

INAUGURAL – DISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der Naturwissenschaftlich-Mathematischen Gesamtfakultät
der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg



TWO-PHOTON LITHIUM SPECTROSCOPY

Messung der Ladungsradien der
radioaktiven Lithium-Isotope ^8Li und ^9Li

vorgelegt von
Guido Ewald
aus Mainz

Tag der Disputation: 23. Juni 2005

Messung der Ladungsradien der
radioaktiven Lithium-Isotope ^8Li und ^9Li

Gutachter:

Prof. Dr. H.-Jürgen Kluge

Prof. Dr. Markus Oberthaler

Messung der Ladungsradien der radioaktiven Lithium-Isotope ^8Li und ^9Li

Die Messung der Isotopieverschiebung atomarer Übergänge ist der einzige kernmodellunabhängige Zugang zur Bestimmung der Kernladungsradien kurzlebiger Isotope. Bis heute war dies jedoch auf Isotope mit der Ladungszahl $Z \geq 10$ beschränkt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuartiges Verfahren entwickelt, um die Ladungsradien kurzlebiger Lithium-Isotope zu bestimmen. Es basiert auf der präzisen Messung eines atomaren Übergangs in Kombination mit einer kürzlich durchgeführten, sehr genauen theoretischen Berechnung des spezifischen Masseneffekts. Das Messverfahren erfüllt die hohen Anforderungen, die hinsichtlich Effizienz ($> 10^{-4}$) und Genauigkeit (< 200 kHz) gestellt werden, indem Doppler-freie Zweiphotonen-Spektroskopie des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs am thermischen Atomstrahl mit anschließender Resonanz-Ionisation und Nachweis durch ein Quadrupol-Massenspektrometer angewandt wird. Am Online-Massenseparator der GSI konnte die Isotopieverschiebung der Isotope ^6Li bis ^9Li mit einer Genauigkeit von besser als 180 kHz bestimmt werden. Die extrahierten Kernladungsradien nehmen von ^6Li bis ^9Li monoton ab. Dieses Verhalten lässt sich durch die starke $\alpha + d$ -Clusterung des ^6Li -Kerns erklären, die mit zunehmender Neutronenzahl abnimmt. Die Resultate werden mit den Vorhersagen verschiedener Kernmodelle verglichen und tragen so zu einem verbesserten Verständnis der Struktur dieser Kerne bei. Mit diesem Experiment konnte die Grundlage für die Bestimmung des Ladungsradius des Halokerns ^{11}Li gelegt werden.

Determination of the Charge Radii of the Radioactive Lithium Isotopes ^8Li und ^9Li

The measurement of the isotope shift of atomic transitions is the only model-independent access to determine nuclear charge radii of short-lived isotopes. Up to now, this was limited to isotopes with nuclear charge $Z \geq 10$. In this work, a novel method was developed to measure charge radii of short-lived lithium isotopes. It is based on an accurate measurement of an atomic transition combined with an accurate recently performed theoretical calculation of the specific mass shift. The experimental method meets the requested efficiency of $> 10^{-4}$ and the required accuracy of < 200 kHz by Doppler-free two-photon spectroscopy of the $2S \rightarrow 3S$ transitions in a thermal atomic beam followed by resonance ionization and detection by quadrupole mass spectrometry. The isotope shifts of the isotopes ^6Li to ^9Li were determined at the online mass separator at GSI with an accuracy better than 180 kHz. The extracted nuclear charge radii decrease monotonically. This can be explained by the strong $\alpha + d$ clustering of ^6Li , which diminishes with increasing number of neutrons. The results are compared to predictions of different nuclear models and improve the understanding of the structure of these nuclei. With this experiment, the foundation is laid to determine the charge radius of ^{11}Li .

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	13
2	Theoretische Grundlagen	17
2.1	Halokerne	17
2.2	Die Isotopieverschiebung von Li-Isotopen im $2\text{S} \rightarrow 3\text{S}$ -Übergang	20
2.2.1	Masseneffekt	21
2.2.2	Feldeffekt	22
2.2.3	Die Rechnungen von Gordon Drake et al. im 3-Elektronen-System Lithium	24
2.3	Hyperfeinstruktur der Lithium-Isotope mit einem s-Valenzelektron	27
3	Methode	31
3.1	Erzeugung der radioaktiven Lithium-Isotope	31
3.2	Doppler-freie Zweiphotonen-Spektroskopie am Lithium	32
3.3	Anregungsschema für die Lithium-Resonanz-Ionisations-Spektroskopie	35
4	Experimenteller Aufbau	37
4.1	Erzeugung eines thermischen Atomstrahls radioaktiver Lithium-Atome	39
4.2	Massenselektiver Nachweis der laserionisierten Lithiumionen	43
4.2.1	Ionisationsregion mit Ionenoptik	43
4.2.2	Das Quadrupol-Massenfilter	44
4.2.3	Der Ionennachweis	45
4.3	Lasersystem	46
4.3.1	Das Referenzlasersystem zur Frequenzmodulations- Sättigungsspektroskopie am Jod	46
4.3.2	Der Titan-Saphir-Laser und die Frequenz-Offset-Stabilisierung	50
4.3.3	Der optische Resonator	51
4.3.4	Stabilisierung des Farbstofflasers	59
4.3.5	Transport des Laserlichtes zum Massenseparator	60
4.4	Datenaufnahme	61
5	Offline-Testmessungen und Messung der stabilen Isotope	63
5.1	Stabilität der Jod-Referenz und der Frequenz-Offset-Stabilisierung	63
5.2	Testmessungen am Massenseparator	66
5.2.1	Freisetzungseffizienzen	66
5.2.2	Gesamteffizienz	66
5.2.3	Ionenstrahlabhängige Untergrundquellen	67
5.3	Linienprofile und Sättigungsverhalten	69

5.3.1	Linienprofil des Zweiphotonen-Übergangs	69
5.3.2	Linienprofil des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs	71
5.3.3	Sättigungsverhalten	73
5.4	Resonanzsignale und Einfluss systematischer Effekte	74
5.4.1	Resonanzspektren	74
5.4.2	Lichtverschiebung	76
5.5	Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur der stabilen Isotope	78
5.5.1	Isotopieverschiebung	78
5.5.2	Vergleich der Resultate	80
5.5.3	Hyperfeinstrukturaufspaltung	82
5.5.4	Absolute Übergangswellenlängen	83
5.5.5	Kleine Signalhöhen	84
6	Online-Messungen von Lithium-8 und -9	85
6.1	Produktionsraten und Nachweiseffizienz für Lithium-8 und -9	85
6.2	Besonderheit beim Nachweis der radioaktiven Isotope	86
6.3	Resonanzsignale und Einfluss systematischer Effekte	87
6.3.1	Spektren	87
6.3.2	Lichtverschiebung	87
6.4	Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur von Lithium-8 und -9	88
6.4.1	Isotopieverschiebung	88
6.4.2	Hyperfeinstrukturaufspaltung	91
6.5	Interpretation und Diskussion	92
7	Zusammenfassung und Ausblick	97
A	Schaltpläne	101
	Literaturverzeichnis	103
	Danksagung	109

Abbildungsverzeichnis

2.1	Massenradien von Lithium	17
2.2	Nuklidkarte mit bekannten Halokernen	18
2.3	Massenverteilung von Lithium-11	20
2.4	Hyperfeinstruktur Lithium	28
3.1	Linienprofil eines Zweiphotonen-Übergangs	33
3.2	Anregungsschema Lithium	36
4.1	Beschleunigeranlage der GSI	37
4.2	Experimenteller Aufbau des Experiments	38
4.3	Ionenquelle des GSI Online-Separators	40
4.4	Reichweite von ^{11}Li in Kohlenstoff	42
4.5	Ionisationsregion und Ionenoptik vor dem Quadrupol	44
4.6	Massenspektren von $^{6,7}\text{Li}$	45
4.7	Diodenlaser-Aufbau	47
4.8	Hyperfeinspektrum der Jod-Referenzlinie	50
4.9	Frequenz-Offset-Lock	51
4.10	Vakuumkammer	53
4.11	Aufbau zur Pound-Drever-Hall-Stabilisierung	55
4.12	Optischer Aufbau zur Pound-Drever-Hall-Stabilisierung	56
4.13	Messapparatur am Massenseparator	57
4.14	Photodiodensignal zur Leistungsmessung im Resonator	58
4.15	Large-Mode-Area-Faser und Modenprofil	60
5.1	Spektrum des Schwebungssignals zwischen Dioden- und Ti:Sa-Laser	64
5.2	Temperaturabhängigkeit der Jodlinie	65
5.3	Freisetzung von Lithium aus Kohlenstoff	67
5.4	Untergrundquellen beim Nachweis der Resonanz-Ionisation	68
5.5	Linienprofil des Zweiphotonen-Übergangs von ^7Li	70
5.6	Linienprofil des $2 P \rightarrow 3 D$ -Übergangs	71
5.7	Sättigungsverhalten der $2 S \rightarrow 3 S$ -Anregung	73
5.8	Sättigungsverhalten des $2 P \rightarrow 3 D$ -Übergangs	75
5.9	Spektren von Lithium-6 und -7	76
5.10	Lichtverschiebung von Lithium-6 und -7	77
5.11	Streuung der Messwerte für Lithium-6 und -7	79
5.12	Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle$ zwischen Lithium-6 und -7	81

5.13	Frequenzabstand der Hyperfeinstrukturresonanzen von Lithium-7	83
5.14	Addition kleiner Signale	84
6.1	Zerfall im Channeltron-Detektor	86
6.2	Typische Spektren von Lithium-8 und -9	87
6.3	Lichtverschiebung von Lithium-8	88
6.4	Streuung der IS von Lithium-8 und -9	90
6.5	Massenradien leichter Isotope	93
6.6	Ladungsradien der Lithium-Isotope	95
A.1	Spannungs-Frequenz-Wandler	101
A.2	PID	102

Tabellenverzeichnis

2.1	Nukleare Grundzustandseigenschaften der Li-Isotope Teil I	19
2.2	Nukleare Grundzustandseigenschaften der Li-Isotope Teil II	21
2.3	Beiträge des normalen Masseneffekts	22
2.4	Beiträge zur Isotopieverschiebung zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$	26
2.5	Theoretische Werte für $\delta\nu_{\text{MS,theo}}^{7,A}$	27
2.6	Berechnete A -Faktoren und HFS-Aufspaltung	29
3.1	Produktionsraten kurzlebiger Lithium-Isotope	31
3.2	Dopplereffekt zweiter Ordnung	34
4.1	Online-Ionenquellen für Lithium-8 und -9	40
4.2	Eindringtiefen verschiedener Lithium-Isotope	43
5.1	Wellenzahlen der $2P \rightarrow 3D$ -Übergänge	72
5.2	Masseneffekt und Resonanzfrequenzen des $2P_{3/2} \rightarrow 3D_{3/2,5/2}$ -Übergangs	72
5.3	Lichtverschiebungskoeffizienten für ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$	77
5.4	Isotopieverschiebung zwischen Lithium-6 und -7	78
5.5	Ergebnisse der A_{3S} -Faktoren für Lithium-6 und -7	82
5.6	Vergleich der Übergangswellenzahlen des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs	83
6.1	Effizienzen der Isotope	85
6.2	Lichtverschiebungskoeffizienten für ${}^8\text{Li}$	88
6.3	Isotopieverschiebung von Lithium-8 und -9	89
6.4	Ergebnisse der $3A$ -Faktoren aus der HFS-Aufspaltung	91
6.5	Ergebnisse der Isotopieverschiebung und Kernladungsradien	92
6.6	Vergleich der Lithium-Kernladungsradien mit Modellen	94

1 Einleitung

Vor 20 Jahren entdeckten Tanihata et al. bei der Untersuchung von totalen Wirkungsquerschnitten bei Helium-, Lithium- und Beryllium-Isotopen einen sprunghaften Anstieg der Massenradien an der Neutronen-Abbruchkante und sorgten damit für großes Aufsehen. Das kurzlebige Isotop ^{11}Li fiel dabei besonders auf. Neben einem deutlichen Anstieg des Massenradius verglichen mit dem Nachbarisotop, der auch zwischen ^4He und ^6He auftrat, hat ^{11}Li einen erheblich größeren Radius als Kerne mit gleicher Nukleonenzahl. Dies wurde zunächst als starke Deformation oder als weiter Ausläufer der Massenverteilung gedeutet [Tan85]. Ersteres wurde jedoch bald durch die Messergebnisse für den Kernspin $I = 3/2$ und das magnetischen Kernmoment $\mu_I = 3,6673(25)$, das nahe am Schmidt-Wert für einen sphärischen $p_{3/2}$ -Zustand liegt, ausgeschlossen [Arn87].

Daraufhin etablierte sich für ^{11}Li schnell das Bild eines an einen ^9Li -Rumpf schwach gebundenen Dineutrons – eines *Neutronenhalos* [Han87]. Dieses gebundene System ist bemerkenswert, da weder der ^9Li -Kern in der Lage ist ein einzelnes weiteres Neutron zu binden, noch das Dineutron allein gebunden ist. Man spricht hierbei von einem Borromäischen System, in Anlehnung an das Wappen des gleichnamigen italienischen Adelsgeschlechts. Dieses zeigt drei ineinander verschlungene Ringe, die nicht voneinander zu trennen sind. Sie lösen sich aber komplett voneinander, sobald man einen der drei Ringe entfernt.

Die Entdeckung exotischer Halokerne beflügelte die Erforschung leichter Kerne an der Neutronen-Abbruchkante. Dabei ist ^{11}Li als erster entdeckter Halokern immer noch von besonderem Interesse. Mittlerweile sind viele Eigenschaften dieses außergewöhnlichen Kerns geklärt, offen ist jedoch immer noch die Frage, ob sich die Protonenverteilung des ^9Li -Rumpfes bei der Bildung des Neutronenhalos verändert [Tan96]. Bis heute sind alle Forschungsergebnisse dazu mit der Annahme verträglich, dass der Rumpf durch den Neutronenhalo nicht verändert wird. Da die Experimente bis auf einige optische Messungen hauptsächlich auf die starke Wechselwirkung sensitiv sind, ist allerdings keine direkte Information über die Protonenverteilung oder den Ladungsradius vorhanden.

Das im Folgenden vorgestellte Projekt trägt den Namen TWO-PHOTON LITHIUM SPECTROSCOPY mit dem Akronym TOPLIS. Es ist dessen Ziel den Ladungsradius von ^{11}Li zu bestimmen, um Einfluss des Neutronenhalos zu untersuchen. Dies wird erreicht, indem die Isotopieverschiebung gemessen wird. Kann man den darin enthaltenen Masseneffekt berechnen, so lässt sich der Kernvolumeneffekt und damit die Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r_c^2 \rangle$ modellunabhängig bestimmen. Für schwere Isotope ist dies eine Standardmethode, mit der die Ladungsradien zahlreicher Isotope bereits bestimmt wurden [Ott89, Klu03]. Bei leichten Isotopen wird der Volumeneffekt aber sehr klein und es werden immer größere Herausforderungen an die Präzision der Messung gestellt. Gleichzeitig nimmt der relative Massenunterschied zwischen den Isotopen zu, und der damit verbundene Masseneffekt dominiert die Isotopieverschiebung. Er ist für die Lithium-Isotope mehr als 10 000 mal größer als der Volumeneffekt.

Neben der erforderlichen Genauigkeit der Messung, den geringen Produktionsraten und den kurzen Lebensdauern der radioaktiven Isotope stellte die Separation dieser beiden Anteile mit ausreichender Präzision die größte Hürde auf dem Weg zur Bestimmung der Ladungsradien leichter Isotope mit Hilfe der Laserspektroskopie dar. Bislang waren Natrium-Isotope mit $Z = 11$ [Hub75] und Neon-Isotope mit $Z = 10$ [Gei02] die leichtesten kurzlebigen Isotope, für die Ladungsradien durch Messung der Isotopieverschiebung bestimmt werden konnten.

Bei den leichten stabilen Isotopen konnten im Laufe des letzten Jahrzehnts die Änderungen der Ladungsradien zwischen $^1,^2\text{H}$ [Hub98], $^3,^4\text{He}$ [Shi95] und $^6,^7\text{Li}^+$ [Rii94] mit Hilfe hochauflösender Laserspektroskopie bestimmt werden. Grundlage für diese Messungen waren präzise atomphysikalische Berechnungen des Masseneffekts für Wasserstoff und heliumartige Systeme. Der Feldeffekt konnte dann als Differenz zwischen der gemessenen Isotopieverschiebung und dem berechneten Wert für den Masseneffekt isoliert werden. Die verwendeten spektroskopischen Methoden lassen sich allerdings nicht auf radioaktive Isotope ausweiten, weil für diese sehr hohe Nachweissensitivitäten erreicht werden müssen. Jedoch wurde parallel zu dieser Arbeit eine Methode entwickelt, den Kernladungsradius von ^6He zu bestimmen. Hierbei wurden die Isotopieverschiebung zwischen $^4,^6\text{He}$ an einzelnen, in einer magneto-optischen Falle gespeicherten Atomen gemessen [Wan04].

Im Folgenden wird eine Methode vorgestellt, die erlaubt den Kernvolumeneffekt der Isotopieverschiebung von Lithium-Atomen zu messen. Voraussetzung dafür war allerdings die Berechnung der Übergangsenergien im Drei-Elektronen-System mit einer Genauigkeit von 10^{-9} , bzw. des Masseneffekts mit einer Genauigkeit von besser 10^{-5} . Dabei müssen die komplexen Korrelationen der Elektronen berücksichtigt werden, ein Problem, das erst seit 1995 lösbar ist. In diesem Jahr gelang es Gordon Drake und Zong-Chao Yan erstmals, mit hoher Genauigkeit ein Drei-Elektronen-System zu behandeln [Dra95]. In einer Reihe nachfolgender Arbeiten konnten sie seitdem die Genauigkeit der Berechnungen immer weiter steigern [Yan00, Yan02, Yan03] und legten damit die theoretische Grundlage für das hier beschriebene Experiment.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit gelang es, eine neue laserspektroskopische Methode zur Messung der Isotopieverschiebung radioaktiver Lithium-Isotope zu entwickeln und durch die Kombination mit den neuen Berechnungen des Masseneffekts erstmals den Ladungsradius von $^8,^9\text{Li}$ zu bestimmen. Die hier vorgestellte Methode verbindet eine hohe Nachweissensitivität mit der erforderlichen hohen Präzision und legt damit die Grundlage für die Bestimmung des Ladungsradius von ^{11}Li . Dazu wird an einem Online-Massenseparator die Isotopieverschiebung in Doppler-freier Zweiphotonen-Spektroskopie am thermischen Atomstrahl gemessen und die Zweiphotonen-Resonanz über Resonanz-Ionisation in Verbindung mit einem Quadrupol-Massenspektrometer nachgewiesen.

In Kapitel 2 werden die verschiedenen Beiträge zur Isotopieverschiebung behandelt und der Weg zur Berechnung des Masseneffekts von Drake et al. skizziert. Die Methoden zur Erzeugung der radioaktiven Isotope, das Prinzip der Zweiphotonen-Spektroskopie und die Resonanz-Ionisations-Massenspektrometrie am Lithium werden in Kapitel 3 diskutiert. Durch diese Kombination wird eine Gesamteffizienz von 10^{-4} erreicht. Dies ist angesichts der niedrigen Produktionsrate und kurzen Lebensdauer der radioaktiven Isotope, speziell von ^{11}Li , notwendig. Auf den Aufbau der Messapparatur, insbesondere des Nachweis- und Lasersystems, wird in Kapitel 4 eingegangen. Hervorzuheben ist hier ein Referenzlaser, der mit einer relativen Genauigkeit von 10^{-10} stabilisiert ist, um die Isotopieverschiebung mit der erforderlichen relativen Genauigkeit von 10^{-5} bestimmen zu können. An diesen ist eine vielgliedrige Kette von

Regelungen anderer Laser und eines optischen Resonators angebunden.

Nach der Charakterisierung der Apparatur sowie der Darstellung der Ergebnisse zu Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur der stabilen Isotope ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ in Kapitel 5 werden im nächsten Kapitel die Ergebnisse für die radioaktiven Isotope ${}^8\text{Li}$ und ${}^9\text{Li}$ und die daraus extrahierten Ladungsradien vorgestellt. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse sowie einem Ausblick auf die Messungen am Halokern ${}^{11}\text{Li}$ und Ideen zu weiteren Messungen an Beryllium-Isotopen. Hier ist zum einen ${}^{11}\text{Be}$ als Prototyp eines Ein-Neutronen-Halos von besonderem Interesse, zum anderen ist aber auch ${}^{14}\text{Be}$ mit seinem Vier-Neutronen-Halo ein äußerst interessanter Kern, der aber als extrem kurzlebiges Isotop an der Neutronen-Abbruchkante eine besondere Herausforderung darstellt.

2 Theoretische Grundlagen

Das Ziel dieses Experimentes ist es, zunächst den Ladungsradius der radioaktiven Lithium-Isotope ^8Li , ^9Li und schließlich des Halokerns ^{11}Li zu bestimmen. Im ersten Teil dieses Kapitels wird ein Überblick über die Eigenschaften von Halokernen, und hier insbesondere von ^{11}Li , gegeben. Im zweiten Teil wird geklärt, wie laserspektroskopisch über eine Messung der Isotopieverschiebung die Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius zwischen zwei Isotopen bestimmt werden kann. Diese Messmethode ist unabhängig von Kernmodellen im Gegensatz zur Bestimmung von Ladungsradien aus Wechselwirkungsquerschnitten in Verbindung mit Glauber-Modell-Rechnungen [Tan85].

2.1 Halokerne

Als Halokerne bezeichnet man Nuklide, bei denen eine kleine Zahl von Nukleonen (1-4) eine räumlich weit ausgedehnte Aufenthaltswahrscheinlichkeit besitzen. Dies führt dazu, dass sich ihre Massenradien stark von denen ihrer Nachbarisotope unterscheiden. Dieses Phänomen wurde erstmalig im Jahre 1985 von Tanihata et al. bei ^{11}Li beobachtet [Tan85]. Die Ergebnisse der Massenradien der Lithium-Isotope sind in Abb. 2.1 dargestellt.

Hansen und Jonson deuteten diese Ergebnisse erstmals als *Neutronenhalo* [Han87]. Ein Halokern manifestiert sich durch drei Eigenschaften:

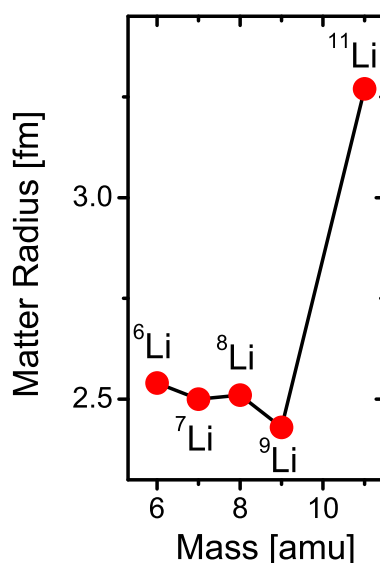


Abb. 2.1: Massenradien der Lithium-Isotope aus [Tan85].

- Bei Streuexperimenten wächst der Wirkungsquerschnitt gegenüber Nachbarisotopen sprunghaft an, obwohl der Kern nicht stärker deformiert ist.
- Die Halonukleonen sind schwach gebunden, d.h. ihre Bindungsenergie liegt deutlich unter den sonst üblichen 5 MeV.
- Betrachtet man die Impulsverteilung der Zerfallsprodukte eines Halokerns, so haben die Komponenten des Halos eine scharfe Impulsverteilung. Nach der Heisenbergschen Unschärferelation ist dies ein Zeichen für eine ausgedehnte Wellenfunktion.

Die bei den Elementen Wasserstoff bis Neon beobachteten Halokerne bzw. Kandidaten für mögliche Halokerne sind in Abbildung 2.2 dargestellt. Die am besten untersuchten Halokerne sind ${}^6\text{He}$, ${}^{11}\text{Li}$ und ${}^{11}\text{Be}$. Es existieren noch weitere Neutronen-Halos, wie z.B. ${}^{14}\text{Be}$, ${}^{14}\text{B}$, ${}^{17}\text{C}$ und ${}^{19}\text{C}$. Einige Kandidaten für Neutronen-Halokerne, wie ${}^{15}\text{B}$, ${}^{17}\text{B}$, ${}^{19}\text{B}$, ${}^{22}\text{C}$ sowie ${}^{23}\text{O}$, bedürfen noch genauerer theoretischer Untersuchungen und experimenteller Bestätigung. Protonen-Halos sind aufgrund der Coulomb-Barriere nicht so weit ausgedehnt. Beispiele hierfür sind ${}^8\text{B}$, ${}^{13}\text{N}$, ${}^{17}\text{Ne}$ und der erste angeregte Zustand von ${}^{17}\text{F}$.

Betrachtet man die räumliche Ausdehnung der Halokerne, so lassen sie sich in zwei Arten unterteilen. Zu der ersten Art gehören ${}^{11}\text{Li}$ und ${}^{11}\text{Be}$. Ihr Massenradius ist groß gegenüber Isotopen anderer Elemente mit gleicher Masse. Zur zweiten Art gehören ${}^6\text{He}$ und ${}^8\text{He}$. Diese Isotope haben einen Massenradius, der im Vergleich zu dem des stabilen Isotops ${}^4\text{He}$ groß ist, jedoch nicht gegenüber Isotopen anderer Elemente mit gleicher Masse (${}^6\text{Li}$ und ${}^8\text{Li}$). Der Halo ist hier das Resultat eines besonders kompakten Rumpfs.

Im Falle von ${}^{11}\text{Li}$ handelt es sich um einen Zwei-Neutronen-Halo, d.h. ein kompaktes ${}^9\text{Li}$ -Rumpf mit zwei schwach gebundenen Neutronen. Entfernt man eine der drei Komponenten, ist das zurückbleibende System ungebunden. Man spricht daher von einem Borromäischen System. Seit der Entdeckung des ${}^{11}\text{Li}$ -Halokerns sind viele seiner Eigenschaften bestimmt worden.

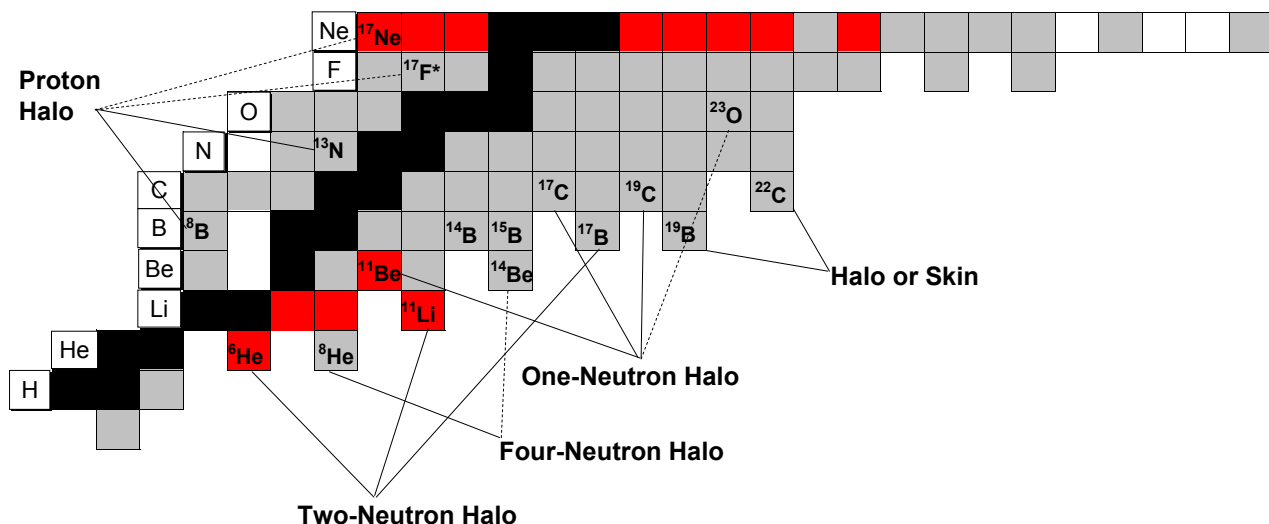


Abb. 2.2: Auszug aus der Nuklidkarte mit bekannten Halokernen. Stabile Isotope sind in Schwarz, bisher entdeckte gebundene Zustände in Hellgrau, die laserspektroskopisch untersuchten radioaktiven Isotope in Dunkelgrau eingezeichnet.

Tabelle 2.1: Nukleare Grundzustandseigenschaften der Li-Isotope Teil I: Kernspin und Parität (I^π), Halbwertszeit ($T_{1/2}$), Massenradius $\langle r_m^2 \rangle^{1/2}$, Ladungsradius $\langle r_c^2 \rangle^{1/2}$ aus Elektronenstreuung und Atommasse (\mathcal{M}_A) (in den Wert für ^{11}Li fließt die Zwei-Neutronen-Separationsenergie aus [Bac05] ein).

Isotop	I^π	$T_{1/2}$ [ms]	$\langle r_m^2 \rangle^{1/2}$ [fm]	$\langle r_c^2 \rangle^{1/2}$ [fm]	\mathcal{M}_A [amu]
^6Li	1^+	∞	2,45	2,55(4)	6,015 122 3(5)
^7Li	$3/2^-$	∞	-	2,39(3)	7,016 004 0(5)
^8Li	2^+	838(6)	2,45	-	8,022 486 7(5)
^9Li	$3/2^-$	178,3(4)	2,43	-	9,026 789 1(21)
^{11}Li	$3/2^-$	8,59(14)	3,62	-	11,043 715(5)
Referenz		[Aud97]	[Ege02]	[Jag74]	[Wap03]

Einige Kerneigenschaften der Lithium-Isotope sind in Tab. 2.1 aufgeführt. Diese sind Kernspin und Parität, Halbwertszeit, Ladungsradius $\langle r_c^2 \rangle^{1/2}$ aus Elektronenstreuung und Atommasse. Die Separationsenergie der beiden Neutronen von ^{11}Li wurde von Young et al. [You93] über den Q-Wert der $^{14}\text{C}(^{11}\text{B}, ^{11}\text{Li})^{14}\text{O}$ -Reaktion bestimmt und ergab 295 ± 35 keV. Die Auswertung der neusten Massenmessung mit MISTRAL, ISOLDE ist noch nicht vollständig abgeschlossen. Der vorläufige Wert liegt jedoch mit $376,7 \pm 4,7$ keV [Bac05] signifikant höher.

Die in der Tabelle angegebenen Ladungsradien wurden mittels elastischer Streuung von Elektronen an Atomkernen ermittelt, eine Methode, die sich nur bei stabilen Isotopen anwenden lässt. Dabei wird der Ladungsradius aus der Steigung des elektronischen Formfaktors bei verschwindendem Impulsübertrag (q^2) gewonnen. Bei der Auswertung der experimentellen Daten kann man sich entweder auf den Bereich kleiner Impulsüberträge beschränken und an diese Daten „modellunabhängig“ [Jag74] ein Polynom anpassen, oder aber das Verhalten des Formfaktors über einen größeren Bereich von q^2 in Betracht ziehen und mit der Modellannahme eines harmonischen Oszillators die Ladungsverteilung beschreiben. Im letzteren Fall wird die Ladungsverteilung angepasst bis der beobachtete Verlauf möglichst gut beschrieben wird. Für ^7Li wurden beide Verfahren angewendet. Die erhaltenen Ladungsradien von 2,41(10) fm (modellunabhängig) [Bum72] und 2,39(3) fm (harmonischer Oszillator-Schalenmodell) [Sue67] stimmen recht gut überein, der modellabhängige Wert weist aber einen deutlich kleineren Fehler auf. Für Tab. 2.1 und als Referenz sind die gewichteten Mittelwerte aus allen in [Jag74] aufgeführten Ergebnissen verwendet. Es sei darauf hingewiesen, dass eine Änderung des Referenzwertes in erster Näherung den Trend des Ladungsradius nicht beeinflusst, sondern nur eine entsprechende Änderung der Ladungsradien der anderen Isotope hervorruft.

^{11}Li verfügt über einen ausgesprochen ausgedehnten Halo. Für sich betrachtet nehmen die zwei Haloneutronen das Volumen eines Bleikerns in Anspruch. Sie befinden sich etwa die Hälfte der Zeit außerhalb der Reichweite der Kernkraft [AK04]. Die Massenverteilung von ^{11}Li aus [Ege02] ist in Abb. 2.3 dargestellt. Sie ergibt sich aus einer Gaußverteilung der Nukleonen des Rumpfs mit entweder einer zusätzlichen Gaußverteilung der Halonukleonen (GG) oder einer zusätzlichen Verteilung nach harmonischem Oszillator für eine 1 p -Schale (GO).

Der Einfluss des Zwei-Neutronen-Halos auf die Protonenverteilung innerhalb des ^9Li -Rumpfs ist bis zum heutigen Zeitpunkt ungeklärt. Aufschluss darüber lässt sich durch eine Messung der Ladungsradien von ^9Li und ^{11}Li erhalten. Um eine möglichst gute Basis für die Differenzierung zwischen verschiedenen Kernmodellen zu erhalten, ist es wünschenswert, die Ladungsradien

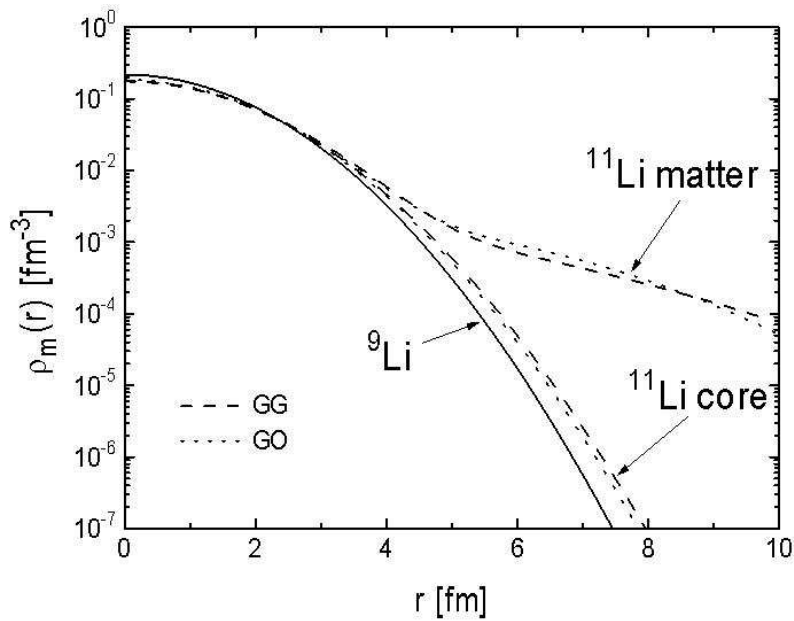


Abb. 2.3: Massenverteilung des Halokerns Lithium-11 (matter) und seines Rumpfs (core) aus [Ege02]. Sie ist aus einer Gaußverteilung der Nukleonen des Rumpfs mit entweder einer zusätzlichen Gaußverteilung der Halonukleonen (GG) oder einer zusätzlichen Verteilung nach harmonischem Oszillator für eine 1 p -Schale (GO) abgeleitet.

der gesamten Isotopenkette von Lithium zu bestimmen. Der Ansatz zur laserspektroskopischen Bestimmung des Ladungsradius wird im Folgenden näher ausgeführt.

2.2 Die Isotopieverschiebung von Li-Isotopen im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang

Neben der Kernladung beeinflussen noch einige andere Eigenschaften des Atomkerns die genaue Lage der elektronischen Niveaus. Dazu gehören die Kernmasse M_A , der Ladungsradius $\langle r_c^2 \rangle^{1/2}$ und das magnetische Dipol- und das elektrische Quadrupolmoment (μ_I und Q). Die bekannten Größen sind in Tab. 2.2 aufgeführt. Während erstere sich insbesondere in der Isotopieverschiebung (IS) ausprägen, manifestieren sich die Momente am deutlichsten in der Hyperfeinstruktur (HFS). Zunächst sollen die theoretischen Grundlagen der Isotopieverschiebung und ihrer Berechnung für Lithium dargestellt werden. Danach folgt eine kurze Beschreibung der Hyperfeinstruktur für den $2S \rightarrow 3S$ -Übergang.

Um die Ladungsradien der Lithium-Isotope aus der Isotopieverschiebung zu bestimmen, ist, wie im Folgenden näher ausgeführt wird, eine hohe Präzision in der Bestimmung der Linienzentren gefordert. Um diese zu erreichen, ist es notwendig eine Doppler-freie Methode anzuwenden. Daher bietet sich die Messung der Isotopieverschiebung des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs durch Zweiphotonen-Spektroskopie an. Auf diese Spektroskopiemethode wird in Kapitel 3.2 genauer eingegangen.

Die Änderung der Frequenz eines elektronischen Übergangs von einem Isotop zum anderen

Tabelle 2.2: Nukleare Grundzustandseigenschaften der Li-Isotope Teil II: Kernmasse (M_A) aus Tab. 2.1 und der vollständigen Ionisierungsenergie von 203,4 eV [Vor97], Ladungsradius $\langle r_c^2 \rangle^{1/2}$, magnetisches Dipol- und elektrisches Quadrupolmoment (μ_I und Q) und Hyperfeinstrukturaufspaltung (HFS) des 2S-Grundzustands der Lithium-Isotope.

Isotop	M_A [amu]	$\langle r_c^2 \rangle^{1/2}$ [fm]	μ_I [μ_N]	Q^a [mbarn]	HFS _{2S} ^b [MHz]
⁶ Li	6,013 476 8(5)	2,55(4)	0,822 047 3(6)	-0,83(8)	228,205 259 0(3 0) ¹
⁷ Li	7,014 358 5(5)	2,39(3)	3,256 426 8(17)	-40,0(3)	803,504 086 6(10) ¹
⁸ Li	8,020 841 2(5)	-	1,653 560(18)	31,35(25)	382,543(7) ²
⁹ Li	9,025 143 6(21)	-	3,436 79(8)	-30,5(3)	856(16) ²
¹¹ Li	11,042 069(5)	-	3,667 8(25)	-31,2(4,5)	920(39) ²
Referenz	[Wap03], [Vor97]	[Jag74]	[Rag89]	[Sun84]	[Ari77] ¹ , [Bor05] ²

^a ⁶Li [Sun84], ⁷Li [Voe91], ^{8,9,11}Li [Arn92]

^b ^{6,7}Li [Bec74], ⁸Li [Neu73], ^{9,11}Li [Arn87]

bezeichnet man als Isotopieverschiebung. Diese setzt sich aus dem Masseneffekt (MS) und dem Feldeffekt (FS) wie folgt zusammen:

$$\delta\nu_i^{AA'} = \delta\nu_{i,MS}^{AA'} + \delta\nu_{i,FS}^{AA'} . \quad (2.1)$$

Betrachtet wird der Frequenzunterschied $\delta\nu$ des elektronischen Übergangs i zwischen den Isotopen A und A' . Der Feldeffekt $\delta\nu_{i,FS}^{AA'}$ ist abhängig vom mittleren quadratischen Ladungsradius und somit der interessierende Teil der Verschiebung. Um von der Messung auf den Ladungsradius schließen zu können, muss man den Masseneffekt $\delta\nu_{i,MS}^{AA'}$ berechnen.

2.2.1 Masseneffekt

Der Masseneffekt entspricht der Energieverschiebung durch die Änderung der Schwerpunktbewegung bei verschiedenen Isotopen. Dies erhält man aus den Differenzen des Hamiltonoperators der kinetischen Energie für die verschiedenen Isotope mit den reduzierten Massen μ_A :

$$\hat{H}_{\text{kin}} = \frac{1}{2\mu_A} \left(\sum_{i=1}^N \hat{\mathbf{P}}_i \right)^2 \quad \text{mit} \quad \mu_A = \frac{mM_A}{m + M_A} , \quad (2.2)$$

wobei P_i der Impuls des i -ten Elektrons, M_A die Kernmasse und m die Elektronenmasse ist. Der quadratische Ausdruck lässt sich in zwei Anteile aufteilen: \hat{H}_{1e} für die einzelnen Elektronen, dessen Veränderung zwischen den Isotopen dem normalen Masseneffekt (NMS) entspricht, und \hat{H}_{korr} für den korrelierten Term, dessen Veränderung dem spezifischen Masseneffekt (SMS) entspricht:

$$\hat{H}_{\text{kin}} = \hat{H}_{1e} + \hat{H}_{\text{korr}} = \frac{1}{2\mu_A} \sum_{i=1}^N \hat{\mathbf{P}}_i^2 + \frac{1}{\mu_A} \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \hat{\mathbf{P}}_i \cdot \hat{\mathbf{P}}_j . \quad (2.3)$$

Tabelle 2.3: Beiträge des normalen Masseneffekts zur Isotopieverschiebung für die Lithium-Isotope mit $6 \leq A \leq 11$ im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang mit ${}^7\text{Li}$ als Referenzisotop. Die zur Berechnung benutzten Kernmassen sind in Tab. 2.2 zusammengestellt.

Isotop	${}^6\text{Li}$	${}^7\text{Li}$	${}^8\text{Li}$	${}^9\text{Li}$	${}^{11}\text{Li}$
$\delta\nu_{i,\text{NMS}}^{7,A'}$ [MHz]	10 616,71	0	-8 004,22	-14 211,64	-23 267,01

Für S -Übergänge bei leichten Isotopen dominiert der normale Masseneffekt die Isotopieverschiebung. Er ist auf die reduzierte Bohrmasse zurückzuführen und kann mit

$$\delta\nu_{i,\text{NMS}}^{AA'} = K_{\text{NMS}} \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}} , \quad (2.4)$$

den Massen M_A aus Tab. 2.2 und $K_{\text{NMS}} = \nu_i \frac{m_e}{u}$ leicht ausgerechnet werden. Eine Auflistung des normalen Masseneffekts für den $2S \rightarrow 3S$ -Übergang der Lithium-Isotopenkette, mit ${}^7\text{Li}$ als Referenzisotop, ist in Tab. 2.3 dargestellt.

Der spezifische Masseneffekt weist die gleiche Massenabhängigkeit auf wie der normale Masseneffekt:

$$\delta\nu_{i,\text{SMS}}^{AA'} = K_{\text{SMS}} \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}} . \quad (2.5)$$

Er ist abhängig von der Korrelation der einzelnen Elektronenimpulse $\hat{P}_i \cdot \hat{P}_j$ und sehr schwierig zu berechnen. Für S -Übergänge ist er für gewöhnlich relativ klein und liegt bei $< 10\%$ des normalen Masseneffekts. Die genaue Berechnung für Lithium ist Yan und Drake gelungen; auf sie wird in Abschnitt 2.2.3 eingegangen. Normaler Masseneffekt und spezifischer Masseneffekt aus (2.4) und (2.5) lassen sich nun mit $K_{\text{MS}} = K_{\text{NMS}} + K_{\text{SMS}}$ zu

$$\delta\nu_{i,\text{MS}}^{AA'} = K_{\text{MS}} \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}} \quad (2.6)$$

zusammenfassen.

2.2.2 Feldeffekt

Betrachtet man die Coulombenergie E_c der Kernladungsverteilung $\rho_N(\mathbf{r})$ im Potential der Elektronen V_e , so erhält man

$$E_c = \int V_e(\mathbf{r}) \rho_N(\mathbf{r}) d\tau . \quad (2.7)$$

Unter der Annahme eines in erster Ordnung konstanten Potentials der Elektronen über das Kernvolumen ergibt sich für die Coulombenergie:

$$E_c = -Ze^2 \langle r_e^{-1} \rangle + \frac{2\pi}{3} Ze^2 |\psi_e(0)|^2 \langle r_c^2 \rangle . \quad (2.8)$$

Der erste Summand beschreibt einen punktförmigen Kern mit der Ladung Ze . Er ist für alle Isotope eines Elements gleich und trägt daher nicht zur Isotopieverschiebung bei. Der zweite Term ist die Korrektur für eine endliche Ausdehnung des Kerns, wobei $|\psi_e(0)|^2$ die

Elektronendichte im Kern ist und $\langle r_c^2 \rangle$ der mittlere quadratische Ladungsradius. Für schwere Kerne oder myonische Atome müssen auch höhere radiale Momente des Kerns berücksichtigt werden. Der Feldeffekt entspricht der Differenz der Coulombenergien zwischen zwei Isotopen A und A' :

$$\delta\nu_{\text{FS}}^{AA'} = -\frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta |\psi_e(0)|^2 \delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'} . \quad (2.9)$$

Dabei ist $\Delta |\psi_e(0)|^2$ die Änderung der elektronischen Ladungsdichte am Kern beim Übergang vom unteren in das obere elektronische Niveau und $\delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'}$ die Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius. Somit lässt sich der Feldeffekt in die Form

$$\delta\nu_{i,\text{FS}}^{AA'} = F_i \delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'} \quad (2.10)$$

bringen, in der F_i der Faktor für den elektronischen Beitrag im Übergang i und $\delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'}$ der nukleare Beitrag, d.h. die Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius, ist.

Die gesamte Isotopieverschiebung zwischen den Isotopen A und A' für einen Übergang i lässt sich nun als

$$\delta\nu_i^{AA'} = K_{\text{MS}} \frac{M_A - M_{A'}}{M_A M_{A'}} + F_i \delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'} \quad (2.11)$$

schreiben. Für leichte Isotope ist der Masseneffekt dominierend, für schwere nimmt er proportional zu $1/A^2$ ab. Der Feldeffekt hingegen ist ungefähr proportional zu $Z^2 A^{-1/3}$ und wächst daher mit der Ordnungszahl stark an.

Mit (2.9) und (2.11) lässt sich die Änderung der Ladungsradien zum Referenzisotop ${}^7\text{Li}$ wie folgt schreiben:

$$\delta \langle r_c^2 \rangle^{7,A} = \frac{\delta\nu_{\text{exp}}^{7,A} - \delta\nu_{\text{MS,theo}}^{7,A}}{F_i} . \quad (2.12)$$

Hierbei ist $\delta\nu_{\text{exp}}^{7,A}$ die gemessene Verschiebung, $\delta\nu_{\text{MS,theo}}^{7,A}$ der theoretische Wert für den Masseneffekt und

$$F_i = \frac{2\pi Z e^2}{3} (|\psi_e(0)|_{3S}^2 - |\psi_e(0)|_{2S}^2) = -1.5661 \text{ MHz/fm}^2 \quad (2.13)$$

für den $2S \rightarrow 3S$ -Übergang. Der Wert für F_i [Yan00] ist unabhängig von der Masse M_A des Isotops. $|\psi_e(0)|_i^2$ beinhaltet die Beiträge der Wellenfunktionen von allen drei Elektronen im Rumpf des Lithium-Kerns. In erster Ordnung trägt nur das Valenzelektron zur Änderung der Ladungsdichte am Kernort bei. Anhand dieser Gleichungen lässt sich nun der zu erwartende Feldeffekt für Lithium berechnen:

$$\delta\nu_{\text{FS}}^{7,A} = \delta\nu_{\text{exp}}^{7,A} - \delta\nu_{\text{MS,theo}}^{7,A} = F_i \cdot \delta \langle r_c^2 \rangle^{7,A} . \quad (2.14)$$

Nach Einsetzen der durch Elektronenstreuung gemessenen Ladungsradien aus Tab. 2.2 mit $\delta \langle r_c^2 \rangle^{7,6} = -0,79(25) \text{ fm}^2$ beträgt der Feldeffekt $\delta\nu_{\text{FS}}^{7,6} = 1,24(39) \text{ MHz}$.

