb. 6.28: Speicherdiagramm von N_2^+ bestehend aus 99 q-Scans mit insgesamt ca. 20000 Meßpunkten. Die Verstärkung des Nachweises wurde zu (betragsmäßig) größeren U_0 -Werten hin mehrfach erhöht, um einen ausreichenden Abbildungscontrast zu erhalten, woraus die horizontalen Farbsprünge resultieren. Wie bereits im Diagramm von Holzki [Holz97] sind hier im unteren und oberen Bereich des Diagramms – vor allem rechts davon – Linien zu sehen, die nicht zum N_2^+ -Diagramm, sondern zum Diagramm einer anderen Masse gehören (s. Pfeil).

¹ Bisherige experimentelle Aufnahmen des Speicherbereichs: niedrig aufgelöste, größere Ausschnitte in [Eade93] sowie [Alhe95, auch in Alhe97], der erste hochaufgelöste in [Alhe95 und in Morg94], größere und kleinere hochaufgelöste Ausschnitte in [Klei95, Alhe96, Alhe96b, Hoef97, Holz97, Alhe97] und ein beinahe komplettes hochaufgelöstes Speicherdiagramm in [Holz97].

² Zu diesem Zeitpunkt gab es noch kein Druckmeßgerät (ARGA) am Experiment, der Druck wurde durch den Vergleich von Sättigungsmessungen vor und nach Einbau des ARGA-Restgasanalysators zurückgerechnet.

³ Eine Gleichspannung von 216 V wäre notwendig gewesen, um den kompletten theoretischen Speicherbereich von N_2^+ zu erfassen.

In obigem Diagramm war die SEV-Spannung immer dann nachreguliert worden, wenn das Signal schwächer wurde. Man erkennt dadurch die Resonanzlinien wesentlich besser, jedoch entsprechen die Graustufen nicht mehr den wahren Ionenzahlverhältnissen. Das praktisch identische Speicherdiagramm mit Erzeugungszeit 600 ms und Wartezeit 300 ms (gleiche Auflösung ΔU_0 und ΔV_0 wie zuvor, ca. 25000 Meßpunkte) wurde daher entsprechend der Eichung aus Kapitel 6.2 in Ionenzahlen umgerechnet:

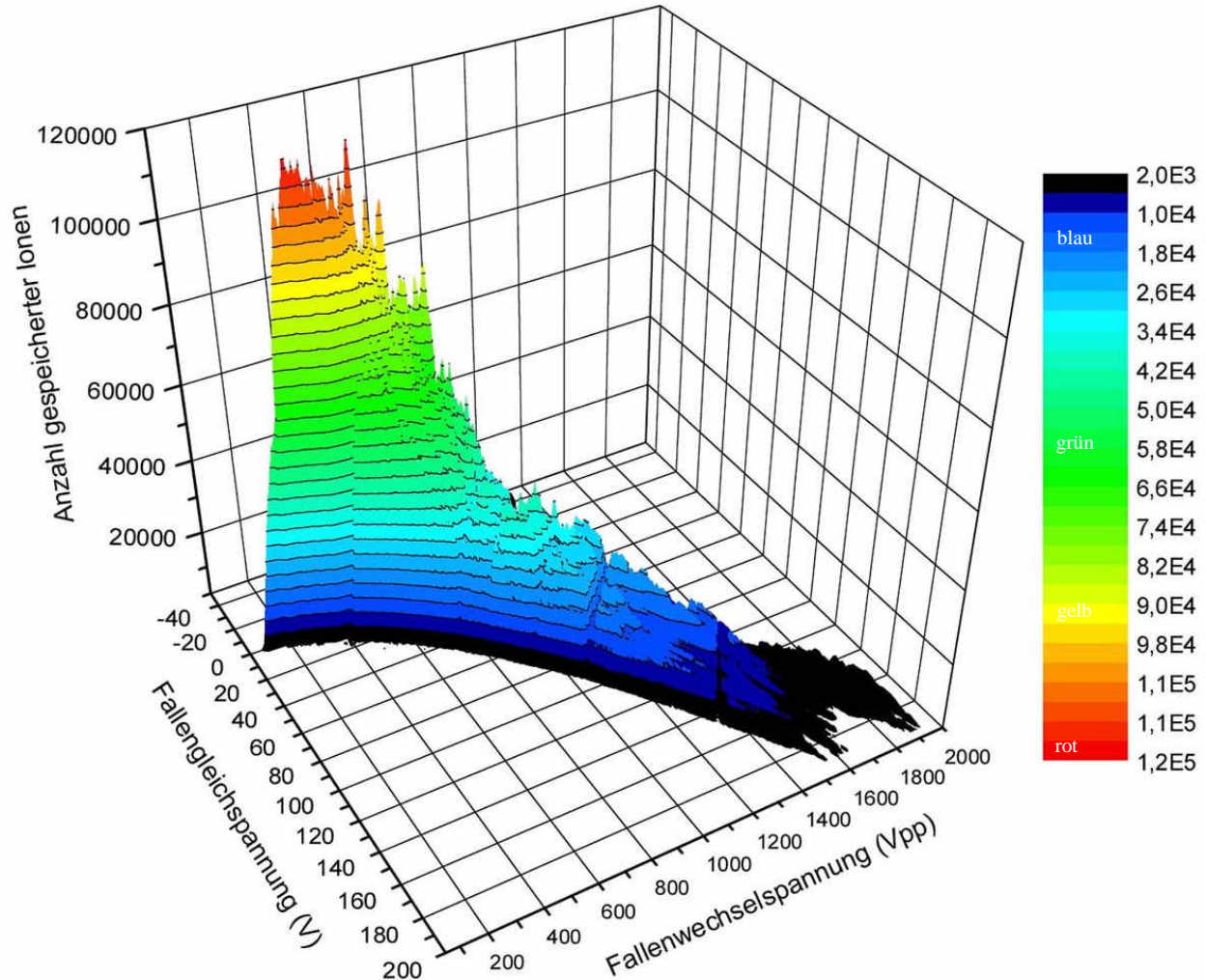


Abb. 6.29: 3-D-Darstellung des Speicherdiagramms von N_2^+ mit insgesamt ca. 25000 Meßpunkten. In z-Richtung ist die entsprechend der Nachweiseichung errechnete Ionenzahl aufgetragen. Man erkennt deutlich das unterschiedliche Speichervermögen in verschiedenen Bereichen des Diagramms.¹

In Abbildung 6.29 sieht man deutlich die großen Unterschiede im Speichervermögen der Falle innerhalb des stabilen Bereichs. Im Gegensatz zu den Messungen und Berechnungen der Ionenzahldichten von Iffländer [Iffl76, Iffl77] in Abbildung 6.30 rechts, liegt der Punkt optimaler Speicherung hier viel näher an der Spitze $a_z = 0 / q_z = 0$, nämlich bei $a_z = -0,016 \pm 0,008$ und q_z zwischen 0,245 und 0,307² (siehe Abbildung 6.30 links). Insgesamt ist die Speicherung besser bei kleineren Werten von q .

¹ Der senkrechte Knick bei ca. 20 V entsteht dadurch, daß eine Meßreihe fehlerhaft abgespeichert wurde und durch eine später unter anderen Restgasbedingungen gemessene ersetzt wurde. Die daraus resultierenden Ionenzahlunterschiede (siehe auch in späteren Diagrammen) erzeugen den Knick.

² Der Fehler liegt hier bei $\Delta q_z = 0,008$. Die Meßwerte von Iffländer waren: $a_z = -0,03 \pm 10\%$, $q_z = 0,55 \pm 15\%$ und die theoretisch errechneten Werte lagen bei: $a_z = -0,035$ und $q_z = 0,495$.

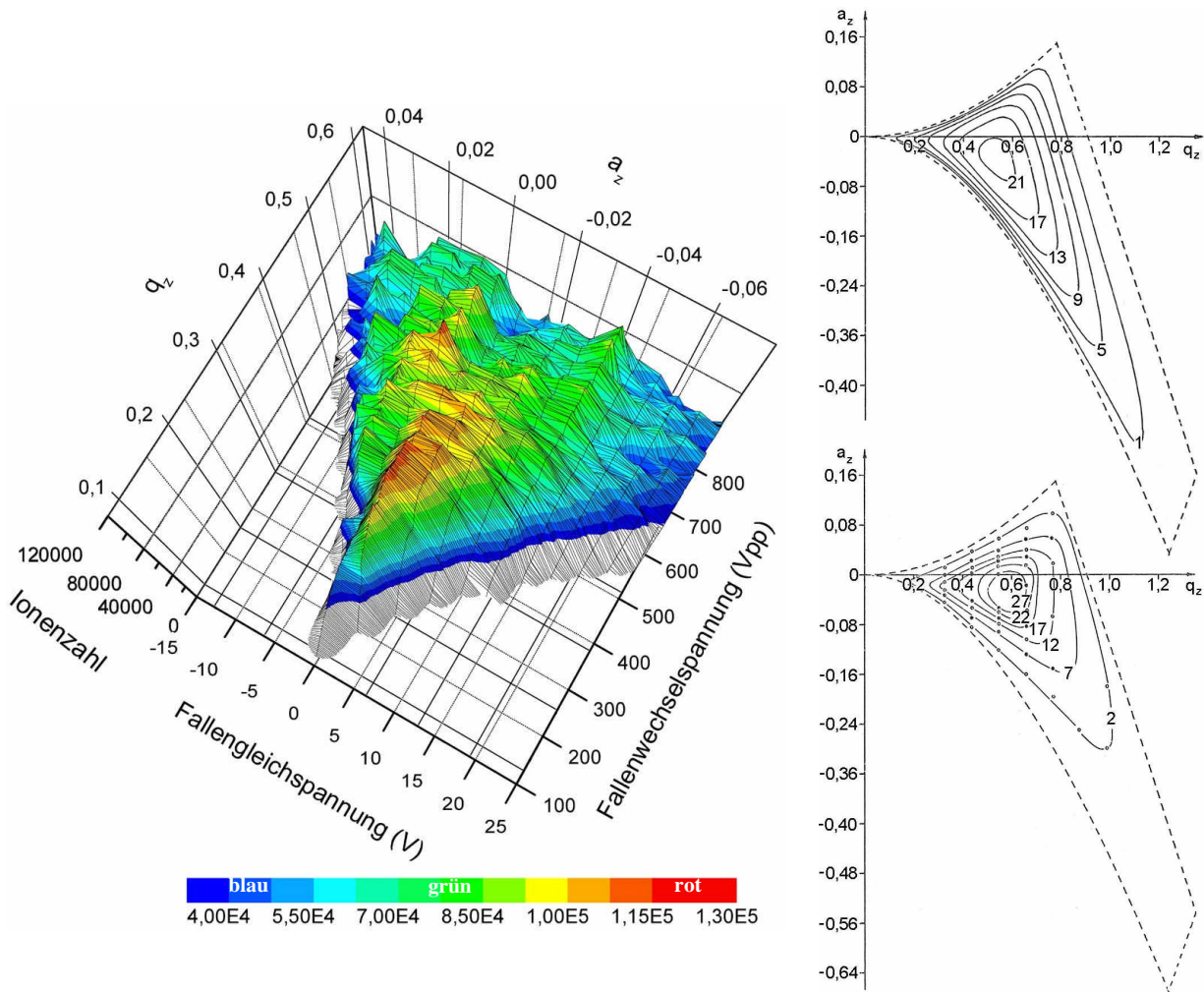


Abb. 6.30: Ausschnitt aus Diagramm 6.29 mit dem Bereich optimaler Speicherung. Im Vergleich dazu rechts die berechneten (oben) und gemessenen (unten) Dichteverteilungen von Iffländer [Iffl76, Iffl77].

Zwei gegenläufige Effekte spielen bei der Frage, bei welchen Speicherparametern besonders viele Ionen gespeichert werden, eine Rolle: zum Einen die Potentialtopftiefe, die mit größer werdenden Werten von q_z und $-a_z$ zunimmt und zum Anderen die Amplitude der Ionenbewegung, die mit steigendem q_z anwächst, jedoch durch Kühlmechanismen wie Puffergaskühlen gedämpft werden kann. Bei größerer Dämpfung wird das Maximum der Ionenspeicherung bei höheren Werten von q liegen. Ursache des bei dieser Arbeit im Vergleich zu Iffländer bei niedrigeren Werten von q liegenden Speicheroptimums ist daher der niedrigere Puffergasdruck von $1 \cdot 10^{-9}$ mbar, während dort $1,3 \cdot 10^{-7}$ mbar herrschten. Ein Konturplot mit Linien gleicher Ionenzahl wie bei Iffländer ist bei den neuen Messungen aufgrund der Resonanzen nicht sinnvoll. Das Verhältnis der Ionenzahlen beim Vergleich größerer Gebiete stimmt in etwa mit Iffländers Ergebnissen überein.

Rechts außerhalb des Speicherbereichs von N_2^+ sind in Abbildung 6.28 bei genauer Betrachtung weitere, schwache Linien zu erkennen, die zum Speicherbereich einer anderen, größeren Masse gehören müssen. Diese Linien, die sich fortsetzen bis in den Bereich des N_2^+ -Diagramms und auch im Diagramm von Holzki [Holz97] zu erkennen sind, werden nun weiter betrachtet:

6.3.1 Überlagerung der Speicherbereiche verschiedener Ionenmassen

Von den verschiedenen im Flugzeitspektrum auftretenden Massenpeaks wird zwar der des N_2^+ mit Hilfe eines Gates für die weitere Signalverarbeitung ausgewählt (siehe Abb. 6.9), es ist jedoch noch ein Untergrund der Signale anderer Massen vorhanden. Die Bestimmung der Massen kann über die

Flugzeit erfolgen, ist dann jedoch etwas ungenau (s. S. 110f), oder alternativ dadurch, daß man die Grenzen der Speicherbereiche der verschiedenen Massenpeaks bestimmt. Bei den 4 größten im Flugzeitspektrum auftretenden Peaks wurde dies hier durchgeführt, indem bei mehreren festen U_0 die Fallenwechselspannung V_0 manuell variiert wurde, während man den betreffenden Peak im Flugzeitspektrum auf dem Oszilloskop beobachtete und die Spannung seines Auftauchens und Verschwindens notierte. Dabei kann auch die Nachweisverstärkung (SEV-Spannung) an den entsprechenden Punkten erhöht werden, um die Grenzspannung noch genauer zu ermitteln.

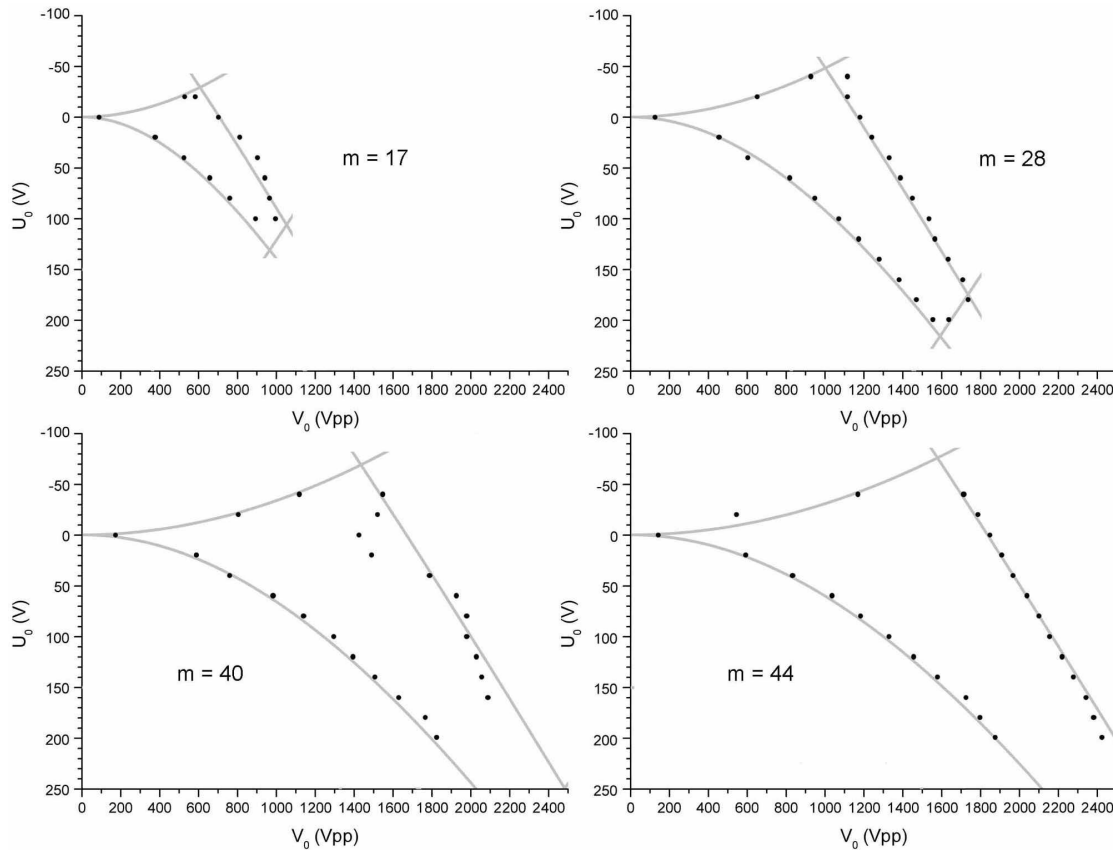


Abb. 6.31: Manuelle Messung der Speicherbereichsgrenzen der 4 größten im Flugzeitspektrum auftretenden Ionensignale. Dazu jeweils im Vergleich die theoretischen Grenzen der den Meßdaten am besten entsprechenden Massen. Bei den Massen 28 und 44 passen die Meßwerte sehr gut zu den theoretischen Linien, bei Masse 40 sind die abweichenden Meßpunkte wahrscheinlich durch Resonanzen bedingt, während die Daten bei Masse 17 eventuell auch aus den (im Flugzeitspektrum meist nicht trennbaren) Signalen der Massen 16 und 18 bestehen können. Um die Vergleichbarkeit mit den sonst üblichen a_z - q_z -Diagrammen zu verbessern, verläuft hier und in den folgenden U_0 - V_0 -Diagrammen die U_0 -Achse von positiven zu negativen Werten.

Die in dieser Arbeit experimentell aufgenommenen Speichergrenzen stimmen sehr gut mit der Theorie überein, während alle bisher veröffentlichten Speicherdiagramme davon starke Abweichungen zeigen. So weisen alle auf Seite 128 genannten experimentellen Diagramme eine Abweichung von 5% bis 8% zu größeren Werten von V_0 hin auf. Auch das auf gleiche Weise wie hier manuell aufgenommene Diagramm von Morgenstern [Morg94] zeigt eine derartige Verschiebung¹ – was bislang immer als Raumladungsverschiebung durch andere mitgespeicherte

¹ Auch Ruths [Ruth92] hat die Speichergrenzen manuell bestimmt – dort war aber vermutlich ein Umrechnungsfehler passiert, da dort das Diagramm um bis zu 20% in entgegengesetzter Richtung zu kleinen V_0 -Werten hin verschoben ist.

Ionen erklärt wurde¹. Die Diagramme in Abbildung 6.31 passen hingegen – von einzelnen abweichenden Punkten abgesehen – im Rahmen der Fehlergrenzen² zu den theoretischen Daten.

Eine Vervollständigung des Speicherdiagramms aus Abbildung 6.29 bis $U_0 = 2000 \text{ V}_{pp}$ zeigt deutlich eine Vielzahl von Resonanzen, die zu den Speicherbereichen von mindestens 3 weiteren Massen gehören (Abb. 6.32). Die charakteristischen "Spitzen" des a-q-Diagramms lassen sich mit etwas Mühe für 4 Massen erkennen. Links in der Abbildung ist die Spitze des N_2^+ -Diagramms zu erkennen, die weiteren Spitzen sind aufgrund des Kontrasts der Abbildung hier nur mit Kenntnis des Verlaufs der Resonanzen zu identifizieren (siehe auch später):

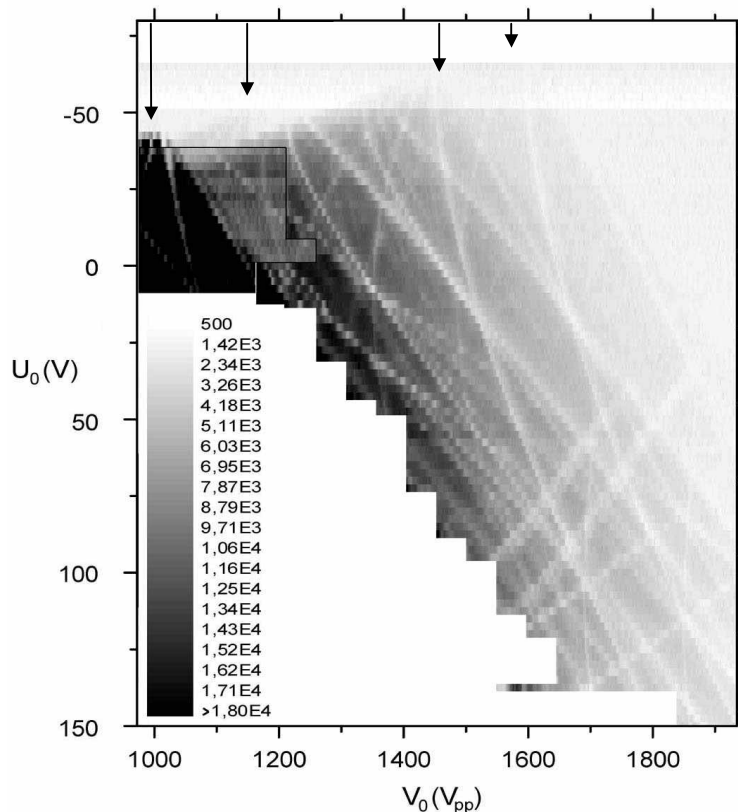


Abb. 6.32: Ergänzende Messung zum Speicherdiagramm 6.29 bei 600 ms Erzeugungszeit mit ca. 21500 Meßpunkten. Die Pfeile deuten auf die Speicherbereichsspitzen – links die des N_2^+ . Leicht umrandet ist links ein Teil der Messung aus 6.29 eingefügt und zur besseren Erkennbarkeit farblich angeglichen.

In Abbildung 6.33 ist die Graustufenabbildung der Daten von 6.29 durch Bereiche von 6.32 ergänzt (im rechten Bild mit Untergrundkorrektur jeden einzelnen q-Scans, links ohne diese Korrektur). Da bei der Datenverarbeitung das ADC-Gate auf das Stickstoff-Signal eingestellt ist, tragen andere Ionensorten wesentlich weniger zur Signalstärke bei, was sich im Graustufenbild dadurch bemerkbar macht, daß der Bereich von Stickstoff in der Graustufenabbildung sehr dunkel wird, wenn man die schwereren Massen deutlich darstellen will. Aus den Ionenzahlen im Bereich der Diagrammspitzen läßt sich eine Signalunterdrückung der schwereren Massen mit Hilfe des Gates um ungefähr den Faktor 10, 13 bzw. 25 abschätzen. Bei den beiden letzten, schwersten Massen liegt der Fehler der Abschätzung wegen der geringen Ionencounts und einer Änderung des ADC-Pedestals (sichtbar am horizontalen Streifen in Abbildung 6.32) jedoch bei ca. ± 5 . Der Unterschied zwischen den counts der N_2^+ -Messung und der ergänzenden Messung, der bis zu 10000 Ionen beträgt und sich im vollständigen Diagramm durch einen scharfen Helligkeitssprung bemerkbar macht, liegt vermutlich an veränderten Gate-Einstellungen.

¹ Diese Erklärung kann nicht zutreffen, da im Experiment hier sehr viele Ionen anderer Ionensorten "mitgespeichert" wurden, die Diagrammgrenzen aber dennoch passen.

² Der Meßfehler beim Ablesen betrug $\Delta U_0 \leq 1 \text{ V}$ und $\Delta V_0 \leq 5 \text{ V}_{pp}$, der Meßfehler des Oszilloskops (Tektronix TDS 210) ist mit 3 % angegeben.

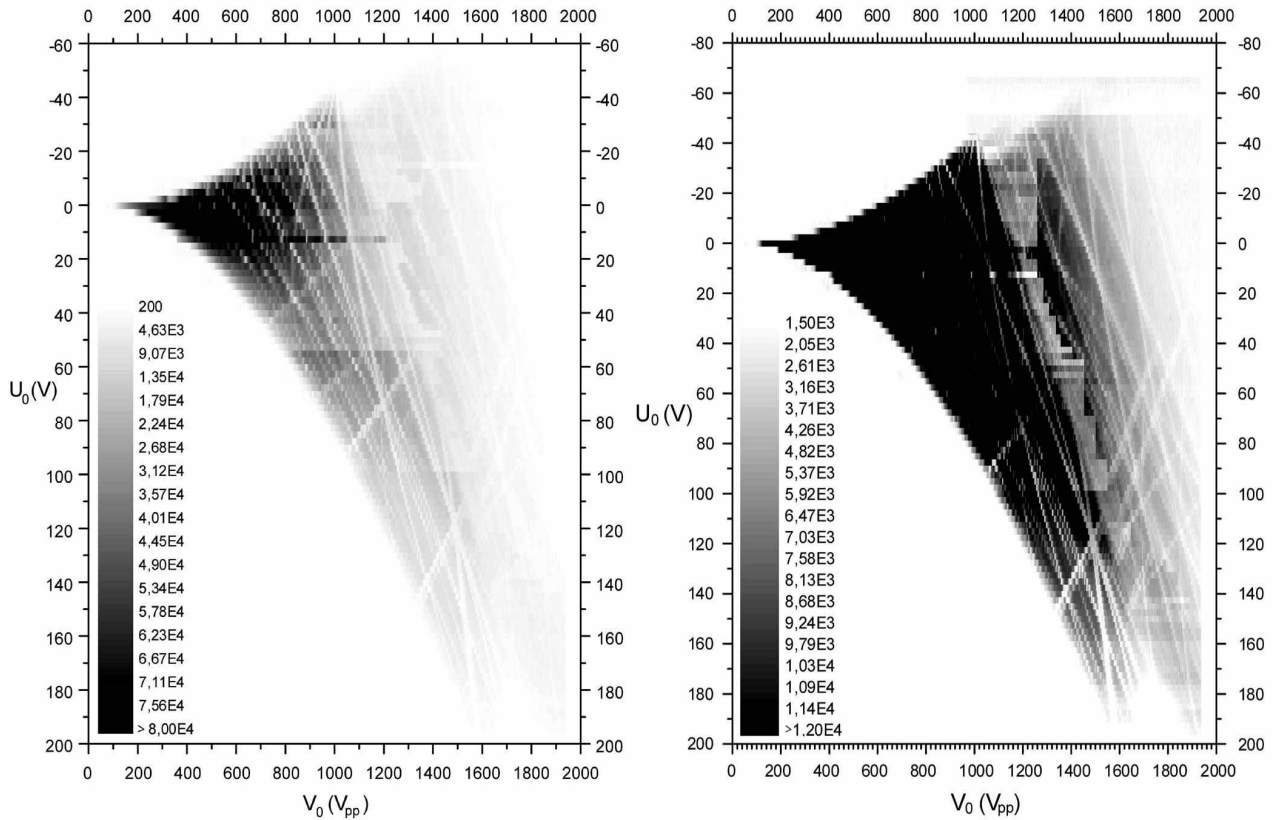


Abb. 6.33: Ergänzt Diagramm bei 600 ms Erzeugungszeit (ca. 46000 Meßpunkte); die Graustufen zeigen hier die Ionenanzahl in der Falle entsprechend der Nachweiseichung. Dies macht die Verwendung unterschiedlicher Grau-Abstufungen für den Bereich von N_2^+ und den der schwereren Massen nötig.

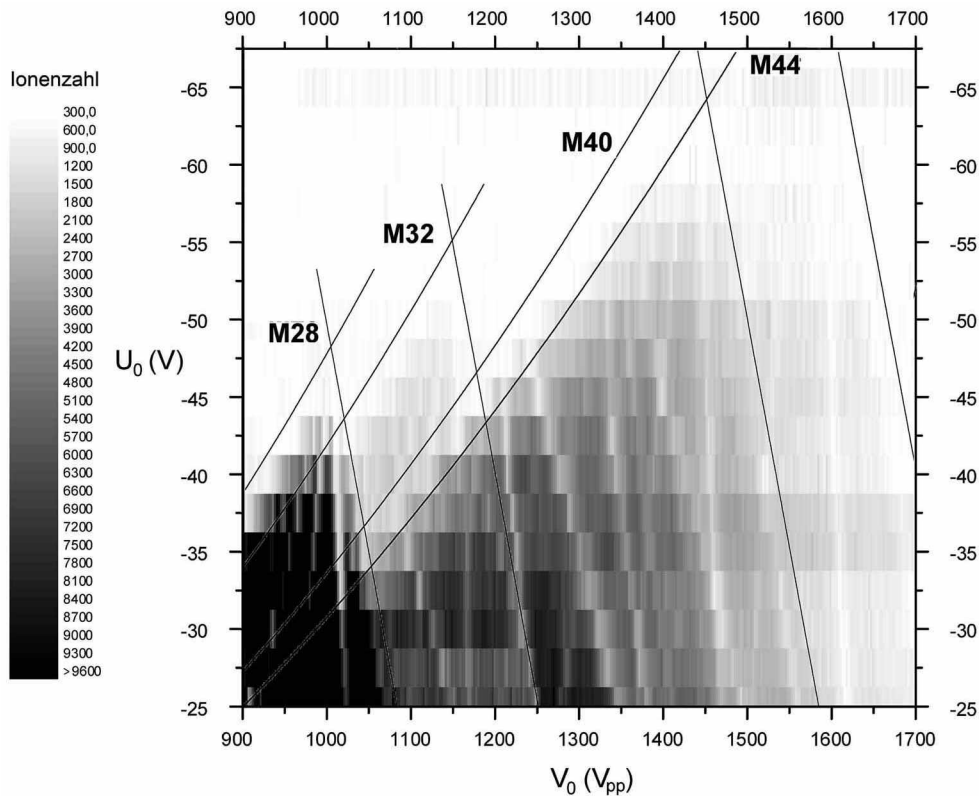


Abb. 6.34: Ausschnitt aus 6.32 mit den Spitzen der Speicherbereiche und den theoretischen Speichergrenzen der Massen, die am besten zu den experimentellen Daten passen.

Anhand der Spitzen der Speicherbereiche und deren Vergleich mit den theoretischen Linien lassen sich die Massen 28, 32, 40 und 44 bestimmen (siehe Abbildung 6.34). Diese passen gut zu den aus der Beobachtung der Speicherspannungen der Flugzeitpeaks (Abb. 6.31) erhaltenen Massen und auch dazu, daß im Flugzeitspektrum bis zu 6 Massen beobachtbar waren (s. unten). Da im Flugzeitspektrum der Peak um die Masse 17 zeitweise als Doppelpeak aufgelöst werden konnte, kann insgesamt von folgenden in der Falle gespeicherten Massen ausgegangen werden:

Masse [u]	16	17	18	28	32	40	44
Ion	O^+		H_2O^+	N_2^+, CO^+	O_2^+	Ar^+	CO_2^+

Damit ähnelt die Restgaszusammensetzung derjenigen, die Dawson [Daws68b] mit Peaks bei $M = 16, 17, 18, 28, 32$ und 44 beobachtete.

6.3.2 Identifikation der Resonanzlinien

Die gute Übereinstimmung des experimentellen mit dem theoretischen Speicherbereich ermöglicht erstmals einen direkten Vergleich der Meßdaten mit berechneten Resonanzlinien durch Überlagerung der Diagramme. Dieser wird im Folgenden für jede der 4 beobachteten Massen durchgeführt:

Speicherbereich von N_2^+ (Abb. 6.35):

Die in Abbildung 6.35 dargestellte Überlagerung von Diagramm 6.33 mit den theoretischen Resonanzlinien nach Gleichung 2.47 (siehe auch Abb. 2.15 bis 2.18) zeigt, daß auch bei dieser Messung eine Abweichung zu höheren Werten von V_0 hin beobachtbar ist. Diese ist mit unter 2 % jedoch im Gegensatz zu früheren Messungen so gering, daß die gemeinsame Darstellung von experimentellen Daten und theoretischen Linien in einem Diagramm eine direkte visuelle Zuordnung der Resonanzlinien ermöglicht. Im Folgenden nun ein Vergleich der entsprechend Kapitel 2.3.3 theoretisch erwarteten Linien mit den experimentell bei Masse 28 beobachteten:

Für $k = 0$ sind keine Linien im gemessenen Diagramm erkennbar. Zwar sind die auf diesen Linien liegenden Knoten gleicher Resonanzordnung deutlich ausgeprägt, zwischen diesen ist jedoch keine Resonanzlinie zu sehen.

Für $k = 1$ sieht man die nichtgekoppelten Resonanzen $n_r = 0$, $n_z = 2$ bis 9, von den Resonanzen $n_z = 0$ sind jedoch nur $n_r = 2$ bis 6 sichtbar, davon $n_r = 5$ nur extrem schwach. Differenzresonanzen sind überhaupt nicht zu erkennen, dafür jedoch fast alle Summenresonanzen bis $N = 9$. Von diesen sind die höheren Ordnungen mit $n_z = 1$ auffallend schwach und insgesamt nur die Resonanzen (8/7/1) sowie (9/8/1) nicht vorhanden. Von der 10. Ordnung dagegen sind (10/9/1) und (10/8/2) zu sehen.

Für $k = 2$ sieht man um die Knoten in der Nähe von $b_r = 0$ für $n_z = 4, 5, 6$ und 7 einige schwache Ansätze von Resonanzlinien, von denen die Linien (5/0/5) und (7/0/7) am deutlichsten sichtbar sind¹.

Zusätzlich sind um die Resonanz (4/4/0) 2 Linien deutlich erkennbar, die keine Entsprechung in den theoretischen Diagrammen finden (mit I und II gekennzeichnet).

¹ Beachte: Knoten $n_{r,z} = 4, 6, \dots$ für $k = 2$ liegen im Diagramm an den Stellen der Knoten $n_{r,z} = 2, 3, \dots$ für $k = 1$.

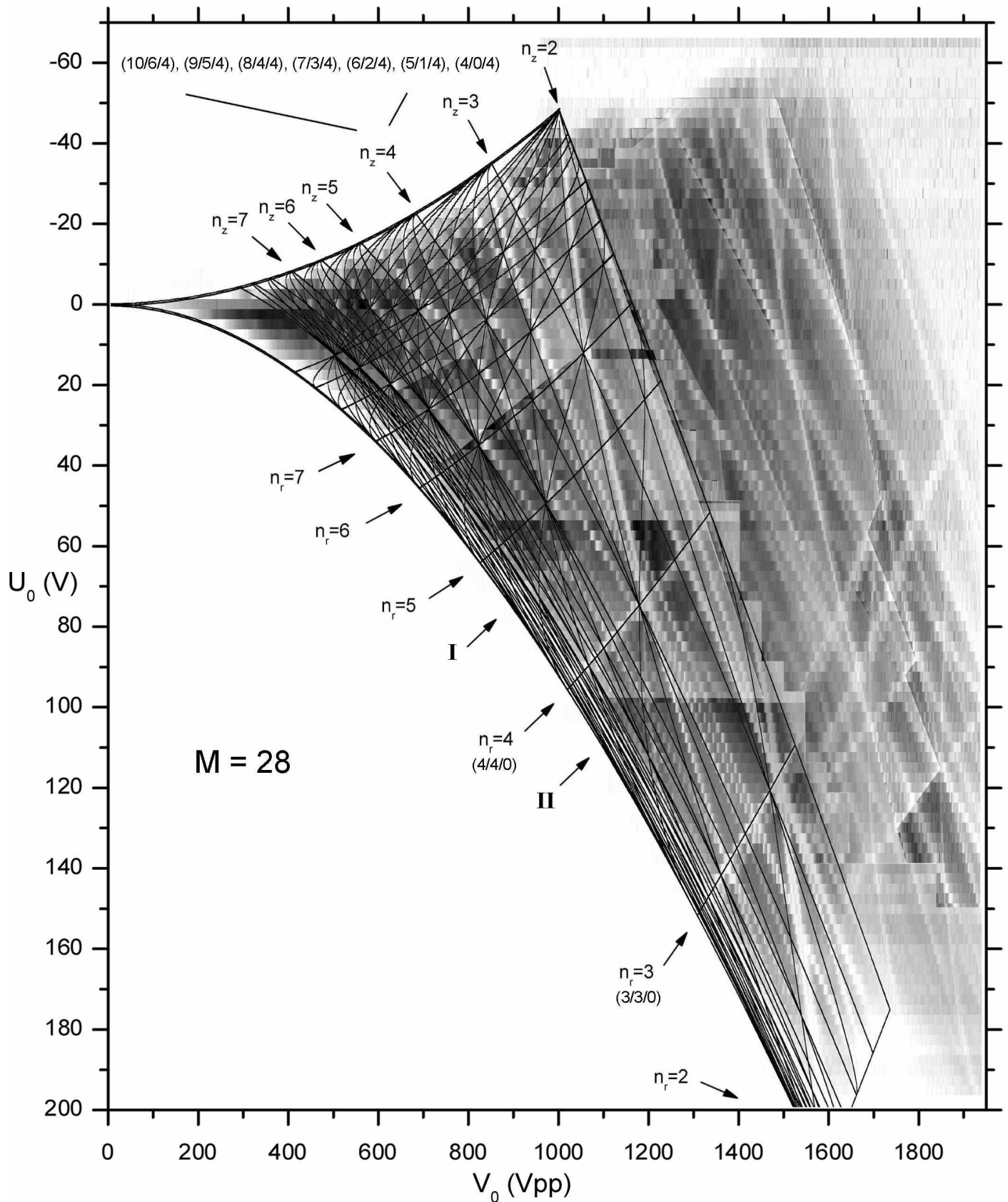


Abb. 6.35: Das experimentelle Speicherdiagramm (Abb. 6.33) mit den theoretischen Resonanzlinien der Masse 28 nach Abb. 2.15. Eingezeichnet sind die Summenresonanzen bis $N = 10$ sowie die n_r - und n_z -Knoten und einige Resonanzzuordnungen (alles für $k = 1$). Das Speicherdiagramm weist eine Verschiebung von nur knapp 2 % auf, dadurch ist eine Identifikation der Resonanzen bis auf wenige Ausnahmen möglich. Die Abbildung wurde aus ca. 20 Einzelabbildungen unterschiedlicher Grauton-Abstufungen zusammengesetzt, um maximalen Kontrast zu erhalten. Entsprechend korrelieren die Grautöne über das Gesamtdiagramm gesehen nicht mit der Anzahl gespeicherter Ionen.

