

Einzelpulseffekte an partiell gesättigter laserinduzierter Fluoreszenz

Vom Fachbereich Physik
der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.
genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Michael Johanning
geboren am 19. 6. 1972 in Hannover

Referent: Prof. Dr. M. Kock
Korreferent: Prof. Dr. K. Danzmann
Tag der Promotion: 6. 6. 2003

Für jemanden,
der nicht für diese Welt bestimmt war,
muss ich zugeben,
fällt es mir plötzlich schwer,
sie zu verlassen.

Andererseits heißt es,
jedes Atom in unserem Körper
war einmal Teil eines Sterns.

Vielleicht gehe ich ja nicht weg.
Vielleicht gehe ich ja nach Hause.

Vincent A. Freeman
gattaca

Zusammenfassung

Es wird ein Verfahren zur Einzelpulsauswertung von partiell gesättigten Fluoreszenzsignalen neutraler und ionisierter Atome beschrieben. Sättigung führt zu einer Nichtlinearität im Fluoreszenzsignal, welche im Falle der Breitbandanregung unter Einbeziehung des realen spektralen und raumzeitlichen Profils des anregenden Lasers berücksichtigt werden kann. Dies ermöglicht zum einen die Reduktion von systematischen Fehlern und damit eine genauere Messung von Lebensdauern atomarer Niveaus, aber darüber hinaus auch eine direkte Messung des Verzweigungsverhältnisses des Anregungsübergangs.

In der Praxis ist das aufgenommene Fluoreszenzsignal das Resultat einer Mittelung über mehrere hundert Einzelpulse. Fluktuiert das raumzeitliche Profil des anregenden Lasers, kommt es bei der Anpassung an das gemittelte Signal zu systematischen Fehlern. Daher wurde ein Datenaufnahme- und Auswerteverfahren entwickelt, welches die Eigenschaften der einzelnen Pulse in die Anpassung mit einbezieht. Das Lasersystem wurde auf die Eignung für den Einzelpulsbetrieb untersucht. Dabei konnte gezeigt werden, dass die Einzelpulse des verwendeten Nanosekunden-Lasersystems sich nicht, wie bisher angenommen, durch zeitlich Gauss-förmige Pulse mit einer Halbwertsbreite von etwa 5 ns und einer zusätzlichen schwachen Modenstruktur darstellen lassen, wie es das gemittelte zeitliche Pulsprofil erwarten lässt. Vielmehr ist jeder Einzelpuls eine Folge kurzer *Spikes*, die im Mittel eine Dauer von jeweils etwa 150 ps (FWHM) haben.

Bei der Berücksichtigung von Einzelpulseffekten fällt eine große Anzahl von Messkurven an. Die Aufnahme der Daten wurde automatisiert und das bestehende Experiment um weitreichende Steuer- und Abfragemöglichkeiten durch Nutzung des GPIB-Busses erweitert.

Die Auswertung der Mess-Signale erfolgte mit einem Satz eigens für diese Arbeit entwickelter Klassen in der Programmiersprache Java, die eine Aufnahme und Auswertung der nun 1000-fach größeren Datenmengen ermöglichen. Hierbei mussten hohe Anforderungen an die Stabilität und Effizienz der verwendeten Algorithmen erfüllt werden. Notwendig war zum Beispiel die Verbesserung der Entfaltungsroutine durch ein optimales Filtern, auch Wiener-Filtern genannt, und eine Verbesserung der Robustheit und Leistungsfähigkeit der nichtlinearen Regression durch Einsatz eines Quasi-Newton-Verfahrens mit quadratischer Konvergenz.

Für die Lebensdauermessungen an Ionen kam zum Teil eine lineare Paul-Falle zum Einsatz. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Transformator-konzept und Elektrodengeometrie überarbeitet. Zum besseren Verständnis von Speicherverhalten und Puffergaskühlung wurden numerische Simulationen durchgeführt.

Die Möglichkeiten einer Einzelpulserfassung und -auswertung werden an Dichtemessungen und Messungen von Lebensdauern und atomaren Übergangswahrscheinlichkeiten einfach und doppelt geladener Ionen demonstriert.

Schlagworte:

Laserinduzierte Fluoreszenz, Sättigung, Atomare Übergangswahrscheinlichkeiten

Abstract

A procedure for single pulse evaluation of partially saturated fluorescence signals from neutral and ionized atoms is described. Saturation causes a nonlinearity of the fluorescence signal. This can be taken into account by including the spectral, spatial and temporal behaviour of the excitation laser. This permits a reduction of systematic errors and yields more precise lifetimes. Furthermore a direct measurement of the branching fraction of the excited transition is possible.

Fluorescence signals are usually averaged over a few hundred pulses to obtain good signal to noise ratios. If the excitation pulse shows a non-reproducible temporal behaviour, an evaluation of the averaged signals, which assumes reproducibility, will lead to systematic errors. To avoid these errors, a data acquisition and evaluation procedure has been developed, that takes into account the features of the single pulses. When the suitability of the excitation laser for single pulse measurements was investigated, the single pulses were found to differ substantially from the averaged pulse shape. The temporal properties of the single pulses cannot be described by a more or less Gaussian shaped pulse with a small remaining mode structure. The single pulses are rather a sequence of short intensity spikes, each with a duration of about 150 ps (FWHM).

When single pulses are considered, a large number of signal curves are produced. The data acquisition was therefore automated and the existing experiment was expanded by extensive control and read out possibilities by using the GPIB-bus.

The evaluation of the measured curves was performed with a set of Java-classes, specifically designed for this work, that allow the processing of a thousandfold increased amount of data. High requirements concerning the stability and the efficiency of the algorithms had to be fulfilled. The deconvolution had to be enhanced by the so called optimum or Wiener-filtering. A better efficiency and robustness of the non-linear regression was achieved by using a quasi-Newton approach with quadratic convergence.

The lifetime measurements on ions were partially performed using a linear Paul trap. The electrode geometry and the transformer were redesigned. A number of numerical simulations were carried out for a better understanding of details of trapping and buffer gas cooling.

The possibilities of single pulse data acquisition and evaluation are demonstrated on density-measurements as well as on measurements of lifetimes and transition probabilities on single and doubly ionized atoms.

key words:

laserinduced fluorescence, saturation, transition probabilities

Inhaltsverzeichnis

1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz	1
1.1. Verzweigungsverhältnisse und Lebensdauern	1
1.2. Laser-Atom-Wechselwirkung	3
1.3. Das Ratenmodell	8
1.4. Vom Ratengleichungssystem zum Mess-Signal	14
1.5. Unzulässige Vereinfachungen der Ratengleichungen . .	16
1.5.1. Fehlanpassung durch Annahme von Linearität . .	16
1.5.2. Energieschwankungen und Intensitätsverteilung	18
1.5.3. Schwankende zeitliche Pulsform	20
2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle	23
2.1. Einleitung	23
2.2. Die Speicherung von Ionen in einem Quadrupolfeld . . .	26
2.3. Die adiabatische Näherung	34
2.4. Dichten und Temperaturen gespeicherter Ionen	40
2.5. Kühlmechanismen in Ionenfallen	43
2.5.1. Laserkühlung	44
2.5.2. Kühlung des Spiegelladungsstroms	45
2.5.3. Puffergaskühlung	46
2.6. Longitudinale Stabilisierung	49
2.7. Lösung des Potentialproblems	52

3. Experimentelle Details	55
3.1. Überblick	55
3.2. Teilchenquellen	58
3.2.1. Hohlkathodenentladung	59
3.2.2. Lasererzeugte Plasmen	62
3.3. Detektion	67
3.3.1. Detektion des Laserpulsprofils	67
3.3.2. Detektion des Fluoreszenzlichtes	70
3.3.3. Transientenrekorder	72
3.4. Lasersystem	73
3.4.1. Nd:YAG-Laser	73
3.4.2. Farbstofflaser	76
3.4.3. Besonderheiten des VUV-Lasersystems	87
3.5. Lineare Paul-Falle	93
3.5.1. Fallengeometrien	93
3.5.2. Erzeugung der Fallenpotentiale	95
3.5.3. Beschaltung	98
3.5.4. Betrieb	99
4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten	101
4.1. Gerätekommunikation und Datenaufnahme	103
4.1.1. GPIB	103
4.1.2. Native Interface	103
4.1.3. Erfassung der Messdaten	105
4.2. Bestimmung der Apparatefunktionen	107
4.2.1. Wiener-Filter	108
4.2.2. Jitter-Korrektur	111
4.3. Auswertung	113
4.3.1. Lösung des Ratengleichungssystems	114
4.3.2. Anpassung der Messdaten	116

4.3.3.	Quasi-Newton- und Gauss-Newton-Verfahren . . .	118
4.3.4.	Gültigkeitsbereich des Modells	120
4.3.5.	Modellwechsel	121
4.3.6.	Konvergenzkriterien	124
4.3.7.	Startwerte	125
4.3.8.	Programmumfang und Rechenzeit	127
5.	Ausgewählte Messergebnisse	129
5.1.	Pulsprofilfluktuationen	129
5.2.	Teilchendichtefluktuationen	131
5.3.	Parametrisierung von Messungen	133
5.4.	Lebensdauermessungen	136
5.4.1.	Eisen II	136
5.4.2.	Magnesium II	139
5.4.3.	Wolfram III	140
5.4.4.	Bor III	143
A.	Verwendete Bezeichnungen und Abkürzungen	147
B.	Konstanten	151
C.	Dank	153
D.	Lebenslauf	155
D.1.	Persönliche Daten	155
D.2.	Bildungsweg	156
D.3.	Publikationsliste	157

Kapitel 1.

Theoretische Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

1.1. Verzweigungsverhältnisse und Lebensdauern

Der Begriff der atomaren Übergangswahrscheinlichkeit ist mit dem diskreten Anteil atomarer Spektren und damit mit der quantenmechanischen Natur des Atoms verknüpft. Er beschreibt die Wahrscheinlichkeit pro Zeitintervall eines Übergangs zwischen zwei diskreten Zuständen. Da diese Zustände stationäre Lösungen der zeitunabhängigen Schrödinger-Gleichung sind, ist eine nichtverschwindende Zeitentwicklung zunächst überraschend. Durch eine Störung des atomaren Potentials, etwa durch Stöße oder äußere Felder, werden die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände zeitabhängig. In analoger Weise lässt sich die natürliche Lebensdauer als Folge der Störung stationärer Zustände durch das Vakuumfeld verstehen [Milloni 1984].

Die Übergangsraten lassen sich in strahlungsinduzierte, stoßinduzierte und spontane Prozesse aufteilen. Im Sinne einer Lebensdauerermessung ungestörte Atome wechselwirken weder untereinander, noch mit einem

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

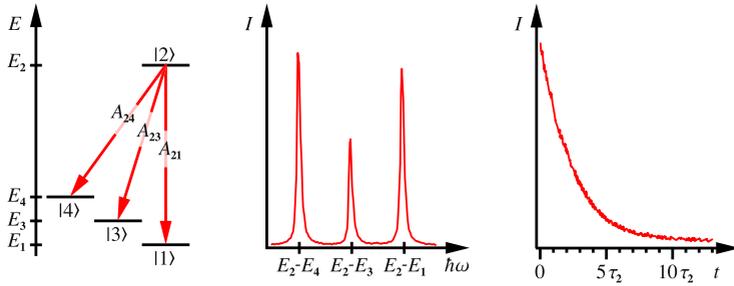


Abbildung 1.1.: Zusammenhang zwischen Übergangswahrscheinlichkeiten, Linienintensitäten und der Strahlungslebensdauer

von außen einwirkenden Störfeld, vom Feld des anregenden Lasers abgesehen. Daher erfolgen nach der Laseranregung ausschließlich spontane Zerfälle in verschiedene untere Zustände (vgl. Abb. 1.1). Die relativen Wahrscheinlichkeiten für einen Zerfall auf einem der möglichen Kanäle äußern sich in Spektrallinien unterschiedlicher Intensität. Wird die Summe aller Zerfallswahrscheinlichkeiten eines Niveaus $|i\rangle$ in andere Niveaus $|k\rangle$ auf 1 normiert, spricht man von Verzweungsverhältnissen R_{ik} . Die absolute Wahrscheinlichkeit eines Zerfalls des Zustandes $|i\rangle$ ist durch seine natürliche Lebensdauer τ_i , auch Strahlungslebensdauer genannt, gegeben. Eine Normierung der Summe der relativen Übergangswahrscheinlichkeiten auf die inverse Lebensdauer führt zu absoluten Übergangswahrscheinlichkeiten A_{ik} (Einstein-A-Wert der spontanen Emission):

$$\sum_{k \neq i} A_{ik} = \frac{1}{\tau_i}, \quad R_{ik} = \frac{A_{ik}}{\sum_k A_{ik}} = A_{ik} \tau_i. \quad (1.1)$$

Die Kenntnis absoluter Übergangswahrscheinlichkeiten ist für die Dia-

agnostik an Laborplasmen und stellaren Plasmen von großem Interesse, da in vielen Fällen mit ihrer Hilfe aus spektroskopischen Daten absolute Teilchendichten gewonnen werden können.

1.2. Laser-Atom-Wechselwirkung

Ausgangspunkt der Berechnung zeitabhängiger, partiell gesättigter Fluoreszenzsignale als Folge einer Breitbandanregung durch Multimoden-Laserstrahlung ist die störungstheoretische Beschreibung eines Atoms in Wechselwirkung mit einer ebenen elektromagnetischen Welle. Als semiklassische Näherung bezeichnet man dabei die Vernachlässigung der Quantennatur des Lichtes. Sie ist gültig, wenn sich in einer Mode des Feldes viele Photonen befinden, was bei einer Laseranregung immer der Fall ist. Die Welle hat dann die Form

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t - kz). \quad (1.2)$$

Da die Wellenlänge für Beobachtungen im optischen Bereich wesentlich größer als die Abmessungen des Atoms ist, können Gradienten vernachlässigt werden (Dipolnäherung). Der *Hamiltonian* setzt sich dann aus dem ungestörten Hamilton-Operator und dem Skalarprodukt von Dipoloperator und elektrischem Feld zusammen:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \mathbf{e}r \cdot \mathbf{E}_0 \cos(\omega t). \quad (1.3)$$

Die Zeitentwicklung des gestörten Systems wird berechnet, indem der Zustand als Superposition der Eigenzustände des ungestörten Systems beschrieben wird. Diese Eigenzustände haben die Ortswellenfunktionen u_i und die zeitabhängigen Amplituden $a_i(t)$. Für ein Zwei-Niveau-

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

System mit den Zuständen $|1\rangle$, $|2\rangle$ lautet diese Superposition

$$\psi(\mathbf{r}, t) = a_1(t) u_1(\mathbf{r}) e^{-iE_1 t/\hbar} + a_2(t) u_2(\mathbf{r}) e^{-iE_2 t/\hbar}. \quad (1.4)$$

Durch Einsetzen in die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung erhält man:

$$\begin{aligned} \dot{a}_1(t) &= -\frac{i}{\hbar} \left[a_1(t) \mathbf{E} \mathcal{D}_{11} + a_2(t) \mathbf{E} \mathcal{D}_{12} e^{i(E_1 - E_2)t/\hbar} \right], \\ \dot{a}_2(t) &= -\frac{i}{\hbar} \left[a_2(t) \mathbf{E} \mathcal{D}_{22} + a_1(t) \mathbf{E} \mathcal{D}_{21} e^{i(E_1 - E_2)t/\hbar} \right], \end{aligned} \quad (1.5)$$

mit dem Dipol-Matrix-Element \mathcal{D}_{ik} :

$$\mathcal{D}_{ik} = -e \int u_i^* \mathbf{r} u_k dV. \quad (1.6)$$

Aufgrund der ungeraden Parität von \mathbf{r} verschwinden die Diagonalelemente der Dipol-Matrix. Ist das Atom ursprünglich im unteren Zustand $|1\rangle$, also $a_1(0) = 1$, $a_2(0) = 0$, erhält man für die Zeitentwicklung des oberen Zustandes

$$a_2(t) = \frac{R_{12}}{2} \left[\frac{e^{i(\omega_{21} - \omega)t} - 1}{\omega_{21} - \omega} + \frac{e^{i(\omega_{21} + \omega)t} - 1}{\omega_{21} + \omega} \right], \quad (1.7)$$

wobei $R_{12} = \mathcal{D}_{12} E_0 / \hbar$ die Rabi-Frequenz des Übergangs bei gegebener Feldamplitude E_0 ist. Eine nennenswerte Besetzungsänderung findet nur statt, wenn die eingestrahlte elektromagnetische Welle nahresonant zum atomaren Übergang ist. Dann gilt $|\omega_{21} - \omega| \ll \omega_{21}$ und der zweite Term kann vernachlässigt werden (*rotating wave approximation*). Für das Betragsquadrat der Zustandsamplitude ergibt sich somit

$$|a_2(t)|^2 = \frac{R_{12}^2}{4} \frac{\sin((\omega_{21} - \omega)t/2)}{(\omega_{21} - \omega)/2}. \quad (1.8)$$

1.2. Laser-Atom-Wechselwirkung

Diese Gleichung beschreibt die Besetzungszosillation des Zweizustandssystems bei Einstrahlen einer ebenen, monochromatischen Welle. Wird, wie bei Fluoreszenzmessungen üblich, gepulste Multimoden-Laserstrahlung verwendet, muss die Wirkung der einzelnen Moden summiert werden. Die Gesamtwahrscheinlichkeit eines Übergangs ergibt sich dann als

$$P_{12}(t) = \int |a_2(t)|^2 d\omega = \frac{\mathcal{D}_{12}^2}{2\epsilon_0\hbar^2} \int \rho(\omega) \frac{\sin((\omega_{21} - \omega)t/2)}{(\omega_{21} - \omega)/2} d\omega. \quad (1.9)$$

Im Falle der Breitbandanregung wird das Linienprofil des atomaren Übergangs vollständig vom Spektrum des Störfeldes überdeckt. Die Lösung des Integrals 1.9 führt mit einer konstanten spektralen Strahldichte $\rho_{\omega_{21}}$ zu einer zeitunabhängigen Übergangswahrscheinlichkeit:

$$\frac{d}{dt} P_{12}(t) = \frac{\pi}{\epsilon_0\hbar^2} \mathcal{D}_{12}^2 \rho_{\omega_{21}} = \rho_{\omega_{21}} B_{12}^\omega. \quad (1.10)$$

Besetzungszosillationen und zeitlich konstante Übergangswahrscheinlichkeiten sind Grenzfälle von vollständiger und vollständig verschwindender Kohärenz. Im allgemeinen Fall muss das System durch einen Kohärenzterm mit einer endlichen Relaxationszeit beschrieben werden, die durch die Ankopplung der kohärent angeregten Atome mit dem umgebenden inkohärenten „Wärmebad“ gegeben ist.

Die Existenz von kohärenten Effekten äußert sich meist in einer periodischen Modulation des Fluoreszenzsignals. Während der Wechselwirkung des Atoms mit dem Laserpuls sind dies die bereits erwähnten Rabi-Oszillationen. Doch auch nach Abklingen des Lasers sind kohärente Effekte zu beobachten. Reicht die spektrale Breite des Laserpulses aus, um zwei Übergänge gleichzeitig zu pumpen, ist eine Modulation des exponentiellen Zerfalls durch sogenannte *Quantumbeats* zu

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

beobachten. Das Pumpen eines solchen Drei-Niveau-Systems tritt insbesondere bei einer kleinen energetischen Aufspaltung der Zustände durch Hyperfeinstruktur oder Zeemann-Effekt auf. Auch der Zerfall des *Alignments*, welcher bei einer Anregung mit polarisierter Laserstrahlung zu beobachten ist, ist eine Folge der Interferenz und damit Kohärenz des Fluoreszenzlichtes von Atomen mit unterschiedlichen magnetischen Quantenzahlen [Hannaford und Lowe 1981].