Aus den $\delta \langle r_c^2 \rangle$ -Werten lassen sich mittels

$$r_c^A = \sqrt{\langle r_c^2 \rangle^7 + \delta \langle r_c^2 \rangle^{7,A}} \quad (2.15)$$

die absoluten Ladungsradien bestimmen. Um die erforderliche Genauigkeit abzuschätzen, betrachtet man die Unsicherheiten der Resultate gemäß der Gaußschen Fehlerfortpflanzung:

$$\Delta r_c^A = \frac{1}{2 r_c^A} \sqrt{(2 r_c^7 \Delta r_c^7)^2 + \left(\frac{\Delta \delta\nu_{\text{FS}}^{7,A}}{F_i} \right)^2} . \quad (2.16)$$

Die Ladungsradien der stabilen Isotope wurden mit einem relativen Fehler von ungefähr 2% bestimmt. Möchte man eine vergleichbare Genauigkeit für die kurzlebigen Isotope erreichen, ergibt sich aus (2.16), dass man den Feldeffekt auf $\Delta\nu_{\text{FS}}^{7,A} = 300$ kHz genau bestimmen muss. Gemäß (2.12) folgt daraus, dass sowohl die Messung der Isotopieverschiebung als auch die theoretische Berechnung des Masseneffekts auf ~ 200 kHz genau erfolgen muss. Dies entspricht einer relativen Genauigkeit beim Vergleich der absoluten Übergangsfrequenzen $\nu(^A\text{Li})$ von 10^{-10} , bzw. einer Bestimmung der Isotopieverschiebung $\delta\nu^{7,A}$ mit einer relativen Genauigkeit von 10^{-5} .

Dieser Ansatz aus theoretischer Berechnung des Masseneffekts und Messung der Isotopieverschiebung konnte bislang nur für wasserstoff- und heliumartige Systeme verwendet werden. Damit gelang es mit großer Genauigkeit den Ladungsradius von Deuterium [Hub98], ^3He [Shi95] sowie die Änderung des Ladungsradius zwischen ^6Li und ^7Li anhand eines Übergangs im einfach geladenen Ion zu bestimmen [Rii94]. Vor wenigen Jahren jedoch erreichte die Arbeitsgruppe um Gordon Drake einen Durchbruch hinsichtlich der Berechnung von Drei-Elektronen-Systemen. Es gelang ihnen, den Masseneffekt in drei elektronischen Übergängen des atomaren Lithiums mit einer Präzision zu berechnen, die eine Bestimmung des Ladungsradius aus der Isotopieverschiebung möglich macht.

2.2.3 Die Rechnungen von Gordon Drake et al. im 3-Elektronen-System Lithium

Für die Bestimmung des Proportionalitätsfaktors K_{SMS} des spezifischen Masseneffekts aus (2.5) müssen die Elektronenkorrelationen berücksichtigt werden, deren Berechnung in Atomen ein ausgesprochen schwieriges Problem ist. Das einfachste System, in dem Elektronenkorrelationen von Bedeutung sind, ist das Helium-Atom. Der erste Schritt in der exakten Berechnung der Massenverschiebung ist die Berechnung der nichtrelativistischen Wellenfunktionen. Die Vorzüge Hylleraasscher Koordinaten für die Behandlung dieses Problems wurden bereits sehr früh erkannt [Hyl28]. Damit gelang es bei einer relativ kleinen Anzahl von Basiszuständen, bereits einen großen Teil der Korrelationsenergie zu berechnen. Durch Weiterentwicklung in den letzten zwei Jahrzehnten [Dra99], konnte die relative Genauigkeit für die nichtrelativistische Grundzustandsenergie des Heliums auf $\sim 10^{-19}$ gesteigert werden. Die Erweiterung dieser Methode auf Lithium wurde zunächst dadurch behindert, dass die auftretenden Korrelationsintegrale keine geschlossene Lösung mehr besitzen und die numerische Integration nur langsam konvergiert. Gordon W.F. Drake und Zong-Chao Yan entwickelten eine Methode, die die numerische Integration um zwei bis drei Größenordnungen beschleunigt [Dra95]. Dies war die Grundlage für Präzisionsberechnungen im Lithium, mit denen inzwischen eine relative Genauigkeit von $\sim 10^{-12}$ für die nichtrelativistische Grundzustandsenergie erreicht wird. Davon ausgehend lässt sich, wie im Folgenden kurz skizziert wird, der Masseneffekt der Lithium-Isotope mit der erforderlichen Genauigkeit von besser als 200 kHz berechnen [Yan00, Yan02]. Betrachtet man die Gesamtenergie E_{tot} eines elektronischen Zustands, so lässt sich diese durch

$$E_{\text{tot}} = E_{\text{NR}} + \alpha^2 E_{\text{rel}} + \alpha^3 E_{\text{QED}} + \dots + \Delta E_{\text{FS}} \quad (2.17)$$

darstellen. Hierbei ist E_{NR} die nichtrelativistische Energie, E_{rel} und E_{QED} die relativistischen und QED-Korrekturen sowie ΔE_{FS} der Beitrag durch die endliche Ausdehnung des Kerns der

Masse M . Die einzelnen Beiträge lassen sich nach μ/M wie folgt entwickeln:

$$\begin{aligned} E_{\text{NR}} &= E_{\text{NR}}^{(0)} + \frac{\mu}{M} E_{\text{NR}}^{(1)} + \left(\frac{\mu}{M}\right)^2 E_{\text{NR}}^{(2)} + \dots \\ E_{\text{rel}} &= E_{\text{rel}}^{(0)} + \frac{\mu}{M} E_{\text{rel}}^{(1)} + \dots \\ E_{\text{QED}} &= E_{\text{QED}}^{(0)} + \frac{\mu}{M} E_{\text{QED}}^{(1)} + \dots \end{aligned} \quad (2.18)$$

Zunächst werden die nichtrelativistischen elektronischen Wellenfunktionen störungstheoretisch berechnet. Der Hamiltonoperator des 3-Elektronen-Systems kann in die potentielle und kinetische Energie der Einzelelektronen (inkl. deren elektrostatischer Wechselwirkungsenergie) und den Korrelationsterm zerlegt werden:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \lambda \hat{H}' \quad (2.19)$$

mit

$$\hat{H}_0 = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 \nabla_i^2 - Z \sum_{i=1}^3 \frac{1}{r_i} + \sum_{i>j}^3 \frac{1}{r_{ij}} \quad (2.20)$$

und

$$\hat{H}' = \sum_{i>j}^3 \nabla_i \cdot \nabla_j. \quad (2.21)$$

Die Formeln sind in atomaren Einheiten gegeben, wobei überdies eine Reskalierung des Abstandes gemäß $r \rightarrow (m_e/\mu)r$ und der Energie $E \rightarrow E (\hbar^2/e^4\mu)$ mit der reduzierten Elektronenmasse für 3-Elektronen-Systeme $\mu = M/(M/m_e - 2)$ und $\lambda = \mu/M$ stattfindet. Der erste Term (\hat{H}_0) beinhaltet im Wesentlichen den normalen Masseneffekt, während der zweite (\hat{H}') den spezifischen Masseneffekt beschreibt. Die Schrödinger Gleichung

$$\hat{H}\Psi = E\Psi \quad (2.22)$$

wird dann in zeitunabhängiger Störungstheorie mit λ als Störungsparameter entwickelt, d.h.

$$\Psi = \Psi_0 + \lambda\Psi_1 + \dots \text{ und} \quad (2.23)$$

$$E = \epsilon_0 + \lambda\epsilon_1 + \lambda^2\epsilon_2\dots \quad (2.24)$$

Yan und Drake benutzen Variationsrechnungen, um eine Lösung für die Wellenfunktion Ψ zu erhalten. Der Ansatz für die Wellenfunktion erfolgt in Hylleraasschen Koordinaten, deren Basisdimension sukzessive erhöht wird. Schließlich erfolgt eine asymptotische Extrapolation zu einer vollständigen unendlich dimensional Basis. Mit diesem Ansatz gelang es den Autoren, die Berechnung der nichtrelativistischen Energie des $3S$ -Niveaus in Lithium gegenüber früheren Berechnungen um fünf Nachkommastellen zu verbessern [Yan00]. Im nächsten Schritt werden die erhaltenen nichtrelativistischen Wellenfunktionen benutzt, um relativistische und QED-Korrekturen bis zur Ordnung $(\mu/M)\alpha^5 mc^2$ zu berechnen [Yan02].

Die energetische Verschiebung eines Niveaus zwischen den Isotopen A und A' erhält man aus der Differenz der Energien nach (2.17) und (2.18). Dabei heben sich alle massenunabhängigen Terme gegenseitig auf. Übrig bleiben die Terme der Ordnung μ/M und höher:

$$\begin{aligned} \Delta E^{A,A'} &= \left[\left(\frac{\mu}{M}\right)_A - \left(\frac{\mu}{M}\right)_{A'} \right] \left(E_{\text{NR}}^{(1)} + \alpha^2 E_{\text{rel}}^{(1)} + \alpha^3 E_{\text{QED}}^{(1)} \right) \\ &+ \left[\left(\frac{\mu}{M}\right)_A^2 - \left(\frac{\mu}{M}\right)_{A'}^2 \right] E_{\text{NR}}^{(2)} + \dots + \Delta E_{\text{FS}}^A - \Delta E_{\text{FS}}^{A'} \end{aligned} \quad (2.25)$$

Das Verschwinden der massenunabhängigen Terme führt dazu, dass die absolute Genauigkeit des berechneten Masseneffekts von typischerweise ~ 100 kHz um etwa zwei Größenordnungen besser ist als die der berechneten $2S \rightarrow 3S$ -Übergangsenergie von ~ 20 MHz. Letztere wird durch die Präzision der $E_{\text{rel}}^{(0)}$ und $E_{\text{QED}}^{(0)}$ beschränkt. Aus der Differenz der Energieverschiebung des $2S$ und $3S$ Niveaus gemäß (2.25) ergeben sich für die Isotopieverschiebung des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ die in Tab. 2.4 aufgeführten Beiträge.

Der bei weitem dominierende Anteil des Masseneffekts ist durch den nichtrelativistischen Beitrag der Ordnung μ/M gegeben. Dessen Fehler ist durch die Unsicherheit in der Masse der Lithium-Isotope dominiert. Er beträgt für ${}^{6,7}\text{Li}$ etwa 8 kHz und für ${}^{7,11}\text{Li}$ nach der Massenmessung von [Bac05] 20 kHz. Der nichtrelativistische Beitrag der Ordnung $(\mu/M)^2$ fällt bereits vier Größenordnungen geringer aus. Die berechneten relativistischen Beiträge (Rückstofterme der Breit-Wechselwirkung) sind unter $\alpha^2\mu/M$ zusammengefasst. Ihr Fehler ist dominiert durch die Unsicherheit der numerischen Berechnung des Terms und ist der größte Beitrag zum Fehler der gesamten Massenverschiebung. Die Beiträge der QED sind unter ihrer niedrigsten Ordnung $\alpha^3\mu/M$ zusammengefasst. Der erste Beitrag beinhaltet im Wesentlichen die Rückstofterme der Lamb-Verschiebung (ein-Elektron) und der zweite die Massenabhängigkeit der QED-Korrekturen zur Elektron-Elektron-Wechselwirkung.

Im Fall der Isotopieverschiebung von ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ kann mit den Ladungsradien aus der Elektronenstreuung (Tab. 2.2) der Feldeffekt berücksichtigt werden. Dieser liefert die Beiträge, die in den letzten beiden Zeilen in Tab. 2.4 aufgeführt sind. Damit lässt sich die gesamte Isotopieverschiebung vorhersagen und kann zum Test der Theorie verwendet werden. Zu diesem Zweck wurden im Vorfeld dieser Arbeit von B.A. Bushaw unter anderem Messungen am $2S \rightarrow 3S$ -Übergang durchgeführt. Das Ergebnis für die Isotopieverschiebung zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ liegt bei 11 453,734(30) MHz [Bus03]. Die Abweichung zum theoretischen Wert beträgt 1,3 σ des Fehlers aus den Radien der Elektronenstreuung. Eine erneute Messung, deren Resultat noch besser mit der theoretischen Erwartung übereinstimmt, wurde im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt.

Die theoretischen Werte für die Beiträge der Massenverschiebung $\delta\nu_{\text{MS,theo}}^{A,7}$ des $2S \rightarrow 3S$ -

Tabelle 2.4: Beiträge zur Isotopieverschiebung zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang nach [Yan02]. Der bei der Summe in eckigen Klammern angegebene Fehler stellt die Unsicherheit dar, die auf den Fehler des Kernradius zurückzuführen ist.

Beitrag	Ordnung	$3\ ^2S - 2\ ^2S$ [MHz]
Massenskalierung und -polarisation	μ/M	11 454,668 801(29) ^a
2te Ordnung Massenskal. und -pol.	$(\mu/M)^2$	-1,793 864 0(41)
Relativistische Rückstofterme	$\alpha^2\mu/M$	0,190 (55)
Massenskal. und -pol. der Lamb-Verschiebung	$\alpha^3\mu/M$ 1-Elektron	-0,078(5)
2-Elektronen-QED Massenskal. und -pol.	$\alpha^3\mu/M$ 2-Elektronen	0,011 2(20)
Endliche Kernaussdehnung	r_{rms}^2	1,24(39)
2te Ordnung endliche Kernaussdehnung	$r_{\text{rms}}^2\mu/M$	-0,000 677(98)
Summe		11 454,24(5)[39]

^aZusätzlicher Fehler aufgrund der Ungenauigkeit der Masse: $\pm 0,008$ MHz

Übergangs sind in Tab. 2.5 aufgeführt [Dra04]. Daraus lassen sich zusammen mit den Werten für die normale Massenverschiebung aus Tab. 2.3 die Beiträge der spezifischen Massenverschiebung berechnen¹. Zusätzlich ist für die kurzlebigen Isotope der Feldeffekt angegeben, wie er sich beim Verlauf der Ladungsradien gemäß der theoretischen Vorhersagen aus „Stochastic Variational Multi Cluster“-Berechnungen ergeben würde. Dieses Kernmodell liefert Vorhersagen über die Radien aller radioaktiven Lithium-Isotope und über das Referenzisotop ${}^7\text{Li}$, wobei der Wert für das stabile Isotop gut mit dem Resultat aus der elastischen Elektronenstreuung übereinstimmt. Mit Hilfe des in Tab. 2.5 angegebenen Masseneffekts [Dra04] kann nun aus der Isotopieverschiebung gemäß (2.12) die Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien im Vergleich zum Referenzisotop ${}^7\text{Li}$ berechnet werden.

Tabelle 2.5: Theoretische Werte für $\delta\nu_{\text{MS,theo}}^{7,A}$ nach [Yan02] und die sich daraus ergebenden Werte für $\delta\nu_{\text{SMS}}^{7,A}$. Zusätzlich sind die Änderungen des Ladungsradius Δr_c , wie sie von einem Kernmodell [Suz02] vorhergesagt werden, und die daraus resultierenden Feldeffekte $\delta\nu_{\text{FS}}^{7,A}$ im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang angegeben. Der aus Elektronenstreuexperimenten gewonnene Wert für Δr_c ist mit ^{ES} gekennzeichnet.

Isotope	$\delta\nu_{\text{MS,theo}}^{7,A}$ [MHz]	$\delta\nu_{\text{SMS}}^{7,A}$ [MHz]	$\delta\nu_{\text{FS}}^{7,A}$ [MHz]	Δr_c [fm]
${}^7\text{Li} - {}^6\text{Li}$	11 453,01(6)	836,30(6)	-1,24(8)	-0,16(5) ^{ES}
${}^7\text{Li} - {}^8\text{Li}$	-8 635,11(4)	-630,89(4)	0,64	0,09
${}^7\text{Li} - {}^9\text{Li}$	-15 332,02(8)	-1 1260,38(8)	1,24	0,17
${}^7\text{Li} - {}^{11}\text{Li}$	-25 101,812(12)	-1 835,12(17)	-0,98	-0,13

2.3 Hyperfeinstruktur der Lithium-Isotope mit einem s-Valenzelektron

Bei allen Lithium-Isotopen kommt es aufgrund der Wechselwirkung der Kernmomente mit den elektromagnetischen Feldern der Elektronenhülle zu einer Kopplung des Kernspins \mathbf{I} mit dem Drehimpuls \mathbf{J} der Hülle zum Gesamtdrehimpuls \mathbf{F} . Die dadurch verursachte Aufspaltung der Energieniveaus wird als Hyperfeinstruktur (HFS) bezeichnet. Für die hier betrachteten S -Zustände ist nur der Beitrag durch das magnetische Dipolmoment des Kerns von Bedeutung:

$$\Delta E_{\text{HFS}} = -\frac{A}{2} (F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)) \quad \text{mit} \quad \frac{A}{2} = \frac{\mu_I \mu_N \bar{B}_0}{2IJ}, \quad (2.26)$$

mit dem magnetischen Moment μ_I des Kerns, dem Kernmagneton $\mu_N = \mu_B/1836$, sowie dem mittleren magnetischen Feld der Elektronenhülle am Kernort \bar{B}_0 . Daraus erhält man die Landésche Intervallregel für die Abstände der Hyperfeinniveaus:

$$\Delta E_{F+1} - \Delta E_F = A(F+1). \quad (2.27)$$

¹Es sei darauf hingewiesen, dass eine strikte Trennung zwischen NMS und SMS nur im nichtrelativistischen Fall möglich ist. Massenskalierungs- (NMS) und Massenspolarisationsbeiträge (SMS) zu den QED und relativistischen Beiträgen werden nicht mehr unterschieden.

Die Hyperfeinaufspaltung der S -Niveaus von Lithium ist beispielhaft für die Isotope mit dem Kernspin $I = 3/2$ (${}^{7,9,11}\text{Li}$) in Abb. 2.4 dargestellt. Für Zustände mit $J = 1/2$ kann der Gesamtdrehimpuls F nur die Werte $I + 1/2$ oder $I - 1/2$ annehmen, daher kommt es zu einer zweifachen Aufspaltung der Niveaus. Die Hyperfeinaufspaltung der geraden Isotope (${}^{6,8}\text{Li}$) erfolgt analog.

Zwischen den beiden S -Niveaus können Zweiphotonen-Übergänge mit den folgenden Auswahlregeln erfolgen:

$$\Delta L = 0, \pm 2 \quad \text{und für} \quad (2.28)$$

$$\Delta L = 0 \quad \text{und} \quad J = 0 \text{ oder } 1/2 \Rightarrow \Delta F = 0 \quad \text{und} \quad \Delta m_F = 0 .$$

Hierbei ist L der Bahndrehimpuls. Damit reduziert sich für den $S \rightarrow S$ -Übergang die Hyperfeinstruktur auf zwei Linien: $F = I + 1/2 \rightarrow F' = I + 1/2$ und $F = I - 1/2 \rightarrow F' = I - 1/2$. Man erhält eine klar aufgelöste und einfache Hyperfeinstruktur. Dies erleichtert das Bestimmen der Linienzentren ν_F und $\nu_{F'}$ sowie des Schwerpunktes ν_{cg} beider Linien nach der Formel

$$\nu_{\text{cg}} = \frac{C_F \nu_{F'} - C_{F'} \nu_F}{C_F - C_{F'}} \quad \text{mit} \quad C_F = F(F + 1) - J(J + 1) - I(I + 1) , \quad (2.29)$$

die sich direkt aus (2.26) ergibt.

Die Aufspaltung der beiden Spektrallinien der Zweiphotonen-Spektroskopie ergibt sich aus der Differenz der Aufspaltungen von Grundzustand und angeregtem Zustand. Für die Durchführung der Spektroskopie ist es hilfreich, diese zu kennen, um auch bei geringen Signalhöhen, wie sie für ${}^{11}\text{Li}$ erwartet werden, die Übergangsfrequenzen schnell zu finden. Zu diesem Zweck

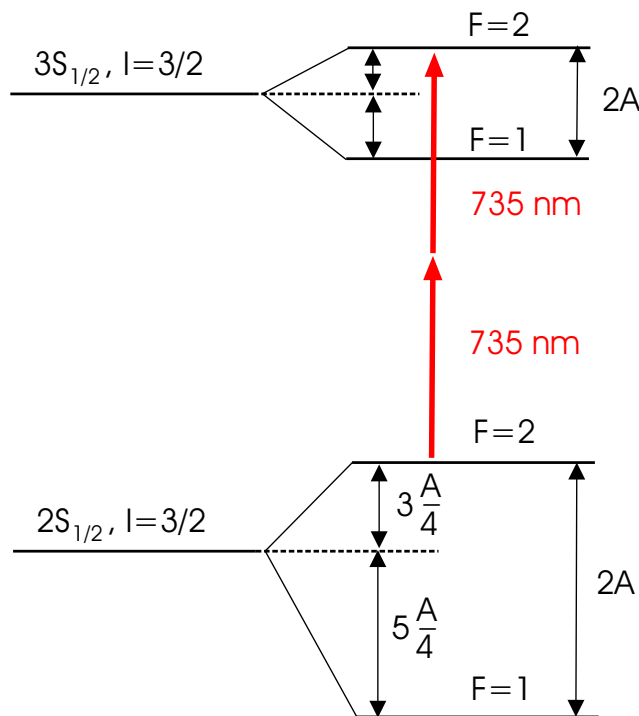


Abb. 2.4: Hyperfeinstruktur der S -Niveaus für Lithium-Isotope ungerader Massenzahl.

sind die A -Faktoren, die sich für S -Niveaus durch den Fermi-Kontaktterm $|\psi(0)|^2$ ergeben, bestimmt worden. In Einheiten von MHz erhält man:

$$A_i = 95,410\,67 \frac{g_e \mu_I |\psi(0)|_i^2}{3I} \quad [\text{MHz}] . \quad (2.30)$$

Dabei ist $g_e = 2(1 + a_e)$ der elektronische g -Faktor mit $a_e = \alpha/2\pi - 0,328 \alpha^2/\pi^2 + \dots \approx 0,002\,319\,3$. Der Fermi-Kontaktterm konnte durch Yan et al. [Yan96] berechnet werden:

$$\begin{aligned} |\psi(0)|_{2S}^2 &= 2,905\,75(22) , \\ |\psi(0)|_{3S}^2 &= 0,673\,368(86) . \end{aligned} \quad (2.31)$$

Daraus ergeben sich mit (2.30), den Kernspins aus Tab. 2.1, den magnetischen Momenten aus Tab. 2.2 und den Kernladungsradien von Suzuki et al. [Suz02], die in den vom Ladungsradius abhängigen Teil des Fermi-Kontaktterms einfließen, die in Tab. 2.6 aufgeführten A -Faktoren. Die Hyperfeinaufspaltung des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs ergibt:

$$\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}} = (A_{2S} - A_{3S}) (I + J) . \quad (2.32)$$

Tabelle 2.6: Berechnete A -Faktoren des $2S$ - und $3S$ -Niveaus in Lithium und Frequenzabstand der Hyperfeinstruktur-Resonanzen im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang $\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ nach [Yan96].

Isotop	A_{2S} [MHz]	A_{3S} [MHz]	$\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ [MHz]
${}^6\text{Li}$	152,114(17)	35,250(6)	175,296(17)
${}^7\text{Li}$	401,727(45)	93,095(15)	617,264(60)
${}^8\text{Li}$	152,995(18)	35,454(6)	293,851(29)
${}^9\text{Li}$	423,988(50)	98,253(16)	651,469(67)
${}^{11}\text{Li}$	452,890(82)	104,951(23)	695,878(118)

3 Methode

3.1 Erzeugung der radioaktiven Lithium-Isotope

Will man radioaktive Lithium-Isotope laserspektroskopisch untersuchen, so bietet sich zu deren Erzeugung die sogenannte ISOL (Isotope Separation Online)-Technik an. Hier wird ein beschleunigter Teilchenstrahl von Protonen oder Ionen auf ein dickes Target gelenkt und darin gestoppt. Durch Fragmentation, Spallation und Spaltung entstehen radioaktive Isotope, die durch Heizen und Oberflächen-Ionisation aus der Quelle freigesetzt werden. Die Ionen werden mit typischerweise 30 – 60 kV zu einem Strahl beschleunigt und in einem Dipolmagneten nach Masse getrennt. Bei der Beschleunigung bleibt die thermische Energieverteilung δE aus der Quelle nach

$$\delta E = \text{const.} = m v \delta v \tag{3.1}$$

erhalten. Mit steigender Geschwindigkeit v reduziert sich somit die Breite der Geschwindigkeitsverteilung δv und damit auch die Dopplerbreite des Ionenstrahls [Kau76]. Der isotopenselektierte Strahl eignet sich daher bereits hervorragend zur kollinearen Laserspektroskopie. Nach Neutralisierung der Ionen in einer Ladungsaustauschzelle ist auch Spektroskopie am schnellen Atomstrahl möglich [Neu87, Ott89]. Da die Spektrallinien in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung Doppler-verschoben sind, stellt die Bestimmung der Spannung eine Grenze für die Genauigkeit dieser Methode dar. Die größte Schwierigkeit ist hierbei durch die Potentialunterschiede in der Ionenquelle gegeben. Die erreichbare Genauigkeit bei der Bestimmung der optischen Übergangsfrequenzen liegt daher bei ca. 1 MHz [Göt04]. Um dieses Problem zu umgehen und die Isotopieverschiebung der Lithium-Isotope mit einer Genauigkeit besser als 200 kHz bestimmen zu können, wird hier die Methode der Doppler-freien Zweiphotonen-Spektroskopie am thermischen Atomstrahl angewandt.

Die Produktionsraten der Online-Massenseparatoren von GSI, CERN-ISOLDE und TRIUMF-ISAC für radioaktive Lithium-Isotope sind in Tab. 3.1 zusammengestellt. Man erkennt, dass am ISAC-Massenseparator (TRIUMF, Vancouver) die höchsten Raten für ^{11}Li erreicht werden und diese in einer ähnlichen Größenordnung liegen wie die der Isotope $^{8,9}\text{Li}$ an der GSI. Eine Bestimmung der Isotopieverschiebung von $^{8,9}\text{Li}$ am Online-Massenseparator der GSI ist daher auch im Hinblick auf die erforderliche Effizienz ein ausgezeichneter Test für die spätere Anwendung der Methode auf ^{11}Li .

Tabelle 3.1: Produktionsraten kurzlebiger Lithium-Isotope an verschiedenen ISOL-Anlagen.

Anlage	^8Li [s $^{-1}$]	^9Li [s $^{-1}$]	^{11}Li [s $^{-1}$]
GSI	$3 \cdot 10^5$	$1,6 \cdot 10^5$	-
ISOLDE	$6 \cdot 10^8$	$2 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^3$
ISAC	$8 \cdot 10^8$	$9 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^4$

3.2 Doppler-freie Zweiphotonen-Spektroskopie am Lithium

Neben den üblicherweise verwendeten erlaubten elektrischen Dipol-Übergängen zwischen Niveaus unterschiedlicher Parität mit $\Delta l = \pm 1$, können auch Prozesse höherer Ordnung durch Mehrphotonen-Übergänge realisiert werden. Dabei muss die Summe der Photonenenergien der Energiedifferenz der beteiligten Zustände $|g\rangle$ und $|e\rangle$ entsprechen:

$$E_{|e\rangle} - E_{|g\rangle} = \sum_i \hbar\omega_i . \quad (3.2)$$

Aufgrund der Paritätserhaltung müssen die Paritäten der beteiligten Niveaus entgegengesetzt sein, wenn eine ungerade Zahl Photonen am Prozess beteiligt ist, und gleich, wenn eine gerade Zahl an Photonen absorbiert wird. Die individuelle Dopplerverschiebung der Übergangsfrequenz ist für ein Atom mit Geschwindigkeit \mathbf{v} in erster Ordnung durch $\hbar\omega + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$ gegeben. Die Gesamtenergie der absorbierten Photonen lautet somit :

$$E_{|e\rangle} - E_{|g\rangle} = \sum_i \hbar\omega_i + \sum_i \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{v} . \quad (3.3)$$

Wenn die Impulse der Photonen die Bedingung $\sum_i \mathbf{k}_i = 0$ erfüllen, verschwindet der lineare Dopplerterm. Im Falle einer Anregung mit zwei Photonen führt diese Bedingung auf die Forderung $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$ und somit notwendigerweise auf $(\omega_1 = \omega_2 = \omega)$. Für einen atomaren Übergang von $|g\rangle$ nach $|e\rangle$ lautet die Resonanzbedingung also unabhängig von der individuellen Geschwindigkeit der Atome:

$$E_{|e\rangle} - E_{|g\rangle} = 2\hbar\omega . \quad (3.4)$$

Die Anregung eines Zweiphotonen-Übergangs kann man sich mit Hilfe eines virtuellen Zwischenniveaus $|v\rangle$ veranschaulichen. Dieses Niveau setzt sich aus allen von $|g\rangle$ und $|e\rangle$ aus erreichbaren Zuständen zusammen. Je näher einer oder mehrere dieser Zustände an diesem virtuellen Niveau liegen, desto größer wird die Übergangswahrscheinlichkeit. Gegenüber anderen Doppler-freien Methoden, bei denen eine einzige Geschwindigkeitsklasse selektiert wird (z.B. Sättigungs- und Polarisationspektroskopie), bietet dieses Verfahren den Vorteil, dass zum Signal alle Atome des thermischen Ensembles beitragen. Dies ist besonders wichtig, wenn, wie in diesem Fall, die zu spektroskopierenden Atome nur in sehr geringer Zahl vorliegen. Allerdings sind für die effiziente Anregung (Sättigung) des Übergangs relativ große Anregungsintensitäten notwendig. Diese werden bei der hier vorgestellten Lithium-Spektroskopie durch Leistungsüberhöhung in einem optischen Resonator erreicht.

Für eine präzise Bestimmung der Resonanzfrequenz und der Isotopieverschiebung sind einige systematische Effekte zu berücksichtigen:

Linienprofil Zunächst erwartet man für den Zweiphotonen-Übergang ein lorentzförmiges (homogenes) Linienprofil, welches nur von der Lebensdauer der gekoppelten Zustände – im vorliegenden Fall von der des $3S$ -Zustands ($\tau = 29,9$ ns [Fis98]) – abhängt. Dies entspricht für den $2S \rightarrow 3S$ -Übergang einer Linienbreite von 5,3 MHz. Statistische Schwankungen der Laserfrequenz (Jitter) führen jedoch zu einer inhomogenen Verbreiterung der Resonanz. Die Linienbreite des verwendeten Lasers liegt bei 0,5 bis 1 MHz (siehe Kapitel 4.3.2) und damit

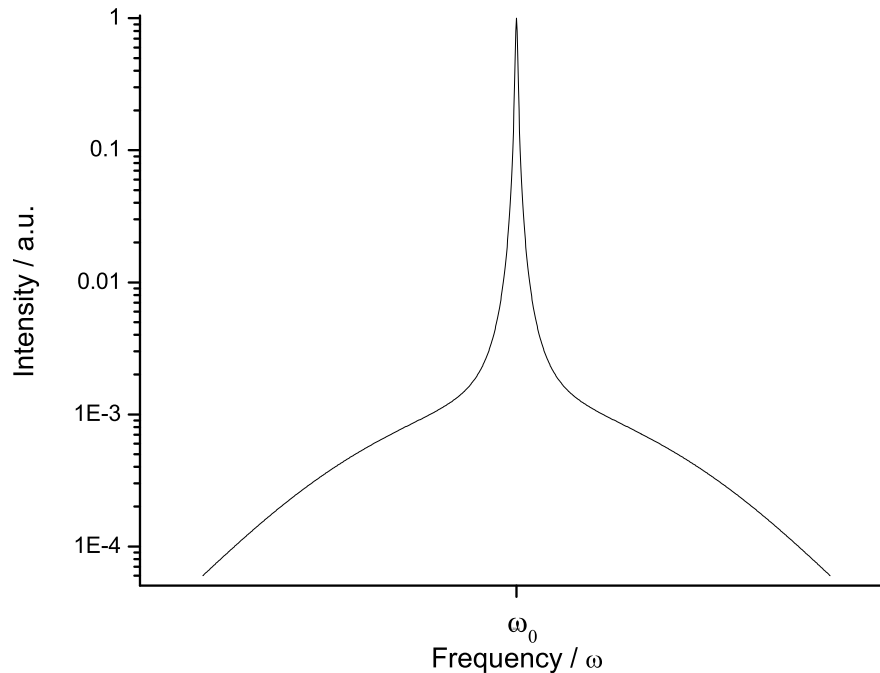


Abb. 3.1: Linienprofil eines Zweiphotonen-Übergangs.

etwa in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite. Eine Beschreibung des Linienprofils durch eine Voigtfunktion ist daher angebracht.

Neben der Resonanzbedingung (3.4) für den Doppler-freien Übergang kann ein Atom mit der Geschwindigkeit \mathbf{v} aber auch bei der Frequenz $2\hbar\omega' = (E_{|e\rangle} - E_{|g\rangle}) \pm \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$ resonant angeregt werden. Dafür müssen zwei Photonen aus der gleichen Richtung absorbiert werden. Zu diesem Doppler-verbreiterten Signal tragen jedoch nur Atome einer Geschwindigkeitsklasse bei. Es ist daher gegenüber der Doppler-freien Resonanz typischerweise um 2 bis 3 Größenordnungen unterdrückt. Damit ergibt sich insgesamt ein Linienprofil, wie es in Abb. 3.1 dargestellt ist.

Quadratischer Dopplereffekt Neben dem Dopplereffekt erster Ordnung, der bei der Zweiphotonen-Spektroskopie aufgehoben wird, gibt es einen Dopplereffekt zweiter Ordnung. Dieser bewirkt eine systematische Verschiebung der Resonanzfrequenz ν_0 eines Übergangs. Die Verschiebung ist durch

$$\Delta\nu_{\text{Dopp}^2} = -\frac{1}{2}\nu_0 \left(\frac{v}{c}\right)^2 \quad (3.5)$$

gegeben und hängt quadratisch von der Geschwindigkeit v ab. Die Geschwindigkeit der Lithium-Isotope lässt sich aus ihren Massen bei einer angenommenen Temperatur von $T = 2000$ K berechnen. Die Ergebnisse sowie die aus (3.5) folgenden Verschiebungen der Übergangsfrequenz des Zweiphotonen-Übergangs sind in Tab. 3.2 aufgeführt. Es ergeben sich für ${}^6\text{Li}$ etwa -25 kHz als maximale Rotverschiebung, für ${}^{11}\text{Li}$ sind es nur noch etwa -14 kHz. Der maximale Beitrag des quadratischen Dopplereffekts zur Isotopieverschiebung zwischen dem Referenzisotop ${}^7\text{Li}$ und ${}^{11}\text{Li}$ liegt bei lediglich 8 kHz und kann somit bei der angestrebten Genauigkeit von etwa 200 kHz vernachlässigt werden.

Tabelle 3.2: Wahrscheinlichste Geschwindigkeit v der Lithium-Isotope bei $T = 2000$ K und Beiträge des Dopplereffekt zweiter Ordnung zur Rotverschiebung der Resonanz.

Isotop	v [m/s]	$\Delta\nu_{\text{Dopp}^2}$ [kHz]
${}^6\text{Li}$	2 350	-25
${}^7\text{Li}$	2 180	-22
${}^8\text{Li}$	2 040	-19
${}^9\text{Li}$	1 920	-17
${}^{11}\text{Li}$	1 740	-14

Lichtverschiebung Bei hohen Laserleistungen, wie sie für die Zweiphotonen-Spektroskopie notwendig sind, bewirkt das anregende Laserfeld eine Verschiebung der atomaren Energieniveaus. Der Effekt wird als Lichtverschiebung oder AC-Stark-Verschiebung bezeichnet, da die Stärke abhängig von der Lichtintensität ist [Coh98]. Die Verschiebung des Zustands $|n\rangle$ geschieht aufgrund der Wechselwirkung des Lichtfelds der Feldstärke \mathbf{E}_0 mit dem im Atom induzierten elektrischen Dipol. Mit den Dipolmatrixelementen \mathbf{P}_{mn} zwischen den Zuständen m und n lässt sich die Lichtverschiebung δE_{Licht} nach [Lia75] als

$$\delta E_{\text{Licht}} = \frac{1}{4} \sum_m |\mathbf{P}_{mn} \mathbf{E}_0|^2 \left(\frac{1}{E_n - E_m - \hbar\omega} + \frac{1}{E_n - E_m + \hbar\omega} \right) \quad (3.6)$$

schreiben. Es muss über alle Zustände $|m\rangle$ summiert werden, die vom Ausgangsniveau $|n\rangle$ aus mit einem Dipolübergang erreichbar sind. Die Verschiebung wird in der Nähe eines resonanten Übergangs sehr groß, da der Nenner klein wird. Daraus ergibt sich unmittelbar die Forderung, dass weder das $2S$ -, noch das $3S$ -Niveau resonant an ein weiteres Niveau gekoppelt werden sollte.

Exakt in Resonanz sind \mathbf{P}_{mn} und \mathbf{E}_0 um 90° phasenverschoben, jenseits der Resonanz kehrt sich das Vorzeichen der Verschiebung um. Ist also die Frequenz des Lichts gegenüber dem koppelnden Übergang rot verschoben, so vergrößern sich die Abstände der beiden beteiligten Energieniveaus, bei einer Blauverschiebung nähern sie sich einander an. Im hier betrachteten Fall ergibt sich die Gesamtverschiebung der Resonanzfrequenz aus der Differenz der Verschiebungen δE_{Licht} der beiden Niveaus $2S$ und $3S$ des Zweiphotonen-Übergangs:

$$\delta\nu_{\text{Licht}}^{2S \rightarrow 3S} = \frac{1}{h} (\delta E_{\text{Licht}}^{2S} - \delta E_{\text{Licht}}^{3S}) \quad (3.7)$$

Für den Fall, dass die Energie des anregenden Laserfelds $\hbar\omega$ gegenüber der Energiedifferenz der koppelnden Zustände $E_n - E_m$ weit verstimmt ist, ergibt sich aus (3.6) eine quadratische Abhängigkeit der Lichtverschiebung $\delta\nu_{\text{Licht}}$ von \mathbf{E}_0 und somit eine lineare Abhängigkeit von der Intensität I des Lichts:

$$\delta\nu_{\text{Licht}} \propto I \quad (3.8)$$

Ist der Einfluss des Lichts auf alle Isotope gleich, so genügt es zur Ermittlung der Isotopieverschiebung die Übergangsfrequenzen bei gleichen Intensitäten zu vergleichen. Alternativ kann man die Übergangsfrequenzen als Funktion der Lichtintensität messen, linear zu verschwindenden Intensitäten extrapolieren und dann vergleichen.

3.3 Anregungsschema für die Lithium-Resonanz-Ionisations-Spektroskopie

Will man mit laserspektroskopischen Methoden hohe Effizienzen erreichen, verbietet sich oftmals der Nachweis von Fluoreszenz-Photonen wegen seiner geringen Effizienz. Diese kann man häufig durch Ionisation der Atome in einer Mehrphotonen-Anregung erheblich steigern. Die entstandenen Ionen lassen sich effizient aus der Wechselwirkungsregion abziehen und mit einem Teilchendetektor nachweisen. Durch die Verwendung eines Massenspektrometers kann zusätzlich der Untergrund durch Ionen anderer Masse unterdrückt werden. Im hier vorgestellten Fall werden thermische Atome in der Ionisationsregion eines Quadrupol-Massenspektrometers (QMS) angeregt und ionisiert. Die Ionen durchlaufen das Massenfilter und werden zum Nachweis in einen Channeltron-Detektor gelenkt. Die Kombination aus Resonanz-Ionisations-Spektroskopie (RIS) und Massenspektrometrie wird als Resonanz-Ionisations-Massenspektroskopie (RIMS) bezeichnet. Die Effizienz dieser Methode wird im Wesentlichen durch das verwendete Anregungsschema bestimmt. Für Lithium wurde in einer vorangegangenen Arbeit [Sch00a] ein mehrstufiges Anregungsschema entwickelt, welches in Abb. 3.2 dargestellt ist. Im Folgenden soll kurz erklärt werden, wodurch es sich gegenüber anderen auszeichnet.

Die einfachste Möglichkeit der Resonanzionisation wäre die direkte Ionisation nach der Anregung in das $3S$ -Niveau. Dazu ist eine Laserwellenlänge $\lambda \leq 614$ nm nötig. Um die hohen Sättigungsleistungen für einen nichtresonanten Übergang ins Kontinuum zu erzeugen, bietet sich ein leistungsstarker Festfrequenzlaser, wie z.B. ein Argon-Ionen-Laser, an. Dieser hat seine stärkste Linie bei 514 nm und wurde zur Spektroskopie an stabilem Lithium in vorbereitenden Studien verwendet [Sch00b, Bus03]. Die Effizienz dieses Anregungsschemas ist jedoch nicht ausreichend für radioaktive Isotope. Außerdem ist die gleichzeitige resonante Überhöhung eines Festfrequenzlasers und eines Lasers, der über den $2S \rightarrow 3S$ -Übergang gestimmt wird, in einem Resonator nicht möglich.

Prinzipiell bestünde auch die Möglichkeit, autoionisierende Zustände im Ionisationskontinuum zu erreichen und damit die Ionisation durch einen weiteren resonanten Übergang noch effizienter zu gestalten. Für Lithium ist dies jedoch nicht möglich, weil die ersten autoionisierende Zustände ca. 50 eV über der Ionisationsgrenze liegen und damit außerhalb der Reichweite konventioneller Laserstrahlung sind.

Eine weitere resonante Anregung aus dem $3S$ - in das $5P$ -Niveau bei 847 nm mit nachfolgender Ionisation, wurde ebenfalls in einer vorangegangenen Dissertation untersucht [Sch00a]. Dabei stellte sich heraus, dass die resonante Kopplung des $3S$ - an das $5P$ -Niveau zu einer massiven AC-Stark-Verbreiterung und -Verschiebung führt, die eine präzise Bestimmung der $2S \rightarrow 3S$ -Resonanz unmöglich machen.

Gelöst werden konnte dieses Problem durch das Entkoppeln der hochpräzisen Spektroskopie von der effizienten Ionisation. Dazu nutzt man den spontanen Zerfall des $3S$ - in das $2P$ -Niveau aus. Aus dem $2P_{3/2}$ -Zustand, in den 66% der angeregten Atome zerfallen, erfolgt dann die Anregung in das Kontinuum über das $3D$ -Niveau als resonanten Zwischenschritt. Letzteres erfordert eine Wellenlänge von 610 nm, die mit einem Farbstofflaser erzeugt wird. Zur nicht-resonanten Ionisation tragen beide Laser bei. Hier werden, ebenso wie für den Zweiphotonen-Übergang, möglichst große Intensitäten benötigt, um eine hohe Effizienz zu erreichen. Eine große Intensität des 610-nm-Laserstrahls ist weiterhin erforderlich, um den starken $2P \rightarrow$

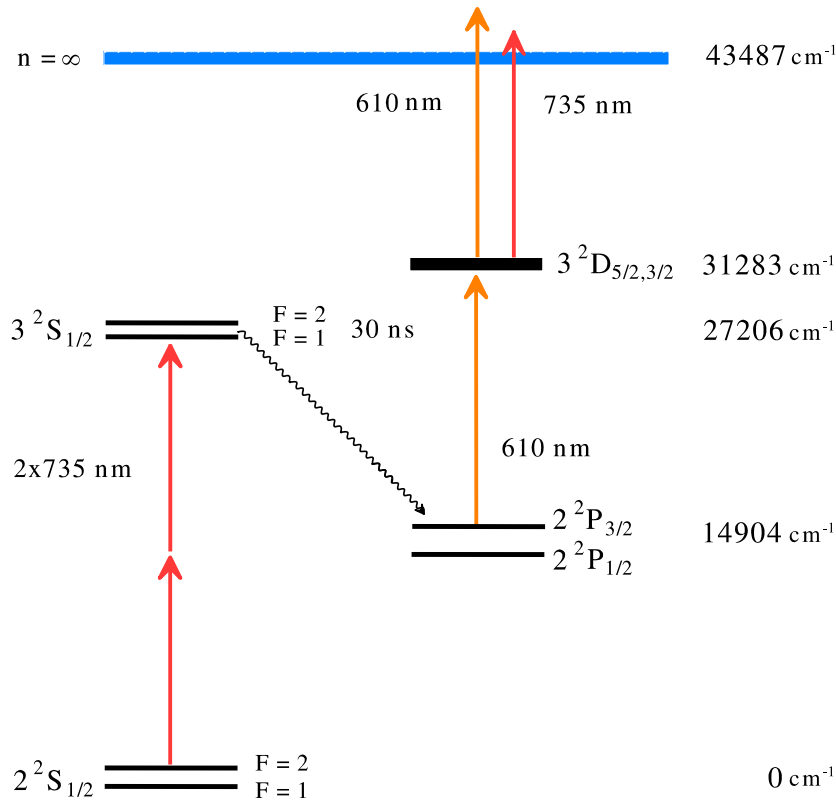


Abb. 3.2: Termschema zur Mehrphotonen-Ionisation im Lithium. Ein Titan-Saphir-Laser wird für die Zweiphotonen-Anregung bei 735 nm benutzt, ein Farbstofflaser bei 610 nm treibt den $P \rightarrow D$ -Übergang. Zur Ionisation tragen beide Laser bei.

$3D$ -Übergang durch Sättigung ausreichend zu verbreitern. Wenn die Sättigungsverbreiterung die Dopplerbreite von etwa 3 bis 4 GHz überschreitet, werden auch in diesem Schritt alle Atome angeregt. Bei einer solch massiven Verbreiterung überlappen die beiden Feinstrukturkomponenten des $3D$ -Niveaus, die in einem Abstand von etwa 1,1 GHz zueinander liegen. Dies führt dazu, dass die Anregungseffizienz über einen Frequenzbereich von etwa 1 GHz konstant ist. Wie in den nächsten Kapiteln näher erläutert wird (vgl. Kap. 4.3.3 und 5.3.2), ist dies erforderlich, um systematische Effekte auf das Linienprofil auszuschließen, die sich andernfalls durch das synchrone Verstimmen von Titan-Saphir- und Farbstofflaser ergeben könnten. Bei noch höheren Laserintensitäten könnte sogar ein Überlapp der Feinstruktur der beiden P -Zustände erreicht werden, deren Aufspaltung 10,2 GHz beträgt. Dann könnten auch die in das $2P_{1/2}$ -Niveau zerfallenden angeregten Atome verstärkt zur Ionisation beitragen.

Abschließend sei noch erwähnt, dass der alternative Nachweis der Fluoreszenzphotonen des Zerfalls vom $3S$ - in das $2P$ -Niveau mit dem Resonanz-Ionisations-Nachweis verglichen wurde. Dabei stellte sich heraus, dass der Nachweis der Ionen im Vergleich zur Fluoreszenz ein etwa 14 Mal höheres Signal bei gleichzeitig 100-fach besserem Signal-Untergrund-Verhältnis bietet [Sch00a].