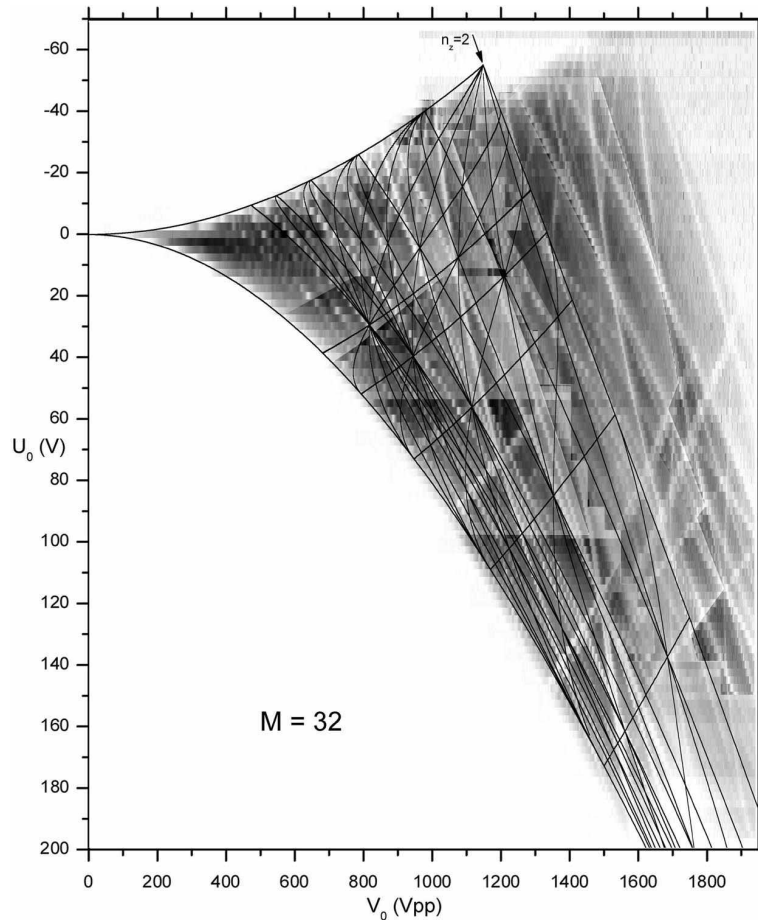
Speicherbereich von O_2^+ (Abb. 6.36):

Abb. 6.36: Überlagerung des experimentellen Speicherdiagramms von Abb. 6.35 mit den theoretischen Resonanzlinien (Summenresonanzen für $k = 1$ bis $N = 7$) der Masse 32 (O_2^+).

Der Speicherbereich für O_2^+ überschneidet sich praktisch gänzlich mit dem von N_2^+ sowie dem der Masse 40. Da von beiden Massen – vor allem natürlich von N_2^+ – wesentlich mehr Ionen gespeichert werden (siehe Abb. 6.32 bis 6.34), sind die Resonanzen von O_2^+ nur in der kleinen Spitze des Diagramms zu erkennen, bei der keinerlei Überlagerung mit anderen Massen besteht. Daher sind nur die Resonanzen mit $n_z = 2$ ansatzweise sichtbar, die von dem Knoten bei $b_r = 0$ von der Spitze des Speicherbereichs ausgehen.

Speicherbereiche der Massen 40 und 44 (Abb. 6.37):

Auch bei den Speicherdiagrammen der Massen 40 und 44 wird der Bereich von Resonanzen höherer Ordnung durch den Speicherbereich von N_2^+ überdeckt. Nur am Ende des N_2^+ -Diagramms bei hohen Werten von U_0 ist die Zahl gespeicherter Stickstoffionen gering genug, daß die Resonanzen der schwereren Ionen schwach zu sehen sind. Die Resonanzen der Masse 44 sind jedoch auch gut im Bereich der Masse 40 zu erkennen, da von beiden Massen etwa vergleichbare Ionenzahlen gespeichert werden. Wie nach den Beobachtungen beim N_2^+ -Diagramm zu erwarten, sind für $k = 1$ die nichtgekoppelten Resonanzen sowie eine Vielzahl an Summenresonanzen bis $N = 8$ zu erkennen. Und auch für $k = 2$ sieht man wieder schwach um die Knoten in der Nähe von $b_r = 0$ für $n_z = 4$ und 5 einige Ansätze von Resonanzlinien. Im Diagramm zusätzlich sichtbar sind 2 Linien (weiße Pfeile), die den Verlauf von Differenzresonanzen zeigen und am besten zu den Resonanzen (8/-3/5) und (9/-3/6) der Masse 40 oder (7/-2/5) und (8/-2/6) der Masse 44 passen – eine genaue Zuordnung ist hier nicht möglich (siehe Abbildung 6.38).

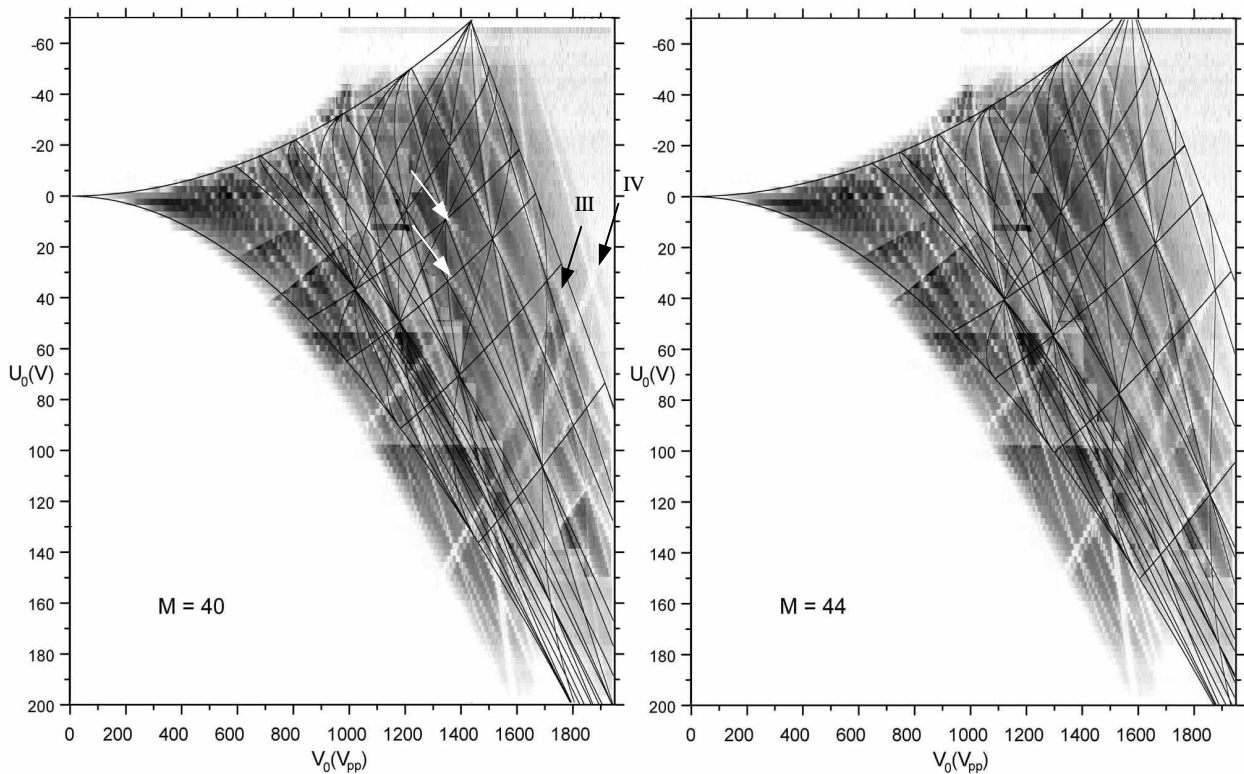


Abb. 6.37: Überlagerung des experimentellen Speicherdiagramms von Abb. 6.35 mit den theoretischen Resonanzlinien (Summenresonanzen für $k = 1$ bis $N = 7$) der Massen 40 und 44 (CO_2). Die weißen Pfeile deuten auf schwache Differenzresonanzen (genauer in Abb. 6.38), die schwarzen auf Resonanzen, die womöglich von Kopplungen mit externen Frequenzen herrühren.

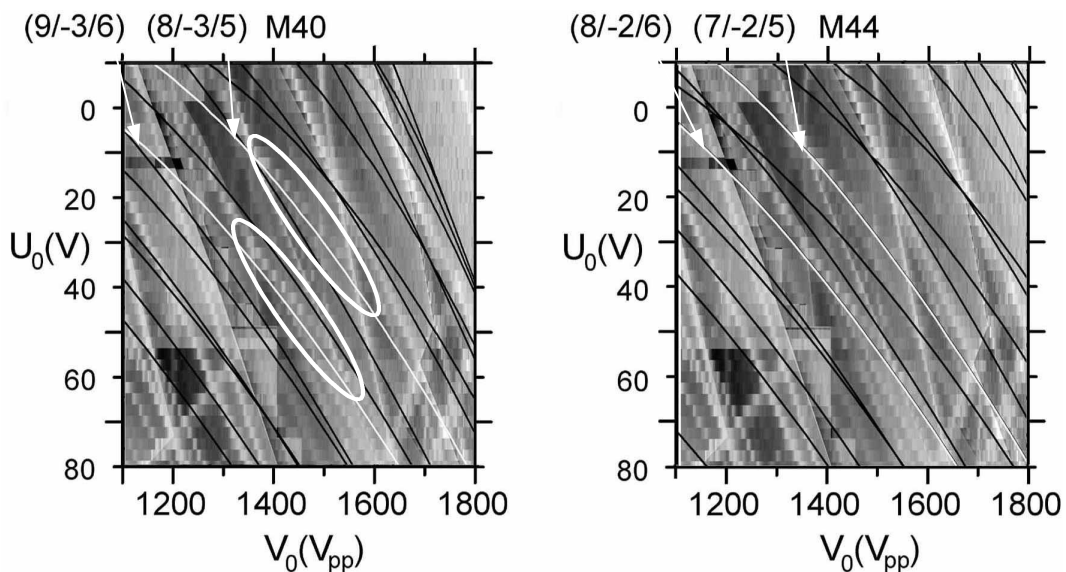


Abb. 6.38: Ausschnitt aus 6.37 mit 2 Linienstücken (weiß umrandet), deren Krümmung zum Verlauf der weiß dargestellten Differenzresonanzen paßt. Die Zuordnung ist jedoch nicht eindeutig zu einer Masse möglich, da weder der weitere Verlauf der Linien noch benachbarte Differenzresonanzen (theoretische Linien schwarz) experimentell sichtbar sind. Links Zuordnung für $M = 40$, rechts für $M = 44$.

Des Weiteren fallen 2 sehr starke Resonanzen auf, die theoretisch nicht erwartet werden (schwarze Pfeile). Die zwei Resonanzen stimmen auch nicht mit der Lage der zwei ungeklärten Resonanzen des N_2^+ -Speicherbereichs überein, die hier bei den schwereren Massen allerdings nicht auftreten.

Insgesamt zeigt sich bei allen 4 Massen eine gute Übereinstimmung der gemessenen mit den theoretischen Resonanzen. Für $k = 0$ sind keine Linien sichtbar, was sich gut mit der Erwartung deckt, daß diese Resonanzen aufgrund der fehlenden Kopplung mit dem Führungsfeld schwach

ausgeprägt sind (siehe Kapitel 2.3.3). Summenresonanzen und nichtgekoppelte Resonanzen für $k = 1$ treten entsprechend den Erwartungen stark auf, wobei die Stärke mit zunehmender Ordnung N abnimmt. Die an der n_r -Resonanz von N_2^+ (3/3/0) auftretende Aufspaltung deutet auf eine Verletzung der Rotationssymmetrie der Falle hin, die bewirkt, daß hier getrennte n_x - und n_y -Linien auftreten. Die Verletzung der Symmetrie ist jedoch nicht so stark, daß eine Verkürzung des Speicherbereichs beobachtbar wäre (vgl. [Alhe97, S.78]). Auch bei der Linie (3/2/1), die in diesem hinteren Bereich des Diagramms ansonsten die stärkste radiale Komponente aufweist, ist die Aufspaltung zu erkennen. Resonanzen für $k = 2$ sind nur ansatzweise zu erkennen, was sich mit den Erwartungen aus der Theorie deckt. Das gilt auch für das beinahe komplette Fehlen von Differenzresonanzen, da bei diesen fast keine Energie aus dem Führungsfeld auf die Ionen übertragen wird [Wang93c] – lediglich zwei Resonanzlinienstücke sind zu erkennen, deren Verlauf den Resonanzen (8/-3/5) und (9/-3/6) der Masse 40 oder (7/-2/5) und (8/-2/6) der Masse 44 entspricht. Der weitere Verlauf der Linien ist in der hier gewählten Auflösung nicht zu sehen, ebenso sind auch keine Differenzresonanzen niedrigerer Ordnung zu erkennen. Hier besteht noch Forschungsbedarf für zukünftige Experimente. Sollte sich die Zuordnung bewahrheiten, wären dies die ersten jemals experimentell beobachteten Differenzresonanzen für $k = 1$.

Aufgrund der schwereren Masse ist in den Diagrammen von $M = 40$ und $M = 44$ die Auflösung der Messung in a - und q -Richtung um den Quotient der Massen besser als im Bereich der Stickstoffionen. Die Resonanzlinien sind daher feiner und klarer zu erkennen.

Nicht der Theorie entsprechende Resonanzlinien:

Im Speicherbereich von N_2^+ tauchen 2 Resonanzen um die Linie (4/4/0) auf, die sich nicht in den theoretischen Diagrammen wiederfinden (in Abbildung 6.35 mit I und II bezeichnet). Ebenso fällt in den Speicherbereichen der Massen 40 und 44 jeweils eine solche Linie auf (mit III und IV bezeichnet). Die Frage, ob es sich bei den Linien um echte Resonanzen im Sinne von Gleichung 2.47 oder um einen technischen Effekt handelt, führt zu folgender Überlegung: Da praktisch unendlich viele Resonanzlinien existieren, läßt sich für jeden Punkt innerhalb des Speicherbereichs theoretisch eine Resonanz angeben, die durch diesen geht. Bei einer Linie hingegen muß die Resonanzbedingung 2.47 für alle ihre Punkte erfüllt sein. Bei den 4 nicht zugeordneten Linien ist dies im Rahmen der Meßgenauigkeit der Fall, es handelt sich also tatsächlich um Resonanzen. Zur Zuordnung wurden U_0 - V_0 -Wertepaare entlang der Linien in w_r - w_z -Werte umgerechnet¹, woraus

man mit dem Verhältnis der $\frac{w_r}{\Omega}$ - und $\frac{w_z}{\Omega}$ -Werte für jede Linie das kleinste gemeinsame Vielfache von n_r , n_z , N und k erhält oder alternativ n_r und n_z so gewählt werden, daß $n_r w_r + n_z w_z$ gleich einer entlang der Linie konstanten Störfrequenz w_s ist. Aus diesem Vorgehen erhält man folgende Werte:

Resonanz	I	II	III	IV
Zuordnung zu Masse [amu]	28	28	40	44
Mögliche Resonanz k ($N/n_r/n_z$)	12(57/55/-2)	16(59/58/1)	5(22/20/2)	4(19/17/2)
passende Störfrequenz [MHz]	8,8	11,9	3,8	3,1

Die möglichen Linearkombinationen führen zu unrealistisch großen Werten für N und k , was nicht in Einklang mit der Stärke der Resonanzen ist. Die Resonanzordnung müßte bei I und IV sogar noch deutlich höher sein, da die obigen ganzzahligen Werte von k noch nicht genau zu den Linien

¹ Mit Hilfe der Mathieufunktionen von Mathematica

führen¹. Andererseits führt auch offensichtlich nicht eine einzelne Störfrequenz zu allen 4 Resonanzen. Zwar sind auch parametrische Anregungen [siehe Razv98] - und damit niedrigere Störfrequenzen – denkbar, jedoch müßten in jedem Fall noch weitere, zu diesen Störfrequenzen passende Resonanzen zu beobachten sein.

Eine Klärung ist hier nicht möglich, sowohl die Existenz von vier verschiedenen Störfrequenzen als auch die hohen Resonanzordnungen erscheinen angesichts der Stärke der Linien unplausibel, es handelt sich jedoch von ihrem Verlauf her um nichtlineare Resonanzen im Sinne von Gleichung 2.47 und sie treten in beiden gemessenen Gesamtdiagrammen (sowohl bei 200 ms Erzeugungszeit als auch bei 600 ms Erzeugungszeit) auf.

Fazit:

Für die Praxis von Ionenfallenexperimenten und die Anwendung von Fallen und Massenfiltern zu Analysezwecken sind die experimentellen Daten über den Verlauf der Resonanzen und ihre Stärke von großer Wichtigkeit, da praktisch der gesamte Speicherbereich von ihnen durchzogen ist. Für die Wahl von Speicherparametern beim Betrieb einer Falle vor allem bei Präzisionsexperimenten ist die Kenntnis der Lage der Resonanzen von großem Vorteil. Die Messungen führen außerdem deutlich die Problematik vor Augen, der eine früher häufig zu Massenanalysezwecken angewandte Technik unterliegt. Dabei werden U_0 und V_0 in einem bestimmten Verhältnis durchfahren, das so gewählt ist, daß man die Spitze der Speicherbereiche streift. Je nach Steigung dieser Arbeitsgeraden erhält man stärkere Signale bei schlechterem Trennvermögen oder schwächere Signale bei besserer Auflösung. Allerdings spalten die Signale einer Masse aufgrund der nichtlinearen Resonanzen in mehrere Peaks auf, so daß irgendwann die Unterscheidung zwischen den Peaks verschiedener Massen und den Peaks einer Masse unmöglich wird.

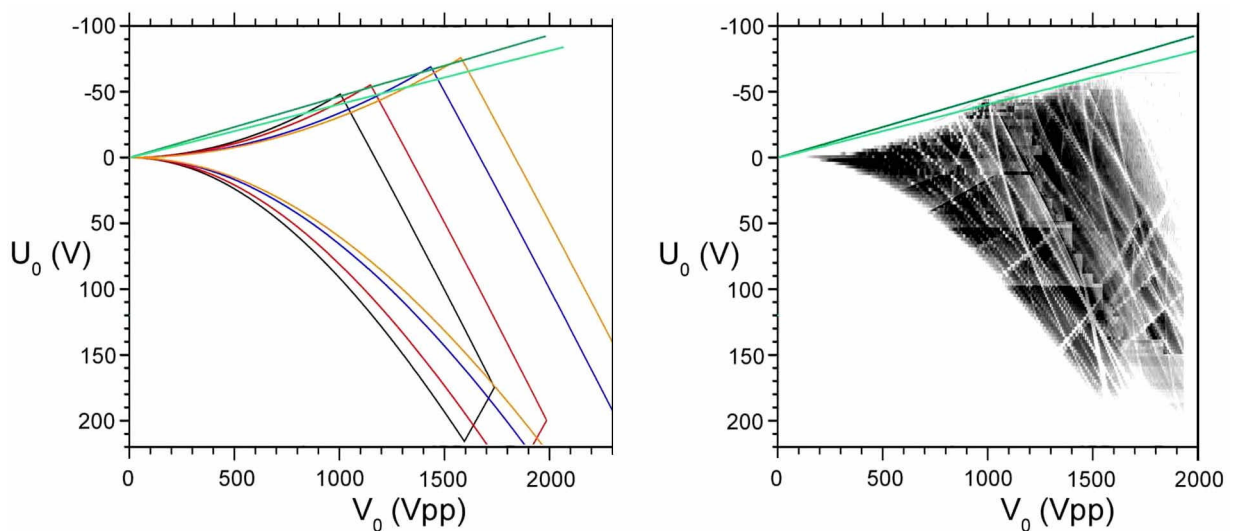


Abb. 6.39: Massenanalysetechnik in Theorie und Praxis. Grün: Arbeitsgeraden verschiedener Steigung

Die in den Diagrammen dieser Arbeit aufgetretenen ungeklärten Resonanzen zeigen, daß durch vermutlich externe Störungen unerwartete Bereiche schlechter Speicherung im Diagramm auftreten können. Auch in [Alhe97] finden sich 2 Resonanzen aufgrund von vermuteten Störungen, die sich in ihrer Lage jedoch von den hier beobachteten Linien unterscheiden. Dies zeigt, daß in der Praxis das Speicherverhalten von Paulfallen vom erwarteten abweichen kann, was für Präzisionsexperimente unter Umständen das genaue Untersuchen solcher Störungen erforderlich macht.

¹ Bei I und IV wären die genauen Werte von k bei der jetzigen Kombination von N , n_r und n_z 11,7 bzw. 4,2

Die starke V_0 -Verschiebung, der alle früheren experimentellen Speicherdiagramme unterliegen und die bei den Messungen dieser Arbeit – wahrscheinlich aufgrund der Eichmessungen der Spannungsanzeigen im Meßprogramm und am Führungsfeldverstärker – nur schwach auftritt, macht deutlich, daß die Zuordnung einer experimentellen Resonanzlinie ausschließlich dann zweifelsfrei möglich ist, wenn diese Teil eines größeren experimentellen Resonanzmusters mit mehreren Linien ist, das mit dem theoretischen Linienmuster verglichen werden kann¹.

In der Molekülphysik werden Ionenfallen zum Beispiel eingesetzt, um die Ausbeuten chemischer Reaktionen zu beobachten, indem sowohl der Ausgangsstoff als auch das Reaktionsprodukt gleichzeitig in der Falle gespeichert werden. Die Vielzahl unterschiedlich stark ausgeprägter Resonanzen und das unterschiedliche Speichervermögen von Paulfallen an verschiedenen Arbeitspunkten müssen für die bei derartigen Experimenten jeweils verwendeten Fallen genauestens bekannt und vermessen sein, damit reaktionskinetische Aussagen möglich sind.

6.3.3 Raumladungsverschiebung von Speicherbereich und Resonanzen

Die in 6.3 bisher betrachteten zwei experimentellen Speicherdiagramme wurden bei unterschiedlichen Erzeugungszeiten, 200 ms bzw. 600 ms, aufgenommen. Bei deren Vergleich fallen keinerlei Verschiebungen durch Raumladungseffekte auf, diese liegen noch unter der Meßgenauigkeit. Erst bei viel längeren Erzeugungszeiten ist der Effekt deutlich sichtbar. Um eine Raumladungsverschiebung deutlich zu erkennen und über einen großen Bereich von Ionenzahlen untersuchen zu können, ist die Aufnahme gesamter, hochaufgelöster Speicherdiagramme zu zeitaufwendig. Daher wurden in mehreren Bereichen des Speicherdiagramms einzelne q-scans bei verschiedenen Erzeugungszeiten durchgeführt und die Verschiebung beobachtet. Später in Kapitel 6.5 wird noch die Raumladungsverschiebung der Makrofrequenzen untersucht.

Verschiebung des Speicherbereichs

Die Skizzen von Fischer und Schwebel (siehe Kapitel 2.3.4) verführen zu dem Schluß, bei Erhöhung der Ionenzahl verschiebe sich das gesamte Speichergebiet in der beschriebenen Weise. Bei in der Vergangenheit nicht mit dem theoretischen Speicherdiagramm übereinstimmenden experimentellen Beobachtungen wurden z. T. erhebliche Gesamtverschiebungen des Speicherbereichs entsprechend mit der Raumladung in Verbindung gebracht. Wie das Speichervermögen der Falle in Abbildung 6.29 erahnen läßt, muß die Situation jedoch differenzierter betrachtet werden: Da in der Praxis an unterschiedlichen Stellen im Speicherbereich von einer ursprünglich erzeugten festen Ionenzahl unterschiedlich viele gespeichert werden, müssen diese Stellen eine unterschiedliche Raumladungsverschiebung erfahren. Um eine eventuelle Verschiebung der Grenzen des Speicherbereichs festzustellen, wurden an mehreren Stellen q-scans an den Speicherbereichsgrenzen bei Erzeugungszeiten zwischen 50 ms und 6000 ms durchgeführt. Eine Auswahl ist in Abbildung 6.40 gezeigt, wo bei drei Werten von a_z (bzw. U_0) charakteristische Ergebnisse gezeigt werden.

Die Messungen stellen Schnitte durch das Stabilitätsgebiet dar (siehe Abbildung 6.40 rechts unten) und bestätigen die Erwartung, daß sich das Gesamtdiagramm nicht durch Raumladungseffekte verschiebt. Die nahe $b_{r,z} = 0$ durchgeführten Messungen (in den Diagrammen links) zeigen, daß am

¹ Die Methode von Hofer [Hoef97], bei der zusätzlich die Makrofrequenzen durch Anregung bestimmt werden, ist die einzige alternative Möglichkeit der Resonanzbestimmung, sie ist jedoch in Randbereichen des Diagramms und an Punkten, an denen sich die Bereiche verschiedener Ionensorten überschneiden, unter Umständen nicht durchführbar.

Speicherbereichsbeginn trotz Erhöhung der Erzeugungsdauer nicht mehr Ionen gespeichert werden. Das Speichervermögen der Falle lässt hier keine größere Ionenzahl zu, entsprechend gibt es hier praktisch keine Raumladungsverschiebung, egal, wie lange man Ionen erzeugt. Weiter von den Bereichsgrenzen entfernt steigt das Speichervermögen der Falle, entsprechend auch der Unterschied in der Zahl gespeicherter Ionen und somit ist an den Resonanzen bei den Bildern zu $U_0 = -25$ V und $U_0 = 50$ V deutlich eine z. T. starke Raumladungsverschiebung zu beobachten. Am hinteren Ende

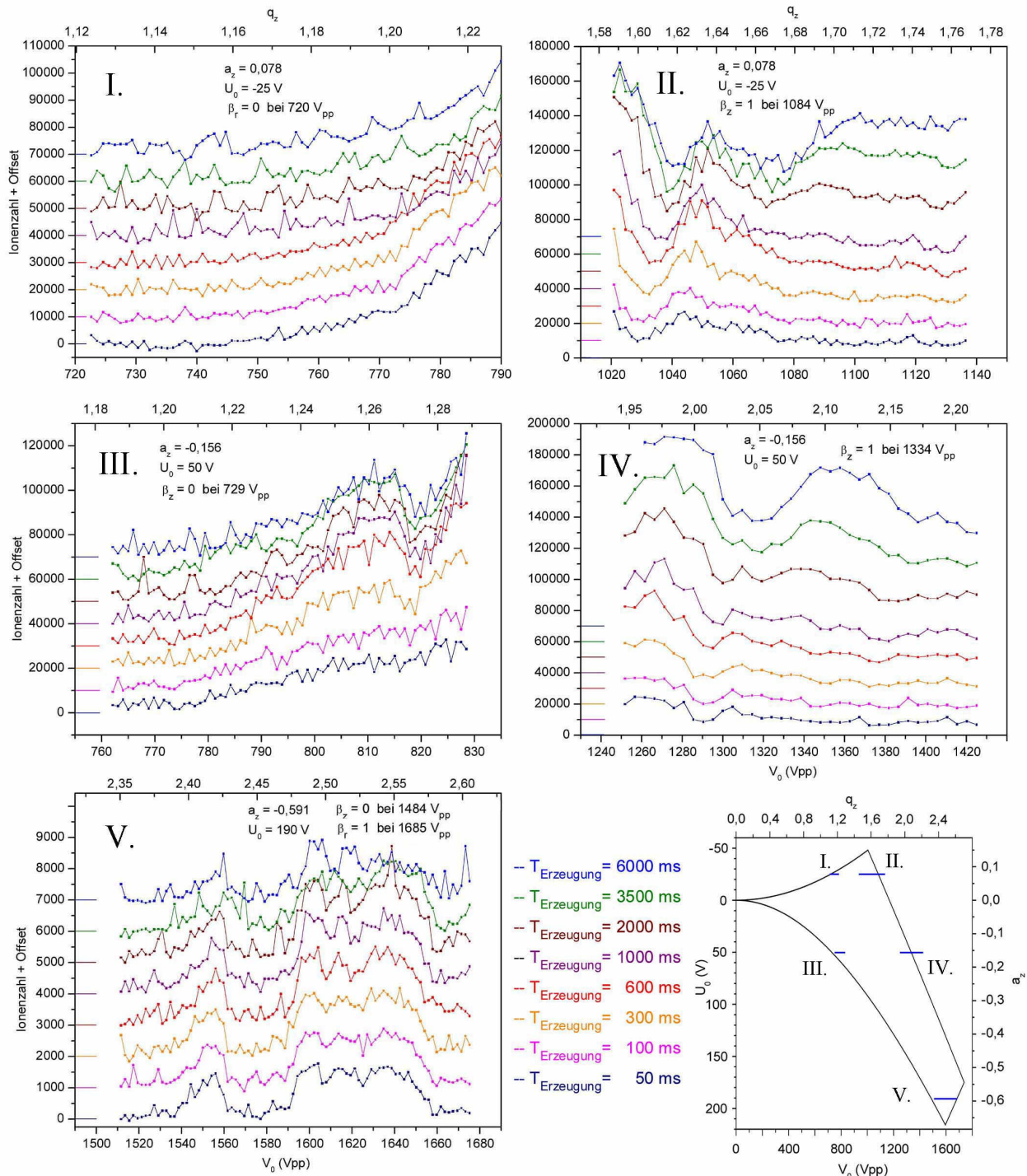


Abb. 6.40: Messungen zur Untersuchung der Raumladungsverschiebung an den Grenzen des stabilen Bereichs. Bei drei Werten von a_z (bzw. U_0) nahe der Grenzen $b_{r,z} = 0$, bzw. 1 durchgeführte q-scans bei Variation der Erzeugungzeit. Eine signifikante Verschiebung des Speicherbereichsbeginns ist nicht zu beobachten. Der besseren Übersicht halber sind die Graphen mit verschiedenen Offsets versehen, die jeweiligen Offsets sind farbig an der y-Achse angedeutet. Das Bild rechts unten verdeutlicht die Lage der q-scans im Stabilitätsbereich.

bei $b_{r,z} = 1$ ist der Speicherbereich von N_2^+ durch die der drei bereits beschriebenen schwereren Massen überlagert. Man sieht dementsprechend Raumladungsverschiebungen dieser – hier gut speicherbaren – Ionensorten. Für N_2^+ ist es logisch anzunehmen, daß sich am Ende des Speicherbereichs, wo die speicherbare Ionenanzahl gegen Null gehen muß, ebenso wie am Speicherbereichsbeginn, keine Raumladungsverschiebung stattfindet. Das Bild bei $U_0 = 190$ V unterstützt dies durch das beinahe völlige Fehlen von Raumladungsverschiebung aufgrund zu geringer speicherbarer Ionenanzahlen.

Die Messungen zeigen, daß eine Verschiebung der Speicherbereichsgrenzen durch die Raumladung der detektierten Ionensorte nicht auftritt; innerhalb des Speicherbereichs ergibt sich jedoch aufgrund von Raumladungseffekten eine Verzerrung (z.B. des Resonanzmusters), da Punkte mit mehr gespeicherten Ionen sich weiter zu höheren q_z bzw. V_0 -Werten verschieben als Punkte mit geringeren Ionenanzahlen. Verschiebungen aufgrund der Raumladung mitgespeicherter, nicht detektierter (z. B. bei optischer Detektion wie in Kapitel 5) Ionensorten sind prinzipiell möglich, jedoch können derartige Effekte nie das gesamte Speicherdiagramm erfassen, da das U_0 - V_0 -Diagramm einer Masse niemals vollständig durch das einer anderen Masse überdeckt wird¹.

Verschiebung der Resonanzen

Um die Stärke der möglichen Raumladungsverschiebung detailliert zu untersuchen, wurden im Bereich guter Speicherfähigkeit der Falle bei $U_0 = 0,3$ V und V_0 zwischen 400 und 775 V_{pp} q-scans bei 33 Erzeugungszeiten zwischen 100 ms und 10000 ms durchgeführt. Für N_2^+ -Ionen entsprechen diese Speicherspannungen den Parametern $a_z = 0,001$ und q_z zwischen 0,311 und 0,603, erhöht in Schritten von $\Delta V_0 = 1$ V_{pp} , d.h. $\Delta q_z = 7,8 \cdot 10^{-4}$. Der Restgasdruck betrug ca. $1 \cdot 10^{-9}$ mbar. Eine Auswahl dieser q-scans ist in Abbildung 6.41 dargestellt.

Gut zu beobachten ist mit Zunahme der Ionenanzahl die starke Verschiebung der Resonanzen zu höheren V_0 hin und das Verschwinden der bei 100 ms Erzeugungszeit gut ausgeprägten schwächeren Resonanzen mit $n_r \neq 0$. Man kann daher davon ausgehen, daß die beobachteten starken Resonanzen überwiegend durch die Resonanzen (8/0/8), (7/0/7), (6/0/6) und (5/0/5) gebildet werden. Bei den Resonanzen (8/0/8) und (5/0/5) sind neben den üblicherweise auftretenden individuellen eindeutig kollektive Resonanzen zu erkennen. Dies ist die erste experimentelle Beobachtung von kollektiven Resonanzen an nichtlinearen Resonanzen im Stabilitätsdiagramm; bislang wurden diese ausschließlich an Makrofrequenzresonanzen (siehe Kapitel 6.5) beobachtet.

Vergleich der Raumladungsverschiebung mit der Theorie

Bereits seit den Anfängen des Experimentierens mit Paulfallen ist das Phänomen der Raumladungsverschiebung bekannt und es wurden seither 3 Modelle zur Berechnung derselben entwickelt ([Fisc59, Schw75, Meis88], siehe auch Kapitel 2.3.4). Die Messungen dieser Arbeit stellen mit 33 q-scans bei Erzeugungszeiten, die einer Variation der Fallenfüllung zwischen ca. 20000 und ca. 300000 Ionen entsprechen, die ersten systematischen Untersuchungen der Raumladungsverschiebung bei großen Ionenwolken dar. Mit diesen Daten ist ein Plausibilitätstest, jedoch kein absoluter Test der obigen Modelle möglich, da diese einen weiteren hier nicht meßbaren Parameter - den Ionenwolkenradius - zur absoluten Berechnung der Verschiebung benötigen.

¹ Bei Ionen gleicher Polarität sind die zu $a_z = 0,15$, $q_z = 0,78$ sowie $a_z = -0,67$, $q_z = 1,24$ gehörenden Spitzen im U_0 - V_0 -Diagramm charakteristisch und durch Ionen unterschiedlicher Masse nicht überlagerbar (es sei denn durch Ionen vielfacher Masse und Ladung). Von Ionen unterschiedlicher Polarität (das U_0 - V_0 -Diagramm von Ionen negativer Ladung ist gerade das an der V_0 -Achse gespiegelte Diagramm der positiven Ionen gleicher Masse) können große Teile der Speicherbereiche prinzipiell nicht überlagert werden.

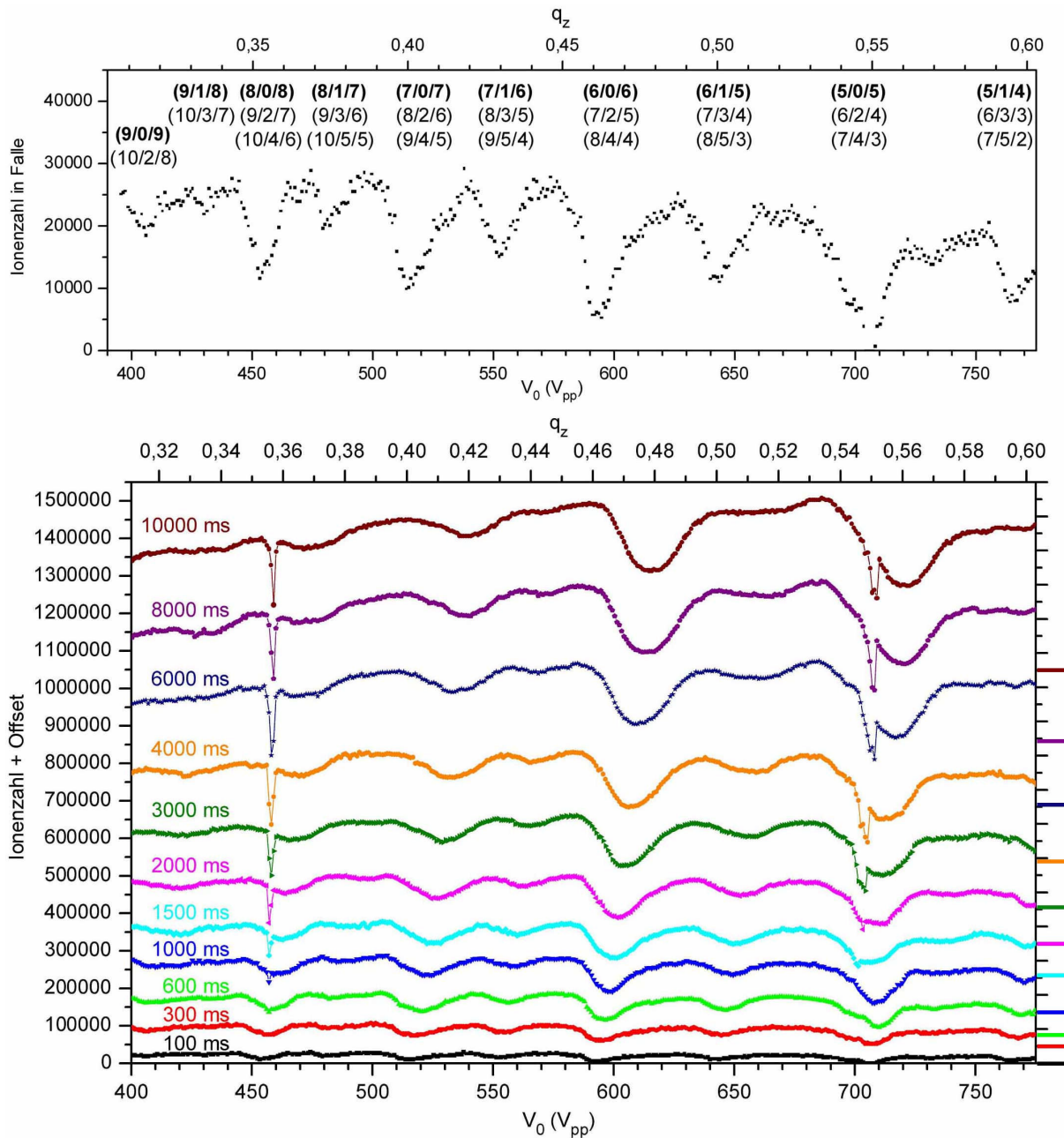


Abb. 6.41: Oben: q -scan bei 100 ms Erzeugungszeit mit Zuordnung der Resonanzen ($N/n_r/n_z$), wobei die am stärksten beitragenden niedrigen Ordnungen fett gedruckt sind. Die drei niedrigsten Ordnungen (bzw. bis Ordnung 10) sind angegeben, eine exakte Zuordnung ist jedoch nicht möglich, da bei der Messung die Resonanzknoten der Summenresonanzen geschnitten wurden. Unten: Die q -scans bei Erzeugungszeiten von 100 ms bis 10000 ms zeigen eine deutliche Raumladungsverschiebung sowie – hier erstmals im Speicherbereich beobachtet – ab einer Schwellenionenzahl kollektive Resonanzen (die scharfen Resonanzen bei (8/0/8) und (5/0/5)). Diese wurden bislang ausschließlich im Frequenzspektrum gesehen und weisen praktisch keine Raumladungsverschiebung auf. Abgesehen von der Beschreibung in [Rett65] ist dies die einzige Beobachtung von kollektiven Resonanzen ohne externe Anregung. Der besseren Übersicht halber wurden die Graphen mit verschiedenen Offsets versehen, die jeweils farbig an der rechten y-Achse angedeutet sind. Die x-Achsen geben q_z - (oben) und V_0 -Werte (unten) an. $U_0 = 0,3$ V, $P_{\text{Restgas}} = 1 \cdot 10^{-9}$ mbar.