Eine kompakte Darstellung von Kohärenzeffekten und Relaxationsraten ermöglicht der Dichtematrix-Formalismus [Blum 1978]. Die Dichtematrix enthält die gesamte physikalische Information des Systems und ist gegeben durch

$$\rho_{mn} = |\psi_n\rangle\langle\psi_m|. \quad (1.11)$$

Für das durch Gl. 1.4 gegebene Zweizustandssystem erhält man

$$\rho_{mn} = \begin{pmatrix} |a_1(t)|^2 & a_1 a_2 e^{-i[(E_1 - E_2)t/\hbar + \phi]} \\ a_1 a_2 e^{i[(E_1 - E_2)t/\hbar + \phi]} & |a_2(t)|^2 \end{pmatrix}. \quad (1.12)$$

Die Phasen ϕ sind für unkorrelierte Atome zufällig verteilt und führen bei Summation über ein Ensemble zum Verschwinden der Nicht-Diagonal-Elemente, welche offensichtlich den Kohärenzgrad des Systems beschreiben. Die Diagonal-Elemente hingegen bleiben erhalten und bilden den vollständig inkohärenten Anteil der Dichtematrix.

Die Berechnung der Zeitentwicklung des Systems erfolgt auch hier wieder durch Lösen der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung, die im Dichtematrix-Formalismus gegeben ist durch

$$i\hbar\dot{\rho}_{mn} = [\hat{H}, \rho_{mn}]. \quad (1.13)$$

Um die gesuchten Relaxationsraten zu berechnen, wird der Hamilton-Operator in einen internen (ungestörten) Anteil, einen Anteil der Wech-

1.2. Laser-Atom-Wechselwirkung

selwirkung mit der elektromagnetischen Welle und in einen Relaxationsanteil, welcher spontane oder stoßinduzierte Übergänge beinhaltet, zerlegt:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{int}} + \hat{H}_{\text{ww}} + \hat{H}_{\text{rel}}. \quad (1.14)$$

Die Lebensdauer τ_2 des oberen Niveaus und die Lebensdauer der Kohärenzterme τ_k (auch transversale Relaxationszeit genannt) ergeben sich dann zu

$$\tau_2 = \frac{i\hbar\rho_{22}}{[\hat{H}_{\text{rel}}, \rho_{mn}]_{22}} \quad \text{und} \quad \tau_k = -\frac{i\hbar\rho_{12}}{[\hat{H}_{\text{rel}}, \rho_{mn}]_{12}}. \quad (1.15)$$

Die transversale Relaxationsrate ist eine Funktion der inkohärenten Wechselwirkung des Atoms mit seiner Umgebung. Eine allgemeine Formulierung des Relaxationsanteils \hat{H}_{rel} und die Berechnung der Lebensdauer der Nicht-Diagonal-Elemente ist äußerst komplex. Die Phase ϕ in Gl. 1.12 reagiert jedoch wesentlich empfindlicher auf äußere Einflüsse als die Besetzungsdichte – die Relaxationslebensdauer ist demzufolge meist deutlich kürzer als die Strahlungslebensdauern.

Die Strahlungslebensdauer ergibt sich aus einer quantenelektrodynamischen Rechnung für einen stoßfreien Relaxationsanteil \hat{H}_{rel} , der die Wechselwirkung mit dem Vakuumfeld beschreibt. Die so berechneten Lebensdauern und Übergangswahrscheinlichkeiten sind im Vergleich zu berechneten Energieniveaus wesentlich anfälliger gegenüber Abweichungen in den Wellenfunktionen. Verlässliche Daten mit Unsicherheiten im Prozentbereich existieren daher vor allem für einfache Elektronenkonfigurationen, wie sie z. B. in Alkalimetallen vorliegen. Zur Interpretation spektroskopischer Daten sind präzise atomare Übergangswahrscheinlichkeiten von großer Wichtigkeit. Deren experimentelle Bestimmung ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht durch Rechnungen zu ersetzen.

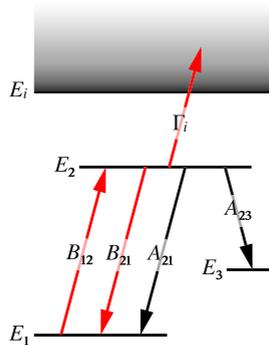


Abbildung 1.2.: Vereinfachtes Termschema eines Drei-Niveau-Atoms

1.3. Das Ratenmodell

Die Ratengleichungen beschreiben die Zeitentwicklung eines Drei-Niveau-Systems im Falle einer breitbandigen, aber selektiven Anregung des oberen Zustandes, wenn Stöße und Kohärenzeffekte vernachlässigbar sind. Das Termschema eines realen Atoms mag in der Praxis sehr viel komplizierter aussehen. Durch die Laseranregung lässt es sich jedoch auf ein solches Drei-Niveau-System reduzieren.

Der untere Zustand $|1\rangle$ bezeichnet den Grundzustand oder einen metastabilen Zustand und dient als Reservoir, aus dem die Besetzung transferiert wird (vgl. Abb. 1.2). Der obere Zustand $|2\rangle$ wird ausschließlich durch den Laser besetzt, Kaskaden und Stoßanregung werden in diesem einfachen Modell nicht berücksichtigt. Darüber hinaus muss der energetische Abstand zwischen dem oberen Niveau und der Ionisationsenergie größer sein als die Photonenenergie. Sonst kann es zur Photoionisation der Atome kommen, welche die Zeitentwicklung der

Besetzungsdichten während der Laseranregung ändert und damit die Information über das Verzweigungsverhältnis zerstört. Die Besetzungsdichte N_3 schließlich bezeichnet die Summe der Besetzungen in allen weiteren langlebigen Zuständen $|3\rangle$, in die das obere Niveau zerfallen kann. Auch hier darf es zu keinen weiteren kaskadenartigen Übergängen in andere Zustände kommen. Das Ratengleichungssystem ist dann von der Form:

$$\begin{aligned}\frac{dN_1(t)}{dt} &= -B_{12}\rho_v(t)N_1(t) + (A_{21} + B_{21}\rho_v(t))N_2(t), \\ \frac{dN_2(t)}{dt} &= +B_{12}\rho_v(t)N_1(t) - (A_{23} + A_{21} + B_{21}\rho_v(t))N_2(t), \\ \frac{dN_3(t)}{dt} &= +A_{23}N_2(t).\end{aligned}\quad (1.16)$$

Die einfachste Lösung der Ratengleichungen ergibt sich für eine δ -förmige Anregung zum Zeitpunkt t_0 . In der Praxis bedeutet dies, dass innerhalb eines Zeitraumes, der kürzer ist als die Zeitauflösung der Messung, ein Teil der Besetzung in das obere Niveau transferiert wird. Nach dem Abklingen des Laserpulses verschwinden alle Terme, die proportional zur spektralen Strahldichte ρ_v sind. Alle Zeitableitungen, und damit auch das aus spontanen Zerfällen resultierende Fluoreszenzsignal, sind proportional zur Besetzungsdichte im oberen Zustand $N_2(t)$. Deswegen Zeitentwicklung ergibt sich über die zweite Differentialgleichung direkt als exponentielle Abnahme der Besetzung:

$$N_2(t) = N_2^{\max} \theta(t - t_0) e^{-(t-t_0)/\tau}. \quad (1.17)$$

Im Falle einer schwachen Anregung gilt $N_2, N_3 \ll N_1$ und die zweiten Summanden in Gl. 1.16 können während der Wechselwirkung mit dem Anregungslaser vernachlässigt werden. Die Besetzungsdichteän-

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

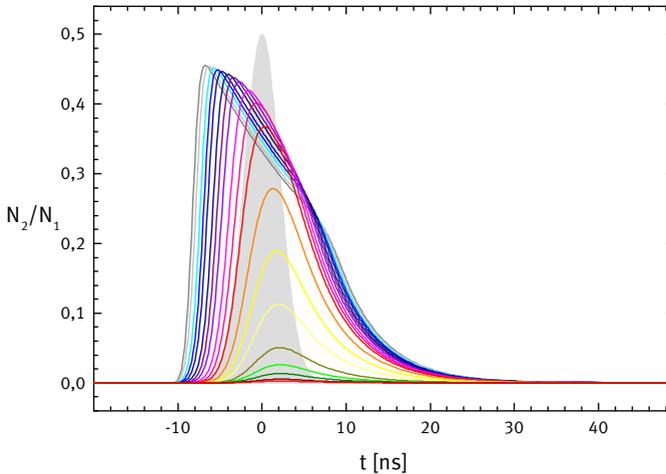


Abbildung 1.3.: Sättigungsverhalten bei einem zeitlich Gauss-förmigen Puls variierender Energie

derungen während der Laseranregung sind nur noch proportional zur Teilchendichte im Grundzustand N_1 , welche im Wesentlichen konstant bleibt. Die Besetzungsänderungen verhalten sich linear zur Intensität des anregenden Lasers. Damit lässt sich der zeitliche Verlauf der Besetzungsdichten auch für ein beliebiges zeitliches Profil des Lasers $\rho_v(t)$ als gewichtete Superposition von δ -förmigen Anregungen berechnen. Das resultierende Fluoreszenzsignal ist eine Faltung des zeitlichen Laserpulsprofils mit einer beschnittenen Exponentialfunktion.

Abbildung 1.3 zeigt numerische Lösungen des Ratengleichungssystems für einen konstanten Satz atomarer Daten und einen Gauss-förmigen Laserpuls mit sukzessiv zunehmender Pulsenergie. Die Maximalintensität des Gauss-Pulses wurde dabei über fünf Größenordnungen verändert. Für geringe Intensitäten gilt die erwähnte Näherung der schwa-

chen Anregung. Die Besetzungsdichte im oberen Zustand nimmt zunächst proportional mit Erhöhung der Pulsenergie zu. Dann wird jedoch allmählich das untere Niveau merklich entleert. Ein Sättigungseffekt stellt sich ein und die Besetzungsdichte strebt einem endlichen Grenzwert zu. Gleichzeitig ist eine Änderung in der Form des Fluoreszenzsignals zu beobachten. Die steigende Signalfanke des Fluoreszenzsignals scheint schon vor dem Anschwingen des Lasers zu beginnen. Dies ist jedoch ein Trugschluss, da bei den dazugehörigen hohen Pulsenergien auch zu diesen frühen Zeitpunkten schon eine ausreichende spektrale Strahldichte für einen Transfer der Besetzungsdichte besteht. Gleichzeitig erscheint während der Laseranregung eine in vielen Fällen geneigte Abflachung des Maximums.

Letzteres kann am besten verstanden werden, indem das Ratengleichungssystem für einen kastenförmigen Laserpuls analytisch gelöst wird. Der Laser zeigt für den Zeitraum $0 \leq t \leq t_0$ eine nichtverschwindende spektrale Strahldichte (in Abb. 1.4 grau hinterlegter Zeitbereich). Besetzungsdichte und Fluoreszenzsignal werden dann durch drei Exponentialfunktionen bzw. drei Lebensdauern beschrieben:

$$N_2(t) = \begin{cases} 0 & t < 0 \\ N_1(0) \frac{g_2}{g_1 + g_2} \frac{S}{K} \left[e^{-t/\tau_-} - e^{-t/\tau_+} \right] & 0 \leq t \leq t_0 \\ N_2(t_0) e^{-t/\tau_2} & t > t_0 \end{cases} \quad (1.18)$$

Dabei wurde mit der Größe S der Sättigungsparameter eingeführt, welcher durch das Verhältnis von Pump- und Relaxationsraten gegeben ist [Schnabel und Kock 2000]:

$$S = \frac{g_1 + g_2}{g_1} B_{21} \rho_\nu(t) \tau_2 = \frac{g_1 + g_2}{g_1} \frac{c^3}{8\pi h \nu_{21}^3} \rho_\nu(t) R_{21}. \quad (1.19)$$

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

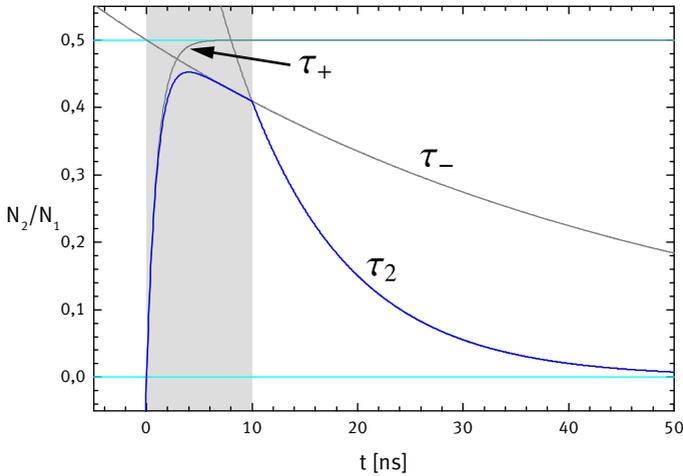


Abbildung 1.4.: Zeitliches, partiell gesättigtes Fluoreszenzsignal bei Anregung durch einen Rechteck-Puls

Sättigung tritt also instantan bei einer ausreichenden spektralen Strahlendichte auf und nicht erst, wenn die Besetzung im unteren Niveau bereits merklich abgenommen hat. Die Hilfsgröße K hat den Wert

$$K = \sqrt{(1 + S)^2 - S \frac{4g_2}{g_1 + g_2} (1 - R_{21})}. \quad (1.20)$$

Die Lebensdauern τ_+ und τ_- sind gegeben durch

$$\tau_{\pm} = \frac{2\tau_2}{1 + S \pm K} \quad \text{mit} \quad 0 < \tau_+ < \infty, \quad \tau_2 < \tau_- < \infty. \quad (1.21)$$

Die Lebensdauer τ_2 ist die schon bekannte natürliche Lebensdauer des oberen Niveaus. Die Lebensdauer τ_+ ist ein Maß für die Zeitspanne, in welcher ein stationärer Zustand (beim Fehlen weiterer Zerfallskanäle)

erreicht wird. Die dritte Lebensdauer τ_- ist für große Sättigungsparameter S durch die statistischen Gewichte g_1, g_2 und das Verzweigungsverhältnis R_{21} gegeben:

$$\lim_{S \rightarrow \infty} \tau_- = \tau_2 \frac{g_1 + g_2}{g_2} \frac{1}{1 - R_{21}}. \quad (1.22)$$

Sie beschreibt quantitativ die geneigte Abflachung des Maximums als Überpumpeffekt in dritte Niveaus. Das durch den Laserpuls gepumpte Zwei-Niveau-System verliert dadurch allmählich an Besetzung. Die Form des Signals wird also nicht nur durch die Intensität des Lasers, sondern auch über das Verzweigungsverhältnis beeinflusst.

Zusammenfassend können folgende Aussagen gemacht werden:

- Das Auftreten von Sättigung führt zu einer Änderung der Form und Amplitude des Fluoreszenzsignals.
- Wird vom ungesättigten Fall ausgegangen, sind systematische Fehler bei der Bestimmung von Besetzungsdichten und Lebensdauern die Folge.
- Die Einbeziehung von Sättigungseffekten durch Anpassung eines Signals, welches die Lösung der Ratengleichungen ist, ermöglicht die gleichzeitige Messung von Lebensdauer, Besetzungsdichte und Verzweigungsverhältnis des gepumpten Übergangs.

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

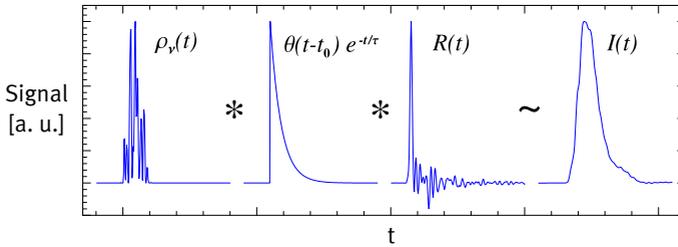


Abbildung 1.5.: Das gemessene Fluoreszenzsignal im linearen Fall als Faltung von zeitlichem Laserpulsprofil, Exponentialfunktion und Apparatefunktion des Detektors

1.4. Vom Ratengleichungssystem zum Mess-Signal

Die bisher behandelten Ratengleichungen beschreiben das Zeitverhalten von Besetzungsdichten in einem Volumenelement mit gegebener spektraler Strahldichte ρ_ν , der Teilchendichte $N=N_1(t=0)$ und den Konstanten des atomaren Übergangs.

Im Experiment entsteht ein Fluoreszenzsignal in einem Raumgebiet V mit möglicherweise inhomogener Teilchendichte $N_1(\mathbf{r})$ und Ausleuchtung $\rho_i(\mathbf{r})$. Beide Größen können auch von Puls zu Puls variieren. Das Fluoreszenzlicht wird durch ein Linsensystem mit einer eventuell ortsabhängigen Vignettierung $T(\mathbf{r})$ auf einen Detektor abgebildet, der auf ein zeitlich δ -förmiges Signal mit seiner Apparatefunktion $R(t)$ reagiert. Das Gesamtsignal ergibt sich somit bei einer Mittelung über i Pulse zu

$$I(t) \sim R(t) * \sum_i \int_V N_2(N_1(\mathbf{r}, i), \rho_\nu(\mathbf{r}, t, i), t) T(\mathbf{r}) d\mathbf{r}^3. \quad (1.23)$$

1.4. Vom Ratengleichungssystem zum Mess-Signal

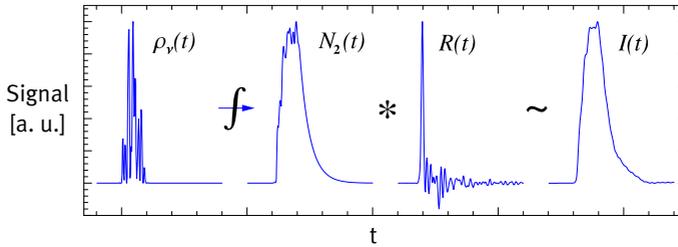


Abbildung 1.6.: Das gemessene Fluoreszenzsignal im gesättigten Fall als Faltung der Apparatefunktion des Detektors mit der nichtlinearen Antwort auf ein zeitliches Laserpulsprofil

Für große Messvolumina können zusätzlich Retardierungseffekte durch unterschiedliche Laufzeiten zwischen dem Ort der Entstehung des Fluoreszenzlichtes und dem Detektor auftreten.

In den im Folgenden vorgestellten Experimenten ist das abgebildete Volumen klein. Die Intensitäts-Transferfunktion $T(\mathbf{r})$ kann in diesem Raumgebiet, ebenso wie $N_1(\mathbf{r})$ als konstant angenommen werden. Je nach verwendeter Teilchenquelle ist die Besetzungsdichte im unteren Zustand von Puls zu Puls gut reproduzierbar. Die Separabilität des Lasers, die in Abschnitt 3.4.2 untersucht wird, ermöglicht eine Darstellung des Gesamtsignals als (vgl. Gl. 3.1)

$$I(t) \sim R(t) * \sum_i \int_V N_2(N_1(i), f_i(t, i), t) f_r(\mathbf{r}) d\mathbf{r}^3. \quad (1.24)$$

In den Abbildungen 1.5 und 1.6 ist die Entstehung des Fluoreszenzsignals, ausgehend von einem gemessenen zeitlichen Laserpuls, für den linearen und den gesättigten Fall dargestellt. Wie zu erwarten, beeinflussen Sättigungseffekte die Form des Fluoreszenzsignals nur zu Zeitpunkten während der Anregung.

1.5. Unzulässige Vereinfachungen der Ratengleichungen

Die Bestimmung von Teilchendichten und atomaren Daten mit Hilfe der laserinduzierten Fluoreszenz erfolgt durch Anpassung einer theoretischen Kurve an die Messdaten. Gehen in diese theoretische Kurve Vereinfachungen der Ratengleichungen ein, die nicht durch das Experiment gerechtfertigt sind, hat dies systematische Fehler zur Folge, auf die in diesem Abschnitt anhand von numerischen Simulationen eingegangen werden soll.