4 Experimenteller Aufbau

Die Beschleunigeranlage der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) ist in Abb. 4.1 dargestellt. Hier können von Wasserstoff bis Uran alle Ionen beschleunigt werden. Auf der linken Seite von Abb. 4.1 befinden sich die Käfige für die Penning- und Hochstromquellen. In der darauf folgenden ersten Beschleunigerstrecke des UNILAC (universeller Linearbeschleuniger) aus RFQ und IH werden die Ionen auf 1,4 MeV/u beschleunigt und im Gas-Stripper auf den für den folgenden Alvarez-Beschleuniger notwendigen Ladungszustand (von $m/q = 6-8$) gebracht. An dieser Stelle kann auch der direkte Einschuss aus dem Hochladungsinjektor erfolgen, der unmittelbar in den Alvarez-Beschleuniger eingespeist werden kann. Dieser besteht aus vier Beschleunigereinheiten, worauf zur weiteren Beschleunigung eine Reihe von Resonatoren folgt. Am Ende des UNILAC befindet sich eine Experimentierhalle. An dem dort befindlichen

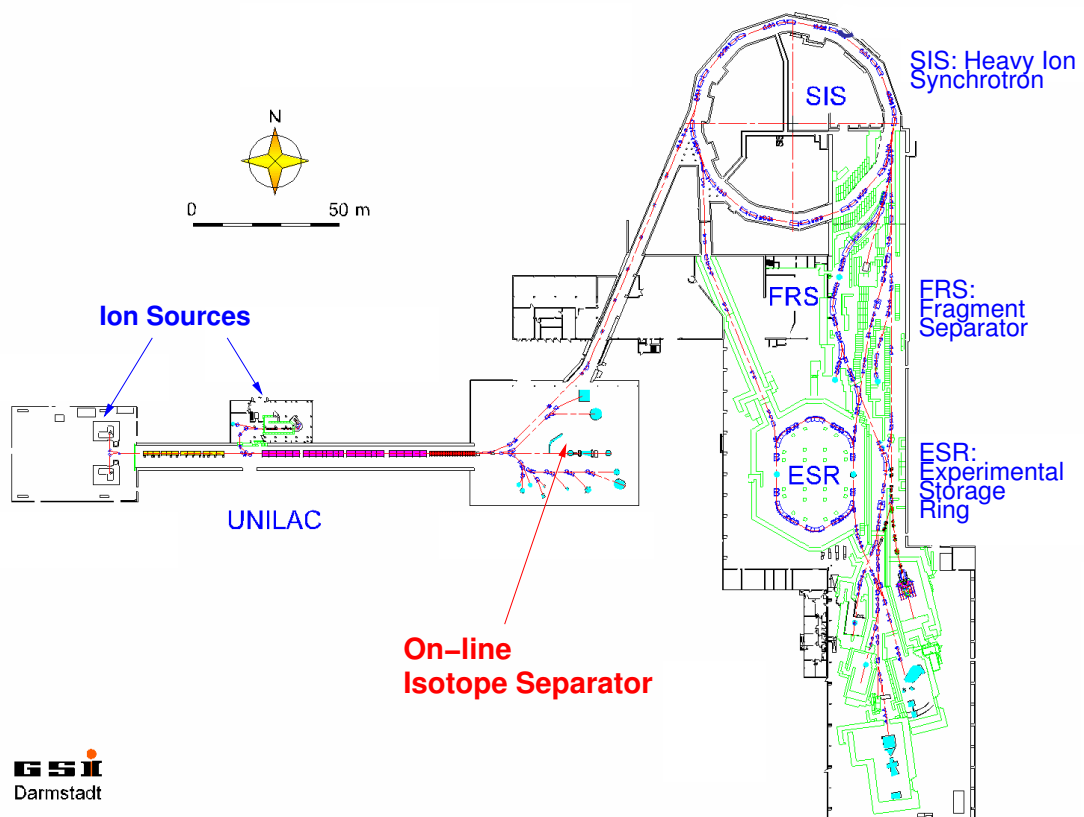


Abb. 4.1: Beschleunigeranlage der GSI. Am Online-Massenseparator in der UNILAC-Experimentierhalle war das Experiment zur Laserspektroskopie an Lithium-Isotopen aufgebaut.

Online-Massenseparator, wie er in Kap. 3.1 und im nächsten Abschnitt beschrieben wird, werden die für das Experiment erforderlichen radioaktiven Lithium-Isotope in Kernreaktionen erzeugt und nach der Masse separiert. Im rechten Teil der Abbildung befindet sich der Hochenergeteil der Beschleunigeranlage, der aus Schwerionensynchrotron (SIS), Fragmentseparator (FRS), Experimentierspeicherring (ESR) und einer weiteren Experimentierhalle besteht.

An der GSI werden Ionenstrahlen auch zur Krebstherapie eingesetzt. Dazu wird ein Strahl vollständig ionisierter hochenergetischer ^{12}C -Ionen aus dem SIS verwendet. Da für die Erzeugung von Lithium-Isotopen ebenfalls ein ^{12}C -Strahl verwendet wird, kann das Lithiumexperiment parallel zum Therapiebetrieb stattfinden, weil letzterer nur einen Puls pro Sekunde verwendet, während vom UNILAC 50 Pulse pro Sekunde zur Verfügung gestellt werden. Die Ionenenergie für den Einschuss in das SIS ist dabei auf 11,4 MeV/u festgelegt.

Abbildung 4.2 zeigt den experimentellen Aufbau des Lithiumexperiments. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über den experimentellen Aufbau des Lithium-Experiments gegeben, bevor in den nachfolgenden Abschnitten auf die Details eingegangen wird.

^{12}C -Ionen werden im UNILAC auf 11,4 MeV/u beschleunigt und auf ein Target, das in der Ionenquelle des Massenseparators integriert ist, gelenkt. Die in einer Kernreaktion erzeugten Lithium-Ionen werden in der thermischen Ionenquelle oberflächenionisiert, extrahiert und auf 44 keV beschleunigt. Danach wird der Ionenstrahl in einem Dipolmagneten massensepariert. Um an einem thermischen Atomstrahl spektroskopieren zu können, wird der Ionenstrahl

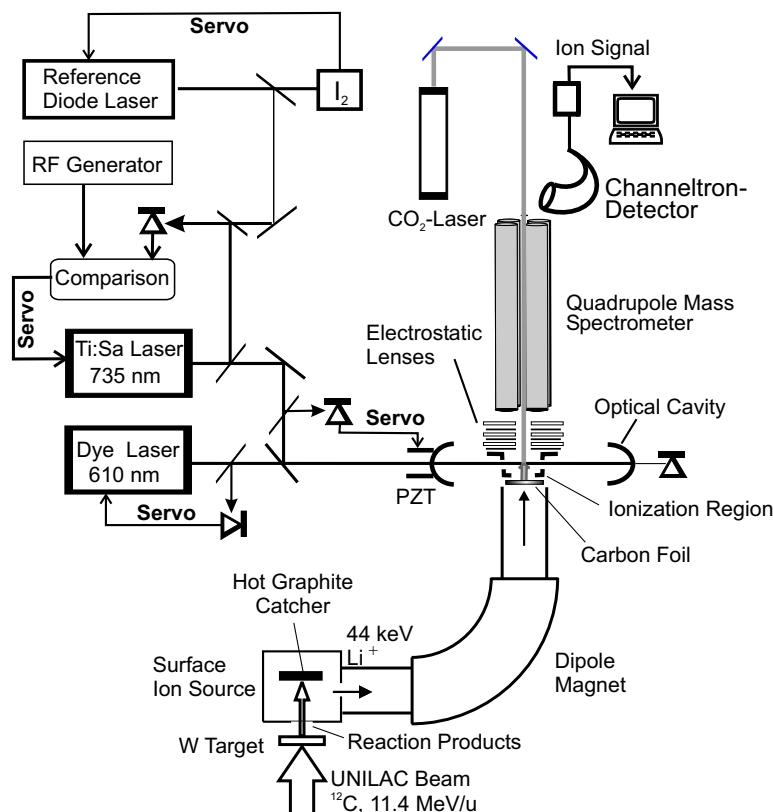


Abb. 4.2: Experimenteller Aufbau zur Bestimmung der Isotopieverschiebung radioaktiver Lithium-Isotope.

in einer Kohlenstoffolie gestoppt und von dort mit einem CO₂-Laser ausgeheizt. Der so erzeugte Strahl von thermischen, neutralen Lithium-Atomen gelangt in die Ionisationsregion eines Quadrupol-Massenspektrometers (QMS) und wird dort von einem Ti:Sa- und einem Farbstofflaser angeregt und ionisiert. Die so gebildeten Ionen werden mit dem Quadrupol-Massenspektrometer erneut nach Massen separiert und mit einem Channeltron-Detektor nachgewiesen.

Das Lasersystem ist in Abb. 4.2 auf der linken Seite skizziert. Der Diodenlaser dient als Referenz und ist auf eine Jodlinie stabilisiert, die nur wenige GHz von den Zweiphotonen-Resonanzen des Lithiums entfernt ist. Dies ermöglicht, den Ti:Sa-Laser, der die Laserstrahlung für den Zweiphotonen-Übergang bei 735 nm erzeugt, auf den Diodenlaser zu stabilisieren. Dabei wird die Schwebungsfrequenz der beiden Laser mit einer schnellen Photodiode bestimmt und mit der Frequenz eines durchstimmbaren Hochfrequenzgenerators verglichen. Auf das so erzeugte Regelsignal kann der Ti:Sa-Laser stabilisiert werden. Schließlich wird noch ein Farbstofflaser (Dye) verwendet, dessen Licht bei 610 nm für die Anregung des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs genutzt wird.

Um die erforderlichen hohen Intensitäten für eine effiziente Zweiphotonen-Anregung und Ionisation zu erreichen, wird das Licht von Ti:Sa- und Farbstofflaser überlagert und in einem optischen Resonator eingekoppelt, in dessen Zentrum die Ionisationsregion des Quadrupol-Massenspektrometers liegt. Die Resonatorlänge wird mit einem Piezoelement (PZT) auf die Frequenz des Ti:Sa-Lasers stabilisiert, während die Frequenz des Farbstofflasers wiederum auf den Resonator geregelt wird. Mittels Photodioden hinter dem hochreflektierenden Endspiegel des Resonators werden die aktuellen Leistungen im Resonator gemessen, um später den Effekt der Lichtverschiebung bei den gemessenen $2S \rightarrow 3S$ -Übergangsfrequenz korrigieren zu können.

4.1 Erzeugung eines thermischen Atomstrahls radioaktiver Lithium-Atome

Produktion der Lithium-Isotope am Online-Massenseparator der GSI

Mit der EZR-Quelle werden ¹²C-Ionen erzeugt, die vom UNILAC zu einem Strahl mit 11,4 MeV/u beschleunigt werden. Dieser wird auf das Graphittarget in der Ionenquelle des Massenseparators gelenkt. Die Ionenquelle ist in Abb. 4.3 dargestellt. Für die Produktion von ⁸Li und ⁹Li bieten sich verschiedene Transferreaktionen an, bei denen es zum Austausch eines oder mehrerer Nukleonen kommt. Um diese Kernreaktionen für die Produktion der verschiedenen Isotope zu optimieren, wird für die Produktion von ⁹Li ein zusätzliches externes Target verwendet. Darauf wird in den folgenden Absätzen genauer eingegangen.

Die Quelle besteht aus einer durch ein Fenster abgeschlossenen Kammer mit einem Volumen von weniger als 1 cm³ und einer Extraktionsöffnung mit 0,7 mm Durchmesser. In der Kammer befindet sich ein sogenannter Graphitcatcher, der zur Produktion oder zum Stoppen der Lithium-Ionen dient. Um eine schnelle Diffusion und effiziente Oberflächen-Ionisation zu gewährleisten, wird die Kammer axial über Elektronenstoß geheizt. Die Quelle ist so aufgebaut, dass die Temperatur am Catcher den Maximalwert für den verwendeten Graphit von 2300 K nicht übersteigt. Die Rhenium-Folien sind 200 - 300 K heißer, wodurch eine effiziente

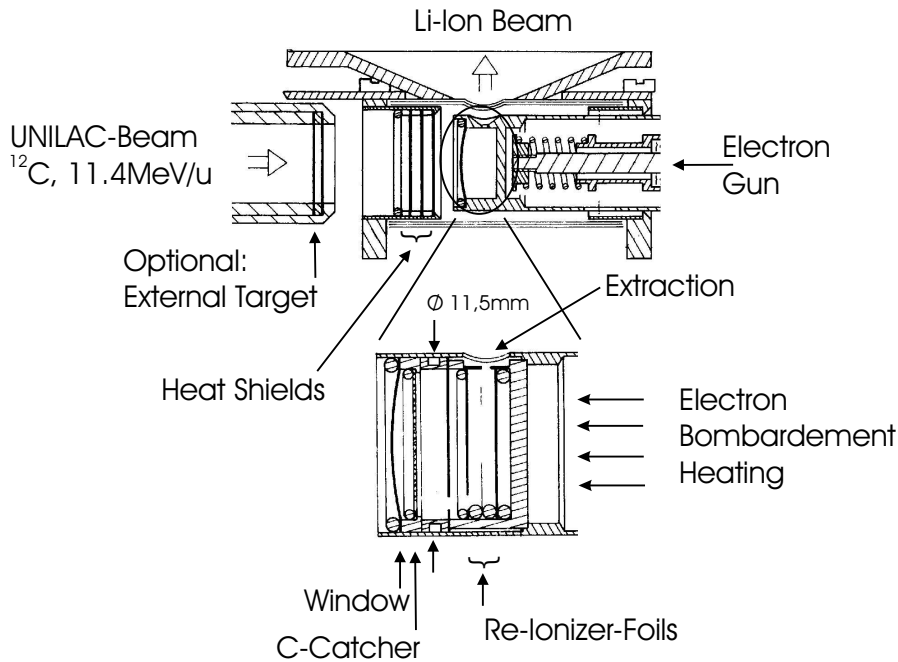


Abb. 4.3: Ionenquelle des Online-Separators der GSI mit integriertem Target, wie sie für das Lithium-Experiment eingesetzt wurde. Die Reaktionsprodukte werden entweder im externen Tantal-Target (für die Produktion von ^9Li) oder im sogenannten Graphit-Catcher (für die Produktion von ^8Li) erzeugt. In beiden Fällen werden sie im Catcher gestoppt, aufgrund der hohen Temperatur schnell freigesetzt und zwischen den Rhenium-Folien (Re) oberflächenionisiert und extrahiert. Der extrahierte Strahl wird auf 44 keV beschleunigt.

Oberflächen-Ionisation bewirkt wird. Damit die Temperatur am Fenster der Kammer nicht zu niedrig wird und die Ionen daran zu lange haften, sind Hitzeschilde dicht vor dem Fenster angebracht. Die einzelnen Quellenbestandteile für die optimale Produktion von ^8Li bzw. ^9Li sind in Tab. 4.1 aufgeführt. Auf den heißen Rhenium-Folien findet eine nahezu 100%ige Oberflächen-Ionisation statt. Die entstehenden Ionen werden von der auf +44 kV liegenden Quelle gegen Massepotential beschleunigt. Eine detaillierte Beschreibung der Quelle ist in [Kir81b] zu finden.

Für die Produktion von ^8Li empfiehlt es sich, die Kernreaktion im Graphitcatcher stattfinden zu lassen. Beim Stoppen des hochenergetischen ^{12}C -Strahls im Graphit entstehen ^8Li und ^9Li in einer symmetrischen Reaktion gleichermaßen aus Projektil und Target, wodurch eine hohe

Tabelle 4.1: Komponenten und Materialien der Online-Ionenquellen für Lithium-8 und -9.

Komponente	^8Li	^9Li
Externes Target	-	90 mg/cm ² Ta
Hitzeschild	2,3 mg/cm ² Ta	22,2 mg/cm ² W
Fenster	2,7 mg/cm ² W	11,6 mg/cm ² W
Catcher	55,6 + 48,4 mg/cm ² C	2 · 40 mg/cm ² C

Produktionsrate von ^8Li erreicht wird. Dazu befinden sich nur etwa 5 mg/cm^2 Tantal und Wolfram zur Hitzeschirmung und als Eintrittsfenster vor dem Catcher, der aus zwei Scheiben Sintergraphit von insgesamt 104 mg/cm^2 besteht (vgl. Tab. 4.1).

Für die Produktion von ^9Li hat es sich empirisch als vorteilhafter erwiesen, ein externes Tantal-Target zu verwenden und, zusammen mit den Wolfram-Folien für Hitzeschirmung und Fenster, insgesamt $123,8\text{ mg/cm}^2$ schweres neutronenreiches Targetmaterial vor dem Graphit-Catcher zu platzieren (vgl. Tab. 4.1). Dieser besteht in diesem Fall aus $2 \cdot 40\text{ mg/cm}^2$ Graphit und hat die Aufgabe, die aus dem ^{12}C -Strahl gebildeten und im Targetmaterial bereits abgebremsten ^9Li -Ionen zu stoppen. In diesem Aufbau wird zwar aus dem Targetmaterial kein Lithium als Reaktionsprodukt gebildet, jedoch erfolgt in den neutronenreichen Transfertargetmaterialien ein gezielteres Strippen von Protonen des Kohlenstoff-Projektils. Daraus ergibt sich für das Projektil eine geringere Wahrscheinlichkeit Neutronen zu verlieren, was sich für den Produktionsprozess von ^9Li als günstiger herausstellt. Die so erzeugten Lithium-Ionen werden durch die Extraktionsöffnung der Quelle abgezogen, auf 44 keV beschleunigt und massensepariert. Damit steht zum Experimentieren ein isotopenreiner Strahl zur Verfügung.

Der UNILAC-Strahl hat eine Pulsstruktur mit einer Frequenz von 50 Hz . Die Intensität des Ionenstroms hinter der ISOL-Quelle weist wegen der schnellen Freisetzung eine Restwelligkeit von bis zu 20% auf. Überdies wurde während der Strahlzeit ein Puls pro Sekunde für die Therapie verwendet. Beides stellt für die Laserspektroskopie aber kein Problem dar, weil für jeden Frequenzkanal – je nach Isotop – die Zählrate über einen Zeitraum von 1 bis 15 Sekunden gemessen wird. Dadurch heben sich die kurzzeitigen Intensitätsschwankungen auf.

Erzeugung thermischer Lithium-Atome

Um an thermischen Lithium-Atomen zu spektroskopieren, muss der massenseparierte Lithiumstrahl gestoppt werden. Dafür bietet sich die Verwendung einer Kohlenstoffolie an, da diese gute Diffusions- und Desorptionseigenschaften für Alkali-Atome besitzt [Wan02]. Eine Abschätzung der Diffusion über die mittlere freie Weglänge im Graphit bei $T = 2000\text{ K}$ ergibt eine Diffusionsgeschwindigkeit v_{Diff} in der Größenordnung von einigen $\mu\text{m/ms}$. Bei einer Foliendicke von weniger als $1\ \mu\text{m}$, die zum Stoppen eines Strahls dieser niedrigen Energie ausreichend ist, bedeutet dies, dass die Diffusionsstrecke innerhalb der Lebensdauer der Atome ein Vielfaches der Foliendicke beträgt. Dies trifft selbst für ^{11}Li bei einer Halbwertszeit von $8,6\text{ ms}$ noch zu. Die Freisetzungsgeschwindigkeit aus der Folie ist daher durch die Desorptionsegeschwindigkeit limitiert. Daher braucht für die folgenden Überlegungen zur Optimierung der Foliendicke die Lebensdauer der Atome nicht berücksichtigt werden. Außerdem ist bekannt, dass sich Alkali-Atome schnell von Kohlenstoffoberflächen lösen und die Desorptionszeit für ^{11}Li deutlich kürzer als die Lebensdauer ist [Wan02].

Experimentell am einfachsten ist eine Anordnung, bei der der Strahl von der einen Seite in die Folie implantiert und von der anderen Seite ausgeheizt wird. Dazu wird die Dicke der Folie so gewählt, dass der Strahl möglichst kurz vor der Wiederaustrittsseite gestoppt wird. Um die optimale Dicke abzuschätzen, wurde die Verteilung der Eindringtiefe in Abhängigkeit von der Energie des Ionenstrahls mit dem Programm SRIM [Zie03] simuliert. In Abb. 4.4 sind die entsprechenden Resultate für ^{11}Li bei einer Strahlenergie von 44 keV dargestellt. Man erkennt das Abstoppverhalten einer Braggkurve, bei der im Eintrittsbereich der Folie relativ wenig Ionen gestoppt werden und der Großteil in einem engen Bereich zur Ruhe kommt. Die

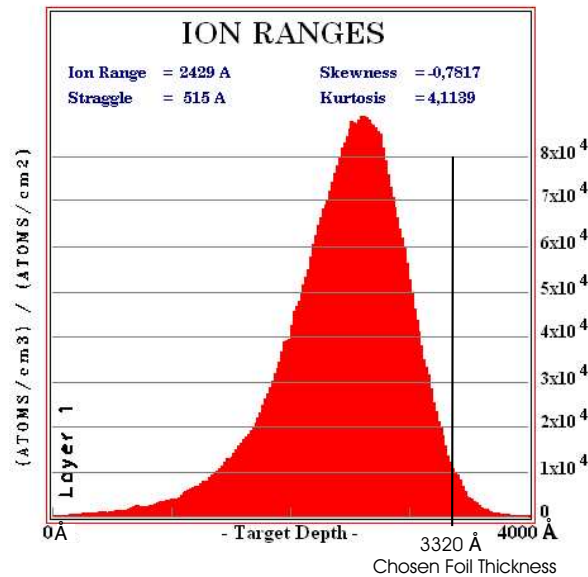


Abb. 4.4: Häufigkeitsverteilung der Reichweite (in Angström) von ^{11}Li -Ionen mit einer Energie von 44 keV in Kohlenstoff. Zur Simulation wurde das Programm SRIM [Zie03] benutzt.

Foliendicke lässt sich mit 332 nm so wählen, dass der Bereich, in dem ein Großteil der Ionen gestoppt wird, nahe der Austrittsseite liegt und nur etwa 6% des Strahls verloren gehen.

Die Ergebnisse der SRIM-Simulation für die verschiedenen Isotope und Strahlenergien sind in Tab. 4.2 zusammengefasst. Die Reichweiten und die longitudinale Streuung werden direkt von SRIM ausgegeben. Um die optimalen Foliendicken abzuschätzen, wird angenommen, dass der Freisetzunganteil $P(x)$ zur gewünschten Seite hin proportional zur Entfernung x von dieser Seite ist, also $P(x) = x/d$, wobei d die Dicke der Folie bezeichnet. $P(x)$ wird nun mit dem Anteil an Ionen $n(x)$, der in der Tiefe x implantiert wird, multipliziert und über alle Schichten Δx summiert. Die als optimal ermittelten Foliendicken und damit erreichten Transmissionseffizienzen sind ebenfalls in Tab. 4.2 aufgeführt.

Die nicht gestoppten Ionen, die die Folie durchdringen und in ihrer Energie unter 2 keV abgebremst sind ($\sim 1\%$), können im Channeltron-Detektor als massenunspezifischer Untergrund auftauchen, da das Quadrupol-Massenspektrometer bei diesen Energien seine massenselektive Wirkung aufgrund der kurzen Durchflugszeiten nicht entfalten kann. Durch den zusätzlichen Einfluss von Raumwinkel und Geometrie der Apparatur liegt dieser Anteil allerdings im Bereich von nur 10^{-7} (siehe Kap. 5.2.3) des auftreffenden Strahlstroms, was bei einer angestrebten Gesamteffizienz von 10^{-4} ein ausgezeichnetes Signal-zu-Untergrund-Verhältnis von 1000:1 erwarten lässt.

Die Heizung der Kohlenstoffolie erfolgt mit einem CO_2 -Laser (siehe Abb. 4.2), dessen Strahl durch eine geeignete Optik auf die Kohlenstoffolie fokussiert wird [Woj04]. Der Durchmesser des Laserstrahls ist an die Größe des fokussierten Ionenstrahls angepasst und beträgt etwa 1 mm. Damit wird bei voller Laserleistung (10 W) eine Folientemperatur von ca. 2000 K erreicht. Eine Verminderung der Laserleistung bis auf 4 W ist möglich, ohne eine Reduzierung der Freisetzungseffizienz hinnehmen zu müssen. Dies ist vorteilhaft, weil bei geringeren Temperaturen weniger Oberflächen-Ionen gebildet werden.

Tabelle 4.2: Eindringtiefen der verschiedenen Lithium-Isotope in Kohlenstoff bei Strahlenergien von 44 keV und 30,6 keV. Außerdem sind die optimale Foliendicken für die mit SRIM [Zie03] simulierten Verteilungen angegeben.

Isotop	⁶ Li	⁷ Li	⁸ Li	⁹ Li	¹¹ Li
Reichweite @ 44 keV [Å]	2176	2254	2310	2361	2429
Long. Streuung [Å]	445	462	481	491	515
Opt. Foliendicke [Å]	2875	2875	3092	3092	3319
Opt. Foliendicke [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	65	65	70	70	75
Opt. Transmission [%]	72	71	73	73	72
Reichweite @ 30,6 keV [Å]	1575	1646	1680	1707	1741
Long. Streuung [Å]	371	387	398	407	421
Opt. Foliendicke [Å]	2212	2212	2212	2345	2435
Opt. Foliendicke [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	50	50	50	53	55
Opt. Transmission [%]	70	70	70	69	70

Der Anteil der gebildeten Oberflächen-Ionen ist nicht leicht abzuschätzen, da die in der Literatur angegebenen Austrittsarbeiten für Kohlenstoff sehr stark variieren. Sie liegen im Bereich zwischen 4,0 und 4,8 eV. Aus diesen Zahlen ergeben sich bei 2000 K Ionisationseffizienzen [Kir81a] von 10^{-4} bis zu 1%. Um den Untergrund gering zu halten, kamen häufig Temperaturen unterhalb von 2000K zur Anwendung. Der Wert für die Ionisationseffizienz lag meist bei $\sim 10^{-4}$ (vgl. Kap. 5.2.2), was im Bereich der Abschätzungen liegt.

4.2 Massenselektiver Nachweis der laserionisierten Lithiumionen

Das Quadrupol-Massenspektrometer ist ein kommerzielles Gerät der Firma ABB Extrel und besteht aus drei funktionellen Einheiten: der Ionisationsregion mit Eintrittslinsen, dem Massenfilter (einer Anordnung von vier Stäben, an die eine Hochfrequenz mit einem Gleichspannungsanteil angelegt wird und die ausschließlich die Ionen der gewählten Masse transmittiert) und einem Channeltron-Detektor für den Nachweis der transmittierten Ionen. Das Spektrometer ist in [Bla98] ausführlich beschrieben und charakterisiert. Die Anforderungen, die beim Lithium-Experiment gestellt werden, sind: Unterdrückung der Oberflächen-Ionen, Vermeiden von Stoß-Ionisation, hohe Transmission, Unterdrückung (stabiler) Nachbarisotope, hohe Nachweiseffizienz sowie Vermeiden von Untergrund ungeladener Teilchen. Auf diese Punkte wird in den folgenden Abschnitten in Verbindung mit den drei funktionellen Einheiten genauer eingegangen.

4.2.1 Ionisationsregion mit Ionenoptik

Die Ionenoptik des Quadrupol-Massenspektrometers wird in Abb. 4.5 gezeigt. Die im Ionisationsvolumen gebildeten Ionen werden mit Hilfe eines Extraktors abgezogen und durch eine Einzellinse in das Quadrupol-Massenfilter fokussiert. Oberflächen-Ionen, die an der heißen Kohlenstoffolie entstehen, müssen effizient unterdrückt werden, da sie andernfalls zu einem

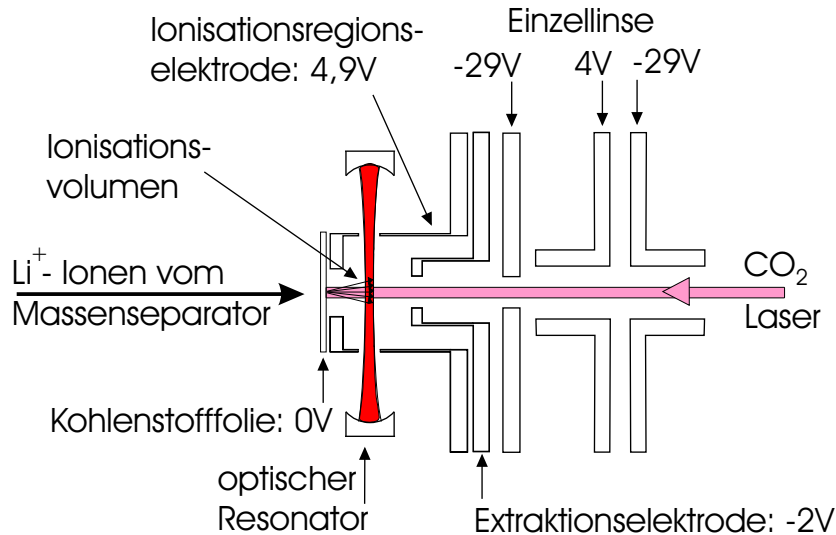


Abb. 4.5: Ionisationsregion mit optischem Resonator und Ionenoptik vor dem Quadrupol-Massenfilter. Die Lithium-Ionen treffen von links auf die Kohlenstofffolie, werden von dem von rechts kommenden CO_2 -Laserstrahl ausgeheizt, im optischen Resonator ionisiert und über die Einzellinse in das Massenfilter fokussiert. Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu.

Untergrund führen, der die Bestimmung der Resonanzmitten erschwert oder, bei zu großer Intensität, das Signal sogar völlig überdeckt. Dies wird durch ein positives Potential der Ionisationsregion gegenüber der Kohlenstofffolie erreicht. Der Folienhalter wird geerdet, um eine elektrostatische Aufladung der Folie durch den Ionenstrahl zu verhindern. Bei der Wahl der Spannungen an der Ionisationsregion muss berücksichtigt werden, dass von der Folie freigesetzte Elektronen aufgrund des Potentialunterschieds in die Ionisationsregion hinein beschleunigt werden. Überschreitet die Energie dieser Elektronen die Ionisationsenergie des Lithiums von 5,39 eV, kann es zur Stoß-Ionisation der Lithium-Atome kommen. Die so gebildeten Ionen können dann nicht mehr von Laser-Ionen unterschieden werden und tragen ebenfalls zum Untergrund bei. Bei Testexperimenten stellte sich heraus, dass eine Spannung von 4-5 V optimal ist, um einerseits die Oberflächen-Ionen um mindestens sechs Größenordnungen zu unterdrücken und andererseits einen zusätzlichen Untergrund durch Stoß-Ionisation zu vermeiden. Die Spannungen an den Elektroden werden empirisch ermittelt und sollten für eine maximale Nachweiseffizienz während des Betriebs immer wieder neu optimiert werden.

4.2.2 Das Quadrupol-Massenfilter

Das Quadrupol-Massenfilter besitzt einen freien Durchmesser von 19 mm und wird mit einer Radiofrequenz von 2,7 MHz betrieben. Die Lithium-Ionen haben eine kinetische Energie von $E_{kin} < 5$ eV. Diese Werte gewährleisten eine hohe Transmission und Selektivität. Letztere ist besonders wichtig, um bei den Messungen der radioaktiven Isotope den Untergrund durch die stabilen Isotope ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ möglichst gering zu halten. Stabile Lithium-Isotope finden sich auch bei einer hochreinen, lange ausgeheizten Folie als starke Kontamination im Kohlenstoff und können über die Lorentzschwänze des natürlichen Linienprofils ionisiert werden. In Abb. 4.6 ist ein Massenspektrum stabiler Lithium-Isotope dargestellt. Das Intensitätsver-

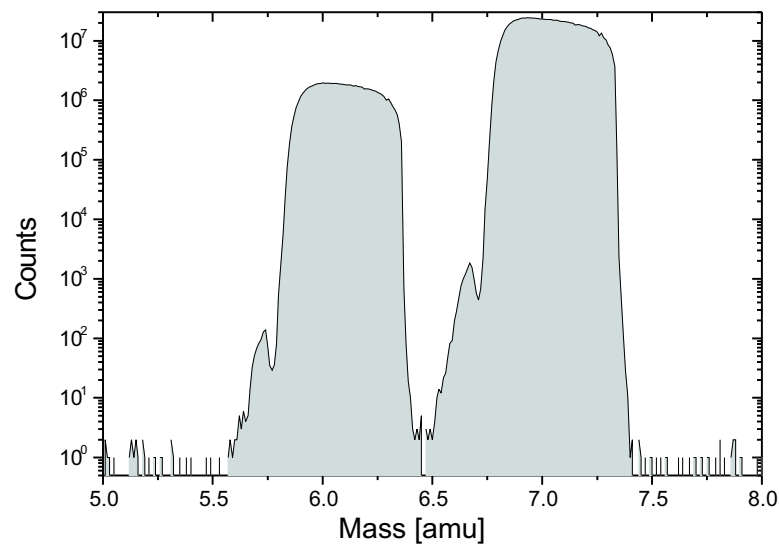


Abb. 4.6: Massenspektren der stabilen Isotope ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ mit flachem Transmissionsprofil und steilen Flanken zur Nachbarmasse. Die Signalhöhen geben das Verhältnis der natürlichen Häufigkeiten wieder.

hältnis der beiden Signale spiegelt das natürliche Verhältnis der Isotope ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ wider. Man erkennt, dass die Transmissionskurve ein flaches Maximum besitzt, so dass die exakte Masseneinstellung relativ unkritisch ist. Typisch für die Massenspektrometer dieses Typs sind die steil abfallenden Flanken (speziell zu größeren Massen hin), welche eine sehr große Nachbarmassenunterdrückung gewährleisten. Der Abbildung ist zu entnehmen, dass im Fall von Lithium eine Unterdrückung der Nachbarisotope von mehr als 10^7 erreicht wird. Dies ist für die stabilen Isotope ausreichend. Zu kleinen Massen hin ist die Flanke etwas weniger steil im Vergleich zu der zu größeren Massen und besitzt einen kleinen Einbruch, der auf nichtlineare Resonanzen zurückzuführen ist, die durch die Abweichung der realen Stabgeometrie von der idealen hyperbolischen Form verursacht werden [Bla98].

4.2.3 Der Ionennachweis

Ionen werden durch einen Channeltron-Detektor mit nahezu 100%iger Wahrscheinlichkeit nachgewiesen. Das hier verwendete Modell 402 A-H der Firma Detec lässt sich bis zu einer Zählrate von etwa 4 MHz betreiben, wobei oberhalb von 300 kHz Totzeitkorrekturen notwendig sind. Die Dunkelzählrate beträgt etwa 15 mHz. Der große dynamische Bereich ist ausreichend, um den Detektor sowohl für den Nachweis der stabilen Isotope, bei denen relativ hohe Zählraten von bis zu einigen 100 kHz in Resonanz auftreten, als auch für die Detektion der radioaktiven Isotope bis hin zum ${}^{11}\text{Li}$, bei denen in Resonanz eine Zählrate von nur wenigen Hertz erwartet wird, einzusetzen.

Der Channeltron-Detektor ist versetzt zur Durchflugsachse des Quadrupol-Massenspektrometers angebracht. Neutrale Teilchen des Atomstrahls gelangen damit nicht auf den Detektor, während die durch das Quadrupol-Massenspektrometer selektierten Ionen durch eine Spannung von 2 kV auf das Channeltron gelenkt werden.

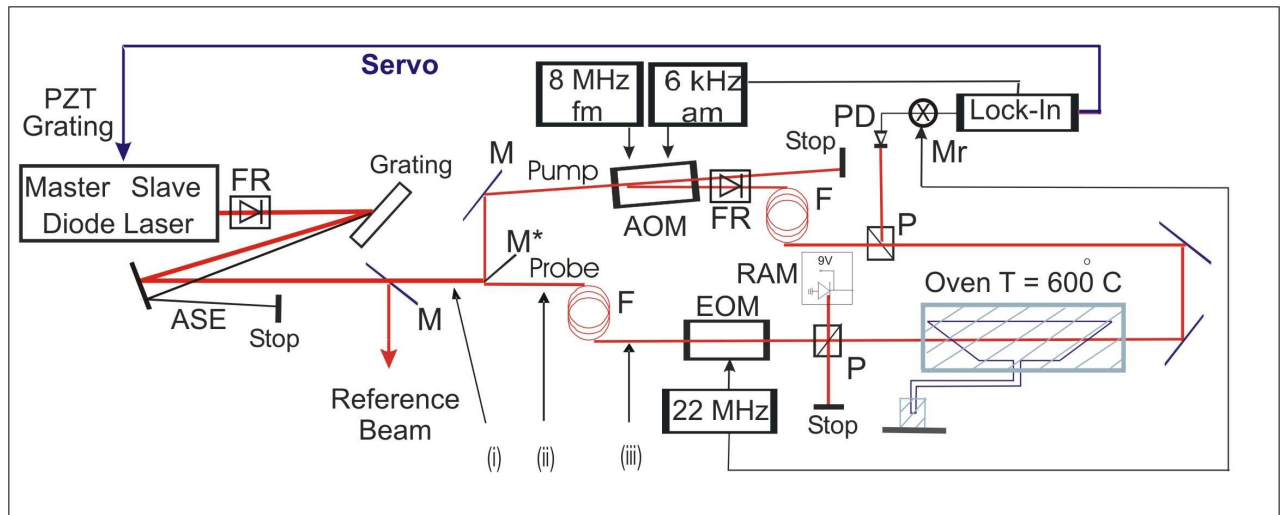
4.3 Lasersystem

4.3.1 Das Referenzlasersystem zur Frequenzmodulations-Sättigungsspektroskopie am Jod

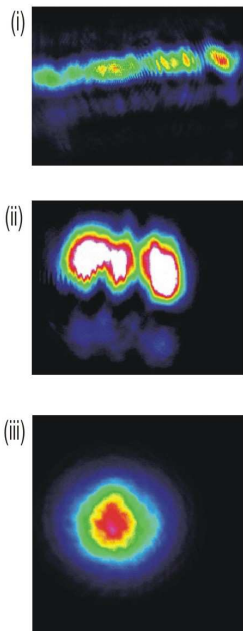
Die Isotopieverschiebung zwischen Isotopen kann auf zwei Arten bestimmt werden: durch den Vergleich der absoluten Übergangsenergien oder durch die Differenzfrequenz der Übergänge der verschiedenen Isotope. Um die Frequenzänderung des anregenden Laserlichtes möglichst exakt zu bestimmen, wird in diesem Experiment ein Referenzlaser benutzt, der auf eine Jodlinie stabilisiert ist. Relativ zu dieser Referenzfrequenz werden die Resonanzfrequenzen der Lithium-Isotope gemessen. Als geeignete Referenz hat sich der $X \ ^1\Sigma_g^+ \longrightarrow B \ O_u^- \ R(114) \ 11-2$ -Übergang im Jod erwiesen. Seine 15 Hyperfeinkomponenten (a_1 bis a_{15}) liegen inmitten der $2 \ S \rightarrow 3 \ S$ -Resonanzfrequenzen der Lithium-Isotope mit einem maximalen Abstand von 11,5 GHz zu ^6Li . Durch die Überlagerung des Laserstrahls des Referenzsystems mit dem des Ti:Sa-Lasers für den $2 \ S \rightarrow 3 \ S$ -Übergang erhält man ein Schwebungssignal. Dieses wird mit Hilfe einer schnellen Photodiode beobachtet und die Frequenz des Schwebungssignals mit einem Hochfrequenzzähler gemessen.

Referenzlaser Als Referenzlaser wird ein kommerzieller Master-Slave-Diodenlaser der Firma TOPTICA verwendet (Abb. 4.7(c)). Bei einem solchen System wird das Licht aus einem spektral sehr schmalbandigen, aber leistungsschwachen Lasersystem (Master) in ein zweites, leistungsstarkes Lasersystem (Slave = Verstärker) eingekoppelt, um dort durch induzierte Emission verstärkt zu werden. Reicht die Leistung des eingekoppelten Laserlichtes aus, um die gesamte Inversion innerhalb des Verstärkers abzurufen, so besitzt das aus dem Verstärker ausgekoppelte Laserlicht die gleiche spektrale Güte wie das eingekoppelte. Diesen Vorgang nennt man „seeden“. Im TOPTICA-Aufbau dient als Master ein Diodenlaser in Littrow-Design mit einer antireflex(AR)-beschichteten 5 mW-Singlemodediode, die bei Raumtemperatur Laserlicht mit einer zentralen Wellenlänge von ~ 732 nm emittiert. Die Diode wird bei einem Strom von etwa 65 mA und einer Temperatur von 23°C betrieben, um ihr Verstärkungsmaximum auf die gewünschte Wellenlänge zu schieben. Zur Unterdrückung einer störenden TEM_{01} -Nebenmode und zur Anpassung der Polarisation an das Littrow-Gitter ist eine $\lambda/2$ -Platte zwischen Gitter und Laserdiode eingebaut. Der Master-Laser liefert eine Leistung von ca. 4,5 mW.

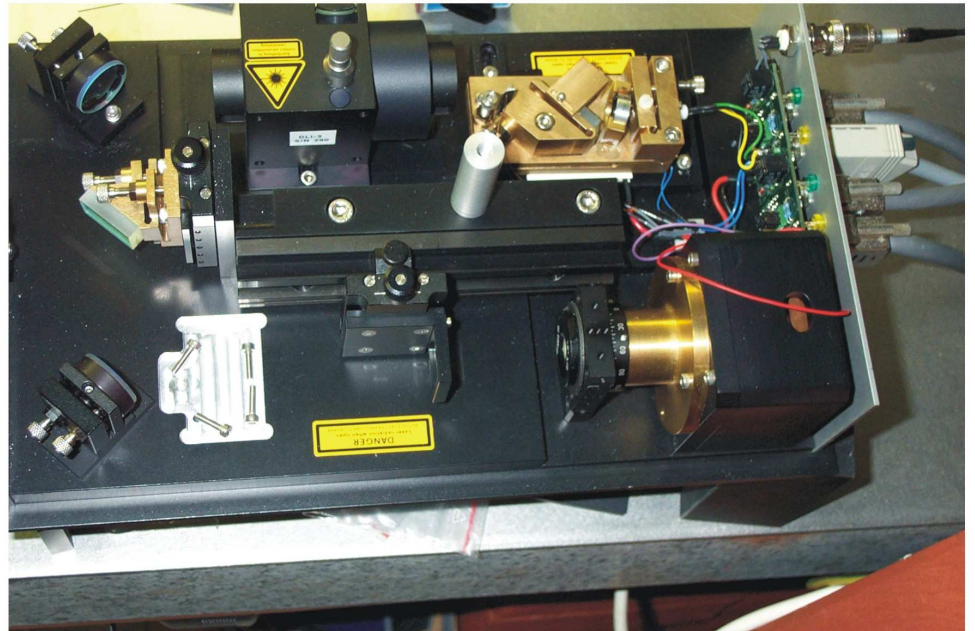
Hinter dem Littrow-Laser befindet sich zunächst ein 60 dB-Faraday-Rotator, um störende Rückkopplung aus dem noch folgenden Verstärkersystem in den Master-Laser zu vermeiden. Über zwei Spiegel und eine Zylinderlinse wird das Laserlicht dann in den Verstärker-Laser eingekoppelt, bei dem es sich um eine AR-beschichtete 300 mW Breitstreifendiode mit einer zentralen Wellenlänge von 740 nm handelt. Um das Verstärkungsprofil zur gewünschten Wellenlänge zu verschieben, ist ihre Temperatur auf 11°C stabilisiert. Der Strom durch die Breitstreifendiode muss so gewählt werden, dass eine möglichst hohe Laserleistung erzielt wird. Dabei ist zu beachten, dass bei relativ geringer Leistung des Masters und starker Inversion auch die spontane Emission des Verstärkers verstärkt wird. Dieser Effekt, der im Englischen *amplified spontaneous emission* (ASE) genannt wird, führt dazu, dass im Frequenzspektrum des Laserlichts neben dem schmalbandigen geseedeten Anteil ein breitbandiger Untergrund auftritt. Dies ist bei dem gezeigten Lasersystem auch der Fall, da die etwa 3 mW Laserleistung, die unmittelbar vor Eintritt in die Verstärkerdiode zur Verfügung stehen, nicht ausreichen,



(a)



(b)



(c)

Abb. 4.7: Frequenzmodulations-Sättigungsspektroskopie am Jod: (a) Schema des Aufbaus: Der vom Referenzlaser (Master Slave Diode Laser) emittierte Strahl durchläuft einen optischen Isolator (FR), wird am einem Gitter (Grating) von der sogenannten *amplified spontaneous emission* (ASE) bereinigt und an Spiegeln (M) und Kantenspiegel (M*) in einen Analyse- (Reference Beam), sowie Sättigungs- und Sondenstrahl aufgeteilt. An den Stellen (i) - (iii) wurden die Strahlprofile aufgenommen. Der Sättigungsstrahl wird in einem akusto-optischen Modulator (AOM) um 8 MHz frequenzverschoben (fm) und mit 6 kHz amplitudenmoduliert (am). An den Monomodenfasern (F) wird das Strahlprofil angepasst, und an den Polarisationsstrahlteilern (P) werden die Polarisierungen von Sättigungs- (Pump) und Sondenstrahl (Probe) senkrecht zueinander gewählt. Dem Sondenstrahl werden mit einem elektro-optischen Modulator (EOM) Seitenbänder aufgeprägt. Die bei der Modulation entstehende sogenannte Restamplitudenmodulation (RAM) wird detektiert und durch einen Regelkreis unterdrückt. Das Sättigungssignal wird von einer Photodiode (PD) detektiert, mit einem Mischer (Mr) und einem phasenempfindlichen Verstärker (Lock-In) wird daraus ein Regelsignal erzeugt (Servo), das über ein Piezoelement an einem Gitter im Referenzlaser (PZT Grating) den Regelkreis schließt. (b): Strahlprofile, aufgenommen an den in Abb. 4.7(a) angegebenen Stellen (i) - (iii) (c): Photographie des Diodenlasersystems mit Verstärker.

um die gesamte Inversion abzurufen. Bei einem Betriebsstrom der Breitstreifendiode von etwa 730 mA erhält man unter den genannten Bedingungen knapp 100 mW Ausgangsleistung. Eine weitere Erhöhung des Stroms führt zu keiner weiteren Steigerung der Laserleistung bei der gewünschten Frequenz.

Anpassen des Strahlprofils und spektrale Aufbereitung Der so betriebene Laseraufbau hat eine Beimischung von einigen Prozent an ASE sowie das für Breitstreifendioden typische sehr breite, flache und inhomogene Modenprofil. Um für die Jodspektroskopie ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erreichen, muss der ASE-Anteil entfernt und das Strahlprofil in eine TEM₀₀-Mode transformiert werden. Da der ASE-Anteil breitbandig ist, lässt er sich nach der Auskopplung aus dem Lasersystem mit einem Goldgitter (Grating) abtrennen und entfernen. Der verbleibende Strahl hat nahezu die Frequenzeigenschaften des Littrow-Master-Lasers mit einer Linienbreite von etwa einem MHz sowie einer Leistung von ca. 77 mW. Der vom Gitter gebeugte Strahl erster Ordnung wird für die Jodspektroskopie verwendet, während der Strahl nullter Ordnung in ein Fabry-Pérot-Interferometer (FPI) und ein Wavemeter eingekoppelt wird (Reference Beam). Damit kann die Frequenz des Lasers grob auf die Frequenz der Jodlinie abgestimmt werden. Um Rückkopplung in den Verstärker zu verhindern, wird nach dem Gitter ein optischer Isolator (FR) mit 40 dB verwendet. Das Strahlprofil des Lasers an der Stelle (i) ist in Abb. 4.7(b) gezeigt. Es weist mehrere Intensitätsmaxima auf. Für die Jodspektroskopie ist aber ein gut fokussierbares und wohldefiniertes Strahlprofil notwendig. Aus diesem Grund wird eine Monomodenfaser (F) eingesetzt, um einen TEM₀₀-Strahl zu erhalten. Um dies möglichst effektiv zu gestalten, wird der Strahl zunächst an einem Kantenspiegel (M*) in zwei Teilstrahlen aufgespalten, von denen einer als Sondenstrahl und einer als Sättigungsstrahl für die Jodspektroskopie präpariert wird.

Sättigungs- und Sondenstrahl Der optische Aufbau zur Frequenzmodulations-Sättigungs-spektroskopie am Jod ist in Abb. 4.7(a) dargestellt. Der Sondenstrahl wird sofort in eine Monomodenfaser (F) eingekoppelt. Das Strahlprofil vor und nach der Faser an den Stellen (ii) und (iii) ist in Abb. 4.7(b) dargestellt. Die deutliche Verbesserung des Intensitätsprofils ist zu erkennen. Üblicherweise können etwa 50 - 55% der vor der Faser vorhandenen Leistung in das TEM₀₀-Profil hinter der Faser überführt werden, so dass hier mit 8 - 9 mW ausreichend Leistung für die Spektroskopie zur Verfügung steht.