Die Resonanzmitten wurden durch Fit an die Meßdaten bestimmt und deren Position gegen die Ionenzahl aufgetragen. Letztere wurde aus den Erzeugungszeiten mit Hilfe einer bei $U_0 = 0,3$ V und $V_0 = 398$ V_{pp} aufgenommenen Sättigungskurve berechnet. Dies ist nötig, da die Verwendung der Signalhöhen der einzelnen Meßreihen für den Bezug Erzeugungszeit-Ionenanzahl zu keinen zufriedenstellenden Ergebnissen führt, weil die Messungen an mehreren Tagen durchgeführt wurden und Unterschiede in den Nachweis- und insbesondere Pedestal-Einstellungen aufweisen. In obigen Messungen sind die bei kleineren Fallenwechselspannungen liegenden Resonanzen (z. B.

(8/0/8)) für den Vergleich mit der Theorie am geeignetsten, da hier das Speichervermögen der Falle besser mit dem übereinstimmt, bei dem die Sättigungsmessung durchgeführt wurde und zudem der Einfluß anderer, mitgespeicherter Ionensorten kleiner ist.

Die absolute Raumladungsverschiebung bei linearem Fit beträgt in den Messungen zwischen $6 V_{pp}$ und $8 V_{pp}$ pro 100000 Ionen.

Zur Berechnung der theoretischen Raumladungsverschiebung ΔU_0 nach Fischer [Fisc59] wird nach Gleichung 2.55 die Ionendichte r benötigt. Die Verschiebung ΔU_0 muß dann mit Hilfe der Iso- b_z -Linie¹, auf der der betrachtete Parameterpunkt U_0 - V_0 liegt, in eine Verschiebung ΔV_0 umgerechnet werden, um mit den Messungen vergleichbar zu sein. Die Ionendichte erhält man aus der gemessenen Ionenanzahl und der Abschätzung eines Ionenwolkenradius². Dieser ist im vorliegenden Experiment nicht experimentell zugänglich, daher wählt man ihn sinnvollerweise so, daß die theoretische Gesamtverschiebung bei maximaler Ionenzahl mit der bei dieser Ionenzahl gemessenen Verschiebung übereinstimmt.

Für die Berechnung der theoretischen Raumladungsverschiebung nach Meis [Meis88] wird mit der gemessenen Ionenanzahl und unter Vorgabe eines Ionenwolkenradius nach Gleichung 2.58 die Veränderung der Makrofrequenz w_z berechnet. Zusammen mit der Resonanzordnung n_z und der theoretischen Makrofrequenz bei Raumladung 0 kann das raumladungsverschobene V_0 berechnet werden³. Auch hier wird – wie oben – der Wolkenradius so gewählt, daß theoretische und experimentelle Gesamtverschiebung übereinstimmen.

Mit der Anpassung eines Ionenwolkenradius r_0 auf diese Weise müssen beide theoretische Kurven praktisch parallel zur experimentellen verlaufen. Die Erkenntnis bei diesem Vorgehen liegt darin, wie gut der theoretische Kurvenverlauf von der Krümmung her mit dem experimentellen übereinstimmt und ob der angepaßte Wert des Wolkenradius plausibel erscheint.

Entsprechend der Vorgaben liegen die theoretischen Kurven in Abbildung 6.42 nahe den experimentellen Werten, wobei die Diskrepanz darauf beruht, daß das experimentelle Diagramm um knapp 2 % gegenüber dem theoretischen verschoben ist (siehe Abb. 6.35) und letzteres als Ausgangspunkt der Berechnungen verwendet wurde. Die Verläufe der nach Fischer und Meis berechneten Raumladungsverschiebungen ähneln sich so stark, daß nicht zu entscheiden ist, ob eine der Theorien besser mit den Meßdaten übereinstimmt. Die Anfangs- und Endpunkte der theoretischen Kurven sollten übereinstimmen, die Abweichung beruht auf Rundungsfehlern. Bei den Ionenwolkenradien ist der für Meis angenommene etwa um den Faktor 1,6 kleiner, was jedoch plausibel erscheint, da die Theorie nach Meis von einer sphärischen Ionenwolke mit gaußscher Dichteverteilung ausgeht, während Fischer von einer homogenen, rotationssymmetrischen Raumladung ausgeht, die hier als Ellipsoid mit $r_0^2 = 2 z_0^2$ angenommen ist. In beiden Fällen wurde der Wolkenradius als konstant über die Ionenzahlen angenommen.

Beide Theorien liefern plausible, sehr ähnliche Resultate; ein absoluter Test der Theorien ist nur mit gleichzeitiger Messung von Ionenzahl, Raumladungsverschiebung sowie Wolkenradius oder Ionendichte möglich.

Ein Vergleich der Messungen mit der von Alheit [Alhe96, Alhe97] beobachteten Raumladungsverschiebung ist aufgrund der dort fehlenden Angabe des Parameters a_z und des dort nicht auf Ionenzahlen in der Falle geeichten Nachweises nicht möglich.

¹ Berechnet mit der Mathieufunktion von Mathematica® 5.1

² Mit Radius ist hier der Radius r_0 des Ellipsoids gemeint, dessen Volumen gegeben ist durch

$$Vol = \frac{4}{3} a \cdot b \cdot c, \quad a = b = r_0, \quad c = \frac{r_0}{\sqrt{2}}$$

³ Berechnet mit der Mathieufunktion von Mathematica® 5.1

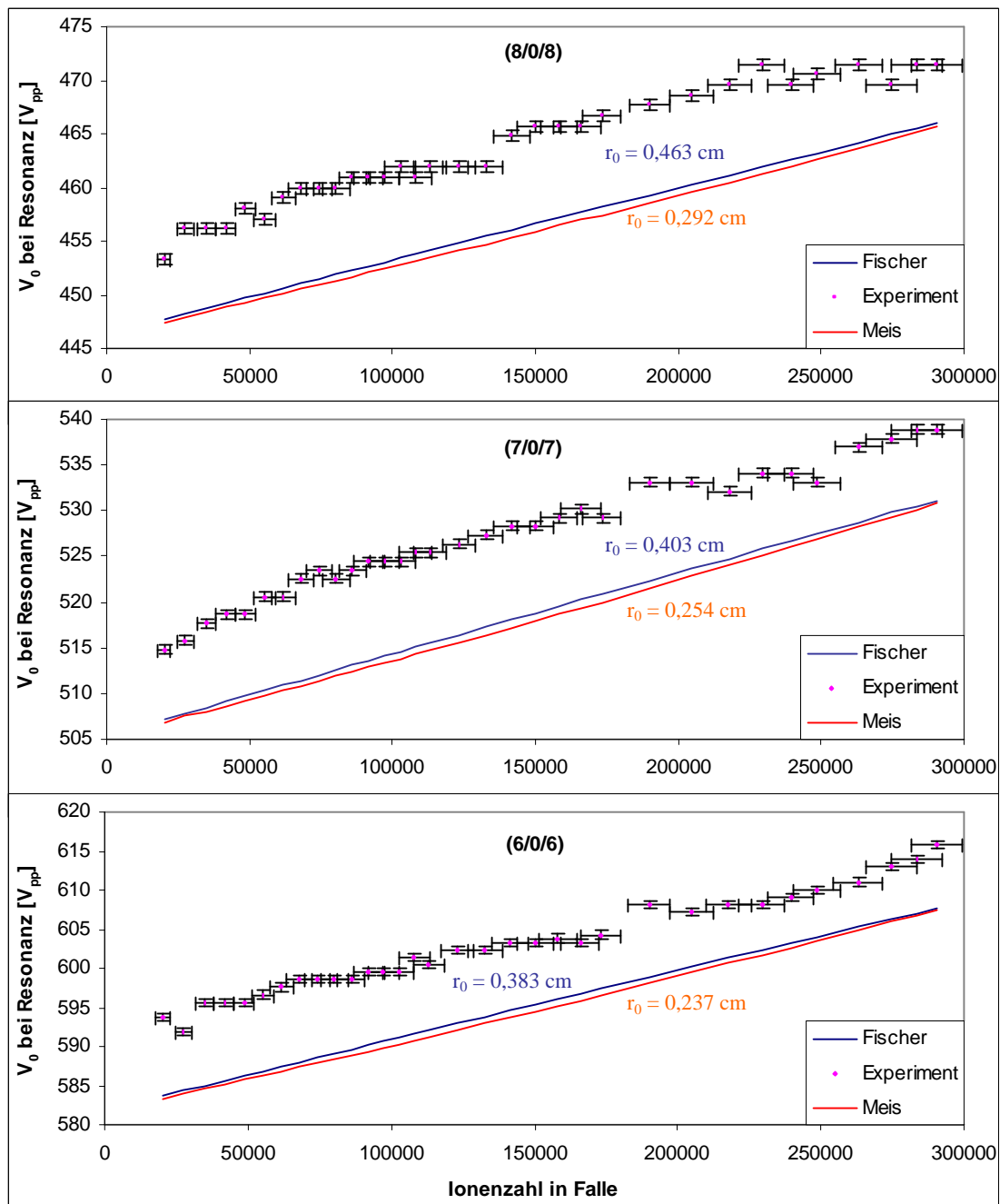


Abb. 6.42: Experimentelle Daten der Raumladungsverschiebung der Resonanzen (8/0/8), (7/0/7) und (6/0/6) sowie die nach Fischer [Fisc59] und Meis [Meis88] berechneten theoretischen Kurven. Die dazu jeweils nötige Annahme des Wolkenradius' ist in den Diagrammen angegeben.

6.3.4 Kollektive Resonanzen im Stabilitätsdiagramm

Ab einer gewissen Grenzionenzahl wird bei Ionenwolken die Speicherfeldabschirmung so groß, daß die Kopplungskräfte im Inneren der Wolke überwiegen und kollektive Oszillation aller Ionen mit einer gemeinsamen Frequenz stattfindet. Das Auftreten von kollektiven Effekten bei der Speicherung großer Ionenwolken ist seit langem bekannt, wie z. B. die beim elektronischen Nachweis beobachtbare kollektive Oszillation zweier Massen bei größer werdenden Ionen Zahlen [Jung87]. Auch wurde im Frequenzspektrum schon häufig der scharfe Signaleinbruch einer kollektiven Resonanz neben dem der breiteren individuellen Resonanz beobachtet und untersucht [Alhe97b und hier in Kapitel 6.5]. Bei der z-Bewegung der Ionen beobachtete [Rett65] dabei bislang als einziger eine kollektive Resonanz ohne externe Anregung; ein gleichartiges Signal wurde nun erstmals bei der Aufnahme von Resonanzen im U_0 - V_0 -Diagramm, ebenfalls ohne externe Anregung, beobachtet:

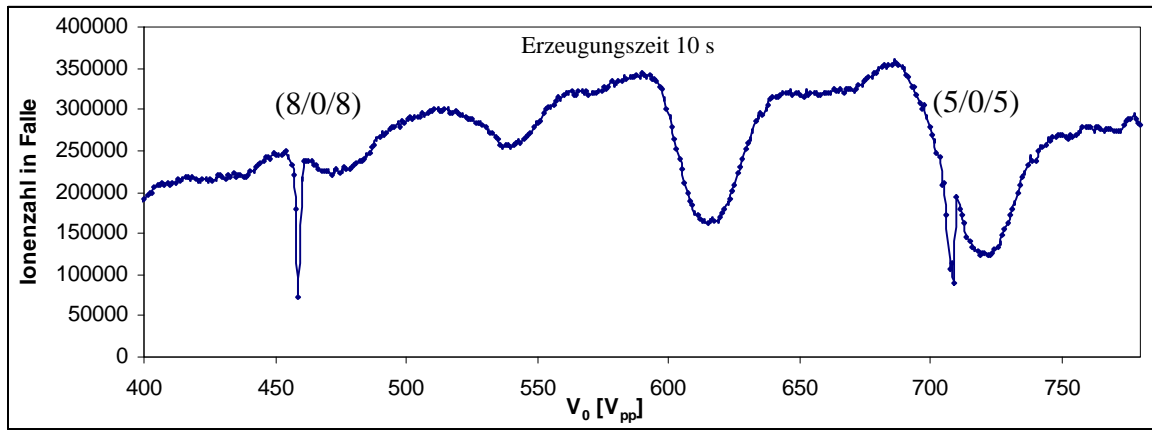


Abb. 6.43: Q-scan bei 10000 ms Erzeugungszeit mit kollektiven Resonanzen bei (8/0/8) und (5/0/5).

Wie schon in Abbildung 6.41 zu erkennen ist, beginnt das Auftreten der beiden kollektiven Resonanzen bei unterschiedlichen Ionenzahlen, zudem ist schwach zu sehen, daß beide ebenfalls – wie die individuellen Resonanzen – mit zunehmender Ionenzahl in der Falle eine größer werdende Verschiebung aufweisen. Genauer ist dies in Abbildung 6.44 dargestellt:

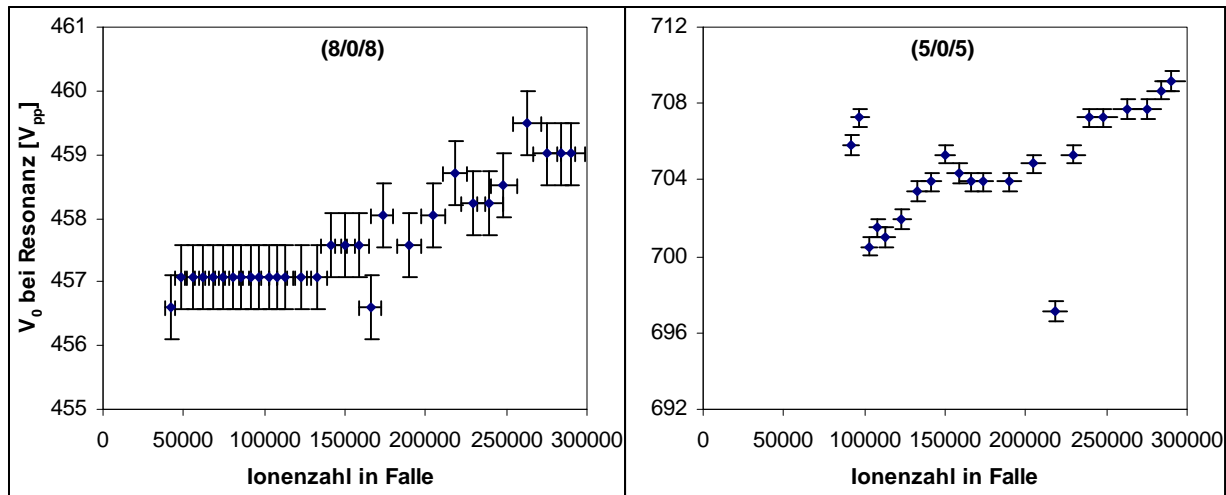


Abb. 6.44: Auftragung der Mittenfrequenzen der kollektiven Resonanzen gegen die Ionenzahl in der Falle. Als Fehler der Ionenzahl ist hier der (kleinere) statistische Fehler angegeben und nicht der absolute.

Daß die der Theorie nach unabhängig von der Raumlading nur bei fester Frequenz (und damit festem V_0) auftretenden kollektiven Resonanzen überhaupt eine Verschiebung aufweisen, liegt an den gleichzeitig ebenfalls gespeicherten und nicht mitschwingenden Ionen anderer Massen. Die Resonanz (8/0/8) liegt mit einem V_0 von ca. 450 V_{pp} in der Nähe des optimalen Speicherpunktes für Stickstoffionen (vgl. Abb. 6.30), weshalb hier die Anteile mitgespeicherter anderer Ionen gering sind. Die von deren Raumlading verursachte Verschiebung ist damit ebenfalls klein. Die sehr viel stärkere Verschiebung bei (5/0/5) erklärt sich dadurch, daß bei etwas über 700 V_{pp} optimales Speichervermögen für die Massen 40 und 44 besteht¹.

Daß die kollektive Resonanz bei der höheren Resonanzordnung schon bei deutlich kleineren Ionenzahlen auftritt (bei (8/0/8) bei ca. 40000, bei (5/0/5) bei ca. 90000 Ionen), erscheint zunächst unlogisch, erklärt sich aber aus einem später in Kapitel 6.5 näher beschriebenen Phänomen: An Punkten der Überlagerung mehrerer Resonanzen verstärken sich diese in ihrer Wirkung, d.h. die Resonanzen werden tiefer und vorher nicht sichtbare kollektive Resonanzen erscheinen. Die Schnittlinie der q-scans dieser Messungen führt nahe der Resonanzknoten gleicher Ordnung N

¹ Aus diesem Grund waren zuvor (in Abb. 6.42) nur die weniger durch andere Massen beeinflussten Raumladingverschiebungen bei den höheren Resonanzordnungen quantitativ untersucht worden.

vorbei. Der Knoten der Ordnung $N = 8$ liegt dabei aber viel näher am q-scan als der Knoten der Ordnung $N = 5$. Somit ist bei $(8/0/8)$ eine bessere Überlagerung mehrerer Resonanzen gegeben, weshalb die kollektive Resonanz hier früher, d.h. schon bei kleineren Ionenzahlen, auftritt.¹

6.3.5 Auswirkungen des Puffergaskühlens auf den Speicherbereich

Die Auswirkungen von Dämpfung auf die Grenzen des Speicherbereichs der Paulfalle werden von zwei Theorien beschrieben, die zu zwei nicht miteinander vereinbaren Ergebnissen kommen ([Koto43, Hase95], siehe auch Kapitel 2.3.5). Die Messungen aus Kapitel 5.3 konnten hier keine Entscheidung liefern, zeigten jedoch, daß die Verschiebung des Speicherbereichs aufgrund von Dämpfung durch Puffergas nicht groß sein kann. Zur genaueren Untersuchung der Auswirkungen wurden daher q-scans bei $a = 0$ bei 22 verschiedenen Helium-Puffergasdrücken zwischen $5 \cdot 10^{-8}$ und $8,5 \cdot 10^{-6}$ mbar und bei 28 verschiedenen Stickstoff-Puffergasdrücken zwischen $2,3 \cdot 10^{-8}$ und $4,2 \cdot 10^{-5}$ mbar durchgeführt. Eine Auswahl ist in Abbildung 6.45 gezeigt.

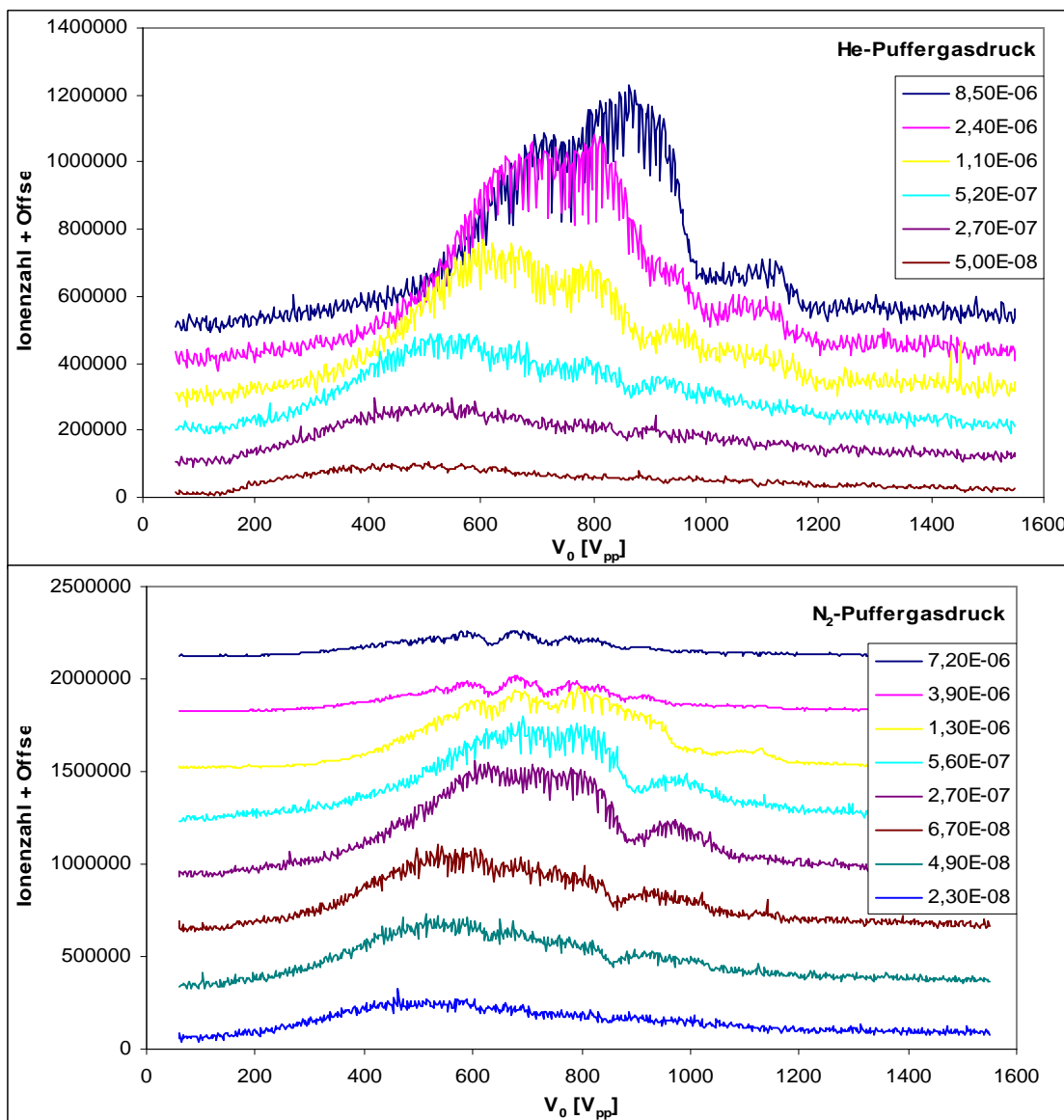


Abb. 6.45: q-scans bei $a = 0$ und verschiedenen Puffergasdrücken von Helium und Stickstoff (Angaben jeweils in mbar). In beiden Fällen ist eine Verschiebung des Punktes optimaler Speicherung zu erkennen. Den Ionenzahlen ist ein Offset hinzugefügt, der etwa der jeweiligen Anfangsionenzahl bei $V_0 = 70 \text{ V}_{pp}$ entspricht.

¹ Die Stärke der Resonanz $(8/0/8)$ in Abb. 6.28 im Vergleich zu $(7/0/7)$, $(6/0/6)$ erklärt, daß die kollektive hier auftritt.

Bei Helium als Puffergas fällt bei Druckerhöhung deutlich die starke Verschiebung des Punkts optimaler Speicherung¹ um über 200 V_{pp} auf. Gleichzeitig nimmt die Speicherfähigkeit der Falle (siehe auch Abbildung 6.46) enorm zu². Dieser positive Effekt des Puffergaskühlens ist schon lange bekannt (z.B. in [Iffl77]). Die Verschiebung zu größeren Werten von V_0 scheint zunächst die Theorie von Hasegawa zu bestätigen, allerdings ist zu beobachten, daß bei kleinen Fallenwechselspannungen sich zwar die Zahl der gespeicherten Ionen nicht erhöht, jedoch der Punkt des Speicherbeginns eher noch zu kleineren Werten von V_0 wandert, als umgekehrt. Auch hier überwiegt somit der auf die Speicherfähigkeit positive Effekt des Kühlens gegenüber eventuell auftretenden Verschiebungen der Diagrammgrenzen. Da die Messungen bei $a = 0$ durchgeführt wurden, ist allerdings ohnehin zu erwarten, daß der Speicherbeginn hauptsächlich durch Potentialtopftiefe und Ionenenergie gegeben ist.

Bei Stickstoff als Puffergas ist bis zu einem optimalen Druck von $2,7 \cdot 10^{-7}$ mbar wie bei Helium eine Verschiebung des Punkts optimaler Speicherung und eine Erhöhung der Speicherfähigkeit zu sehen; bei weiterer Druckerhöhung ist beides jedoch wieder rückläufig. Betrachtet man die Ionenzahl am Punkt optimaler Speicherung gegen den Stickstoffdruck, so zeigt die Kurve ein deutliches Maximum bei ebendiesem Druck (siehe Abbildung 6.46). Die Kurve für Helium besitzt, sollte ebenfalls ein Maximum existieren, dieses bei höheren Drücken, die mit der Apparatur nicht zugänglich sind. Die Ergebnisse stimmen gut mit den denen aus Kapitel 6.2.4 überein.

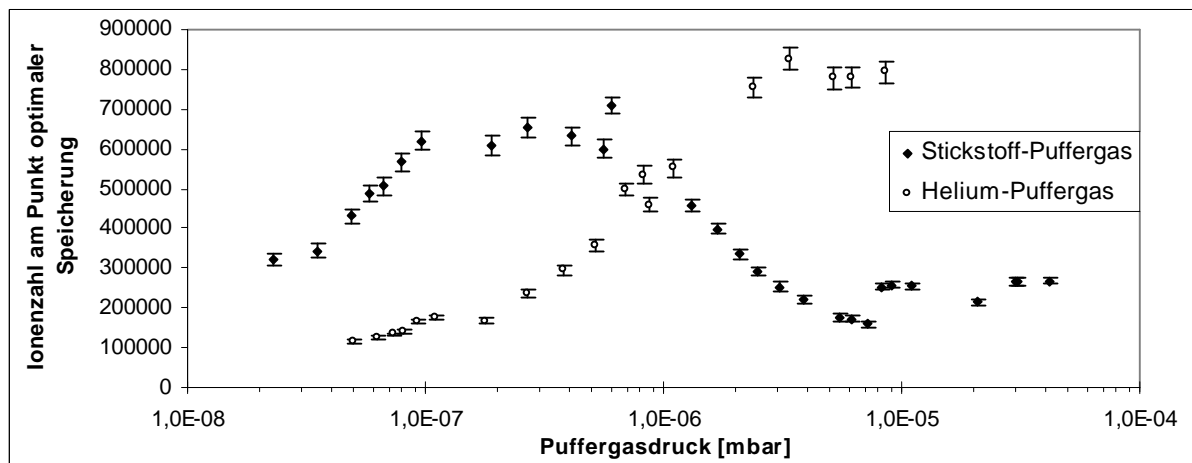


Abb. 6.46: Ionenzahl am Punkt optimaler Speicherung (innerhalb der q-scans bei $a = 0$) bei Variation von Helium- und Stickstoff-Puffergasdruck. Die Ergebnisse sind vergleichbar Abb. 6.20.

Um Auswirkungen des Puffergasdrucks auch in anderen Bereichen des Speicherdiagramms zu überprüfen, wurde U_0 zwischen -40 V bis $+200$ V in 20-V-Schritten erhöht (entspricht für gespeicherte Stickstoffionen einer Variation von a_z um 0,062 von $a_z = 0,124$ bis $a_z = -0,622$) und bei jeder dieser Fallengleichspannungen q-scans bei 7 bis 8 verschiedenen Drücken durchgeführt. Eine Auswahl der Daten ist in Abbildung 6.47 dargestellt.

Die q-scans zeigen hier das selbe Verhalten wie schon bei $a = 0$: bei Helium nimmt die Speicherfähigkeit mit steigendem Druck zu, während bei Stickstoff zu höheren Drücken hin schließlich immer eine Abnahme der Signalthöhe beobachtet werden kann; diese tritt auch bei den Ionen mit größerer Masse auf. Verschiebungen des Speicherbereichs sind auch hier nicht sichtbar, einige Resonanzen verschieben sich entsprechend der Raumladung.

¹ Mit Punkt optimaler Speicherung ist hier der Punkt maximaler Ionenzahl innerhalb der q-scans bei $a = 0$ gemeint, zur Messung des tatsächlichen Punktes optimaler Speicherung wären Messungen vergleichbar Abb. 6.30 nötig, da dieser nicht bei $a = 0$ liegt.

² Mit der Zunahme des He-Drucks nimmt allerdings gleichzeitig auch der N_2 -Druck zu (siehe Partialdrücke, Abb. 6.4)

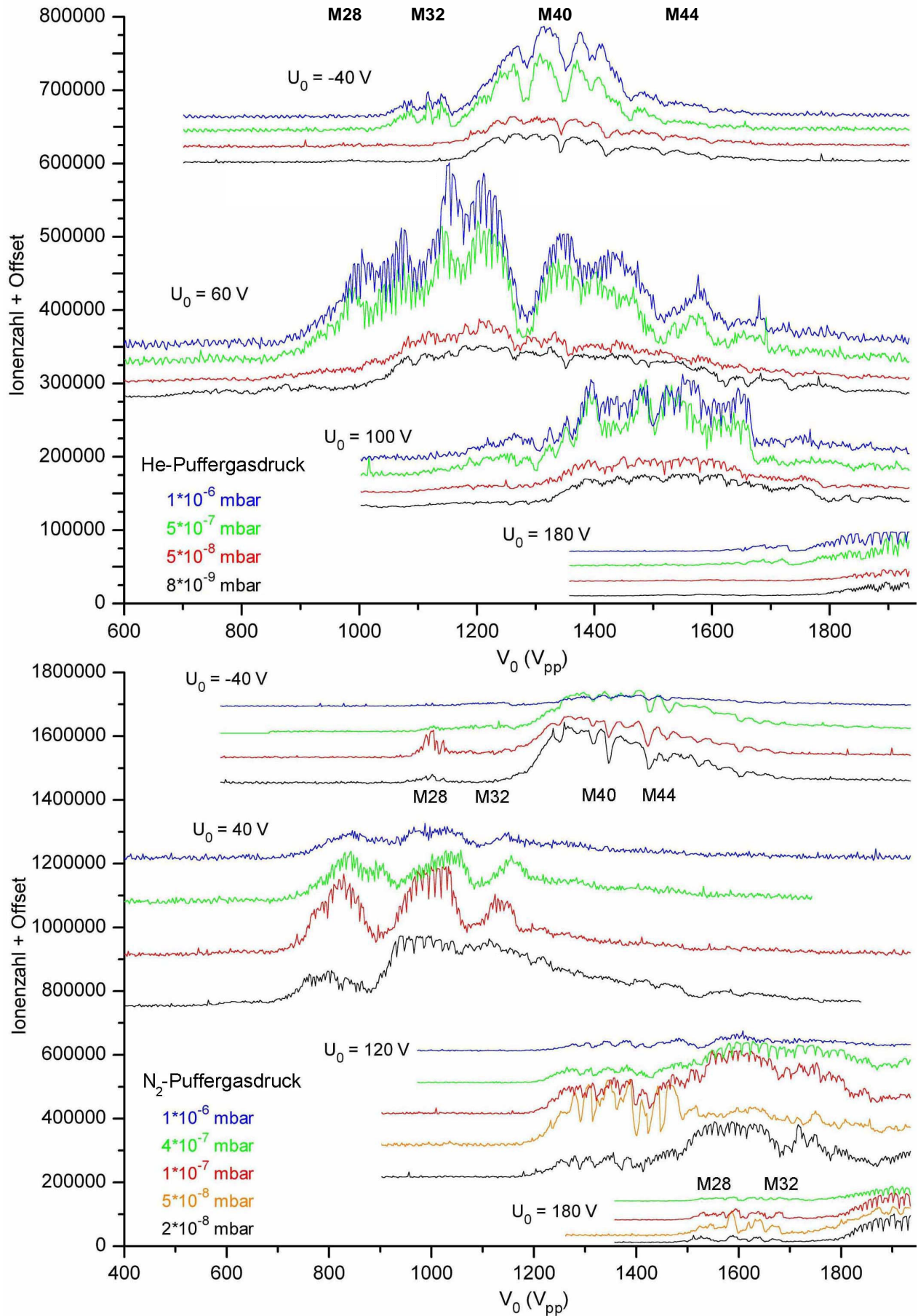


Abb. 6.47: q-scans bei den angegebenen Fallengleichspannungen U_0 bei unterschiedlichen Helium-Puffergasdrücken (oben) bzw. Stickstoff-Puffergasdrücken (unten). Den Ionenzahlen ist ein Offset hinzugefügt, der etwa der Anfangsionenzahl des jeweiligen q-scans entspricht. Bei den Spannungen $U_0 = -40$ V und $U_0 = 180$ V sieht man z.T. die Speicherbereiche der einzelnen Massen getrennt.

Puffergasgekühlte Ionen in der Paulfalle zeigen im Speicherdiagramm weder das von Kotowski (Erweiterung des Speicherbereichs in alle Richtungen) noch das von Hasegawa (Verschiebung des Speicherbereichs zu großem q_z) berechnete Verhalten. Ursache ist sicherlich, daß bei den hier im Experiment verwendeten Drücken die Dämpfungskonstante so gering ist, daß praktisch keine Verschiebung der Speichergrenzen auftritt. Winter und Ortjohann [Wint91] haben mit makroskopischen Partikeln zwar bei höheren Drücken gemessen, jedoch lediglich die Verschiebung des Punktes $a = 0$, $b_z = 1$ mit zunehmender Dämpfung untersucht, so daß eine klärende Messung weiterhin aussteht.

Bei der Kühlung mit dem im Verhältnis zu den gespeicherten Ionen leichten Puffergas Helium führt eine Druckerhöhung im beobachteten Druckbereich immer zu verbesserten Speicherbedingungen aufgrund effizienterer Kühlung. Bei dem mit den Ionen gleichschweren Puffergas Stickstoff existiert ein optimaler Druck, bei dem die Speicherung am effektivsten – aber deutlich schlechter als mit Helium – ist. Daß N_2^+ -Ionen überhaupt durch das Puffergas Stickstoff gekühlt werden, ist scheinbar ein Widerspruch zu Major und Dehmelt ([Majo68], siehe in Kapitel 2.3.5), dieser löst sich jedoch dadurch, daß die Ionen nach der Erzeugung einen höheren Impuls als die Puffergasmoleküle haben und somit durch diese thermalisiert werden können. Bei zu geringem Druck ist der Kühleffekt zu klein, bei großen Drücken überwiegt der Ionenverlust die Kühlung. Ist das Puffergas nur wenig leichter als die gespeicherten Ionen (Puffergas Stickstoff bei gespeicherten Ionen der Masse 40 und 44), ist bei der gegebenen Genauigkeit kein Unterschied zur Verwendung von gleichschweren Ionen und Puffergas zu erkennen.

Die erhebliche Veränderung des Punktes optimaler Speicherung (siehe Abbildung 6.46 sowie 6.48) und damit der Speicherfähigkeit der Falle bei Druckvariation kann bei Untersuchung chemischer Reaktionen in Fallen deutliche Auswirkungen auf die Meßergebnisse haben.

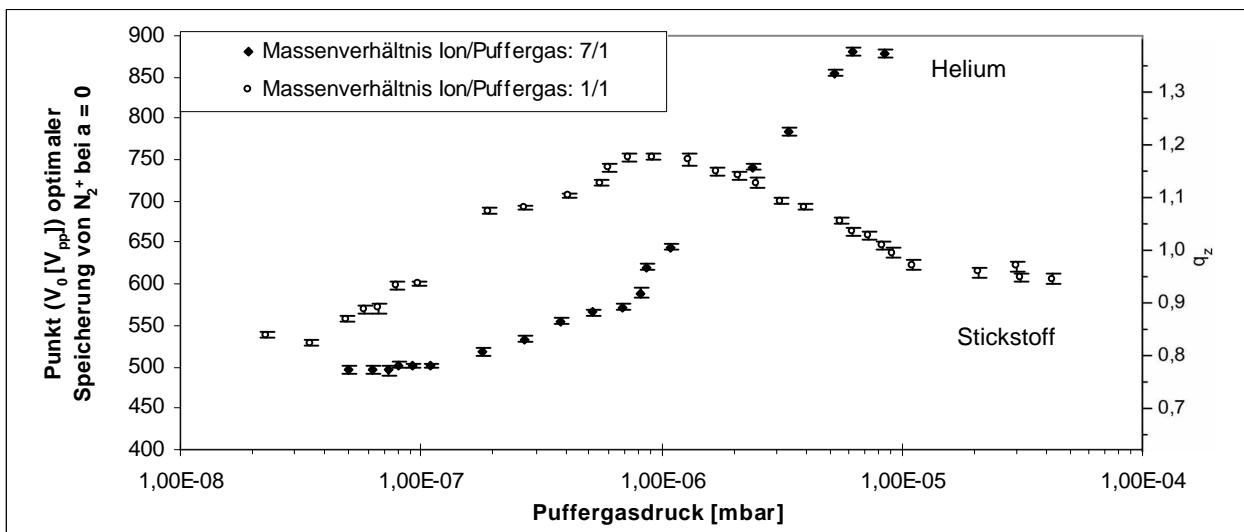


Abb. 6.48: Lage des Punktes optimaler Speicherung von N_2^+ bei Variation des Puffergasdrucks. Bei Verwendung von Helium als Puffergas zeigt sich im untersuchten Druckbereich eine mit dem Druck zunehmende Verschiebung, bei Stickstoff als Puffergas existiert ein Maximum der Verschiebung.