Alle im diesem Abschnitt gerechneten Simulationen wurden mit zeitlich kastenförmigen Anregungspulsen berechnet. Im Experiment sieht das zeitliche Pulsprofil meist völlig anders aus (siehe Abschnitt 3.4.2). Wird mit realen Laserpulsen gerechnet, erhöht sich die Anzahl der freien Parameter beträchtlich und erschwert so die Formulierung allgemeiner Vorhersagen. Die berechneten Abweichungen sind daher nur als Anhaltspunkt für die Größenordnung der zu erwartenden Fehler anzusehen.

1.5.1. Fehlanpassung durch Annahme von Linearität

Die üblichste Vereinfachung der Ratengleichungen ist die Annahme des linearen Falls. Eine Überprüfung findet im Experiment oft dadurch statt, dass untersucht wird, inwiefern die Amplitude des Fluoreszenzsignals auf eine Änderung der Pulsenergie des Anregungslasers reagiert. Intuitiv geht man davon aus, dass für einen näherungsweise linearen Zusammenhang der Einfluss der Sättigung vernachlässigbar ist.

Berechnet man andererseits den zu erwartenden Sättigungsparameter mittels Gl. 1.19, erhält man für die typischen spektralen Breiten und

1.5. Unzulässige Vereinfachungen der Ratengleichungen

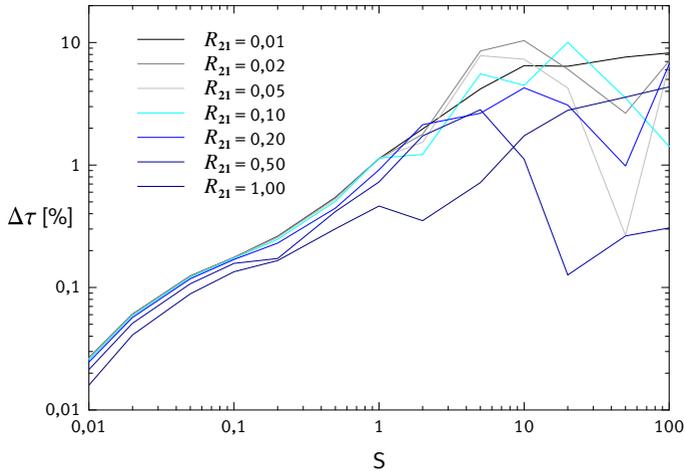


Abbildung 1.7.: Relative Fehlanpassung $\Delta\tau$ der Lebensdauer durch Vernachlässigen von Sättigungseffekten

Pulsauern von gepulsten Farbstofflasersystemen auch schon für sehr kleine Pulsenergien im Mikrojoule-Bereich Sättigungsparameter, welche nicht mehr klein gegen eins sind. Dennoch ist auch für Sättigungsgrade von etwa zehn noch eine fast lineare Zunahme der Gesamtamplitude zu beobachten, da für ein räumlich inhomogenes Laserprofil ein hoher Anteil des Gesamtsignals aus Bereichen geringer Sättigung stammt.

In Abbildung 1.7 ist der Fehler in der aus der Messkurve bestimmten Lebensdauer zu sehen, der entsteht, wenn ungesättigte theoretische Kurven an gesättigte Signale angepasst werden. Für die hier dargestellten Rechnungen haben Lebensdauer und Laserpulslänge den gleichen Wert. Das anzupassende gesättigte Signal wurde für verschiedene Verzweigungsverhältnisse des gepumpten Übergangs berechnet.

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

Für moderate Sättigungsgrade ist der zu erwartende Fehler proportional zum Sättigungsgrad. Für hohe Sättigungsgrade ändert sich die Form des anzupassenden Signals kaum noch (vgl. Abb. 1.3). Dass der Fehler der angepassten Lebensdauer dennoch in weiten Bereichen schwankt, ist eine Folge der schlechten Anpassbarkeit stark gesättigter Signale durch ein lineares Modell.

Die relativen Fehler der angepassten Lebensdauern erhöhen sich, wenn die Dauer des Anregungspulses im Verhältnis zur Lebensdauer vergrößert wird.

1.5.2. Energieschwankungen und Intensitätsverteilung

Für eine inhomogene Ausleuchtung des Anregungsvolumens ist das Gesamtsignal aus Teilsignalen verschiedener Sättigungsgrade zusammengesetzt. Jedes einzelne Teilsignal ist während der Laseranregung entsprechend Gl. 1.18 durch die Summe zweier Exponentialfunktionen gegeben. Das Gesamtsignal ist daher eine Summe aus Exponentialfunktionen, die im Bereich der Laseranregung je nach Sättigungsgrad verschiedene Zerfallskonstanten τ_+ , τ_- haben. Eine Anpassung durch ein gesättigtes Signal mit nur einem Satz dieser Zerfallskonstanten kann somit nicht zu einer perfekten Übereinstimmung führen. Die angepassten Werte werden systematisch verfälscht.

Die Anteile der Teilvolumina mit ihren jeweiligen Sättigungsgraden am Gesamtsignal lassen sich durch ein Histogramm beschreiben. Dies kann durch Messung des räumlichen Laserprofils bestimmt und in die Auswertung einbezogen werden.

Eine ähnliche Verfälschung entsteht, wenn das Mess-Signal aus einer Mittelung über mehrere Pulse hervorgeht und der Anregungslaser räumlich homogen ist, jedoch in der Pulsenergie schwankt. Auch hier ist, solange die zeitliche Pulsform reproduzierbar ist, die Einbeziehung der

1.5. Unzulässige Vereinfachungen der Ratengleichungen

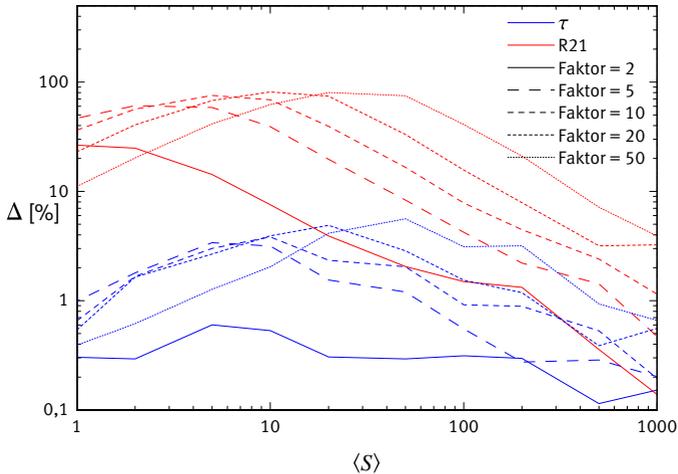


Abbildung 1.8.: Relative Fehlanpassung Δ von Lebensdauer und Verzweigungsverhältnis für räumliche Intensitätsprofile und Pulsenergie-Fluktuationen

verschiedenen resultierenden Sättigungsgrade und ihrer Anteile am Gesamtsignal in Form eines Histogramms möglich.

Wird ein durch zwei Sättigungsparameter charakterisiertes Signal ohne Berücksichtigung des zweistufigen Histogramms angepasst, ergeben sich systematisch verschobene Lebensdauern und Verzweigungsverhältnisse wie in Abb. 1.8 dargestellt. Die verschiedenen Linienarten kodieren das Verhältnis der Sättigungsparameter in den Raumbereichen bzw. das Verhältnis der Pulsenergien. Auf der x -Achse ist das arithmetische Mittel der beiden verwendeten Sättigungsparameter $\langle S \rangle$ aufgetragen. Für die Lebensdauer ergibt sich ein maximaler Anpassungsfehler bei Sättigungsparametern von etwa 30. Die Ursache hierfür ist, dass der Einfluss der Sättigung auf die Form des Fluoreszenzsignals für mittlere Sättigungsparameter am größten ist (vgl. Abb. 1.3).

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

Für das Verzweigungsverhältnis scheint es ebenfalls einen Bereich maximaler Fehleranfälligkeit zu geben. Dies ist jedoch ein Artefakt, welches durch die Anpassung an unverrauschte Daten entsteht. Das Verzweigungsverhältnis ist in der Messkurve erst für merkliche Sättigungsparameter eine definierte Größe. Eine Bestimmung von R_{21} aus schwach gesättigten Signalen ist nicht möglich.

Für die Bestimmung von Verzweigungsverhältnissen ist die Berücksichtigung eines Histogramms unbedingte Voraussetzung. Selbst bei Sättigungsparametern mit gemittelten Werten von etwa 1000 liegen die systematischen Fehler im Prozentbereich, wenn der Einfluss verschiedener Sättigungen vernachlässigt wird.

1.5.3. Schwankende zeitliche Pulsform

Eine weitere übliche Vereinfachung der Ratengleichungen ist die Annahme, dass die zeitlichen Verläufe der einzelnen anregenden Laserpulse durch ihren über mehrere Pulse gemittelten Verlauf gegeben sind. Dann ist das gemittelte Fluoreszenzsignal die Antwort auf den gemittelten zeitlichen Intensitätsverlauf des Anregungspulses. Ob diese Annahme gerechtfertigt ist, hängt jedoch von den spezifischen Eigenschaften des verwendeten Lasersystems ab (siehe Abschnitt 3.4.2).

Um einen Eindruck von den resultierenden Anpassungsfehlern in Lebensdauer und Verzweigungsverhältnis zu bekommen, wenn das zeitliche Verhalten des Laserpulses nicht reproduzierbar ist, wurde der Anregungslaser durch einen zweistufigen Puls modelliert (siehe Abb. 1.9 unten). Die beiden Intensitätsstufen unterscheiden sich auch hier wieder durch einen Faktor, der im Bereich zwischen zwei und zwanzig variiert wurde. Alternierend werden nun die beiden dargestellten Laserpulse eingestrahlt, so dass die Anregung abwechselnd zuerst durch den stärker oder den schwächer sättigenden Teilpuls erfolgt. Im Mit-

1.5. Unzulässige Vereinfachungen der Ratengleichungen

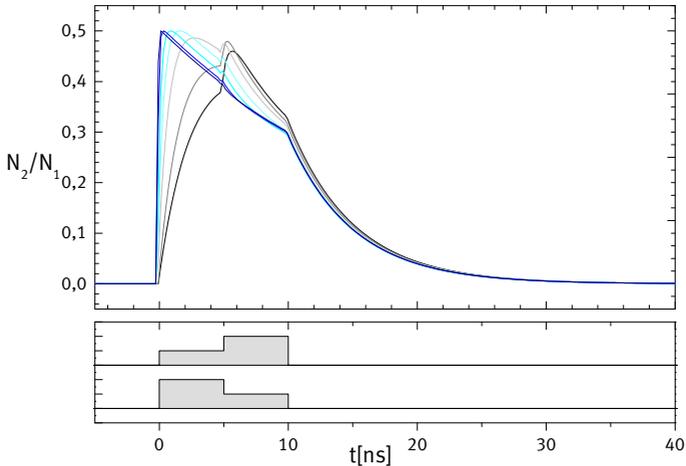


Abbildung 1.9.: Zeitverhalten des Fluoreszenzsignals für alternierende zweistufige Anregungspulse

tel ergibt sich für den zeitlichen Intensitätsverlauf des Lasers wieder ein einfaches kastenförmiges Profil.

Aufgrund der Nichtlinearität verbleibt im Fluoreszenzsignal trotz Mittelung eine Sprungstelle zu jenem Zeitpunkt, an dem auch die Intensität des Anregungslasers wechselt (siehe Abb. 1.9 oben, berechnet für verschiedene Sättigungsgrade). Diese Formänderung führt ebenfalls wieder zu einer Verschiebung der angepassten Größen.

Die Fehleranfälligkeit der aus den Kurven erhaltenen Lebensdauern auf Fluktuationen ist wieder für mittlere Sättigungsgrade am größten, da hier der Einfluss des Sättigungsparameters auf die Signalform ein Maximum zeigt (siehe Abb. 1.10). Für durchaus realistische Faktoren im Bereich von fünf bis zehn kann der systematische Fehler im Bereich einiger Prozent liegen.

Kapitel 1. Grundlagen der partiell gesättigten Fluoreszenz

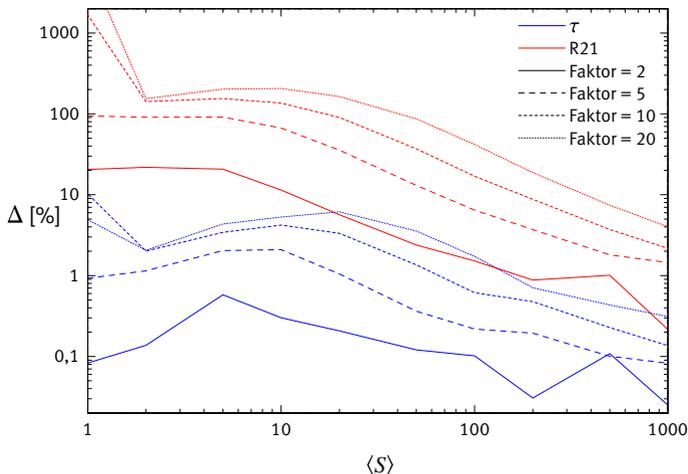


Abbildung 1.10.: Relative Fehlanpassung Δ von Lebensdauer und Verzweigungsverhältnis als Folge der Pulsfluktuationen für einen zweistufigen Puls

Die Fehler der angepassten Verzweigungsverhältnisse sind, wie auch bei der Untersuchung des Einflusses von Energieschwankungen und räumlichem Profil, durchweg höher. Der Grund hierfür ist, dass nur ein kleiner Teil der Kurve, nämlich derjenige während der Laseranregung, Informationen über das Verzweigungsverhältnis enthält. Auch hier liegt der systematische Fehler bei Nichtbeachtung der schwankenden Pulsform bis zu sehr hohen Sättigungsgraden noch im Prozentbereich. Der Anpassungsfehler durch nichtreproduzierbare Anregungspulse kann durch die Wahl des Lasersystems vermieden werden. Aufgrund der rasanten Entwicklung in Datenaufnahme und -verarbeitung scheint allerdings eine Berücksichtigung der Pulsfluktuationen ökonomischer. Darüber hinaus ist die Einzelpulsauswertung auch zur Diagnostik von Plasmafluktuationen im Sub-Sekundenbereich von Interesse.

Kapitel 2.

Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

2.1. Einleitung

Die Physik mit Ionenfallen hat seit der Entwicklung der Paul-Falle in den späten 50er Jahren eine Vielzahl von neuen Experimenten in Atomphysik, Spektroskopie und Quantenoptik inspiriert oder erst ermöglicht [Holzscheiter 1995].

Aufbauend auf dem bereits durch [Paul und Steinwedel 1953] vorgestellten Massenfiter ermöglichten Ionenfallen zunächst vor allem große Fortschritte in der empfindlichen und hochauflösenden Massenspektrometrie. Die Wechselwirkungszeit zwischen Ion und Quadrupolfeld, welche die Massenauflösung begrenzt, war nun durch die Speicherzeit gegeben und konnte somit wesentlich verlängert werden [Fischer 1959, Dawson und Whetten 1969].

Eine weitere Verlängerung der Speicherzeit und einen damit verbundenen Entwicklungsschub brachte die Realisierung der 1975 vorgeschlagenen Verfahren zur Kühlung von Atomen mittels Laserlichts [Hänsch und Schawlow 1975, Wineland und Dehmelt 1975].

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

Der bei Absorption und anschließender Reemission auftretende Netto-Impulsübertrag kann zu einer Verringerung der kinetischen Energie genutzt werden, wenn ein Atom Laserfeldern ausgesetzt wird, welche zu einer Resonanz rotverstimmt sind [Ertmer u. a. 1997]. So konnte nicht nur die Speicherzeit deutlich vergrößert werden, die Dopplerbreite der Spektrallinien verringerte sich gleichzeitig um mehrere Größenordnungen und ermöglichte eine Auflösung der aus der periodischen Ionenbewegung resultierenden Seitenbänder im Absorptions- bzw. Fluoreszenzsignal [Itano u. a. 1988a].

Die dadurch mögliche Seitenbandkühlung erlaubt es, die Teilchenbewegung auf den Schwingungsgrundzustand zu kühlen und die Ortsunsicherheit so auf Bereiche unterhalb der Laserwellenlänge zu reduzieren (Lamb-Dicke-Regime). Infolgedessen konnten Phasenübergänge mit der Bildung von Wigner-Kristallen beobachtet werden; auch Messungen an einzelnen, über Wochen gespeicherten Ionen waren nun möglich. So ließ sich auch zeigen, dass der Übergang zwischen zwei Niveaus nicht als kontinuierliche Entwicklung durch die Zeitentwicklungsoperatoren der Quantenmechanik beschrieben werden kann, sondern in diskontinuierlicher Weise, in Form sogenannter *quantum-jumps*, stattfindet [Sauter u. a. 1988]. Die Resonanzfluoreszenz eines einzelnen Ions kann dabei nichtklassische Effekte aufweisen, wie eine Sub-Poisson-Statistik oder das *Antibunching* der Photonen [Diedrich und Walther 1987, Itano u. a. 1988b].

Die lange Wechselwirkungszeit war es ebenfalls, die in den 80er Jahren zu Realisierungen von optischen und Mikrowellen-Frequenznormalen auf der Basis von gespeicherten Ionen führte [Bollinger u. a. 1985, Fisk 1997]. Dabei werden die langen Lebensdauern metastabiler Niveaus und die infolgedessen geringen relativen spektralen Breiten $\Delta\nu/\nu$ von Zwei-Photonen-Resonanzen ausgenutzt. Die präzise Messung von op-

tischen Frequenzen konnte in den letzten Jahren durch die Verwendung von Frequenzkämmen wesentlich vereinfacht werden [Udem u. a. 2002]. Zukünftige Ionenfallen-Frequenznormale könnten relative Unsicherheiten im Bereich von 10^{-18} erreichen [Becker u. a. 2002].

Eine weitere spektroskopische Messung, die durch Ionenfallen erst in dieser Qualität möglich wurde, war die Messung der anomalen g -Faktoren von Elektron und Positron durch Vergleich von Präzessions- und Zyklotronfrequenz mit einer relativen Ungenauigkeit von 10^{-14} [Dehmelt 1988].

Ein schon seit Ende der 70er Jahre angestrebtes Ziel ist die Speicherung von kaltem Antiwasserstoff in verschachtelten Penningfallen; dort könnten mittels hochauflösender Laserspektroskopie präzise Tests des Standardmodells, insbesondere des CPT-Theorems durchgeführt werden [Walz u. a. 2000]. Die Reduktion der kinetischen Energie der in Speicherringen erzeugten schnellen Antiprotonen und Positronen um zwölf Größenordnungen erfordert eine Vielzahl von Detaillösungen, ist aber mittlerweile sehr weit fortgeschritten.

Die aktuelle Forschung mit Ionenfallen konzentriert sich vor allem auf offene Fragestellungen der Quantenoptik, wie z. B. die experimentelle Realisierung einer „atomaren Schrödinger-Katze“ und Untersuchungen zur Dekohärenz [Turchette u. a. 2000], sowie damit verbundene Aspekte der Quanteninformationstechnologie [Briegel u. a. 1999].

Die vielfältigen und fruchtbaren Anwendungen und Erfolge der Ionenfallen führten zu einer Würdigung durch den Nobelpreis für W. Paul, H. G. Dehmelt und N. Ramsey im Jahre 1989. Im folgenden Kapitel sollen die zur Lebensdauerermessung notwendigen Grundlagen der linearen Paul-Falle erläutert werden. Für eine allgemeine Einführung werden Monographien wie [Ghosh 1995, Dawson 1976] empfohlen.

2.2. Transversale Stabilisierung: Die Speicherung von Ionen in einem Quadrupolfeld

Die massenselektive Speicherung soll, dem Experiment entsprechend, vom elektrischen Quadrupolfeld ausgehend beschrieben werden. An dieser Stelle sei jedoch darauf hingewiesen, dass die resultierende Speicherwirkung nicht auf das Vierpolfeld beschränkt ist. Entsprechende Rechnungen für Felder höherer Multipolordnung werden bei [Friedman u. a. 1982, Szabo 1986] durchgeführt, experimentelle Umsetzungen finden sich z. B. bei der Konstruktion von Zeitnormalen [Prestage u. a. 2001] oder der Prozessanalyse [Gerlich 1992].