Der Sättigungsstrahl wird zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses mit Hilfe eines akusto-optischen Modulators (AOM) um 8 MHz frequenzverschoben und mit einer Frequenz von 6,6 kHz amplitudenmoduliert. Letzteres ermöglicht die Detektion des schwachen Signals in einem phasenempfindlichen Verstärker (Lock-In). Durch die Frequenzverschiebung lässt sich erreichen, dass Licht des Sättigungsstrahls, welches in den Sondenstrahl gestreut wird, nicht zu einem frequenzabhängigen Untergrund und damit zu einem asymmetrischen Fehlersignal führt. Dem gleichen Zweck dient ein optischer Isolator (FR), der hinter dem AOM positioniert ist und Rückreflexionen vom Faserende durch den AOM in den Sondenstrahl verhindert. Das Licht der ersten Ordnung des AOMs wird ebenfalls in eine Monomodenfaser eingekoppelt. Die Effizienz für das Konvertieren in den TEM₀₀-Strahl liegt hier bei 45 - 50%, so dass 14 - 16 mW zur Verfügung stehen. Damit wird die Sättigungsleistung zwar noch nicht erreicht, für die Spektroskopie steht jedoch genügend Leistung zur Verfügung. Beide Fasern sind mit Knetmasse ummantelt, um ihnen Steifigkeit zu verleihen und so eine Änderung der Polarisation

durch Änderung der Spannung in der Faser zu vermeiden.

FM-Sättigungsspektroskopie Die Stabilisierung des Referenzlasers erfolgt durch Frequenzmodulations(FM)-Sättigungsspektroskopie mit Regelung auf eine der Hyperfeinkomponenten des Übergangs im Jod. Wechselwirken Sättigungs- und Sondenstrahl mit der gleichen Geschwindigkeitsklasse der Moleküle, so führt die Entvölkerung der am Übergang beteiligten Niveaus durch den Sättigungsstrahl zu einer Änderung in der Absorption und Dispersion des Sondenstrahls. Bei der FM-Sättigungsspektroskopie erfolgt die Detektion dieser Änderung über Seitenbänder, die dem Sondenstrahl in einem elektro-optischen Modulator (EOM) aufmoduliert werden. Die Prinzipien der FM-Sättigungsspektroskopie sind in der Literatur ausführlich beschrieben [Geh85, Hal81]; hier soll daher nur auf die spezielle Realisierung in diesem Experiment eingegangen werden. Sättigungs- und Sondenstrahl werden über Verzögerungsplatten und Polarisationsstrahlteiler (P) senkrecht zueinander polarisiert und in der Jodzelle als nahezu parallele Strahlen mit einer Strahltaile mit einem Durchmesser von etwa 1 mm, die durch eine langbrennweitige Linse erzeugt wird, im Zentrum der Zelle fokussiert und überlagert. Am Polarisationsstrahlteiler auf der Sättigungsstrahl-Seite wird der Sondenstrahl ausgekoppelt und mit einer schnellen Photodiode detektiert. Das verstärkte und mit einem Hochpass gefilterte Signal wird zunächst auf der Frequenz der Seitenbänder demoduliert und anschließend im Lock-In-Verstärker bei den 6,6 kHz der AOM Amplitudenmodulation nachgewiesen. Um eine frequenzabhängige Verschiebung der Grundlinie und somit Fehler beim Regelpunkt zu vermeiden, muss die Restamplitudenmodulation (RAM), die bei der Frequenzmodulation aus technischen Gründen nie ganz vermieden werden kann, durch eine weitere Regelung unterdrückt werden. Dazu wird ein Teil des Sondenstrahls nach dem Durchgang durch den EOM ausgekoppelt und auf eine schnelle Photodiode gegeben. Das Signal wird demoduliert und über einen Regler in Form eines DC-Offsets auf den EOM-Kristall zurückgeführt. Die angelegte Spannung ändert die elektro-optischen Eigenschaften des Kristalls derart, dass die Restamplitudenmodulation beseitigt wird.

Jodspektrum Ein Spektrum der Hyperfeinstruktur des $X \ ^1\Sigma_g^+ \longrightarrow B \ O_u^-$ R(114) 11-2-Übergangs ist in Abb. 4.8 dargestellt. Es besteht aus drei Einzelkomponenten (a_1 , a_{10} , a_{15}) und drei Linienstrukturen, die sich aus jeweils vier unaufgelösten Hyperfeinkomponenten zusammensetzen. Von den drei einzelnen Linien bietet sich aufgrund ihrer Lage und ihrer relativen Stärke die a_1 -Komponente als Referenzlinie an. Das theoretisch erwartete Spektrum der Jodlinie wurde von H. Knöckel [Knö03] berechnet und ist in Abb. 4.8 mit dem gemessenen Spektrum verglichen; dazu ist dieses auf die absolute Wellenzahl und die Intensität der berechneten a_1 -Linie normiert. Die sich ergebende Übereinstimmung der Positionen, Linienformen und relativen Signalstärken der Hyperfeinkomponenten ist ausgezeichnet.

Zur Sättigung des Übergangs sind etwa 20 mW Pumpleistung bei einem Durchmesser von 1 mm notwendig [Wan02]. Um das hochliegende Vibrationsniveau ($\nu = 11$) des Grundzustands thermisch zu besetzen, muss der Joddampf in einem Ofen auf 600 °C geheizt werden. Um den erforderlichen Gasdruck einzustellen, befindet sich außerhalb des Ofens ein temperaturstabilisiertes Jodreservoir an der Zelle. Die Temperaturabhängigkeit des Signals wird in Kap. 5.1 diskutiert. Eine ausführliche Beschreibung der Jodspektroskopie befindet sich in [Wan02].

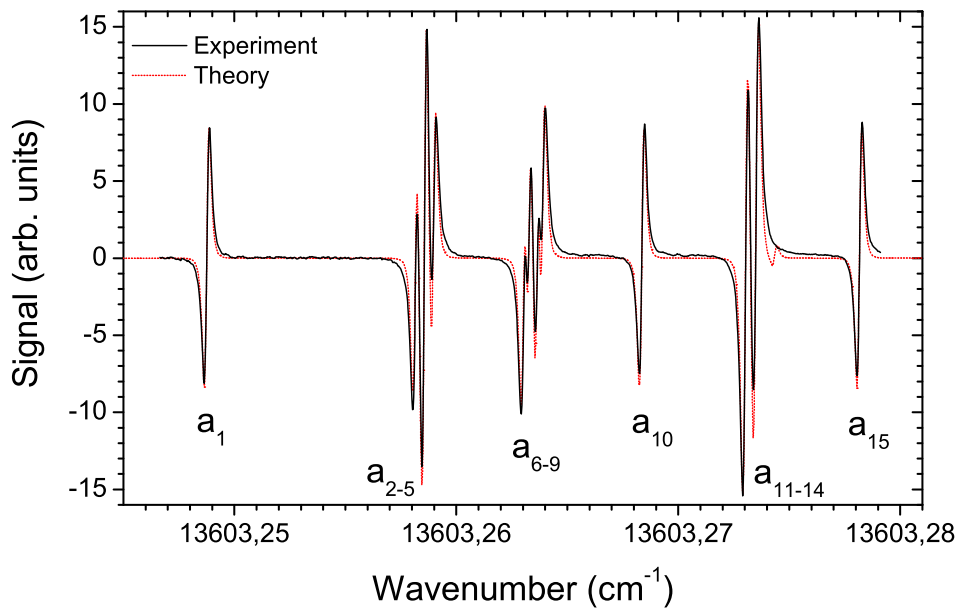


Abb. 4.8: Experimentelles und theoretisches Hyperfeinspektrum der Jod-Referenzlinie mit den aufgelösten Linien a_1 , a_{10} und a_{15} , sowie den unaufgelösten Linien a_{2-5} , a_{6-9} und a_{11-14} . Da die Absolutfrequenz mit den vorhandenen Möglichkeiten nicht genau genug bestimmt werden konnte, wurde das experimentell bestimmte Spektrum so in der Frequenz verschoben, dass der Nulldurchgang des a_1 -Signals mit der berechneten Linienlage übereinstimmt. Die Signalhöhe des berechneten Spektrums wurde an die experimentelle Signalhöhe der a_1 -Linie angepasst.

4.3.2 Der Titan-Saphir-Laser und die Frequenz-Offset-Stabilisierung

Zur Anregung des $2S \rightarrow 3S$ -Zweiphotonen-Übergangs wird ein Coherent 899-21 Titan-Saphir-Ringlaser verwendet, der von einem Innova 400 Argon-Ionen-Laser gepumpt wird. Die Pumpleistung beträgt 14 W bei 514 nm. Kühlt man den Titan-Saphir-Kristall auf eine Temperatur von 6° C, so liefert der Laser eine Leistung von etwa 1 - 1,2 W bei 735 nm. Die spezifizierte Linienbreite beträgt dabei 500 kHz - 1 MHz. Ein geringer Anteil des Laserlichts wird direkt zur Wellenlängenbestimmung (Wavemeter) hinter dem Laser ausgekoppelt und dient zur Strahl-diagnose in einem Fabry-Pérot-Interferometer sowie zur Erzeugung eines Schwebungssignals mit dem Referenzlaser.

Der Ti:Sa-Laser wird mittels Frequenz-Offset-Regelung auf den Diodenlaser (DL) stabilisiert. Ein Schema dieser Regelung ist in Abb. 4.9 dargestellt. Das Licht des Ti:Sa-Lasers wird mit dem des Referenzlasers in einem Strahlteiler überlagert und die Schwebungsfrequenz mit einer schnellen Photodiode (New Focus 1481-S) gemessen. Das Signal der Photodiode wird mit einem Breitbandverstärker verstärkt und über eine eine 50%-igen Teiler (Splitter) in zwei Teile aufgeteilt. Der erste Teil wird über einen Bidirektionalkoppler (eine spezielle Bauart eines Teilers) zur Datenaufnahme in einen Hochfrequenzzähler und zur Diagnostik in einen Spektrum-Analysator geführt. Der zweite Teil (R) wird in einem Mischer (DM0052LA2) mit der Radiofrequenz (L) eines durchstimmbaren Frequenz-Generators (RF Synthesizer) gemischt. Die Differenzfrequenz (IF) wird mit einem speziellen, für Frequenzmessungen geeigneten schmalbandigen Verstärker (constant phase-limiting amplifier) verstärkt und anschließend in einem Bandpass, der den Frequenzbereich um 160 MHz durchlässt, isoliert. Ein Frequenzdiskrimina-

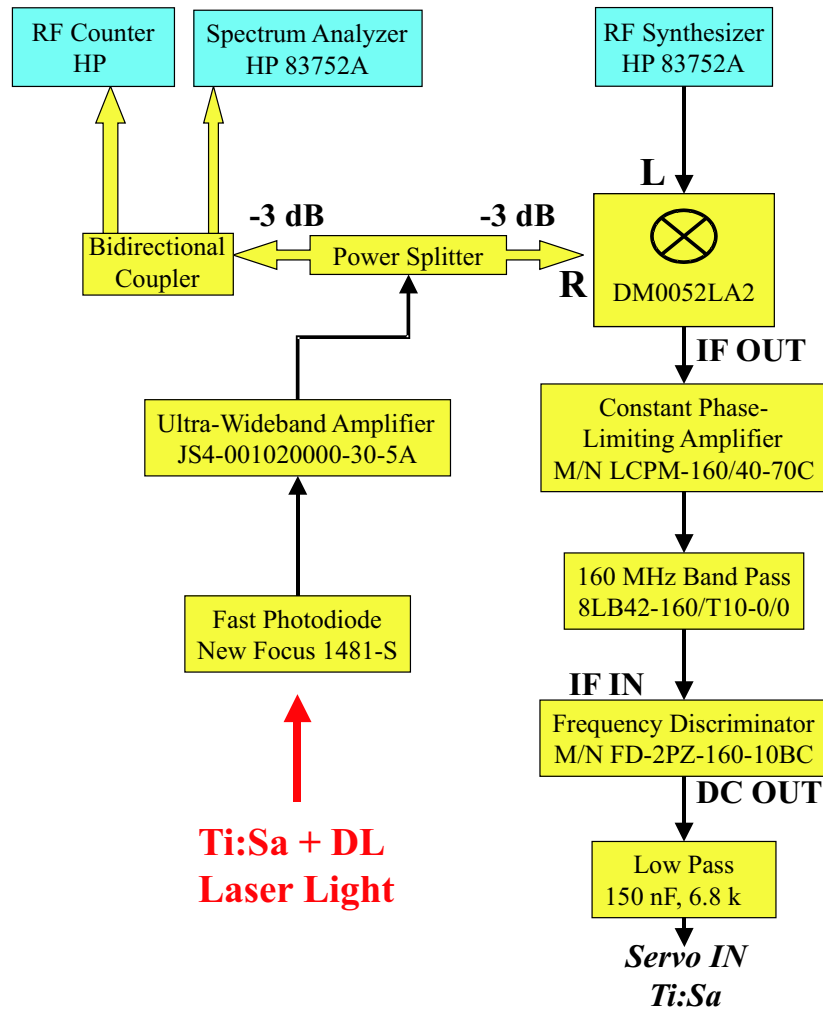


Abb. 4.9: Schema der Frequenz-Offset-Regelung zur Stabilisierung des Ti:Sa-Lasers (ausführliche Erklärung im Text).

tor hat die Funktion, aus der Abweichung der Eingangsfrequenz (IF) von seiner Zentralfrequenz ein Regelsignal zu erzeugen. Dieses wird über einen Tiefpass in einen Integrations-Regler eingespeist und steuert die Frequenz des Ti:Sa-Lasers über dessen externen Regelungseingang (Servo In). Die Differenzfrequenz wird so auf 160 MHz stabilisiert. Die Frequenz des Sweepers wird von dem Datenaufnahmesystem kontrolliert, die genaue Schwebungsfrequenz von einem Hochfrequenz-Zähler gemessen und in der Datenaufnahme protokolliert.

4.3.3 Der optische Resonator

Konstruktion

Theoretische Abschätzungen ergeben, dass die Sättigungsintensität für die Anregung des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs bei etwa 440 W/mm^2 liegt [Sch00a]. Um diese Intensitäten zu erreichen, muss die Lichtintensität des Titan-Saphir-Lasers mit einem optischen Resonator überhöht werden. Dieser Resonator muss im Hochvakuum arbeiten und so in der Vakuumkammer angebracht

werden, dass seine Strahltaile in der Ionisationsregion des Quadrupol-Massenspektrometers liegt. Bei der Auswahl der Resonatorgeometrie ist darauf zu achten, dass ausschließlich die TEM₀₀-Mode angeregt wird, um eine geringe Divergenz der angeregten Resonatormode und somit eine optimale Auslöschung des Dopplereffekts erster Ordnung durch die Zweiphotonen-Spektroskopie zu garantieren. Daher sollte ein stabiler optischer Resonator verwendet werden, dessen transversale Moden nicht entartet sind.

Ein wichtiges Kriterium bei der Wahl des richtigen Resonators ist die Tailengröße im Zentrum der Ionisationsregion. Einerseits ist für die Optimierung des geometrischen Überlapps zwischen Laserstrahl und divergentem Atomstrahl eine möglichst große Strahltaile günstig. Andererseits ist aufgrund der hohen Sättigungsintensitäten des Zweiphotonen-Übergangs eine möglichst kleine Strahltaile vorteilhaft. Solange die Intensität unterhalb der Sättigungsintensität bleibt, ist eine w_0^4 -Abhängigkeit der Anregungseffizienz vom Tailenradius w_0 zu erwarten, beim Überlapp des Strahls hingegen nur eine lineare. Als Kompromiss wurde ein Strahldurchmesser von $d = 2w_0 = 0,46$ mm gewählt.

Der Strahldurchmesser bestimmt die Flugzeitverbreiterung $\Delta\nu_{\text{FZ}}$ durch die endliche Wechselwirkungszeit zwischen Laserlicht und Atom. Um die maximale Auflösung durch eine möglichst schmale Resonanzlinie des Zweiphotonen-Übergangs zu erhalten, sollte $\Delta\nu_{\text{FZ}}$ klein gegen die natürliche Linienbreite $\Delta\nu_{\text{Nat}}$ sein. Die Verbreiterung errechnet sich aus der Faltung des Lorentzprofils der natürlichen Linienbreite mit dem Linienprofil der Flugzeitverbreiterung, welches für Zweiphotonen-Übergänge nach [Mes99] durch

$$I_{\text{FZ}}(\omega_{\text{Las}}) = C \cdot e^{-\frac{|\Omega - \omega_{\text{Las}}|w_0}{v}} \quad \text{mit} \quad v = \sqrt{\frac{2kT}{m}} \quad (4.1)$$

beschrieben wird. C ist hierbei eine Normierungskonstante, Ω die Frequenz im Ruhesystem der Atome und ω_{Las} die Laserfrequenz im Laborsystem. Diese Verteilung hat eine volle Halbwertsbreite von:

$$\Delta\nu_{\text{FZ}} = \frac{v}{2\pi w_0} \ln 2. \quad (4.2)$$

Die natürliche Linienbreite des Übergangs beträgt 5,3 MHz. Bei einem gewählten Strahldurchmesser von $d = 0,46$ mm beträgt die Flugzeitverbreiterung 1 MHz, so dass der Beitrag der Flugzeitverbreiterung bei dem gewählten Durchmesser vernachlässigt werden kann.

Ein weiterer wichtiger Punkt beim Entwurf des Resonatoraufbaus ist die mechanische Stabilität. Die Regelung auf maximale Resonanzüberhöhung muss in einer Vakuumkammer erfolgen, die am Ende eines Strahlrohrs des Online-Massenseparators angebracht ist und sich in einer großen Experimentierhalle befindet. Hier entstehen störende Vibrationen nicht nur durch die eigene Pumpe, die in diesem Fall magnetgelagert ist und an einem gedämpften Wellbalg (Bellow) hängt, sondern werden auch durch das Strahlrohr, das ebenfalls über einen Wellbalg mit der Vakuumkammer des Lithium-Experiments verbunden ist, und den Boden der Experimentierhalle auf den Resonator übertragen. Ein kompakter Aufbau des Resonators wirkt sich günstig auf die Stabilität aus und ist daher zu bevorzugen. Abbildung 4.10 zeigt die Vakuumkammer mit den wichtigsten funktionellen Elementen insbesondere zur Vibrationsentkopplung.

Die genannten Randbedingungen (TEM₀₀-Mode mit einem Strahldurchmesser von $d = 0,46$ mm in der Taille) führen zur Wahl einer Resonatorlänge von 30 cm und Krümmungsradien der Spiegel von 50 cm. Für den Einkoppelspiegel wurde eine Reflektivität von $R_{\text{Ein}} = 98\%$ gewählt.

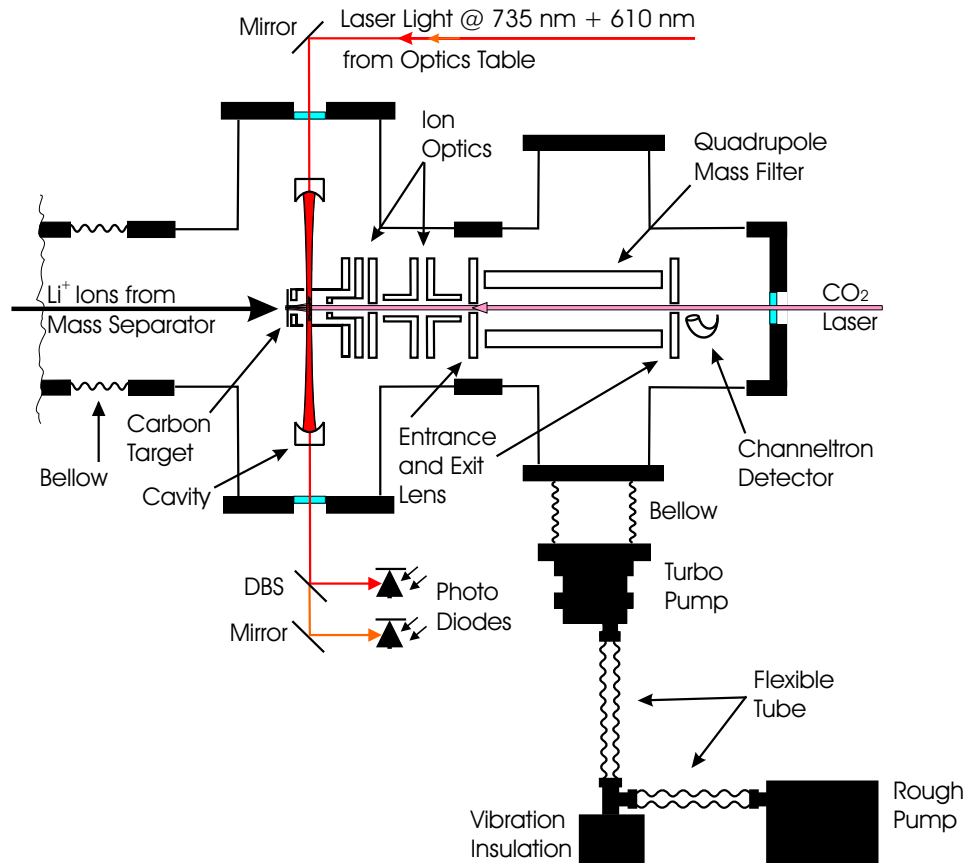


Abb. 4.10: Vakuumkammer mit Targethalter, optischem Resonator (Cavity), Quadrupol-Massenspektrometer (Ion Optics, Entrance and Exit Lens, Mass Filter, Channeltron Detector), diversen Elementen zur Vibrationsentkopplung (Bellow, Flexible Tube & Vibration Insulation). Das Licht des Ti:Sa- (735 nm) und des Farbstofflasers (610 nm) Werden von einem optischen Tisch (Optics Table), der über der Vakuumapparatur angebracht ist, über einen Spiegel (Mirror) in die Apparatur gelenkt und im Resonator leistungsüberhöht. Die an der hochreflektierenden Seite (im Bild unten) ausgekoppelten Lichtleistungen werden an einem Hochpass-Spiegel (DBS) in die beiden Wellenlängen aufgetrennt und mit den Photodioden (Photo Diodes) gemessen, um die Lichtverschiebung zu bestimmen.

Der Endspiegel ist hochreflektierend, die gemessenen Reflektivitäten betragen $R_{\text{Aus,Ti:Sa}} = 99,943(3)\%$ bei 735 nm und $R_{\text{Aus,Dye}} = 99,931(6)\%$ bei 610 nm. Das durch die Endspiegel austretende Licht wird mit dahinter angebrachten Photodioden gemessen, um die Leistung im Resonator berechnen zu können.

Werden weitere Verluste bei einem Umlauf des Lichts im Resonator, die z.B. durch Streuung an Spiegeloberflächen und die endlichen Aperturen der Ionenoptik verursacht sein können, mit V bezeichnet, so lässt sich die Resonanzüberhöhung A abschätzen [Mes99]:

$$A := \frac{I_{\text{Int}}}{I_{\text{Ein}}} = \frac{4 T_{\text{Ein}} T_{\text{Aus}}}{(T_{\text{Ein}} + T_{\text{Aus}} + V)^2} \quad (4.3)$$

Hierbei ist I_{Int} die Intensität im Resonator, I_{Ein} die eingestrahelte Intensität und $T_{\text{Ein}} = 1 - R_{\text{Ein}}$ der Transmissionskoeffizient des Einkoppelspiegels. Entsprechendes (T_{Aus}) gilt für den

Endspiegel. Unter der Annahme von $V = 0,2$ bis $0,5\%$ ergibt sich eine Resonanzüberhöhung von $A = 120$ bis 155 . Die Finesse \mathcal{F} berechnet sich unter Zuhilfenahme des Finessefaktors F nach

$$\mathcal{F} = \frac{\pi}{4} \sqrt{F} \quad (4.4)$$

mit

$$F = \frac{4\sqrt{R_{\text{Ein}}R_{\text{Aus}}(1-V)}}{\left(1 - \sqrt{R_{\text{Ein}}R_{\text{Aus}}(1-V)}\right)^2}. \quad (4.5)$$

Mit den gleichen Annahmen für die Verluste ergeben sich für die Finesse Werte von $\mathcal{F} = 120$ bis 135 . Bei einem gewählten Strahldurchmesser im Fokus von $d = 0,46$ mm und einer gewünschten Intensität von 440 W/mm² im Fokus wären vor dem Resonator $540 - 610$ mW Laserleistung nötig. Es stellte sich später heraus, dass die Verluste an optischer Diode und elektro-optischem Modulator größer waren als erwartet und die Leistung vor dem Resonator maximal $400 - 440$ mW betrug.

Stabilisierung

Die Stabilisierung des Resonators auf maximale Resonanzüberhöhung erfolgt mit dem Pound-Drever-Hall-Verfahren. Eine detaillierte Beschreibung befindet sich in [Dre83, Bla01]. Hier sei nur kurz erwähnt, dass bei dieser Methode der Trägerfrequenz des Lichts Seitenbänder aufmoduliert werden. Analog zur Frequenzmodulations-Sättigungsspektroskopie wird das Schwebungssignal zwischen den Seitenbändern und dem Träger gemessen. In diesem Fall wird es durch die frequenzabhängige Reflexion am Eintrittsspiegel des Resonators erzeugt. Stimmt die Trägerfrequenz mit der Resonanzfrequenz des Resonators nicht überein, so werden die Seitenbänder unterschiedlich stark reflektiert. Das entstandene Schwebungssignal lässt sich durch Mischen mit der Modulationsfrequenz wieder demodulieren und so ein Regelsignal für das entsprechende Stellglied erzeugen. Dabei kann entweder die Laserfrequenz der Resonatorlänge angepasst werden, was bei der Regelung des Farbstofflasers benutzt wird, oder die Resonatorlänge über ein Piezoelement, auf das der Auskoppelspiegel geklebt ist, auf die Veränderung der Laserfrequenz geregelt werden. Auf die letztere Art wird der Resonator auf die Frequenz des Ti:Sa-Laser stabilisiert.

Die sehr ähnlichen Lichtwege für Ti:Sa- und Farbstoff-Laser sind in Abb. 4.11 dargestellt. Sie verlaufen weitgehend symmetrisch: Der aus der Faser ausgekoppelte Strahl wird kollimiert, in der Polarisation auf den elektro-optischen Modulator (EOM) angepasst und fokussiert. Das Fokussieren dient einerseits der Reduzierung des Strahldurchmessers, um Randeffekte beim Durchgang durch den EOM zu vermeiden. Es stellt andererseits ein Teil der Modenanpassung für den optischen Resonator dar, welche dann mit einer zweiten Linse vollständig vollzogen wird. Beim Durchgang durch den EOM werden auf die Trägerfrequenz die Seitenbänder aufmoduliert. Die Signale weisen zusätzlich eine Restamplitudenmodulation (RAM) auf, die durch eine Regelung unterdrückt wird. Eine Glasplatte, die hinter dem EOM im Brewster-Winkel eingebaut ist, dient als Aufnehmer für diese Regelung. Der Strahlengang führt weiter durch einen Faraday-Rotator (FR) und einen Hochpass-Spiegel zur Überlagerung von Ti:Sa- und Farbstoff-Laserstrahl in den optischen Resonator. Der am Eintrittsspiegel reflektierte Teil wird am Hochpass-Spiegel wieder in die beiden beteiligten Wellenlängen getrennt. Als Auskoppler für die Resonatorregelung dient der Faraday-Rotator. Der reflektierte und am Pola-

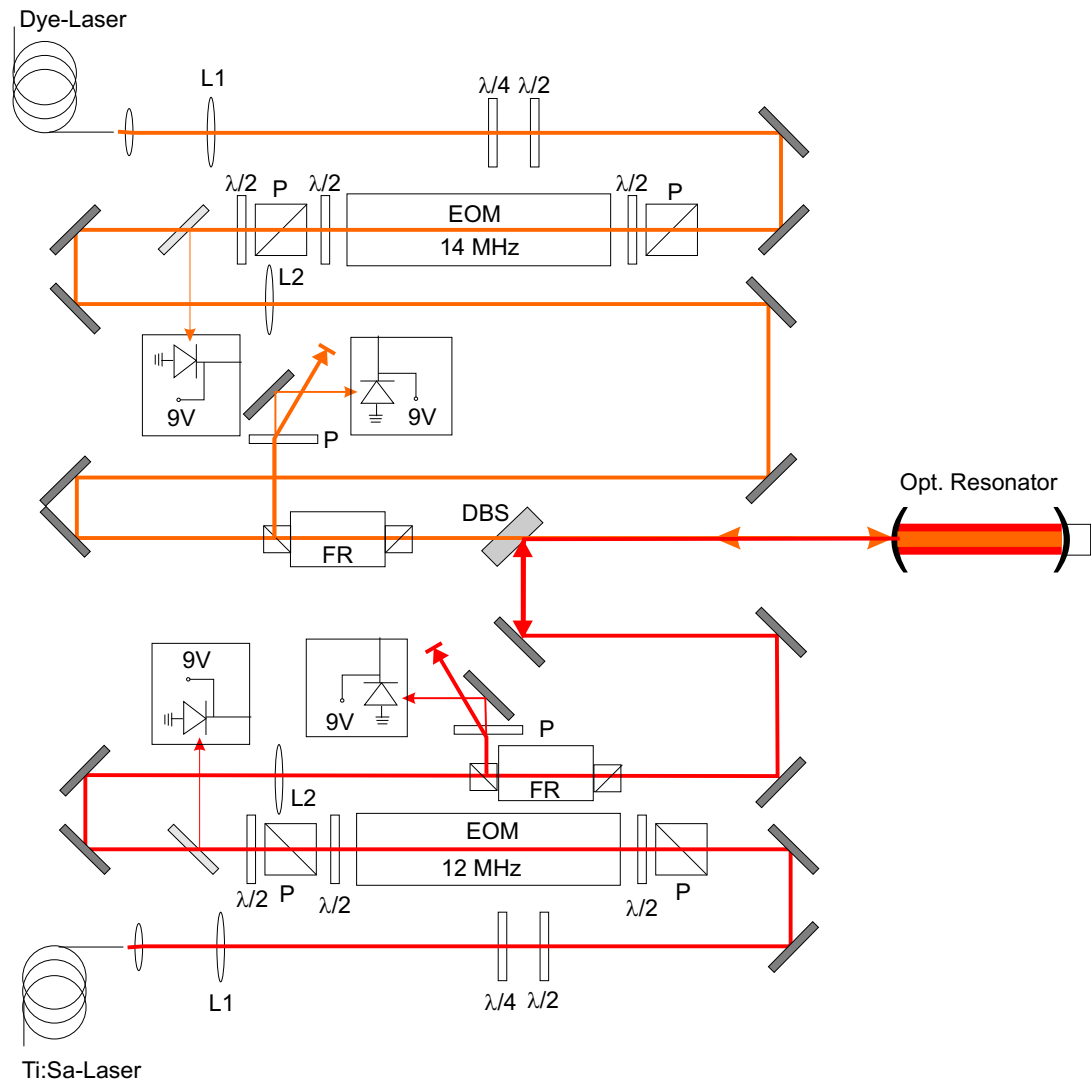


Abb. 4.11: Optischer Aufbau zur Pound-Drever-Hall-Stabilisierung. Linsen L_1 und L_2 zur Anpassung der Strahlparameter an den Resonator, Verzögerungsplatten $\lambda/4$ und $\lambda/2$ zur Anpassung der Polarisation, Polarisationsstrahlteilern P, elektro-optischen Modulatoren (EOM) zur Erzeugung der Seitenbänder, optischen Isolatoren (FR) zur Auskoppelung der reflektierten Laserstrahlen und Detektion mit schnellen Photodioden, Hochpass-Spiegel (DBS) und optischem Resonator.

risationsstrahlteiler des Faraday-Rotators ausgekoppelte Strahl wird mit einer schnellen Photodiode detektiert. Die anschließende Elektronik stellt die richtige Phasenlage her und sorgt für die Demodulation. Der Resonator kann nun mit einem Proportional-Integral-Differential (PID)-Regler, der das Piezoelement am Endspiegel treibt, so geregelt werden, dass die Resonanzbedingung erfüllt ist. Abbildung 4.12 zeigt den dazu verwendeten optischen Aufbau. Ein Schaltbild der verwendeten Regelungen befindet sich im Anhang.

Die Vakuumapparatur, die sich unter dem optischen Aufbau zur Resonator- und Laserstabilisierung befindet, ist in Abb. 4.13 dargestellt. Von links kommt der Lithium-Ionen-Strahl vom Massenseparator. Die Durchführung des Targethalters führt in das Doppelkreuzstück, in dem senkrecht der Resonator eingebaut ist und in dem sich Ionisationsregion sowie Ionenop-



Abb. 4.12: Optischer Aufbau zur Pound-Drever-Hall-Stabilisierung von Resonator und Farbstofflaser.

tik des Massenspektrometers befinden. Im zweiten Kreuzstück ist das Quadrupol-Massenfilter installiert, weiter rechts im Bild – durch PVC-Platten teilweise verdeckt – befindet sich der CO_2 -Laser zum Ausheizen der Lithium-Atome aus der Kohlenstoffolie. Unter dem Doppelkreuzstück ist eine Plattform für die Photodioden angebracht, mit denen die Laserleistungen im Resonator gemessen werden.

Der durch die Resttransmission ($T = 0,057(3)\%$) an der hochreflektierenden Seite des Resonators austretende Teil der Laserstrahlung wird ebenfalls durch einen Hochpass aufgeteilt und auf Photodioden gelenkt (vgl. Abb. 4.10). Diese sind an die Datenaufnahme angeschlossen, um die für die Lichtverschiebung relevante Leistung im Resonator zu dokumentieren. Das Signal der Photodioden ist in Abb. 4.14 in der oberen Kurve dargestellt. Zum Zeitpunkt dieser Messung befand sich die Vakuumapparatur noch zum Aufbau und zur Charakterisierung im Laserlabor. Vibrationen, die bei den Online-Messungen über das Strahlrohr und in der Experimentierhalle übertragen werden, waren also ausgeschlossen. Die Stabilisierung des Resonators gestaltete sich beim Aufbau am Massenseparator tatsächlich schwieriger. Die Resonanzüberhöhung des Resonators brach kurzzeitig ein, die Abweichungen blieben aber innerhalb des Regelbereichs, so dass der Verlust bei der mittleren Resonanzüberhöhung durch die verbesserte Modenanpassung, die in Kap. 4.3.5 erklärt wird, ausgeglichen werden konnte.

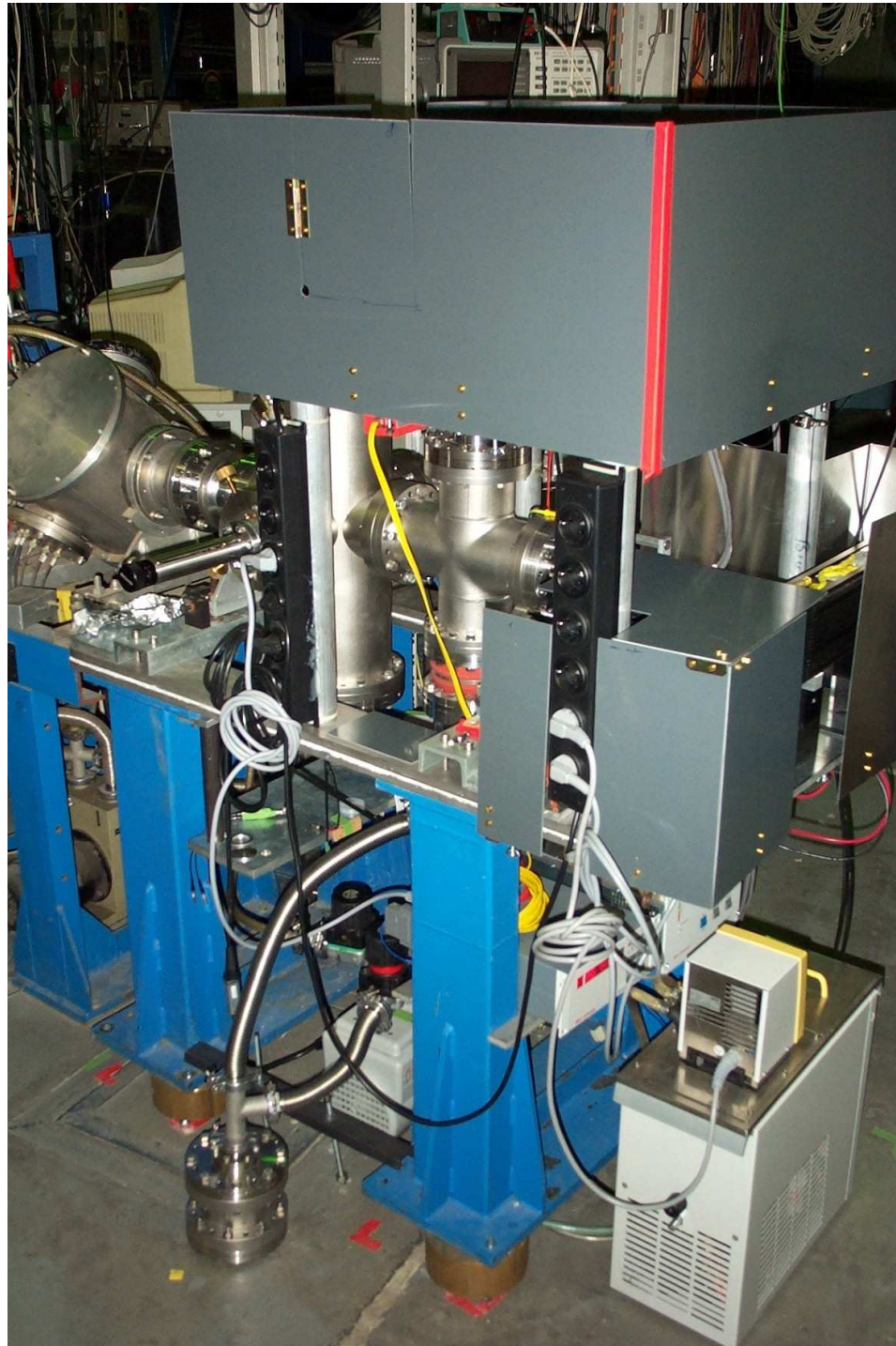


Abb. 4.13: Messapparatur, wie sie am Online-Massenseparator der GSI aufgebaut wurde. Oben: optischer Aufbau zur Stabilisierung des Resonators und Farbstofflasers in PVC-Gehäuse, Mitte von links nach rechts: Strahlrohr (vom Massenseparator kommend), Durchführung des Targethalters für die Kohlenstofffolien, Kreuzstück mit Resonator, Kreuzstück mit Quadrupol-Massenspektrometer und CO₂-Laser hinter PVC-Gehäuse.

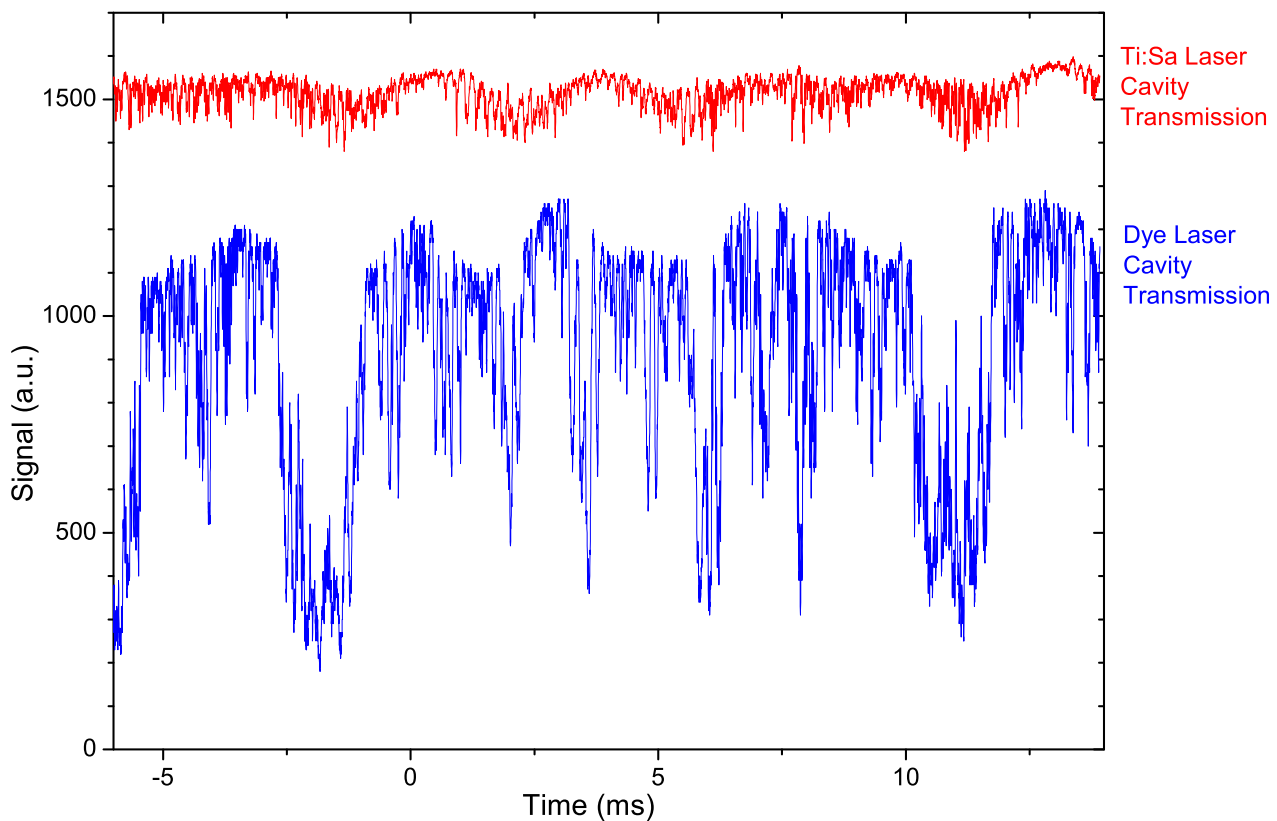


Abb. 4.14: Photodiodesignal zur Bestimmung der Laserleistung im Resonator beim Testaufbau im Laserlabor. Die Fluktuationen des Ti:Sa-Lasers sind deutlich geringer als die des Farbstofflasers (Dye).

Resonanz-Überhöhung des Resonators

Die Anpassung des Laserstrahls auf die TEM_{00} -Mode des optischen Resonators erfolgt über zwei langbrennweitige Linsen ($f_1 = 1000$ mm, $f_2 = 600$ mm). Ihr Abstand zueinander liegt im Bereich der Rayleighlänge. Durch eine solche Anordnung sind die Strahlparameter besonders robust gegenüber kleinen Veränderungen in den Abständen. Zunächst werden die Brennweiten und Abstände berechnet und für die genaue Anpassung an die Resonatormode Lage und Größe des Fokus mit einer Laserkamera bestimmt. Auf diese Weise können noch Korrekturen vorgenommen werden. Der Fokus des Laserstrahls wird im Rahmen der Messgenauigkeit (< 1 cm) in die Mitte des Resonators gelegt. Dies ist recht unkritisch, da der Strahl mit langbrennweitigen Linsen fokussiert ist. Der Strahldurchmesser im Fokus ist leicht elliptisch. Seine Halbachsen mit $a/b = 0,23$ mm / $0,21$ mm stimmen gut mit dem geforderten Radius $r = 0,23$ mm überein. Beim Aufbau am Massenseparator und dem Lichttransport durch eine sogenannte Large-Mode-Area-Faser (s. Kap. 4.3.5) gelang die Modenanpassung noch besser; die Elliptizität wurde weiter verringert und der Radius betrug $r = 0,23$ mm.

Bei der Einkopplung des Ti:Sa- und des Farbstofflasers in den Resonator konnte die Anzahl der höheren Transversalmoden auf zwei begrenzt und deren Leistung auf $< 1\%$ reduziert werden. Die über Photodioden gemessene Leistung des Ti:Sa-Lasers im Resonator war beim

Gebrauch der Monomodenfaser schwankend und betrug 30(5) W, was einer Intensität in der Ionisationsregion von etwa 180(30) W/mm² und einer Resonanzüberhöhung um einen Faktor 90 entspricht. Mit der besseren Modenanpassung wurden 40 W im Resonator erreicht, was einer Intensität von 240 W/mm² und einer Resonanzüberhöhung um den Faktor 120 entspricht.

Demnach ist die in Kap. 4.3.3 gemachte Annahme der internen Verluste im Resonator von 0,2% realistisch. Die nicht voll ausgeschöpfte theoretische Resonanzüberhöhung von 130 ist auf Fluktuationen der Laserfrequenz, der Resonatorlänge und die dafür nicht ausreichende Regelungsbandbreite zurückzuführen.

Die Modenanpassung für den Farbstofflaser ist nicht ganz so kritisch, da der $2P \rightarrow 3D$ -Übergang auf alle Fälle ausreichend sättigungsverbreitert ist. Für diesen Laserstrahl beträgt der gemessene Radius der Strahltaile $r = 0,21$ mm, und es wird eine 70-fache Resonanzüberhöhung erreicht. Dies ist nicht allein auf die schlechtere Modenanpassung zurückzuführen, sondern auch auf die Regelung auf maximale Resonanzüberhöhung. Diese ist beim Farbstofflaser wesentlich instabiler als beim Ti:Sa-Laser, wie der unteren Kurve in Abb. 4.14 zu entnehmen ist. Im Mittel befindet sich daher weniger Leistung im Resonator, was den Wert für die Resonanzüberhöhung reduziert.

4.3.4 Stabilisierung des Farbstofflasers

Der verwendete Farbstofflaser ist ein modifizierter Coherent 599 Ringlaser, der von einem diodengepumpten Festkörperlaser Verdi V 8 gepumpt wird. Die Pumpleistung beträgt 8 W bei 532 nm. Der verwendete Farbstoff ist in Ethylenglykol gelöstes Rhodamin 6G. Die Farbstofflösung wird auf einer Temperatur von 10° C gehalten. Dieses System liefert typische Ausgangsleistungen von 350 mW bei 610 nm. Die Linienbreite liegt bei etwa 2 MHz. Ein Teilstrahl des Lasers wird in ein ATOS-Wavemeter eingekoppelt, um die Frequenz des Lasers zu kontrollieren.

Die Stabilisierung des Farbstofflasers erfolgt auf die gleiche Weise wie die des optischen Resonators, wobei in diesem Fall der Laser auf eine longitudinale Mode des Resonators geregelt werden muss. Mit Hilfe des Wavemeters wird dabei eine Mode ausgewählt, bei der die Laserfrequenz möglichst nah an der bekannten Resonanzfrequenz [Rad95] des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs liegt. Aus dem Regelsignal wird mit einem Integrations-Regler das Servosignal erzeugt und dieses über den externen Regelungseingang der Lasersteuerung eingespeist. Beim Verstimmen des Ti:Sa-Lasers über die Resonanz der Lithium-Isotope ändert sich deshalb auch die Frequenz des Farbstofflasers. Der $2P \rightarrow 3D$ -Übergang ist jedoch stark sättigungsverbreitert. Dadurch tragen das $D_{3/2}$ - und das $D_{5/2}$ -Niveau zur Anregung bei. Da die beiden Niveaus etwa 1,1 GHz auseinander liegen, ergibt sich über diesen Frequenzbereich eine weitgehend konstante Anregungseffizienz, wie später genauer diskutiert wird (vgl. Kap. 5.3.2 und Abb. 5.6). Veränderte Anregungseffizienzen für den $2P \rightarrow 3D$ -Übergang aufgrund einer Änderung der Farbstofflaser-Frequenz im Verlauf der Messung würden zu einem asymmetrischen Linienprofil der Zweiphotonen-Resonanz führen. Das Plateau in der Anregungseffizienz ist jedoch breit genug dies auszuschließen. Ein Testexperiment bestätigte dies (vgl. Kap. 5.3.2).