6.4 Speicherzeit

Bei Fallenexperimenten kommt die Signalstärke, d.h. die Ionenzahl zum Nachweiszeitpunkt, immer durch das Zusammenspiel der zwei in Kapitel 6.2.3 beschriebenen grundlegenden Mechanismen zustande: der von verschiedenen Faktoren abhängigen Erzeugungsrate speicherbarer¹ Ionen

¹ Ionen, deren Ort und Geschwindigkeit in das Akzeptanzprofil der Falle passen

während der Erzeugungszeit und der von mehreren Effekten beeinflussten Ionen-Verlustrate während Erzeugungs- und Wartezeit. Aus der Verlustrate ergibt sich direkt die Speicherzeit der Ionen. Diese ist die eigentlich maßgebliche Größe während des Experimentierens – vielmehr als die gemessene Signalstärke, die ja wartezeitabhängig ist. Je länger die Wartezeit, desto tiefer und ausgeprägter zeigen sich z.B. die nichtlinearen Resonanzen (siehe [Yoda92, Eade93] und auch später in Kapitel 6.5); daher ist z.B. für die Bezeichnung der Stärke von Resonanzen eine Angabe des Verhältnisses der Speicherzeiten außerhalb und innerhalb der Resonanz sinnvoller als die Angabe von Intensitätsverhältnissen [Klei95]. Da es ungleich zeitaufwendiger ist, für jeden Meßpunkt die Speicherzeit zu bestimmen, wird dies allerdings nur in wenigen Situationen getan.

Die experimentelle Kurve des Signalabfalls während einer Speicherzeitmessung entspricht nur bei kleinen Ionenzahlen gut einer Exponentialfunktion. Bei größeren Ionenzahlen tritt zu Beginn ein stärker als exponentieller Abfall auf, dessen Bedeutung mit der Ionenzahl zunimmt [Alhe97]. Eine Erklärung liefert Schwebel [Schw75]:

Der stark abfallende Anteil zu Beginn der Speicherzeitkurve ist durch die Raumladung, d.h. die Coulombabstoßung der Ionen untereinander bedingt und von der Art

$$\frac{dN}{dt} = -AN^2, \quad \text{und damit} \quad N \sim a t^{-1}, \quad \text{mit den Konstanten } A, a. \quad 6.5$$

Bei wenigen Ionen dominiert dann der Ionenverlust durch Stöße zwischen Ionen und neutralen Restgasmolekülen mit

$$\frac{dN}{dt} = -gN, \quad \text{und somit} \quad N \sim e^{-gt}, \quad \text{mit der Konstanten } g = \frac{1}{t} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}. \quad 6.6$$

Je nach gespeicherter Ionenmasse, gewählten Fallen-Parametern sowie Puffergasdruck und –Sorte sind bei Ionenwolken Speicherzeiten t zwischen einigen Sekunden bis zu vielen Stunden und Tagen üblich [Iffl76, Iffl77, Sugi90, Ruth92, Henn94, Morg94 u.a.]. Es existieren wenige ausführliche, systematische Untersuchungen der Speicherdauern in Bezug auf die verschiedenen Größen, die diese beeinflussen: Ruths hat die Speicherdauern von H^+ , H_2^+ und H_3^+ bei verschiedenen Werten von V_0 gemessen, eine Messung der Speicherdauern um eine nichtlineare Resonanz findet sich in [Alhe96, Alhe97, Klei95]. In diesem Kapitel wird zunächst das zeitliche Verhalten von vier Massen im Flugzeitspektrum gezeigt und danach die Abhängigkeit der Speicherzeit vom Puffergasdruck an vier Punkten im Stabilitätsdiagramm für die Puffergase Helium und Stickstoff untersucht.

Abbildung 6.49 zeigt die Höhe der vier Massenpeaks im Flugzeitspektrum bei Variation der Wartezeit (manuelle Datenaufnahme am Oszilloskop, die Erzeugungszeit betrug immer 500 ms). Die Trennung in einen starken und einen späteren schwachen Ionenverlust ist bei den Massen 28, 32 und 40 gut erkennbar. Der Massenpeak 44 geht anfangs im Peak der Masse 40 unter und ist erst nach deutlichem Ionenverlust dieser Masse sichtbar. Die gewählten Fallenspannungen liegen nahe der Grenze des stabilen Bereichs der Masse 28, weshalb bei dieser anfangs ein besonders starker Signalabfall auftritt. Die aufaddierte Ionenzahl aller Massen zeigt, daß bei automatischer Datenaufnahme mit Gate und ADC aus dem Verlauf der Kurve die Speicherzeiten der einzelnen Ionensorten nicht mehr erkennbar sind. Kollektive Effekte beim Ionenverlust treten nicht eindeutig zutage, der leichte Knick (siehe Pfeil) in der Kurve der Masse 40 an dem Punkt, an dem bei den anderen Massen der schnelle Abfall endet, könnte jedoch darauf hinweisen.

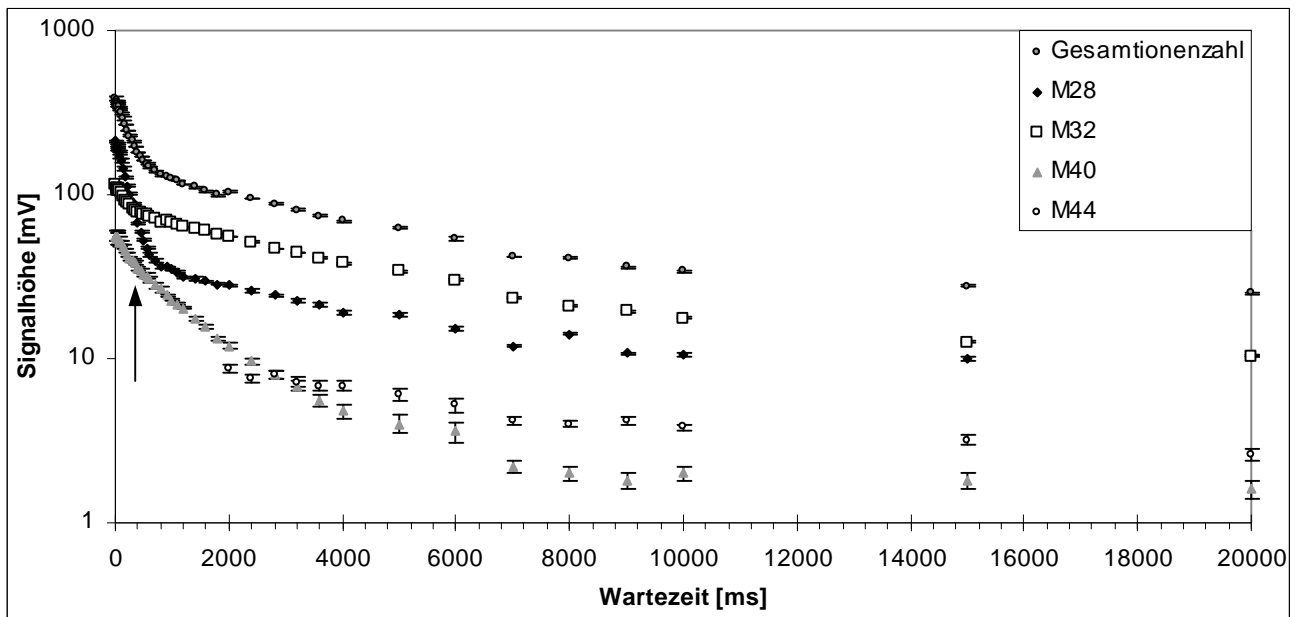


Abb. 6.49: Zeitliches Verhalten der Signalthöhe der 4 Massenpeaks bei $V_0 = 1100 \text{ V}_{pp}$, $U_0 = -4,2 \text{ V}$ und N_2 -Puffergasdruck $7 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$ bei Verlängerung der Wartezeit. Diese Parameter bedeuten für Masse 28 eine große Nähe zur Speicherbereichsgrenze. Der schwache Peak der Masse 44 ist erst nach deutlichem Schwund des Peaks der Masse 40 zu erkennen. Deutlich ist die Teilung in einen anfänglichen starken Ionenverlust und einen späteren schwachen Verlust zu erkennen.

6.4.1 Auswirkungen des Puffergaskühlens auf die Speicherdauer

Zur systematischen Untersuchung der Speicherzeit bei Änderung des Puffergasdrucks wurden nun an vier verschiedenen Punkten im Speicherdiagramm Serien von Speicherzeitmessungen bei unterschiedlichen Drücken von Helium und Stickstoff als Puffergas durchgeführt. Um eine gute Genauigkeit bei akzeptabler Meßdauer zu erhalten, wurden dabei immer jeweils zwei Speicherzeitmessungen durchgeführt – eine bei Variation der Wartezeit zwischen 10 und 310 ms mit 100 Datenpunkten und eine weitere mit ebensovielen Meßpunkten bei Wartezeiten zwischen 300 und 3000 ms. Die zusammengesetzten Kurven wurden dann hinsichtlich der Speicherzeit ausgewertet.

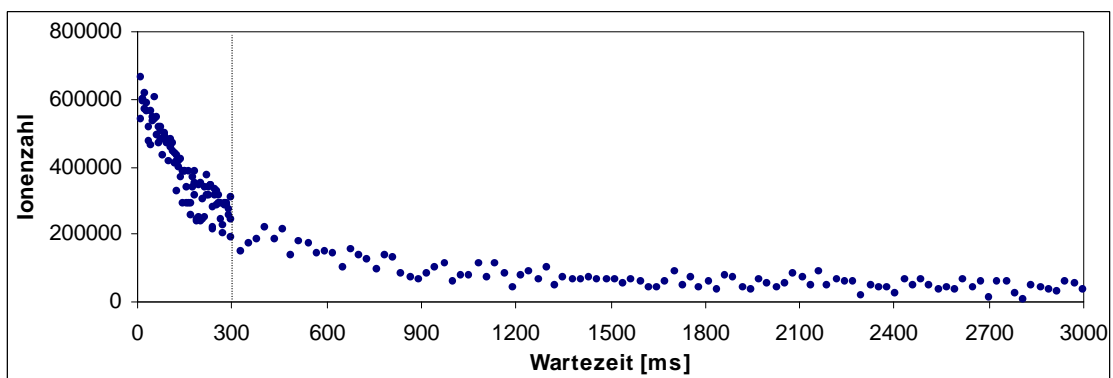


Abb. 6.50: Beispielhafte Speicherzeitmessung für einen Meßpunkt (charakterisiert durch Speicherparameter und Puffergasdruck), zusammengesetzt aus 2 Einzel-Messungen. Durch Fit an die Daten ergibt sich die Speicherzeit t .

Zunächst wurden Messungen bei den Fallenspannungen $U_0 = 0 \text{ V}$, $V_0 = 600 \text{ V}_{pp}$ durchgeführt. An diesem Punkt werden zwar alle auf S. 134 genannten Massen in der Falle gespeichert, bevorzugt jedoch die Massen 28 und 32 aufgrund der Nähe der Parameter zum Punkt optimaler Speicherung. Das Verhältnis von N_2^+ - zu O_2^+ -Ionen wird im Wesentlichen durch die Gaszusammensetzung bestimmt (s. Abb. 6.4), variiert mit dem Gesamtdruck und beträgt im Mittel ca. 6:1.

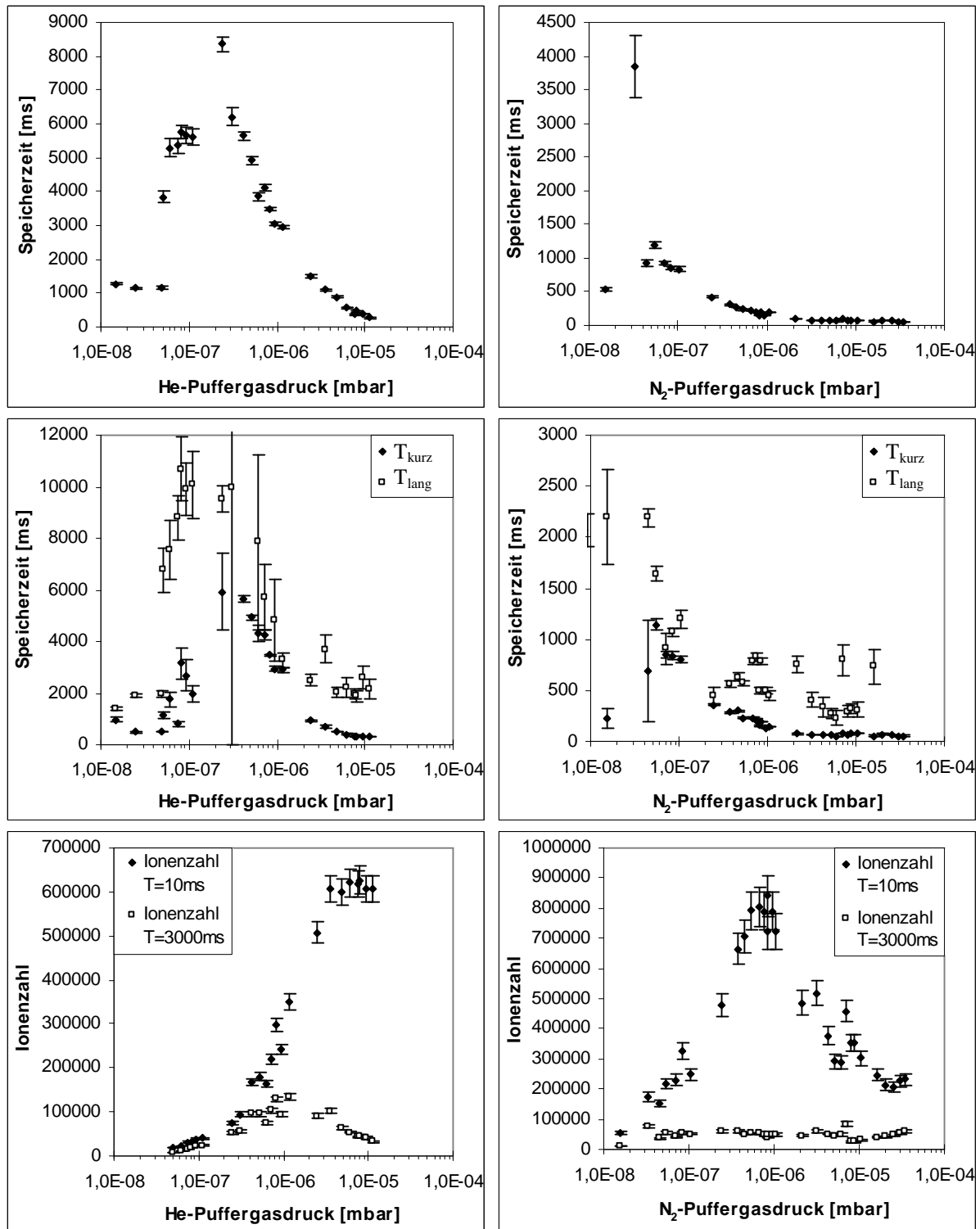


Abb. 6.51: Speicherzeiten für Helium (links) und Stickstoff (rechts) als Puffergas bei den Fallenparametern $U_0 = 0$ V, $V_0 = 600$ V_{pp}. Oben: Auftragung der durch Fits an Messungen entsprechend Abb. 6.50 bei verschiedenen Puffergasdrücken erhaltenen Speicherzeiten t . Auswertung der Daten durch Fit einer Exponentialfunktion erster Ordnung. Mitte: Trennung der Meßdaten jeder Speicherzeitmessung in einen stark abfallenden (T_{kurz}) und einen schwächer abfallenden Teil (T_{lang}) und Fit jeweils einer Exponentialfunktion erster Ordnung. Unten: Ionenzahlen direkt nach Ende der Erzeugungsphase und nach 3000 ms.

Um die Fitergebnisse in Abb. 6.51 für die Bereiche des schnellen und langsamen Ionenverlusts besser vergleichen zu können, wurden anstelle der Gleichungen 6.5 und 6.6 jeweils zwei exponentielle Fits erster Ordnung verwendet. Diese wurden separat für die entsprechenden Bereiche T_{lang} und T_{kurz} der Meßdaten verwendet. Dieses Vorgehen ist nicht ganz korrekt, da eigentlich die

Gleichungen 6.5 und 6.6 oder zumindest eine einzelne Exponentialfunktion zweiter Ordnung an jeden Datensatz angepaßt werden müßte. Wegen des aus Gründen der Meßdauer auf 10 ms bis 3000 ms beschränkten Ausschnitts aus der Zeitskala und der Ungenauigkeiten in der Bestimmung des Signaluntergrunds führt letzteres jedoch z.T.¹ zu offensichtlich falschen Fitkurven bzw. sind durch Vorgabe einzelner Fitparameter nahezu beliebige Speicherzeiten mit entsprechenden Fehlern generierbar. Eine einzelne Exponentialfunktion erster Ordnung an die gesamten Daten angepaßt ergibt etwa die Speicherzeiten des stärker abfallenden Teils (siehe Abb. 6.51 oben und Mitte).

Wie man an den Anfangsionenzahlen direkt nach dem Erzeugen in Abbildung 6.51 unten erkennt, wird das Einfangen "heißer" Ionen durch hohe Puffergasdrücke begünstigt. Die maximale Einfangeffizienz ist beim Puffergas Stickstoff bei ca. $7 \cdot 10^{-7}$ mbar erreicht, bei höheren Drücken sinkt sie wieder. Bei Helium liegt das Absinken nicht im meßbaren Druckbereich, das Maximum der Einfangeffizienz könnte hier bei ca. $1 \cdot 10^{-5}$ mbar liegen. Der Druck, bei dem optimale Speicherung, d.h. die längste Speicherzeit erzielt wird, ist jedoch deutlich niedriger: bei Helium bei ca. $2 \cdot 10^{-7}$ mbar und bei Stickstoff möglicherweise im Bereich um $1 \cdot 10^{-8}$ mbar (hier ist die Messung für eine definitive Aussage zu ungenau). Dabei deutet sich in den Daten an, daß die minimale Verlustrate der Ion-Ion-Wechselwirkung ($1/T_{\text{kurz}}$) bei höherem Druck liegt als die der Ion-Restgas-Stöße ($1/T_{\text{lang}}$). Während das Maximum des Ioneneinfangs im beobachteten Druckbereich bei Stickstoff sogar etwas höher ist, als bei Helium, sind die Speicherzeiten mit dem schwereren Puffergas etwa um den Faktor 5 kürzer, was auch der Erwartung entspricht.

Aus den Druckabhängigkeiten von Einfangeffizienz und Speicherdauer ergibt sich die Druckabhängigkeit der Ionenzahl zu einem späteren Zeitpunkt. Nach 3000 ms bleibt bei Helium bei ca. $1 \cdot 10^{-6}$ mbar die größte Zahl an Ionen übrig, dies entspricht sehr gut den Kurven der Einfangeffizienz und Speicherdauer. Bei Stickstoff ergibt sich nach 3000 ms eine flache Kurve ohne ausgeprägtes Maximum.

Die Untersuchung der Speicherzeiten wurde nun bei Speicherspannungen weitab vom Punkt optimaler Speicherung an 3 Punkten im Stabilitätsdiagramm fortgesetzt:

$U_0 = 140 \text{ V}$, $V_0 = 1423 \text{ V}_{\text{pp}}$: gespeicherte Ionenmassen: $M = 28$, $M = 32$,

$U_0 = 140 \text{ V}$, $V_0 = 1519 \text{ V}_{\text{pp}}$: gespeicherte Ionenmassen: $M = 28^2$, $M = 32$, $M = 40$,

$U_0 = 140 \text{ V}$, $V_0 = 1797 \text{ V}_{\text{pp}}$: gespeicherte Ionenmassen: $M = 32^3$, $M = 40$, $M = 44$

Die kleineren Massen 16, 17 und 18 werden bei diesen Spannungen nicht gespeichert.

Das grundsätzliche Speicherverhalten aufgrund der gewählten Fallenparameter zeigt sich immer in den Speicherzeiten ohne Einfluß von Kühlung, d.h. bei niedrigen Puffergasdrücken. Alle Diagramme von Abbildung 6.52 zeigen hier das erwartete Verhalten: In Resonanz ($1519 \text{ V}_{\text{pp}}$) und am Rand des Speicherbereichs ($1797 \text{ V}_{\text{pp}}$) sind die Speicherzeiten kürzer als im Bereich normaler Speicherung. Allerdings ist auch die Speicherzeit bei letzterem wesentlich geringer, als an Punkten nahe dem Punkt optimaler Speicherung (vgl. Abb. 6.51). Die Speicherzeiten nehmen bei ganz hohen Drücken immer ab, auch das entspricht der Erwartung. Die Kühlleistung von Helium im Vergleich zu Stickstoff ist aufgrund der kleineren Masse geringer, allerdings gilt dies auch für den Ionenverlust. Welcher Effekt eine größere Rolle spielt, hängt von der Speicherfähigkeit der Falle ab. Am Rand des Speicherbereichs sind die Vorteile von Helium gering und auf einen kleinen Druckbereich beschränkt; in einer Resonanz und bei guter Speicherung sind die Vorteile von Helium deutlicher.

¹ Wegen der Beschränkung der Datenaufnahme auf 3000 ms vor allem bei längeren Speicherzeiten.

² Die eingestellten Fallenspannungen entsprechen der starken Resonanz (3/2/1).

³ Die eingestellten Fallenspannungen entsprechen der theoretischen Speicherbereichsgrenze der Masse 32.

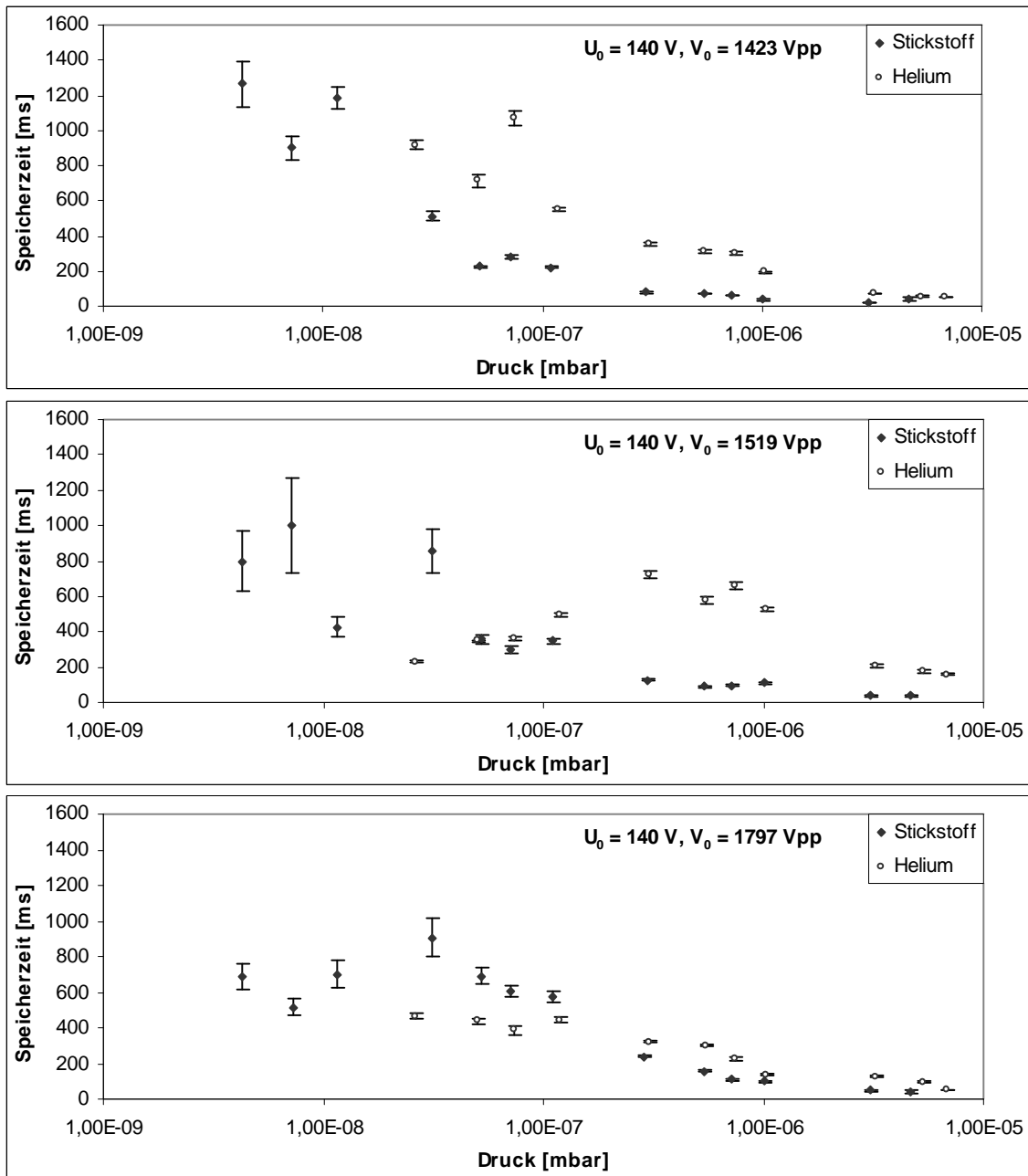


Abb. 6.52: Speicherzeiten für Helium und Stickstoff als Puffergas bei $U_0 = 140 \text{ V}$, normaler Speicherung bei $V_0 = 1423 \text{ Vpp}$ (oben), in einer nichtlinearen Resonanz bei 1519 Vpp (Mitte) und am Rande des Speicherbereichs bei 1797 Vpp (unten). Auswertung der Daten der Speicherzeitmessungen durch Fit einer Exponentialfunktion erster Ordnung.

6.5 Makrofrequenzen

Die in diesem Unterkapitel betrachteten Frequenzspektren von in der Paulfalle gespeicherten Ionen werden seit vielen Jahren dazu ausgenutzt, um durch die Einstrahlung entsprechender Frequenzen die Falle entweder massenselektiv zu füllen oder zu entleeren. Dies hat sich in der Massenspektrometrie als präzisere Methode als das Durchstimmen der Fallenspannungen durchgesetzt, nicht zuletzt deshalb, weil die Schrittweite von kommerziellen Frequenzgeneratoren zur Anregung der Ionen viel feiner ist, als mit vertretbarem Aufwand bei der Variation der Fallenspannungen möglich wäre¹. Somit ist auch die Erforschung z.B. der Linienformen der

¹ Die Schrittweite des verwendeten SRS-Frequenzgenerators liegt bei $1 \mu\text{Hz}$ (bei Frequenzen von 100 kHz), die des Führungsfeldverstärkers bei ca. $0,5 \text{ Vpp}$ (bei Speicherspannungen im 1000 Vpp – Bereich).

Resonanzen im Frequenzspektrum viel präziser möglich. Nicht zuletzt bietet die Betrachtung des Spektrums die Möglichkeit, die charakteristischen Frequenzen der Ionenbewegung, deren Kopplungsmöglichkeiten sowie den grundlegenden Mechanismus des Zustandekommens der nichtlinearen Resonanzen direkt zu beobachten.

An diesem Experiment geschieht dies mit Hilfe des Meßprogramms "Makrofrequenzen", bei dem die Frequenz des die Ionen anregenden SRS-Frequenzgenerators während einer Meßreihe von Messung zu Messung automatisch schrittweise erhöht wird, während die übrigen Speicherbedingungen unverändert bleiben. Derartige Meßreihen wurden für verschiedene Fallenspannungen, unterschiedliche Puffergasdrücke, verschiedene Ionenzahlen und mit unterschiedlichen Wartezeiten, d.h. unterschiedlicher Dauer der Anregung und Speicherung durchgeführt. Ebenfalls wurde auch die Anregungsamplitude jeweils optimiert bzw. variiert. Damit ließen sich Form, Lage und Breite der Resonanzen unter den variierbaren Bedingungen untersuchen.

6.5.1 Das Frequenzspektrum

Das Frequenzspektrum zeigt Resonanzen bei den Linearkombinationen von Makrofrequenzen und Führungsfeldfrequenz

$$w = |k \Omega + k_r w_r + k_z w_z| \quad \text{mit} \quad k, k_r, k_z = 0, \pm 1, \pm 2, \pm 3 \dots \quad 6.7$$

sowie bei den Frequenzen der parametrischen Schwingungen

$$w = \frac{2w_{r,z}}{n} \quad \text{mit} \quad n = 1, 2, 3 \dots \quad 6.8$$

Aufgrund der Quadrupolanregung über die beiden Endkappen der Falle werden bevorzugt Ionenschwingungen angeregt (anschaulich erklärt in [Klei95]) mit $k_r, k_z = \pm 2$.

Damit ergibt sich grob das theoretisch zu erwartende Spektrum charakteristischer Typen von Resonanzen in der nichtidealen Paulfalle (Abb. 6.53).

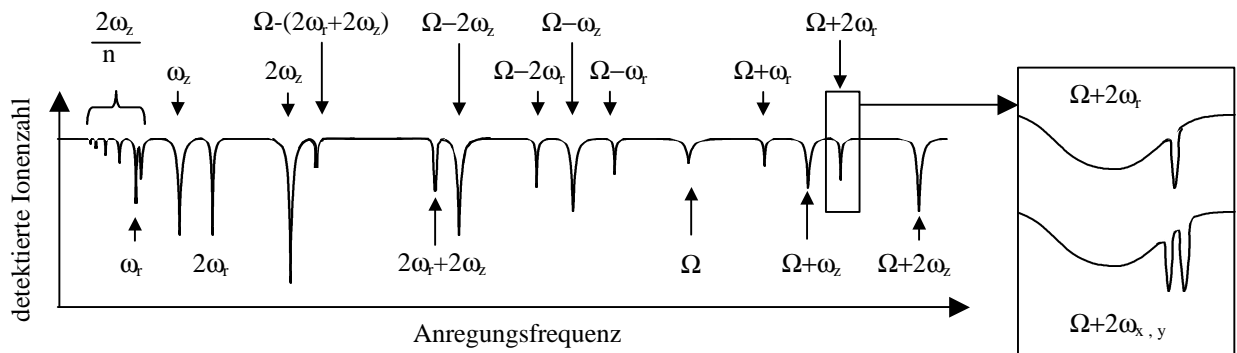


Abb. 6.53: Zeichnung der theoretisch erwarteten Typen von Resonanzen im Frequenzspektrum: einzelne und mehrfache Resonanzen jeder Makrofrequenz (hier: $w_r, w_z, 2w_r, 2w_z$), Summenresonanzen ($2w_r+2w_z$), gebrochen rationale parametrische Resonanzen (hier: $2w_z/n$ mit $n = 3 \dots 7$), sowie die Resonanz bei der Führungsfeldfrequenz. Dazu die Spiegelresonanzen im Prinzip aller vorher genannten Resonanzen (hier: $W \pm w_r, W \pm w_z, W \pm 2w_r, W \pm 2w_z, W \pm (2w_r+2w_z)$, parametrische nicht eingezeichnet). Kleines Bild: Alle Resonanzen können unter entsprechenden Bedingungen die Struktur von kollektiver und individueller Resonanz aufweisen (oben), bei Brechung der Rotationssymmetrie ist eine Aufspaltung der w_r - in w_x - und w_y -Resonanz zu erwarten.

Franzen hat in [Fran94] die Resonanzen im Frequenzspektrum der idealen und der realen Falle bei unterschiedlichen Beimischungen höherer Multipole zum Fallenfeld berechnet. In der idealen Falle würden nur die Resonanzen $\omega = k \Omega \pm \omega_{r,z}$, $k = 0, 1, 2, \dots$ auftreten, in der realen variieren Stärke und Auftreten der verschiedenen Resonanzen mit der Art der Abweichung vom idealen Quadrupolpotential (siehe Kapitel 2.3.3). Das in dieser Falle gemessene Frequenzspektrum (Abb. 6.54) zeigt nicht alle der erwarteten Resonanztypen.

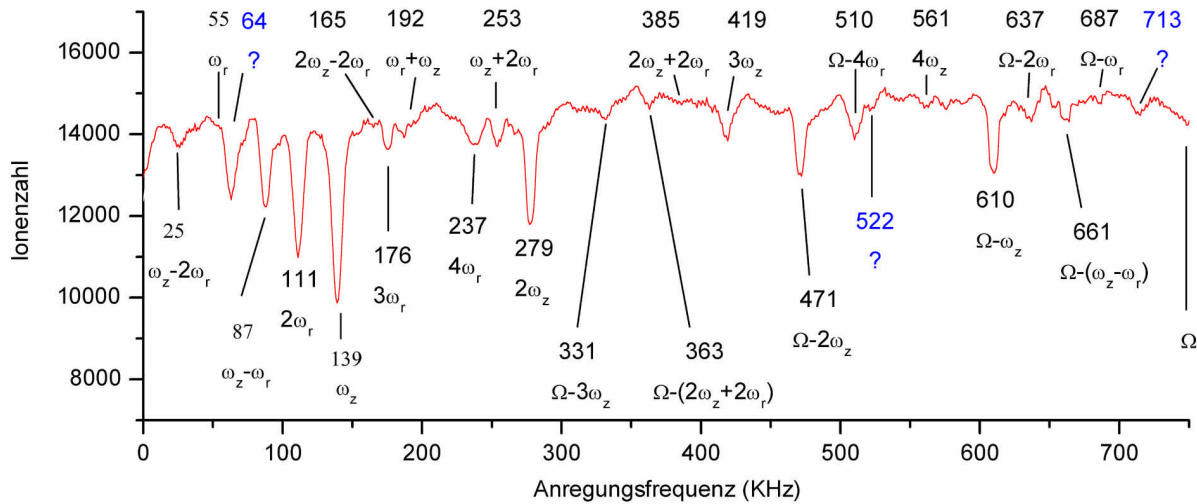


Abb. 6.54: Experimentelles Frequenzspektrum mit Zuordnung der Resonanzen für $M = 28$, d.h. den theoretischen Makrofrequenzen $f_{z,theor.} = 142 \text{ kHz}$ ¹, $f_{r,theor.} = 57 \text{ kHz}$. Die Resonanzen sind jeweils mit ihrer Mittenfrequenz sowie der möglichen Zuordnung beschriftet. Die Meßdaten sind zur Rauschunterdrückung mit der Methode des gleitenden Durchschnitts (7 Punkte) geglättet. Die Anregungsamplitude² betrug $1,0 \text{ V}_{pp}$. Speicherparameter: $U_0 = -4,2 \text{ V}$, $V_0 = 620,3 \text{ V}_{pp}$, $P_{Restgas} = 3 \cdot 10^{-9} \text{ mbar}$.

Im Vergleich mit dem theoretischen Spektrum fehlen hier die parametrischen Resonanzen mit höherem n , die sich experimentell als deutlich schwächer als die übrigen Resonanzen herausstellen. Ansonsten zeigen sich alle erwarteten Resonanzen; die Tatsache, daß sowohl geradzahlige als auch ungeradzahlige k_r und k_z gleichermaßen auftreten, sowie daß eine Resonanz bei der Führungsfeldfrequenz existiert, zeigt nach Franzen [Fran94] daß die Abweichung vom idealen Quadrupolfeld zumindest durch einen ungeraden Multipol – also wahrscheinlich Hexapol – verursacht wird. Dies schließt das Vorhandensein gerader Multipole jedoch nicht aus. Interessant ist, daß entgegen der Erwartung bei $k_z = \pm 1$ die stärkste Resonanz beobachtet wird und diejenigen mit $k_r, k_z = \pm 2$ lediglich die zweitstärksten Resonanzen darstellen, wohingegen die Resonanz mit $k_r = \pm 1$ deutlich schwächer ist. Diese Beobachtung zieht sich – soweit beobachtbar – auch durch alle weiteren, bei unterschiedlichen Speicherbedingungen gemachten (über 80) Spektren.

Bei der Betrachtung dieser Spektren fällt auf, daß die Stärke der Resonanz bei der Führungsfeldfrequenz Ω stark variiert. Die Meßdaten lassen vermuten, daß diese Resonanz immer dann ausgeprägt ist, wenn man sich im Speicherdiagramm an der Stelle einer Resonanzlinie befindet. D.h. durch die in der Resonanz veränderte Ionenwolkengröße oder –form würden sich die Verhältnisse der effektiven Multipolordnungen (gerade oder ungerade) des Feldes, das auf die Ionen wirkt, verändern. Kleineidam [Klei95] vermutete hingegen anhand seiner Daten, daß sich benachbarte Resonanzen gegenseitig verstärken und so auch die Führungsfeldresonanz besonders stark ist, wenn durch die Wahl der Fallenspannungen eine andere Resonanz eine nur leicht unterschiedliche Frequenz hat. Die vorliegenden Meßdaten können keine der beiden Thesen eindeutig beweisen oder widerlegen – hier ist in der Zukunft noch eine systematische und detailliertere Untersuchung nötig.

¹ Im gesamten Kapitel werden die Resonanzen mit ihren Kreisfrequenzen ω benannt, alle Frequenzangaben beziehen sich jedoch auf die Frequenz $f = \omega / 2\pi$.

² Alle Angaben von Anregungsamplituden in diesem Kapitel beziehen sich auf den am SRS-Frequenzgenerator (Model DS 335) eingestellten Wert.