Das Quadrupolfeld lautet in seiner einfachsten Form

$$\phi(\mathbf{r}) = \alpha_x x^2 + \alpha_y y^2 + \alpha_z z^2. \quad (2.1)$$

Die Energie eines Teilchens der Ladung q ist $q\phi(r)$ und hat am Ursprung ein Minimum, wenn gilt $q\alpha_i > 0$ für $i \in \{x, y, z\}$. Da das Potential im Vakuum jedoch die Poisson-Gleichung erfüllen muss, gilt

$$\Delta\phi(\mathbf{r}) = \sum_{i \in \{x, y, z\}} \alpha_i = -\frac{4\pi}{\epsilon_0} \rho = 0. \quad (2.2)$$

Das hat zur Folge, dass jeder Punkt im Vakuum ein Sattelpunkt des Potentials ist – mit einem reinen elektrostatischen Feld ist daher die Existenz von Potentialminima im Vakuum ausgeschlossen (Earnshaw-Theorem). Die zweidimensionale Darstellung ist dementsprechend durch ein Sattelpotential gegeben, die Äquipotentiallinien sind hyperbelförmig (vgl. Abb. 2.1).

2.2. Die Speicherung von Ionen in einem Quadrupolfeld

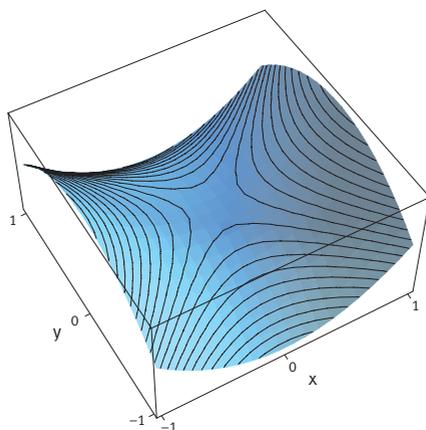


Abbildung 2.1.: Sattelpotential als elementare Lösung der Poisson-Gleichung

Durch die Gültigkeit der Laplace-Gleichung sind die Koeffizienten α_i linear abhängig. Das Potential lässt sich durch zwei freie Parameter darstellen, von denen der erste Parameter α_0 als Amplitude und der zweite γ als Geometrieparameter identifiziert werden kann. Wird willkürlich die x -Achse als Richtung nichtverschwindender Potentialkrümmung gewählt, lassen sich die Koeffizienten umschreiben zu

$$\alpha_x = \alpha_0, \quad \alpha_y = \gamma\alpha_0, \quad \alpha_z = -(1 + \gamma)\alpha_0. \quad (2.3)$$

Dabei sind zwei Geometrien von besonderer Bedeutung:

Die Wahl $\gamma = 1$ führt auf

$$\alpha_x = \alpha_y = -2\alpha_z \quad \Leftrightarrow \quad \phi(\mathbf{r}) \sim x^2 + y^2 - 2z^2 \quad (2.4)$$

und beschreibt ein zur z -Achse rotationssymmetrisches Potential.

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

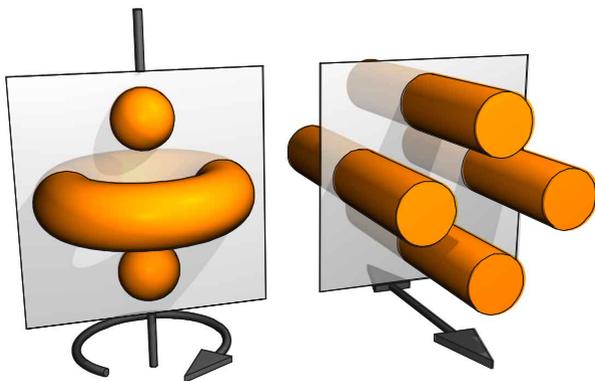


Abbildung 2.2.: Konstruktion der Elektrodenform von linearer und hyperbolischer Paul-Falle aus Rotation und Translation von Äquipotentialkurven

Die Äquipotentialflächen sind Rotationshyperboloide und der Quadrupol besteht aus zwei Kappen- und einer Ringelektrode. Diese Elektrodenkonfiguration kommt in der hyperbolischen Paul-Falle und in der Penning-Falle zur Anwendung.

Für $\gamma = -1$ hingegen erhält man

$$\alpha_x = -\alpha_y, \quad \alpha_z = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \phi(\mathbf{r}) \sim x^2 - y^2 \quad (2.5)$$

und es ergibt sich eine von der z -Koordinate unabhängige Potentialverteilung. Die Äquipotentialflächen ergeben sich durch Translation der hyperbelförmigen Äquipotentiallinien aus der zweidimensionalen Darstellung. Die resultierende Elektrodenkonfiguration wird linearer Quadrupol genannt. Sie findet Anwendung als Quadrupol-Massenfilter, sowie mit zusätzlichen statischen Potentialen in z -Richtung als lineare Paul-Falle.

2.2. Die Speicherung von Ionen in einem Quadrupolfeld

Abbildung 2.2 zeigt schematisch, wie die beiden Fallentypen aus Rotation bzw. Translation zweidimensionaler Äquipotentiallinien hervorgehen. Die Äquipotentiallinien sind hier – wie im Experiment aus fertigungstechnischen Gründen oft üblich – durch Kreise approximiert worden. Dadurch weicht das Potential von der idealen Form ab und enthält Terme höherer Multipolordnung. Üblich ist ausserdem eine – in Abb. 2.2 aus Gründen der Anschaulichkeit fehlende – vertikale Stauchung im Falle der rotationssymmetrischen Geometrie.

Wird das Potential im linearen Quadrupol als Überlagerung von einem statischen und einem oszillierenden Anteil angesetzt, ist es gegeben durch

$$\phi(r) = [U - V \cos(\omega t)] \frac{x^2 - y^2}{r_0^2}. \quad (2.6)$$

Die daraus resultierenden Bewegungsgleichungen für die drei Raumrichtungen lauten für einfach geladene Teilchen

$$\begin{aligned} \ddot{x} &= -\frac{2e}{mr_0^2} [U - V \cos(\omega t)] x, \\ \ddot{y} &= \frac{2e}{mr_0^2} [U - V \cos(\omega t)] y, \\ \ddot{z} &= 0 \end{aligned} \quad (2.7)$$

und haben für die z -Koordinate die triviale Lösung $\dot{z} = \text{const.}$

Die Bewegungsgleichungen für die x - und y -Koordinate sind Mathieusche Differentialgleichungen und lauten in der normierten Form

$$\frac{d^2 \xi}{d\theta^2} + [a - 2q \cos(2\theta)] \cdot \xi = 0 \quad (2.8)$$

mit der normierten Zeit $\theta = \omega t/2$.

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

Die Konstanten a und q sind dem Gleich- bzw. Wechselspannungsanteil proportional:

$$a = a_x = -a_y = \frac{4eU}{m\omega^2 r_0^2}, \quad q = q_x = -q_y = \frac{2eV}{m\omega^2 r_0^2}. \quad (2.9)$$

Die Differentialgleichung lässt sich im Rahmen der Floquet-Theorie durch einen Fourier-Reihenansatz lösen, der die folgende Form hat:

$$\xi(\theta) = \alpha' e^{\pm i\beta\theta} \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_{2n} e^{2in\theta} + \alpha'' e^{\mp i\beta\theta} \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_{2n} e^{-2in\theta}. \quad (2.10)$$

Während die Koeffizienten α' und α'' durch die Anfangsbedingungen gegeben sind, sind die Größen C_{2n} und β ausschließlich durch die Stabilitätsparameter a und q festgelegt. Der charakteristische Exponent β besitzt folgende Stabilitätseigenschaften:

- Hat β einen nichtverschwindenden Imaginärteil, divergiert die Lösung für $\theta \rightarrow \pm\infty$ wegen der Exponentialfunktion in den Basislösungen.
- Falls β reell und nicht ganzzahlig ist, sind alle Lösungen beschränkte Oszillationen. Für ganzzahlige β gibt es für eine Anfangslösung eine periodische Lösung, alle anderen sind instabil. Diese β markieren die Grenzen der Stabilitätsbereiche.

Die rekursive Berechnung der C_{2n} sowie die Bestimmung des charakteristischen Exponenten ist in [Blanch 1972] angegeben, aber auch im Funktionsumfang gängiger Computer-Algebra-Systeme wie *MATHEMATICA*[®] enthalten.

Die Abhängigkeit des charakteristischen Exponenten β von den Stabilitätsparametern a und q ermöglicht die Darstellung zweier Stabilitätsdiagramme, zunächst für die beiden Raumrichtungen getrennt. Die

2.2. Die Speicherung von Ionen in einem Quadrupolfeld

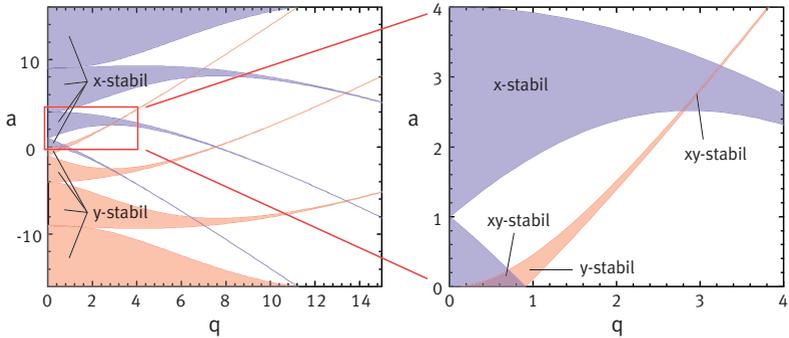


Abbildung 2.3.: Stabilitätsbereiche für x - und y -Koordinate

Stabilitätsparameter für die x - und y -Koordinate sind jedoch über Gleichung 2.9 verknüpft. Da der Parameter q den Wechselspannungsanteil beschreibt, bedeutet eine Umkehrung seines Vorzeichens nur eine Phasenänderung und hat keinen Einfluss auf den charakteristischen Exponenten. Daher ist das Diagramm zur a -Achse spiegelsymmetrisch. Das Stabilitätsdiagramm für die y -Koordinate geht aufgrund Gl. 2.9 aus dem für die x -Koordinate durch Spiegelung an der q -Achse hervor. Die Stabilität der Ionenbewegung im linearen Quadrupol lässt sich somit in einem einzigen, gemeinsamen Stabilitätsdiagramm darstellen. In diesem können Bereiche unterschieden werden, die für keine, für nur eine oder für beide Raumrichtungen stabil sind (siehe Abb. 2.3).

Der charakteristische Exponent β beschreibt das Verhältnis der Frequenzen der einhüllenden Kurve – im Folgenden Säkularfrequenz genannt – und der fundamentalen Frequenz der Fourier-Reihe, die der Frequenz der angelegten Wechselspannung entspricht. Für Experimente wird meist der „erste“ Stabilitätsbereich benutzt, für den $\beta_x, \beta_y \in [0, 1]$ gilt und der sich bei gegebener Frequenz mit den geringsten Spannungen realisieren lässt.

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

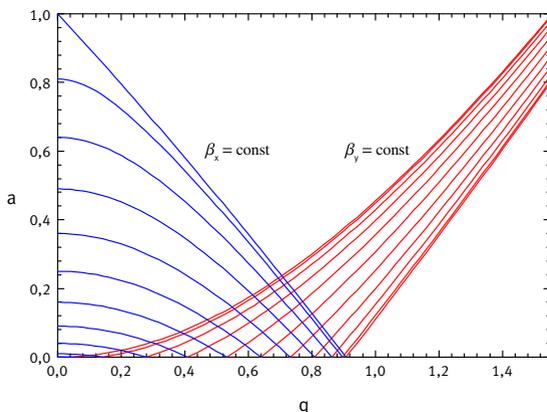


Abbildung 2.4.: Werte des charakteristischen Exponenten im ersten Stabilitätsbereich

In Abbildung 2.4 sind nochmals der erste Stabilitätsbereich und die Isolinien der charakteristischen Exponenten für beide Raumrichtungen abhängig von den beiden Stabilitätsparametern dargestellt. Ist $a_x = -a_y \neq 0$, sind die Säkularfrequenzen in den beiden Raumrichtungen verschieden, für $a = 0$ schneiden die beiden Kurvenscharen die q -Achse mit identischen Werten $\beta_x = \beta_y$ (im Diagramm von links nach rechts mit Werten zwischen 0 und 1, in Zehntel-Schritten aufsteigend).

Für einige dieser Iso- β -Linien kann experimentell eine sprunghafte Absenkung der erzielbaren Ionendichte beobachtet werden. Die Ursache hierfür sind nichtideale Elektrodenformen oder -positionen, welche das Potential verzerren [Dawson 1976]. Durch Multipolanteile höherer Ordnung kann es z. B. für rationale β und Linearkombinationen von β_x und β_y zu einer resonanten Anregung der Ionenbewegung kommen.

An dieser Stelle sei noch angemerkt, dass das Hinzufügen eines räumlich konstanten Terms $\phi_0(t)$ zum Potential die Kräfte unbeeinflusst lässt

2.2. Die Speicherung von Ionen in einem Quadrupolfeld

und so verschiedene Betriebsmodi von Ionenfallen ermöglicht. So ist z. B. das Anlegen symmetrischer Potentiale auf die verschiedenen Elektroden, das Anlegen einer positiven Gleichspannung an die eine, und der Wechselfspannung an die andere, oder auch das Nullsetzen einer Spannung möglich. Auf diese Weise können sogar Elektroden weggelassen werden. Hyperbolische Paul-Fallen, welche wahlweise nur aus den Kappenelektroden oder nur aus der Ringelektrode bestehen, ermöglichen so einfachere optische Zugänge. Die verschiedenen Beschaltungen und die Wahl der Bezugspunkte des Potentials sind auch die Ursache dafür, dass in der Literatur gelegentlich Stabilitätsparameter angegeben werden, deren Definition um Faktoren von 2 von Gl. 2.9 abweicht. Werden Teilchen von außen in die Falle eingespeist, kann der Beschaltungsmodus nicht mehr frei gewählt werden.

Die qualitative Richtigkeit der Mathieuschen Lösungen für die klassische Bewegungsgleichung konnte schon früh eindrucksvoll durch Langzeitphotographien von geladenen Aluminiumpartikeln bestätigt werden [Wuerker u. a. 1959]. Sind die Impulse und Oszillationsamplituden der Teilchen z. B. aufgrund von Laserkühlung klein und ihr Produkt vom Betrag mit dem Planckschen Wirkungsquantum vergleichbar, kann eine quantenmechanische Rechnung angewandt werden [Blatt u. a. 1995].

2.3. Die adiabatische Näherung

Obwohl im vorangegangenen Abschnitt die Bewegungsgleichung der Ionen im linearen Quadrupol gelöst wurde, ist es vor allem das Konzept des effektiven oder Quasipotentials, welches einen intuitiven Zugang zum Speicherverhalten der Paul-Falle ermöglicht. Darüber hinaus erlaubt es quantitative Aussagen über die Dichten und Speichereffizienzen in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der gespeicherten Ionen. Diese Aussagen sind dabei unabhängig vom Wert der initialen Phase des einzelnen Ions, welche im Experiment typischerweise nicht bekannt ist. Das Modell ist dabei auf den ersten Stabilitätsbereich, bzw. auf den Teil mit $\beta_{x,y} \ll 1$ beschränkt.

Man betrachte zunächst die eindimensionale Bewegung eines geladenen Teilchens in einem räumlich konstanten elektrischen Wechselfeld der Frequenz ω . Es erfährt die zeitabhängige Kraft

$$m\ddot{x} = eE_0 \cos(\omega t). \quad (2.11)$$

Ruht das Teilchen für $t = 0$, hat die Oszillationsbewegung die Form

$$x(t) = x_0 + x_A \cos(\omega t) \quad \text{mit} \quad x_A = \frac{eE_0}{m\omega^2}. \quad (2.12)$$

Die Kraft, gemittelt über eine Periode $T = 2\pi/\omega$ des Wechselfeldes, verschwindet:

$$\langle m\ddot{x} \rangle = - \int_0^T eE_0 \cos(\omega t) dt = 0. \quad (2.13)$$

Wird das Feld jedoch räumlich schwach inhomogen, so ist eine Linearisierung möglich. Es gilt:

$$\left| \frac{\partial E_0}{\partial x} x_A \right| \ll |E_0| \quad \text{und} \quad E(x) \approx E_0 + \frac{\partial E_0}{\partial x} x. \quad (2.14)$$

2.3. Die adiabatische Näherung

Das Zeitmittel der Kraft ist dann

$$\langle m\ddot{x} \rangle = - \int_0^T eE_0 \cos(\omega t) + e \frac{\partial E_0}{\partial x} x(t) \cos(\omega t) dt. \quad (2.15)$$

Der erste Term entspricht dem Ergebnis für den homogenen Fall und verschwindet. Für $x(t)$ im zweiten Integranden kann in guter Näherung das Ergebnis von Gl. 2.12 eingesetzt werden. Damit ergibt sich der Erwartungswert der Kraft zu

$$\langle m\ddot{x} \rangle = -e \frac{1}{2} \frac{eE_0}{m\omega^2} \frac{\partial E_0}{\partial x}. \quad (2.16)$$

Dies lässt sich für drei Dimensionen auch auffassen als

$$\langle m\ddot{\mathbf{r}} \rangle = -e\nabla\psi(\mathbf{r}) \quad \text{mit} \quad \psi(\mathbf{r}) = \frac{eE_0^2(\mathbf{r})}{4m\omega^2}, \quad (2.17)$$

wodurch das effektive, Pseudo- oder Quasipotential $\psi(\mathbf{r})$ eingeführt wird.

Berechnet man andererseits die mittlere Oszillationsenergie während einer Periode des Wechselfeldes, erhält man aus $\dot{x}(t) = x_A\omega \sin(\omega t)$ für die mittlere kinetische Energie

$$\left\langle \frac{m\dot{x}^2}{2} \right\rangle = \frac{m}{2} \int_0^T x_A^2 \omega^2 \sin^2(\omega t) dt = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}. \quad (2.18)$$

Die potentielle Energie eines Teilchens im Quasipotential ist also offensichtlich mit seiner lokalen, mittleren Oszillationsenergie identisch. Die gemittelte Kraft ist eine Feldgradienten-Kraft und führt geladene Teilchen in Regionen geringerer Wechselfeldamplituden. Die Teilchen in der Falle sind sogenannte *low field seeker*.

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

Im Gegensatz zum elektrostatischen Potential sind die Potentialverläufe des Quasipotentials nicht auf Lösungen der Laplace-Gleichung, die sogenannten harmonischen Funktionen, beschränkt. Das effektive Potential kann daher auch im Vakuum Extrema aufweisen. Die Elektrodenoberflächen bilden nicht notwendigerweise Äquipotentialflächen des effektiven Potentials.

Ist dem Wechselfeld ein statisches Feld überlagert, setzt sich das effektive Potential aus dem oben beschriebenen Oszillationsterm und dem statischen Potential zusammen. Für den idealen Quadrupol ist es gemäß Gl. 2.6 von der Form

$$\psi(\mathbf{r}) = \frac{eV^2}{m\omega^2 r_0^4} (x^2 + y^2) + \frac{U}{r_0^2} (x^2 - y^2). \quad (2.19)$$

Die Form des Quasipotentials ist gemäß Gl. 2.19 also noch immer die eines Quadrupols. Im idealen Quadrupol führt das Anlegen einer Gleichspannung zu verschiedenen Potentialkrümmungen in x - und y -Richtung und damit zu einer Aufspaltung der Säkularfrequenzen. Im nichtidealen Quadrupol mit zylindrischen Stäben liegt für $a \neq 0$ das Minimum des effektiven Potentials nicht mehr auf der Symmetrieachse. Stattdessen bilden sich für positive Ionen zwei Minima zwischen dem Ursprung und den negativ geladenen Stäben aus (vgl. Abb. 2.5). Die Ionen halten sich in beiden Fällen länger an Orten nichtverschwindender Wechselfeldamplitude auf, die Massenauflösung verbessert sich. Abb. 2.5 zeigt qualitativ das effektive Potential für die im Experiment verwendete Geometrie und einen nichtverschwindenden Gleichspannungsanteil. Nahe der Symmetrieachse sind zwei Minima zu erkennen. Bemerkenswert ist auch die Existenz von Minima außerhalb der von den Stabelektroden umschlossenen Fläche.