In der unteren Kurve von Abb. 4.14 ist die Resonanzüberhöhung des Farbstofflasers im Resonator dargestellt. Man erkennt, dass die Fluktuationen für diesen deutlich größer sind als die des Ti:Sa-Lasers. Die Geschwindigkeit der Regelung ist durch die Bandbreite des externen Regelungseingangs limitiert. Eine Verbesserung wäre nur durch massiven Mehraufwand

zu erreichen. Wie sich experimentell herausstellte, ist dies aber nicht notwendig.

4.3.5 Transport des Laserlichtes zum Massenseparator

Das zur Spektroskopie benötigte Licht wird im Laserlabor vom Titan-Saphir- und dem Farbstofflaser erzeugt. Danach wird es in Monomodenfasern eingekoppelt, mit denen das Licht über ca. 50 m zum Massenseparator transportiert werden muss. Dabei stellte sich heraus, dass bei der verwendeten Faser vom Typ „SMC-AO 820B-AO1VS“ der Firma „SpecTran Speciality Optics Co.“ die maximal transmittierte Laserleistung durch Brillouin-Streuung [Ipp72, Agr01] limitiert ist.

Bei Monomodenfasern mit einer Länge von etwa 10 m ließ sich eine Transmission von bis zu 73% erreichen bei einer Leistung von 1 - 1,2 W vor der Faser. Wurde die Faserlänge auf 50 m erhöht, so war eine viel geringere Transmission mit einer starken Leistungsabhängigkeit festzustellen. Bis zu einer Einkopplung von ~ 400 mW wurde nach wie vor eine Transmission von etwa 75% gemessen, eine weitere Steigerung der Einkoppelleistung führte aber nicht mehr zu einer Erhöhung der ausgekoppelten Leistung. Stattdessen trat im transmittierten Laserlicht ein Kamm von Seitenbändern auf. Dieses Verhalten ist auf induzierte Brillouin-Streuung in der Faser zurückzuführen. Es handelt sich um einen nichtlinearen Prozess inelastischer Phononenstreuung. Bei einer Reduzierung der Laserleistung verschwindet dieser Effekt, jedoch kann für die Zweiphotonen-Spektroskopie an kurzlebigen Isotopen keine ausreichende Effizienz mehr erreicht werden. Durch die Verwendung einer sogenannten Large-Mode-Area-Faser (LMA) vom Typ „Large Mode Area Photonic Crystal Fiber LMA-20“, wie sie in Abb. 4.15 dargestellt ist, konnte dieser Effekt bis zu der maximal verfügbaren Laserleistung von 1,2 W vollständig unterdrückt werden.

Ähnlich wie bei konventionellen Monomodenfasern wird bei LMA-Fasern das Licht in einem festen Kern geführt. Die Totalreflexion wird durch den im Vergleich zum Kern niedrigeren effektiven Brechungsindex des luftgefüllten Mikrostrukturmantels hervorgerufen [Rus03]. Vorteil dieser Faser ist ihr Kerndurchmesser von $20 \mu\text{m}$, der gegenüber dem einer gewöhnlichen Monomodenfaser von $5 \mu\text{m}$ zu einer deutlich reduzierten Intensität im Kern führt. Durch die Hohlstruktur der LMA-Faser bleibt jedoch der erforderliche Monomoden-Charakter erhalten. Mit dieser Faser kann auch über die Strecke von 50 m die volle Laserleistung bei maxima-

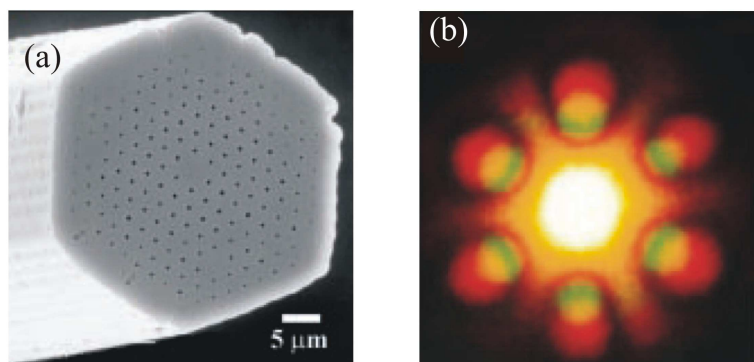


Abb. 4.15: Large-Mode-Area-Faser: (a) Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme und (b) Intensitätsverteilung der transmittierten Mode im Fernfeld.

ler Effizienz von 75% transportiert werden. Die Numerische Apertur (NA) der LMA-Faser ist mit $NA = 0,04$ bei 735 nm und $NA = 0,03$ bei 610 nm vergleichsweise klein. Es werden daher Kollimatoren mit einer Brennweite von $f = 20$ mm benutzt. Dadurch bedingt ist der Strahldurchmesser des kollimierten Strahls mit ~ 2 mm entsprechend groß.

Für die Sättigung des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs sind nur geringe Intensitäten notwendig, und zur Ionisation leistet der Ti:Sa-Laser einen erheblich höheren Beitrag als der Farbstofflaser. Für den Farbstofflaser wurde daher auf den Einsatz einer teureren LMA-Faser verzichtet. Die nichtlinearen Effekte wurden vermieden, indem die in die konventionelle Monomodenfaser eingekoppelte Leistung auf 200 mW begrenzt wurde.

4.4 Datenaufnahme

Die Datenaufnahme erfolgt mit einem CAMAC-System, das über Analog-Digital-Konverter, Spannungs-Frequenz-Wandler und schnelle Zähler die Daten einliest und über eine GPIB-Schnittstelle mit Hochfrequenz-Generator und Zähler kommuniziert. Die wichtigsten Größen für die Datenanalyse sind die Frequenz relativ zur Referenzfrequenz des Diodenlasers, die Zählrate des Channeltron-Detektors, die Messzeit jedes Frequenzkanals und die Leistungen der beiden Laser im Resonator. Es werden jedoch zur Fehleranalyse noch eine Vielzahl weiterer Daten, wie z.B. die Regelspannungen der PID-Regler oder die Temperatur des Kühlfingers, mitgeschrieben.

5 Offline-Testmessungen und Messung der stabilen Isotope

In diesem Kapitel werden zunächst Messungen vorgestellt, mit denen die Stabilität der Laserregelung charakterisiert wird und mögliche Untergrundquellen bei den späteren Online-Messungen untersucht werden. Anschließend liegt der Schwerpunkt auf den Offline-Messungen der stabilen Lithium-Isotope, mit denen systematische Effekte bei der Bestimmung der Resonanzfrequenzen und der Bestimmung der Gesamteffizienz des Messverfahrens untersucht werden sollten. Mit diesen Messungen der Isotopieverschiebung lässt sich bereits die Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius zwischen den beiden stabilen Isotopen ermitteln und mit dem aus der Elektronenstreuung gewonnenen Wert vergleichen. Auf diese Weise kann die Theorie des Masseneffektes getestet werden.

5.1 Stabilität der Jod-Referenz und der Frequenz-Offset-Stabilisierung

Um die Stabilität des Referenzlasers und des darauf mittels Frequenz-Offset-Lock stabilisierten Ti:Sa-Lasers zu beurteilen, wird mit einem Spektrum-Analysator das Spektrum des Schwebungssignals aufgenommen. Eine solche Aufnahme ist in Abb. 5.1 gezeigt, wobei eine Mittelungszeit von 5 s verwendet wird, um so über rasche Frequenzfluktuationen (Jitter) zu integrieren. Die Frequenzverteilung weist eine Halbwertsbreite von etwa 1 MHz auf. Typischerweise werden während der Offline-Messungen und der Strahlzeiten Linienbreiten von 0,8 MHz - 1,5 MHz gemessen. Dies ist ausreichend klein, um eine signifikante Linienverbreiterung des Zweiphotonen-Übergangs (natürliche Linienbreite 5,3 MHz oder 2,65 MHz pro anregendem Photon) auszuschließen. Der Vergleich der Stabilität von Dioden- und Ti:Sa-Laser mit einem 300-MHz-Fabry-Pérot-Interferometer zeigt, dass der Ti:Sa-Laser den größeren Beitrag zur Linienbreite des Schwebungssignals liefert. Eine quantitative Aussage über die Stabilität der Einzellaser lässt sich allerdings nicht treffen.

Der Einfluss verschiedener Parameter auf die Linienform der Jodspektroskopie und damit unter Umständen auf die Stabilität des Referenzlasers wird mit Hilfe des Ti:Sa-Lasers getestet. Dazu wird ein zweiter Aufbau zur FM-Sättigungsspektroskopie für den Ti:Sa-Laser verwendet, der analog zu dem des Referenzlasers aufgebaut ist. Damit lässt sich nun der Diodenlaser auf die Jodlinie stabilisieren und dann mit Hilfe des Ti:Sa-Lasers, der über Frequenz-Offset stabilisiert ist, die Form der Jodlinie unter verschiedenen Bedingungen studieren. Für die Regelung ist eine hohe Signalintensität vorteilhaft, da sie eine steile Flanke am Regelpunkt hervorruft und ein geringes Rauschen der Grundlinie aufweist. Allerdings ist eine signifikante Verbreiterung der Linie zu vermeiden, da sie die Flankensteigung vermindert. Der Effekt folgender Parameter wurde eingehend studiert.

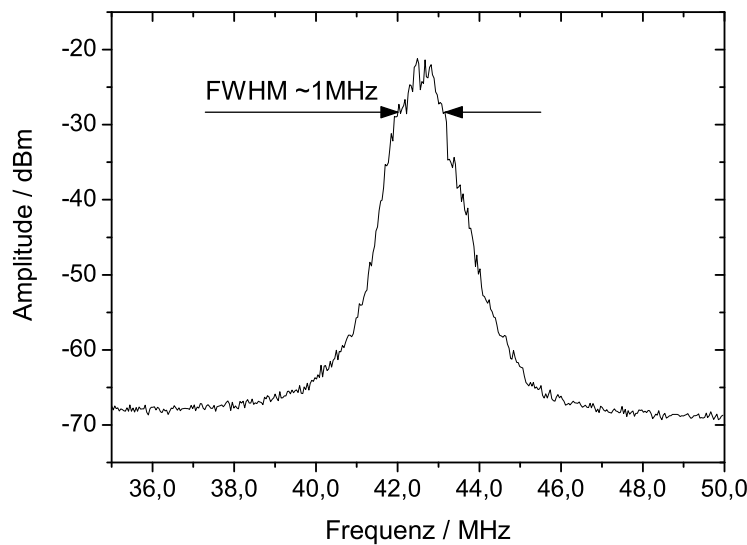


Abb. 5.1: Spektrum des Schwebungssignals zwischen Dioden- und Ti:Sa-Laser bei laufender Frequenz-Offset-Regelung mit einer Halbwertsbreite von etwa 1 MHz.

Intensität des Sättigungs- und Sondenstrahls Der Diodenlaser wird mit maximal verfügbarer Leistung (vgl. Kap. 4.3.1) betrieben, um ein möglichst gutes Signal-Rausch-Verhältnis zu erreichen. Die verwendete Sättigungsstrahlintensität liegt noch deutlich unter der Sättigungsintensität von 20 mW/mm^2 [Wan02], so dass eine Sättigungsverbreiterung der Linie ausgeschlossen werden kann.

Modulationsfrequenz Der Abstand der Seitenbänder beeinflusst sowohl die Signalintensität als auch die Auflösung und damit die Linienbreite. Bei der Variation der Modulationsfrequenz stellte sich heraus, dass der optimale Wert bei etwa 15 MHz liegt. Oberhalb dieses Werts ergibt sich eine leichte Verbreiterung der Linie, unterhalb nimmt die Signalintensität deutlich ab. Für die Stabilisierung des Diodenlasers wird eine Modulationsfrequenz von 22,5 MHz gewählt. Dabei wird eine geringfügige Verbreiterung in Kauf genommen, da diese, verglichen mit der Reduzierung der Signalamplitude, geringen Einfluss auf die Stabilität des Lasers hat.

Modulationsamplitude Die Modulationsamplitude kann gezielt durch die Leistung des Hochfrequenzgenerators variiert werden. Zusätzlich sind aber auch Veränderungen der Impedanzanpassung des elektro-optischen Modulators an die Hochfrequenz zu berücksichtigen. Diese Anpassung wird gelegentlich optimiert, sie kann sich aber während der Messungen z.B. durch Temperaturänderungen in unkontrollierter Weise verändern. Daher ist es vorteilhaft, dass sich über weite Amplitudenbereiche kein Einfluss auf das Regelsignal feststellen lässt. Erst bei einer Modulationsamplitude, die etwa 20 dB unterhalb des gewählten Werts liegt, tritt eine leichte Verschiebung der gemessenen Absolutfrequenzen auf. Solche großen Abweichungen in der Modulationsamplitude treten ohne manuellen Eingriff in die Anpassung des Resonanzkreises nicht auf.

Temperatur des Kühlfingers – Druck in der Jodzelle Um den Einfluss der Druckverbreiterung und -verschiebung zu bestimmen, wird die Temperatur des Jodreservoir-Kühlfingers zwischen 20 °C und 29 °C verändert, was einem Druck von 0,27 - 0,62 mbar entspricht [Lan60]. Die Spektren für verschiedene Temperaturen sind in Abb. 5.2 dargestellt. Beim Vergleich der Linien ist klar zu erkennen, dass sich lediglich die Höhe des Signals ändert, nicht aber die Linienbreite oder die Position der Nulldurchgänge. Während im Rahmen dieser Messreihe bis 29 °C noch keine Druckverbreiterung der Linie festzustellen ist, kann man bei einer Messung bei 35 °C jedoch eine leichte Verbreiterung der Linie beobachten. Für die Stabilisierung des Diodenlasers während der Lithium-Messungen wird daher eine Temperatur von 29 °C gewählt.

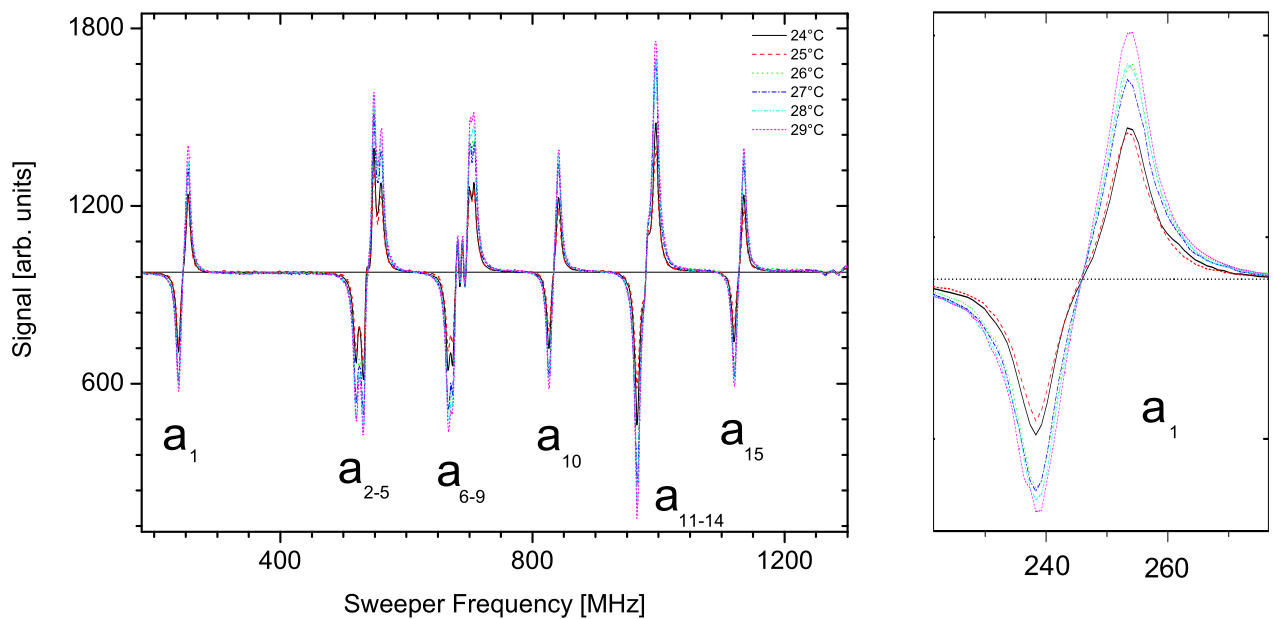


Abb. 5.2: Abhängigkeit der Jodlinie vom Druck in der Zelle, die über die Temperatur des Kühlfingers eingestellt wird. Links: die Resonanzlinien $a_1 - a_{15}$, rechts: vergrößerte Darstellung der a_1 -Resonanz.

Reproduzierbarkeit der Linienlage Um die Reproduzierbarkeit der Regelung des Referenzlasers und der Frequenz-Offset-Stabilisierung zu testen, werden die Linienpositionen aller Hyperfeinkomponenten der Jodlinie wiederholt gemessen. Das Spektrum wird dabei mit dem Ti:Sa-Laser in Schritten von 0,75 MHz abgefahren. Die Frequenzbestimmung der Grundliniendurchgänge der Einzellinien (a_1 , a_{10} und a_{15}) erfolgt mittels einer Interpolation über 5 Datenpunkte des linearen Bereichs in der Umgebung der Durchgänge. Insgesamt wurden 15 Messungen durchgeführt, die sich über einen Zeitraum von einer Woche erstreckten. Sowohl die absolute Position der a_1 -Linie als auch die Relativpositionen der aufgelösten Hyperfeinkomponenten zueinander erweisen sich dabei im Mittel auf ca. 50 kHz stabil. Der Wert für die a_1 - a_{10} -Aufspaltung beträgt 587,77(5) MHz, der für die a_1 - a_{15} -Aufspaltung 881,71(4) MHz, wobei der Fehler die Standardabweichung des Mittelwerts aller Messungen angibt. Damit liegt der Fehler in der Reproduzierbarkeit der Linienlagen weit unterhalb der angestrebten 200-kHz-Grenze.

Die absolute Frequenz der a_1 -Linie wurde von H. Knöckel aus den Hyperfeinstrukturkonstanten absolut vermessener Jodlinien berechnet. Das Resultat lautet

$$\lambda_{\text{Jod}}^{-1} = 13\,603,248\,75(13) \text{ cm}^{-1} \quad (5.1)$$

[Knö03]. Damit lässt sich unter Einbeziehung der Verschiebung durch den akusto-optischen Modulator die Absolutfrequenz des Referenzlasers und damit die der Lithium-Zweiphotonen-Übergänge bestimmen.

5.2 Testmessungen am Massenseparator

5.2.1 Freisetzungseffizienzen

Die vom Massenseparator gelieferten Lithium-Ionen werden in einer Kohlenstoffolie gestoppt, neutralisiert und mit einem CO_2 -Laser auf der gegenüberliegenden Seite ausgeheizt. Auf diese Weise wird der Ionenstrahl in einen thermischen Atomstrahl umgewandelt. Um den zeitlichen Verlauf dieses Prozesses experimentell zu bestimmen, wird der Ionenstrahl durch einen elektrostatischen Ablenker abwechselnd auf die Folie und einen Faraday-Becher gelenkt und das Zeitverhalten der freigesetzten Oberflächen-Ionen untersucht. Für den Ablenker wird ein schneller Schalter verwendet, der Schaltzeiten im Bereich weniger μs besitzt. Der Anstieg der Signalrate nach dem Einschalten des Ionenstrahls gibt somit alleine das Freisetzungsverhalten aus der Folie wieder. Die Ionenoptik des Quadrupol-Massenspektrometers wird auf Oberflächen-Ionen optimiert und die Channeltron-Zählimpulse werden in einen Vielkanalanalysator eingespeist. Der damit aufgenommene Verlauf der Zählrate ist in Abb. 5.3 dargestellt. Die Auflösung des Vielkanalanalysators betrug 5 ms. Eine höhere Auflösung war aufgrund der geringen Statistik nicht sinnvoll. Man erkennt, dass das Signal innerhalb von zwei Kanälen von Null auf die mittlere Zählrate ansteigt. Da in der Regel das Einschalten des Ionenstrahls nicht mit dem Beginn eines Kanals zusammenfällt, ist selbst bei Freisetzungszeiten von kleiner als 5 ms mit einem Messwert innerhalb der steigenden Flanke zu rechnen. Aus der Messung lässt sich daher lediglich eine Obergrenze von 10 ms für die Freisetzungszeit extrahieren. Daraus lässt sich schließen, dass selbst für das kurzlebige Isotop ^{11}Li mit $T_{1/2} = 8,59$ ms ein maximaler Effizienzverlust von 50 % gegenüber den anderen Lithium-Isotopen zu erwarten ist. Spätere Messungen mit besserer Zeitauflösung am TRIUMF [San05] haben ergeben, dass die mittlere Verweilzeit in der Kohlenstoffolie bei unter 1 ms liegt.

5.2.2 Gesamteffizienz

Die Gesamteffizienz des Messverfahrens wird wie folgt bestimmt: Der Strom von der Ionenquelle wird mit einem Faraday-Becher gemessen, woraus sich die Anzahl der in die Folie implantierten Ionen berechnet. Diese wird mit der Resonanz-Ionen-Zählrate am Channeltron-Detektor verglichen. Die Effizienz der Resonanz-Ionisation hängt von der Laserleistung und vom Abstand der Kohlenstoffolie zur Ionisationsregion ab. Beim Einstellen des Abstands ist zu beachten, dass sich die Folie beim Heizen mit dem CO_2 -Laser um 1 - 2 mm in Richtung der Ionisationsregion ausbeult, dabei aber nicht die Elektrode der Ionisationsregion berühren

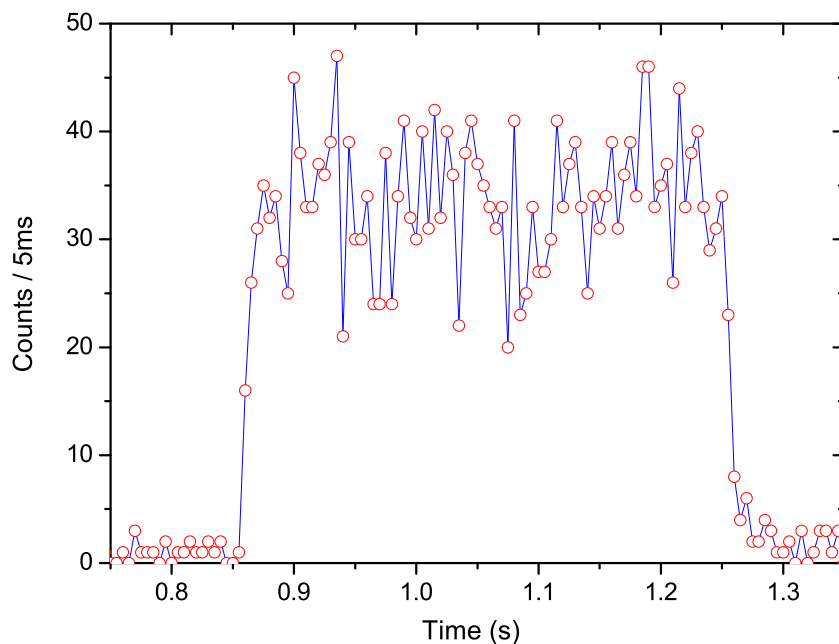


Abb. 5.3: Zeitverhalten der Freisetzung von Lithium aus Kohlenstoff beim Ein- und Ausschalten des Ionenstrahls.

darf. Ein solcher Kurzschluss kann über einen Abfall der an der Elektrode angelegten Spannung erkannt werden. Sollte dies geschehen muss kontrolliert werden, ob die Folie dabei nicht zerstört wurde.

Für ${}^7\text{Li}$ wurde bei einem Ionenstrom von 12 pA und maximaler Laserleistung eine Zählrate von $2 \cdot 10^4$ gemessen, was einer Gesamteffizienz von $2,7 \cdot 10^{-4}$ entspricht. Für die Effizienzbestimmung mit ${}^6\text{Li}$ wurde ebenfalls der Ionenstrom von ${}^7\text{Li}$ gemessen und über das natürliche Verhältnis der Isotope von 1:12 für ${}^6\text{Li}$ umgerechnet. Dies war notwendig, da bei ${}^6\text{Li}$ der Strom zu klein war, um ihn mit dem vorhandenen Amperemeter zu messen. Aus einem Strom von 4 pA und einer Zählrate von $6 \cdot 10^2$ ergibt sich hier eine Gesamteffizienz von $2,9 \cdot 10^{-4}$. Das angestrebte Ziel von $1 \cdot 10^{-4}$ ist somit zumindest für die stabilen Isotope erfüllt. Die Effizienzen für die Isotope ${}^8\text{Li}$ und ${}^9\text{Li}$ werden in Kap. 6.1 diskutiert.

Zusätzlich wurde mit dem gleichen Verfahren die Effizienz der Oberflächen-Ionisation gemessen. Für die stabilen Isotope ergaben sich dabei Werte von ca. $3 \cdot 10^{-4}$. Sie liegen somit im Bereich der in Kap. 4.1 angeführten Abschätzungen.

5.2.3 Ionenstrahlabhängige Untergrundquellen

Um einen möglichen Untergrund zu untersuchen, der während der Messung durch den Ionenstrahl oder den CO_2 -Laser verursacht wird, werden die Bedingungen an der Atomstrahlquelle variiert. Dabei ist die Ionenoptik des Quadrupol-Massenspektrometers auf die Anregung von Oberflächen-Ionen optimiert. Die Laser für die resonante Anregung und Ionisation werden nicht verwendet. Die abgezogenen und massenseparierten Oberflächen-Ionen werden mit dem Channeltron-Detektor nachgewiesen. Wie bereits erwähnt, entspricht die Oberflächen-

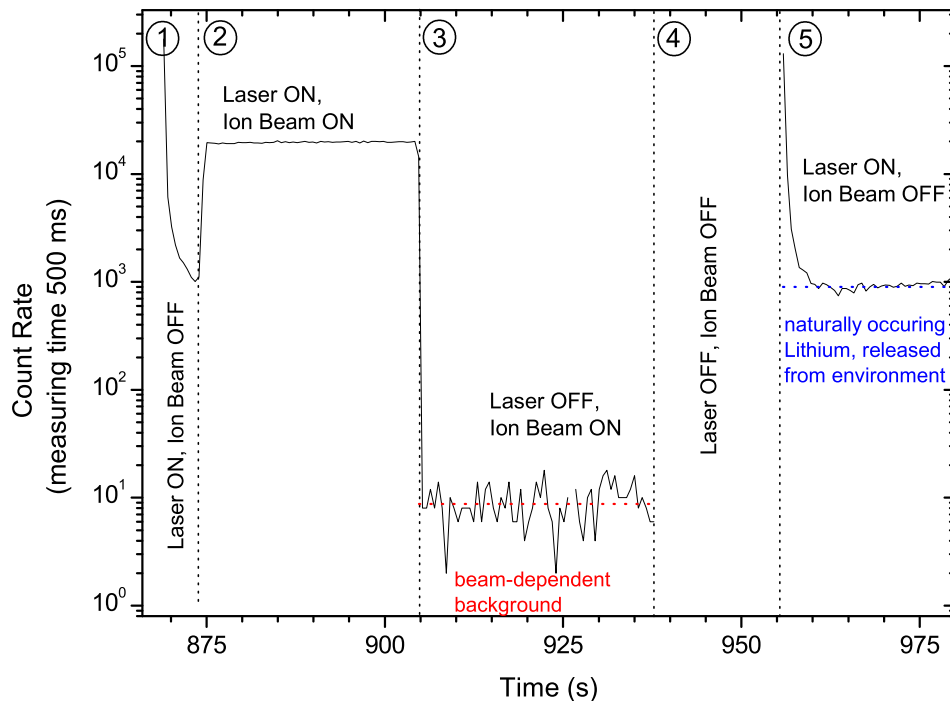


Abb. 5.4: Untergrundquellen beim Nachweis der Resonanz-Ionisation mit verschiedenen Kombinationen aus ein- und ausgeschaltetem Ionen- bzw. CO₂-Laser-Strahl. Bei dieser Messung wurde eine Kohlenstoffolie mit 80 μg/cm² verwendet.

Ionisations-Rate etwa der Resonanz-Ionisations-Rate, so dass im Folgenden die Rate der Oberflächen-Ionisation als Abschätzung des Laser-Ionensignals dienen kann. Die Ergebnisse für die verschiedenen Möglichkeiten von ein- bzw. ausgeschaltetem Ionen- bzw. CO₂-Laserstrahl sind in Abb. 5.4 dargestellt.

Bei ① und ⑤ in Abb. 5.4 erkennt man bei jeweils ausgeschaltetem Ionenstrahl das typische Verhalten beim Einschalten des CO₂-Lasers: Vormals deponierte Lithium-Atome werden als Oberflächen-Ionen spontan freigesetzt. Dies führt zunächst zu einer sehr hohen Zählrate, die dann sehr schnell abfällt. Diese Oberflächen-Ionen lassen sich durch eine positive Spannung von 5 V an der Ionisationsregion des Quadrupol-Massenspektrometers praktisch vollständig unterdrücken (im Bild nicht gezeigt). ②: Schaltet man den Ionenstrahl des Massenseparators ein, so stellt sich eine sehr konstante Zählrate im Bereich von $3 \cdot 10^{-4}$ des eintreffenden Strahlstroms ein (vgl. Kap. 5.2.2). ③: Schaltet man den CO₂-Laser zur Oberflächen-Ionisation aus, so reduziert sich die Rate um gut drei Größenordnungen, doch sie geht nicht auf Null zurück. Diese Rate ist unabhängig von der eingestellten Masse des Quadrupol-Massenspektrometers. Sie ist also auf Ionen zurückzuführen, die nicht in der Folie gestoppt werden, und das Massensfilter in so zu kurzer Zeit durchlaufen, dass es seine massenselektive Wirkung nicht entfalten kann. Dafür spricht auch die Beobachtung, dass ein Umschalten auf die Bedingungen für Resonanz-Ionen die Zählrate nicht wesentlich reduziert. Selbst eine Gegenspannung von 100 V (Maximalwert für die Ionisationsregion) reduziert diese Rate nur in geringem Maße. Es handelt sich also um einen ionenstrahlabhängigen Untergrund, der etwa im Bereich von 10^{-7} des eintreffenden Strahlstroms liegt. Er ist auf den in Kap. 4.1 diskutierten Strahlanteil zu-

rückzuführen, der von der Kohlenstoffolie nicht gestoppt wird und dessen Energie nach dem Durchgang durch die Folie unterhalb von 2 keV liegt, so dass er im Channeltron nachgewiesen wird. Dieser Untergrund ist frequenz- und massenunabhängig. Da er drei Größenordnungen geringer ist als die Rate des Resonanz-Ionisationssignals, ist er noch eine Größenordnung kleiner als das Doppler-verbreiterte Resonanzsignal. Eine Beeinträchtigung der Messung durch diese Ionen ist daher nicht zu erwarten. Wird auch noch der Ionenstrahl ausgeschaltet (④), so fällt die Zählrate auf die Dunkelzählrate des Channeltron-Detektors von etwa 15 mHz ab. Diese ist im Vergleich zu den erwarteten Signalen von $^{8,9}\text{Li}$ vernachlässigbar niedrig. Lediglich für ^{11}Li , bei dem in Resonanz eine Signalrate von nur 3 Hz erwartet wird, rückt die Dunkelzählrate in den Bereich von knapp 10^{-2} des zu erwartenden Signals und damit in die Größenordnung des Doppler-verbreiterten Signals. Dies sollte ggf. beim Anpassen der Kurven berücksichtigt werden, indem ein frequenzunabhängiger Untergrund in die Anpassung mit einbezogen wird.

5.3 Linienprofile und Sättigungsverhalten

Für die Messungen an stabilen Isotopen wurden die thermischen Atomstrahlen auf zweierlei Weise erzeugt. Für die ersten Testmessungen, bei denen sich der gesamte Messaufbau im Laserlabor befindet, wurde auf die Kohlenstoffolie, die sonst zum Stoppen des Lithium-Ionenstrahls dient, eine Lithiumnitratlösung aufgebracht. Durch das Heizen der Folie mit einem CO_2 -Laser (vgl. Abb. 4.2) entsteht der erforderliche thermische Atomstrahl. Dabei ist das Zeitverhalten zu beachten, mit dem die Atome freigesetzt werden: Es entspricht dem in Abb. 5.4 bei ⑤ gezeigten Fall. Nach einem zunächst starken Abklingen des Teilchenstroms stellte sich ein Gleichgewicht ein. Die Zahl der Atome, die in die heiße Region der Folie diffundieren, entspricht denn der Zahl der abgedampften Atome. Mit einer einmaligen Deposition von 10^{17} Lithium-Ionen in $10\ \mu\text{l}$ Lösung konnte die Spektroskopie über mehrere Tage betrieben werden.

Für die wiederholten Referenzmessungen während der Strahlzeit wurde die in Kap. 4.1 beschriebene Online-Quelle benutzt. Dabei kann die Intensität des vom Massenseparator gelieferten Lithium-Ionenstrahls vor dem Stoppen in der Kohlenstoffolie mit einem Faraday-Becher gemessen und mit den nachgewiesenen Resonanz-Ionen verglichen werden.

5.3.1 Linienprofil des Zweiphotonen-Übergangs

Das Linienprofil des $2\ S \rightarrow 3\ S$ -Übergangs wurde zunächst am stabilen Isotop ^7Li studiert, wobei die mit Lithiumnitratlösung beträufelte Graphitfolie zum Einsatz kam und die Einstellungen des Massenseparators auf Laser-Ionen der Masse 7 optimiert wurden. Zunächst wird der Ti:Sa-Laser auf die Startfrequenz stabilisiert und dann die Regelung des Resonators eingeschaltet. Da in diesem Fall ein Spektrum über einen Frequenzbereich von 2,5 GHz aufgenommen werden soll, der deutlich größer ist als der dynamische Bereich der Resonatorregelung (etwa 750 MHz), wird das Spektrum in Abschnitten von 500 MHz stückweise abgefahren. In jedem Abschnitt wird nach dem Einschalten der Resonatorregelung der Farbstofflaser auf eine longitudinale Mode des Resonators stabilisiert, die möglichst nahe an der Resonanzfrequenz des $2\ ^2P_{3/2} \rightarrow 3\ ^2D_{5/2}$ -Übergangs liegt. Diese Resonanzfrequenzen sind für die stabilen Isotope aus der Literatur bekannt [Rad95] und in Tab. 5.1 angegeben. Aufgrund der Sättigungsverbreiterung dieses Übergangs (siehe Kap. 5.3.2) ist die Meßgenauigkeit des hier verwendeten ATOS-Wavemeters ausreichend, um die Resonanzfrequenz zuverlässig einzustellen. Nachdem

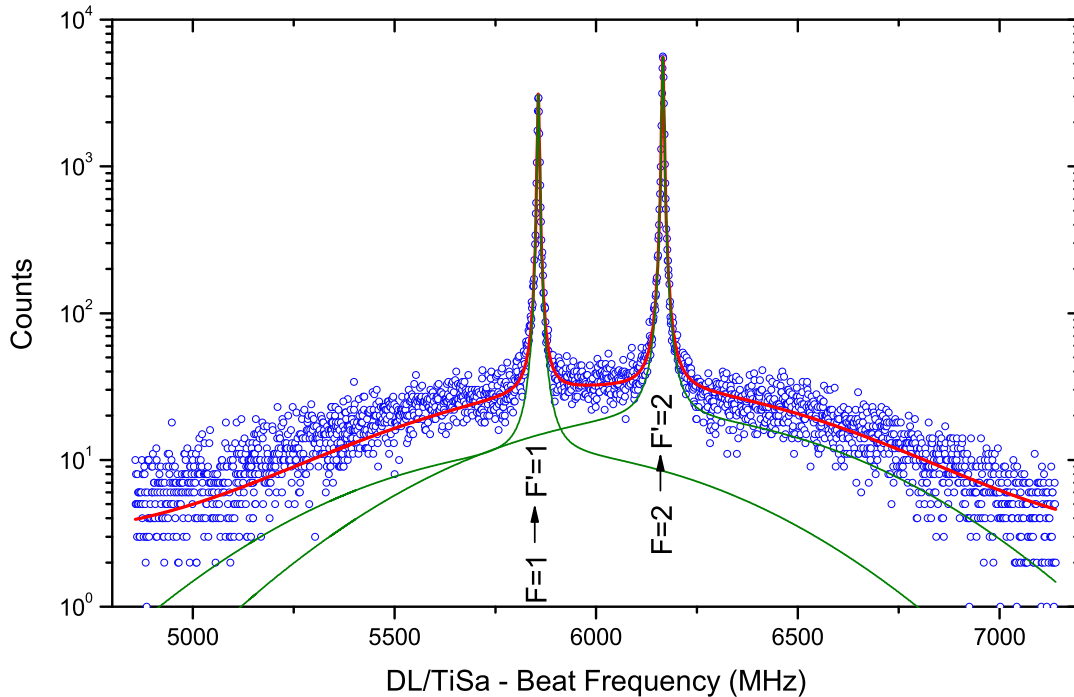


Abb. 5.5: Spektrum des $2S \rightarrow 3S$ Zweiphotonen-Übergangs von Lithium-7 mit den daran angepassten Linienprofilen für die einzelnen Hyperfeinkomponenten und dem Summenprofil. Die experimentellen Daten sind durch offene Kreise und die angepassten Linienprofile durch durchgezogene Kurven dargestellt.

die gesamte Stabilisierungskette geschlossen ist, wird der Frequenzabschnitt in Schritten von 1 MHz abgefahren.

Das so erhaltene Signal ist in Abb. 5.5 dargestellt. Neben den schmalen Resonanzen der beiden Hyperfeinstrukturkomponenten (vgl. Kap. 2.3) ist das breite Doppler-Signal gut zu erkennen, das, wie in Kap. 3.2 diskutiert, auf die Anregung mit zwei Photonen aus der gleichen Richtung zurückzuführen ist.

An jede der beiden Hyperfeinresonanzen ist ein Zweiphotonen-Linienprofil angepasst (durchgezogene Linie), das aus einem schmalen Doppler-freien Voigt-Profil und einem darunterliegenden breiten Gauß-Profil besteht. Die homogene und inhomogene Linienbreite des Voigt-Profiles, die Breite der Gaußkurve, sowie die relative Intensität der Gaußkurven wurden für beide Hyperfeinstrukturkomponenten als gleich angenommen. In der Abbildung ist neben dem Summensignal auch der Beitrag jeder Einzelleine dargestellt. Das experimentelle Linienprofil wird durch die Anpassung hervorragend beschrieben.

Der homogene Anteil des Voigt-Profiles ist mit 4,5 MHz gegenüber der natürlichen Breite von 2,65 MHz bereits leicht sättigungsverbreitert. Der inhomogene Anteil mit einer Breite von 0,9 MHz stimmt gut mit der Linienbreite des Lasers überein¹, wie sie aus dem Spektrum des Schwebungssignals abgeschätzt wurde (vgl. Abb. 5.1). Das Verhältnis der beiden Signalhöhen von 2,9:5 liegt nahe an dem durch die statistischen Gewichte erwarteten Verhältnis von 3:5.

Die Breite des Doppleruntergrunds von etwa 600 MHz ist bedingt durch den Abstand der

¹Diese Angaben der Linienbreiten beziehen sich auf die Frequenzskala der Fundamentalen bei 735 nm.

Kohlenstoffolie zur Wechselwirkungsregion und der Geometrie der Apparatur bzw. der Eintrittsöffnung, die als Blende wirkt. Seine relative Intensität beträgt etwa $3 \cdot 10^{-3}$ des Doppler-freien Signals. Ein Beitrag eines konstanten frequenzunabhängigen Untergrunds ist nicht zu erkennen. Bei den Messungen am Massenseparator befand sich die Graphitfolie dichter an der Wechselwirkungsregion und der Doppler-Untergrund besitzt dementsprechend eine deutlich größere Breite von 1,7 GHz.

5.3.2 Linienprofil des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs

Wenn der Ti:Sa-Laser über die $2S \rightarrow 3S$ -Resonanzen der Lithium-Isotope gestimmt wird, verändert sich zwangsläufig auch die Frequenz des Farbstofflasers. Ursache dafür ist die Kopplung der beiden Laserfrequenzen über die Länge des Überhöhungsresonators, der sich für beide Frequenzen in Resonanz befindet. Damit das Linienprofil des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs dadurch nicht beeinflusst wird, muss sichergestellt sein, dass sich die Anregungseffizienz des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs und damit die Ionisationseffizienz während der Aufnahme des Spektrums nicht verändert. Andernfalls könnte es zu einer systematischen Verschiebung des aus der Anpassung ermittelten Linienzentrums kommen, weil die Linienform auch von der exakten Frequenz des Farbstofflasers abhängig wäre. Hilfreich ist hier die starke Sättigungsverbreiterung des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs.

Um das Profil dieses Übergangs zu bestimmen, wird der Ti:Sa-Laser zunächst auf die $F = 2 \rightarrow F' = 2$ -Resonanz des Zweiphotonen-Übergangs von ${}^7\text{Li}$ stabilisiert. Dann wird der Farbstofflaser manuell über die $2P \rightarrow 3D$ -Resonanz gestimmt. Immer wenn eine Longitudinalmode des Resonators (FSR = 500 MHz) erreicht ist, wird der Farbstofflaser auf den Resonator stabilisiert und die Zählrate des Channeltron-Detektors über 20 Sekunden gemittelt. Abbildung 5.6 (a) zeigt die Abhängigkeit der Zählrate von der mit Hilfe eines ATOS-Wavemeters bestimmten

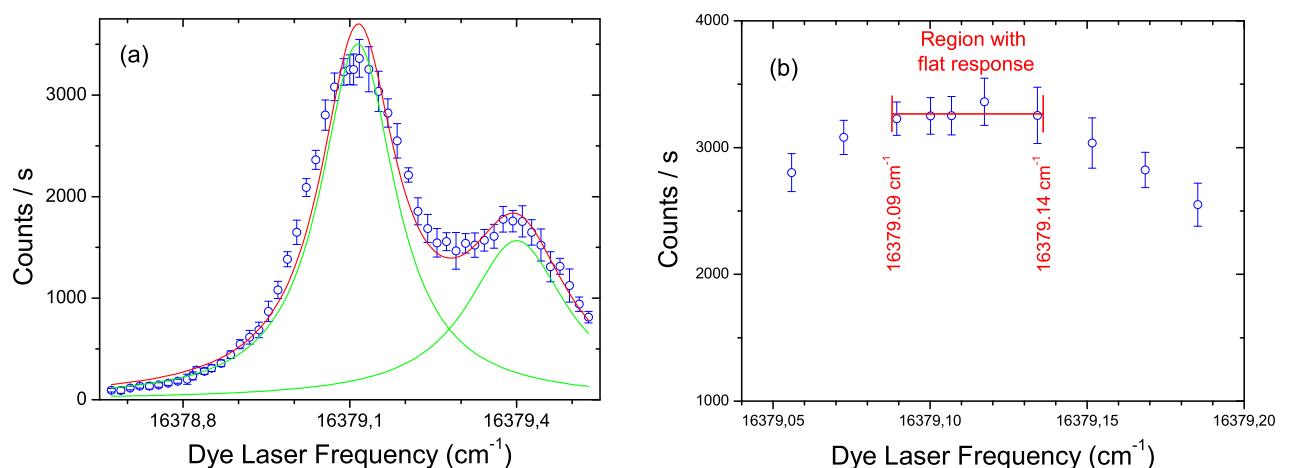


Abb. 5.6: Linienprofil des sättigungsverbreiterten $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs in Abhängigkeit von der Frequenz des Farbstofflasers bei fester Frequenz des Ti:Sa-Lasers; (a) gesamtes Spektrum mit angepasstem zweikomponentigen Lorentzprofil, (b) Ausschnittsvergrößerung des Maximums mit den Messpunkten und dem markierten flachen Bereich, in dem der Farbstofflaser während der Aufnahme des $2S \rightarrow 3S$ -Resonanzspektrums stabilisiert wird.

Tabelle 5.1: Wellenzahlen der Feinstrukturkomponenten im $2P \rightarrow 3D$ -Übergang der stabilen Lithium-Isotope [Rad95]

Übergang i	$\nu_i(^6\text{Li})$ [cm^{-1}]	$\nu_i(^7\text{Li})$ [cm^{-1}]
$2P_{3/2} \rightarrow 3D_{3/2}$	16 378,9728	16 379,0661
$2P_{3/2} \rightarrow 3D_{5/2}$	16 379,0089	16 379,1021
$2P_{1/2} \rightarrow 3D_{3/2}$	16 379,3081	16 379,4014

Wellenzahl des Farbstofflasers. An die Datenpunkte ist ein zweikomponentiges Lorentzprofil angepasst. Das Resultat weist eine stark sättigungsverbreiterte Linienbreite von $0,22 \text{ cm}^{-1}$ auf, was etwa 6,6 GHz entspricht. Der Abstand der beiden Komponenten beträgt ungefähr 10 GHz und stimmt mit der bekannten Feinstrukturaufspaltung des $3P$ -Niveaus überein [Rad95]. Der stärkere Übergang sollte aufgrund der Feinstruktur des $3D$ -Niveaus aufgespalten sein. Diese Aufspaltung ist aber durch die Sättigungsverbreiterung und den relativ kleinen Frequenzabstand der $3D$ -Zustände von etwa 1,1 GHz nicht aufgelöst, führt aber zu einem ausgeprägt flachen Maximum des Signals, welches in Abb. 5.6 (b) in einer Ausschnittsvergrößerung dargestellt ist. In dem markierten Bereich von etwa 1,1 GHz Breite ist die Ionisationseffizienz praktisch unabhängig von der Frequenz des Farbstofflasers. Dies ist ausreichend, um sicherzustellen, dass sich immer eine passende longitudinale Mode zur Stabilisierung des Farbstofflasers finden lässt, die über den gesamten Frequenzbereich des $2S \rightarrow 3S$ -Hyperfeinstrukturabstands (maximal 400 MHz) eine gleich bleibende Ionisationseffizienz gewährleistet.

Durch eine weitere Steigerung der Intensität des Farbstofflasers im Resonator könnte die Sättigungsverbreiterung so groß gemacht werden, dass auch die P -Feinstruktur-niveaus überlappen und somit auch die über den $P_{1/2}$ -Zustand zerfallenden Atome zum Ionisationsprozess beitragen würden. Damit ließe sich die Effizienz noch einmal um etwa einen Faktor 1,5 erhöhen.

Die mit dem ATOS-Wavemeter gemessenen Resonanzfrequenzen für $^6,7\text{Li}$ stimmen im Rahmen der Meßgenauigkeit mit den aus [Rad95] bekannten Werten überein, die in Tab. 5.1 zusammengefasst sind. Aus diesen lässt sich nun die Lage der Resonanzen für die kurzlebigen Isotope mit ausreichender Genauigkeit berechnen indem man den winzigen Beitrag des Feldeffektes zu diesen Übergängen vernachlässigt. Man erhält gemäß (2.6) die Konstante K_{MS} und daraus wiederum den Masseneffekt für $^8,9,11\text{Li}$. Das Resultat für die stärkste Feinstrukturkomponente und die sich ergebenden Absolutfrequenzen, die als Anhaltspunkte für die Stabilisierung des Farbstofflasers bei den Online-Messungen dienen, sind in Tab. 5.2 angegeben. Der Masseneffekt für die anderen Komponenten unterscheidet sich nur um wenige MHz.