6.5.2 Das Kreuzen von Resonanzen im Frequenzbereich

Der grundlegende Mechanismus des Zustandekommens nichtlinearer Resonanzen im Stabilitätsdiagramm ist im Frequenzspektrum direkt beobachtbar. Die dort sichtbaren Resonanzen der Bewegungsfrequenzen verschieben sich bei der Änderung der Fallenparameter¹; bei Variation von a_z (U_0) ändern sich w_r - und w_z -Resonanzen gegensinnig, bei Änderung von q_z (V_0) gleichsinnig aber unterschiedlich stark, immer aber verändern sich die Resonanzen und die Spiegelresonanzen gegensinnig. Treffen sich die Resonanzen im Frequenzspektrum, so koppeln die entsprechenden Bewegungsfrequenzen. Dies führt meist zu Ionenverlust und damit zu einer nichtlinearen Resonanz im Speicherbereich (siehe Kapitel 2.3.3). In Abbildung 6.55 ist dies an einer Meßreihe bei konstantem U_0 (5 V, d.h. $a_z = -0,015$) und 7 verschiedenen V_0 (von 699,8 V_{pp} bis 762,1 V_{pp}, d.h. $0,546 \leq q_z \leq 0,590$) bei einer Anregungsamplitude von 2 V_{pp} demonstriert. Die Resonanzen im Frequenzspektrum $3w_z$ und $\Omega - 2w_z$ treffen sich – durch lineare Regression bestimmt – bei $736,2 \pm 1,1$ V_{pp}, ebenso treffen sich gleichzeitig $2w_z$ und $\Omega - 3w_z$. Aus

$3w_z = \Omega - 2w_z$ folgt $5w_z = \Omega$ und damit die nichtlineare Resonanz (5/0/5).

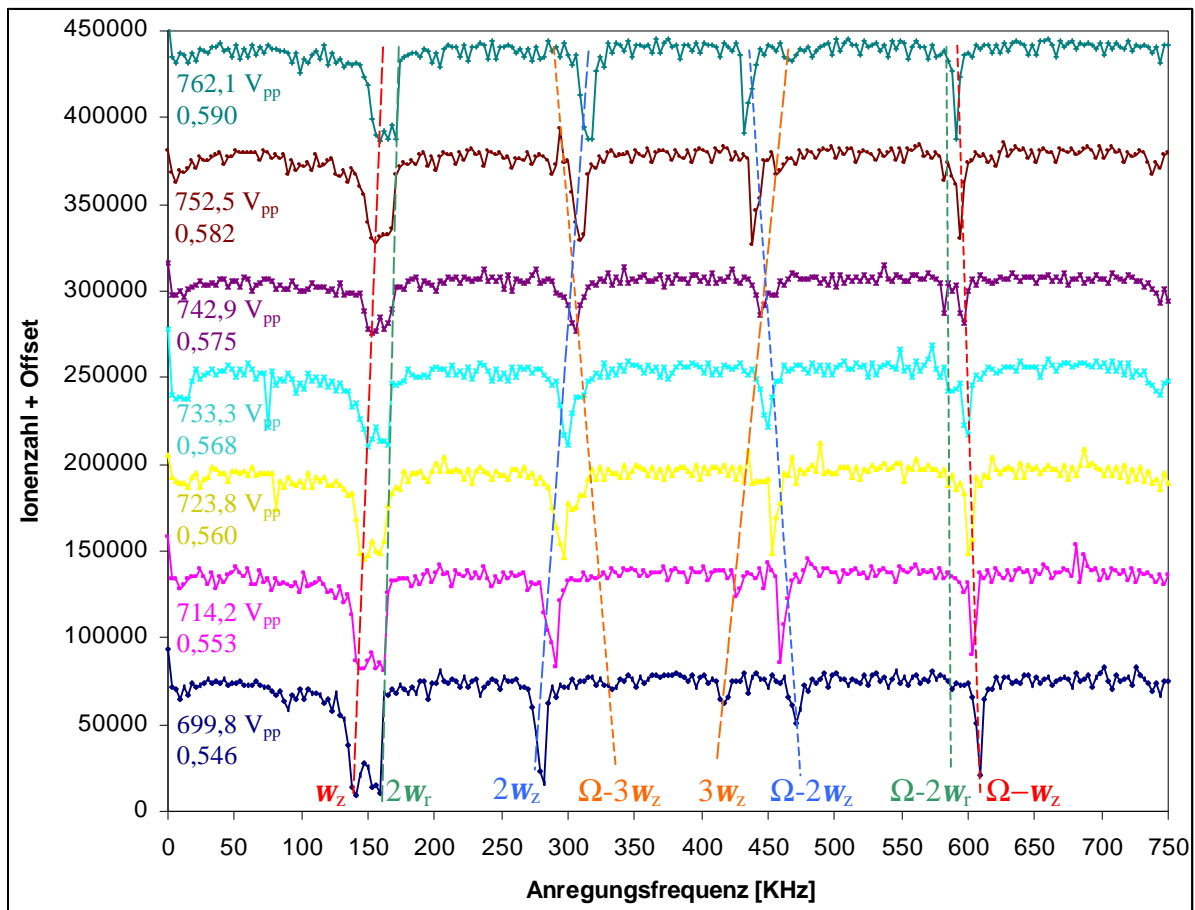


Abb. 6.55: Messung der Frequenzspektren bei konstantem U_0 (5 V, d.h. $a_z = -0,015$) und 7 verschiedenen V_0 (von 699,8 V_{pp} bis 762,1 V_{pp}, d.h. $0,546 \leq q_z \leq 0,590$). Die Anregungsamplitude betrug 2 V_{pp}. Die Resonanzen $3w_z$ und $\Omega - 2w_z$ kreuzen sich in der Nähe der Messung bei 742,9 V_{pp}, was an der geringeren Ionenzahl sichtbar ist. Die daraus folgende nichtlineare Resonanz (5/0/5) im Stabilitätsdiagramm läßt sich somit direkt bzw. mit der Methode von Hoefer bestimmen. Die eingezeichneten Linien dienen der Anschauung und entsprechen nicht der linearen Regression.

Der bei der Messung bei 742,9 V_{pp} sichtbare Signlrückgang zeigt den Ionenverlust in der Resonanz. Dies ist somit eine weitere Art, Resonanzlinien im Speicherbereich zuzuordnen:

¹ Siehe Gleichung 2.35 (in adiabatischer Näherung mit 2.33), entsprechend Abbildung 2.13.

Sind die Resonanzen, die sich im Frequenzspektrum am Ort einer nichtlinearen Resonanz kreuzen, bestimmbar, folgt die Resonanzordnung einfach durch Gleichsetzen der beteiligten Resonanzen im Spektrum.

Auch die Bestimmungsmethode nach Hofer¹ [Hoef97] ist hier demonstrierbar: Die Frequenzen w_r und w_z lassen sich am Ort der Resonanz aus den Spektren anhand der Resonanzen $2w_r$ und $2w_z$ durch Extrapolation erhalten ($f_r = 149,1 \pm 0,3$ kHz und $f_z = 81,7 \pm 0,5$ kHz) woraus sich die einzige Linearkombination niedriger Ordnung mit $n_r = 5$, $n_z = 0$ ergibt. $5 \cdot f_r = 745,7 \pm 1,5$ kHz, das ist in sehr guter Übereinstimmung mit der Führungsfeldfrequenz.

Abbildung 6.56 zeigt eine Meßreihe bei konstantem V_0 (685,4 V_{pp}, d.h. $q_z = 0,531$) und 7 verschiedenen U_0 (von -2 V bis 4 V, d.h. $0,006 \geq a_z \geq -0,012$) und einer Anregungsamplitude von 0,6 V_{pp}. Hier kreuzen sich die Resonanzen w_z und $2w_r$. Gemäß

$w_z = 2w_r$ handelt es sich um die Differenzresonanz ($3/\pm 2/\mp 1$) für $k = 0$.

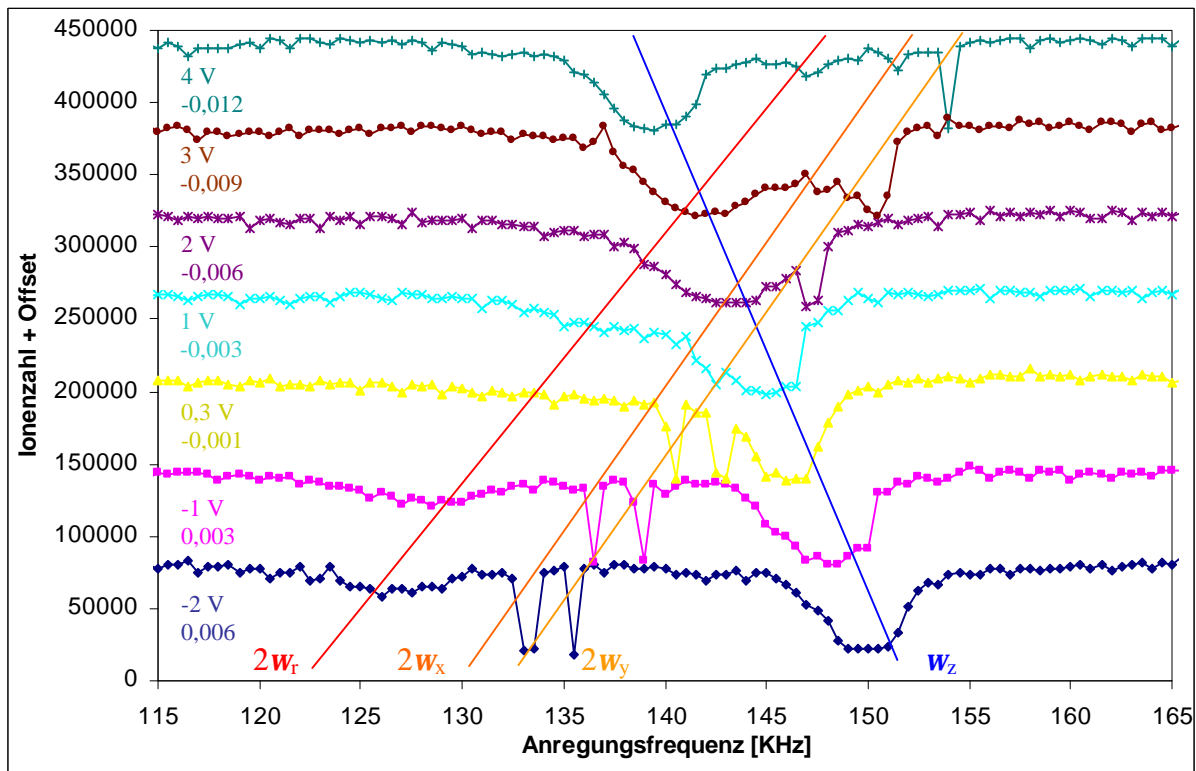


Abb. 6.56: Messung der Frequenzspektren bei konstantem V_0 (685,4 V_{pp}, d.h. $q_z = 0,531$) und einer Auswahl von 7 verschiedenen U_0 (von -2 V bis 4 V, d.h. $0,006 \geq a_z \geq -0,012$) und einer Anregungsamplitude von 0,6 V_{pp}. Die Resonanzen w_z und $2w_r$ kreuzen sich, ohne daß ein größerer Ionenverlust beobachtbar wäre. Bei der Resonanz $2w_r$ ist sowohl die individuelle Resonanz (links) als auch die kollektive Resonanz zu erkennen. Die Aufspaltung der kollektiven Resonanz zeigt das Vorhandensein einer Symmetriebrechung in radialer Richtung.

Deutlich ist zu erkennen, daß im Vergleich zu Abbildung 6.55 wegen der fehlenden Kopplung zum Fallenfeld wie erwartet praktisch kein Ionenverlust stattfindet. Die radiale Bewegungskomponente der Ionen zeigt neben der schwachen individuellen Resonanz eine Aufspaltung der kollektiven Resonanz. Dies zeigt, daß die Symmetrie der Falle in radialer Richtung gebrochen ist, was wahrscheinlich hauptsächlich durch die unterschiedliche Zahl und Größe der Bohrungen im Ring in

¹ Diese geht vermutlich auf die von Gudjons in [Gudj96b] verwendete, mit nur zwei Meßpunkten aber ungenauere Methode zurück.

x- und y-Richtung verursacht wird. Unter dieser Annahme wäre w_x die Bewegung in Richtung der alten Laserstrahlbohrungen und w_y die in Richtung der früheren Elektronen-Einschuböffnung, da ein schwächeres Feld eine geringere Makrofrequenz bedingt. Die Aufspaltung beträgt ca. 1,8 %. Eine Verstärkung von Resonanzen durch die Nähe anderer ist in dieser Messung nicht zu beobachten.

Die gleichen Resonanzen bei einem anderen Arbeitspunkt und genauer betrachtet, zeigen jedoch beim Kreuzen eine deutliche Änderung der Breite und Tiefe vor allem der kollektiven Resonanzen $2w_x$ und $2w_y$. Diese sind auf der niederfrequenten Seite der w_z -Resonanz gut ausgeprägt, verbreitern sich zunächst, werden jedoch schon vor der Überlagerung wieder schmaler, und treten nach dem Kreuzen auf der höherfrequenten Seite von w_z sogar gar nicht mehr auf (siehe Abbildung 6.57, von unten nach oben betrachtet).

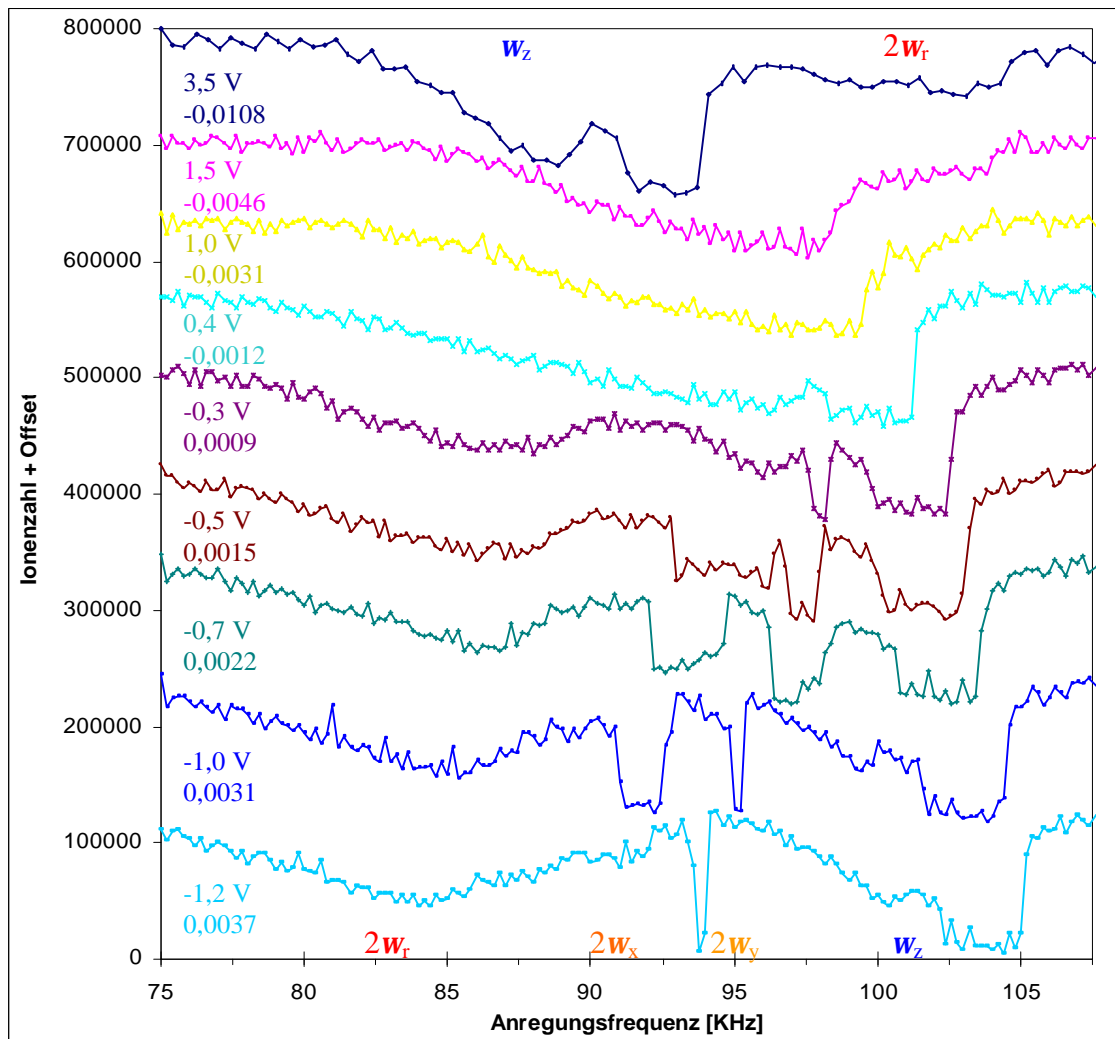


Abb. 6.57: Verstärkung der kollektiven Resonanzen $2w_x$ und $2w_y$ in einem bestimmten Bereich der Annäherung an die kollektive Resonanz w_z . Die Messungen wurden bei konstantem V_0 (493,8 V_{pp}, d.h. $q_z = 0,382$) und verschiedenen U_0 (von -1,2 V bis 3,5 V, d.h. $0,0037 \geq a_z \geq -0,0108$) durchgeführt.

Hier ist also eindeutig eine Verstärkung der sich annähernden Resonanzen in einem bestimmten Abstand zu beobachten. Das unterschiedliche Verhalten vor und nach dem Kreuzen wäre durch eine starke Nichtlinearität im Sinne von Kapitel 3.2 erklärbar, diese zeigt sich jedoch zumindest nicht in den Resonanzen der individuellen Ionenbewegung. Eine stärkere Anharmonizität der kollektiven Bewegung könnte die Ursache sein, ist bei der hier gewählten Auflösung jedoch nicht feststellbar. Diese wird in Kapitel 6.5.4 genauer betrachtet. Im Vergleich mit Abbildung 6.56 wäre allerdings

der Schluß möglich, daß die Nähe von kollektiven Resonanzen verschiedener Bewegungsrichtungen einen meßbaren Verstärkungseffekt ergibt, während die Auswirkungen durch individuelle Resonanzen zu gering sind. Dies ist plausibel, da in einer kollektiven Resonanz im Gegensatz zur individuellen alle Ionen gemeinsam schwingen.

Die Messungen wurden bei konstantem V_0 (493,8 V_{pp}, d.h. $q_z = 0,382$) und 17 verschiedenen U_0 (von -1,2 V bis 3,5 V, d.h. $0,004 \geq a_z \geq -0,011$) bei einer Anregungsamplitude von 0,4 V_{pp} durchgeführt. Abbildung 6.57 zeigt eine Auswahl dieser Messungen.

6.5.3 Verhalten der kollektiven Resonanzen bei Puffergasdruckvariation

Alheit et al. [Alhe97, Alhe97b, Holz97] untersuchten die kollektiven Resonanzen im Frequenzspektrum genauer, wobei die Anregungsamplitude variiert wurde. Es zeigte sich, daß für die Anregung der Resonanzen eine Schwellenspannung nötig war. An den parametrischen Resonanzen wurde diese von Razvi und Schäfer [Razv98, Schä99] genauer untersucht, wobei ein even-odd-staggering auftrat, das schließlich Tommaseo [Tomm04] erklärte. Notwendige Grundlage einer Erklärung der Schwellenamplitude ist eine Anregung mit zumindest teilweiser Charakteristik einer parametererregten Schwingung¹ sowie das Vorhandensein eines Dämpfungsmechanismus (siehe Kapitel 3.1.3 und folgende). Dabei ist die Dämpfung durch das Puffergas der wahrscheinlichste Kandidat. Daher wurde hier das Verhalten kollektiver Resonanzen bei unterschiedlichen Puffergasdrücken untersucht.

Bei den Fallenspannungen $V_0 = 589,6$ V_{pp}, d.h. $q_z = 0,456$ und $U_0 = 10$ V, d.h. $a_z = -0,031$ wurde das Bewegungsspektrum im Bereich von 120 bis 160 kHz genauer untersucht. In diesem Bereich befindet sich die Resonanz $2\omega_r$ (theoretische Frequenz: $f = 155,1$ kHz).

Zunächst wurde das Spektrum bei einer Anregungsamplitude von 1,2 V_{pp} am SRS-Frequenzgenerator und verschiedenen Puffergasdrücken vergleichend mit N₂ und He als Puffergas untersucht. Abbildung 6.58 zeigt links oben eine Serie von Messungen bei Helium-Drücken von $3 \cdot 10^{-8}$ mbar bis $3 \cdot 10^{-6}$ mbar, rechts oben im Vergleich dazu bei Stickstoff-Drücken von $5 \cdot 10^{-9}$ mbar bis $5 \cdot 10^{-6}$ mbar. Da sich bei Druckänderungen die Zahl der gespeicherten Ionen bedingt durch die Erzeugungsmethode ändert (siehe auch Kapitel 6.2.4), sind unten links die dabei in der Falle gespeicherten Ionenzahlen, gemessen bei einer Frequenz weit außerhalb der Resonanzen, dargestellt, während das rechte untere Bild die Messungen bei einem Restgasdruck von $9 \cdot 10^{-8}$ mbar bei unterschiedlichen Erzeugungszeiten zeigt.

Über praktisch den gesamten Druckbereich sind die Ionenzahlen bei der Verwendung von Stickstoff-Puffergas höher als mit Helium, was klar ist, da die Ionen aus dem Restgas erzeugt werden. Auffallend ist die maximale Ionenzahl bei gleichem Druck (vergleiche mit den Daten aus Abb. 6.51). Die Erhöhung der Ionenzahl bei konstantem Restgasdruck (rechts unten) führt zu einer leichten Vergrößerung der Resonanzbreite, die wegen der Aufspaltung der Resonanz nicht leicht zu erkennen ist. Während bei Änderung des Helium-Drucks die Resonanzbreite deutlich mit der Ionenzahl korreliert zu sein scheint und bei $1 \cdot 10^{-6}$ mbar ihr Maximum erreicht, ist diese Korrelation bei Variation des Stickstoff-Drucks wesentlich schwächer ausgeprägt. Außerdem ist zu beobachten, daß die kollektive Resonanz bei Stickstoff schon bei deutlich geringeren Drücken einsetzt als bei Helium².

¹ Diese ist gegeben, da eine elektrisch an Fallenelektroden gelegte Anregung das Fallenfeld verändert.

² Die Frequenzverschiebung der Resonanzen bei Stickstoff kommt daher, daß die Messungen nicht direkt aufeinanderfolgend, sondern zwischen anderen Messungen bei den jeweiligen Drücken durchgeführt wurden. Die Neueinstellung der Fallenparameter ist insgesamt nur auf ca. ein Prozent genau.

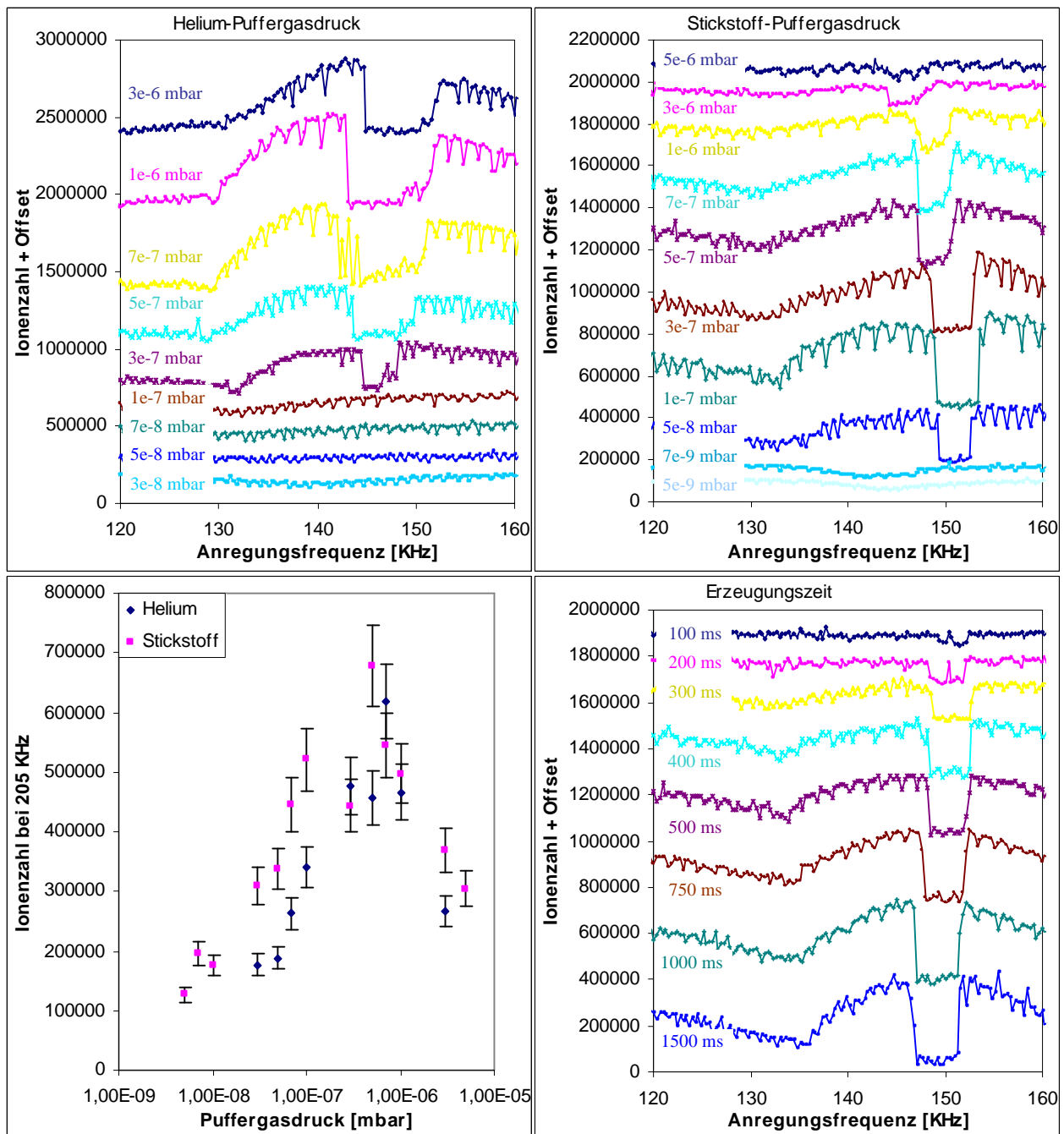


Abb. 6.58: Kollektive Resonanz $2\omega_r$ bei Variation der Puffergasdrücke von Helium (links oben) und Stickstoff (rechts oben). Links unten die sich dabei ändernden Ionenzahlen in der Falle und im Vergleich das Spektrum bei Änderung der Erzeugungszeit (rechts unten), aufgenommen bei $9 \cdot 10^{-8}$ mbar Restgasdruck. Die unerwünschte, bei Druckvariation auftretende Ionenzahländerung verhindert eindeutige Zuordnungen der Resonanzbreiten zu den theoretischen Dämpfungstermen in Kapitel 3 (Details siehe Text unten). $U_0 = 10$ V, $V_0 = 589,6$ V_{pp}; Erzeugungszeit bei den Messungen oben: 1000 ms.

Ein Vergleich mit den theoretischen Betrachtungen aus Kapitel 3 führt zu folgenden Überlegungen: läge eine erzwungene, nichtlineare Schwingung mit Dämpfung vor, müßte mit zunehmender Dämpfung die Resonanzbreite zu- und die Resonanztiefe abnehmen, dabei müßte sich die Frequenz der Resonanz verringern. Bei einer parametererregten, nichtlinearen Schwingung mit Dämpfung würde hingegen eine Zunahme linearer Dämpfung die Resonanz schmaler werden lassen, ein Anwachsen nichtlinearer Dämpfung hätte keine Auswirkung auf die Resonanzbreite, wäre jedoch der einzige, die Resonanztiefe begrenzende Faktor. Auf jeden Fall jedoch würde hier eine größere Dämpfung zu einer höheren Schwellenamplitude der Anregung führen¹. Der Versuch, die

¹ Die theoretischen Aussagen gelten für ein eingeschwungenes System, was bei einer Einstrahlzeit der Anregung von knapp 300 ms gegeben sein sollte.

experimentellen Beobachtungen mit obiger Theorie zu erklären, scheitert zunächst: das breiter-Werden der Resonanz bei Helium entsprechend einer erzwungenen Schwingung steht hier im Gegensatz zur höheren Anregungsschwelle, die auf eine höhere Dämpfung bei Helium und das Verhalten entsprechend einer parametererregten Schwingung deuten würden.

Eine Erklärung läßt sich finden unter Einbeziehung der Ionenzahlen. Hiermit wäre das bei Stickstoff bei niedrigeren Drücken einsetzende Auftreten der kollektiven Resonanz durch die dort höhere Ionenzahl erklärt (siehe Kapitel 6.3.3 oder auch Alhe97b), wenn dieser Effekt den genau gegenläufigen Dämpfungseffekt überwiegen würde. Die Resonanzbreiten ändern sich insgesamt analog zur Ionenzahl, bei Stickstoff jedoch weniger ausgeprägt als bei Helium, da bei Stickstoff die Dämpfung höher ist, was die Breiten etwas reduziert. Eine quantitative Betrachtung wird hier jedoch durch die Tatsache, daß sich bei der Druckänderung nicht nur die Dämpfung, sondern auch sowohl die Ionenzahl als auch die Speicherzeit ändert, verhindert. Eine Änderung in der Schwellenamplitude oder der Resonanzbreite kann nicht eindeutig der Dämpfungsänderung aufgrund der Druckerhöhung zugeordnet werden. Messungen bei immer gleichen Ionenzahlen würden hier einen entscheidenden Fortschritt bedeuten.

Bei einer Puffergassorte (Helium) wurde nun eine Serie von über 100 Meßreihen bei verschiedenen Drücken und Anregungsamplituden durchgeführt, um zu sehen, ob aus den resultierenden Kurven der Resonanzbreiten auf eine signifikante Änderung der Schwellenamplitude geschlossen werden kann und wenn ja, ob diese mit einer gleichzeitig festzustellenden Ionenzahländerung einhergeht. Zu diesem Zweck wurde der Frequenzbereich von 100 bis 210 kHz genauer untersucht. In diesem Bereich befinden sich die Resonanzen $w_z + w_r$ (theoretische Frequenz: $f = 183,6$ kHz) und $2w_r$ (theoretische Frequenz: $f = 155,1$ kHz) sowie die schwächere Resonanz $2w_z - w_r$ (theoretische Frequenz: $f = 134,5$ kHz)¹. Bei jeweils einem Puffergasdruck wurde eine Reihe von Spektren bei unterschiedlicher Anregungsamplitude aufgenommen. Abbildung 6.59 zeigt eine derartige Reihe bei einem Helium-Puffergasdruck von $3 \cdot 10^{-7}$ mbar.

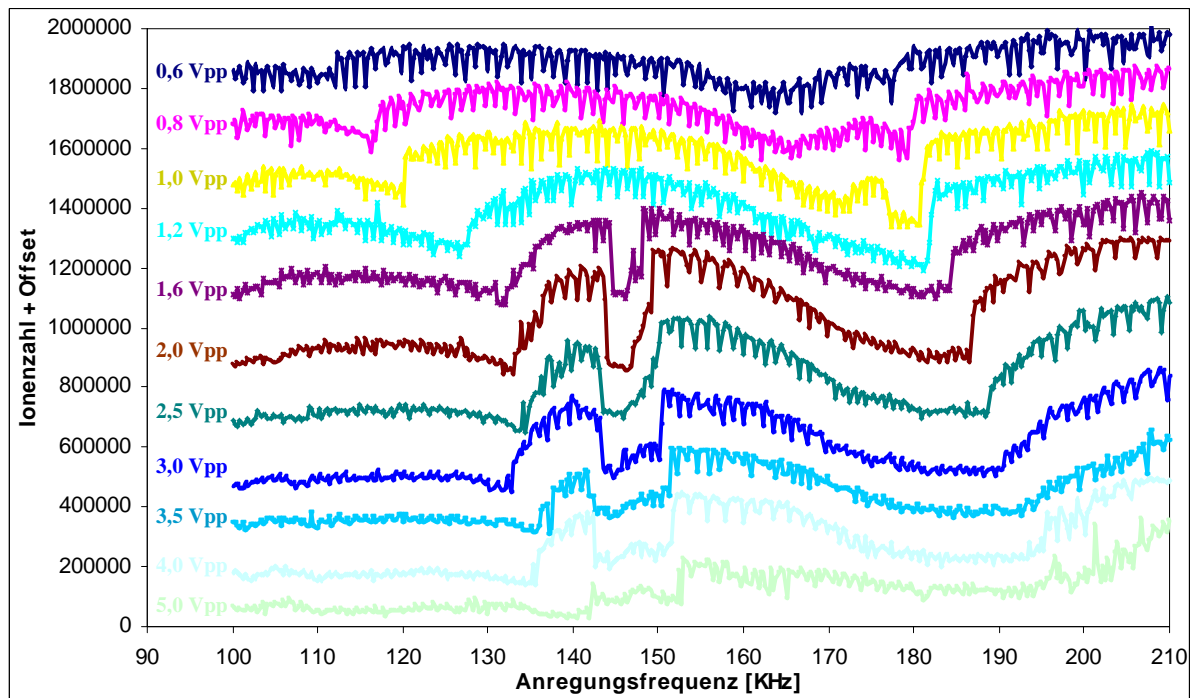


Abb. 6.59: Spektrum mit den Resonanzen $2w_z - w_r$ ($f_{\text{theor.}} = 134,5$ kHz), $2w_r$ ($f_{\text{theor.}} = 155,1$ kHz) und $w_z + w_r$ ($f_{\text{theor.}} = 183,6$ kHz) bei einem Helium-Puffergasdruck von $3 \cdot 10^{-7}$ mbar und Anregungsamplituden zwischen 0,6 und 5,0 V_{pp}. $U_0 = 10$ V, $V_0 = 589,6$ V_{pp}.

¹ Auch die Resonanz w_z liegt theoretisch im betrachteten Bereich, praktisch jedoch am Rand oder außerhalb, wegen der schon zuvor betrachteten Verschiebung der experimentellen Daten und der Raumladungsverschiebung.

Aus den Gesamtdaten aller Meßreihen bei unterschiedlichen Helium-Puffergasdrücken und verschiedenen Anregungsamplituden ergeben sich die Breiten der $2w_r$ -Resonanz in Abbildung 6.60. Eine Extrapolation der Kurven auf Amplitude 0 V erscheint nicht sinnvoll angesichts der starken Streuung der Werte innerhalb jeder Einzelmessung, aber auch aufgrund der z. T. problematischen Bestimmbarkeit der Flanken der kollektiven Resonanzen bei höheren Anregungsamplituden.

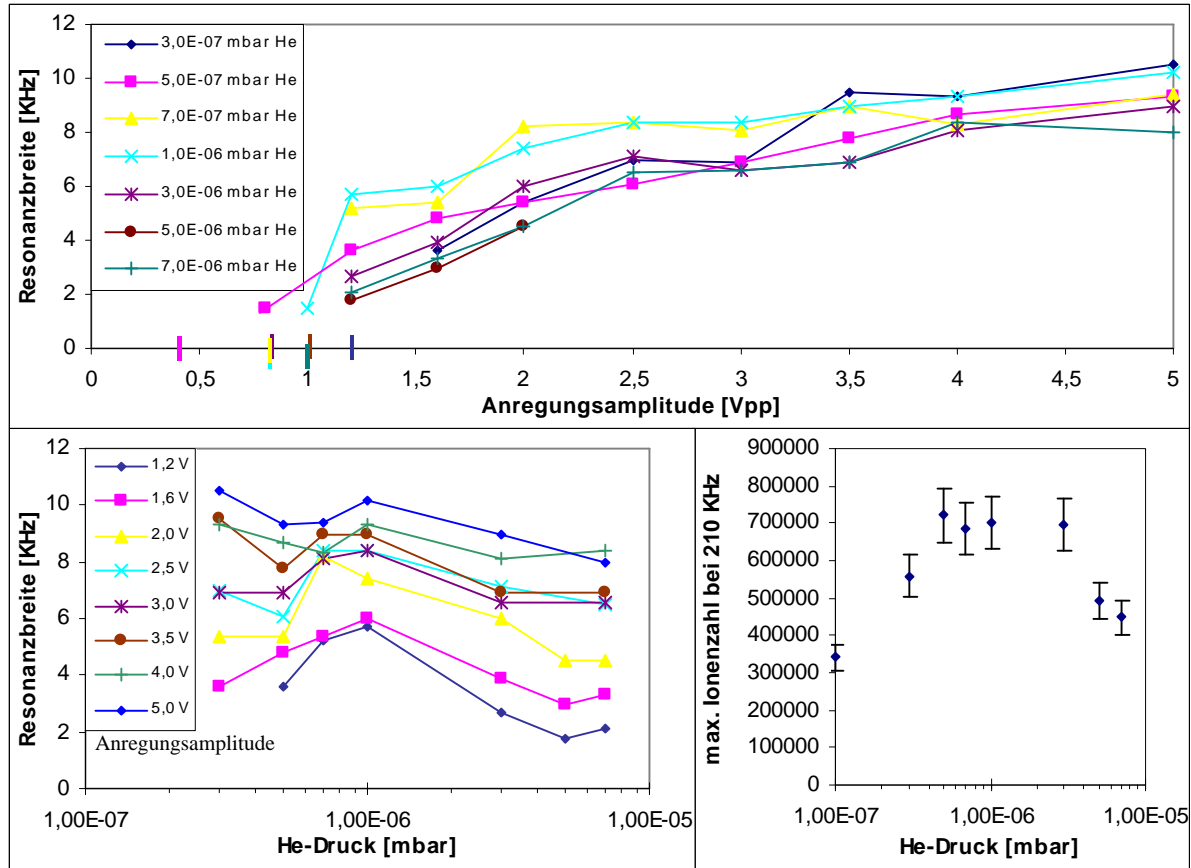


Abb. 6.60: Oben: Die Auftragung der Breiten der $2w_r$ -Resonanz gegen die Anregungsamplitude läßt keine Extrapolation auf Resonanzbreite 0 zu, da die Daten zu sehr streuen und die Kurvenenden eine Krümmungsänderung aufweisen (siehe auch [Alh97b]). Die Anregungsamplituden, bei denen keine kollektive Resonanz mehr sichtbar ist, sind mit einem Strich auf der x-Achse markiert. Die Auftragung der Resonanzbreiten gegen den Druck (unten links) zeigt überwiegend eine Abhängigkeit von der Ionenzahl (unten rechts). Der Fehler der Resonanzbreiten liegt bei 0,9 kHz und ist der Übersichtlichkeit halber nicht eingezeichnet. $U_0 = 10$ V, $V_0 = 589,6$ V_{pp}.