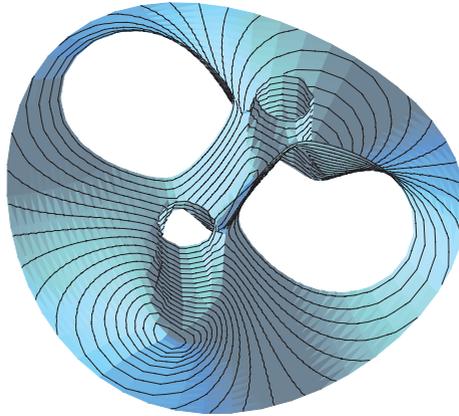


Abbildung 2.5.: Effektives Potential für die xy -Ebene eines linearen Quadrupols mit zylindrischen Stabelektroden für einen nichtverschwindenden Gleichspannungsanteil

Verschwindet der statische Feldanteil, hat das effektive Potential an der Elektrodenoberfläche den Wert

$$\psi_0 = \frac{eV^2}{m\omega^2 r_0^2} = \frac{1}{2}qV. \quad (2.20)$$

Da q im ersten Stabilitätsbereich beschränkt ist, ergibt sich so eine einfache Abschätzung der Tiefe des Potentialtopfes.

Eine direkte Folgerung aus der Existenz eines konservativen Quasipotentials ist, dass die Erzeugung von Ionen in der Falle geschehen muss. Von außen in den Potentialtopf einlaufende Teilchen können aufgrund der Erhaltung der Energie den Quadrupol wieder verlassen. Wird jedoch ein Reibungsterm der Bewegungsgleichung hinzugefügt, kann auch ein von außen einlaufendes Teilchen am Boden der Potentialmulde zur Ruhe kommen (siehe Kapitel 2.5).

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

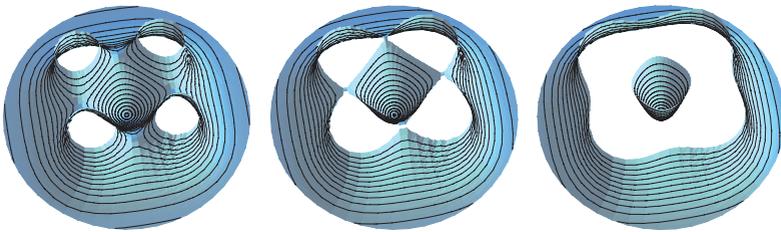


Abbildung 2.6.: Effektives Potential für die xy -Ebene eines linearen Quadrupols mit zylindrischen Stabradien mit (von links nach rechts) $r_s/r_0 \approx 0.6, 1.1, 1.4$

Die Berechnung des effektiven Potentials für verschiedene Elektrodengeometrien verdeutlicht auch, dass abhängig von Form und Proportionen der Elektroden verschiedene Verlustmechanismen für die gespeicherten Ionen dominieren. Im idealen Quadrupol erstrecken sich die hyperbolischen Elektroden bis ins Unendliche. Ein Auftreffen auf die Elektroden ist daher die einzige Möglichkeit, die Falle zu verlassen. Für endliche hyperbolische und zylindrische Elektroden hingegen können Ionen das Fallenvolumen verlassen, indem sie den endlichen Potentialwall zwischen den Elektroden überqueren. Die Anteile der Verlustmechanismen sind vom Verhältnis von Elektrodenabstand und -durchmesser abhängig.

In Abbildung 2.6 ist das effektive Potential für eine feste Position der Stabelektroden dargestellt. Der Stabradius wurde dabei von links nach rechts vergrößert. Der maximal dargestellte Potentialwert ist der für den Punkt auf den Stabelektroden, welcher dem Fallenzentrum am nächsten ist.

Werden dünne zylindrische Stäbe verwendet (Abb. 2.6 links), steigt das Feld in der Nähe der Elektroden steil an. Zwischen den Stäben ist es jedoch aufgrund des großen Stababstandes gering. Das effekti-

2.3. Die adiabatische Näherung

ve Potential hat hier geringere Werte als in Gl. 2.20. Die niederenergetischste Möglichkeit, die Falle zu verlassen, ist daher ein Entweichen zwischen den Stäben hindurch. Für Stäbe mit zu großem Radius (Abb. 2.6 rechts) sind die Elektrodenoberflächen schwächer gekrümmt. Andererseits nähern sich die Oberflächen verschiedener Elektroden einander an. Daher sind in diesem Fall Feldstärke und effektives Potential zwischen den Elektroden größer als an der dem Falleninneren zugewandten Elektrodenoberfläche. Die Ionen können also leichter auf die Elektroden treffen als zwischen ihnen entweichen. Für zylindrische Stäbe mit dem Radius r_s in einem zylindrischen Gefäß mit dem Radius R lautet das ideale Verhältnis von Stabradius und dem Abstand der Elektrodenoberfläche vom Fallenzentrum r_0 gemäß [Dawson 1976]:

$$r_s \approx 1.1468 r_0 \quad \text{und} \quad R \approx 3.54 r_0. \quad (2.21)$$

In diesem Fall sind die Säkularfrequenzen richtungsentartet, die ersten Multipolterme höherer Ordnung verschwinden. Die Äquipotentiallinien des effektiven Potentials sind kreisförmig und das effektive Potential auf der dem Falleninneren zugewandten Elektrodenoberfläche entspricht in etwa der Potentialwallhöhe zwischen den Elektroden (Abb. 2.6 Mitte).

Abschließend sollte noch angemerkt werden, dass das effektive Potential an der Oberfläche von Stabelektroden sehr hohe Werte annehmen kann. Dies legt die Vermutung nahe, dass die Ionen niemals in diese Regionen gelangen können. Dabei handelt es sich jedoch um einen Trugschluss: Ein sehr steil ansteigendes effektives Potential hat seine Ursache in einem stark inhomogenen Feld. Die Voraussetzungen für die adiabatische Näherung sind an diesen Orten möglicherweise nicht mehr gegeben. Die Amplituden der Oszillationsbewegung sind dann so groß, dass ein Auftreffen auf die Elektrode wahrscheinlich wird.

2.4. Dichten und Temperaturen gespeicherter Ionen

Die kollektiven Eigenschaften gespeicherter Ionen in Ionenfallen können in weiten Bereichen variieren, wie sich anhand des Plasmaparameters Γ zeigen lässt. Er beschreibt das Verhältnis zwischen mittlerer kinetischer und potentieller Energie der einzelnen Ionen. Der Plasmaparameter variiert daher mit der Temperatur und der Dichte der Ionenwolke und lässt in einfacher Näherung die Unterscheidung dreier Regimes zu [Walther 1993]:

- Im Mathieu-Regime bewegen sich die Ionen weitgehend frei voneinander, ihre Bewegungsgleichung ist die eines einzelnen Teilchens im angelegten Potential. Die Dichteverteilung ergibt sich aus einer Summation über alle Teilchenbahnen, gewichtet mit der Wahrscheinlichkeit ihrer Startbedingungen.
- Im chaotischen Regime sind die Kräfte des äußeren Potentials und die der wechselwirkenden Teilchen von ähnlicher Größenordnung. Die Ionenbewegung wird chaotisch.
- Im quasiperiodischen Regime überwiegt die Coulomb-Abstoßung die kinetische Energie, es bilden sich geordnete Strukturen, sogenannte Wigner-Kristalle aus. In Ihnen schwingen die einzelnen Ionen um ihre individuelle Ruhelage.

Die Ladungsträgerdichte ist im quasiperiodischen Regime offensichtlich die höchste und kann daher als einfache Abschätzung dienen. Die gespeicherten Ionen sammeln sich am Boden des effektiven Potentials, so dass das aus der Raumladungsdichte resultierende Potential genau die bindende Wirkung des effektiven Potentials kompensiert [Dehmelt 1967].

2.4. Dichten und Temperaturen gespeicherter Ionen

Dann gilt für die Raumladungsdichte ρ_0 :

$$\Delta\psi(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{\epsilon_0}\rho_0(\mathbf{r}). \quad (2.22)$$

Für ruhende Teilchen im idealen Quadrupol ergibt sich durch Einsetzen von Gl. 2.19 eine konstante Raumladungsdichte ρ_0 bis zu einem Radius r_{\max} , der durch die Anzahl der gespeicherten Ionen gegeben ist:

$$\rho_0 = -\frac{\epsilon_0}{4\pi} \frac{2eV^2}{m\omega^2 r_0^4} = -\frac{\epsilon_0}{2\pi} \frac{1}{r_0^2} \psi_0. \quad (2.23)$$

Für Teilchen gegebener Masse führt also eine Erhöhung der Wechselfeldamplitude oder eine Verringerung der Fallenfrequenz (beides in den durch den Stabilitätsbereich und die adiabatische Näherung gegebenen Grenzen) zu einer Vergrößerung der Ionendichte und der Tiefe des Potentialtopfes. Für typische Fallengeometrien und Betriebsspannungen ergeben sich Anzahldichten im Bereich von 10^5 bis 10^{10} cm^{-3} .

Das elektrostatische Potential der Raumladungswolke überlagert den Gleichspannungsanteil des angelegten Fallenpotentials und verschiebt den Stabilitätsparameter a um

$$\Delta a = -\frac{4\pi}{\epsilon_0} \frac{e}{m\omega^2} \rho_0. \quad (2.24)$$

Die in Abb. 2.3 dargestellten Stabilitätsbereiche werden dabei leicht in ihrer Form geändert und effektiv nach rechts verschoben. Eine Darstellung für eine hyperbolische Paul-Falle findet sich in [Todd u. a. 1980].

Bei einer nichtverschwindenden Mikro- und Säkularbewegung der gespeicherten Teilchen kommt es zu einem Abschmelzen des ursprünglich kastenförmigen Dichteprofiles. Experimentell werden daher für heiße Ionenwolken Gauss-förmige Dichteverteilungen beobachtet. Die Geschwindigkeits- und Dichteverteilung für N Ionen bei einer Temperatur

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

T sind bei vernachlässigbaren Raumladungseffekten durch den Gleichverteilungssatz gegeben [Parks und Szöke 1995]:

$$f(\mathbf{r}, v) = n(\mathbf{r}) \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} e^{-mv^2/2k_B T}, \quad (2.25)$$

$$n(\mathbf{r}) = \frac{N}{r_0^2 z_0} \left(\frac{e}{\pi k_B T} \right)^{3/2} \sqrt{\psi_0^2 \psi_z} e^{-e\psi(\mathbf{r})/k_B T}, \quad (2.26)$$

wobei z_0 und ψ_z die Länge und die Tiefe des effektiven Potentials in axialer Richtung sind (siehe Kapitel 2.6).

Die Vorhersagbarkeit einer Temperatur in den obigen Gleichungen gestaltet sich im Allgemeinen schwierig. Im Falle der adiabatischen Näherung ist das effektive Potential konservativ. Das angelegte Wechselfeld führt nicht zu einer Aufheizung der Ionenbewegung. Die Ursache hierfür ist das diskrete Spektrum der Teilchenbewegung. Wie in Kapitel 2.2 erwähnt, kann es jedoch durch Verzerrungen des Speicherfeldes für bestimmte Fallenparameter zu resonanter Aufheizung der Ionen kommen. Dies ist ebenfalls möglich, wenn die Ionenbewegung nicht ausschließlich durch das angelegte Feld bestimmt ist, sondern durch Stöße, insbesondere mit anderen Ionen, ein kontinuierliches Bewegungsspektrum erhält. Die Stöße der Ionen untereinander führen zu einer Thermalisierung, deren Relaxationszeit proportional zur inversen Stoßfrequenz aus [Spitzer 1956, Gleichung 5-26] ist, und für dieses Experiment je nach Atomsorte und Fallenparametern zwischen 50 Mikrosekunden und einer Millisekunde liegt. Dies bedeutet, dass der lineare Quadrupol im Betrieb als lineare Paul-Falle eine Ionenwolke im thermischen Gleichgewicht speichert, während im Betrieb als Ionenleiter, also ohne longitudinales Speicherpotential, die Zeit vom Eintritt in die Falle bis zur LIF-Messung kürzer als die Thermalisierungszeit ist. Die Temperatur selbst ist eine komplizierte, dichteabhängige Funktion der

2.5. Kühlmechanismen in Ionenfallen

Kopplung der Ionenbewegung an die höheren Multipolordnungen des Fallenpotentials. Eine Abschätzung aus Relaxationszeit und Speicherzeit für typische Fallenparameter in einer hyperbolischen Paul-Falle ergibt Temperaturen im Bereich einiger Elektronenvolt [Dehmelt 1967].

Bei den Experimenten in dieser Arbeit kommt ein weiterer, möglicherweise dominanter, Heizprozess hinzu: Elektronen aus dem Plasma werden an Orten nichtverschwindenden Feldes stark beschleunigt bzw. aufgeheizt. Die dabei aufgenommene kinetische Energie kann teilweise durch Stöße auf Ionen übertragen werden. Dieser Heizprozess sollte vorwiegend in der Nähe des lasererzeugten Plasmas bzw. nahe der Austrittsblende der Hohlkathode eine Rolle spielen, da die Elektronen aufgrund der hohen Feldstärken das Fallenpotential rasch verlassen.

2.5. Kühlmechanismen in Ionenfallen

Zur Kühlung gespeicherter Teilchen in Ionenfallen wurden verschiedenste Verfahren entwickelt. Diese hatten anfänglich vor allem das Ziel, die Speicherzeit zu verlängern und damit das Massenauflösungsvermögen zu steigern. Für die optische Spektroskopie ist besonders die Reduktion der Dopplerbreite von Interesse. Für diese Arbeit war von vorrangiger Bedeutung, dass die gekühlte Ionenwolke sich am Boden des effektiven Potentials sammelt, so dass sich die Teilchendichte erhöht. Dabei wurde mit der Puffergaskühlung ein einfach und universell anzuwendendes Kühlverfahren benutzt, welches allerdings nur vergleichsweise hohe Endtemperaturen ermöglicht.

In diesem Kapitel soll auf die verschiedenen Kühlverfahren nur soweit eingegangen werden, dass ein Vergleich möglich wird. Eine allgemeine Übersicht findet sich in [Blatt u. a. 1988, Holzscheiter 1988, Ghosh 1995].

2.5.1. Laserkühlung

Das vermutlich bekannteste Verfahren zur Kühlung der Ionenbewegung nutzt den Nettoimpulsübertrag bei Absorption und Reemission von Photonen. Die Laserkühlung geht auf Vorschläge von [Hänsch und Schawlow 1975, Wineland und Dehmelt 1975] zurück. Dabei wird ein atomares Gas mit einem zu einer Resonanz rotverstimmt Laser beleuchtet. Die Absorptionswahrscheinlichkeit ist aufgrund der Dopplerverschiebung für jene Atome am größten, welche sich auf den Laser zubewegen. Bei Absorption eines Photons wird der Impuls des Atoms um $\hbar k$ reduziert. Da die spontane Reemission eines Photons in eine zufällige Richtung geschieht, kommt es zur Reduktion der dem Laser entgegelaufenden Geschwindigkeitskomponente [Toschek und Neuhauser 1989]. Durch Anwendung mehrerer Laser oder durch zusätzliche bindende Potentiale können die Bewegungen in allen Raumrichtungen reduziert werden. Da die Dopplerbreite sich während des Kühlprozesses verringert, muss die Laserwellenlänge während der Kühlung nachgeführt werden (*Chirp*). Alternativ dazu kann auch die Übergangswellenlänge geändert werden, üblicherweise, indem man die am Übergang beteiligten Niveaus durch ortsabhängige Magnetfelder verschiebt (Zeeman-Kühlung).

Eine einfache Abschätzung der Kühlzeit t_{cool} ergibt sich aus dem Anfangsimpuls eines thermischen Atoms P_{Ion} , dem je Photon übertragenen Impuls P_{Photon} und der Lebensdauer τ des angeregten Zustands:

$$t_{\text{cool}} = \frac{P_{\text{Ion}}}{P_{\text{Photon}}} \tau. \quad (2.27)$$

Für die Resonanzlinie des neutralen Natrium ergibt sich so eine Kühlzeit von etwa 1 ms [Foot 1991]. Die Übergangsfrequenzen sind für Ionen wegen der schwächeren Abschirmung der Kernladung höher, entspre-

2.5. Kühlmechanismen in Ionenfallen

chend auch der Impuls der Kühlphotonen. Da die Lebensdauern der angeregten Zustände meist kürzer sind, reduziert sich die Kühlzeit und man erhält für die Resonanzlinie des einfach ionisierten Magnesiums in analoger Rechnung eine Kühldauer von etwa $100 \mu\text{s}$.

Die erreichbare Temperatur ist zunächst durch die natürliche Linienbreite des Kühlübergangs gegeben, kann aber weiter verringert werden [Wineland u. a. 1992] und liegt im Bereich weniger Mikrokelvin. Nachteilig ist, dass spezielle Anforderungen an das Termschema erfüllt sein müssen. So sollte der Pumpzyklus möglichst geschlossen sein, um eine Entleerung des gepumpten Zweiniveausystems in dritte Niveaus zu vermeiden. Für jeden weiteren möglichen Zerfallskanal des oberen Niveaus muss sonst ein zusätzlicher Laser zum Rückpumpen der Besetzung eingesetzt werden. Dies und die technischen Anforderungen an die Kühllaser machen Laserkühlverfahren technisch aufwendig und für schnelle Wechsel zwischen verschiedenen Elementen ungeeignet.

2.5.2. Kühlung des Spiegelladungsstroms

Bei diesen Verfahren dissipiert der in den Fallenelektroden induzierte Spiegelladungsstrom an einem gekühlten Widerstand bzw. Schwingkreis. Dabei wird die Schwerpunktsbewegung der Ladungswolke gedämpft, es kommt zur Abkühlung. Die Zeit bis zum Erreichen eines Gleichgewichtszustandes t_{nat} kann für Teilchen der Masse m und der Ladung e berechnet werden zu:

$$t_{\text{nat}} = \sqrt{\frac{8 m \psi_0 r_0 C}{e^3 Q}}, \quad (2.28)$$

wobei C und Q Kapazität und Güte des verwendeten Schwingkreises sind. Nach dieser Zeit entspricht die Temperatur der Ionenwolke der

des Schwingkreises. Die Kühldauer ist am geringsten für Teilchen hoher spezifischer Ladung. Sie kann weiter reduziert werden, indem der Spiegelladungsstrom verstärkt und gegenphasig eingekoppelt wird. Hierbei erhöht sich jedoch durch die Verstärkung des eingekoppelten Rauschens auch die erreichbare Endtemperatur. Der Vorteil dieser Methode ist die Anwendbarkeit auf alle geladenen Teilchen. Die langen Kühlzeiten im Bereich von Sekunden beschränken den Einsatz dieser Verfahren auf Experimente mit langer Speicherzeit.

2.5.3. Puffergaskühlung

Die Puffergaskühlung ist eine einfach und universell anwendbare Kühlmethode, die keine Voraussetzungen an das Termschema des zu kühlenden Ions stellt. Lediglich Streuquerschnitte und Impulsüberträge beeinflussen die Effizienz und Kühldauer. Die erreichbare Endtemperatur ist die des Puffergases. Schon früh wurde dieser Kühlmechanismus durch Beobachtung an makroskopischen Teilchen nachgewiesen [Wuerker u. a. 1959] und in seiner Wirksamkeit untersucht [Cutler u. a. 1985, Lunney u. a. 1992].