Tabelle 5.2: Masseneffekt $\delta\nu_{2P-3D,\text{MS}}^{6,A}$ und Resonanzfrequenzen ν_{2P-3D} der $2P_{3/2} \rightarrow 3D_{3/2,5/2}$ -Übergänge der Lithium-Isotope

Isotop	^6Li	^7Li	^8Li	^9Li	^{11}Li
$\delta\nu_{2P_{3/2}-3D_{3/2},\text{MS}}^{6,A}$ [MHz]	0	2 797	4 906	6 541	8 927
$\nu_{2P-3D,\text{MS}}$ [cm^{-1}]	16 378,9728	16 379,0661	16 379,1364	16 379,1910	16 379,2706

5.3.3 Sättigungsverhalten

Zweiphotonen-Übergang

Das Sättigungsverhalten des Zweiphotonen-Übergangs kann auf zwei Arten untersucht werden. Zum einen lässt sich mit

$$\Gamma_s(I) = \Gamma_0 \sqrt{1 + (I/I_0)^2} \quad (5.2)$$

direkt über die Abhängigkeit der Linienbreite Γ_s von der Intensität I die Sättigungsintensität I_0 und die unbeeinflusste Linienbreite Γ_0 bestimmen. Zum anderen können die Sättigungsparameter aus der Ionisationsrate als Funktion der Laserleistung bestimmt werden. Dazu wird eine Reihe von Messungen des Linienprofils im Zweiphotonen-Übergang mit verschiedenen Laserleistungen durchgeführt.

Die aus der Anpassung des Profils gemäß Kapitel 5.3.1 bestimmten homogenen Linienbreiten sind in Abb. 5.7 (a) als Funktion der Intensität im Resonatorfokus aufgetragen. Bei geringen Laserleistungen wird aufgrund der abnehmenden Signalhöhe sowie der damit ebenfalls abnehmenden Information an den Flanken der Kurve die Zuordnung zu homogener und inhomogener Linienbreite für die Anpassungsroutine schwierig. Die Korrelation der beiden Anteile führt zu einer größeren Streuung im Bereich niedriger Intensitäten und könnte auch eine systematische Abweichung der Linienbreiten verursachen.

Die durchgezogene Kurve zeigt das Resultat einer Anpassung der Linienbreitenfunktion (5.2) an die Messdaten. Für die unbeeinflusste Linienbreite ergibt sich $\Gamma_0 = 3,2(1)$ MHz bei der Frequenz der Fundamentalen, das Resultat für die Sättigungsintensität lautet $I_0 = 167(6)$ W/mm². Die Differenz zur natürlichen Linienbreite des Übergangs von $\Gamma_{\text{Nat}} = 2,65$ MHz ist vermutlich auf die in Kap. 4.3.3 beschriebenen Leistungsschwankungen im Resonator zurückzuführen, die zu schnell variierenden Lichtverschiebungen für das gesamte thermische Ensemble und somit zu einer homogenen Verbreiterung führen. Außerdem könnte ein geringer Anteil an Flugzeitverbreiterung vorhanden sein. Die aus dem Fit erhaltenen Unsicherheiten sollten aufgrund der diskutierten Schwierigkeit der Trennung von homogener und inhomogener

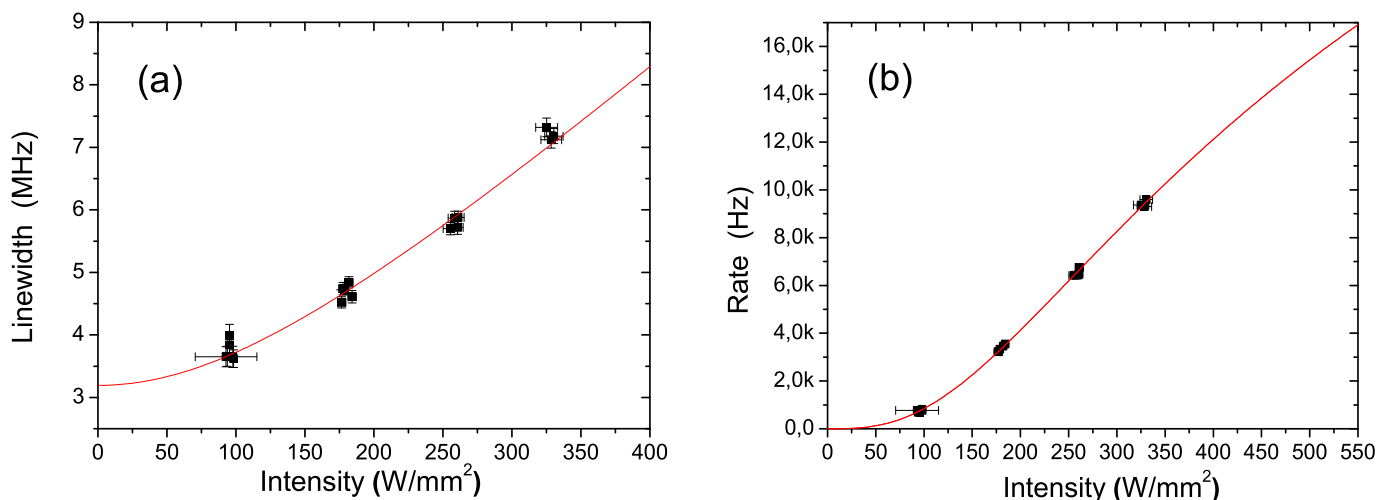


Abb. 5.7: Messungen zum Sättigungsverhalten der $2S \rightarrow 3S$ -Anregung: (a) anhand der Sättigungsverbreiterung nach (5.2) und (b) anhand der Anregungsrate nach (5.3).

Breite lediglich als untere Grenze aufgefasst werden, da deren systematischer Einfluss nicht berücksichtigt ist.

Trägt man alternativ die Ionisationsrate – also die Signalhöhen – gegen die Laserleistung auf, so erhält man Abb. 5.7 (b). Bei der theoretischen Beschreibung muss man berücksichtigen, dass der Ti:Sa-Laser nicht nur über die Zweiphotonenanregung die Ionisationsrate beeinflusst, sondern aufgrund der höheren Intensität auch maßgeblich an dem Anregungsschritt ins Kontinuum beteiligt ist. Daher wird die Funktion

$$R = C_1 \frac{I^2}{1 + \frac{I^2}{I_1^2}} C_2 \frac{I}{1 + \frac{I}{I_2}} \quad (5.3)$$

zur Beschreibung des beobachteten Verlaufs herangezogen. Hierbei ist I_1 die Sättigungsintensität des Zweiphotonen-Schrittes, I_2 die Sättigungsintensität der Ionisation aus dem D -Niveau mit dem Ti:Sa-Laser, und C_i sind die jeweiligen Proportionalitätskonstanten. Das Ergebnis der Anpassung der Parameter an die Messdaten ist ebenfalls in Abb. 5.7 (b) dargestellt und weist mit $I_1 = 225(34) \text{ W/mm}^2$ eine etwas höhere Sättigungsintensität des Zweiphotonen-Schrittes auf als sie sich aus der Linienbreite ergeben hat. Beide Resultate lassen allerdings den Schluss zu, dass die mit dem Ti:Sa-Laser erreichbaren Intensitäten bereits oberhalb der Sättigungsintensität liegen.

Eine Aussage über die Sättigungsintensität der Ionisation lässt sich aus dem Ergebnis der Parameteranpassung für I_2 mit $954(919) \text{ W/mm}^2$ aufgrund der großen Unsicherheit nicht treffen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im Bereich dieser Intensitäten keine Messwerte mehr zur Verfügung stehen und der Parameter daher über einen weiten Bereich variiert werden kann, ohne den χ^2 -Wert der Anpassung merklich zu beeinflussen.

2 $P \rightarrow 3 D$ -Übergang

Zum Messen der Sättigungsintensität des $2 P \rightarrow 3 D$ -Übergangs werden beide Laser auf Resonanz gebracht und die Leistung des Farbstofflasers variiert. Die Zählrate des Channeltron-Detektors in Abhängigkeit von der Intensität der Anregung ist in Abb. 5.8 dargestellt.

Man erkennt, dass der Übergang bereits bei Intensitäten weit unter einem W/mm^2 gesättigt ist. Bei Intensitäten von über 12 W/mm^2 ist jedoch ein erneuter Anstieg der Zählrate zu beobachten. Dies ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass bei diesen Intensitäten neben dem $P_{3/2}$ - auch das $P_{1/2}$ -Niveau durch steigende Sättigungsverbreiterung zur Anregung beiträgt. Dies kann bereits aus der Interpretation von Abb. 5.6 vermutet werden. Ein nennenswerter Beitrag des Farbstofflasers zur Ionisation ist bei diesen Intensitäten allerdings nicht zu erwarten.

5.4 Resonanzsignale und Einfluss systematischer Effekte

5.4.1 Resonanzspektren

Zur Aufnahme der Lithium-Resonanzsignale werden Resonator und Laser stabilisiert und der Ti:Sa-Laser in Schritten von 1 MHz über die Resonanz gestimmt. Bei den stabilen Isotopen wird der Bereich von $\pm 30 \text{ MHz}$ um die Hyperfeinstrukturresonanzen abgefahren und der

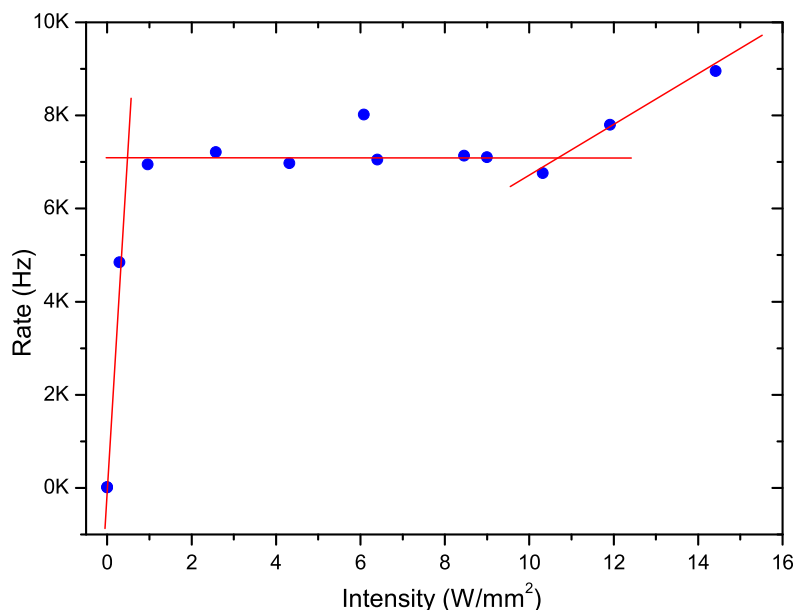


Abb. 5.8: Sättigungsverhalten des $2P \rightarrow 3D$ -Übergangs: Bereits bei niedrigen Leistungen wird die Sättigung des $2P_{3/2} \rightarrow 3D_{3/2,5/2}$ -Übergangs erreicht; bei höheren Leistungen wird vermutlich die Verbreiterung des $2P_{1/2}$ -Niveaus so stark, dass es ebenfalls zur Anregung beiträgt. Die eingezeichneten Linien dienen lediglich zur Führung des Auges.

Bereich niedriger Zählraten zwischen den beiden Hyperfeinkomponenten übersprungen, da dieser beim Bestimmen der Resonanzfrequenzen keinen entscheidenden Beitrag liefert. Die Zeitdauer der einzelnen Messungen wird dadurch – insbesondere für die Isotope $^{7,9,11}\text{Li}$ mit großer Hyperfeinaufspaltung – erheblich verkürzt, was vor allem während der Online-Strahlzeit von Bedeutung ist. Typische Messkurven der stabilen Isotope sind in Abb. 5.9 dargestellt².

Zur Bestimmung der Resonanzfrequenz werden Linienprofile gemäß Kap. 5.3.1 an die Messdaten angepasst. Man erkennt die hervorragende Übereinstimmung der beiden Hyperfeinkomponenten mit dem Voigt-Profil. Neben dem angepassten Summenprofil ist auch das Einzelprofil für jede der beiden Linien eingezeichnet. Insbesondere ist bei ^6Li aufgrund der relativ kleinen Hyperfeinstrukturaufspaltung der Beitrag der stärkeren Hyperfeinstrukturkomponente zum Linienprofil der schwächeren nicht zu vernachlässigen. Die Qualität der Anpassung ist sehr gut. Dies zeigt sich auch durch das reduzierte χ^2 , welches im Mittel bei $\chi^2/f = 1,1$ liegt, wobei f die Anzahl der Freiheitsgrade darstellt. Aus den erhaltenen Frequenzpositionen der Einzelkomponenten wird nach (2.29) die Lage des Linienschwerpunkts ermittelt.

²Bei den beiden für Abb. 5.9 ausgewählten Datensätzen wurde das Lithium auf unterschiedliche Weise erzeugt. Die Messung des ^6Li fand während der Strahlzeit am Online-Massenseparator statt, die dargestellte Messung von ^7Li im Laserlabor unter Verwendung von Kohlenstofffolien, auf die Lithiumnitratlösung aufgebracht wurde.

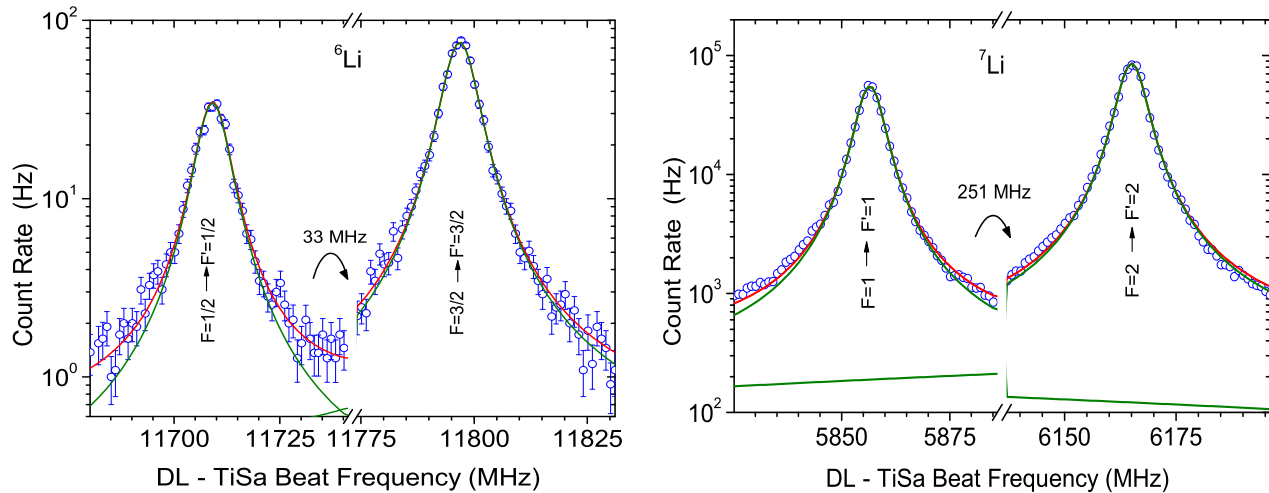


Abb. 5.9: Typische Spektren von Lithium-6 und -7 mit den Hyperfeinkomponenten und den angepassten Profilen, bestehend aus Voigt-Funktionen für die Doppler-freien Resonanzlinien und Gauß-Funktionen für den Doppler-verbreiterten Anteil.

5.4.2 Lichtverschiebung

Um die Laserleistung im Resonator zu bestimmen, sind auf der hochreflektierenden Seite hinter dem Resonator Photodioden angebracht. Mit diesen wird während der Messung der Resonanzlinien die Laserleistung kontinuierlich gemessen, um die Lichtverschiebung zu ermitteln (vgl. Kap. 3.2) und Ausfälle in der Regelung zu analysieren.

Die Lichtverschiebung wird durch die geringe, aber nicht vernachlässigbare Kopplung der atomaren S - und P -Niveaus durch das eingestrahlte Laserlicht hervorgerufen. Sie wird im Wesentlichen durch das Licht des Ti:Sa-Lasers verursacht und beeinflusst zum einen die homogene Linienbreite des Übergangs (vgl. Kap. 5.3.3) und zum anderen dessen Linienlage. Die geringe Verbreiterung spielt für die Analyse der Messungen keine Rolle, die Verschiebung muss jedoch präzise korrigiert werden. Dazu wird die Leistung des Ti:Sa-Lasers von 100% auf 75%, 50%, 33% und 25% reduziert und die Veränderung der Resonanzfrequenz gemessen. In Abb. 5.10 ist der Linienschwerpunkt der beiden Hyperfeinkomponenten gegen die durch den Resonator transmittierte Laserleistung (Cavity Leakage Power) aufgetragen. Die Steigungen m der Ausgleichsgeraden mit den dazugehörigen Y -Achsenabschnitten f_0 , die den Übergangsfrequenzen bei verschwindender Laserleistung entsprechen, sind in Tab. 5.3 zusammengestellt.

Man erkennt, dass sich bei den Messungen im Laserlabor (LL) und am Massenseparator (MS) jeweils unterschiedliche, aber für beide Isotope konsistente Steigungen ergeben. Die Steigungen bei den Messungen im Laserlabor sind dabei größer als die der Messungen am Massenseparator. Dieser Unterschied ist auf eine Änderung der Resonanzüberhöhungen im Resonator durch ein zwischenzeitliches Bedampfen der Spiegel mit Kaliumbromid zurückzuführen: Das Kaliumbromid war auf einem Metallträger aufgebracht und diente als Leuchtschirm, um die Position des Ionenstrahls sichtbar zu machen. Bei der Justage des Ionenstrahls wurde Kaliumbromid vom Schirm zerstäubt und schlug sich auf den Resonatorspiegeln nieder, die dadurch an Reflektivität verloren. Die ursprüngliche Qualität ließ sich durch eine Reinigung der Spiegel nicht vollständig wiederherstellen. Dementsprechend war bei den späteren Messungen bei gleicher

Tabelle 5.3: Einfluss der Laserintensität auf die Lage der Resonanzfrequenzen, gemessen anhand der vom Resonator transmittierten Laserleistung bei Messungen im Laserlabor (LL) und am Massenseparator (MS) mit einer speziellen Messreihe zur Lichtverschiebung (MS, LV) für das Referenzisotop ^7Li . Aufgeführt sind die Steigungen m der Ausgleichsgeraden und die Resonanzfrequenzen f_0 bei verschwindender Laserleistung.

Parameter	^6Li (LL)	^6Li (MS)	^7Li (LL)	^7Li (MS)	^7Li (MS, LV)
m [MHz/mW]	-0,064(5)	-0,054(2)	-0,070(5)	-0,056(1)	-0,058(2)
f_0 [MHz]	11 769,430(101)	11 769,477(49)	6042,577(88)	6042,518(33)	6042,553(33)

Intensität im Resonator die hinter dem hochreflektierenden Spiegel gemessene Leistung größer und die Geradensteigung wurde flacher.

Die Geradensteigungen der Lichtverschiebungsmessungen am selben Messplatz (Laserlabor bzw. Massenseparator) stimmen für die beiden Isotope innerhalb der Fehler überein. Die Werte der Extrapolation der Resonanzfrequenzen f_0 zu verschwindender Laserleistung sind bei allen Messungen konsistent. Um die Geradensteigung m des Referenzisotops ^7Li möglichst genau zu bestimmen, wurde am Massenseparator eine Messung zur Lichtverschiebung (MS, LV) mit besonders hohen Zählraten durchgeführt. Der Wert für m bei dieser Messung weicht von dem Wert, der aus der Anpassung an alle Messdaten resultiert, um 1σ ab (vgl. Tab. 5.3). Außerdem fällt in Abb. 5.10(b) auf, dass die Referenzmessungen am Massenseparator, die nicht zu der gesonderten Messreihe zur Lichtverschiebung gehören (Other MS Data), überwiegend oberhalb der Ausgleichsgeraden liegen. Dies ist wahrscheinlich auf eine weitere Veränderung der Resonatorgüte während der Strahlzeit am Massenseparator zurückzuführen. Allerdings könnte auch ein Etalon-Effekt am Austrittsfenster des Laserstrahls aus der Vakuumapparatur ein solches Verhalten verursachen. Diese Unsicherheit in der Bestimmung der Referenzfrequenz muss als systematischer Fehler in die Ergebnisse der Isotopieverschiebungsmessung eingehen. Er wird im Zusammenhang mit den Resultaten im nächsten Abschnitt diskutiert.

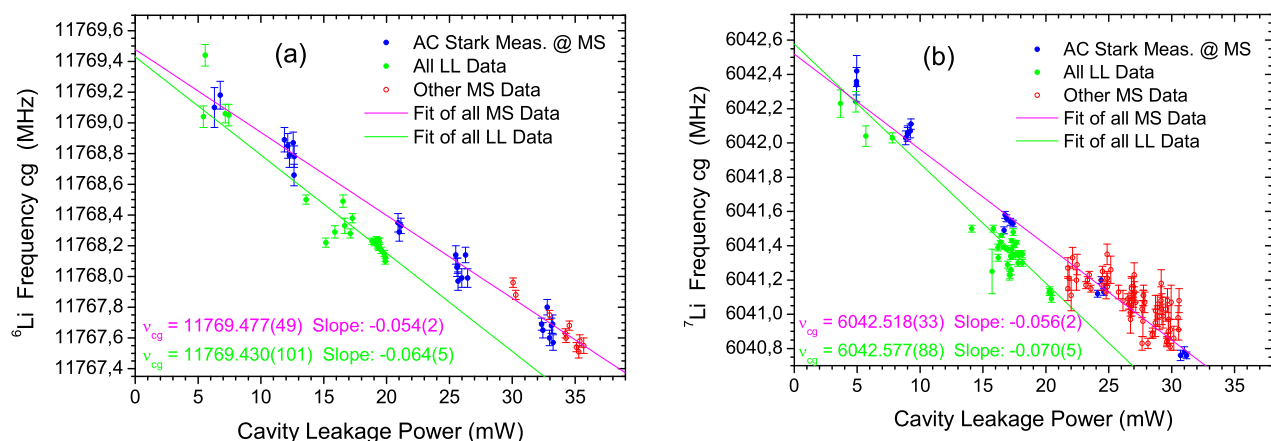


Abb. 5.10: Lichtverschiebung von Lithium-6 (a) und -7 (b) mit Ausgleichsgeraden für Messungen im Laserlabor (LL) und Messungen am Massenseparator (MS) sowie den Daten zu speziellen Messungen der Lichtverschiebung (AC Stark Meas.).

5.5 Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur der stabilen Isotope

5.5.1 Isotopieverschiebung

Die Isotopieverschiebung zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ kann durch zwei Verfahren bestimmt werden. Im ersten Fall wird der in einer Einzelmessung ermittelte Linienschwerpunkt von ${}^6\text{Li}$ mit der Frequenz der Ausgleichsgeraden des Referenzisotops ${}^7\text{Li}$ bei gleicher Laserleistung ($P_1 = P_2$) verglichen. Im zweiten Fall wird eine Extrapolation zu verschwindender Laserleistung ($P \rightarrow 0$) für beide Isotope durchgeführt. Beim Zweiphotonen-Übergang muss noch ein Faktor 2 berücksichtigt werden. Die Resultate sind in Tab. 5.4 zusammengestellt. Angegeben ist der statistische Fehler, der sich im Fall der Extrapolation aus den Unsicherheiten der f_0 aus Tab. 5.3 ergibt. Für den Fall $P_1 = P_2$ ergibt er sich aus der Standardabweichung des Mittelwertes für 61 Messungen. Der statistische Fehler durch die Lichtverschiebung des Farbstofflasers ist darin bereits enthalten.

Die systematische Unsicherheit für die Extrapolation ($P \rightarrow 0$) wird anhand der Differenz der Resultate für f_0 (Tab. 5.3) aus der Anpassung an die Lichtverschiebungsmessung (MS, LV) und an alle Online-Messergebnisse (MS) abgeschätzt. Für die Differenz zwischen zwei Isotopen ergibt sich die systematische Unsicherheit nach Fehlerfortpflanzung zu: $2 \times \sqrt{2} \times 35 \text{ kHz} = 98 \text{ kHz}$. Im Fall $P_1 = P_2$ beträgt die Unsicherheit der Referenzposition 112 kHz, sie wird aus der maximal auftretenden Leistung von 33 mW mit Hilfe der Fehlerfortpflanzung der Geradengleichung berechnet.

Das Ergebnis für gleiche Laserleistung weist eine geringere Unsicherheit auf, da keine Extrapolation vorgenommen werden muss; die in Kap 5.4.2 diskutierte systematische Unsicherheit muss jedoch berücksichtigt werden. Vergleicht man den Wert aus [Bus03] von 11 453, 734(30) MHz mit dem der vorliegenden Arbeit von 11 453, 947(132) MHz, so ergibt sich eine Abweichung von $1,6 \sigma$ der quadratisch addierten statistischen Unsicherheiten beider Werte, die im Folgenden „kombinierte Unsicherheiten“ genannt werden.

Um die statistische Streuung der Messwerte und einen eventuellen systematischen Trend in Abhängigkeit von der Laserleistung zu untersuchen, ist in Abb. 5.11 die Abweichung der Messwerte von der jeweils zugehörigen Ausgleichsgeraden der Lichtverschiebung dargestellt. Für ${}^6\text{Li}$ wurden insgesamt 61 Messungen im Laserlabor und am Massenseparator durchgeführt. Die Abweichungen von der Ausgleichsgeraden sind für fast alle Messungen kleiner als 100 kHz und weisen eine Normalverteilung auf.

Für das Referenzisotop ${}^7\text{Li}$ wurden 125 Messungen durchgeführt, die meisten davon am Massenseparator. Auch in diesem Fall liegt die überwiegende Zahl von Messungen in einem Intervall

Tabelle 5.4: Isotopieverschiebung zwischen Lithium-6 und -7 ermittelt nach dem im Text beschriebenen Verfahren ($P \rightarrow 0$) und ($P_1 = P_2$) sowie deren statistische und systematische Unsicherheit.

Methode	Isotopieverschiebung [MHz]
$P \rightarrow 0$	11 453,882(109)(98)
$P_1 = P_2$	11 453, 947(20)(112)

von ± 100 kHz um die Ausgleichsgerade. Bei hohen Leistungen gibt es aber eine Asymmetrie, die sich auch bei der Häufigkeitsverteilung der Messwerte bemerkbar macht. Diese ist vermutlich auf die im vorangegangenen Kapitel diskutierten Ursachen zurückzuführen und in der systematischen Unsicherheit berücksichtigt.

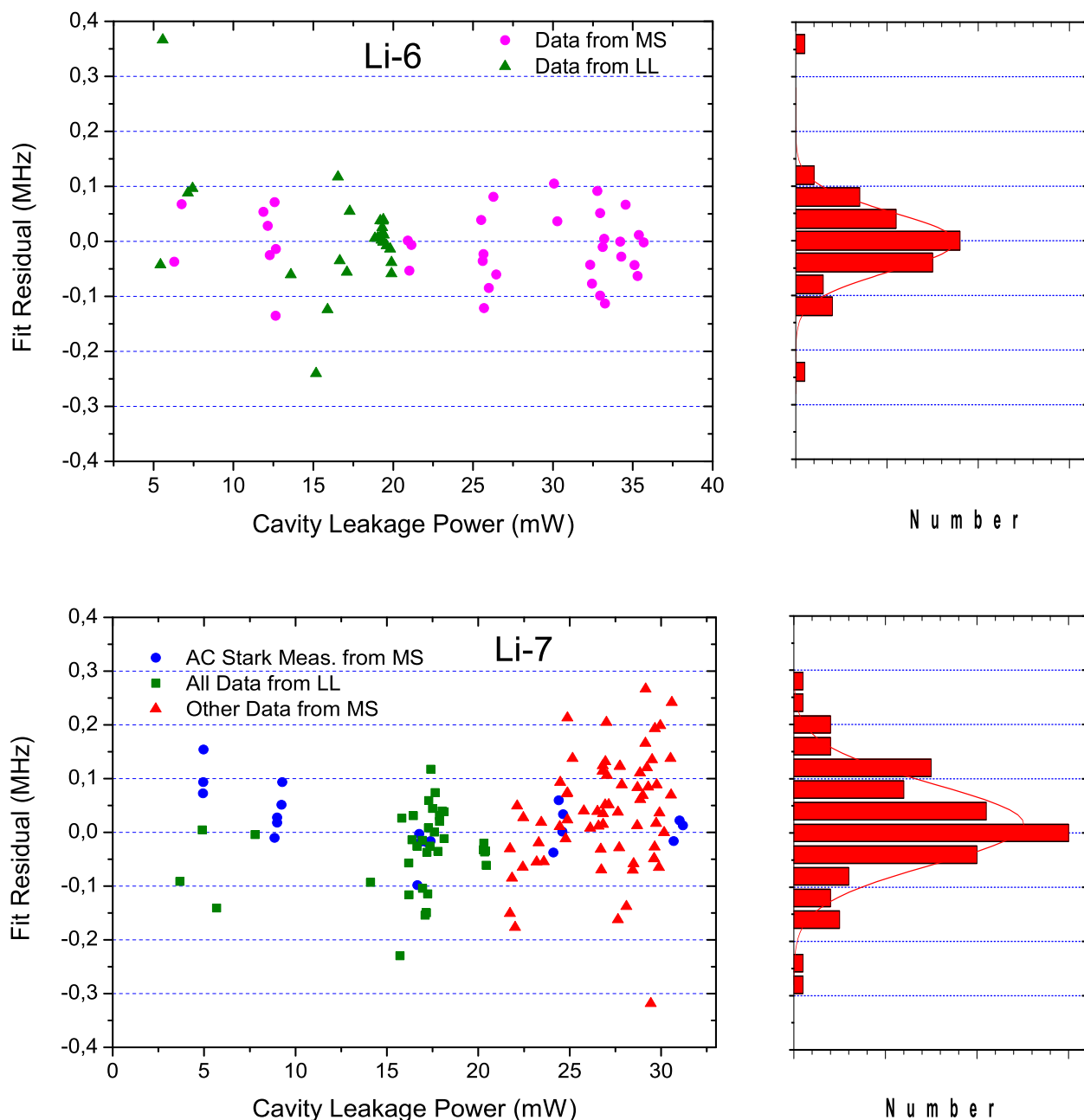


Abb. 5.11: Streuung der Messwerte von Laserlabor (LL) und Massenseparator (MS) um die Ausgleichsgerade der Lichtverschiebung für Lithium-6 und -7 als Funktion der Ti:Sa-Intensität und Häufigkeitsverteilung der Messwerte.

5.5.2 Vergleich der Resultate

Aus der gemessenen Isotopieverschiebung lässt sich mit (2.12) unter Verwendung der theoretischen Werte des Masseneffekts aus [Yan02] die Änderung des mittleren quadratischen Ladungsradius zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ zu $\delta\langle r^2 \rangle^{6,7} = 0,60(10) \text{ fm}^2$ berechnen. In Abb. 5.12 ist dieser Wert mit den Resultaten anderer Messungen verglichen. Mit Ausnahme der Werte aus Elektronenstreuversuchen [Jag74] stammen alle Ergebnisse aus Messungen der optischen Isotopieverschiebung eines Übergangs im Lithium-Atom [San95, Sch96, Wal03, Bus03] oder Lithium-Ion [Rii94]. Die Resultate der atomaren Messungen wurden ebenfalls mit Hilfe der entsprechenden Masseneffekte aus [Yan02] in $\delta\langle r^2 \rangle$ Werte konvertiert, beim Lithium-Ion liegen entsprechende Berechnungen des heliumartigen Elektronensystems zugrunde [Rii94]. Für die Elektronenstreuung ergibt sich aus den Radien in Tab. 2.1: $\delta\langle r^2 \rangle^{6,7} = 0,79(25) \text{ fm}^2$. Die Werte der verschiedenen Experimente weisen in vielen Fällen eine Diskrepanz auf. Das Resultat der hier vorgestellten Arbeit stimmt jedoch mit dem Wert aus der Elektronenstreuung überein. Zu den Ergebnissen aus den Messungen am Lithium-Ion [Rii94] und am $2S \rightarrow 3S$ -Übergang in [Bus03] besteht jedoch – obwohl die Fehler überlappen – bei den Ergebnissen eine geringe Abweichung von $1,2 \sigma$ der kombinierten Unsicherheiten. Zu den Messungen an den D -Linien bestehen größere Abweichungen. Im Folgenden werden die verschiedenen experimentellen Verfahren der optischen Messungen kurz erläutert, um mögliche Ursachen für die Diskrepanzen aufzuzeigen.

Sansonetti et al. bestimmen die Wellenlänge der Linienschwerpunkte der Hyperfeinkomponenten der $D1$ -Linie von ${}^7\text{Li}$ und der $D2$ -Linie von ${}^6\text{Li}$ [San95]. Sie benutzen vorhergehende Messungen der Fein- und Hyperfeinaufspaltung, um die Linienschwerpunkte der $D2$ -Linie von ${}^7\text{Li}$ und der $D1$ -Linie von ${}^6\text{Li}$ zu berechnen und so die Isotopieverschiebung zu bestimmen³. Die Messungen erfolgen mit Doppler-freier Frequenzmodulations-Sättigungsspektroskopie am thermischen Atomstrahl. Die Wellenlängenmessungen werden mit einem Wavemeter und einem Präzisions-Fabry-Pérot-Interferometer vorgenommen, wobei eine Jodlinie als absolute Referenz dient.

Scherf et al. messen in einem Aufbau zur Laser-Atomstrahl-Spektroskopie ebenfalls die Wellenlängen der $D1$ - und $D2$ -Linie, jedoch über deren Aufspaltung im Zeeman- und Paschen-Back-Bereich im homogenen Magnetfeld [Sch96]. Die Wellenlängenmessung erfolgt über ein λ -Meter und eine Jodlinie. Die Relativfrequenzen werden mit einem konfokalen Marker-Etalon bestimmt. Besonders auffallend ist die Inkonsistenz der $\delta\langle r^2 \rangle$ Werte, die sich aus den Messungen der $D1$ - und $D2$ -Linie ergibt. Eine ähnliche Inkonsistenz findet sich bei den Messungen von Walls et al. [Wal03]. Hier wurde die Frequenz-Modulations-Spektroskopie am Atomstrahl eingesetzt. Dabei werden keine absoluten Übergangsfrequenzen bestimmt, sondern lediglich die Feinstruktur- und Hyperfeinstrukturaufspaltung sowie die Isotopieverschiebung. Die Relativfrequenzen werden über die Modulationsfrequenz bestimmt, die Linearität der Messung wird mit einem Etalon überprüft. In der Veröffentlichung selbst wird jedoch nur der Wert für die $D1$ -Linie angegeben. In beiden Fällen werden Doppler-begrenzte Methoden verwendet, die empfindlich auf einen nicht exakt senkrecht eingestrahlt Laserstrahl sind. Dadurch können systematische Verschiebungen bei der Spektroskopie von Atomen unterschiedlicher Masse auftreten. Insbesondere bei den leichten Elementen mit großer relativer Massenänderung zwischen den einzelnen Isotopen ist dieser Effekt nicht zu vernachlässigen. Während bei [Wal03] und

³Die Fehlerabschätzung in der Veröffentlichung sind mit 2σ angegeben. Um bei allen Experimenten vergleichbare Fehler anzugeben, ist er hier auf 1σ reduziert.

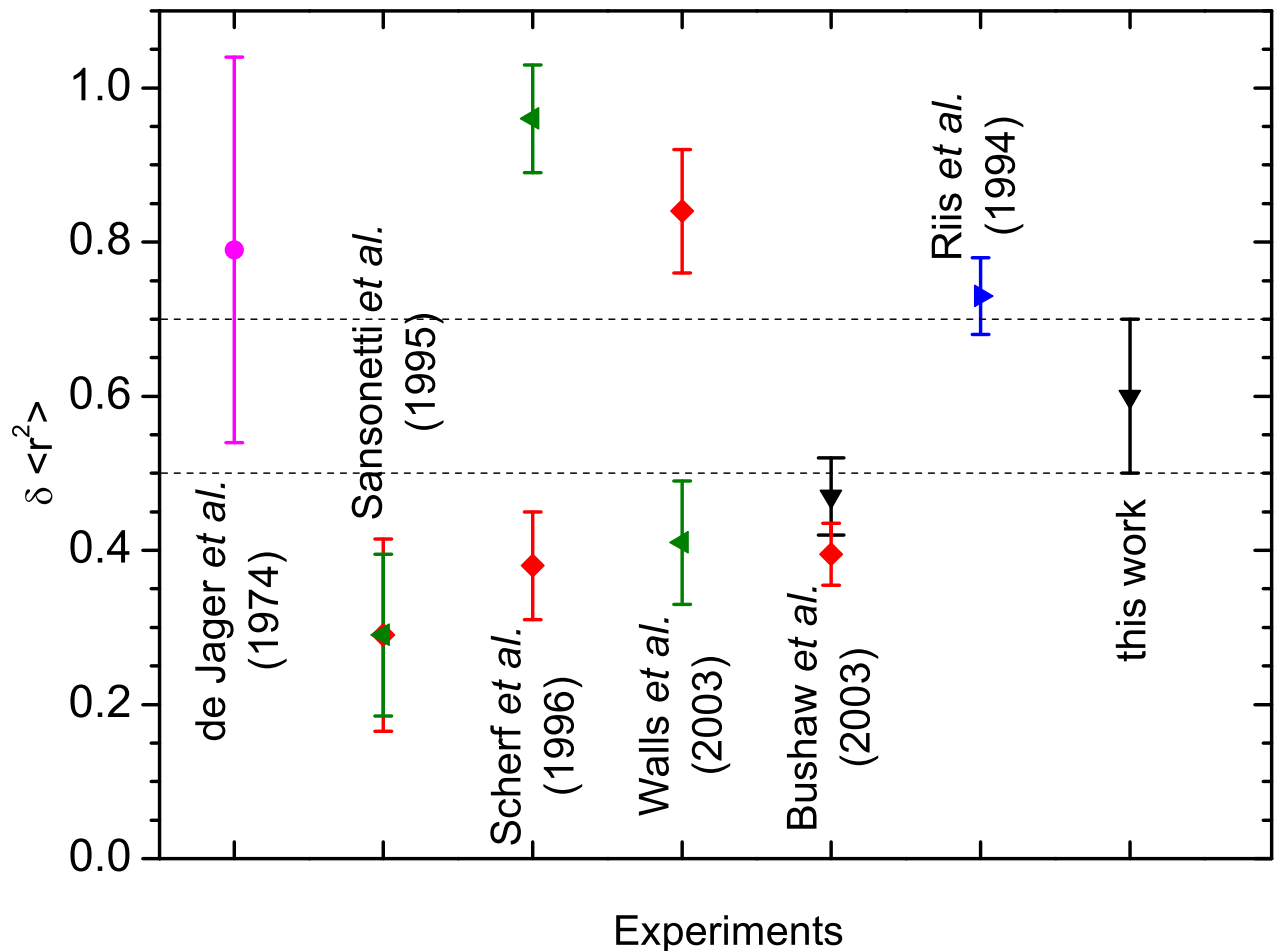


Abb. 5.12: Ergebnisse zur Änderung der mittleren quadratischen Ladungsradien zwischen Lithium-6 und -7 von Messungen durch Elektronenstreuung (●) und Isotopieverschiebung der D1(◆)- und D2(◄)-Linien, des 2S-3S-Zweiphotonen-Übergangs(▼) und am Li^+ -Ion(►) (alle Fehlerangaben 1σ).

[Sch96] auf dieses Problem nicht eingegangen wird, ist es bei den Messungen von Bushaw et al. gelöst, indem der Winkelfehler bei der Messung der Isotopieverschiebung der $D1$ -Linie mit Hilfe eines rückreflektierten Laserstrahls auf weniger als $0,2 \text{ mrad}$ reduziert wird [Bus03]. Das entsprechende Resultat für $\delta \langle r^2 \rangle$ ist mit dem aus [San95] konsistent, weist jedoch eine Diskrepanz von $1,9 \sigma$ der kombinierten Unsicherheiten zu dem Ergebnis der vorliegenden Arbeit auf.

Generell ist anzumerken, dass die nur schlecht aufgelöste Hyperfeinstruktur der $D1$ - und $D2$ -Linie die Bestimmung der Linienschwerpunkte erschwert. Im Fall der D -Linien kann Hyperfeinpumpen die Messgenauigkeit der Linienschwerpunkte aufgrund der gestörten Linienprofile beeinflussen [Bus86]. Eine definitive Ursache für die Differenz zwischen den Resultaten kann aber nicht angegeben werden.

In [Bus03] wurde neben den D -Linien erstmals die Isotopieverschiebung im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang gemessen. Der daraus berechnete $\delta \langle r^2 \rangle$ -Wert weicht $1,2 \sigma$ der kombinierten Unsicherheiten von dem Ergebnis der vorliegenden Arbeit ab, jedoch noch deutlicher von dem Resultat, das anhand des heliumartigen Systems Li^+ gewonnen wurde [Rii94]. Überdies weicht es auch von dem Wert aus Elektronenstreuung ab (etwa $1,3 \sigma$ der kombinierten Fehler).

Die Isotopieverschiebungsmessungen von Riis et al. erfolgen an den $1s2s\ ^3S_1 - 1s2p\ ^3P_J$ -Übergängen des Li^+ -Ions in kollinear und antikollinearer Spektroskopie [Rii94]. Im Falle der Spektroskopie am Ion sind die theoretischen Berechnungen wesentlich leichter durchzuführen und standen bereits 1994 zur Verfügung. Es muss jedoch bei den Messungen am schnellen Ionenstrahl ein erheblich größerer experimenteller Aufwand zur Bestimmung der Resonanzfrequenzen getrieben werden. Um die Unsicherheit durch die Strahlenergie auszuschließen und die Ruhfrequenz des Übergangs mit der erforderlichen Genauigkeit zu bestimmen, müssen von kollinear und antikollinearer Anregung die Frequenzen beide absolut gemessen werden. Dies erfolgt über Frequenzmodulations-Sättigungsspektroskopie am Jod und eine Radiofrequenz-Stabilisierungskette. Das Ergebnis stimmt mit dem Wert aus Elektronenstreuung sehr gut überein weist jedoch zum Resultat der vorliegenden Arbeit eine geringe Abweichung von $1,2\ \sigma$ der kombinierten Fehler auf.

Abschließend sei bemerkt, dass bei allen optischen Messungen entweder über eine Referenzfrequenz die Übergangswellenlängen absolut gemessen werden oder über ein Fabry-Pérot-Interferometer oder ein Markeretalon die Linienlagen relativ zueinander bestimmt werden. Nur in der hier vorgestellten Arbeit wird die Schwebungsfrequenz zwischen dem Anregungslaserlicht und einer Referenz mit einem Radiofrequenzzähler direkt bestimmt. Damit sind mögliche Nichtlinearitäten und Fehleichungen weitgehend ausgeschlossen.

5.5.3 Hyperfeinstrukturaufspaltung

Für jede Einzelmessung der Lithiumresonanzen lässt sich aus den angepassten Kurven neben der Lage des Schwerpunkts auch der Frequenzabstand der Hyperfeinstrukturresonanzen bestimmen. In Abb. 5.13 ist beispielhaft für das Referenzisotop ^7Li die Streuung der Resultate dargestellt. Trägt man die Ergebnisse gegen die Lichtintensität während der Messung auf, lässt sich keine Abhängigkeit erkennen, d.h. beide F -Niveaus werden in gleicher Weise von dem Lichtfeld beeinflusst. Dies ist auch das Resultat einer expliziten Bestimmung der Steigung der Lichtverschiebungskoeffizienten für jede Einzelkomponente.

In Tab. 5.5 sind die Mittelwerte der gemessenen Hyperfeinaufspaltung beider stabilen Isotope aufgeführt und mit früheren Messungen verglichen. Die Abweichungen zu den Ergebnissen aus [Bus03] liegen im Bereich der statistischen Unsicherheiten. Mit (2.32) lassen sich zusammen mit den Literaturwerten der A_{2S} -Faktoren aus [Ari77] die A_{3S} -Faktoren berechnen. Die Ergebnisse

Tabelle 5.5: A -Faktoren für Lithium-6 und -7 des $3S$ -Niveaus, berechnet aus dem Frequenzabstand der Hyperfeinstruktur-Resonanzen im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang $\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ und den A -Faktoren des $2S$ -Niveaus. Bei den angegebenen Fehlern handelt es sich um die Standardabweichung des Mittelwerts aus 64 (^6Li) bzw. 141 (^7Li) Einzelmessungen. Die Werte, die sich aus einer theoretischen Berechnung des Fermi-Kontakt-Terms [Yan96] und bekannten experimentellen Kernmomenten μ_I ergeben [Rag89], sind mit th gekennzeichnet.

Isotop	A_{2S} [MHz]	$\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ [MHz]	$\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ [MHz]	A_{3S} [MHz]	A_{3S} [MHz]
^6Li	152,136 840(3)	175,280(36)	175,311(23)	35,284(24)	35,250(6) th
^7Li	401,752 044(3)	617,278(19)	617,291(22)	93,113(10)	93,095(15) th
Referenz	[Ari77]	[Diese Arbeit]	[Bus03]	[Diese Arbeit]	[Yan96]

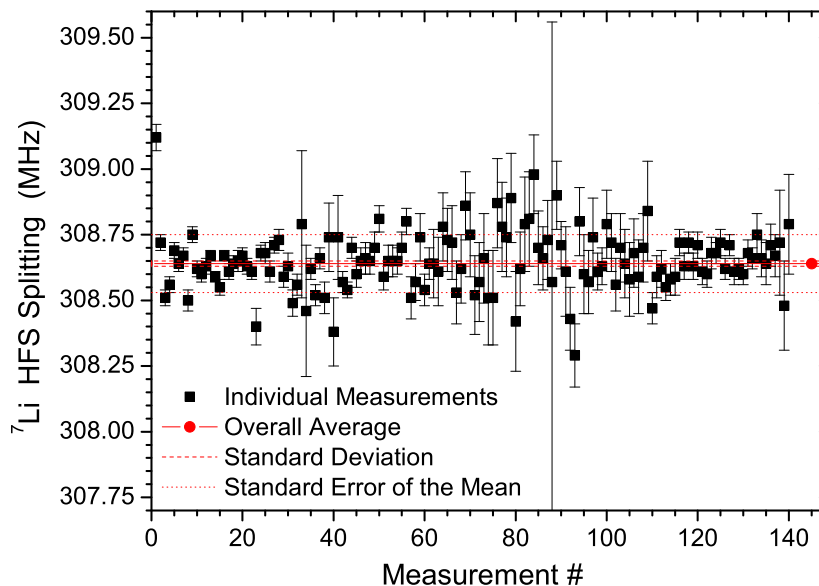


Abb. 5.13: Frequenzabstand der Hyperfeinstrukturresonanzen von Lithium-7 mit gewichtetem Mittelwert, Fehlerbereich der Standardabweichung und der Standardabweichung des Mittelwerts.

werden ebenfalls in Tab. 5.5 mit den theoretischen Werten aus [Yan96] verglichen. Insgesamt ergibt sich eine gute Übereinstimmung. Die Werte für ${}^6\text{Li}$ haben eine Abweichung von $1,4 \sigma$ der experimentellen Unsicherheit, die Werte für ${}^7\text{Li}$ stimmen im Rahmen der kombinierten Fehler überein.

5.5.4 Absolute Übergangswellenlängen

Mit der aus der Extrapolation gewonnenen Übergangswellenlänge, der absoluten Wellenlänge der Jodreferenz aus (5.1) und der Verschiebung des Stabilisierungspunkts der Laserfrequenz gegenüber dem Zentrum der Jodresonanz (4 MHz) durch den AOM, lässt sich die absolute Wellenlänge des Zweiphotonen-Übergangs berechnen. Die Ergebnisse und die aus der Literatur bekannten Werte sind in Tab. 5.6 zusammengestellt, wobei sich für das hier vorgestellte Experiment der größte Fehlerbeitrag aus der Unsicherheit der absoluten Wellenzahl der Jodreferenz-Linie ergibt.