Die Auftragung der Daten gegen den Puffergasdruck zeigt einen Bereich, in dem die Breite der kollektiven Resonanzen maximal wird. Eine derartige Tendenz zeigen die Meßreihen bei nahezu allen Anregungsamplituden, bei denen Bestimmungen der Resonanzbreiten möglich waren. Der Vergleich mit den gleichzeitig durchgeführten Ionenzahlmessungen macht jedoch erneut deutlich, daß ein Arbeiten mit konstanten Ionenzahlen unerlässlich ist, um die – wie nun klar ist – deutlich kleineren Effekte durch Dämpfung zu beobachten. Auch ist aufgrund der Kurvenform eine experimentelle Suche (durch Ausprobieren) nach der Schwellenamplitude sinnvoller als eine Datensammlung mit dem Ziel einer Extrapolation auf Resonanzbreite 0. Nicht zuletzt würde eine Betrachtung ausschließlich axialer Resonanzen wegen der fehlenden Aufspaltung die Auswertung vereinfachen.

Daß hier keine deutlichen Dämpfungseffekte zu beobachten sind, bestätigen die von Tommaseo [Tomm04] veröffentlichten Messungen bei Druckänderungen von zweieinhalb Größenordnungen, bei denen keine Änderung der Schwellenamplitude eintrat. Diese Messungen in einer Penningfalle erfüllen zwar mit gespeicherten Elektronen im Puffergas Stickstoff nicht die Kriterien für Puffergaskühlen [Majo68], zeigen aber ebenso wie die hier gemachten Messungen, daß Dämpfungseffekte durch das Puffergas zumindest wesentlich kleiner sind, als zunächst ange-

nommen¹. Aufgrund der Speicherzeitkurven aus Kapitel 6.4 und deren zeitlicher Zerteilung muß die Abhängigkeit der kollektiven Resonanzen von der Ionenzahl und Dämpfung und somit von Ionenwolkengröße und -dichte insgesamt auch eine Zeitabhängigkeit der Breite der Resonanzen zur Folge haben.

6.5.4 Kollektive und individuelle Resonanz bei Ionenzahländerung

Während die Änderung des Puffergasdrucks nur sehr schwer ohne gleichzeitige Änderung der Ionenzahl möglich ist, kann der umgekehrte Fall, die Variation lediglich der Ionenzahl leicht durchgeführt werden. Der Theorie entsprechend sollte bei einer Erhöhung der Ionenzahl die individuelle Resonanz eine Verschiebung zu kleineren Frequenzen erfahren [Meis88], während die kollektive Schwingung exakt mit der Schwingungsfrequenz eines einzelnen Ions geschieht und daher ionenzahlunabhängig sein sollte. Die bisherigen Beobachtungen [Alhe97b, Holz97] innerhalb eines kleinen Ionenzahlenbereichs zeigen davon eine leichte Abweichung, deutlich gemacht durch die Fits von Holzki. Bei einem Restgasdruck von $2,6 \cdot 10^{-8}$ mbar wurde an der $2w_z$ -Resonanz nun eine deutlich verbesserte Serie von Messungen durchgeführt, wobei die Ionenzahl bis fast zur vollständigen Füllung der Falle (getestet mittels Sättigungsmessung) erhöht wurde. Dies entspricht den Messungen in Kapitel 6.3.3, hier allerdings mit externer Anregung. Diese wurde mit einer Amplitude von $0,5 V_{pp}$ so stark gewählt, daß die kollektive Resonanz bereits bei geringer Ionenzahl auftritt. Im Gegensatz zu den oben erwähnten früheren Messungen wurde hier die Erzeugungszeit variiert und nicht der Strom der Elektronenkanone:

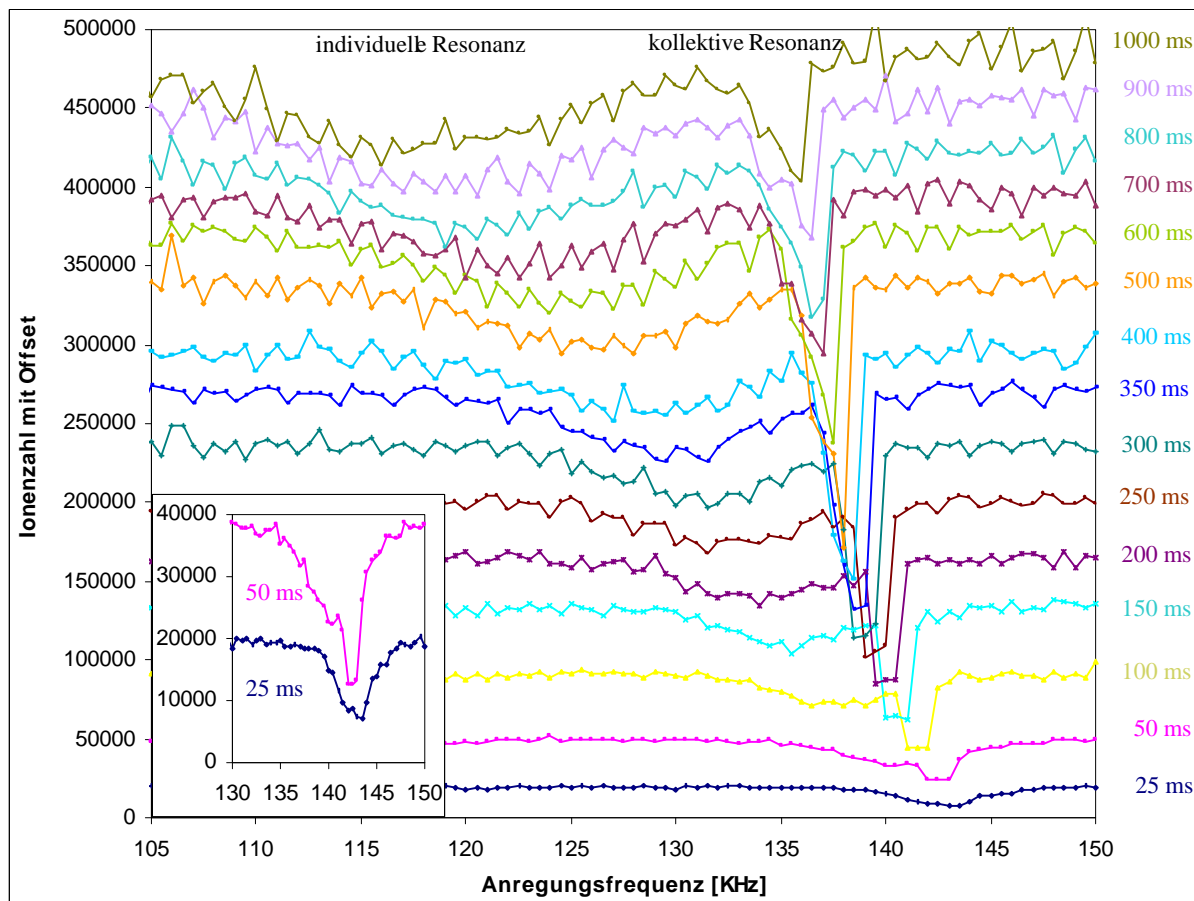


Abb. 6.61: Änderung der Frequenz der kollektiven und individuellen $2w_z$ -Resonanz bei Variation der Erzeugungszeit, d.h. der Ionenzahl. Bei geringer Ionenzahl fallen die beiden Resonanzen praktisch zusammen. $U_0 = 3$ V, $V_0 = 398$ V_{pp}, $P_{\text{Restgas}} = 2,6 \cdot 10^{-8}$ mbar, Erzeugungszeiten jeweils rechts.

¹ Tommaseo vermutet, wie auch schon in [Alhe97b] erwähnt, daß Dämpfung dadurch geschieht, daß die Ionen/Elektronen in den Endkappen Spiegelladungen induzieren und der Spiegelladungsstrom in den Widerständen der die Endkappen verbindenden Elektronik gedämpft wird. Dies wäre durch Variation der Widerstände überprüfbar.

Abbildung 6.62 zeigt die Auswertung der Meßdaten, wobei auf der x-Achse 3 Skalen eingetragen sind: die Erzeugungszeit, die nach der Nachweiseichung außerhalb der Resonanz (bei ca. 150 kHz) gemessene Ionenzahl und die entsprechend einer Sättigungsmessung berechnete Fallenfüllung. Deutlich zu erkennen ist die mit 29 % der Gesamtverschiebung nicht unerhebliche Frequenzänderung der kollektiven Resonanz. Diese erklärt sich wie schon in Kapitel 6.3.3 durch die bei diesen Speicherparametern starke Beimischung anderer Ionensorten in der Falle, deren Menge ebenfalls erzeugungszeitabhängig ist und deren Raumladung zu einer Abschwächung des von den

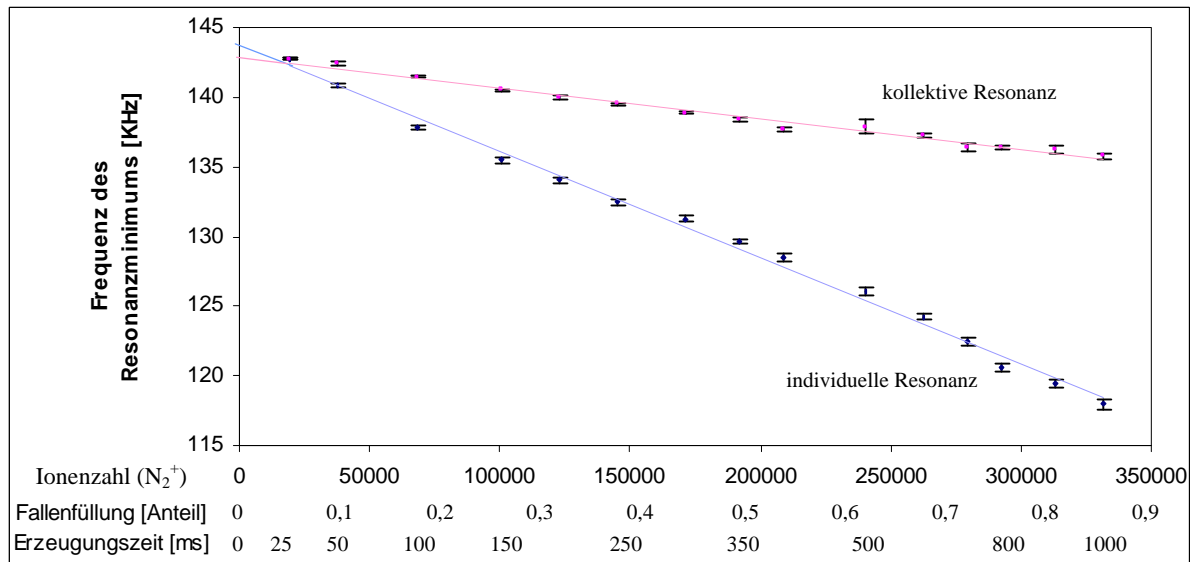


Abb. 6.62: Frequenz der kollektiven und individuellen $2w_z$ -Resonanz bei Variation der Erzeugungszeit aus Abb. 6.61. Diese kann über den Vergleich mit einer Sättigungsmessung bei gleichen Speicherparametern in den Teil, zu dem die Falle gefüllt ist, umgerechnet werden. Dazu ist die außerhalb der Resonanzen bei 150 kHz jeweils gemessene Ionenzahl als Skala angegeben. Im Rahmen der Meßfehler treffen sich kollektive und individuelle Resonanz der Theorie entsprechend bei Ionenzahl 1.

Stickstoffionen gesehenen effektiven Speicherfelds führt. Der Anteil an der Gesamtverschiebung von ca. 29 % bedeutet, daß der Falleninhalt bei diesen Speicherparametern – vorausgesetzt, die Verteilung aller Ionensorten wäre homogen – zu ca. 71 % aus Stickstoffionen und zu ca. 29 % aus anderen Ionensorten bestand. Bei den Messungen von Holzki und Alheit an H_2^+ ist die geringe Verschiebung wohl durch die Mitspeicherung einer im Vergleich zu hier kleineren Menge von H^+ oder H_3^+ bedingt¹.

Entsprechend Gleichung 2.58 läßt sich nach Meis für die Ionenzahl 330000 aus Abbildung 6.62 und die dabei aufgetretene Frequenzverschiebung eine Ionendichte von $1,2 \cdot 10^5$ Ionen/cm³ berechnen. Mit Berücksichtigung sowohl der N_2^+ -Ionenzahl als auch dem aus der Verschiebung der kollektiven Resonanz geschlossenen Anteil anderer Ionensorten von 29 % ergibt sich aus obigen Daten eine absolute Raumladungsverschiebung von ca.

$$dw_z = 27 \frac{Hz}{1000 \text{ Ionen}}$$

In Abbildung 6.61 deutete sich eine mit der Ionenzahl einhergehende Änderung der Form der kollektiven Resonanz an. Diese wurde daher nun bei sonst exakt gleichen Bedingungen mit erhöhter Frequenzauflösung betrachtet. Abbildung 6.63 zeigt, daß bei Vergrößerung der Ionenzahl die zunächst zu kleineren Frequenzen hin² gekippte nichtlineare Resonanz ihre Kipprichtung ändert und sich schließlich immer mehr zu höheren Frequenzen hin neigt. Gleichzeitig steigt die Resonanzbreite bei stärker werdender Neigung.

¹ Die Speicherung dieser Ionensorten ist dort zumindest in den Flugzeitspektren dokumentiert.

² Diese Kipprichtung (bei wenigen Ionen) ist die Form der kollektiven Resonanz, die in allen bisherigen Veröffentlichungen auftritt.

Nach Kapitel 3 wird die Resonanzbreite einer Schwingung nur durch eine stärkere Anregung oder eine schwächere (lineare) Dämpfung größer. Ersteres erfolgte hier nicht und letzteres würde bedeuten, daß die Dämpfung durch eine Vergrößerung der Ionenzahl geringer würde, und zwar in einer Art und Weise, daß die Resonanzstärke dabei dennoch, wie in Abb. 6.63 zu sehen, abnimmt. Alheit beschreibt in [Alhe97b] unter Einbeziehung der damaligen Meßergebnisse¹ mathematisch und anschaulich, wie der Dämpfungskoeffizient mit der Ionenzahl N sinken könnte; nämlich proportional zu $1/N^{1/3}$. Die Erklärung paßt jedoch weniger gut zum dort als Dämpfungsursache angenommenen neutralen Gas als zur Ion-Ion Wechselwirkung zwischen einem als Kugel angenommenen kollektiv schwingenden Ionenwolkenanteil und den sich um die Kugel individuell bewegendenden restlichen Ionen. Damit würde in einer kollektiven Resonanz eine Art lokaler Phasenübergang stattfinden. Aber auch dieses Modell erklärt nicht den beobachteten Zusammenhang zwischen Ionenzahl sowie Breite und Tiefe der Resonanz. Durch das Umkippen einer Resonanz (siehe Kapitel 3.2.4) wäre ein solcher Effekt zwar möglich, d.h. es kann die Resonanzbreite über die der Basis hinaus steigen, es müßte dann aber in weiten Bereichen 2 stabile Lösungen geben. Diese werden oben nicht beobachtet, obwohl bei jedem Messpunkt Ionen neu erzeugt werden und sich das System also jedesmal frei "wählen" kann, welche der 2 Lösungen angenommen wird. Ursache und Mechanismus, die zu den Beobachtungen führen, können hier nicht ganz geklärt werden.

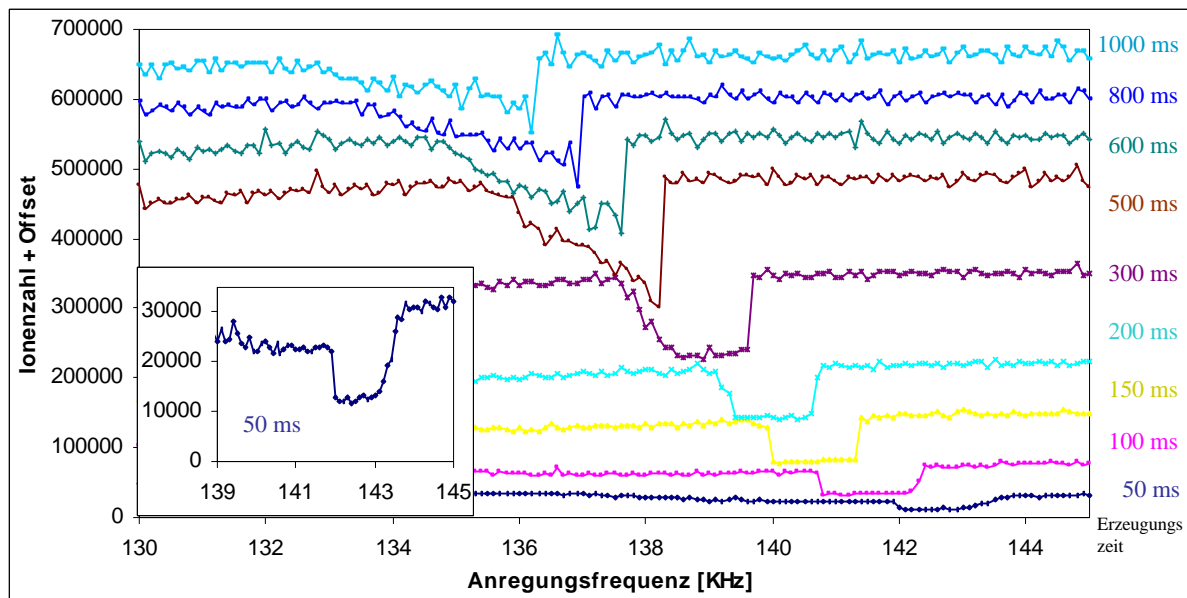


Abb. 6.63: Die kollektive Resonanz $2\omega_z$ zeigt bei Variation der Erzeugungszeit, d.h. der Ionenzahl, eine auffällige Änderung der Resonanzform. Alle Einstellungen entsprechen denen in Abbildung 6.61, allerdings bei höherer Frequenzauflösung.

Beim Richtungswechsel des Umkippen der Resonanz ist es unwahrscheinlich, daß sich das Vorzeichen der Nichtlinearität ändert. Wesentlich wahrscheinlicher ist es, daß rotationssymmetrische Störungen (gerade Multipolordnungen) und unsymmetrische (ungerade Multipole, siehe Franzen in [Marc95]) unterschiedliche Vorzeichen besitzen und beim Vergrößern der Ionenwolke eine der Störungen stärker zutage tritt. Mit entsprechenden c_4 und c_6 -Termen wurden in Abbildung 6.64 theoretische Kurven entsprechend Gleichung 3.27 mit den experimentellen Daten verglichen. Hierbei wurde, da einige Resonanzformen aufgrund vollständigen Ionenverlusts ohnehin unten "abgeschnitten" sind, auf die eigentlich korrekte Simulation von Verlustwahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit der Ionenbahnamplituden verzichtet. Stattdessen wurde lediglich die Resonanztiefe der theoretischen Linien mit einem Faktor skaliert. Ein Vorgehen im Sinne eines Fits ist angesichts der 6 freien Parameter (den Skalierungsfaktor nicht mitgezählt) nicht sinnvoll. Die Graphen sollen lediglich die Änderung von c_4 und c_6 bei sonst gleichbleibenden Parametern darstellen:

¹ Die Schwellenspannung der kollektiven Resonanzen zeigte eine $1/N^{1/3}$ – Abhängigkeit von der Ionenzahl

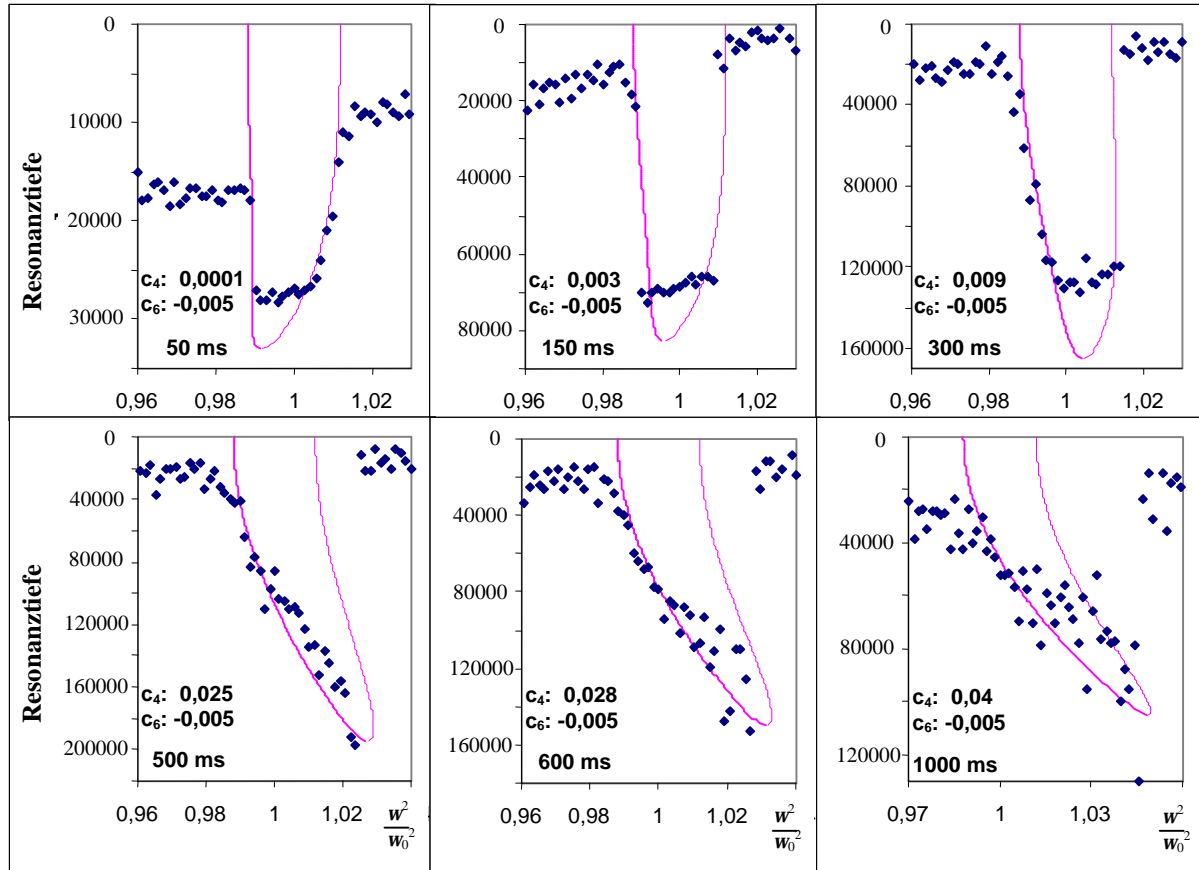


Abb. 6.64: Experimentelle Daten aus Abbildung 6.63 mit theoretischen Kurven nach Gleichung 3.27 unter Änderung des Parameters c_4 und eines Skalierungsfaktors für die Resonanztiefe.

Unter der Annahme, eine Ionenzahlzunahme würde die rotationssymmetrischen¹ Feldabweichungen ändern, d.h. den c_4 -Term, ist ein positives c_4 und ein negatives c_6 wie im Bild oben zunächst² die einzig mögliche Vorzeichenwahl, da der c_6 -Term die Spitze der Resonanzkurve dominiert. Eine Änderung von c_4 aufgrund der Änderung der Raumladung anderer mitgespeicherter Ionen kann nicht ausgeschlossen werden angesichts der Tatsache, daß bei früheren Messungen mit fast ausschließlich H_2^+ [Alhe97b, Holz97] keine Resonanzformänderung auftrat. Da diese Messungen aber nur einen kleineren Ionenzahlenbereich als hier betrachtet abdeckten, wäre eine erneute, genauere Messung mit nur einer gespeicherten Ionensorte notwendig.

Die Breite der Resonanzen, ihre Verschiebung und ihre Form beeinflussen die Massenauflösung der Paulfalle, wenn die Massenbestimmung, wie in technischen Anwendungen realisiert, über resonante Anregung erfolgt. Die Auflösung wird dabei grundsätzlich limitiert durch die Schärfe und Steilheit der Resonanzkanten. Diese ist am höchsten an den Sprüngen der umkippenden Resonanzen. Diese sind jedoch nicht beliebig scharf, sondern zeigen in gewissem Maß die erwartete Bistabilität:

¹ Deren Zahl scheint in Bezug auf die Fallenelektroden größer: endliche Elektroden, mögliche zu große oder zu kleine Abstände zwischen Ring und Kalotten, das Gitter in der oberen Kalotte, die Elektroneneinschußöffnung in der unteren Kalotte und der Potentialdurchgriff des Ionennachweises durch das Gitter. Demgegenüber scheint die nichtsymmetrische dritte Bohrung im Ring nicht so schwer ins Gewicht zu fallen. Eine Verkipfung der Kalotten ist, wenn vorhanden, sicher geringer als Fehler in den Abständen, da sie beim Zusammenbau der Falle leichter auffallen würde.

² siehe Kapitel 6.5.5

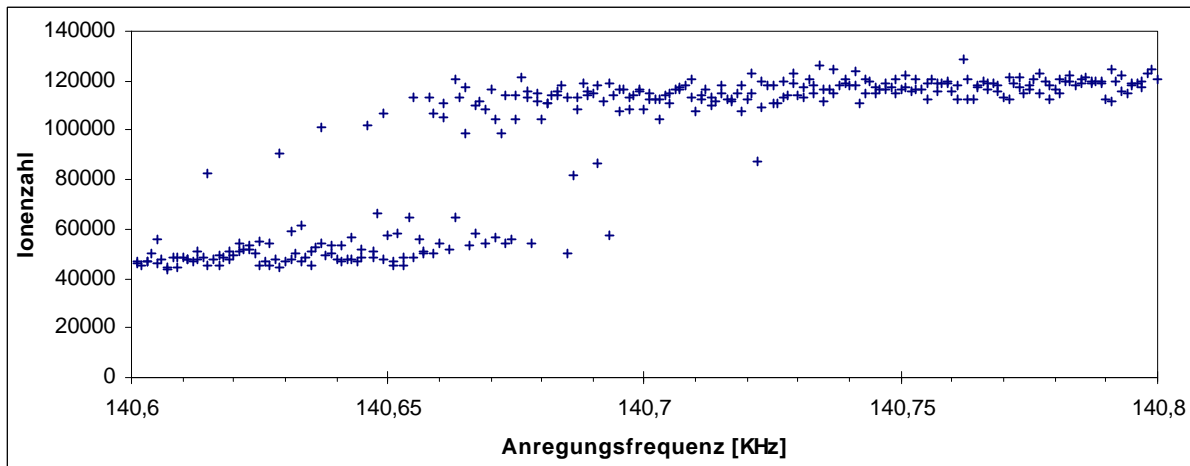


Abb. 6.65: Höherfrequente Kante der $2w_z$ -Resonanz: Die aufgrund der umkippenden Resonanzkurve erwartete Bistabilität beschränkt die für Massenmessungen nötige Trennschärfe in diesem Beispiel auf ca. 40 Hz, was für $m = 28$ einer theoretischen Massenauflösung von ca. $2 \cdot 10^{-4}$ entspricht.

6.5.5 Kollektive Resonanz bei Variation der Wartezeit

Die zeitliche Änderung der Ionenwolke bei andauernder Einstrahlung einer Anregung kann durch Variation der zwischen Erzeugung und Detektion liegenden Wartezeit untersucht werden. Abgesehen vom bereits in Kapitel 6.4 behandelten Ionenverlust über die Speicherzeit interessiert hier besonders die zeitliche Änderung der Resonanzformen sowie vor allem der Bistabilität der Resonanzkanten.

Prinzipiell hat zunächst die Verlängerung der Wartezeit – und damit der Einstrahldauer der externen Anregung – einen ähnlichen Effekt wie eine Erhöhung der Anregungsamplitude oder eine Erniedrigung der Ionenzahl. Abbildung 6.66 zeigt das Zusammenlaufen von individueller und kollektiver Resonanz bei höher werdenden Wartezeiten.

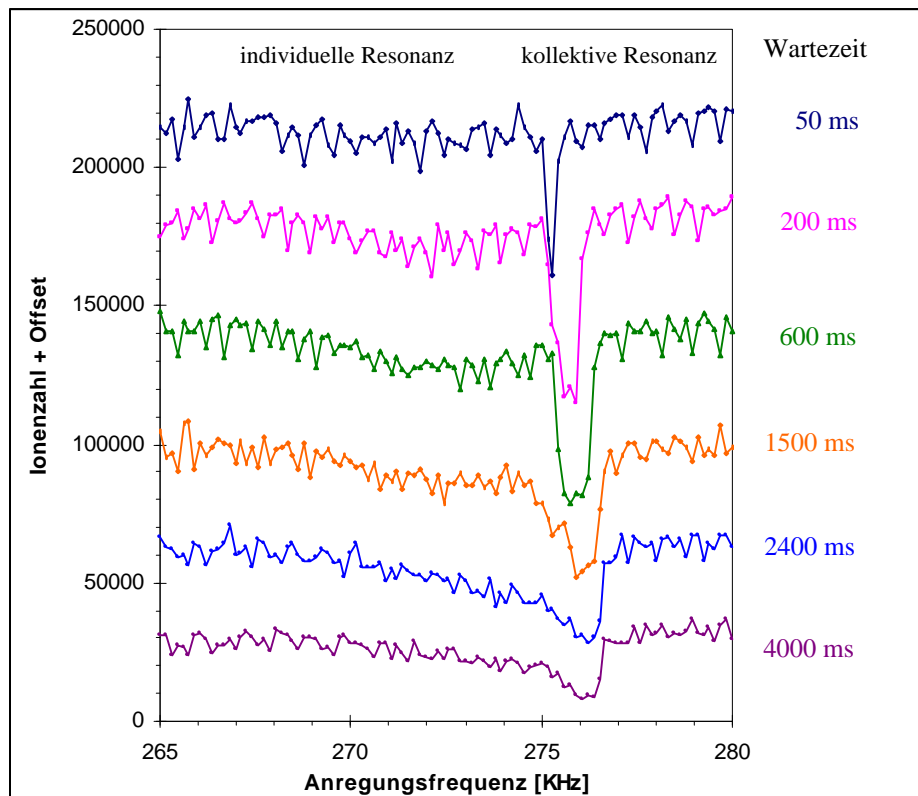


Abb. 6.66: Änderung von kollektiver und individueller Resonanz $2w_z$ bei Variation der Wartezeit. $U_0 = -4,2$ V, $V_0 = 620$ V_{pp}, $P_{\text{Stickstoff}} = 7 \cdot 10^{-9}$ mbar, Erzeugungszeit 1000 ms, Anregungsamplitude 0,3 V_{pp}.

Bei gleichen Bedingungen (Speicherparameter, Puffergasdruck, Erzeugungszeit) wie im obigen Diagramm wurde die kollektive Resonanz nun in Abbildung 6.67 detaillierter betrachtet, rechts mit der gleichen, links mit halbierter Anregungsamplitude (0,3 bzw. 0,15 V_{pp}) und ansonsten gleichen Bedingungen wie in Abb. 6.66. Frequenzauflösung 10 Hz.

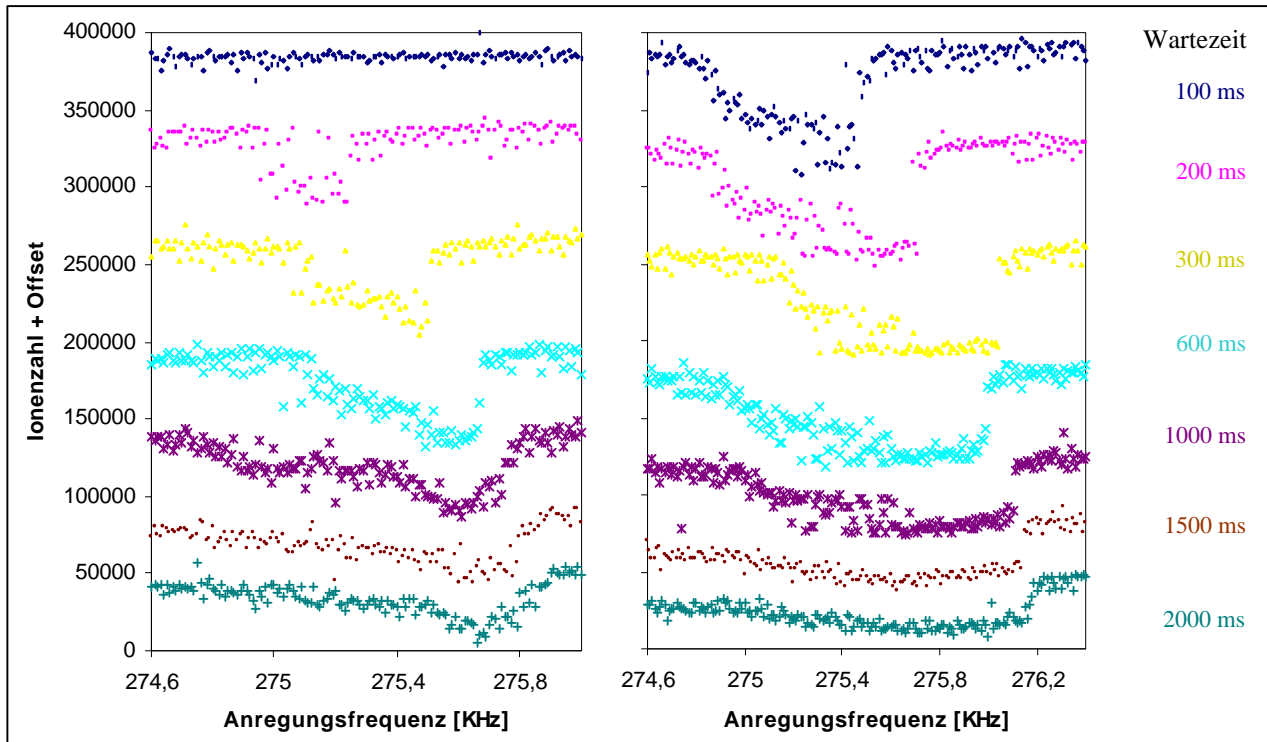


Abb. 6.67: Kollektive Resonanz $2w_z$ bei gleicher (rechts) bzw. halbierter (links) Anregungsamplitude (0,3 bzw. 0,15 V_{pp}) und ansonsten gleichen Bedingungen wie in Abb. 6.66. Frequenzauflösung 10 Hz.

Die Resonanz verhält sich in beiden Fällen grundsätzlich ähnlich, bei höherer Anregungsamplitude setzt sie, wie erwartet, früher ein, ist breiter und die Stickstoffionen gehen z.T. in Resonanz komplett verloren. Jedoch zeigt sich außer dem teilweisen Ansatz von Bistabilität am höherfrequenten Rand der Resonanz im niederfrequenten Teil eine Art dritter Zustand, der sich mit steigender Wartezeit aus zunächst weiter gestreuten Datenpunkten entwickelt und schließlich bei langen Wartezeiten mit kollektiver und individueller Resonanz verschmilzt. Auch wenn man berücksichtigt, daß in Resonanz die Form der Einbrüche in den Ionenzahlen nicht genau der Form der Kurve der Schwingungsamplitude entspricht, ist es schwierig, die experimentellen Daten durch eine Kapitel 3 entsprechende theoretische Linienform (Abbildung 6.68) abzubilden. Den "dritten

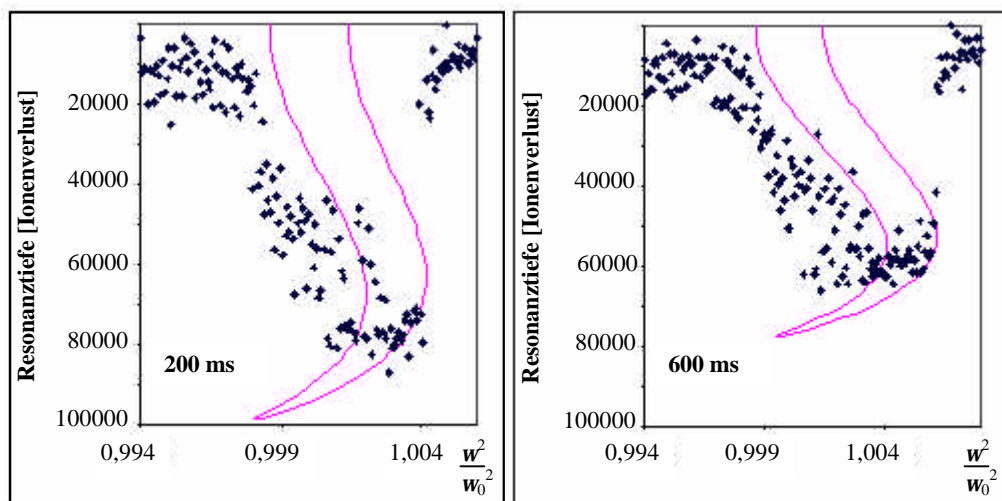


Abb.6.68: Mögliche theoretische Resonanzkurven, die dem Verlauf der Meßdaten aus Abbildung 6.67 rechts qualitativ entsprechen.

Zustand" als Folge des Umkippens der Resonanzkurve zu sehen, fällt schwer, da das Band von Meßpunkten nicht oder nur wenig der Lage der zwei instabilen Zustände entspricht. Auch sieht es – wie noch auf weiteren Bildern zu sehen – nicht wie eine zufällige Verteilung zwischen den zwei stabilen Ästen der Resonanz aus. Die Entwicklung der Resonanzbreite über den Ionenverlust ist durch Resonanzlinien nach Gleichung 3.27 nicht reproduzierbar. Wären die obigen schmalen Resonanzen korrekt, müßte es auch auf der höherfrequenten Flanke der Resonanz zu Zwischenzuständen kommen. Für die Anpassung der Linien mußte hier im Gegensatz zu Abbildung 6.64 ein positives c_4 und ein negatives c_6 verwendet werden.