Um die Kühlzeit berechnen zu können, wird das Abbremsen durch Stöße als kontinuierlicher Prozess beschrieben. Dies ist eine gute Näherung, solange der relative Impulsverlust je Stoß klein, die atomare Masse des Kühlgases also wesentlich kleiner als die der Ionen ist (andernfalls ist auch Rückstreuung möglich). Die Bewegungsgleichung 2.8 kann dann um einen Dämpfungsterm erweitert werden:

$$\frac{d^2\xi}{d\theta^2} + b\frac{d\xi}{d\theta} + [a - 2q \cos(2\theta)] \cdot \xi = 0. \quad (2.29)$$

2.5. Kühlmechanismen in Ionenfallen

Die Größe des Dämpfungskoeffizienten b ist für Teilchen mit dem Radius R und der Geschwindigkeit v in einem Medium mit der Viskosität η durch die Stokesche Reibung gegeben:

$$F_{\text{Stokes}} = -6\pi\eta Rv \quad \text{und} \quad b = \frac{9\eta}{\rho R^2 \omega}. \quad (2.30)$$

Aus der kinetischen Gastheorie berechnet sich die Viskosität eines Gases mit der mittleren freien Weglänge λ und der mittleren Geschwindigkeit $\langle v \rangle$ zu

$$\eta = q\lambda m N \langle v \rangle, \quad (2.31)$$

wobei m deren Teilchenmasse, und N die Teilchendichte bezeichnen, die Größe q ist ein Formfaktor. Während für hohe Drücke die Viskosität druckunabhängig wird, gilt im intermediären Bereich

$$\eta(p) = \frac{\eta_0}{1 + \lambda/R(A + Be^{-CR/\lambda})}, \quad (2.32)$$

wobei die Konstanten A , B und C in [Nasse und Foot 2001] angegeben sind. Die Dämpfungskonstante ergibt sich entsprechend zu

$$b(p) = \frac{9\eta_0}{\rho R^2 \omega} \frac{1}{1 + \lambda/R(A + Be^{-CR/\lambda})}. \quad (2.33)$$

Abbildung 2.7 zeigt exemplarisch den Einfluss der Puffergaskühlung an einem Magnesium-Ion (blaue Kurve). Das Ion hat anfangs eine kinetische Energie von 20 eV. Die Fallenfrequenz beträgt 1.7 MHz und die Wechsellspannungs-Amplitude 340 V. Der Dämpfungsparameter hat den Wert $b = 0.02$, das entspricht etwa einem Druck von 10 Pa, wenn Helium als Kühlgas eingesetzt wird. Die Bewegungsgleichung wurde mit einem gewöhnlichen Runge-Kutta-Verfahren gelöst. Die Vergleichskur-

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

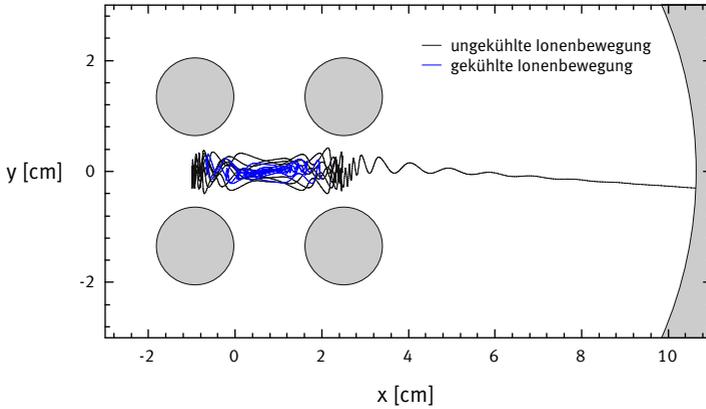


Abbildung 2.7.: Vergleich von gekühlter und ungekühlter Ionenbewegung am Beispiel eines Magnesium-Ions

ve in schwarz zeigt die ungekühlte Ionenbewegung, das Ion verlässt das Fallenvolumen innerhalb weniger Mikrosekunden.

Für starke Dämpfungen wird die Bewegungsgleichung signifikant geändert. Die Dämpfung kann nicht mehr als Störung behandelt werden und führt zu einer Verschiebung und Verformung der Stabilitätsbereiche. Die Lösung der Bewegungsgleichung und die Berechnung der Stabilitätsbereiche sind dann nur noch numerisch möglich.

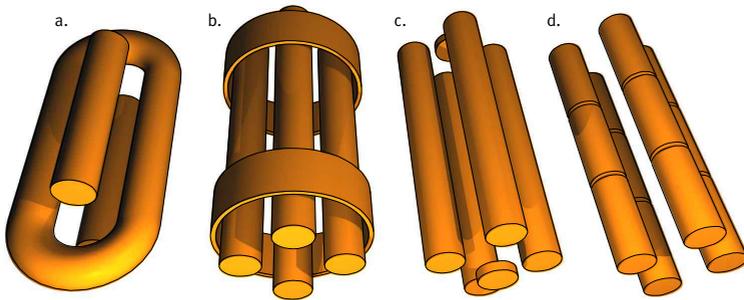


Abbildung 2.8.: Verschiedene Elektrodenanordnungen zur longitudinalen Stabilisierung in einer linearen Paul-Falle

2.6. Longitudinale Stabilisierung

Die Bewegung der Ionen entlang der Achse des linearen Quadrupols verläuft gemäß Gl. 2.7 gleichförmig. Die beschriebene Apparatur entspricht ohne weitere Modifikationen einem konventionellen Quadrupol-Massenfilter und stabilisiert die Ionenbewegung nur zweidimensional. Sie kann daher eher als Ionenleiter denn als Falle bezeichnet werden. Möchte man auch die Bewegung in axialer Richtung beschränken, bieten sich verschiedene Möglichkeiten an (vgl. Abb. 2.8, von links nach rechts):

- a. Das Zusammenbiegen zweier Stabelektroden entspricht dem Aufsetzen von halbierten hyperbolischen Paul-Fallen auf die Enden des linearen Quadrupols. Die Stabilisierung der Ionenbewegung erfolgt bei symmetrisch angelegten Potentialen in allen Raumrichtungen durch Wechselfelder. Ein Nachteil dieser Konfiguration ist, dass die axiale Einspeisung von Ionen- und Elektronenstrahlen durch die Wechselfelder gestört wird.

Kapitel 2. Die Speicherung von Ionen in einer linearen Paul-Falle

- b. Legt man an ringförmige Elektroden, welche den Quadrupol umschließen, eine Spannung an, wird deren Potential im Fallenninneren nicht vollständig abgeschirmt und beeinflusst das effektive Potential auf der Achse.
- c. Eine direkte Anhebung des Potentials auf der Fallenachse wird durch platten-, ring- oder nadelförmige Elektroden an den Enden des linearen Quadrupols erreicht [Fisk u. a. 1993]. In vielen Fällen wird hierbei jedoch ein wichtiger Zugang für Teilchenquellen oder Diagnostiklaser versperrt. Dies kann vermieden werden, indem Elektroden in Form eines Drahtnetzes verwendet werden.
- d. Eine weit verbreitete Möglichkeit ist die Segmentierung der Fallenstäbe. Hierbei werden die Segmente einer Stabelektrode mit identischen Wechsellspannungsamplituden versorgt. Der positive Gleichspannungs-Offset wird für das mittlere Segment aber abgesenkt und erzeugt so eine axiale Potentialmulde. Die Versorgungsspannungen der Elektrodensegmente können in radialer Richtung zugeführt werden, stören aber auf diese Weise die Potentialverläufe. Eleganter ist die Spannungsversorgung des mittleren Segments durch eine koaxiale Zuführung durch die äußeren Segmente hindurch. Die Konstruktion der Stabelektroden ist dadurch zwar etwas aufwendiger, konnte aber selbst für sehr kleine Elektroden (0.8 mm Radius) realisiert werden [Raizen u. a. 1992].

In dieser Arbeit wurden die letzten beiden Ansätze zum Betrieb des linearen Quadrupols als Ionenfalle verwendet. Ein Nachweis des Betriebs als Ionenfalle wurde in [Schultz 1997] erbracht. Die Speicherzeit konnte (abhängig von Entladungsbedingungen und Puffergaskühlung) mit einigen Millisekunden abgeschätzt werden, was bis zu zehn Re-

2.6. Longitudinale Stabilisierung

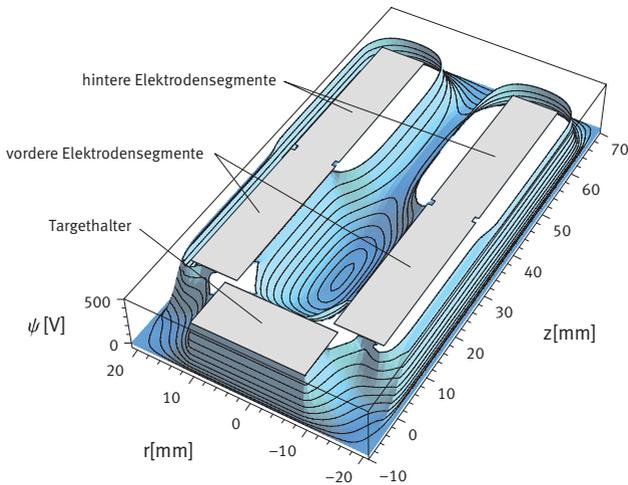


Abbildung 2.9.: Effektives Potential für segmentierte Fallenstäbe

flexionen an den Endelektroden entspricht. Im Allgemeinen ist jedoch der Betrieb als Ionenfilter sinnvoller. Einerseits beeinträchtigen Potentiale auf der kathodenseitigen Endelektrode das Eintreten der Ionen in das Messvolumen, zum anderen können die in der Hohlkathodenentladung besetzten metastabilen Niveaus zur Anregung verwendet werden. Deren Besetzung geht innerhalb der Speicherzeit merklich zurück. Eine dreidimensionale Berechnung des effektiven Potentials mit den in Kapitel 2.7 beschriebenen Methoden für segmentierte Fallenstäbe ist in Abb. 2.9 zu sehen. Das Potential wurde auf einem Gitter mit ca. 10^6 Stützstellen berechnet. In einer Ebene, die durch die Achsen der Stabelektroden verläuft, ist die longitudinale Stabilisierung durch eine positive Spannung auf den hinteren Elektroden und dem Targethalter deutlich zu erkennen. Die statischen Potentiale zur longitudinalen Stabilisierung werden sinnvollerweise in Größenordnung von ψ_0 aus Gleichung 2.20 gewählt.

2.7. Lösung des Potentialproblems

Bei der Laplace-Gleichung handelt es sich um eine homogene, elliptische, partielle Differentialgleichung, welche sich numerisch lösen lässt, indem der Laplace-Operator diskretisiert wird. Für ein Gitter der Schrittweite h lässt sich die zweite Ableitung umschreiben zu

$$\frac{d^2}{dx^2}\phi \approx \frac{\phi_{i+1} + \phi_{i-1} - 2\phi_i}{h^2}. \quad (2.34)$$

Sind die Potentialwerte für benachbarte Stützstellen bekannt, lautet die Lösung der Laplace-Gleichung für das Potential $\phi_{i,j,k}$ auf einem Gitter mit in allen Raumrichtungen identischer Schrittweite:

$$\phi_{i,j,k}^0 = \frac{1}{6}(\phi_{i+1,j,k} + \phi_{i-1,j,k} + \phi_{i,j+1,k} + \phi_{i,j-1,k} + \phi_{i,j,k+1} + \phi_{i,j,k-1}). \quad (2.35)$$

Dies stellt bereits die Grundlage für einen langsam konvergierenden Algorithmus dar, um die Potentialverteilung zu einem gegebenen Randwertproblem zu berechnen. Das Verfahren kann beschleunigt werden, indem man die mit Gl. 2.35 berechnete Potentialänderung um einen Faktor w vergrößert, also überrelaxiert [Schmid u. a. 1987]:

$$\phi_{i,j,k}^{neu} = \phi_{i,j,k}^{alt} + w[\phi_{i,j,k}^0 - \phi_{i,j,k}^{alt}]. \quad (2.36)$$

Für Werte von $1 < w < 2$ ergibt sich eine gedämpfte Schwingung der $\phi_{i,j,k}$ um die korrekte Lösung. Durch geeignete Wahl von w lässt sich die Konvergenzgeschwindigkeit analog zum aperiodischen Grenzfall optimieren. Da sich Potentialinformationen in Gl. 2.35 jeweils um nur eine Stützstelle pro Iteration ausbreiten, ergibt sich eine weitere Beschleunigung durch die Anwendung von sogenannten *Multigrid*-Verfahren. Dabei wird zunächst das Potentialproblem für ein grobes Gitter gelöst.

2.7. Lösung des Potentialproblems

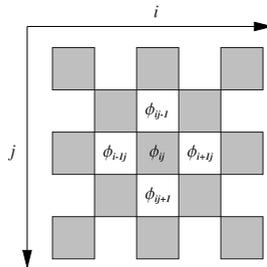


Abbildung 2.10.: Verwendung komplementärer Gitter für die sukzessive Überrelaxation

Die so erhaltene Lösung wird für ein feineres Gitter interpoliert und die Relaxation auf diesem erneut iterativ berechnet.

Durch die Wahl der Indizierung der Stützstellen bildet sich beim Mitteln eine Vorzugsrichtung aus. Dies kann vermieden werden, indem zwei komplementäre Untergitter verwendet werden, wie in Abb. 2.10 dargestellt. Für jede Iteration werden zunächst alle Potentialwerte für das eine, dann alle für das andere Untergitter berechnet.

Für dreidimensionale Potentialberechnungen erreicht die Anzahl der Stützstellen rasch die Größenordnung von einigen 10^6 . Für ein Gitter dieser Größe kann auf einem Rechner vom Typ PentiumTM 3 / 800 MHz Konvergenz innerhalb einiger Minuten erzielt werden. Für eine wiederholte Lösung des Potentialproblems, wie es zur Lösung von Bewegungsgleichungen in zeitabhängigen Potentialen an sich notwendig ist, wäre der Rechenaufwand zu hoch. Einfacher ist es, einen Satz von Basislösungen zu erstellen, bei dem jeweils nur eine Elektrode auf ein von Null verschiedenes Potential ϕ_0 gesetzt wird. So kann jede Belegung der Elektroden mit beliebigen Spannungen durch Linearkombinationen dieser Basislösungen berechnet werden.

Kapitel 3.

Experimentelle Details

3.1. Überblick

Ein Experiment zur Messung von Lebensdauern mit Hilfe von Laserinduzierter Fluoreszenz (LIF) kann in vier Abschnitte unterteilt werden:

1. die Erzeugung einer ausreichenden Anzahl von Atomen im gewünschten Ionisations- und Besetzungszustand,
2. optional die Propagation des Ensembles vom Ort der Erzeugung zum Ort der Fluoreszenzmessung,
3. die Erzeugung von Laserstrahlung zur selektiven Anregung des zu untersuchenden Niveaus,
4. die Detektion und Verarbeitung von Laserpuls und Fluoreszenzsignal.

In Abb. 3.1 ist die Geometrie der Messung mit einem lasererzeugten Plasma als Teilchenquelle schematisch dargestellt: Die Hauptbewegungsrichtung der Atome, der Anregungslaser und die Detektionsrichtung bilden ein Orthogonalsystem. Zusätzlich sind die Elektroden ei-

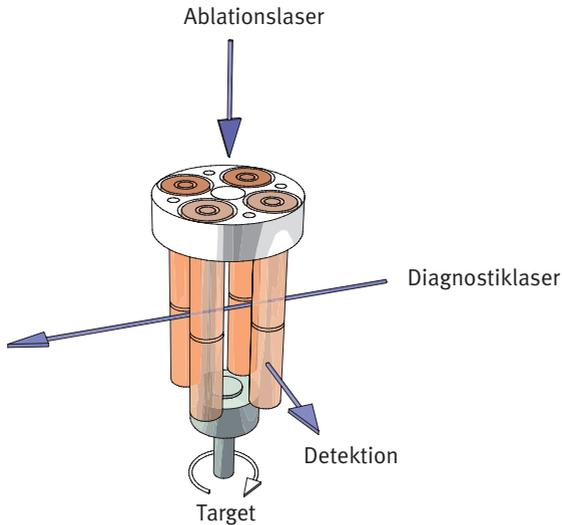


Abbildung 3.1.: Experimenteller Aufbau (schematisch)

nes linearen Quadrupols dargestellt, der die Expansion der Ionenkomponente des Plasmas in zwei Dimensionen begrenzt.

Ist die verwendete Teilchenquelle eine Hohlkathode, hat der Aufbau die Form wie in Abb. 3.2 dargestellt. Die Hohlkathodenentladung ist durch eine Austrittsblende vom Messvolumen getrennt. Dadurch entsteht ein differentiell Pumpsystem, das es erlaubt, den Entladungsdruck weitgehend unabhängig vom Druck im Beobachtungsvolumen zu wählen. Durch die Öffnung entweicht ein effusiver Teilchenstrahl in die Messkammer, dessen Ionenkomponente sich durch einen linearen Quadrupol kollimieren lässt. Für Neutralteilchen hingegen erfolgt eine freie Expansion. Daher sind Laseranregung und Detektion an zwei Orten möglich: LIF-Messungen an Neutralteilchen werden 42 mm von der Aperturblende entfernt durchgeführt. Für Ionen besteht zusätzlich in Verbindung mit der linearen Paul-Falle die Möglichkeit, in einer

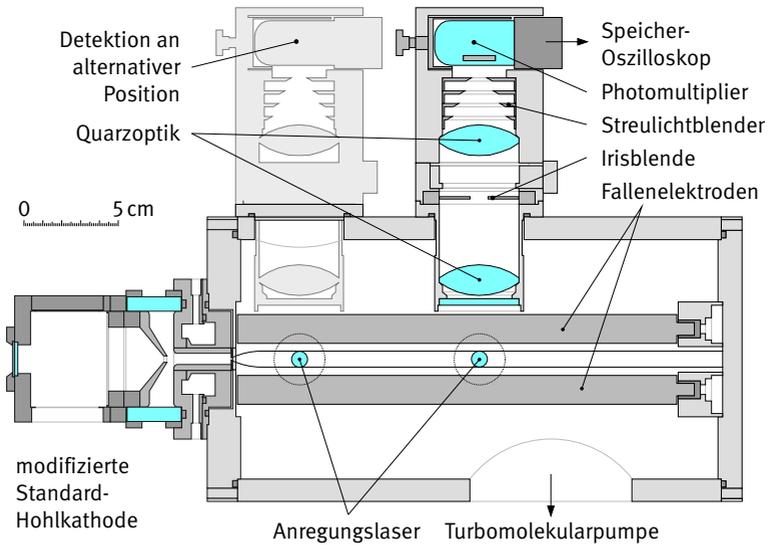


Abbildung 3.2.: Hohlkathode, Messvolumen und LIF-Detektion

Entfernung von 155 mm vor der Aperturblende Fluoreszenzsignale zu messen. Sowohl das Hintergrundleuchten aus der Entladung, als auch Störungen durch Übergänge an Neutralteilchen ähnlicher Wellenlänge (*Blends*) sind hier ausgeschlossen. Die Beobachtung erfolgt spektral integriert, also auf allen Zerfallskanälen. Das Fluoreszenzlicht wird durch eine zweilinsige Quarzoptik mit einem Öffnungsverhältnis von 1 auf die Photokathode eines *Photomultipliers* abgebildet. Reststreulicht von den graphitgeschwätzten Wänden der Apparatur kann durch eine Irisblende reduziert werden. In der Praxis wird die Blende auf ca. 30 mm geschlossen, das maximal mögliche Öffnungsverhältnis wird daher im Allgemeinen nicht ausgenutzt.