Tabelle 5.6: Vergleich der Übergangswellenzahlen des $2S \rightarrow 3S$ -Übergangs und des Ionisationspotentials (IP): theoretische Berechnungen sind durch th gekennzeichnet, vorläufige Werte durch ^{vor}.

Übergang i	$\nu_i(\text{Theorie}) [\text{cm}^{-1}]$	$\nu_i(\text{PNNL}) [\text{cm}^{-1}]$	$\nu_i(\text{GSI}) [\text{cm}^{-1}]$
${}^6\text{Li } 2S - 3S$	27 205,710 5(9) th	27 205,712 14(10) ¹	27 205,712 06(25)
${}^7\text{Li } 2S - 3S$	27 206,092 6(9) th	27 206,094 20(10) ¹	27 206,094 13(25)
${}^7\text{Li IP}$	43 487,158 3(6) th	43 487,159 34(17) ^{vor 2}	-
Referenz	[Yan03]	[Bus03] ¹ , [Bus04] ²	[Diese Arbeit]

Es zeigt sich zwischen theoretischen und experimentellen Resultaten eine ausgezeichnete Übereinstimmung für den Zweiphotonen-Übergang beider stabiler Isotope mit Abweichungen, die kleiner als $1,9 \sigma$ sind. In Anbetracht der komplizierten Berechnungen ist dies ein sehr gutes Ergebnis, da in diesem Fall an die Theorie wesentlich höhere Ansprüche gestellt werden als an die Berechnung der Isotopieverschiebungen, bei denen sich alle massenunabhängigen Effekte gegenseitig aufheben. Insbesondere die Beiträge der massenunabhängigen QED-Korrekturen sind schwierig zu berechnen, wobei Yan und Drake mit der Berechnung des Bethe-Logarithmus [Yan03] ein großer Erfolg gelungen ist. Dadurch wurde die in Tab. 5.6 dokumentierte Genauigkeit erst möglich. Durch den Vergleich des Ionisationspotentials mit Messungen von [Bus04] ergibt sich ein weiterer Test der Theorie auf ähnlichem Niveau. Hier betragen die Abweichungen etwa $1,7 \sigma$ der kombinierten Fehler.

5.5.5 Kleine Signalhöhen

Um die geringen Produktionsraten, die bei den Online-Strahlzeiten insbesondere für ^{11}Li zu erwarten sind, zu simulieren, wird bei den Testmessungen die Laserleistung des Ti:Sa-Lasers so weit reduziert, dass Zählraten in der Größenordnung von 1 Hz in Resonanz auftreten. Bei der Auswertung dieser Daten ist es notwendig, mehrere Spektren zu addieren, die bei gleicher Laserleistung aufgenommen sind. Sechs solcher Spektren für ^7Li und deren Summensignal sind in Abb. 5.14 dargestellt. Die Anpassung des Voigtprofils mit Gaußuntergrund an das Linienzentrum dieser Hyperfeinkomponente ($F=2$) hat mit einem reduzierten χ^2 von 0,6 eine recht gute Qualität. Ferner stimmen die Resultate für die Resonanzlinie nach Korrektur der Lichtverschiebung innerhalb der Unsicherheiten mit den Messungen bei höheren Zählraten überein. Damit ist die Praktikabilität dieses Verfahrens für die späteren Messungen an ^{11}Li demonstriert.

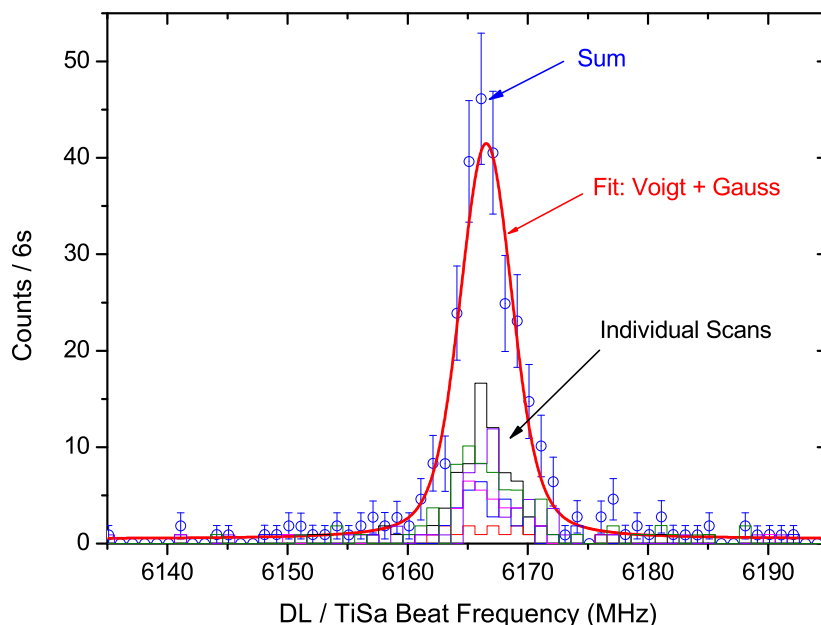


Abb. 5.14: Sechs Einzelspektren bei geringer Signalintensität und deren Addition mit statistischem Fehler, sowie die angepasste Kurve aus Voigt- und Gauß-Profil.

6 Online-Messungen von Lithium-8 und -9

6.1 Produktionsraten und Nachweiseffizienz für Lithium-8 und -9

Die Quelle zur Herstellung der radioaktiven Lithium-Isotope ist in Kap. 4.1 ausführlich beschrieben. Zur Bestimmung der Produktionsraten von ^8Li und ^9Li werden die Ionen auf eine Detektorkammer gerichtet und die dort stattfindenden β^- -Zerfälle mit einem Plastik-Szintillator nachgewiesen. Die Kammer befindet sich in Verlängerung der Durchflugachse hinter dem Dipolmagneten des Massenseparators. Über die β -Zählrate R_β wird die Masseneinstellung des Magneten optimiert. Mit einem elektrostatischen Umlenker wird der Ionenstrahl dann in den Zweig der Apparatur gelenkt, der zur Laserspektroskopie benutzt wird. Um die Gesamteffizienz ϵ des Experiments zu bestimmen, wird das Verhältnis aus der maximalen Zählrate von Laser-Resonanz-Ionen R_{Res} und der erzeugten Rate R_{Prod} des entsprechenden Isotops gebildet:

$$\epsilon = R_{\text{Res}}/R_{\text{Prod}} . \quad (6.1)$$

Im Falle der radioaktiven Isotope wird R_{Prod} mit

$$R_{\text{Prod}} = R_\beta/\epsilon_\beta = 7 R_\beta \quad (6.2)$$

berechnet, wobei die Effizienz des β -Nachweises $\epsilon_\beta = 1/7$ verwendet wird. Im Falle der stabilen Isotope wird R_{Prod} über den Ionenstrom I auf einem Faraday-Becher und der daraus resultierenden Teilchenzahl bestimmt.

Die in Tab. 6.1 aufgelisteten Effizienzen von ^8Li und ^9Li unterscheiden sich nur marginal. Zwischen den stabilen und den radioaktiven Isotopen liegt jedoch ein Faktor ~ 2 in der Effizienz. Dieser Effekt skaliert nicht mit der Lebensdauer ($t_{1/2}(^6,^7\text{Li}) = \infty$, $t_{1/2}(^8\text{Li}) = 840$ ms,

Tabelle 6.1: Nachweiseffizienz ϵ der verschiedenen Lithium-Isotope: für Lithium-7 bestimmt aus dem Strom I am Faraday-Becher, für Lithium-8 und -9 aus der β -Zählrate R_β eines Plastik-Szintillators (mit $\approx 14\%$ Nachweiseffizienz) im Vergleich zur Rate an Resonanz-Ionen R_{Res} .

Isotop	I [pA]	R_β [s^{-1}]	R_{Res} [s^{-1}]	ϵ
^7Li	12	-	$2 \cdot 10^4$	$2,7 \cdot 10^{-4}$
^8Li	-	$5,2 \cdot 10^4$	45,4	$1,2 \cdot 10^{-4}$
^9Li	-	$2,55 \cdot 10^4$	17,5	$1,0 \cdot 10^{-4}$

$t_{1/2}({}^9\text{Li}) = 178 \text{ ms}$) der Nuklide. Er könnte darauf zurückzuführen sein, dass die Effizienz des Detektors sehr stark vom Raumwinkel abhängt. Eine Veränderung des Abstands zwischen Plastik-Szintillator und Detektorkammer hat daher einen großen Einfluss auf die Nachweiseffizienz. Dieser Abstand ist vermutlich seit der letzten Kalibrierung verändert worden. Der angestrebte Wert von $1 \cdot 10^{-4}$ wird in jedem Fall erreicht.

6.2 Besonderheit beim Nachweis der radioaktiven Isotope

Der Channeltron-Detektor, der für den Teilchennachweis der Resonanz-Ionen benutzt wird, reagiert nicht nur empfindlich auf die nachzuweisenden Ionen, sondern gegebenenfalls auch auf deren Zerfallsprodukte. Dies erhöht einerseits die Nachweiseffizienz, da ein implantiertes Ion nicht nur einen Impuls beim Auftreffen auslöst, sondern auch die beim Zerfall frei werdenden α -Teilchen nachgewiesen werden können. Andererseits muss darauf geachtet werden, dass der radioaktive Zerfall zu dem Frequenzkanal beiträgt, in dem das Ion resonanzionisiert wurde. Andernfalls kann ein asymmetrisches Linienprofil auftreten, was eine systematische Verschiebung der angepassten Linienzentren zur Folge hat. Um dies zu vermeiden, wird am Ende der Messung eines jeden Frequenzkanals der Ionenstrahl elektrostatisch für mehr als 5 Halbwertszeiten ausgeblendet (5 s für ${}^8\text{Li}$ und 1 s für ${}^9\text{Li}$) und so der Zerfall implantierter Ionen im Channeltron-Detektor abgewartet.

In Abb. 6.1 ist beispielhaft die Zählrate des Channeltron-Detektors für ${}^8\text{Li}$ während der Dunkelschaltphase des Ionenstroms dargestellt. Hierbei wurde die Rate von vier Frequenzkanälen um die $F = 5/2$ -Resonanz aufsummiert, um eine bessere Statistik für die Bestimmung der

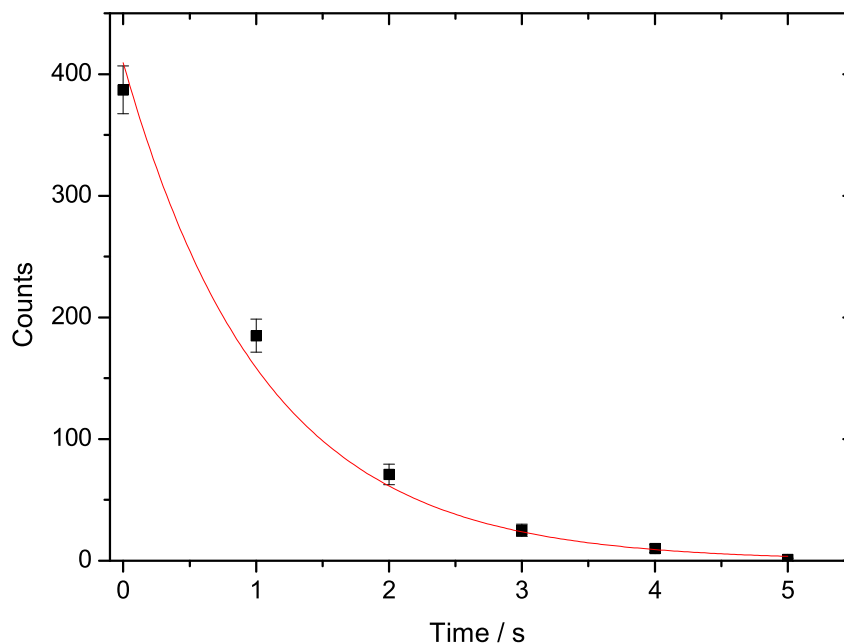


Abb. 6.1: Zerfall von Lithium-8 im Channeltron-Detektor.

Zerfallskurve zu erhalten. Nach 5 s ist die Zählrate auf Null abgeklungen. Somit ist sichergestellt, dass keine Zerfallsereignisse in den nächsten Frequenzkanal übersprechen können. Die aus dem angepassten experimentellen Zerfall ermittelte Halbwertszeit beträgt 730(40) ms und liegt somit in der für ^8Li erwarteten Größenordnung.

6.3 Resonanzsignale und Einfluss systematischer Effekte

6.3.1 Spektren

Die Aufnahme der Spektren verläuft, bis auf zwei Modifikationen, analog zu der in Kap. 5.4.1 beschriebenen Vorgehensweise für die stabilen Isotope. Die erste Modifikation ist die längere Verweildauer von insgesamt 15 s für ^8Li und 11 s für ^9Li auf jedem Frequenzkanal, die zweite Modifikation ist das oben beschriebene Ausblenden des Ionenstrahls für fünf Halbwertszeiten vor dem Weiterschalten des Frequenzkanals.

Typische Spektren der radioaktiven Isotope sind in Abb. 6.2 dargestellt. Der übersprungene Frequenzbereich bei niedrigen Zählraten ist durch die Angabe der Sprungweite markiert. Es werden die gleichen Linienprofile wie bei den stabilen Isotopen angepasst. Als typische reduzierte χ^2 -Werte ergeben sich $\chi^2/f = 1,8$ für ^8Li und $\chi^2/f = 1,5$ für ^9Li . Da für die Anpassung nur die statistischen Fehler der Zählrate (\sqrt{n}) berücksichtigt werden, sind die Werte für χ^2/f vernünftig.

6.3.2 Lichtverschiebung

Wie bei den stabilen Isotopen ist es auch für ^8Li an der GSI möglich, die durch den Ti:Sa-Laser hervorgerufene Lichtverschiebung zu messen. Die Messung erfolgt auf die gleiche Weise, wie sie in Kap. 3.2 für ^6Li und ^7Li beschrieben ist. Eine ähnliche Messung kommt für ^9Li an der GSI aufgrund der kleinen Produktionsraten nicht in Frage.

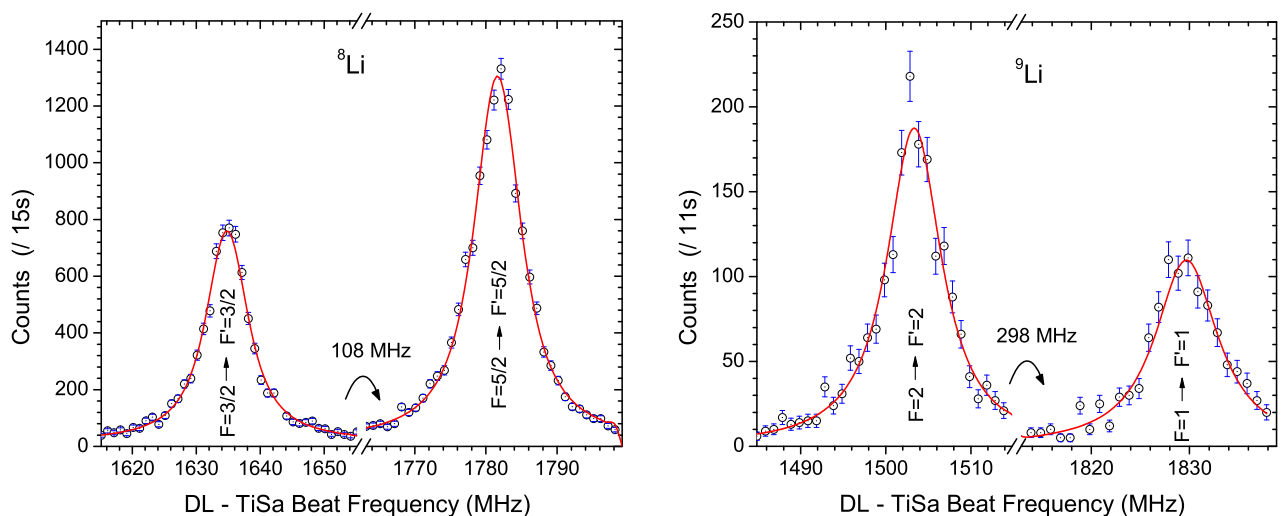


Abb. 6.2: Typische Spektren von Lithium-8 und -9 mit angepassten Linienprofilen.

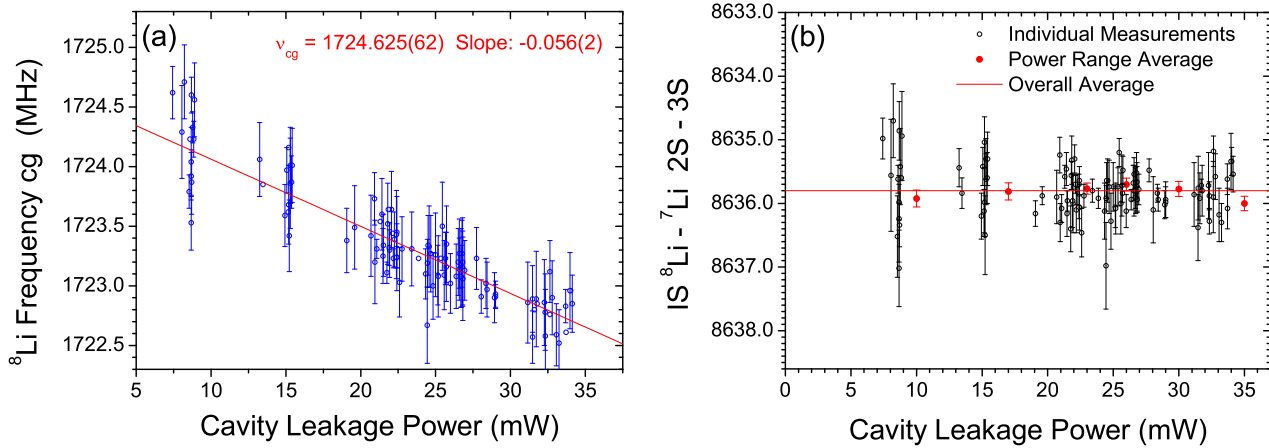


Abb. 6.3: (a) Lichtverschiebungsmessung von Lithium-8 mit Ausgleichsgerade und (b) ermittelte Isotopieverschiebung (IS) in Abhängigkeit von der Laserleistung.

Die Frequenz des Linienschwerpunkts als Funktion der Ti:Sa-Leistung ist in Abb. 6.3 (a) gezeigt, die Parameter der Ausgleichsgeraden sind in Tab. 6.2 aufgeführt. Die Steigung der Ausgleichsgeraden ist mit $m = -0,056(2)$ in ausgezeichneter Übereinstimmung mit den in Tab. 5.3 angegebenen Steigungen für ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$. Da alle drei Isotope unabhängig von ihrem Kernspin das gleiche Verhalten zeigen, kann davon ausgegangen werden, dass auch ${}^9\text{Li}$ in gleicher Weise auf das Lichtfeld reagiert.

Tabelle 6.2: Einfluss der Ti:Sa-Laserintensität auf die Lage der Resonanzfrequenz von Lithium-8 und Lithium-7. Aufgeführt sind die Steigungen m der Ausgleichsgeraden, die Y-Achsenabschnitte f_0 als Resonanzfrequenz bei verschwindender Laserleistung und die Differenzen Δ der Parameter zwischen Lithium-8 und der Referenz Lithium-7.

Parameter	${}^8\text{Li}$	${}^7\text{Li}$	Δ
m [MHz/mW]	$-0,056(2)$	$-0,056(2)$	$0,000(3)$
f_0 [MHz]	$1724,625(62)$	$6042,518(33)$	$-4317,893(74)$

6.4 Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur von Lithium-8 und -9

6.4.1 Isotopieverschiebung

Lithium-8 Wie im Falle des ${}^6\text{Li}$ wird zunächst für jede individuelle Messung von ${}^8\text{Li}$ die Frequenzverschiebung relativ zur Ausgleichsgeraden von ${}^7\text{Li}$ berechnet ($P_1 = P_2$). Um eine eventuell verbleibende Systematik in Abhängigkeit von der Laserleistung auszuschließen, sind in Abb. 6.3(b) die ermittelten Isotopieverschiebungen als Funktion der Ti:Sa-Laserleistung dargestellt. Zusätzlich sind die gewichteten Mittelwerte einzelner Leistungsbereiche eingetra-

gen. Ein systematischer Trend ist weder in der Streuung der individuellen Messungen noch im Verlauf der Mittelwerte zu erkennen. Außerdem liegt der Gesamtmittelwert praktisch immer innerhalb der Unsicherheit der gebildeten Teilmittelwerte eines Leistungsbereichs. Lediglich bei höchsten Leistungen liegt er etwa $1,5 \sigma$ außerhalb und damit durchaus noch im Rahmen des statistisch Erwarteten.

In Abb. 6.4 sind die Isotopieverschiebungen noch einmal aufgetragen, diesmal in ihrer zeitlichen Reihenfolge. Die eingezeichneten Tagesmittelwerte unterliegen ebenfalls keinem systematischen Trend. Die Streuung der Messwerte um den Mittelwert ergibt eine Gaußverteilung mit einer Standardabweichung von 400 kHz. Die statistische Unsicherheit ergibt sich als Standardabweichung des Mittelwertes von 39 kHz, worin der Fehler der Lichtverschiebung durch den Farbstofflaser enthalten ist. Die systematische Unsicherheit ist durch die der Ausgleichsgeraden bei höchsten Laserleistungen gegeben (Tab. 6.2). Zusätzlich wird die Isotopieverschiebung von ^8Li noch durch die Extrapolation auf verschwindende Laserleistung bestimmt ($P \rightarrow 0$). Beide Resultate sind in Tab. 6.3 aufgeführt und zeigen eine außerordentlich gute Übereinstimmung.

Lithium-9 Für ^9Li konnte der Einfluss der Lichtverschiebung aufgrund der zu geringen Signalintensität nicht direkt bestimmt werden. Nach den vorangegangenen Untersuchungen (Kap. 5.4.2 und Kap. 6.3.2) gibt es aber keinen Grund anzunehmen, dass ^9Li auf das Lichtfeld des Ti:Sa-Lasers anders reagiert als die anderen Isotope. Daher wird auch hier die Isotopieverschiebung aus dem Abstand des Linienschwerpunktes der Einzelmessungen und der Ausgleichsgeraden des Referenzisotops bei gleicher Laserleistung ($P_1 = P_2$) berechnet. Es ist zu beachten, dass die Resonanzfrequenzen von ^9Li oberhalb der Referenzfrequenz liegen, während sich die der anderen Isotope unterhalb befinden. Daher müssen in diesem Fall die gemessenen Schwebungsfrequenzen addiert und nicht subtrahiert werden.

Die Streuung der Isotopieverschiebung ist im unteren Teil von Abb. 6.4 dargestellt. Auch für dieses Isotop ist weder ein systematischer Trend der Einzelmessungen noch der Tagesmittelwerte zu erkennen. Auffallend ist lediglich, dass die Messwerte vom 13. Dezember kleinere Unsicherheiten und eine deutlich kleinere Streuung aufweisen. Bei diesen Messungen kam die speziell für die Produktion von ^9Li optimierte Quelle mit einem externen Target zum Einsatz (vgl. Kap. 4.1). Dementsprechend ist das Zentrum der Gaußverteilung überhöht, da es sich eigentlich um eine Summe zweier Verteilungen mit unterschiedlicher Breite handelt. Die Standardabweichung aller Messwerte beträgt 650 kHz (zum Vergleich: die 21 Messwerte vom 13.12. besitzen eine Standardabweichung von nur 220 kHz), die Standardabweichung des Mittelwertes von 64 kHz ist als statistischer Fehler der Isotopieverschiebung in Tab. 6.3 angegeben.

Tabelle 6.3: Isotopieverschiebung $\delta\nu_{2S-3S}^{\text{IS}(7,A')}$ von Lithium-8 und -9 zum Referenzisotop Lithium-7, mit Ergebnissen aus extrapolierten Werten ($P \rightarrow 0$) und Vergleich bei gleichen Laserleistungen ($P_1 = P_2$) mit statistischem und systematischem Fehler.

Isotop	Methode	$\delta\nu_{2S-3S}^{\text{IS}(7,A')}$ [MHz]
^8Li	$P \rightarrow 0$	$-8\,635,787(141)(98)$
^8Li	$P_1 = P_2$	$-8\,635,787(39)(112)$
^9Li	$P_1 = P_2$	$-15\,333,141(64)(112)$

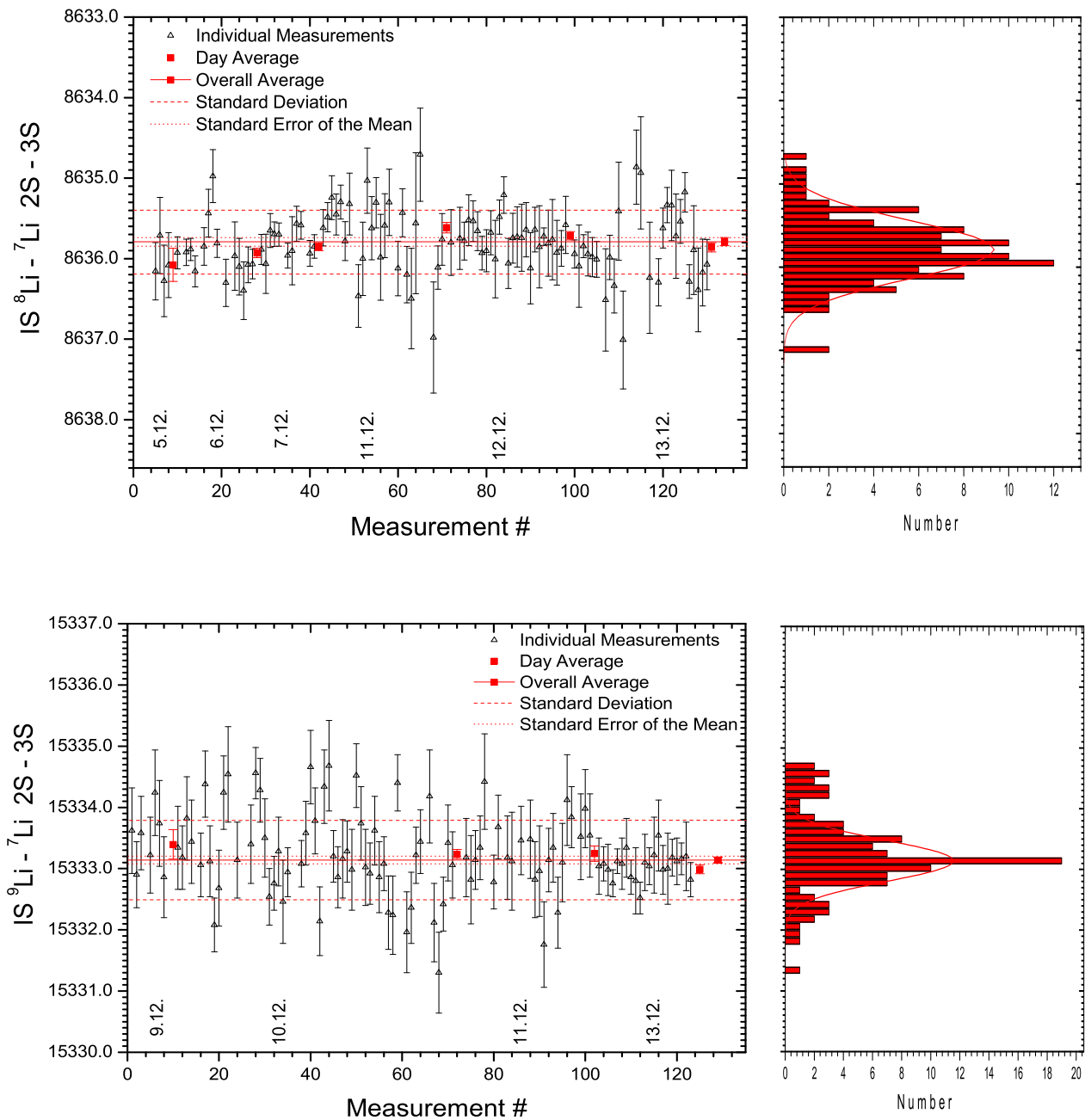


Abb. 6.4: Streuung der Isotopieverschiebung (IS) von Lithium-8 und -9.

Zu berücksichtigen ist auch in diesem Fall die systematische Unsicherheit in der Position der Referenzgeraden. Insgesamt ergibt sich eine Unsicherheit von 176 kHz. Damit ist die Isotopieverschiebung aller Isotope mit der gewünschten Genauigkeit von besser als 200 kHz bestimmt.

6.4.2 Hyperfeinstrukturaufspaltung

Die ermittelten Hyperfeinstrukturaufspaltungen $\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ für ${}^8\text{Li}$ und ${}^9\text{Li}$ sind in Tab. 6.4 aufgeführt. Die angegebenen Fehler sind die Standardabweichungen des Mittelwerts für jeweils 104 Messungen. Wie bereits in Kap. 5.5.3 für die stabilen Isotope beschrieben, lassen sich auch für ${}^{8,9}\text{Li}$ aus diesen Aufspaltungen die A_{3S} -Faktoren bestimmen. Allerdings muss dazu die Hyperfeinstrukturaufspaltung des $2S$ -Grundzustands bekannt sein. Diese ist nur für die Isotope ${}^{6,7,8}\text{Li}$ ausreichend genau gemessen. Für ${}^9\text{Li}$ kann sie aus dem Kernspin I und den magnetischen Dipolmomenten μ_I , die in Tab. 2.1 und Tab. 2.2 aufgelistet sind, berechnet werden. Legt man den sehr genau gemessenen A_{2S} -Faktor von ${}^6\text{Li}$ zugrunde, ergibt sich nach (2.26) für ${}^9\text{Li}$:

$$A_{2S}({}^9\text{Li}) = A_{2S}({}^6\text{Li}) \cdot \frac{I({}^6\text{Li}) \cdot \mu_I({}^9\text{Li})}{\mu_I({}^6\text{Li}) \cdot I({}^9\text{Li})} = 424,033 \text{ MHz} . \quad (6.3)$$

Die statistische Unsicherheit beträgt gemäß Fehlerfortpflanzung 10 kHz. Zusätzlich wird ein systematischer Fehler durch eine mögliche Hyperfeinanomalie in der Größenordnung 10^{-4} berücksichtigt, der 40 kHz entspricht. Benutzt man in (6.3) den $A_{2S}({}^7\text{Li})$ -Wert als Referenz, so ergibt sich für $A_{2S}({}^9\text{Li})$ ein leicht abweichender Wert von 424,004(10) MHz. Um den A_{3S} -Faktor von ${}^9\text{Li}$ zu berechnen, wird aus beiden Ergebnissen der Mittelwert gebildet. Die Ergebnisse für ${}^8\text{Li}$ und ${}^9\text{Li}$ sind in Tab. 6.4 aufgeführt und mit den theoretischen Berechnungen nach Yan et al. [Yan96] und (2.30) verglichen.

Die berechneten Hyperfeinstrukturintervalle $\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ [Yan96] sowie der A_{3S} -Faktor von ${}^9\text{Li}$ sind in hervorragender Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten. Nur für den A_{3S} -Faktor von ${}^8\text{Li}$ ergibt sich eine geringe Abweichung von etwa $1,5\sigma$. In [Ewa04] wurde der A_{2S} -Faktor mit einer anderen Methode bestimmt, die erheblich größere Unsicherheiten beinhaltet und zu einem abweichenden Ergebnis führt (424,14(10) MHz). Daraus ergaben sich ebenfalls abweichende Werte für den A_{3S} -Faktor. Innerhalb ihrer Fehler stimmen sie jedoch überein.

Tabelle 6.4: A -Faktoren des $3S$ -Niveaus, berechnet aus dem Frequenzabstand der Hyperfeinstruktur-Resonanzen im $2S \rightarrow 3S$ -Übergang $\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ und den A -Faktoren des $3S$ -Niveaus. Die Werte aus theoretischen Berechnungen und gemessenen Kernmomenten μ_I sind mit th gekennzeichnet. Der A -Faktor des $2S$ -Niveaus von ${}^9\text{Li}$ ist aus den A -Faktoren von ${}^6\text{Li}$ und ${}^7\text{Li}$ mit Hilfe der gemessenen Kernmomente μ_I extrapoliert.

Isotop	A_{2S} [MHz]	$\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ [MHz]	$\Delta\nu_{2S-3S}^{\text{HFS}}$ [MHz]	A_{3S} [MHz]	A_{3S} [MHz]
${}^6\text{Li}$	152,136 840(3) ¹	175,281(37)	175,296(17) th	35,284(24)	35,250(6) th
${}^7\text{Li}$	401,752 044(3) ¹	617,269(19)	617,264(60) th	93,113(10)	93,092(12) th
${}^8\text{Li}$	153,017(3) ²	293,806(70)	293,851(29) th	35,495(28)	35,453(5) th
${}^9\text{Li}$	424,018(50)	651,50(15)	651,469(67) th	98,27(10)	98,248(13) th
Referenz	[Ari77] ¹ [Neu73] ²	[Diese Arbeit] ³	[Yan96]	[Diese Arbeit]	[Yan96]

6.5 Interpretation und Diskussion

Aus den Isotopieverschiebungen $\delta\nu_{2S-3S}^{\text{IS}(7,A')}$, die in Tab. 6.3 aufgelistet sind, lassen sich mit (2.12) und den berechneten Masseneffekten aus [Yan02] die Änderungen der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r_c^2 \rangle$ berechnen. Der Radius des Referenzisotops ${}^7\text{Li}$ ist aus Elektronenstreuversuchen bekannt [Jag74]. Mit diesem Wert und (2.15) werden die Ladungsradien r_c der untersuchten Lithium-Isotope bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tab. 6.5 zusammengefasst, die ebenfalls die Literaturwerte der Elektronenstreuung [Jag74] (vgl. Kap. 5.5.2) und die Ergebnisse aus totalen Wirkungsquerschnitten in Verbindung mit Glauber-Modellrechnungen [Tan88] beinhaltet. Beim Vergleich zeigt sich, dass die Werte aus der Elektronenstreuung gut mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit übereinstimmen, dagegen weichen die aus totalen Wirkungsquerschnitten abgeleiteten Werte jedoch signifikant ab. Zu diesen gibt es zwar in [AK96] eine verbesserte Analyse. Die modellabhängige Extraktion der Kernladungsradien wird darin jedoch nicht vorgenommen.

Die ermittelten Ladungsradien sind in Abb. 6.6 als Funktion der Massenzahl dargestellt. Es ergibt sich eine kontinuierliche Abnahme des Ladungsradius bei steigender Massenzahl. Diese zunächst überraschende Tatsache lässt sich auf die ausgeprägte Clusterstruktur des ${}^6\text{Li}$ Kerns zurückführen, die durch ein α -Teilchen und ein Deuteron (d) gebildet wird [Suz02]. Während das α -Teilchen aufgrund der hohen Bindungsenergie sehr kompakt ist, führt beim Deuteron die niedrige Bindungsenergie zu einem relativ großen Radius. Dies und die Bewegung der beiden Komponenten um den gemeinsamen Schwerpunkt führt zu einem recht großen Ladungs- und Massenradius des ${}^6\text{Li}$ Kerns. Ein ähnliches Ergebnis ergibt sich, wenn man die Differenz der aus elastischer Protonenstreuung bestimmten Massenradien [Ege02] zu der einfachen Vorhersage des Tröpfchenmodells $R = 1,2 \cdot \sqrt[3]{A}$ betrachtet, wie sie in Abb. 6.5 zu sehen ist.

Während der Radius von ${}^6\text{Li}$ deutlich oberhalb dieser einfachen Modellvorhersage liegt, ist der von ${}^8\text{Li}$ nur noch unwesentlich größer und der von ${}^9\text{Li}$ bereits etwas kleiner, weil sich die Clusterstruktur von ${}^6\text{Li}$ schrittweise auflöst. Für ${}^7\text{Li}$ stammt der dominierende Beitrag zur Wellenfunktion aus der $\alpha + t$ -Konfiguration [Suz02]. Die Vorhersage für den Massenradius des Tritons (t) ist mit 1,77 fm [Kie97] bereits deutlich kleiner als der experimentelle Wert für das Deuteron von 1,974(9) fm [Hub98]. Werden zusätzliche Neutronen hinzugefügt, so reduziert sich die Clusterstruktur weiter, der Einfluss der Schwerpunktsbewegung nimmt ab und der Kern wird kompakter. Mit dieser Vorstellung lässt sich die Abnahme des Ladungsradius qualitativ verstehen.

Tabelle 6.5: Ergebnisse der Isotopieverschiebung $\delta\nu_{2S-3S}^{\text{IS}(7,A')}$, Änderungen der mittleren quadratischen Ladungsradien $\delta\langle r_c^2 \rangle$ und Kernladungsradien r_c .

Isotop	$\delta\nu_{2S-3S}^{\text{IS}(7,A')}$ [MHz]	$\delta\langle r_c^2 \rangle$ [fm ²]	r_c [fm]	r_c [fm]	r_c [fm]
${}^6\text{Li}$	11 453,947(132)	-0,598(93)	2,55(4)	2,51(3)	2,45(3)
${}^7\text{Li}$	-	-	2,39(3)	-	2,40(2)
${}^8\text{Li}$	-8 635,787(151)	0,432(100)	-	2,30(4)	2,38(2)
${}^9\text{Li}$	-15 333,141(176)	0,716(123)	-	2,24(4)	2,29(2)
Referenz	[Diese Arbeit]	[Diese Arbeit]	[Jag74]	[Diese Arbeit]	[Tan88]

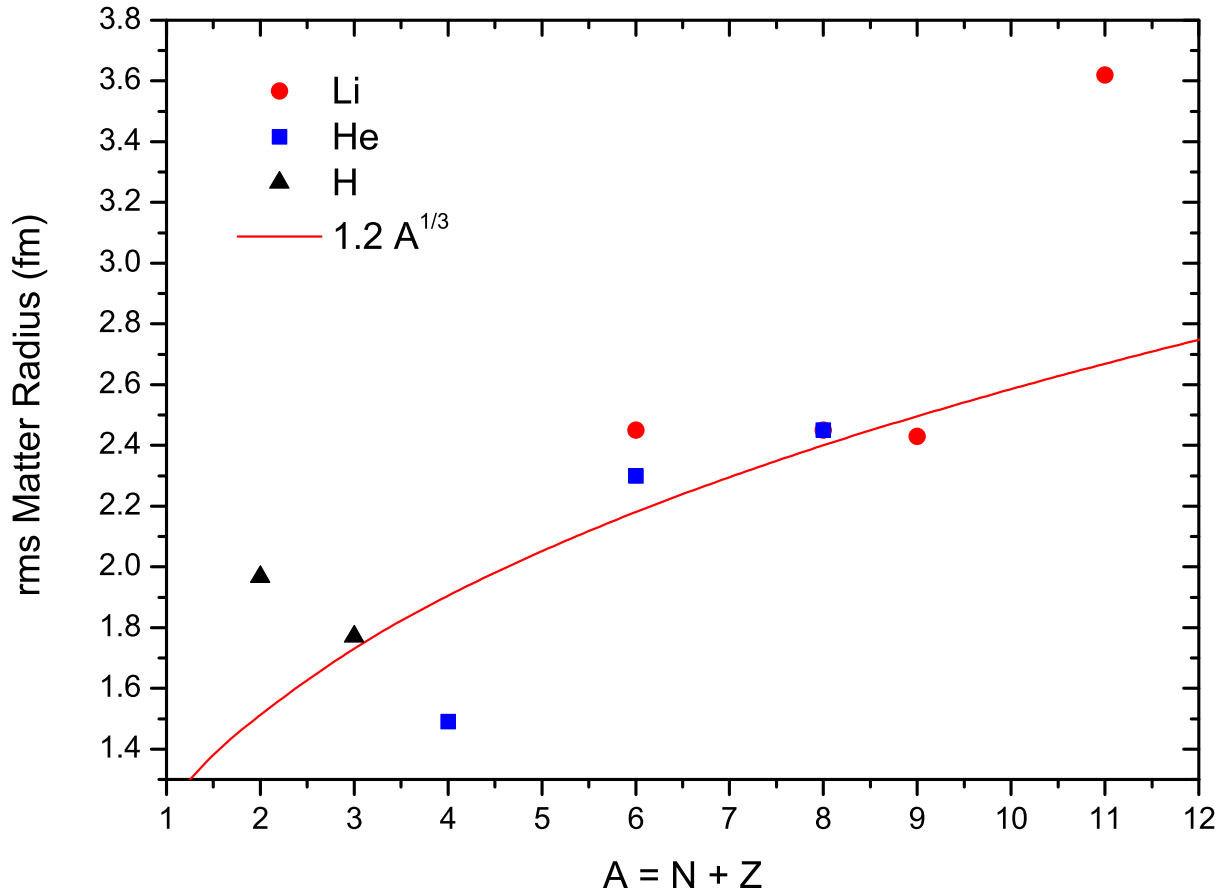


Abb. 6.5: Massenradien von Wasserstoff-, Helium- und Lithium-Isotopen aus [Ege02] und Vergleich mit dem Tröpfchenmodell.

Neben den erwähnten experimentellen Resultaten sind in Abb. 6.6 auch Vorhersagen aus Kernmodellen dargestellt und in Tab. 6.6 zusammengefasst. Um die Ergebnisse vergleichen zu können, muss der in der Theorie angegebene Ladungsradius des Kerns für punktförmig angenommene Protonen r_p über den Ladungsradius der Nukleonen in den Kernladungsradius r_c umgerechnet werden:

$$r_c = \sqrt{\langle r_p^2 \rangle + \langle R_p^2 \rangle + (N/Z)\langle R_n^2 \rangle}, \quad (6.4)$$

wobei der mittlere Protonenladungsradius $\langle R_p^2 \rangle^{1/2} = 0,895(18)$ fm [Sic03]¹ und der mittlere quadratische Neutronenladungsradius $\langle R_n^2 \rangle = -0,117(5)$ fm² [Kop97] beträgt.

Wie in Abb. 6.6 zu sehen ist, wird die Abnahme der Ladungsradien auch von den meisten theoretischen Modellen vorhergesagt. Mit Ausnahme des Large-Basis bzw. No-Core Shell Models (LBSM bzw. NCSM) [Nav98, Nav03], zeigen die Resultate aller Modelle eine gute Übereinstimmung für ⁶Li und ⁷Li. Der abnehmende Trend des Ladungsradius wird ebenfalls von allen experimentellen und den meisten theoretischen Ergebnissen wiedergegeben. Ausgenommen davon sind wiederum die Schalenmodell-Berechnungen, die bei allen Werten systematisch zu

¹In [Ewa05] wurde für die Umrechnung der Protonenradius von $\langle R_p^2 \rangle^{1/2} = 0,862$ fm [Sim80] benutzt.

tief liegen und auch den Trend der Abnahme der Ladungsradien nicht wiedergeben. Ebenfalls ausgenommen sind die Berechnungen nach dem dynamischen Korrelationsmodell (DCM) [Tom02]. Diese stimmen mit den gemessenen Werten der stabilen Isotope gut überein, sagen jedoch den Ladungsradius von ^8Li zu hoch voraus. Die theoretischen Modelle mit besserer Übereinstimmung werden im Folgenden knapp beschrieben:

Greens Function Monte Carlo Calculations (GFMC) Unter den theoretischen Modellen gehören die Greens Function Monte Carlo Berechnungen zu denjenigen, die auf eine fundamentale Beschreibung des Kerns und der Kernkräfte zurückgreifen. Sie benutzen realistische Hamilton-Operatoren mit Argonne-Zweiteilchenpotentialen (AV18) für die Nukleon-Nukleon-Wechselwirkung und zusätzliche Dreiteilchenpotentiale nach Illinois Modellen. Die Berechnungen basieren auf korrelierten Vielteilchen-Wellenfunktionen. Nach einer Optimierung durch Monte Carlo Variationsrechnungen (VMC) werden in einem zweiten Schritt die Komponenten der VMC-Wellenfunktionen, die angeregten Zuständen entsprechen, in einer imaginären Zeitentwicklung eliminiert und damit eine verbesserte Beschreibung des Grundzustands erreicht. Die Resultate geben den Ladungsradius der stabilen Isotope sehr gut wieder. Bei den radioaktiven Isotopen $^{8,9}\text{Li}$ spiegeln die Radien den Trend wider, sind jedoch etwas zu klein. Zurzeit lassen sich mit dieser Methode fast alle Kerne mit $A \leq 12$ beschreiben. Für ^{11}Li ist allerdings die Bindungsenergie zu gering und die Zeitentwicklung der VMC gelingt nicht, so dass der Kern ungebunden wird.

Fermionische Molekulardynamik (FMD) Bei dieser Methode wird der Hamiltonoperator ausgehend vom Argonne Potential AV18 durch eine unitäre Transformation auf eine effektive Wechselwirkung abgebildet, die die kurzreichweitigen Tensorkräfte nicht mehr enthält. Diese werden jetzt in einer neuen Vielteilchenbasis berücksichtigt, die man aus einer unitären Transformation der unkorrelierten Basis erhält. Durch Variation der Parameter des Vielteilchen-Versuchszustandes wird die Energie minimiert, anschließend wird eine Projektion auf den Kernspin I^π mit Parität π durchgeführt und so der energetisch günstigste Zustand gefunden. Dabei ist es möglich, durch Variation mit Nebenbedingungen weitere Konfigurationen zu erzeugen. Durch das Mischen von Konfigurationen mit unterschiedlichen Kernmomenten kommt man schließlich zum Ergebnis. Für die Lithium-Isotope geben diese ebenfalls den Trend

Tabelle 6.6: Vergleich der Lithium-Kernladungsradien r_c aus dieser Arbeit mit verschiedenen Modellen.