Bei der Betrachtung der gebrochen rationalen parametrischen Resonanz $\frac{w_z}{2}$ in Abbildung 6.69 ist

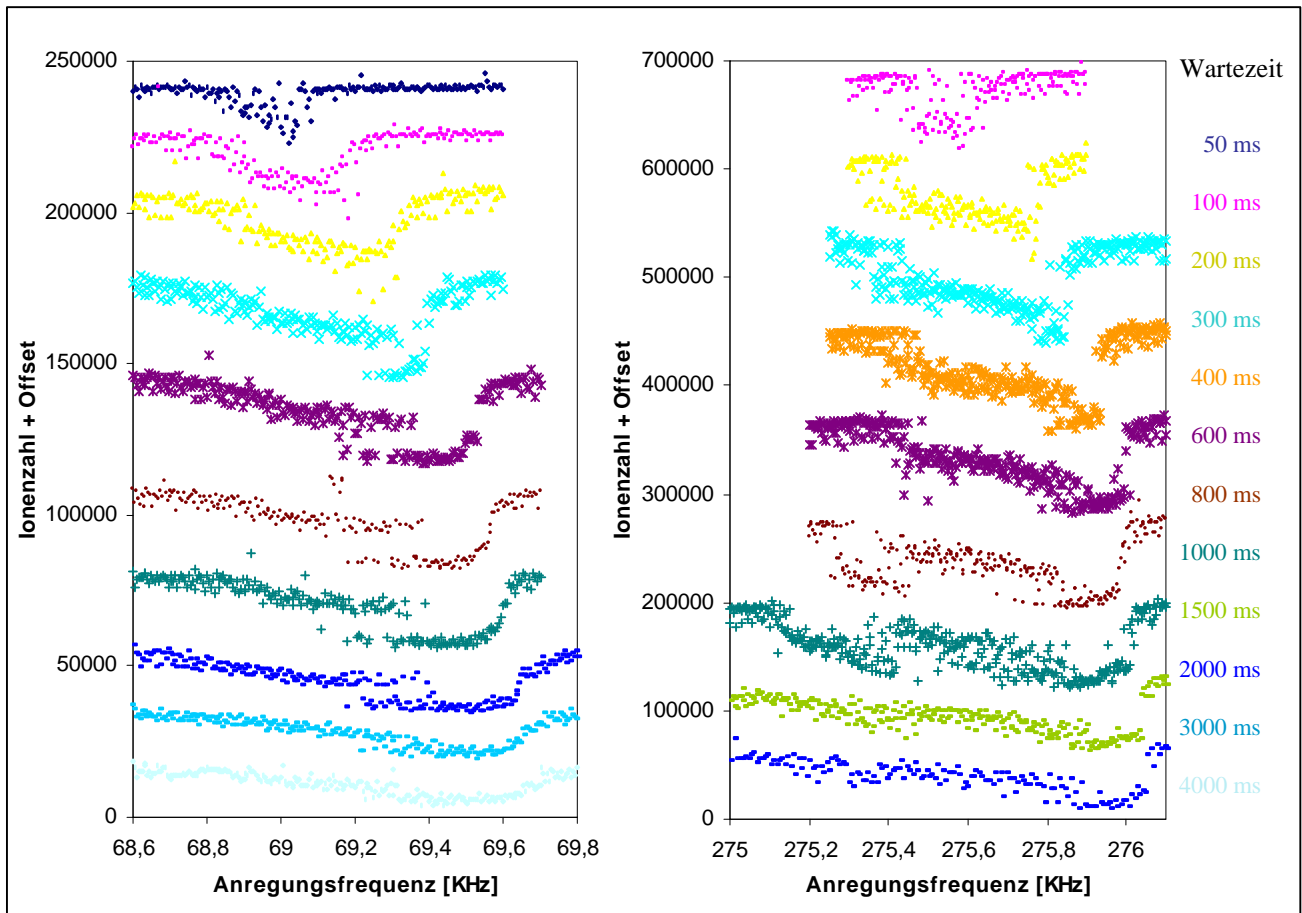


Abb. 6.69: Weitere kollektive Resonanzen bei Variation der Wartezeit. Links: gebrochen rationale parametrische Resonanz $w_z/2$ bei einer Anregungsamplitude von $1,9 V_{pp}$ ($U_0 = -4,2 V$, $V_0 = 620 V_{pp}$, $P_{Restgas} = 3,5 \cdot 10^{-9}$ mbar, Erzeugungszeit 600 ms). Rechts die Resonanz $2w_z$ bei den Speicherbedingungen von Abb. 6.66 und auf $1 \cdot 10^{-8}$ mbar erhöhtem Puffergasdruck.

genau die gleiche Form der kollektiven Resonanz zu beobachten, wobei die Meßwerte zwischen den Zuständen weniger streuen. Die Anregungsamplitude wurde hier wesentlich höher gewählt als bei den vorangegangenen Messungen, da die Resonanz wesentlich schwächer ist. Bei der daneben (Abbildung 6.69 rechts) gezeigten Resonanz $2w_z$ wurde bei Puffergasdrücken von 10^{-8} mbar oder niedriger mehrfach eine weitere Struktur innerhalb der kollektiven Resonanz gesehen, die in Zukunft noch weiterer Untersuchung bedarf. Mitunter dehnt sich der dritte Zustand so weit aus, daß er, wie bei der Resonanz $\Omega - 2w_z$ in Abbildung 6.70, über beinahe den gesamten Bereich der kollektiven Resonanz reicht.

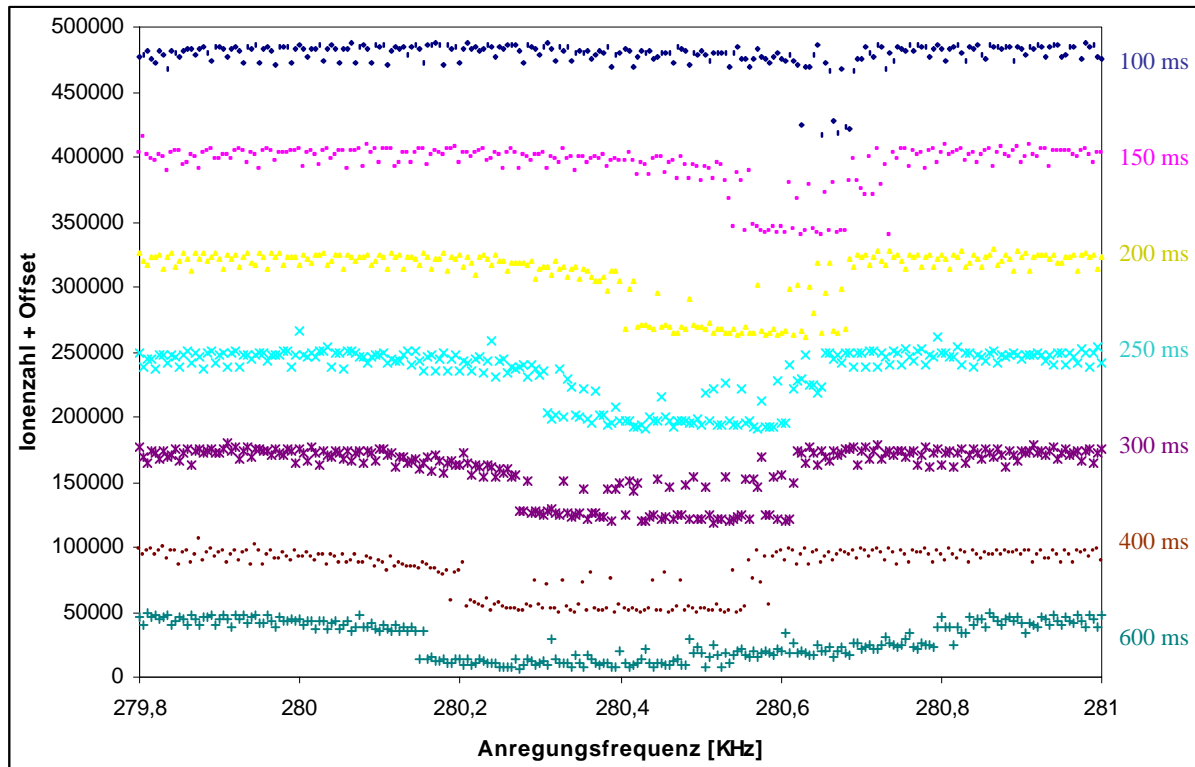


Abb. 6.70: Entwicklung des Zwischenzustands bei der Spiegelresonanz $W-2w_z$ bei Variation der Wartezeit. Bei 300 ms Wartezeit erreicht dessen Breite fast die der gesamten kollektiven Resonanz. $U_0 = -15$ V, $V_0 = 915,4$ V_{pp}, $P_{\text{Stickstoff}} = 1 \cdot 10^{-8}$ mbar, Erzeugungszeit 600 ms, Anregungsamplitude 0,3 V_{pp}.

Bei der Untersuchung der Meßdaten auf die für die Massenspektroskopie entscheidende mögliche Frequenzauflösung an den Rändern der Resonanzen¹ ergibt sich Folgendes: während der dritte Zustand mit steigendem Puffergasdruck kleiner zu werden scheint², ändert sich am höherfrequenten Rand der $2w_z$ -Resonanz die minimale Größe des Überlappungsbereichs nicht und bleibt in der Größenordnung von Abbildung 6.65.

Wie bei Holzki [Holz97]³ ist es hier nicht möglich, die Natur des Zwischenzustands zu ergründen. Da die Aufnahme einzelner Meßreihen bei hoher Frequenzauflösung und langer Wartezeit bereits Stunden dauert, konnte hier keine systematische Erforschung mehr stattfinden, zumal das Aufnehmen vergleichender Meßreihen-Sätze umfangreiche Vormessungen erfordert, um die Meßparameter günstig zu wählen. Zum Beispiel würden Meßreihen bei unterschiedlichen Puffergasdrücken Voruntersuchungen benötigen, um die Parameter Fallenspannungen, Erzeugungszeit und Anregungsamplitude so zu wählen, daß bei unterschiedlichen Drücken keiner der Parameter mehr geändert werden muß, um den Zustand zu sehen. Holzki hat den Zwischenzustand nur bei einigen Arbeitspunkten gesehen, hier war er bei jedem untersuchten Arbeitspunkt und jeder untersuchten Resonanz sichtbar. Auch bei der Resonanz $2w_r$ zeigt die näher untersuchte höherfrequente der beiden kollektiven Resonanzen diesen Zustand (Abbildung 6.71).

¹ Sofern Ionen ähnlicher Massen nicht ohnehin kollektiv mit derselben Frequenz schwingen.

² Zwischen $3 \cdot 10^{-9}$ mbar und $1 \cdot 10^{-6}$ mbar durchgeführten Messungen deuten dies an, sind aber wegen unterschiedlicher Anregungsamplituden (gewählt für eine optimale Sichtbarkeit der Resonanz) nicht gut vergleichbar. Bei Drücken über $4 \cdot 10^{-8}$ mbar wurde die Erzeugungszeit so gewählt, daß die Falle zu Beginn der Wartezeit maximal gefüllt war.

³ Bislang die einzige ähnliche Messung mit Beobachtung von Zwischenzuständen.

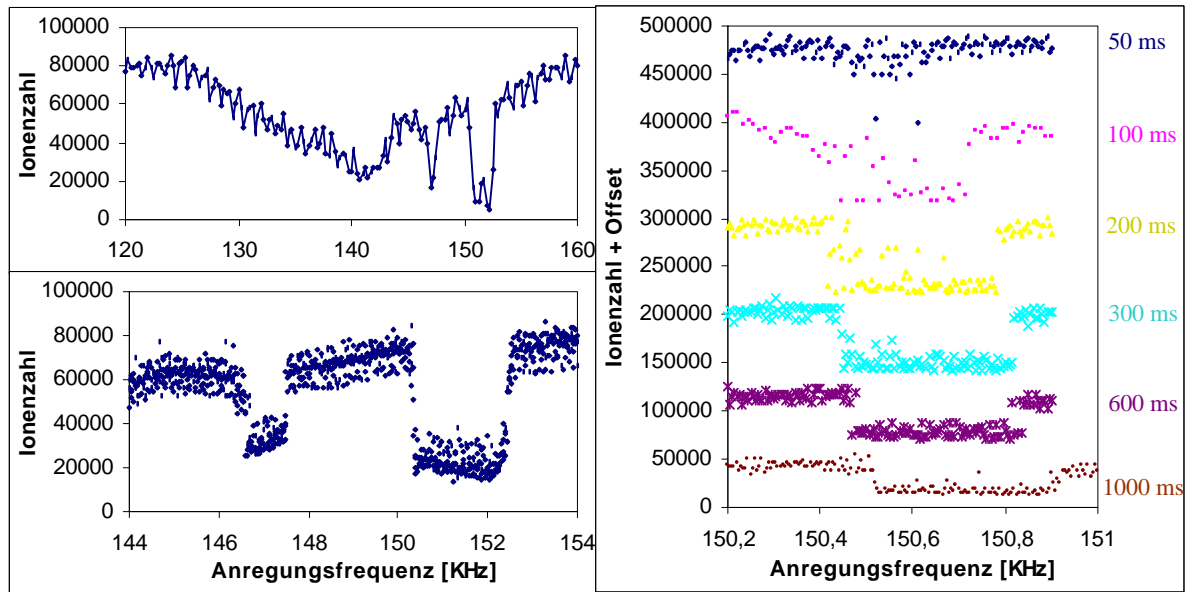


Abb. 6.71: Links: Kollektive und individuelle Resonanz $2\omega_r$ (oben) sowie die Aufspaltung der kollektiven Resonanz (unten). Rechts die höherfrequente kollektive Resonanz bei Variation der Wartezeit. $U_0 = -15 \text{ V}$, $V_0 = 915,4 \text{ V}_{pp}$, $P_{\text{Stickstoff}} = 1 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$, Erzeugungszeit 600 ms.

Weitere Untersuchungen zur Erforschung der Form der kollektiven Resonanzen bei Ionenzahl- und Wartezeitvariation sind notwendig, um die Ursachen des hier nicht zufriedenstellend klärbaren Verhaltens zu ergründen.

Dabei gälte es zunächst, herauszufinden, ob ein Einfluß durch die mitgespeicherten anderen Ionensorten besteht¹ und inwiefern Feldstörungen wie der Potentialdurchgriff durch das Kalottengitter eine Rolle spielen².

An der Apparatur wären zuvor allerdings eine Reduzierung des Gate-Springens sowie ein ADC höherer Auflösung zur besseren Anpassung an den Dynamikbereich des SEV hilfreiche Verbesserungen.

¹ indem diese entfernt werden, beispielsweise durch Wahl der Fallenparameter in den Stabilitätsbereichsspitzen oder durch externe Anregung der störenden Ionen z.B. während der Erzeugungsphase.

² Z.B. durch auf eine Kalotte gegebene Bias-Spannungen, die die Potentialstörung kompensieren oder verstärken oder durch Variation der Extraktionsspannungen.

7 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden zwei Themenbereiche behandelt:

- A) Der erste beschreibt das im Rahmen der Arbeit aufgebaute Paulfallenexperiment, mit dem durch laserspektroskopische Methoden atomphysikalische Daten gewonnen werden sollten, die für Experimente zur Paritätsverletzung von Bedeutung sind.

Obwohl das Ziel, die Speicherung und Detektion gespeicherter Radiumionen und die Messung der Lebensdauer des metastabilen $6D_{3/2}$ -Niveaus von $^{226}\text{Ra}^+$ nicht erreicht wurde, liefern die durchgeführten vorbereitenden Messungen mit $^{138}\text{Ba}^+$ und $^{226}\text{Ra}^+$ Erfahrungen für eine zukünftige Durchführung des Experiments:

- Platin hat sich als Filamentmaterial bei den Untersuchungen mit Barium als problematisch erwiesen; die gemachten Beobachtungen sind nur dadurch zu erklären, daß es eine niedrigschmelzende Legierung mit Barium bildet. Ausreichende chemische Daten hierzu existieren bislang nicht, im Gegensatz zu Kalzium, wo dies bekannt ist. Ein ähnlich problematisches Verhalten innerhalb der Erdalkalimetalle und somit auch bei Radium kann vermutet werden.
- Filamente aus Rhenium sind eindeutig vorzuziehen, die hier verwendeten mußten jedoch extrem lange und mit hoher Temperatur ausgeglüht werden, um die spätere Erzeugung unerwünschter Ionensorten zu vermeiden.
- Die Ionenerzeugung - genauer: der Einfang der erzeugten Ionen mit der Falle - war bei den Voruntersuchungen mit Barium bei relativ hohen Puffergasdrücken um 10^{-5} mbar wesentlich effektiver als bei niedrigeren Drücken. Aufgrund der in älterer Literatur beschriebenen Reaktivität des Radiums sind dabei Edelgase, z.B. Helium als Puffergas vorzuziehen.

- B) Der zweite Teil der Arbeit beinhaltet systematische Untersuchungen zum Speicherverhalten großer Ionenwolken in Paulfallen. Diese haben große Relevanz für die Verwendung der Fallen in der Massenspektrometrie sowie für Experimente, in denen Paulfallen sowohl als Reaktionsort, z.B. für chemische Reaktionen, als auch als Spektrometer der Reaktionsprodukte verwendet werden. Über den gesamten Speicherbereich ist die genaue Kenntnis von Speicherzeiten und speicherbaren Ionenzahlen, sowie die Lage von Resonanzen essentiell, um bei den genannten Anwendungen Aussagen z.B. über Reaktionskinetik und Reaktionsausbeuten machen zu können. Die Resonanzen im Frequenzspektrum, ihre Form sowie das Auftreten von kollektiven Effekten haben einen Einfluß auf die massenspektroskopische Anwendung der Paulfalle bei Verwendung resonanter Extraktion. Ihre Untersuchung war und ist daher ebenso wie der Einfluß von Puffergas von technischer Bedeutung. Nicht zuletzt galt es jedoch auch, die grundlegenden Mechanismen der kollektiven Resonanzen weiter zu erforschen.

Die Untersuchungen wurden an zwei unterschiedlichen Paulfallenapparaturen durchgeführt:

- 1) Der erste verwendete den Aufbau des Radium/Barium-Experiments, bei dem $^{138}\text{Ba}^+$ -Ionen wahlweise auf elektronischem oder optischem Weg nachgewiesen wurden.
 - Mit Hilfe des elektronischen Nachweises konnte bei Änderung des Stickstoff-Puffergasdrucks im Bereich um $2 \cdot 10^{-5}$ mbar eine plötzliche Änderung der Makrofrequenz der Ionen beobachtet werden, die ein Hystereseverhalten aufwies und auf eine plötzliche Änderung der Ionenwolke bei gleichbleibender Ionenzahl hindeutet. Mit dem optischen Nachweis wurde im gleichen Druckbereich eine Änderung der Dichteverteilung der Ionen

der beobachteten Geschwindigkeitsverteilung aufgenommen, diese Messung muß in Zukunft jedoch noch reproduziert werden. Kollektive Effekte sind ein möglicher Kandidat für die plötzliche Änderung.

- Insgesamt zeigte sich bei den Messungen der Dichteverteilung, daß der Radius der Ionenwolke in allen untersuchten Druckbereichen ca. 1 mm betrug, wohingegen frühere Messungen [Scha79, Schm80] annehmen ließen, die Ionenwolke würde einen großen Teil des Falleninnenvolumens ausfüllen. In der in dieser Arbeit verwendeten Falle waren die geometrischen Imperfektionen der Fallenelektroden vergleichsweise gering, daher dürfte die frühere Aufweitung der Ionenbahnen auf dem verstärkten Vorhandensein nichtlinearer Resonanzen beruhen.
- Speicherzeitkurven bei hohen Puffergasdrücken zeigen einen Fluoreszenzverlauf, der auf eine langsame Verdichtung der Ionenwolke durch das Puffergas schließen läßt.
- Bei Variation des Puffergasdrucks wurden die nichtlinearen Resonanzen sowie das Speicherverhalten entlang von Schnitten durch den Speicherbereich (bei konstantem a) untersucht. Die Breite der Resonanzen zeigte dabei keine meßbare Änderung.

Da die genaue Vermessung von Resonanzen bei kontinuierlicher Betrachtung ein und derselben Ionenwolke ständigem Ionenverlust unterliegt, was die Interpretation der Daten erschwert und die Meßgenauigkeit begrenzt, wurden die Messungen an einem weiteren Fallenexperiment fortgeführt:

- 2) Am zweiten Experiment werden für jeden Meßpunkt N_2^+ -Ionen neu erzeugt und nach einer definierten Speicherzeit destruktiv nachgewiesen. Dabei verläuft die Ionenerzeugung wie auch der gesamte Meßablauf - über einen Computer gesteuert - sehr gut reproduzierbar.

An dem seit vielen Jahren existierenden Experiment wurde die von Kleineidam [Klei95] begonnene Nachweiseichung komplettiert. Damit war erstmals bei einem derartigen Fallenexperiment die Angabe absoluter Ionenzahlen bei größeren Ionenwolken möglich.

- Zwei komplette, hochaufgelöste Speicherdiagramme wurden aufgenommen, dabei wurden erstmals die Speicherbereiche von vier verschiedenen gleichzeitig gespeicherten Ionensorten als Überlagerung in einem derartigen Diagramm sichtbar. Aufgrund der Eichung der Fallenspannungen stellen diese Messungen gleichzeitig die ersten unverzerrten experimentellen Speicherdiagramme dar. Dies macht einen direkten Vergleich der experimentellen Resonanzen mit den theoretisch berechneten Linien möglich. Für die vier Massen wurde jeweils ein solcher Vergleich durchgeführt, wobei im Diagramm des N_2^+ alle Summenresonanzen für $k = 1$ bis zur Ordnung 10 identifiziert werden konnten; auch einige Linien für $k = 2$ wurden beobachtet; desweiteren wurde eine Aufspaltung der Linien mit den stärksten radialen Komponenten festgestellt, was auf die Brechung der Rotationssymmetrie der Falle hinweist. In den Diagrammen der Massen 40 und 44 zeigten sich aufgrund der höheren Auflösung mit großer Wahrscheinlichkeit die ersten beobachteten Differenzresonanzen zu $k = 1$.
- Mit Hilfe der hochaufgelösten Speicherdiagramme konnte der Bereich bester Speicherung zu $a_z = -0,016 \pm 0,008$ und q_z zwischen 0,245 und 0,307 bestimmt werden. Die q_z -Verschiebung dieses Punktes bei Variation des Puffergasdrucks wurde für Stickstoff und Helium untersucht, ebenso die dabei gespeicherte Ionenzahl.
- Die Dämpfungseigenschaften von Puffergas lassen eine Veränderung des Speicherbereichs vermuten, diese liegt jedoch in den untersuchten Druckbereichen von 10^{-5} bis 10^{-8} mbar unter der Nachweisgrenze.
- Einen deutlichen Verschiebungseffekt sieht man dagegen bei der Erhöhung der Ionenzahl, die Raumladungsverschiebung ist jedoch nur dort groß, wo sich viele Ionen speichern lassen. Daher führt der Effekt insgesamt zu einer Verzerrung der Resonanzlinien innerhalb des in seinen Grenzen unverändert bleibenden Speicherdiagramms. Ein Vergleich der

gemessenen Verschiebung von Resonanzlinien mit den Theorien von Fischer und Meis [Fisc59, Meis88] liefert plausible Ergebnisse, zur Bewertung der Theorien fehlt jedoch der hier nicht zugängliche Ionenwolkendurchmesser als Meßparameter.

- Erstmals wurden bei diesen Messungen bei Variation der Ionenzahl kollektive Resonanzen im Speicherbereich beobachtet, diese treten ab einer gewissen, minimalen Ionenzahl ohne externe Anregung auf.
- Die Speicherzeiten vierer gleichzeitig gespeicherter Ionensorten zeigten keine signifikanten Einflüsse einer Ionensorte auf die Speicherdauern der anderen, alle experimentellen Speicherzeiten verhielten sich entsprechend den von Schwebel [Schw75] erklärten Gesetzmäßigkeiten.
- Die Betrachtung der Speicherzeiten bei Variation des Puffergasdrucks führt zu der Einsicht, daß die zwei Bereiche Ioneneinfang und Ionenspeicherung bei Puffergasdruckvariation ein unterschiedliches Verhalten zeigen: für eine hohe Einfangeffizienz sind relativ hohe Drücke nötig, wohingegen die Speicherzeit bei niedrigeren Drücken ihren maximalen Wert erreicht. Der Ioneneinfang ist erwartungsgemäß mit Stickstoff effektiver, die Speicherdauer jedoch mit Helium länger.
- Die Variation der Fallenspannungen im Bereich um eine nichtlineare Resonanz führt dazu, daß sich im Frequenzspektrum extern angeregte Resonanzen der Bewegungsfrequenzen der Ionen kreuzen. Deren Identifikation vorausgesetzt, wird hier eine einfache Bestimmungsmethode der nichtlinearen Resonanzen im Speicherbereich vorgestellt. Während der Annäherung zweier kollektiver Resonanzen im Frequenzspektrum wurde dabei ein Verstärkungseffekt beobachtet.
- Im Frequenzspektrum wurde die Raumladungsverschiebung einer individuellen Resonanz bestimmt, ebenso wie die der zugehörigen kollektiven, die auf der Zahl mitgespeicherter Ionen anderer Massen beruht. Die dabei erstmals beobachteten Formänderungen der kollektiven Resonanz wurden genauer untersucht: während die Formänderung bei Variation der Ionenzahl noch relativ einfach durch höhere Multipolordnungen des Fallensfelds, insbesondere c_4 - und c_6 -Terme ungleicher Vorzeichen erklärt werden kann, bedürfen die bei Änderung der Speicherdauer beobachteten Resonanzformen und besonders die dabei auftretenden Zwischenzustände noch genauerer Nachforschungen.

Eine Vielzahl von Details bleiben noch in künftigen Experimenten zu untersuchen:

Ob sich der Speicherbereich der Paulfalle bei zunehmender Puffergasdämpfung nach der Theorie von Kotowski [Koto43] oder nach der von Hasegawa [Hase95] verändert, ist bei den niedrigen Drücken – und damit Dämpfungskonstanten - in dieser Arbeit nicht sichtbar. Eine Untersuchung der Speicherbereichsgrenzen mit gespeicherten makroskopischen Partikeln bei hohen Drücken ähnlich der von Winter [Wint91], könnte dies entscheiden.

Die Messungen in Abbildung 6.40V sind ein sehr starker Hinweis darauf, daß die Stabilitätsgrenzen keine Raumladungsverschiebung erfahren. Diese wäre demnach abhängig vom Speichervermögen der Falle, weswegen die bisherigen Theorien von Fischer [Fisc59] und Schwebel [Schw75] nur innerhalb des Speicherbereichs anwendbar wären. Die übrigen Abbildungen von 6.40 an der Grenze $b = 1$ sind wegen der mitgespeicherten anderen Massen leider nicht beweiskräftig. Eine Wiederholung der Messung mit nur einer Ionensorte würde den Sachverhalt endgültig klären.

Sich annähernde kollektive Resonanzen im Frequenzspektrum können nach den Beobachtungen in dieser Arbeit und bei Kleineidam [Klei95] eine verstärkende Wirkung haben. Diese scheint jedoch nicht unbedingt genau bei Überlagerung aufzutreten, sondern bei leichter "Verstimmung". Dies könnte ohne apparative Änderungen am Experiment genauer untersucht werden.

Gleiches gilt für die Frage, unter welchen Umständen die Ω -Resonanz stark ausgeprägt ist. Nach Franzen [Fran94] spiegelt diese Resonanz das Auftreten bestimmter Multipole des Fallenfelds wider – allerdings zeigen sich in dieser Arbeit Änderungen der Resonanzstärke bei geringfügiger Variation der Fallenspannungen. Ob verstärkende Effekte durch andere Resonanzen vorliegen [Klei95] bliebe zu überprüfen.

Ebenfalls ohne Änderungen an der Apparatur müßten die 4 nicht identifizierten Resonanzen im Speicherbereich reproduziert und ebenso wie die Differenzresonanzen mit Hilfe der Methode von Hoefer [Hoef97] genauer untersucht und evtl. identifiziert werden können.

Die genauen Abläufe beim Zustandekommen der kollektiven Resonanzen sind weiterhin unklar. Mögliche interessante Messungen wären hier zunächst die Untersuchung der Schwellenamplituden der kollektiven Resonanzen bei Druckvariation und Ionenzahländerung, die noch genauere Untersuchung der Resonanzform – insbesondere der Bistabilität und des "Zwischenzustands" sowie eine hochaufgelöste Analyse der Speicherzeiten in individueller und kollektiver Resonanz.

Die Beobachtung von Jungmann [Jung87] – das kollektive, gemeinsam mit einer Frequenz erfolgende Schwingen von Ionen zweier Massen – setzt der Massenspektrometrie mit Paulfallen, die Ionenzahl betreffend, Grenzen. Dies könnte hier am Experiment genauer untersucht werden und dabei die Ionenzahl, ab der der Effekt eintritt, quantitativ bestimmt werden.

Die meisten dieser Messungen sind mit der bestehenden Apparatur meßbar, von technischer Seite wären dabei die Beseitigung der Gate-Sprünge und der Einsatz eines störungsfreieren ADCs besserer Auflösung vorteilhaft. Sollte auch der neue Schaltverstärker für den Extraktionspuls einen erzeugungszeitabhängigen Versatz aufweisen, wäre eine Beseitigung oder zumindest erneute Quantifizierung des Effekts nötig. Der Effekt, daß sich im Flugzeitspektrum mit Änderung der Fallenwechselspannung der zeitliche Überlapp des Signals einer Ionensorte mit dem Gate verschiebt, könnte durch eine fallenspannungsgesteuerte Gate-Korrektur eliminiert werden.

Um Messungen mit nur einer Ionensorte (s.o.) an beliebigen Arbeitspunkten im Speicherbereich durchführen zu können, wären während der Ionenerzeugung die ungewollten Ionensorten durch externe Anregung der Makrofrequenzen aus der Falle zu entfernen. Die Anregung durch den Frequenzgenerator sollte dabei – und auch generell – besser als Dipolanregung gegenphasig auf die beiden Endkappen gegeben werden, da die derzeitige Quadrupolanregung aufgrund von geometrischen Imperfektionen der Falle stärkere Anteile höherer Multipole enthält. Für die Messung von Schwellenamplituden z.B. der kollektiven Resonanzen wäre ein stufenloser, auf die tatsächlich an den Fallenelektroden anliegende Amplitude geeichter Regler der externen Anregungsspannung vorteilhaft.

Optimal, aber experimentell anspruchsvoll, wäre die Kombination der zwei in dieser Arbeit beschriebenen Experimente: würde man vom Prinzip her das Experiment aus Kapitel 6 zusätzlich mit einem breitbandigen¹, optischen Nachweis ähnlich dem aus Kapitel 4 versehen², könnten die Theorien von Fischer [Fisc59] und Meis [Meis88] über die Messung von Ionendichte und Wolkenradius gleichzeitig mit dem Feststellen der Raumladungsverschiebung entsprechend Abbildung 6.41 und 6.42 endlich überprüft werden. Zudem könnte man Untersuchungen anstellen, wie sich die Ionendichte bei Auftreten von kollektiven Resonanzen verhält und es wäre die Möglichkeit gegeben, den Dämpfungsmechanismus zu entschlüsseln.

¹ so breitbandig, daß alle Geschwindigkeitsklassen der untersuchten Ionensorte gleichzeitig angeregt werden. Zur Speicherung wäre jede Ionensorte geeignet, die sich schnell und in einstellbarer, reproduzierbarer Menge erzeugen ließe und ein mit Lasern zugängliches Niveausystem aufwiese.

² Dies würde spezielle Anforderungen stellen an die Ionenerzeugung, da die Erzeugung einer Ionensorte mit für die Detektion günstigen optischen Übergängen dabei nicht aus dem Restgas geschehen sollte.

Literaturverzeichnis

- Abel90 B. Abel,
Aufbau einer Apparatur zur Speicherung von Ca^+ -Ionen in einem HF-Käfig, Diplomarbeit, Mainz 1990
- Ahma83 S. A. Ahmad, W. Klempt, R. Neugart, E. W. Otten, K. Wendt, C. Ekström, ISOLDE collaboration,
Determination of nuclear spins and moments in a series of Radium isotopes, Phys. Lett. 133B, 47 (1983)
- Ahma88 S. A. Ahmad, W. Klempt, R. Neugart, E. W. Otten, P.-G. Reinhard, G. Ulm, K. Wendt,
Mean square charge radii of Radium isotopes and octupole deformation in the $^{220-228}\text{Ra}$ region, Nucl. Phys. A483, 244 (1988)
- Alhe95 R. Alheit, C. Hennig, R. Morgenstern, F. Vedel, G. Werth,
Observation of instabilities in a Paul trap with higher-order anharmonicities, Appl. Phys. B 61, 277 (1995)
- Alhe96 R. Alheit, S. Kleineidam, F. Vedel, M. Vedel, G. Werth,
Higher order non-linear resonances in a Paul trap, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 154, 155 (1996)
- Alhe96b R. Alheit, Th. Gudjons, S. Kleineidam, G. Werth,
Some observations on higher-order non-linear resonances in a Paul trap, Rapid Comm. Mass Spectrom. 10, 583 (1996)
- Alhe97 R. W. W. Alheit,
Speicherung und laserinduzierte Photodissoziation von H_2^+ in einer Paul Falle, Dissertation, Mainz 1997
- Alhe97b R. Alheit, X. C. Chu, M. Hoefer, M. Holzki, G. Werth, R. Blümel,
Nonlinear collective oscillations of an ion cloud in a Paul trap, Phys. Rev. A 56, 4023 (1997)
- Alt98 W. Alt, M. Block, P. Seibert, G. Werth,
Spatial separation of atomic states in a laser-cooled ion crystal, Phys. Rev. A 58, R23 (1998)
- Alt98b W. Alt,
Experimente an lasergekühlten Kalzium-Ionenkristallen in einer linearen Paulfalle, Diplomarbeit, Mainz 1998
- Amin10 J. M. Amini, H. Uys, J. H. Wesenberg, S. Seidelin, J. Britton, J. J. Bollinger, D. Leibfried, C. Ospelkaus, A. P. VanDevender, D. J. Wineland,
Toward scalable ion traps for quantum information processing, New Journal of Physics 12, 033031 (2010)
- Amor02 M. Amoretti et al.,
Production and detection of cold antihydrogen atoms, Nature advance online publication, 18.Sept. 2002
- Arbe94 F. T. Arbes,
Optische und Mikrowellen-Spektroskopie an gespeicherten Calcium-Ionen: D-Niveau-Lebensdauern in $^{40}\text{Ca II}$ Grundzustands-Hyperfeinstruktur in $^{43}\text{Ca II}$, Dissertation, Mainz 1994
- Arno87 E. Arnold, W. Borchers, M. Carre, H. T. Duong, P. Juncar, J. Lerme, S. Liberman, W. Neu, R. Neugart, E. W. Otten, M. Pellarin, J. Pinard, G. Ulm, J. L. Vialle, K. Wendt,
Direct Measurement of Nuclear Magnetic Moments of Radium Isotopes, Phys. Rev. Lett. 59 (7), 771 (1987)
- Barb58 M. Barbier, A. Schoch,
Study of two-dimensional non-linear oscillations by means of an electromechanical analogue model, applied to particle motion in circular accelerators, CERN 58-5, 1958
- Beck75 W. Becker,
Speicherung von Quecksilberionen in einem HF-Quadrupolkäfig, Diplomarbeit, Mainz 1975
- Benz94 M. H. Benzing,
Lebensdauermessungen und Feinstrukturmischen an den metastabilen 3^2D -Niveaus des Ca^{+} -Ions, Diplomarbeit, Mainz 1994
- Berk56 K. Berkling,
Der Entwurf eines Partialdruckmessers, Diplomarbeit, Physikalisches Institut der Universität Bonn 1956
- Blat79 R. Blatt,
Speicherung massengetrennter Bariumisotope, Diplomarbeit, Mainz 1979
- Blat79a R. Blatt, U. Schmeling, G. Werth,
On the sensitivity of ion traps for spectroscopic applications, Appl. Phys. A 20, 295 (1979)
- Blat81 R. Blatt,
Präzisionsbestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung im Grundzustand von $^{137}\text{Ba}^+$, Dissertation, Mainz 1981
- Blat86 R. Blatt, P. Zoller, G. Holzmüller, L. Siemers,
Brownian motion of a parametric oscillator: a model for ion confinement in radio frequency traps, Z. Phys. D 4, 121 (1986)
- Blau03 K. Blaum, G. Bollen, F. Herfurth, A. Kellerbauer, H.-J. Kluge, M. Kuckein, S. Heinz, P. Schmidt, L. Schweikhard,
Recent developments at ISOLTRAP: towards a relative mass accuracy of exotic nuclei below 10^{-8} , J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 36, 921 (2003)
- Blew52 J. P. Blewett,
Radial focusing in the linear accelerator, Phys. Rev. 88, 1197 (1952)
- Bloc00 M. Block, A. Drakoudis, H. Leuthner, P. Seibert, G. Werth,
Crystalline ion structures in a Paul trap, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 33, 375 (2000)