Die einzelnen Elemente der eingangs vorgestellten Unterteilung werden im Folgenden ausführlicher dargestellt.

3.2. Teilchenquellen

Im Laufe der vorliegenden Arbeit wurde mit zwei verschiedenen Teilchenquellen experimentiert, welche sich in ihren Stärken und Schwächen gut ergänzen. Die effusiven Teilchenstrahlen aus Hohlkathodenentladungen stellen für Neutralteilchen und einfach geladene Ionen eine Teilchenquelle für im Sinne einer LIF-Messung ungestörte Atome hinreichender Dichte dar. Stöße, optische Dicke und Flugzeiteffekte können normalerweise vernachlässigt werden.

Sollen Fluoreszenzmessungen an mehrfach geladenen Ionen durchgeführt werden, ist eine Nachionisation oder aber die Verwendung einer Quelle, die auch höhere Ionisationsstufen liefert, unumgänglich. Wird ein lasererzeugtes Plasma als Teilchenquelle verwendet, müssen Einflüsse wie *Quenching*, optische Dicke oder Flugzeiteffekte jeweils quantifiziert werden, da sie das Ergebnis der Lebensdauermessung beeinträchtigen. Die Teilchendichte nimmt jedoch im expandierenden Plasma rasch mit der Zeit und der Entfernung zum Ort der Ablation ab. Daher können in vielen Fällen durch Variation von Ort und Zeitpunkt der Laseranregung für LIF-Messungen zufriedenstellende Plasmapbedingungen gefunden werden. Für mehrfach geladene Ionen rückt dabei das Messfenster, in dem ausreichende Teilchendichten vorliegen, immer näher an den Zeitpunkt und den Ort der Plasmaerzeugung heran, wodurch Störungen durch das Plasma eventuell nicht mehr vernachlässigt werden können. Wann immer es möglich war, wurde daher die Hohlkathodenentladung als Teilchenquelle verwendet. Durch die Verwendung lasererzeugter Plasmen konnten die Fluoreszenzmessungen auch auf mehrfach geladene Ionen angewendet werden.

3.2.1. Hohlkathodenentladung

Die in dieser Arbeit verwendete Hohlkathode ist eine modifizierte Version der am Institut für Plasmaphysik der Universität Hannover entwickelten Standard-Hohlkathode. Diese wurde ursprünglich als Intensitäts-Transfer-Normal, insbesondere für den XUV-Bereich von 13 – 60 nm, konstruiert und charakterisiert [Danzmann u. a. 1988].

In der Entladung erfolgt die Erzeugung von freien Metallatomen durch Sputterprozesse am Wandmaterial des Kathodeneinsatzes. Dieser Einsatz ist auswechselbar und wird, soweit möglich, aus der zu untersuchenden Substanz hergestellt. So können auch schwer verdampfbare Metalle wie z. B. Wolfram in für Lebensdauermessungen ausreichender Dichte erzeugt werden. Im Prinzip ist man bei der Wahl des Kathodenmaterials auf Metalle beschränkt, über Legierungen stehen jedoch auch einige nichtleitende Substanzen zur Verfügung. Darüber hinaus ist die lose Zugabe granularer Materialien möglich. Einige wenige Metalle hingegen können aufgrund ihrer chemischen Eigenschaften den Entladungsprozess verhindern. So scheinen die Oxide der reaktionsfreudigen Alkalimetalle die Entladung nachhaltig zu stören, auch wenn oberflächliche Verunreinigungen der Einsätze normalerweise durch den Betrieb der Entladung nach wenigen Minuten abgetragen werden und damit keine weiteren Beeinträchtigungen verursachen.

Die Konstruktion der Hohlkathode ist in Abb. 3.3 zu sehen. Um die Hohlkathode zur Erzeugung von Metallatomen und -ionen zu optimieren, wurde der Kathodeneinsatz auf 35 mm verkürzt [Schnabel und Kock 1997, van Lessen u. a. 1998]. Die Innenbohrungen der Einsätze haben Durchmesser zwischen 4 und 8 mm.

Zur Seite des Messvolumens hin ist der Kathodeneinsatz mit einer Blende aus Kupfer verschlossen, deren zentrale Bohrung einen Durchmesser zwischen 0,3 und 1 mm hat. Durch diese Apertur entweicht ein kon-

Kapitel 3. Experimentelle Details

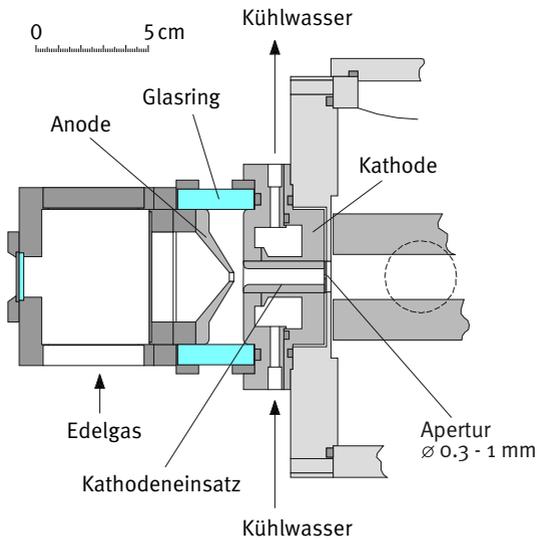


Abbildung 3.3.: Konstruktionszeichnung der verwendeten Hochstrom-Hohlkathode

tinuierlicher effusiver Strahl aus Edelgas- und Metallatomen mit einem Kegelwinkel von ca. 60° in das Messvolumen. Die Aperturblende trennt Entladungs- und Messvolumen in Form eines differentiellen Pumpsystems. So kann im Messvolumen bei laufender Entladung ein Vakuum von besser als einem Pascal aufrechterhalten werden. Die kinetische Energie der axialen Geschwindigkeitskomponente konnte für metallische Ionen auf Werte von 1 bis 2 eV abgeschätzt werden [Schultz 1997]. Die Hohlkathodenentladung wurde mit den Edelgasen Neon und Argon, versuchsweise auch mit Helium, betrieben. Die verwendeten Edelgase hatten einen Fremdgasanteil von unter 40 ppm. In den meisten Fällen bietet Neon bei Drucken zwischen 200 und 1200 Pa eine stabile und einfach zu handhabende Entladung. Dabei fallen für Ströme von

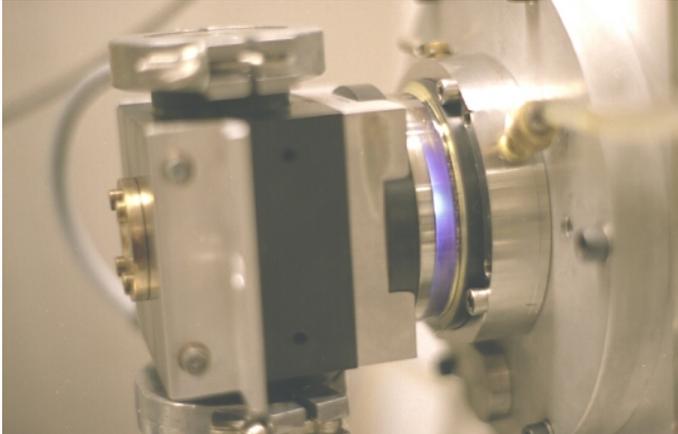


Abbildung 3.4.: Als Teilchenquelle verwendete Hohlkathodenentladung im Betrieb mit Argon und einem Magnesium-Einsatz

0.3 bis 2 A Brennspannungen zwischen 200 und 500 V an der Hohlkathode ab. Bei einzelnen Einsätzen, z. B. bei Eisen, sind die Entladungsbedingungen bei Verwendung von Argon günstiger. In Argon stellen sich für Drücke von 50 bis 1200 Pa bei vergleichbaren Stromstärken Spannungen von 130 - 500 V ein. Die Entladung lässt sich weiterhin auch bei Strömen bis hinab zu 0.1 A betreiben. Die Gründe hierfür liegen in den zueinander verschobenen Paschenkurven für Neon und Argon, in die Stoßquerschnitte und Ionisationsenergien eingehen. Die Entladungsbedingungen variieren zudem mit der Austrittsarbeit des verwendeten Kathodenmaterials.

Dabei ist die Metallkomponente als Elektronendonator für die Entladung wichtig. Während der Gesamtionisationsgrad mit 10^{-7} eher gering ist, ist die Metallkomponente fast vollständig ionisiert [Danzmann und Kock 1981]. Im Plasma können daher zwei Bereiche unterschieden wer-

den: Im vom Kathodeneinsatz umschlossenen Volumen befindet sich ein erhöhter Anteil an Metallatomen, welche möglicherweise die sichtbare Emission dominiert. Zwischen Kathodenblock und der konischen Anode hingegen ist das Plasma ein metallarmes Edelgas-Plasma, die Emission zeigt sich gastypisch rosa-orange (Neon) oder blau-violett (Argon). Dies ist in Abb. 3.4 am Beispiel einer Entladung in Argon zu sehen. Der Hohlkathodeneinsatz besteht hier aus Magnesium, die hellen Bereiche leuchten aufgrund von Magnesiumlinien bei 500 nm petrolfarben. Bei den üblichen Brennbedingungen zeigen Hohlkathodenentladungen eine vom Strom nahezu unabhängige Brennspannung, die Strom-Spannungskennlinie verläuft horizontal. Aus regelungstechnischen Gründen wird die Entladung daher mit einem Vorwiderstand von 42Ω betrieben, der zu einer steigenden Kennlinie führt. Als Netzteile kamen ein Gerät der Firma Heinziger vom Typ HNYs 600-2 und eines der Firma Argos vom Typ Ar500-1 zum Einsatz.

3.2.2. Lasererzeugte Plasmen

Diese Form elektrodenloser Plasmen wird erzeugt, indem ein Laser auf ein Medium fokussiert wird, so dass die Leistungsdichte 10^8 J/cm^2 übersteigt. In vielen Fällen wird dabei gepulste Laserstrahlung benutzt; die Aufrechterhaltung des Plasmas ist jedoch auch mit Dauerstrich-Lasern möglich [Carlhoff u. a. 1981]. Lasererzeugte Plasmen emittieren sehr kurzwellige Strahlung und bilden wegen der guten Fokussierbarkeit des Lasers nahezu punktförmige Röntgenquellen [Fischer u. a. 1984]. Für die Quantenoptik sind Ablationsplasmen von Interesse, da an ihnen Inversion und Laserverstärkung bei Wellenlängen unter 20 nm und die Erzeugung sehr hoher Harmonischer beobachtet werden können [Fill 1988]. Als Teilchenquelle für Lebensdauermessungen mittels LIF wurden sie erstmals bei [Bergström u. a. 1988] untersucht.

3.2. Teilchenquellen

Bei den hier vorgestellten Messungen wurde ein gepulster Laser, in den meisten Fällen die erste Harmonische eines gütegeschalteten Nd:YAG-Lasers vom Typ Continuum Surelite oder Spectraphysics DCR 11 auf eine Materialoberfläche fokussiert. Die Pulsenergie beträgt typischerweise einige Millijoule bei einer Pulsdauer von ungefähr 10 ns und einem Fokussdurchmesser von etwa $60 \mu\text{m}$, je nach verwendeter Fokussieroptik. Infolge der Lasereinwirkung entsteht ein sehr heißes und dichtes Kurzzeitplasma, in dem eine Vielzahl von Ionisations- und Anregungszuständen besetzt ist. Um eine Strukturierung der Oberfläche und damit einhergehend driftende Plasmaparameter zu vermeiden, wird ein rotierendes *Target* verwendet. Das Plasma emittiert ein Rekombinations- und Bremsstrahlungs-Kontinuum sowie Spektrallinien neutraler bis mehrfach ionisierter Atome bis in den weichen Röntgenbereich hinein. Die Prozesse, die zur Ionisation führen, sind von der verwendeten Laser-Wellenlänge und den Ionisationsenergien des *Target*-Materials abhängig: Während für ultraviolette Laser Multiphotonen-Photonionisation überwiegt, nimmt zu längeren Wellenlängen hin die Bedeutung der Feldemission zu.

Für Fluoreszenzmessungen an lasererzeugten Plasmen ist daher die Verwendung eines Monochromators unumgänglich. Dieser dient nicht nur zur Unterdrückung von Kontinuumsstrahlung und der Auswahl eines Zerfallskanals, sondern auch zum Schutz des Detektors vor Streulicht des Ablationslasers.

Das Plasma expandiert und thermalisiert rasch; wenige Mikrosekunden nach Einsetzen der Ablation ist die Emission fast vollständig erloschen. Die Expansionsgeschwindigkeit beträgt für Neutralteilchen etwa 10^3 m/s und nimmt mit der Ionisationsstufe zu. Bei Messungen an doppelt ionisiertem Bor in Abschnitt 5.4.4 wurden Fluchtgeschwindigkeiten in der Größenordnung von 10^4 m/s beobachtet. Durch die hohen

Kapitel 3. Experimentelle Details

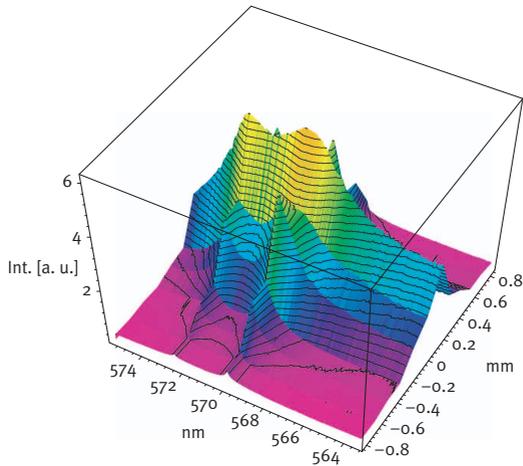


Abbildung 3.5.: Darstellung der Linienverbreiterung am Beispiel zweier Al III-Resonanzlinien bei 570 nm, gemessen 20 ns nach Einsetzen der Kontinuums-Emission aus dem Plasma

Geschwindigkeiten kann es bei Lebensdauermessungen zu Flugzeiteffekten kommen: Das zeitliche Verhalten der Besetzungsdichte des betrachteten Zustands im beobachteten Volumen ist dann nicht mehr allein die Folge seines strahlenden Zerfalls. Es kommt zu einer Verfälschung der gemessenen Lebensdauer, wenn sich das angeregte Atom-Ensemble in das Beobachtungsgebiet hinein oder aus ihm heraus bewegt. Die Stärke dieses Effekts ist von den jeweiligen Geschwindigkeiten und dem Ort und Zeitpunkt der Messung abhängig, aber auch von der Geometrie des Beobachtungsvolumens: Um einen möglichst großen Überlapp des angeregten und beobachteten Volumens zu erreichen, ist der Spalt des Monochromators oft parallel zum Anregungslaser ausgerichtet. Dann ist jedoch der Einfluss von Flugzeiteffekten am größten, da die Haupt-Bewegungsrichtung der Atome quer zum Spalt

verläuft, das abgebildete Volumen also in sehr kurzer Zeit verlassen wird. Bei Orientierung des Spaltes parallel zur Hauptbewegungsrichtung hingegen sind im Allgemeinen keine Flugzeiteffekte zu befürchten. Der Einfluss von Flugzeiteffekten kann durch relatives Verschieben von Anregungs- und Beobachtungsvolumen überprüft werden. Abhilfe kann auch durch eine unscharfe Abbildung des Anregungsgebietes auf den Eintrittsspalt des Monochromators geschaffen werden.

Aufgrund der schnellen Expansion und Thermalisierung stehen höhere Ionisationsstufen und hochliegende metastabile Zustände nur für kurze Zeiten zur Verfügung. Für Messungen an hochangeregten oder hochionisierten Atomen rückt daher das Zeitfenster, in dem ausreichende Signalstärken vorliegen, näher an den Zeitpunkt der Plasma-Entstehung heran. Die Atome können dann gegebenenfalls nicht mehr im Sinne einer Lebensdaueremessung als ungestört betrachtet werden.

Ein Emissionsspektrum eines lasererzeugten Aluminiumplasmas 20 ns nach Abklingen des Lasers zeigt Abb. 3.5. Zu sehen sind die Resonanzlinien des doppelt ionisierten Aluminiums, radial und spektral aufgelöst. Die starke Linienverbreiterung ist ein Indiz dafür, dass dieses Plasma-Regime für die Messung atomarer Lebensdauern ungeeignet ist.

Als Störeinflüsse, die auszuschließen sind, seien insbesondere *Quenching* und optische Dicke (*radiation trapping*) genannt. Der Ausschluss dieser Effekte erfolgt üblicherweise über eine Variation der Plasma-parameter. Dies geschieht durch Variation des Zeitversatzes zwischen Plasmaerzeugung und Fluoreszenzmessung und der Änderung des Abstandes von Anregungsvolumen und *Target*-Oberfläche.

Abbildung 3.6 illustriert die zeitliche Expansion eines lasererzeugten Aluminiumplasmas anhand orts aufgelöster Kurzzeitphotographien der Kontinuumemission. Durch ein langbrennweitiges Mikroskop der Firma Questar vom Typ QM1 wurde das Plasma auf die Photokathode ei-

Kapitel 3. Experimentelle Details

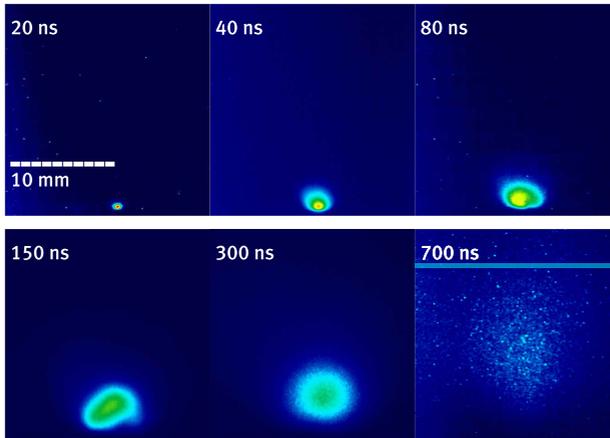


Abbildung 3.6.: Expansion eines lasererzeugten Aluminiumplasmas

ner intensivierten CCD-Kamera vom Typ Dicom 2 der Firma PCO abgebildet. Nach den angegebenen Zeitpunkten wurde die Emission räumlich und zeitlich aufgelöst breitbandig im Infrarotbereich detektiert. Die Belichtung wurde dabei um mehrere Größenordnungen variiert. Die horizontal liegende *Target*-Oberfläche befindet sich in dieser Sequenz jeweils mittig am unteren Bildrand. Exemplarisch für eine LIF-Messung ist im letzten Bild die Position des Anregungslasers dargestellt.

Der Abstand des Anregungsvolumens von der *Target*-Oberfläche beträgt für LIF-Messungen typischerweise einige Zentimeter. Die Verzögerung zwischen Plasmaerzeugung und Fluoreszenz-Messung liegt zu meist im Bereich von Mikrosekunden.

Die Kinetik des Plasmas kann wesentlich beeinflusst werden, indem ein Hintergrundgas verwendet wird. Durch die Wahl des Druckes lassen sich Temperaturverlauf, Leuchtdauer und Ionisationsgrad in weiten Bereichen variieren.