Isotop	r_c [fm]	r_c [fm]	r_c [fm]	r_c [fm]	r_c [fm]	r_c [fm]	r_c [fm]
^6Li	2,51(3)	2,58	-	2,55	2,53 ¹	2,21	-
^7Li	-	2,42	2,41	2,41	2,39 ¹	2,22	2,20
^8Li	2,30(4)	2,37	2,32	-	2,23 ¹	-	2,09
^9Li	2,24(4)	2,30	2,25	2,42	2,18 ²	-	2,09
Modell	Experiment	FMD	SVMC	DCM	GFMC	NCSM	LBSM
Referenz	[Diese Arbeit]	[Nef05]	[Suz02]	[Tom02]	[Pie01] ¹ , [Pie02] ²	[Nav03]	[Nav98]

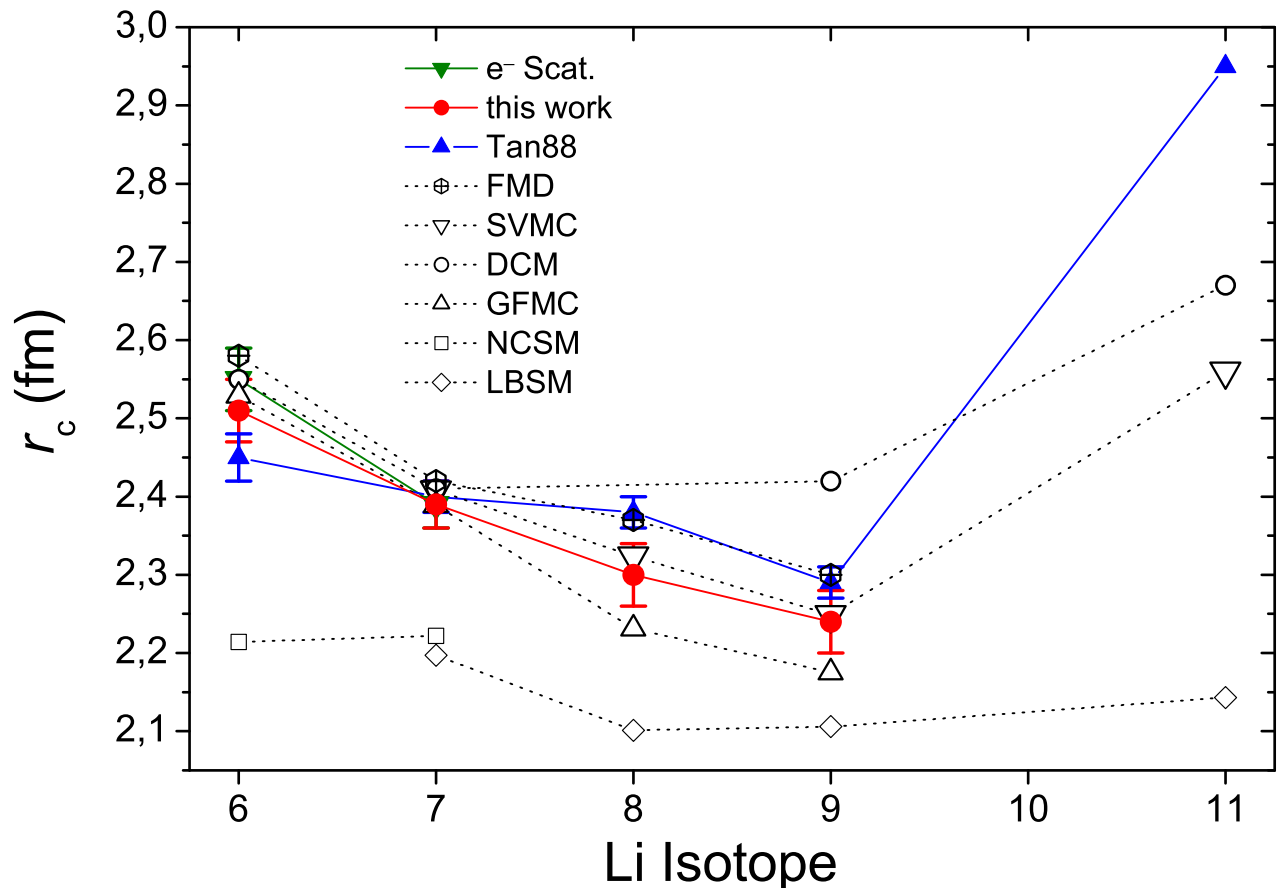


Abb. 6.6: Vergleich der Kernladungsradien der untersuchten Lithium-Isotope mit den Ergebnissen aus Elektronenstreuung (e^- Scat.) [Jag74], den Isotopieverschiebungsmessungen aus dieser Arbeit (this work), Messungen des Wirkungsquerschnitt in Verbindung mit Glauber-Modell-Rechnungen [Tan88] und theoretischen Vorhersagen des no-core shell-models (NCSM) [Nav03], large-basis shell-model Berechnungen (LBSM) [Nav98], dynamischem Korrelationsmodell (DCM) [Tom02], Greens Function Monte Carlo Calculation (GFMC) [Pie02] und fermionischer Molekulardynamik (FMD) [Nef05].

zu kleineren Kernladungsradien bei zunehmender Neutronenzahl gut wieder. Die Radien reproduzieren bei den stabilen Isotopen sehr gut die experimentellen Ergebnisse, bei ^8Li liegen sie mit einer Abweichung von $1,8 \sigma$ und bei ^9Li mit $1,5 \sigma$ leicht oberhalb der Werte aus der Isotopieverschiebung.

Stochastic Variational Multi Cluster Model (SVMC) Jede der Methoden hat ihren eigenen Weg, die zur genauen Beschreibung des Kerns erforderliche große Basis numerisch zu behandeln. Diese Methode löst das Problem, indem sie sinnvolle kleinere Untersysteme, Cluster, bildet und so einige interne Freiheitsgrade in physikalisch vernünftiger Weise einfriert. Die Bausteine dieses Modells bilden α , t und ^3He -Kerne und die Nukleonen p und n . Realistische Potentiale aus Nukleon-Nukleon Wechselwirkung zusammen mit Dreiteilchenpotentialen, wie sie bei den vorher beschriebenen Modellen angewendet werden, lassen sich jedoch bei mikroskopischen Clustermodellen nicht sinnvoll einsetzen. Die darin vorkommenden starken Tensor-

komponenten würden kompliziertere interne Wellenfunktionen der Cluster verlangen, die zu technischen Problemen bei der numerischen Behandlung der Gleichungen führen. Stattdessen werden effektive Potentiale eingesetzt, die die wichtigsten Eigenschaften der Wechselwirkung wiedergeben. Das Cluster-Modell startet bei ${}^6\text{Li}$ mit einer $\alpha + p + n$ -Konfiguration und erhält als relevante Kanäle $\alpha + d$, ${}^5\text{He}+p$ und ${}^5\text{Li}+n$. Bei den schwereren Lithium-Isotopen starten die Berechnungen mit einer $\alpha + t (+ n \dots + n)$ -Konfiguration. Die Ergebnisse für die Kernladungsradien stimmen für die ganze Isotopenkette ausgezeichnet mit den Ergebnissen dieser Arbeit überein. Das Modell gehört zu den wenigen, mit denen es gelingt, Vorhersagen über den Ladungsradius des Halokerns ${}^{11}\text{Li}$ zu treffen, dessen Bestimmung in Fortsetzung dieser Arbeit am TRIUMF in Vancouver durchgeführt wurde [San05].

7 Zusammenfassung und Ausblick

Erstmals ist es gelungen, die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius $\delta\langle r_c^2 \rangle$ bei leichten radioaktiven Mehrelektronen-Atomen mit $Z < 10$ zu bestimmen. Dazu wurde eine Methode entwickelt, die hochpräzise theoretische Berechnungen des Drei-Elektronen-Systems und eine ebenso genaue Messung der Isotopieverschiebung kombiniert. Auf diese Weise gelang es, den sehr kleinen Beitrag des Feldeffekts der Isotopieverschiebung von dem etwa 10 000 mal größeren Masseneffekt zu separieren und die Ladungsradien zu ermitteln. Die geforderte Genauigkeit von 200 kHz wurde sowohl auf theoretischer Seite für die Berechnung des Masseneffekts [Yan02] als auch auf experimenteller Seite mit der Messung der Isotopieverschiebung erreicht. Gleichzeitig wurde durch den Einsatz eines sehr effizienten Anregungs- und Nachweisverfahrens eine Gesamteffizienz von besser als 10^{-4} demonstriert. Durch die Anwendung der Methode auf die kurzlebigen Isotope ${}^8,9\text{Li}$ ist es gelungen, die Vorhersagen verschiedener Kernmodelle für die Ladungsradien von ${}^{6,7,8,9}\text{Li}$ zu überprüfen. Damit wurden die Grundlagen für eine Bestimmung des Ladungsradius des Halokerns ${}^{11}\text{Li}$ gelegt, die jüngst am ISAC-Massenseparator am TRIUMF erfolgte.

Im Theoriekapitel der hier vorgestellten Arbeit sind die Grundlagen zur Bestimmung von Ladungsradien aus der Messung der Isotopieverschiebung dargestellt. Bei sehr leichten Isotopen gelingt dies nur, wenn der Beitrag des Masseneffekts von der Theorie mit hoher Präzision berechnet werden kann. Daher sind die Berechnungen von Yan und Drake zum Masseneffekt von Lithium-Atomen mittels Variationsrechnungen in Hylleraasschen-Koordinaten ausführlich beschrieben. Den Autoren ist es erstmals gelungen, den Masseneffekt in einem Drei-Elektronen-System mit der erforderlichen Genauigkeit zu berechnen und damit die Grundlage für das beschriebene Verfahren zu legen [Yan02].

Experimentell beruht das hier vorgestellte Verfahren auf einer präzisen Messung der Isotopieverschiebung im $2S \rightarrow 3S$ -Zweiphotonen-Übergang am thermischen Atomstrahl. Um gleichzeitig die erforderliche Effizienz zu erreichen, wird dies mit der Methode der Resonanz-Ionisation und dem massenspektrometrischen Nachweis der Resonanz-Ionen kombiniert. Dabei liegt der experimentelle Schwerpunkt auf dem Lasersystem und der dazugehörigen Stabilisierungskette, die im Laufe dieser Arbeit entwickelt und charakterisiert wurde. Sie besteht aus einem Referenz-Diodenlaser, einem Titan:Saphir- und einem Farbstofflaser sowie einem optischen Resonator, der zur Überhöhung der Laserleistung in der Wechselwirkungsregion dient.

In Testexperimenten mit stabilen Lithium-Isotopen wurden die erreichbare Präzision und Effizienz getestet sowie mögliche Untergrundquellen analysiert. Die Bestimmung der Isotopieverschiebung zwischen den stabilen Isotopen und den absoluten Übergangswellenlängen bestätigt die Berechnungen des Masseneffekts von Yan und Drake. Außerdem wurde demonstriert, dass das verwendete Nachweisverfahren eine Effizienz von größer als 10^{-4} besitzt, die ausreichend ist, um bei Produktionsraten von etwa 30 000/s für ${}^{11}\text{Li}$ den Ladungsradius dieses Halokerns zu bestimmen.

Schließlich wurde die Methode am Online-Massenseparator der Gesellschaft für Schwerionen-

forschung (GSI) eingesetzt, um erstmals die Ladungsradien der kurzlebigen Isotope ${}^8,9\text{Li}$ zu messen. Die Resultate zeigen einen abnehmenden Ladungsradius bei wachsender Neutronenzahl zwischen den Isotopen ${}^6\text{Li}$ und ${}^9\text{Li}$. Dieser Trend kann auf die ausgeprägte Clusterstruktur des ${}^6\text{Li}$ -Kerns zurückgeführt werden, die sich beim Hinzufügen weiterer Neutronen schrittweise auflöst. Dies wird auch von den meisten der diskutierten Kernmodelle vorhergesagt. Die beste Übereinstimmung zeigt sich mit den Ergebnissen der Stochastic Variational Multi-Cluster-Rechnungen [Suz02].

Im Rahmen der Doktorarbeit von Rodolfo Sánchez [San05] wurde das Experiment fortgesetzt und erweitert. Dazu wurde im Juni 2004 die Messapparatur nach Kanada gebracht und dort am TRIUMF in Vancouver aufgebaut. In einer ersten Offline-Strahlzeit Ende Juni 2004 wurde die Apparatur getestet sowie die systematischen Effekte erneut und noch genauer charakterisiert. In den folgenden Online-Strahlzeiten wurden die Messungen von der GSI wiederholt und die Ergebnisse, die in der hier vorgestellten Arbeit gewonnen wurden, reproduziert bzw. verbessert. Darüber hinaus wurde zum ersten Mal die Isotopieverschiebung eines Isotops an der Neutronen-Abbruch-Kante, des prominentesten Zwei-Neutronen-Halos ${}^{11}\text{Li}$, bestimmt [San05].

In diesem Zusammenhang ist eine absolute Frequenzmessung der Jodreferenz hoch interessant: Damit lassen sich die absoluten Übergangsenergien der $2S \rightarrow 3S$ -Resonanzen bestimmen. Wenn zusätzlich der Theorie-Fehler der absoluten Energien um einen Faktor 5 reduziert werden kann, so lässt sich der Ladungsradius rein optisch bestimmen. Die Unsicherheit durch den nicht sehr genau durch Elektronenstreuung bestimmten Ladungsradius des Referenzisotops ${}^7\text{Li}$ wäre damit eliminiert.

Weitere interessante Kandidaten zur Messung der Kernladungsradien befinden sich in der Beryllium-Isotopenkette. Darunter ist ${}^{11}\text{Be}$, der Prototyp eines Ein-Neutronen-Halos. Für Beryllium ist die in dieser Arbeit vorgestellte experimentelle Methode jedoch nicht anwendbar, da es in absehbarer Zeit nicht möglich sein wird, die notwendigen theoretischen Berechnungen zur Massenverschiebung durchzuführen [Dra05]. Die Messungen müssen daher an einfach geladenen Ionen durchgeführt werden, die durch eine Laser-Ionen-Quelle an Online-Separatoren erzeugt werden können. Für die Messung bieten sich zwei Methoden an:

1. Die Messungen der Isotopieverschiebung am schnellen Ionenstrahl in kollinearer Spektroskopie. Hierbei muss die immer auftretende Unsicherheit der Strahlenergie beseitigt werden, um die erforderliche Genauigkeit zu erreichen. Dazu werden alle Isotope bei gleicher Beschleunigungsspannung gemessen. Die Anregung erfolgt bei ~ 313 nm mit einem frequenzverdoppelten Farbstofflaser. Die Übergangsfrequenzen können absolut mit einem Frequenzkamm bestimmt werden.

Bei dieser Methode liegt die Problematik in den asymmetrischen Linienprofilen der kollinearen Spektroskopie, die sich derzeit nicht exakt genug beschreiben lassen. Es muss daher getestet werden, ob die Anpassung der Profile bei Beryllium-Isotopen mit vorhandener Hyperfeinaufspaltung (alle außer ${}^{10}\text{Be}$) eine ausreichende Genauigkeit erreicht: Bei den erwarteten Signalen mit einer Halbwertsbreite von ca. 50 MHz könnte es schwierig werden, die Lage der Linienzentren auf 1/100 der Linienbreite genau zu bestimmen. Die kollineare Spektroskopie ist jedoch die einzige Methode mit der es möglich wäre, die Isotopieverschiebung des extrem kurzlebigen Isotops ${}^{14}\text{Be}$ mit einer Halbwertszeit von 4,4 ms zu bestimmen.

2. Die Messung der Isotopieverschiebung an gespeicherten Ionen in einer Radiofrequenzfalle. Hierbei werden die Beryllium-Ionen in eine Paulfalle geladen, auf dem $2S \rightarrow 2P$ -Übergang bei 313 nm in Wechsel lasergekühlt und spektroskopiert. Zum Abbremsen der Ionen könnten weite

Teile der ISOLTRAP-Anlage an ISOLDE, CERN benutzt werden. Da zum Abbremsen und Kühlen der Ionen eine gewisse Zeit benötigt wird, ist es mit dieser Methode zwar sicherlich möglich die Isotopverschiebung des Ein-Neutronen-Halo ^{14}Be zu bestimmen, das extrem kurzlebige Isotop ^{14}Be wird jedoch unzugänglich bleiben.

A Schaltpläne

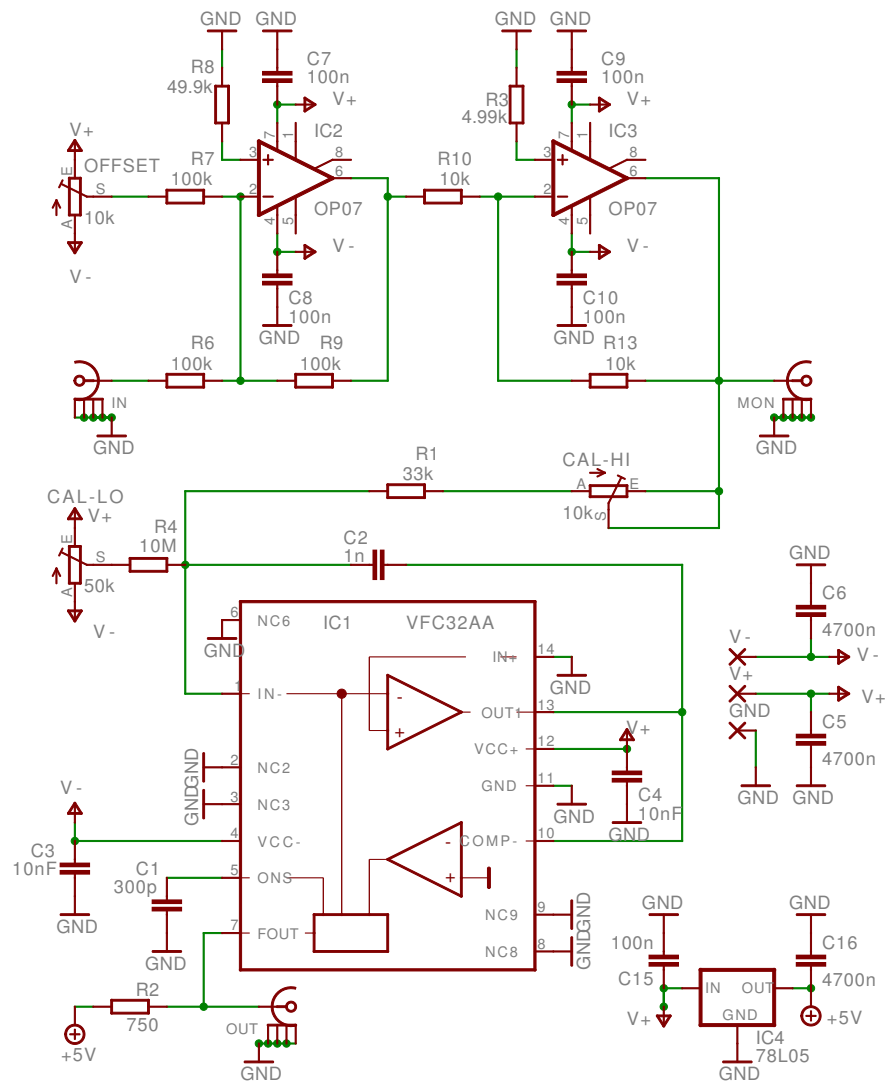


Abb. A.1: Der Spannungs-Frequenz-Wandler (VCO: Voltage Controlled Oscillator) setzt analoge Signale in Frequenzen um, die über Zähler digitalisiert und von der Datenaufnahme eingelesen werden. Der eigentliche Wandler (IC1: VFC32) kann nur positive Signale verarbeiten. Um diese zu gewährleisten, ist ein Addierer (IC2: OP07) vorgeschaltet, an dem man über ein Potentiometer den Versatzwert (Offset) einstellen kann. Am Monitorausgang (MON) des nachfolgenden Invertierers (IC3: OP07) lässt sich die Einstellung kontrollieren. Der Wandler muss über die beiden Potentiometer „CAL-HI“ und „CAL-LO“ kalibriert werden. Am Ausgang (OUT) werden Rechteckpulse mit einer Maximalfrequenz von 100 kHz ausgegeben.

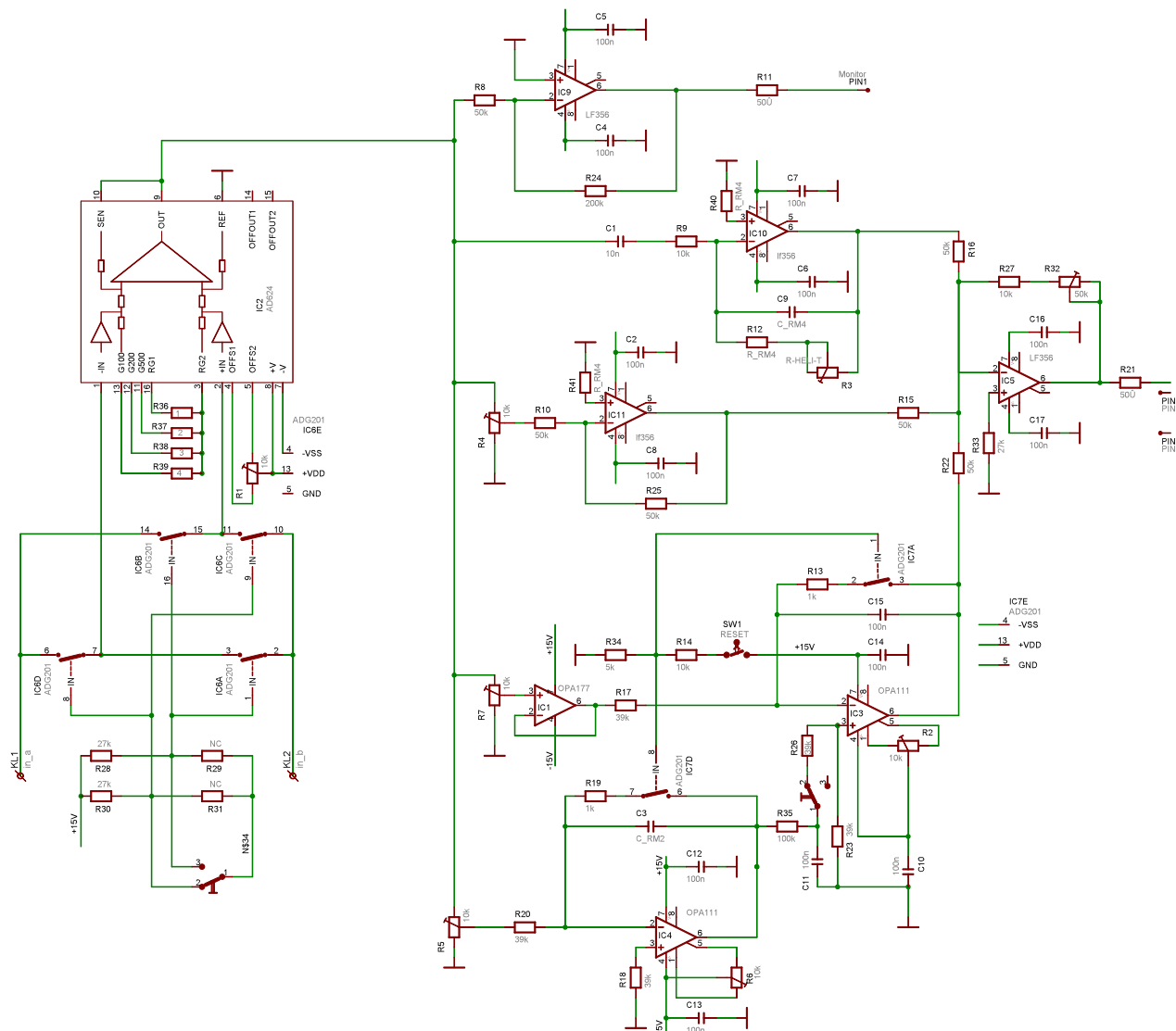


Abb. A.2: Der PID-Regler dient in zahlreichen Regelkreisen des Experiments der elektronischen Stabilisierung. Dabei gibt es zahlreiche Modifikationen, die z.B. die Zeitkonstanten betreffen, aber auch den Verzicht auf funktionelle Einheiten, wie z.B. Proportional-, Differential- oder zweiten Integrationsteil. Die Grundfunktionen des Reglers sind: rauscharme Trennverstärkung (IC2: AD624) und mögliche Invertierung des Eingangssignals (IC6A: ADG201), Monitorausgang (PIN1) des verstärkten Eingangssignals (IC9: LF365), parallel dazu der eigentliche PID Regler mit dem „Differentialteil“ um IC10, dem Proportionalteil um IC11, und zwei Integralteilen um IC3 und IC4 (jeweils mit OPA111), die durch den Schalter SW1 über IC7 (ADG201) zurückgesetzt werden können; an IC5 werden P-, I- und D-Teil addiert und die Endverstärkung eingestellt.

Literaturverzeichnis

- [Agr01] G.P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, San Diego, 3rd edition, 2001.
- [AK96] J. Al-Khalili and J.A. Tostevin. Matter radii of light halo nuclei. *Phys. Rev. Lett.*, 76:3903, 1996.
- [AK04] J. Al-Khalili. An introduction to halo nuclei. *Lect. Notes Phys.*, 651:77–112, 2004.
- [Ari77] E. Arimondo and M. Inguscio and P. Violino. Experimental determinations of the hyperfine structure in the alkali atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 49:31–75, 1977.
- [Arn87] E. Arnold, J. Bonn, R. Gegenwart, W. Neu, R. Neugart, E.W. Otten, G. Ulm, K. Wendt and ISOLDE Collaboration. Nuclear spin and magnetic moment of ^{11}Li . *Phys. Lett. B*, 197:311, 1987.
- [Arn92] E. Arnold, J. Bonn, A. Klein, R. Neugart, M. Neuroth, E.W. Otten, P. Lievens, H. Reich, W. Widdra and ISOLDE collaboration. Quadrupole moment of ^{11}Li . *Phys. Lett. B*, 281:16, 1992.
- [Aud97] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot and A.H. Wapstra. The NUBASE evaluation of nuclear and decay properties. *Nucl. Phys. A*, 624:1, 1997.
- [Bac05] C. Bachelet, G. Audi, C. Gaulard, C. Guénaut, F. Herfurth, D. Lunney, M. De Saint Simon, C. Thibault and the ISOLDE Collaboration. A new high precision binding energy for the halo nuclide ^{11}Li . *unpublished*, 2005.
- [Bec74] A. Beckmann, K.D. Böklen and D. Elke. Precision measurement of the nuclear magnetic dipole moments of ^6Li , ^7Li , ^{23}Na , ^{39}K and ^{41}K . *Z. Physik*, 270:173, 1974.
- [Bla98] K. Blaum, Ch. Geppert, P. Müller, W. Nörtershäuser, E.W. Otten, N. Trautmann, K. Wendt and B.A. Bushaw. Properties and performance of a quadrupole mass filter used for resonance ionization mass spectrometry. *Int. J. Mass Spectrom.*, 181:67–87, 1998.
- [Bla01] E.D. Black. An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization. *Am. J. Phys.*, 69:79–87, January 2001.
- [Bor05] D. Borremans, D.L. Balabanski, K. Blaum, W. Geithner, S. Gheysen, P. Himpe, M. Kowalska, J. Lassen, P. Lievens, S. Mallion, R. Neugart, G. Neyens, N. Vermeulen and D. Yordanov. Precision measurement of the ground state g factors and quadrupole moments of ^8Li and ^9Li . 2005.

- [Bum72] F.A. Bumiller, F.R. Buskirk, J.N. Dyer and W.A. Monson. Elastic electron scattering from ${}^6\text{Li}$ and ${}^7\text{Li}$ at low momentum transfer. *Phys. Rev. C*, 5:391–395, 1972.
- [Bus03] B.A. Bushaw, W. Nörtershäuser, G. Ewald, A. Dax and G.W.F. Drake. Hyperfine splitting, isotope shift, and level energy of the 3S states of ${}^{6,7}\text{Li}$. *Phys. Rev. Lett.*, 91(4):43004, July 2003.
- [Bus04] B.A. Bushaw. Private Mitteilung. 2004.
- [Coh98] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc and G. Grynberg. *Atom-Photon Interaction*. John Wiley & Sons, 1998.
- [Dra95] G.W.F. Drake and Z.-C. Yan. Asymptotic-expansion method for the evaluation of correlated three-electron integrals. *Phys. Rev. A*, 52(5):3681–3685, November 1995.
- [Dra99] G.W.F. Drake and S.P. Goldman. Review of high precision theory and experiment for helium. *Can. J. Phys.*, 77:835, 1999.
- [Dra04] G.W.F. Drake, W. Nörtershäuser and Z.-C. Yan. Isotope shifts and nuclear radius measurement for helium and lithium. *Can. J. Phys.*, 82:835–845, 2004.
- [Dra05] G.W.F. Drake. Private Mitteilung. 2005.
- [Dre83] R.W.P. Drever, J.L. Hall, F.V. Kowalski, J. Hough, G.M. Ford, A.J. Munley and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Appl. Phys. B*, 31:97–105, 1983.
- [Ege02] P. Egelhof et al. Nuclear-matter distributions of halo nuclei from elastic proton scattering in inverse kinematics. *Eur. Phys. J. A*, 15:27–33, 2002.
- [Ewa04] G. Ewald, W. Nörtershäuser, A. Dax, S. Götte, R. Kirchner, H.-J. Kluge, Th. Kühl, R. Sanchez, A. Wojtaszek, B.A. Bushaw, G.W.F. Drake, and C. Zimmermann. Nuclear charge radii of ${}^{8,9}\text{Li}$ determined by laser spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 93:113002, 2004.
- [Ewa05] G. Ewald, W. Nörtershäuser, A. Dax, S. Götte, R. Kirchner, H.-J. Kluge, Th. Kühl, R. Sanchez, A. Wojtaszek, B.A. Bushaw, G.W.F. Drake and C. Zimmermann. Erratum: Nuclear charge radii of ${}^{8,9}\text{Li}$ determined by laser spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 94:039901, 2005.
- [Fis98] C. F. Fischer, M. Saporov, G. Gaigalas and M. Godefroid. Breit-Pauli energies, transition probabilities, and lifetimes for $2s, 2p, 3s, 3p, 3d, 4s$ ${}^2\text{L}$ levels of the lithium sequence, $Z = 3 - 8$. *At. Data Nuc. Data Tables*, 70:119–134, Sept. 1998.
- [Geh85] M. Gehrtz, G.C. Bjorklund and E.A. Whittaker. Quantum-limited laser frequency-modulation spectroscopy. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2(9):1510–1524, September 1985.
- [Gei02] R. W. Geithner. *Nuclear Moments and Differences in Mean-Square Charge-Radii of Short-Lived Neon Isotopes by Collinear Laser Spectroscopy*. PhD thesis, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 2002.

- [Göt04] S. Götte, K.-M. Knaak, N. Kotovski, G. Ewald, K.D.A. Wendt and H.-J. Kluge. Test of collinear spectroscopy for precise high-voltage determination. *Rev. Sci. Instr.*, 75(4):1039–1050, April 2004.
- [Hal81] J.L. Hall, T. Baer, L. Hollberg, and H.G. Robinson (Ed. A.R.W. McKellar, T. Oka, and B.T. Stoicheff). *Precision spectroscopy and laser frequency control using FM sideband optical heterodyne techniques*. Springer Verlag, Berlin, 1981.
- [Han87] P.G. Hansen and B. Jonsen. The neutron halo of extremely neutron-rich nuclei. *Europhys. Lett.*, 4:409–414, 1987.
- [Hub75] G. Huber, C. Thibault, R. Klapisch, H.T. Duong, J.L. Vialle, J. Pinard, P. Juncar and P. Jaquinot. High resolution laser spectroscopy of the *D* lines of on-line produced $^{21,22,24,25}\text{Na}$ using a new high-sensitivity method of detection of optical resonances. *Phys. Rev. Lett.*, 34(19):1209, 1975.
- [Hub98] A. Huber, Th. Udem, B. Gross, J. Reichert, M. Kouroggi, K. Pachucki, M. Weiz and T.W. Hänsch. Hydrogen-deuterium 1S – 2S isotope shift and the structure of the deuteron. *Phys. Rev. Lett.*, 80:468, 1998.
- [Hyl28] E.A. Hylleraas. Über den Grundzustand des Heliumatoms. *ZS f. Physik*, 48:469, 1928.
- [Ipp72] E.P. Ippen and R.H. Stolen. Stimulated Brillouin scattering in optical fibers. *App. Phys. Lett.*, 21(11):539–540, December 1972.
- [Jag74] C.W. de Jager, H. de Vries and C. de Vries. Nuclear charge- and magnetization-density-distribution parameters from elastic electron scattering. *At. Data Nukl. Data Tables*, 14:479–508, 1974.
- [Kau76] S.L. Kaufman. High-resolution laser spectroscopy in fast beams. *Opt. Commun.*, 17(3):309–312, June 1976.
- [Kie97] A. Kievsky, L.E. Marcucci, S. Rosati, and M. Viviani. High-precision calculation of the triton ground state within the hyperspherical-harmonics method. *Few-Body Systems*, 22:1–10, 1997.
- [Kir81a] R. Kirchner. Progress in ion source development for on-line separators. *NIM*, 186:275, 1981.
- [Kir81b] R. Kirchner, K.B. Burkhard, W. Hüller and O. Klepper. The ion source for the GSI on-line separator. *NIM*, 186:295–305, 1981.
- [Klu03] H.-J. Kluge and W. Nörtershäuser. Lasers for nuclear physics. *Spectrochim. Acta*, 58B(6):1031–1045, June 2003.
- [Knö03] H. Knöckel. Private Mitteilung. 2003.
- [Kop97] S. Kopecky, J. A. Harvey, N. W. Hill, M. Krenn, M. Pernicka, P. Riehs, and S. Steiner. Neutron charge radius determined from the energy dependence of the neutron transmission of liquid ^{208}pb and ^{209}bi . *Phys. Rev. C*, 56(4):2229, October 1997.

- [Lan60] Landolt, Börnstein. *Zahlenwerte und Funktionen II*. Springer, 2nd edition, 1960.
- [Lia75] P.F. Liao and J.E. Bjorkholm. Direct observation of atomic energy level shifts in two-photon absorption. *Phys. Rev. Lett.*, 34(1), 1975.
- [Mes99] D. Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Teubner Studienbücher, 1999.
- [Nav98] P. Navrátil and B.R. Barrett. Large-basis shell-model calculations for p -shell nuclei. *Phys. Rev. C*, 57(6):3119, 1998.
- [Nav03] P. Navrátil and W. E. Ormand. Ab initio shell model with a genuine three-nucleon force for the p -shell nuclei. *Phys. Rev. C*, 68:034305, 2003.
- [Nef05] Th. Neff. Private Mitteilung. 2005.
- [Neu73] R. Neugart. Spin exchange polarization and measurement of the hyperfine splitting of short-lived ^8Li . *Z. Phys.*, 261:237, 1973.
- [Neu87] R. Neugart. *Collinear Fast-Beam Laser Spectroscopy*, volume D of *Progr. in Atomic Spectr.* Plenum Press, 1987.
- [Ott89] E.W. Otten, in D.A. Bromley (Ed.). *Nuclear Radii and Moments of Unstable Isotopes*. Vol. 8, Plenum Press, New York and London, 1989.
- [Pie01] S.C. Pieper and R.B. Wiringa. Quantum Monte Carlo calculations of light nuclei. *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.*, 51:53–90, 2001.
- [Pie02] S.C. Pieper, K. Varga and R.B. Wiringa. Quantum Monte Carlo calculations of $A = 9, 10$ nuclei. *Phys. Rev. C*, 66:044310, 2002.
- [Rad95] L.J. Radziemski, R. Engelman Jr. and J.W. Brault. Fourier-transform-spectroscopy measurements in the spectra of neutral lithium, ^6Li I and ^7Li I (Li I). *Phys. Rev. A*, 52(6):4462, 1995.
- [Rag89] P. Raghavan. Table of nuclear moments. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 42:203, 1989.
- [Rii94] E. Riis and A.G. Sinclair. Lamb shifts and hyperfine structure in $^6\text{Li}^+$ and $^7\text{Li}^+$: Theory and experiment. *Phys. Rev. A*, 49(1):207–220, January 1994.
- [Rus03] P. Russel. Photonic crystal fibers. *Science*, 299:358–362, 2003.
- [San95] C.J. Sansonetti and B. Richou. Measurements of the resonance lines of ^6Li and ^7Li by Doppler-free frequency-modulation spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 52(4):2682–2688, October 1995.
- [San05] R. Sanchez. *In Vorbereitung*. PhD thesis, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 2005.
- [Sch96] W. Scherf, O. Khait, H. Jäger and L. Windholz. Re-measurement of the transition frequencies, fine structure splitting and isotope shift of the resonance lines of lithium, sodium and potassium. *Z. Phys. D*, 36:31–33, 1996.

- [Sch00a] F. Schmitt. *Zweiphotonen- und Resonanzionisations-Laserspektroskopie an atomarem Lithium*. PhD thesis, Ruprecht-Karls-Universität, Heidelberg, 2000.
- [Sch00b] F. Schmitt, A. Dax, R. Kirchner, H.-J. Kluge, T. Kühl, I. Tanihata, M. Wakasugi, H. Wang and C. Zimmermann. Towards the determination of the charge radius of ^{11}Li by laser spectroscopy. *Hyperf. Int.*, 127:111–115, 2000.
- [Shi95] D. Shiner, R. Dixson and V. Vedantham. Three-nucleon charge radius: A precise laser determination using ^3He . *Phys. Rev. Lett.*, 74(18):3553–3555, May 1995.
- [Sic03] I. Sick. On the rms-radius of the proton. *Phys. Lett. B*, 576(1):62–67, 2003.
- [Sim80] G.G. Simon, Ch. Schmitt, F. Borkowski and V.H. Walter. Absolute electron-proton cross sections at low momentum transfer measured with a high pressure gas target system. *Nuc. Phys. A*, 333:381–391, 1980.
- [Sue67] L.R. Suelzle, M.R. Yearian and H. Crannell. Elastic electron scattering from ^6Li and ^7Li . *Phys. Rev.*, 162(4):992–1005, October 1967.
- [Sun84] D. Sundholm, P. Pyykkö, L. Laaksonen and A.J. Sadlej. Nuclear quadrupole moment of lithium from combined fully numerical and discrete basis-set calculations on LiH . *Chem. Phys. Lett.*, 112:1, 1984.
- [Suz02] Y. Suzuki, R.G. Lovas and K. Varga. Study of light exotic nuclei with a stochastic variational method – application to lithium –. *Prog. Theo. Phys. Supple.*, 146:413, 2002.
- [Tan85] I. Tanihata, H. Hamagaki, O. Hashimoto, Y. Shida, N. Yoshikawa, K. Sugimoto, O. Yamakawa, T. Kobayashi and N. Takahashi. Measurements of interaction cross sections and nuclear radii in the light p-shell region. *Phys. Rev. Lett.*, 55:2676, 1985.
- [Tan88] I. Tanihata, T. Kobayashi, O. Yamakawa, S. Shimoura, K. Ekuni, K. Sugimoto, N. Takahashi, T. Shimoda and H. Sato. Measurement of interaction cross sections using isotope beams of Be and B and isospin dependence of the nuclear radii. *Phys. Lett. B*, 206:593, 1988.
- [Tan96] I. Tanihata. Neutron halo nuclei. *J. Phys. G*, 22:157–198, 1996.
- [Tom02] M. Tomaselli, Th. Kühl, W. Nörtershäuser, G. Ewald, R. Sanchez, S. Fritzsche and S.G. Karshenboim. Systematic model calculations of the hyperfine structure in light and heavy ions. *Can. J. Phys.*, 80:1347, 2002.
- [Voe91] H.-G. Voelk and D. Fick. The electric moments of ^7Li from coulomb scattering. *Nucl. Phys. A*, 530:475, 1991.
- [Vor97] G.S. Vornov. A practical fit formula for ionization rate coefficients of atoms and ions by electron impact: $Z = 1 - 28$. *At. Data Nucl. Data Tables*, 65:1–35, 1997.
- [Wal03] J. Walls, R. Ashby, J.J. Clarke, B. Lu and W.A. van Wijngaarden. Measurement of isotope shifts, fine and hyperfine structure splittings of the lithium D lines. *Eur. Phys. J. D*, 22:159–162, 2003.

- [Wan02] H. Wang. *High-Resolution Laser Spectroscopy of Lithium Isotopes for the Charge Radius Determination of Halo Nucleus ^{11}Li* . PhD thesis, University of Tokyo, 2002.
- [Wan04] L.-B. Wang, P. Mueller, K. Bailey, G.W.F. Drake, J.P. Greene, D. Henderson, R.J. Holt, R.V.F. Janssens, C.L. Jiang, Z.-T. Lu, T.P. O'Connor, R.C. Pardo, K.E. Rehm, J.P. Schiffer and X.D. Tang. Laser spectroscopic determination of the ^6He nuclear charge radius. *Phys. Rev. Lett.*, 93(14):142501, October 2004.
- [Wap03] A.H. Wapstra, G. Audi and C. Thibault. AME 2003 atomic mass evaluation. *Nuclear Physics A*, 729:129–336, 2003.
- [Woj04] Agnieszka Wojtaszek. *Spektroskopia laserowa izotopów sodu i litu*. PhD thesis, Uniwersytet Warszawski, 2004.
- [Yan96] Z.-C. Yan, D.K. McKenzie and G.W.F. Drake. Variational calculations of the Fermi contact term for the 2^2S , 2^2P , and 3^2S states of Li and the 2^2S state of Be^+ . *Phys. Rev. A*, 54(2):1322–1326, August 1996.
- [Yan00] Z.-C. Yan and G.W.F. Drake. Lithium isotope shifts as a measure of nuclear size. *Phys. Rev. A*, 61(022504), 2000.
- [Yan02] Z.-C. Yan and G.W.F. Drake. Lithium transition energies and isotope shifts: QED recoil corrections. *Phys. Rev. A*, 66:042504–1 – 042504–8, 2002.
- [Yan03] Z.-C. Yan and G.W.F. Drake. Bethe logarithm and QED shifts for lithium. *Phys. Rev. Lett.*, 91(11):113004–1, 2003.
- [You93] B.M. Young, W. Benenson, M. Fauerbach, J.H. Kelley, R. Pfaff, B.M. Sherrill, M. Steiner, J.S. Winfield, T. Kubo, M. Hellström, N.A. Orr, J. Stetson, J.A. Winger and S.J. Yenello. Mass of ^{11}Li from the $^{14}\text{C}(^{11}\text{B}, ^{11}\text{Li})^{14}\text{O}$ reaction. *Phys. Rev. Lett.*, 71(25):4124–4126, December 1993.
- [Zie03] J.F. Ziegler. SRIM - the stopping range of ions in matter. <http://www.srim.org/>, 2003.

Danksagung

Fangen wir noch mal an und diesmal ganz vorne. Ganz vorne? Nein! Das wäre ja bei der Entstehung der Lithium-Kerne beim Urknall und in Supernovae gewesen. Das kommt ja – zu recht – in der Einleitung schon nicht vor. Aber ganz vorne bei Beppi, der mich zur Mensa trug, dessen Ruf die Flure erschallen ließ, mit dem die LUST¹ so viel Spaß gemacht hat – und trotzdem haben wir nicht den deutschen Hochspannungspreis gewonnen. Na ja, aber meine Liebe zu den (Dioden)-Lasern hatte sie geweckt, die LUST, und das war mein Glück. Denn an der GSI fing das ganze durch einen glücklichen Zufall an, den ich der Firma Toptica verdanke. Die hatten nämlich bei dem einzigen Diodenlaser am Experiment den Auskoppelspiegel falsch herum aufgeklebt. Dies zu entdecken hat mit dann die Doktorandenstelle bei Prof. Dr. H.-Jürgen Kluge eingebracht in der Obhut von Andreas und Wilfried.

Die haben mir dann alles beigebracht, was man als Doktorand so können muss: Andreas wie man ganz genau hinguckt und alles noch feiner justiert und Wilfried wie man früh aufsteht. Noch viel bewundernswerter war Wilfrieds profundes Wissen zu jeder noch so doofen Frage von mir, und die so entstandenen Physikvorlesungen bei 120 auf der Autobahn. An dieser Stelle ist auch dem Schutzengel zu danken, den wir hatten, wenn wir morgens schon völlig übermüdet zur Arbeit fahren und Abends fast genauso müde zurück. Da kann man von Glück reden, dass die Physiker so viel Energie aus dem Experimentieren schöpfen. Ich erinnere mich da an eine Strahlzeit am ESR, bei der wir die Resonanzlinie noch weiter suchten als die Strahlzeit offiziell schon lange vorbei war. Denn wir wollten sie unbedingt finden diese Linie und bei einem exponentiellen Zerfall bleiben ja bekanntlich die Ionen unendlich lange gespeichert, wenn zum Schluss auch nur noch in homöopathischen Dosen.

Aber genug der Ausschweifung, zurück zu Andreas: Der musste uns nämlich leider recht bald nach meiner Ankunft verlassen. Dennoch war er immer bei uns, wenn wir mal nicht mehr so ganz weiter wussten. Ich erinnere mich an eine Geschichte als wir die Frequenz-Offset-Stabilisierung aufbauen wollten und uns fragten wie und mit welchem Mischer es denn jetzt weiter ginge, da erhielten wir von Andreas die Antwortmail: „Ja, wir hätten recht und der erforderliche Mischer liegt in der mittleren Schublade hinten links und die Elektronik, die wir danach noch brauchen, auch direkt daneben“. Das nenne ich Planung. Hut ab!

Als Claus dann das Labor betrat haben gleich drei Leute in tiefer Ehrfurcht den Hut gezogen. Wir stauntem mit offenem Mund wie schnell sich der Meister in unserem Knöpfchenwald zu recht fand und uns in einem Affentempo zeigte worauf es ankommt, wenn man einen Resonator stabilisieren will.

Dann war da aber auch noch direkt am Anfang Christophor Kozhuharov. Bei ihm hatte ich das erste mal das Gefühl, dass sich ein Alter Hase dafür interessiert, was ich als Jungspund so mache und welche Probleme im Labor anstehen. Aber es gab auch noch eine Menge anderer

¹Laser Unterstützte SpannungsmessTechnik

netter und hilfsbereiter Menschen. Fritz zum Beispiel, der mit mir das Schülerpraktikum an den selbst gebastelten Geiger-Zählern aus der Taufe gehoben hat. Und Steffi, die gute Seele der Abteilung, von der ich gelernt habe, dass man die Gunst einer Frau gewinnt indem man den Kühlschrank reinigt.

Aber ebenso wichtig wie die offene Tür bei der Sekretärin ist ein offenes Ohr des Chefs. Jürgen ist ein wahrer Motivationskünstler. Das macht sich nicht nur beim Volleyball bemerkbar, sondern auch bei harten Zeiten im Labor. Darüber hinaus kann er Kritik so charmant an den Mann bringen, dass selbst ich eine ganz seriöse Einleitung über den Zwei-Neutronen-Halo schreibe und gar nicht auf die *ménage à trois* eingehe, die das Lithium-11 da praktiziert. Obwohl es jedem erklären würde, dass so eine Bindung nicht von Dauer ist. Das kann man überall nachlesen. Das ist der Stoff aus dem große Literatur geschaffen wird, aber die muss nun ein Anderer zum Thema Lithium-11 schreiben.

Womit wir bei Rodolfo wären. Der hat schnell erkannt, dass bei einer Strahlzeit jede Regelung auch ihr Maskottchen braucht, damit sie nicht aus dem Lock fällt. Die hat er kurzerhand an den wichtigsten Stellen angebracht und so den Erfolg der Strahlzeit sichergestellt. Dazu haben natürlich auch Reinhard, Charly und Wilfried entscheidend beigetragen. So wurden die Strahlzeitnächte recht kurzweilig und der Kragenbär blieb munter. Aber das ist eine andere Geschichte.

Dann waren da noch die Leute mit den wirklich innovativen physikalischen Ideen. Zum Beispiel die *Trapper*, die auf ihren Pasta-Antipasta-Collider hoffen und sich auf ihren Platz an der Pi-Bar freuen. Und die Freunde, die so eifrig am Letter of Intent für den *Transition Ring* mitgewirkt haben und beim Aufbau so tatkräftig dabei waren.

Ganz wichtig waren Bruce, der Champion des Etaloneffekts, und die Heimmannschaft vom TRIUMF, die uns so herzlich aufgenommen und unterstützt hat: Jens D., der mit uns seinen besten Mann teilte, Jens L., mit dem wir den Lasertisch teilten, John, mit dem wir den Ti:Sa teilten, und Matt, der mit uns sein selbst gebrautes Bier teilte.

Aber mit der Lithium-11 Strahlzeit kam auch Sarah und von da an klappte alles noch viel besser – in Kanada und bei den daheim gebliebenen. Es ist wunderbar, morgens früh aufzustehen und in ihr strahlendes Gesicht mit dem einzähnigen Lächeln zu sehen. Abends führt sie dann ein neues Kunststück vor, was sie zusammen mit Annette einstudiert hat. Beide sind mein Sonnenschein und ich danke Ihnen für die Unterstützung und ihr Verständnis.

Mein herzlicher Dank gilt auch allen, die mit an dieser Arbeit gefeilt, kaputte Bildformate repariert, LaTeX gebändigt, die Vier-Zeilen-Grenze für meine Schachtelsätze aufgestellt, die Kommas an die richtige Stelle gerückt und meine Wortschöpfungen enttarnt haben.