- Bloc02 M. Block,
Untersuchungen an gespeicherten $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen in einer linearen Paulfalle: Lebensdauer des metastabilen $3D_{5/2}$ -Niveaus und Separation atomarer Zustände in einem Ionenkristall, Dissertation, Mainz 2002
- Bloc99 M. Block, O. Rehm, P. Seibert, G. Werth,
 $3d^2D_{5/2}$ lifetime in laser cooled Ca^+ : influence of cooling laser power, The European Phys. Journal D 7, 461 (1999)
- Bonn77 R. F. Bonner,
Derivations of the field equations and stability parameters for three operating modes of the three-dimensional quadrupole, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 23, 249 (1977)
- Brac00 U. Brackmann,
Lambdachrome Laser Dyes, 3rd edition, Lambda Physik AG, Göttingen 2000
- Bron91 I. N. Bronstein, K. A. Semandjajew,
Taschenbuch der Mathematik, 25. Auflage, B.G. Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart und Verlag Nauka, Moskau 1991
- Busc61a F. von Busch, W. Paul,
Isotopentrennung mit dem elektrischen Massenfilter, Z. Phys. 164, 581 (1961)
- Busc61b F. von Busch, W. Paul,
Über nichtlineare Resonanzen im elektrischen Massenfilter als Folge von Feldfehlern, Z. Phys. 164, 588 (1961)
- Carr72 J. P. Carrico,
Dynamic mass spectrometry, Vol. 3, Heyden and Son, London 1972
- Chu98 X. C. Chu, M. Holzki, R. Alheit, G. Werth,
Observation of high-order motional resonances of an ion cloud in a Paul trap, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 173, 107 (1998)
- Chur69 D. A. Church,
Storage-ring ion trap derived from the linear quadrupole radio-frequency mass filter, J. Appl. Phys. 40, 3127 (1969)
- Cira95 J. I. Cirac, P. Zoller,
Quantum computations with cold trapped ions, Phys. Rev. Lett. 74, 4091 (1995)
- Cour52 E. D. Courant, M. S. Livingston, H. S. Snyder,
The strong-focusing synchrotron – a new high energy accelerator, Phys. Rev. 88, 1190 (1952)
- Cour53 E. D. Courant, M. S. Livingston, H. S. Snyder, J. P. Blewett,
Origin of the "strong-focussing" principle, Phys. Rev. 91, 202 (1953)
- Cutl85 L. S. Cutler, R. P. Giffard, M. D. McGuire,
Thermalization of ^{199}Hg Ion Macromotion by a Light Background Gas in an RF Quadrupole Trap, Appl. Phys. B 36, 137 (1985)
- Cutl86 L. S. Cutler, C. A. Flory, R. P. Giffard, M. D. McGuire,
Doppler Effects due to Thermal Macromotion of Ions in an RF Quadrupole Trap, Appl. Phys. B 39, 251 (1986)
- Daws68a P. H. Dawson, N. R. Whetten,
Ion storage in three dimensional, rotationally symmetric, quadrupole fields. I. Theoretical treatment, J. Vacuum Sci. Technol. 5, 1 (1968)
- Daws68b P. H. Dawson, N. R. Whetten,
Ion storage in three dimensional, rotationally symmetric, quadrupole fields. II. A sensitive mass spectrometer, J. Vacuum Sci. Technol. 5, 11 (1968)
- Daws69a P. H. Dawson, N. R. Whetten,
Non-linear resonances in quadrupole mass spectrometers due to imperfect fields I. the quadrupole ion trap, J. Mass Spec. Ion Phys. 2, 45 (1969)
- Daws69b N. R. Whetten, P. H. Dawson,
Some causes of poor peak shapes in quadrupole field mass analyzers, J. Vacuum Sci. Technol. 6, 100 (1969)
- Daws76 P. H. Dawson,
Quadrupole mass spectrometry, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam 1976
- Daws84a P. H. Dawson, Y. Bingqi,
The second stability region of the quadrupole mass filter. I. ion optical properties, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 56, 25 (1984)
- Daws84b P. H. Dawson, Y. Bingqi,
The second stability region of the quadrupole mass filter. II. experimental results, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 56, 41 (1984)
- Dehm67 H. G. Dehmelt,
Radiofrequency spectroscopy of stored ions, I: Storage, Adv. Atom. Mol. Phys. 3, 53 (1967)
- Dehm87 R. S. van Dyck, jr., P. B. Schwinberg, H. G. Dehmelt,
New high precision comparison of electron and positron g factors, Phys. Rev. Lett. 59, 26 (1987)
- Dens94 Hans O. Denschlag,
Chemie für Physiker I, Skript zur Vorlesung WS 1994/95, Mainz WS 1991/92
- Dick53 R.H. Dicke,
The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines, Phys. Rev. 89, 472 (1953)

- Died87 F. Diedrich, E. Peik, J. H. Chen, W. Quint, H. Walther,
Observation of a phase transition of stored laser-cooled ions, Phys. Rev. Lett. 59, 2931 (1987)
- Died89 F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland,
Laser cooling to the zero-point energy of motion, Phys. Rev. Lett. 62, 403 (1989)
- Drak05 A. Drakoudis,
Systematische Untersuchung von Instabilitäten an lasergeköhlten $^{40}\text{Ca}^+$ -Ionen in einer linearen Paulfalle, Dissertation, Mainz 2005
- Drak99 A. Drakoudis,
Anregung von Barium-Ionen in einer Paul-Falle mittels eines frequenzverdoppelten MOPA- Lasersystems, Diplomarbeit, Mainz 1999
- Dree64 J. Drees, W. Paul,
Beschleunigung von Elektronen in einem Plasmabetatron, Z. Physik 180, 340 (1964)
- Drew04 M. Drewsen, A. Mortensen, J. Lindballe, K. Molhave, N. Kjaergaard,
Dynamically excited single-component ion coulomb crystals in linear Paul traps, Nucl. Instr. and Methods in Phys. Research A 532, 237 (2004)
- Dris90 C. F. Driscoll, K. S. Fine,
Experiments on vortex dynamics in pure electron plasmas, Phys. Fluids B2, 1359 (1990)
- Dyck95 D. L. Farnham, R. S. van Dyck, jr., P. B. Schwinberg,
Determination of the electron's atomic mass and the proton/electron mass ratio via Penning trap mass spectroscopy, Phys. Rev. Lett. 75, 3598 (1995)
- Dzub01 V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, J. S. M. Ginges,
Calculations of parity-nonconserving s-d amplitudes in Cs, Fr, Ba^+ and Ra^+ , Phys. Rev. A 63, 062101 (2001)
- Dzub06 V. A. Dzuba, J. S. M. Ginges,
Calculations of energy levels and lifetimes of low-lying states of barium and radium, Phys. Rev. A 73, 032503 (2006)
- Eade93 D. M. Eades, J. V. Johnson, R. A. Yost,
Nonlinear resonance effects during ion storage in a quadrupole ion trap, J. Am. Soc. Mass Spectrom. 4, 917 (1993)
- Ferr04 R. Ferrer Garcia,
Setup of experiments on long lifetime states of ions, Diplomarbeit, Mainz 2004
- Fink90 T. Fink,
Messungen zur Photodissoziation am H_2^+ -Molekülion, Diplomarbeit, Mainz 1990
- Fire96 R. B. Firestone,
Table of isotopes, Vol II, 8th edition, John Wiley & Sons, Inc. New York 1996
- Fisc59 E. Fischer,
Die dreidimensionale Stabilisierung von Ladungsträgern in einem Vierpolfeld, Z. Physik 156, 1 (1959)
- Forb66 N. Forbat,
Analytische Mechanik der Schwingungen, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1966
- Fort93 E. N. Fortson,
Possibility of measuring parity nonconservation with a single trapped atomic ion, Phys. Rev. Lett. 70, 2383 (1993)
- Fran91 J. Franzen,
Simulation study of an ion cage with superimposed multipole fields, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 106, 63 (1991)
- Fran93 J. Franzen,
The non-linear ion trap, Part 4. Mass selective instability scan with multipole superposition, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 125, 165 (1993)
- Fran94 J. Franzen,
The non-linear ion trap, Part 5. nature of non-linear resonances and resonant ion ejection, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 130, 15 (1994)
- Gabo81 M. N. Gaboriaud, M. Desaintfuscien, F. G. Major,
Absolute measurement of the total number of ions stored in an RF quadrupole trap, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 41, 109 (1981)
- Gabr02 G. Gabrielse, N. S. Bowden, P. Oxley, A. Speck, C. H. Storry, J. N. Tan, M. Wessels, D. Grzonka, W. Oelert, G. Schepers, T. Sefzick, J. Walz, H. Pittner, T. W. Hänsch, E. A. Hessels,
Background-free observation of cold antihydrogen with field-ionisation analysis of its states, Phys. Rev. Lett. 89, 213401-1 (2002)
- Gabr06 B. Odom, D. Hanneke, B. D'Urso, G. Gabrielse,
New measurement of the electron magnetic moment using a one-electron quantum cyclotron, Phys. Rev. Lett. 97, 030801 (2006)
- Gall67 A. Gallagher,
Oscillator strength of Ca II, Sr II and Ba II, Phys. Rev. 157, 24 (1967)
- Geet98 K. P. Geetha, A. D. Singh, B. P. Das, C. S. Unnikrishnan,
Nuclear spin-dependent parity nonconserving transitions in Ba^+ and Ra^+ , Phys. Rev. A 58, R16 (1998)
- Gerz87 C. Gerz, T. Hilberath, G. Werth,
Lifetime of the $4D_{3/2}$ and $4D_{5/2}$ metastable states in Sr II, Z. Phys. D 5, 97 (1987)

- Ghos95 P. K. Ghosh,
Ion Traps, Oxford University Press 1995
- Gmel28 O. Erbacher,
Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie Nr 31, Radium und Isotope, 8. Auflage, Verlag Chemie GmbH, Berlin 1928
- Gmel36 *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Stickstoff, System –Nr. 4*, 8. Auflage, Berlin 1936
- Gmel58 *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Sauerstoff, System –Nr. 3*, 8. Auflage, Heidelberg 1958
- Good53 M. L. Good,
Univ. California Rad. Lab. Report, UCRL-4146, Berkeley, CA, 1953
- Gudj93 T. Gudjons,
Optische Spektroskopie an elektrodynamisch gespeicherten $^{40}\text{Ca}^{+}$ -Ionen, Diplomarbeit, Mainz 1993
- Gudj96 T. Gudjons, B. Hilbert, P. Seibert, G. Werth,
Precise lifetime determination of the metastable $3d^2D_{5/2}$ level in Ca^{+} by "electron shelving", Europhys. Lett. 33, 595 (1996)
- Gudj96b T. E. Gudjons,
Laserpräparierte 40Ca^{+} Ionen in einer Paul-Falle für Präzisionsspektroskopie: Nicht lineare Dynamik, Laserkühlen und 'electron shelving', Dissertation, Mainz 1996
- Guid91 F. Guidugli, P. Traldi,
A phenomenological description of a black hole for collisionally induced decomposition products in ion trap mass spectrometry, Rapid Comm. Mass Spectrom. 5, 343 (1991)
- Guid92 F. Guidugli, P. Traldi, A. M. Franklin, M. L. Langford, J. Murell, J. F. J. Todd,
Further thoughts on the occurrence of "black holes" in ion trap mass spectrometry, Rapid Comm. Mass Spectrom. 6, 229 (1992)
- Häff00 H. Häffner, T. Beier, N. Hermanspahn, H.-J. Kluge, W. Quint, S. Stahl, J. Verdu, G. Werth,
High accuracy measurement of the magnetic moment anomaly of the electron bound in hydrogenlike carbon, Phys. Rev. Lett. 85, 5308 (2000)
- Häff05 H. Häffner, W. Hänsel, C. F. Roos, J. Benhelm, D. Chek-al-Kar, M. Chwalla, T. Körber, U. D. Rapol, M. Riebe, P. O. Schmidt, C. Becher, O. Gühne, W. Dür, R. Blatt,
Scalable multiparticle entanglement of trapped ions, Nature 438 (7068), 643 (2005)
- Hage57 R. Hagedorn,
Stability and Amplitude Ranges of two-dimensional non-linear Oscillations with periodic Hamiltonian, CERN 57-1, (1957)
- Hage78 P. Hagedorn,
Nichtlineare Schwingungen, Akademische Verlagsgesellschaft, Wiesbaden 1978
- Hama98 *Hamamatsu Photomultiplier Tubes R464, R585 Datasheet*, Hamamatsu Photonics KK, Electron Tube Center, Japan 1998
- Hase95 T. Hasegawa, K. Uehara,
Dynamics of a single particle in a Paul trap in the presence of the damping force, Appl. Phys. B 61, 159 (1995)
- Henn94 C. Hennig,
Alignment bei der Photodissoziation von H_2^{+} , Diplomarbeit, Mainz 1994
- Herm86 A. Hermanni,
Untersuchungen zur stoßinduzierten Relaxation der metastabilen 5D-Zustände von gespeicherten Ba^{+} -Ionen, Dissertation, Mainz 1986
- Herm89 A. Hermanni, G. Werth,
Collisional de-excitation of the metastable D-states of Ba^{+} by He, Ne, N_2 and H_2 , Z. Phys. D, 11, 301 (1989)
- Hoef97 M. Hofer,
Einfluß von Zusatzfrequenzen auf das Speicherverhalten in einer anharmonischen Paul-Falle, Diplomarbeit, Mainz 1997
- Holz97 M. Holzki,
Untersuchung von gekoppelten nichtlinearen Oszillationen einer Ionenwolke in Ionenfallen, Diplomarbeit, Mainz 1997
- Hubr91 M. Hubrich, H. Knab, K. H. Knöll, G. Werth,
Bound and excited state g-factors of Ba^{+} , Z. Phys. D 18, 113 (1991)
- Iffl76 R. Iffländer,
Laserspektroskopische Untersuchungen an elektrodynamisch gespeicherten Bariumionen, Diplomarbeit, Mainz 1976
- Iffl77 R. Iffländer, G. Werth,
Optical detection of ions confined in a rf quadrupole trap, Metrologia 13, 167 (1977)
- Inter29 *International critical Tables of numerical Data, Physics, Chemistry and Technology, Vol VI*
New York and London 1929
- Jani85 G. Janik, W. Nagourney, N. Yu, H. Dehmelt,
Doppler-Free Optical Spectroscopy on the Ba^{+} Mono-Ion Oscillator, J. Opt. Soc. Am. B2, 1251 (1985)
- Jieb93 W. Jiebing, Z. Xiwen,
Phase space analysis of the ion cloud in the second stability region of the Paul trap, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 124, 89 (1993)

- Jung87 K. Jungmann, J. Hoffnagle, R. G. DeVoe, R. G. Brewer,
Collective oscillations of stored ions, Phys. Rev. A 36, 3451 (1987)
- Karl99 H. Karlsson, U. Litzen,
Revised Ba I and Ba II wavelengths and energy levels derived by fourier transform spectroscopy, Phys. Scr. 60, 321 (1999)
- Kell03 A. Kellerbauer,
Recent improvements of ISOLTRAP, absolute mass measurements of exotic nuclides at 10^{-8} precision, Int. J. Mass Spec. 229, 107 (2003)
- Klein95 S. Kleineidam,
Nichtlineare Resonanzen bei der Speicherung von H_2^+ -Ionen in der Paul-Falle, Diplomarbeit, Mainz 1995
- Knab87 H. Knab, M. Schupp, G. Werth,
Precision spectroscopy on trapped radioactive ions: ground-state hyperfine splittings of $^{133}Ba^+$ and $^{131}Ba^+$, Europhys. Lett. 4, 1361 (1987)
- Knab90 H. Knab,
Präzisionsmessungen im Grundzustand von Ba II: Hyperfeinstrukturaufspaltung im Isotop $A = 131$ und elektronischer g-Faktor im Isotopengemisch, Dissertation, Mainz 1990
- Knab92 C. Knab-Bernardini,
Messung der Lebensdauer des metastabilen $D_{3/2}$ -Niveaus von gespeicherten Barium-Ionen, Diplomarbeit, Mainz 1992
- KnBe92 C. Knab-Bernardini, H. Knab, F. Vedel, G. Werth,
Experimental lifetime of the metastable $5D_{3/2}$ state in Ba^+ , Z. Phys. D 24, 339 (1992)
- Kneu95 F. K. Kneubühl,
Lineare und nichtlineare Schwingungen und Wellen, Teubner Verlag, Stuttgart 1995
- Knig79 R. D. Knight, M. H. Prior,
Laser scanning measurement of the density distribution of confined $^6Li^+$ ions, J. Appl. Phys. 50, 3044 (1979)
- Knob87 H. Knobloch,
Untersuchung der Photodissoziation von Wasserstoffmolekülonen H_2^+ , Diplomarbeit, Mainz 1987
- Knöl96 K. H. Knöll, G. Marx, K. Hübner, F. Schweikert, S. Stahl, Ch. Weber, G. Werth,
Experimental g_J factor in the metastable $5D_{3/2}$ level of Ba^+ , Phys. Rev. A, 54 (2), 1199 (1996)
- Koer03 T. W. Koerber, M. Schacht, W. Nagourney, E. N. Fortson,
Radio frequency spectroscopy with a trapped Ba^+ ion: recent progress and prospects for measuring parity violation, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 36, 637 (2003)
- Koto43 G. Kotowski,
Lösungen der inhomogenen Mathieuschen Differentialgleichung mit periodischer Störfunktion beliebiger Frequenz (mit besonderer Berücksichtigung der Resonanzlösungen), Z. angew. Math. Mech. Bd. 23 Nr. 4, 213 (1943)
- Krau04 S. Krause,
Ein Experiment zur präzisen Messung von g-Faktoren an Blei in einer Penningfalle, Diplomarbeit, Mainz 2004
- Land76 L. D. Landau, E. M. Lifschitz,
Lehrbuch der theoretischen Physik, Band I: Mechanik, 9., bearbeitete Auflage, Akademie-Verlag, Berlin 1976
- Leib05 D. Leibfried, E. Knill, S. Seidelin, J. Britton, R. B. Blakestad, J. Chiaverini, D. B. Hurne, W. M. Itano, D. J. Jost, C. Langer, R. Ozeri, R. Reichle, D. J. Wineland,
Creation of a six-atom 'Schrödinger cat' state, Nature 438, 639 (2005)
- Made90 A. A. Madej, J. D. Sankey,
Quantum jumps and the single trapped Barium ion: determination of collisional quenching rates for the $5d^2D_{5/2}$ level, Phys. Rev. A 41, 2621 (1990)
- Maim60 T. H. Maiman,
Optical and microwave-optical experiments in ruby, Phys. Rev. Lett. 4, 564 (1960)
- Majo05 F. G. Major, V. N. Gheorghe, G. Werth,
Charged particle traps: physics and techniques of charged particle field confinement, Springer Verlag, Heidelberg 2005
- Majo68 F. G. Major, H. G. Dehmelt,
Exchange-collision technique for the rf spectroscopy of stored ions, Phys. Rev. 170, 91 (1968)
- Majo71 F. G. Major, J. P. Schermann,
Neutralization of Space Charge in a Quadrupole RF Ion Trap, Bull. Am. Phys. Soc. 16, 838 (1971)
- Malm88 J. H. Malmberg, C. F. Driscoll, B. Beck, D. L. Eggleston, J. Fajans, K. Fine, X.-P. Huang, A. W. Hyatt,
Experiments with pure electron plasmas, In: *Non-neutral Plasma Physics*, editors C. W. Roberson, C. F. Driscoll, New York, American Institute of Physics, 28 (1988)
- Marc89 R. E. March, R. J. Hughes,
Quadrupole storage mass spectrometry, John Wiley & Sons, Inc. (1989)
- Marc95 R. E. March, J. F. J. Todd,
Practical aspects of ion trap mass spectrometry, Volume I, CRC Press, New York 1995

- Marx94 G. H. Marx,
Präzisionsmessung der Grundzustands-Hyperfeinstruktur am instabilen $^{150}\text{Eu}^+$, Diplomarbeit, Mainz 1994
- Mass90 T. B. Massalski,
Binary alloy phase diagrams, ASM International, Second Edition Vol 1, 1990
- McLa45 N. W. McLachlan,
Computation of solution of Mathieu's equation, P. M. 36, 403 (1945)
- McLa51 McLachlan,
Theory and application of Mathieu functions, Reprint of the corrected first edition from 1947, Oxford University Press, London 1951
- Meis88 C. Meis, M. Desainfiscien, M. Jardino,
Analytical calculation of the space charge potential and the temperature of stored ions in an rf quadrupole trap, Appl. Phys. B 45, 59 (1988)
- Meix54 J. Meixner, F. W. Schäfke,
Mathieusche Funktionen und Sphäroidfunktionen,
Die Grundlehren der mathematischen Wissenschaften in Einzeldarstellungen Band LXXI, Springer Verlag 1954
- Moor71 C. E. Moore,
Atomic energy levels as derived from the analyses of optical spectra, Vol. III,
National bureau of standards, U.S. government printing office, Washington D.C. 1971, reprint of the 1958 edition
- Morg94 R. Morgenstern,
Dynamik gespeicherter Protonen und H_2^+ -Ionen im HF-Käfig, Diplomarbeit, Mainz 1994
- Morr91 K. L. Morrand, S. A. Lammert, R. G. Cooks,
A phenomenological description of a black hole for collisionally induced decomposition products in ion trap mass spectrometry.
Comments, Rapid Comm. Mass Spectrom. 5, 491 (1991)
- Näge99 H. C. Nägerl, D. Leibfried, H. Rohde, G. Thalhammer, J. Eschner, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt,
Laser addressing of individual ions in a linear ion trap, Phys. Rev. A 60, 145 (1999)
- Nago86 W. Nagourney, J. Sandberg, H. Dehmelt,
Shelved electron amplifier: observation of quantum jumps, Phys. Rev. Lett. 56, 9 (1986)
- Nass01 M. Nasse, C. Foot,
Influence of the background pressure on the stability region of a paul trap, Eur. J. Phys. 22, 563 (2001)
- Neuh80 W. Neuhauser, M. Hohenstadt, P. Toschek, H. Dehmelt,
Localized visible Ba^+ mono-ion oscillator, Phys. Rev. A 22, 1137 (1980)
- Ohle92 M. F. A. Ohlert,
Aufbau einer bolometrischen Nachweiselektronik zum Widerstandskühlen gespeicherter Ionen, Diplomarbeit, Mainz 1992
- Oska06 W. H. Oskay, S. A. Diddams, E. A. Donley, T. M. Fortier, T. P. Heavner, L. Hollberg, W. M. Itano, S. R. Jefferts, M. J. Delaney, K. Kim,
F. Levi, T. E. Parker, J. C. Bergquist,
Single atom optical clock with high accuracy, Phys. Rev. Lett. 97, 020801 (2006)
- Pal09 R. Pal, D. Jiang, M. S. Safronova, U. I. Safronova,
Calculation of parity-nonconserving amplitude and other properties of Ra^+ , Phys. Rev. A 79, 062505 (2009)
- Paul53 W. Paul, H. Steinwedel,
Ein neues Massenspektrometer ohne Magnetfeld, Z. Naturforschung 8a, (1953) 448
- Paul55 W. Paul, M. Raether,
Das elektrische Massenfilter, Z. Physik 140, 262 (1955)
- Paul56 W. Paul, H. Steinwedel, Deutsches Patent 944 900, (1956), U.S.-Patent 2 939 952, (1960)
- Paul58a W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer,
Ein Ionenkäfig, Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein-Westfalen Nr. 415, Westdeutscher Verlag, Köln und Opladen (1958), Vorgetragen auf der Physikertagung in Aachen 1955
- Paul58b W. Paul, H. P. Reinhard, U. von Zahn,
Das elektrische Massenfilter als Massenspektrometer und Isotopentrenner, Z. Physik 152, 143 (1958)
- Penn36 F. M. Penning,
Die Glimmentladung bei niedrigem Druck zwischen koaxialen Zylindern in einem axialen Magnetfeld, Physica 3, 873 (1936)
- Pier49 J. R. Pierce,
Theorie and design of electron beams, D. van Nostrand, New York (1949)
- Pinn95 E. H. Pinnington, R. W. Berends, M. Lumsden,
Studies of laser-induced fluorescence in fast beams of Sr^+ and Ba^+ ions, J. Phys. B 28, 2095 (1995)
- Port01 J. V. Porto,
Series solution for the image charge fields in arbitrary cylindrically symmetric penning traps, Phys. Rev. A 64, 023403 (2001)
- Post53 R. F. Post, L. Henrich,
Univ. California Rad. Lab. Report (S. Shewchuck), UCRL-2209, Berkeley, CA, 1953

- Pres88 J. D. Prestage,
OSTDS Advanced Systems Review, JPL Internal Report, DSN RTOP 310-10-62, 14 – 15 June 1988, p. 64
Der Verweis findet sich in:
J. D. Prestage, R. L. Tjoelker, G. J. Dick, L. Maleki,
Ultra-stable Hg^+ trapped ion frequency standard, Journal of Modern Optics 39, 221 (1992)
- Pres89 J. D. Prestage, G. J. Dick, L. Maleki,
New ion trap for frequency standard applications, J. Appl. Phys. 66, 1013, (1989)
- Rafa00 R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland, J. C. Bergquist,
Sub-decahertz ultraviolet spectroscopy of $^{199}Hg^+$, Phys. Rev. Lett. 85, 2462 (2000)
- Rasm33 E. Rasmussen,
Serien im Funkenspektrum des Radiums. Ra II, Z. Phys. 86, 24 (1933)
- Rasm33a E. Rasmussen,
Über das Funkenspektrum des Bariums, Z. Phys. 83, 404 (1933)
- Rasm34 E. Rasmussen,
Das Bogenspektrum des Radiums, Z. Phys. 87, 607 (1934)
- Razv98 M. A. N. Razvi, X. Z. Chu, R. Alheit, G. Werth, R. Blümel,
Fractional frequency collective parametric resonances of an ion cloud in a Paul trap, Rapid Comm. Phys. Rev. A 58, R34 (1998)
- Repr94 *Reprints on pure electron plasmas*, Volumes 3 and 4, 1988-1994,
University of California, San Diego, La Jolla, California
- Rett65 G. Rettinghaus,
Nachweis niedriger Partialdrücke mit dem Ionenkäfig, Doktorarbeit, Bonn 1965
- Rett67 G. Rettinghaus,
Nachweis niedriger Partialdrücke mit dem Ionenkäfig, Z. Angew. Phys. 22, 321 (1967)
- Ritt88 A. Ritter,
Untersuchungen zum Nachweis und zur Spektroskopie elektrodynamisch gespeicherter Europiumionen, Diplomarbeit, Mainz 1988
- Rose08 T. Rosenband, D. B. Hume, P. O. Schmidt, C. W. Chow, A. Brusch, L. Lorini, W. H. Oskay, R. E. Drullinger, T. M. Fortier, J. E. Stalnaker, S. A. Diddams, W. C. Swann, N. R. Newbury, W. M. Itano, D. J. Wineland, J. C. Bergquist,
Frequency Ratio of Al^+ and Hg^+ Single-Ion Optical Clocks; Metrology at the 17th Decimal Place, Science Vol. 319, 1808 (2008)
- Russ34 H. N. Russel,
The Spectrum and Ionization Potential of Radium, Phys. Rev. 46, 989 (1934)
- Ruth92 T. Ruths,
Ionnachweis durch gepulste Extraktion aus einem Paul-Käfig, Diplomarbeit, Mainz 1992
- Sack00 C.A. Sackett, D. Kielpinski, B.E. King, C. Langer, V. Meyer, C.J. Myatt, M. Rowe, Q.A. Turchette, W.M. Itano, D.J. Wineland, and C. Monroe,
Experimental entanglement of four particles, Nature 404, 256 (2000)
- Saho07 B. K. Sahoo, B. P. Das, R. K. Chaudhuri, D. Mukherjee, R. G. E. Timmermans, K. Jungmann,
Investigations of Ra^+ properties to test possibilities for new optical-frequency standards, Phys. Rev. A 76, 040504R (2007)
- Scha79 H. Schaaf,
Laserspektroskopische Bestimmung der Orts- und Energieverteilung von elektrodynamisch gespeicherten Ba^+ -Ionen, Diplomarbeit, Mainz 1979
- Scha81 H. Schaaf, U. Schmeling, G. Werth,
Trapped ion density distribution in the presence of He-buffer gas, Appl. Phys. 25, 249 (1981)
- Schä99 B. Schäfer,
Untersuchung gebrochener rationaler parametrischer Bewegungsresonanzen in einer Paul-Falle, Diplomarbeit, Mainz 1999
- Sche91 K. Scheler,
Beobachtung einer Zeeman-Resonanz gespeicherter H_2^+ -Molekülionen, Diplomarbeit, Mainz 1991
- Schm75 G. Schmidt,
Parametererregte Schwingungen, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1975
- Schm80 U. Schmeling,
Speicherung und Dichteverteilung von Bariumionen unter dem Einfluß eines Puffergases, Diplomarbeit, Mainz 1980
- Schn79 R. Schneider, G. Werth,
Ion storage technique for very long living states: the decay rate of the $5D_{3/2}$ state of Ba II, Z. Physik A 293, 103 (1979)
- Schn79a R. Schneider,
Eine Methode zur Messung der Lebensdauer extrem langlebiger metastabiler Zustände von Ionen, am Beispiel des $5D_{3/2}$ -Zustands von Ba II, Diplomarbeit, Mainz 1979
- Schu87 M. Schupp,
Präzisionsbestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung im Grundzustand des radioaktiven $^{133}Ba^+$, Diplomarbeit, Mainz 1987

- Schw75 C. Schwebel, P. A. Möller, P. T. Manh,
Formation et confinement d'ions multicharges dans un champ quadrupolaire a haute fréquence,
Revue de Physique Appliquée T. 10, 227 (1975)
- Scie06 N. D. Scielzo, J. R. Guest, E. C. Schulte, I. Ahmad, K. Bailey, D. L. Bowers, R. J. Holt, Z.-T. Lu, T. P. O'Connor, D. H. Potterveld,
Measurement of the lifetime of the lowest 3P_1 state of neutral Ba and Ra, Phys. Rev. A 73, 010501(R) (2006)
- See174 W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel,
Nuklidkarte, 4. Auflage, Kernforschungszentrum Karlsruhe 1974
- Seib00 P. Seibert,
Untersuchungen zur Speicherung, Laserkühlung und Kristallisation von Ca^+ -Ionen in einer linearen Paulfalle, Dissertation, Mainz 2000
- Sevu00 S. Sevugarajan, A. G. Menon,
Frequency perturbation in nonlinear paul traps: a simulation study of the effect of geometric aberration, space charge, dipolar excitation and damping on ion axial secular frequency, Int. J. Mass Spectrom. 197, 263 (2000)
- Siem88 I. Siemers, R. Blatt, Th. Sauter, W. Neuhauser,
Dynamics of ion clouds in paul traps, Phys. Rev. A 38, 5121 (1988)
- Söll03 M. Söllner,
Frequenzstabilisierung von Diodenlasern zur Spektroskopie an lasergeköhlten Ca^+ -Ionen in einer linearen Paulfalle,
Diplomarbeit, Mainz 2003
- Stah94 S. Stahl,
Elektronischer und bolometrischer Ionennachweis in einer Penningfalle, Diplomarbeit, Mainz 1994
- Stah98 S. Stahl,
Aufbau eines Experimentes zur Bestimmung elektrischer g-Faktoren einzelner wasserstoffähnlicher Ionen, Dissertation, Mainz 1998
- Stic06 D. Stick, W. K. Hensinger, S. Olmschenk, M. J. Madsen, K. Schwab, C. Monroe,
Ion trap in a semiconductor chip, Nature Physics, Vol 2, 36 (2006)
- Sugi90 Sugiyama, J. Yoda,
Anharmonic oscillation of ions trapped in a RF trap with light buffergas, Appl. Phys. B 51, 146 (1990)
- Syka92 J. E. P. Syka, *Commercialization of the Quadrupole Ion Trap*, in: [Marc95]
- Todd80a J. F. J. Todd, R. M. Waldren, R. F. Bonner,
The quadrupole ion store (QUISTOR) part VIII. The theoretical estimation of ion kinetic energies: a comparative survey of the field,
Int. J. Mass. Spectrom. Ion Phys. 34, 17 (1980)
- Todd80b J. F. J. Todd, R. M. Waldren, R. E. Mather,
The quadrupole ion store (QUISTOR) part IX. Space-charge and ion stability: a theoretical background and experimental results,
Int. J. Mass. Spectrom. Ion Phys. 34, 325 (1980)
- Todd80c J. F. J. Todd, R. M. Waldren, D. A. Freer, R. B. Turner,
The quadrupole ion store (QUISTOR) part X. Space-charge and ion stability: b. on the theoretical distribution and density of stored charge in rf quadrupole fields,
Int. J. Mass. Spectrom. Ion Phys. 35, 107 (1980)
- Tomm03 G. Tommaseo, T. Pfeil, G. Revalde, G. Werth, P. Indelicato, J. P. Desclaux
Precise gJ factor of the ground state of Ca^+ , Eur. Phys. J. D 25, 113 (2003)
- Tomm04 G. Tommaseo, P. Paasche, C. Angelescu, G. Werth,
Subharmonic excitation of the eigenmodes of charged particles in a Penning trap, Eur. Phys. J. D 28, 39 (2004)
- Tomm97 G. Tommaseo,
*Versuche zur Signalverbesserung bei g-Faktoren-Messungen an gespeicherten Barium-Ionen in einer Penningfalle
Frequenzverdopplung eines MOPA-Lasersystems und Anwendung des Puffergaskühlens mit Seitenbandanregung*,
Diplomarbeit, Mainz 1997
- VanD89 R. S. Van Dyck jr., F. L. Moore, D. L. Farnham, P. B. Schwinberg,
Number dependency in the compensated penning trap, Phys. Rev. A 40, 6308 (1989)
- Vede83 F. Vedel, J. Andre, M. Vedel, G. Brincourt,
Computed spatial and energy statistical properties of stored ions cooled by a buffer gas, Phys. Rev. A 27, 2321 (1983)
- Vede84 F. Vedel, J. Andre,
Influence of space charge on the computed statistical properties of stored ions cooled by a buffer gas in a quadrupole rf trap,
Phys. Rev. A 29, 2098 (1984)
- Vede85 F. Vedel, J. Andre,
Computation for ions stored in a quadrupole rf trap cooled by a buffer gas. Influence of working conditions on space-charge effects,
Int. J. Mass. Spectrom. Ion Proc. 65, 1 (1985)
- Vede90a F. Vedel, M. Vedel, R. E. March,
New schemes for resonant ejection in r.f. quadrupolar ion traps, Int. J. Mass. Spectrom. Ion Proc. 99, 125 (1990)
- Vede90b F. Vedel, M. Vedel,
Nonlinear effects in the detection of stored ions, Phys. Rev. A 41, 2348 (1990)

- Verd04 J. Verdu, S. Djekic, S. Stahl, T. Valenzuela, M. Vogel, G. Werth, T. Beier, H.-J. Kluge, W. Quint,
Electronic g-factor of hydrogenlike oxygen $^{16}\text{O}^{7+}$, Phys. Rev. Lett. 92, 093002-1 (2004)
- Vers10 O. O. Versolato, G. S. Giri, L. W. Wansbeek, J. E. van den Berg, D. J. van der Hoek, K. Jungmann, W. L. Kruithof, C. J. G. Onderwater, B. K. Sahoo, B. Santra, P. D. Shidling, R. G. E. Timmermans, L. Willmann, H. W. Wilschut,
Laser spectroscopy of trapped short-lived Ra^+ ions, Phys. Rev. A 82, 010501 (R) (2010)
- Wald79 R. M. Waldren, J. F. J. Todd,
The quadrupole ion storage (QUISTOR) part IV. "total pressure" mode operation with phase-synchronised ion ejection, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 29, 337 (1979)
- Wang92 Y. Wang, J. Franzen,
The non-linear resonance QUISTOR, Part 1. potential distribution in hyperboloidal QUISTORs, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 112, 167 (1992)
- Wang93a Y. Wang, K. P. Wanczek,
Generation of an exact three-dimensional quadrupole electric field and superposition of a homogeneous electric field within a common closed boundary with application to mass spectrometry, J. Chem. Phys. 98, 2647 (1993)
- Wang93b Y. Wang, J. Franzen, K. P. Wanczek,
The non-linear resonance ion trap, Part 2. a general theoretical analysis, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 124, 125 (1993)
- Wang93c Y. Wang,
Non-linear resonance conditions and their relationships to higher multipole fields in ion traps and quadrupole mass filters, Rapid Comm. Mass Spectrom. 7, 920 (1993)
- Wang94 Y. Wang, J. Franzen,
The non-linear resonance ion trap, Part 3. multipole components in three types of practical ion trap, Int. J. Mass Spectrom. Ion Proc. 132, 155 (1994)
- Wein90 H. Weinreuter,
Selective Photodissoziation als Methode zur Messung der Hyperfeinstrukturaufspaltung des H_2^+ -Moleküliions, Diplomarbeit, Mainz 1990
- Wend84 K. Wendt, S. A. Ahmad, F. Buchinger, A. C. Mueller, R. Neugart, E.-W. Otten,
Relativistic J-dependence of the isotope shift in the 6s-6p doublet of Ba II, Cern-EP/84-103 (1984) , Z. Phys. A 318, 125 (1984)
- Wend87 K. Wendt, S. A. Ahmad, W. Klempt, R. Neugart, E. W. Otten, H. H. Stroke,
On the hyperfine structure and the isotope shift of Radium, Z. Phys. D 4, 227 (1987)
- Wert07 G. Werth,
private Mitteilung, Mainz 2007
- Wert83 G. Werth,
Trapped ion spectroscopy, in: H. J. Beyer, H. Kleinpoppen, *Progress in Atomic Spectroscopy, Part C*, Plenum Press (1983)
- Wine75a D. Wineland, H. Dehmelt,
Laser fluorescence spectroscopy on Tl^+ mono-ion oscillator III (side band cooling), Bull. Am. Phys. Soc. 20, 637 (1975)
- Wine75b D. J. Wineland, H. G. Dehmelt,
Principles of the stored ion calorimeter, J. Appl. Phys. 46, 919 (1975)
- Wine78 D. J. Wineland, R. E. Drullinger, F. L. Walls,
Radiation-pressure cooling of bound resonant absorbers, Phys. Rev. Lett. 40, 1639 (1978)
- Wint91 H. Winter, H. W. Ortjohann,
Simple demonstration of storing macroscopic particles in a "Paul trap", Am. J. Phys. Vol. 59, No. 9, 807 (1991)
- Wuer59 R. F. Wuerker, H. Shelton, R. V. Langmuir,
Electrodynamic containment of charged particles, J. Appl. Phys. 30, 342 (1959) und
R. F. Wuerker, H. M. Goldenberg, R. V. Langmuir,
Electrodynamic containment of charged particles by three-phase voltages, J. Appl. Phys. 30, 441 (1959)
- Wutz88 M. Wutz, H. Adam, W. Walcher,
Theorie und Praxis der Vakuumtechnik, 4. Auflage, Vieweg Braunschweig 1988
- Yoda92 J. Yoda, K. Sugiyama,
Resonance of the macromotion of ions trapped in a rf trap by the subharmonic oscillation, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 31, 3744 (1992)
- Yost92 D. M. Eades, R. A. Yost,
Black canyons for ions stored in an ion trap mass spectrometer, Rapid Comm. Mass Spectrom. 6, 573 (1992)
- Yu97 N. Yu, W. Nagourney, H. Dehmelt,
Radiative lifetime measurement of the Ba^+ metastable $D_{3/2}$ state, Phys. Rev. Lett. 78, 4898 (1997)
- Zahn63 U. von Zahn,
Monopole spectrometer, a new electric field mass spectrometer, Rev. Sci. Instrum. 34, 1 (1963)