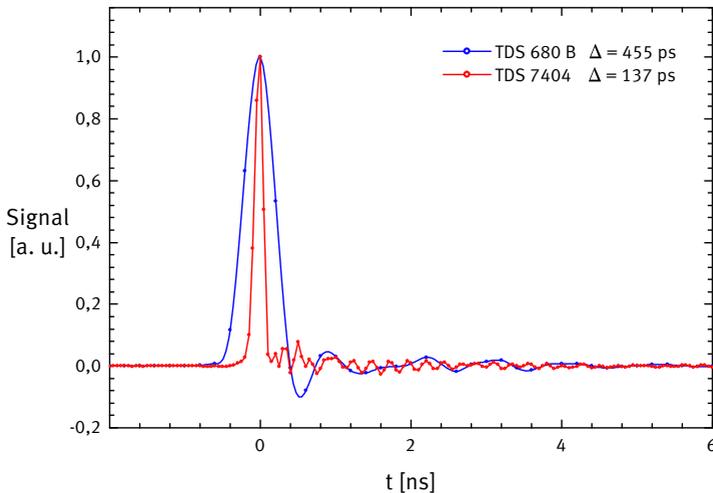


Abbildung 3.7.: Das Apparateprofil der Photoröhre, registriert mit verschiedenen Speicheroszilloskopen

3.3. Detektion

3.3.1. Detektion des Laserpulsprofils

Zur Detektion des zeitlichen Laserpulsprofils wurden zwei Photoröhren der Firma Hamamatsu vom Typ R1328U-02 eingesetzt. Diese Detektoren zeichnen sich durch eine hohe analoge Bandbreite bei vergleichsweise geringer Effizienz und Verstärkung aus. Trotzdem reichte im Experiment die Auskopplung einiger Nanojoule aus, um ein Signal mit hoher Dynamik zu erlangen, dessen Signal-zu-Rausch-Verhältnis durch das Digitalisierungsrauschen der Speicheroszilloskope begrenzt war. Die spektrale Empfindlichkeit der Photoröhren reicht vom sichtba-

Kapitel 3. Experimentelle Details

ren Bereich bei 650 nm bis in den nahen Vakuum-UV-Bereich bei etwa 185 nm.

Die Anstiegszeit der Photoröhren, welche mit 60 ps angegeben wird, wurde in Verbindung mit dem Speicheroszilloskop TDS 7404 zu 97 ps bestimmt. Die analoge Bandbreite des Detektors übertrifft selbst die des schnelleren verwendeten Oszilloskops. Die volle Halbwertsbreite betrug dabei 137 ps und konnte im Vergleich zu Messungen mit dem langsameren TDS 680 etwa um den Faktor drei reduziert werden.

Die Apparatefunktion wurde im Einzelpulsmodus aufgenommen. Als näherungsweise δ -förmiges Signal diente dabei ein Femtosekundenlaser-System, das bei [Wellegehausen u. a. 1996] beschrieben wird. Eine Folge von bis zu 5000 Pulsen wurde mit der in Abschnitt 4.2.1 beschriebenen Methode in ein Signal- und Rauschspektrum umgewandelt. Die daraus konstruierte Filterfunktion wurde in die Apparatefunktion integriert.

Um die Qualität der Entfaltung und die Aussagekraft des so erhaltenen zeitlichen Verhaltens des Laserpulses zu untersuchen, wurde der Laser mit zwei Photoröhren gleichzeitig detektiert. Abbildung 3.8 zeigt, dass die von beiden Photoröhren detektierten Signale nach der Entfaltung unter Verwendung der Techniken von Kapitel 4.2.1 gut übereinstimmen. Die Unsicherheit in der Bestimmung der Intensität beträgt etwa 5 bis 10 % der Maximalintensität. Diejenigen Abweichungen, welche am stärksten in Bereichen geringer Intensität ausfallen, sind vermutlich ein zeitliches Phänomen analog zu *Blends* in der Emissionsspektroskopie – die Information über ein schwaches Signal wird durch ein großes Signal in der Nähe nachhaltig gestört. Mit der redundanten Messung kann auch ausgeschlossen werden, dass es sich bei der zeitlichen Struktur um eine Folge von Interferenzeffekten an den Auskoppeloptiken handelt. Eine ähnliche Messung, die den Einsatz zwei-

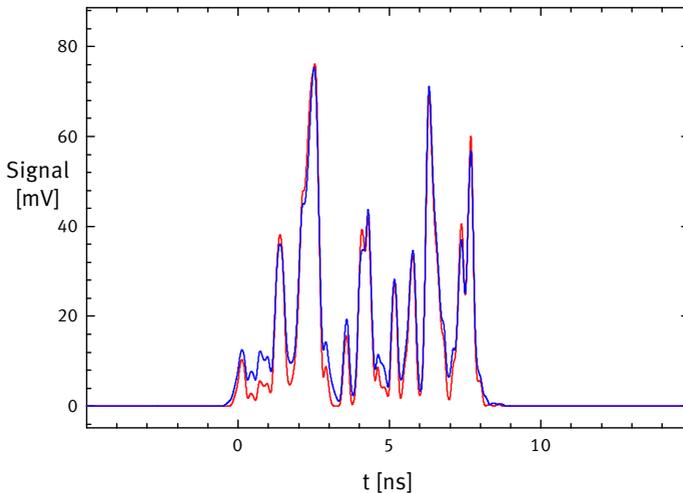


Abbildung 3.8.: Gleichzeitige Messung des zeitlichen Laserpulsprofils mit zwei unabhängigen Detektoren

er Photoröhren erforderte, konnte zur Vermessung der raumzeitlichen Korrelation des Laserpulses (siehe Abschnitt 3.4.2) verwendet werden. Auf die Aufnahme von aufaddierten Einzelpuls-Histogrammen mit einer CCD-Kamera, wie sie bei [Schnabel 1999] durchgeführt wurde, ist in dieser Arbeit verzichtet worden. Die Abweichungen zwischen dem gemessenen Histogramm eines Einzelpulses und dem berechneten Histogramm einer TEM_{00} -Mode sind gering. Eine entscheidende Information des aufaddierten Einzelpuls-Histogramms ist daher die fluktuierende Pulsenergie. Die verbesserte Übereinstimmung von Messdaten und berechneter Kurve bei Verwendung eines Histogramms ist also vermutlich nicht nur ein Effekt der Berücksichtigung der räumlichen Intensitätsverteilung, sondern auch eine Folge der impliziten Berücksichtigung der Energieschwankungen im Laserpuls.

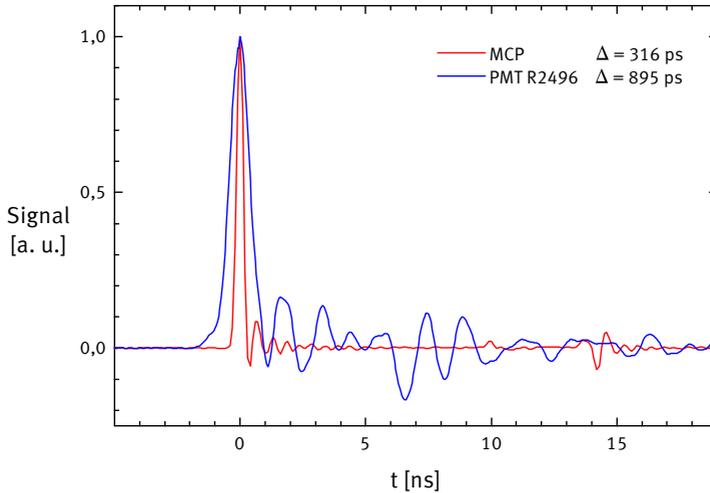


Abbildung 3.9.: Apparatefunktionen von *Photomultiplier* und *Microchannel Plate*

3.3.2. Detektion des Fluoreszenzlichtes

Die Detektion des Fluoreszenzlichtes erfolgt durch Abbildung auf die Photokathode eines *Photomultipliers* oder einer *Microchannel Plate* (MCP). Da bei fast allen Messungen Übergänge im UV- und VUV-Bereich verwendet wurden, wurden dazu Optiken aus Quarz, Magnesiumfluorid oder Lithiumfluorid verwendet. Bei Messungen mit einer Hohlkathodenentladung als Teilchenquelle kann auf wellenlängenselektive Elemente im Detektionskanal verzichtet werden. Bei der Verwendung von lasererzeugten Plasmen hingegen wurde ein VUV-Monochromator der Firma Oriol mit einer fokalen Länge von 20 cm eingesetzt, um die intensivierten Detektoren vor Streulicht vom Ablationslaser zu schützen und

verfälschende Einflüsse des Rekombinationsleuchtens aus dem Ablationsplasma auszuschließen.

Als Detektoren kamen ein *Head-On-Photomultiplier* der Firma Hamamatsu vom Typ R2496 und im Vakuum-UV-Bereich eine deutlich schnellere *Photomultiplier-Microchannel Plate* vom Typ 3809U-58, ebenfalls von Hamamatsu, zum Einsatz. Beide Detektoren weisen eine hohe Verstärkung zum Nachweis von Einzelphotonen und eine spektrale Bandbreite bis in den nahen Vakuum-UV-Bereich auf. Ihre Spezifikationen sind Tabelle 3.1 zu entnehmen.

Ihre Antwortfunktionen, gemessen als Signal auf Einzelphotonen sind in Abb. 3.9 zu sehen. Die Apparatefunktionen wurden im Einzelpulsbetrieb aufgenommen. Der aufgrund der hohen statistischen Verstärkung der Einzelphotonensignale auftretende *Jitter* wurde durch Anwendung des in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Korrekturverfahrens kompensiert. Wegen der im Vergleich zum Oszilloskop deutlich geringeren analogen Bandbreite des *Photomultipliers* R2496 stimmt die gemessene volle Halbwertsbreite von 895 ps gut mit den Spezifikationen überein. Die analogen Bandbreiten von MCP und Oszilloskop hingegen sind von gleicher Größenordnung. Die gemessene volle Halbwertsbreite der MCP von 316 ps liegt daher etwa 15 % über dem spezifizierten Wert.

Typ	U	G	t_{rise}	t_{FWHM}	Spektralbereich
R2496	1200 V	10^6	700 ps	900 ps	160 - 650 nm
3809U-58	2800 V	$2 \cdot 10^5$	167 ps	274 ps	115 - 850 nm

Tabelle 3.1.: Betriebsdaten von *Photomultiplier* und *Microchannel Plate*; U: Betriebsspannung, G: Verstärkung, t_{rise} : Anstiegszeit, t_{FWHM} : volle Halbwertsbreite der Apparatefunktion

3.3.3. Transientenrekorder

Es kamen zwei verschiedene Transientenrekorder zum Einsatz:

- ein Tektronix TDS 680 B mit einer analogen Bandbreite von 1 GHz und einem minimalen Messpunkt-Abstand von 200 ps,
- ein Tektronix TDS 7404 mit einer analogen Bandbreite von 4 GHz und einem minimalen Messpunkt-Abstand von 50 ps bzw. 100 ps im für Sättigungs-LIF-Messungen relevanten Zweikanalbetrieb.

Das zweite Gerät zeigt also eine verbesserte analoge Bandbreite und Abtastrate (vgl. Tabelle 3.2), stand jedoch nur begrenzte Zeit zur Verfügung. Es wurde daher vor allem zur Charakterisierung des Lasersystems und zur Messung kurzer Lebensdauern (Ni I, Al III) eingesetzt.

Bei bisherigen Messungen des zeitlichen Laserprofils mit Hilfe der Photoröhre erwies sich die analoge Bandbreite des verwendeten Transientenrekorders als eine begrenzende Größe. Durch Verwendung des schnelleren TDS 7404 reduzierte sich die Halbwertsbreite der Apparatfunktion der Photoröhre um 70 % (siehe Abb. 3.7).

Aufgrund der kurzen Nutzungsdauer musste die Gerätesteuerung für den TDS 7404 innerhalb kürzester Zeit implementiert werden. Daher war von großem Vorteil, dass der GPIB-Befehlssatz von TDS 680 B und TDS 7404 nahezu identisch war und die Ansteuerung mittels der Technik der Vererbung sehr effizient programmiert werden konnte.

Typ	ν	SR1	SR2	Kanäle
TDS 680 B	1 GHz	$5 \cdot 10^9/s$	$5 \cdot 10^9/s$	2
TDS 7404	4 GHz	$20 \cdot 10^9/s$	$10 \cdot 10^9/s$	4

Tabelle 3.2.: Analoge Bandbreite ν , Samplerraten im Ein- und Zweikanalbetrieb (SR1, SR2) und Kanalzahl der verwendeten Speicheroszilloskope

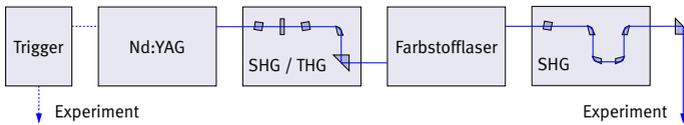


Abbildung 3.10.: Schematischer Aufbau der verwendeten durchstimmbaren Pulslasersysteme

3.4. Lasersystem

Um Atome von einem spezifischen Zustand aus gezielt in einen höherliegenden Zustand anzuregen, benötigt man durchstimmbare, schmalbandige Laserstrahlung. Andererseits muss der Laser die gesamte verbreiterte Profilkfunktion des Übergangs überdecken, um mit der Breitbandanregung die Voraussetzungen für die Gültigkeit der Rotengleichungen zu erfüllen. Außerdem soll die Pulsdauer des Lasers möglichst deutlich kürzer als die der zu vermessenden Lebensdauern sein.

Es wurden zwei verschiedene Lasersysteme eingesetzt, die sich in Pulsdauer und -energie und dem zugänglichen Wellenlängenbereich unterscheiden. Es handelt sich um Farbstoff- oder Titan:Saphir-Laser, welche in beiden Fällen von einem Nd:YAG-Laser gepumpt werden. Anschließend kann eine weitere Frequenzkonversion mit Hilfe nichtlinearer Kristalloptik, Raman-Streuung oder Vierwellenmischung erfolgen.

3.4.1. Nd:YAG-Laser

Bei den verwendeten Pumplasern handelt es sich um Blitzlampengepumpte, gütegeschaltete Nd:YAG-Laser vom Typ Continuum NY82-10 bzw. Spectraphysics DCR 2A mit einer Pulsfrequenz von 10 Hz. Beide Systeme erlauben eine Optimierung des räumlichen, zeitlichen und

Kapitel 3. Experimentelle Details

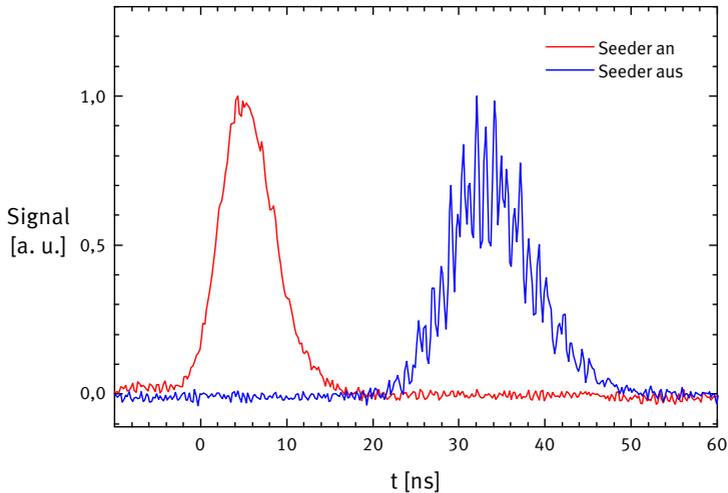


Abbildung 3.11.: Vergleich des zeitlichen Laserprofils des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers mit und ohne *Seeder*

spektralen Profils durch Anwendung eines sogenannten *Seeders*. Dies ist ein Laser geringer Leistung, jedoch mit hoher Strahlqualität. Er liefert die Photonen zum Abräumen der Inversion im Hauptlaser und überträgt so seine guten Strahleigenschaften auf den leistungsstarken Puls. Die Wirkung eines *Seeders* wird im Vergleich der zeitlichen Pulsprofile deutlich. Während bei einer Datenaufnahme mit der üblichen Mittelung beide Pulse in guter Näherung durch eine Gauss-Funktion beschrieben werden und sich lediglich in der Halbwertsbreite unterscheiden, zeigt sich die eigentliche Verbesserung des zeitlichen Strahlprofils im Einzelpulsbetrieb (Abb. 3.11): Ist im Normalbetrieb noch eine deutliche Modenstruktur (*Spiking*) zu erkennen, verschwindet diese bei Aktivierung des *Seeders* fast vollständig.

Im Leistungsspektrum zeigt sich, dass die Anwendung des *Seeders* zu

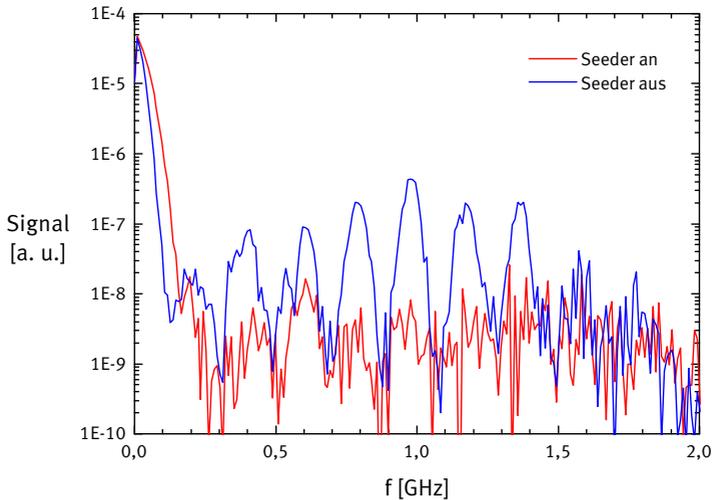


Abbildung 3.12.: Vergleich der Leistungsspektren des Nd:YAG-Lasers mit und ohne *Seeder*

Fourier-limitierten Pulsen führt. Die spektrale Breite des Hauptmaximums vergrößert sich aufgrund der verkürzten Pulsdauer von 50 MHz auf 70 MHz. Die Seitenbänder, die im Betrieb ohne *Seeder* bis zu einer Grenzfrequenz von etwa 1,5 GHz existieren, werden unterdrückt. Im langzeitigen Mittel führt eine fluktuierende Trägerfrequenz zu einer weiteren Verbreiterung des spektralen Profils auf bis zu 30 GHz. Auch diese Drift wird durch den *Seeder* wesentlich reduziert und führt zu einer Gesamtliniensbreite von etwa 100 MHz.

Die Unterdrückung der Seitenbänder ist von entscheidender Bedeutung, wenn die stimulierte Brillouin-Streuung zur Pulsverkürzung verwendet wird (vgl. Abschnitt 3.4.3). Pulse, welche nicht Fourier-limitiert sind, können Pulsspitzen mit ausreichender Leistungsdichte enthalten, um das Brillouin-Medium zu zerstören. Wird, wie in den im Rah-

Kapitel 3. Experimentelle Details

men dieser Arbeit durchgeführten Messungen, destilliertes Wasser als Medium verwendet, sind mikroskopische Gasbläschen die Folge, die nur sehr langsam aufsteigen und durch Mie-Streuung die Pulsverkürzung behindern.

Die Wellenlänge der Nd:YAG-Laser liegt bei 1064 nm und wird in temperaturstabilisierten KDP-Kristallen frequenzverdoppelt oder -verdreifacht, bevor sie zum Pumpen der durchstimmbaren Farbstofflasersysteme verwendet wird. Optional kann eine Pulskompression mittels stimulierter Brillouin-Streuung erreicht werden (siehe Abschnitt 3.4.3). Die Leistungsdaten der verwendeten Nd:YAG-Lasersysteme sind in Tabelle 3.3 angegeben.

Laser	E@532 nm	Δt @532 nm	E@355 nm	Δt @355 nm
DCR 2 A	150 mJ	10 ns	55 mJ	5 ns
NY82-10	400 mJ	8 ns	-	-

Tabelle 3.3.: Pulsenergien und -dauern für die verwendeten Pumpwellenlängen der Nd:YAG-Laser (Daten jeweils ohne SBS-Kompression)

3.4.2. Farbstofflaser

Zur Erzeugung gepulster schmalbandiger Laserstrahlung zur Anregung der Atome wurden Farbstofflaser vom Typ Lambda Physik LPD 3002 und Continuum ND 60 verwendet. Beide Systeme sind in Aufbau und Spezifikationen ähnlich, das Continuum-System erlaubt jedoch höhere Pulsenergien. Die Beschreibung konzentriert sich auf den LPD 3002, der für die meisten Experimente verwendet und detaillierter charakterisiert wurde.

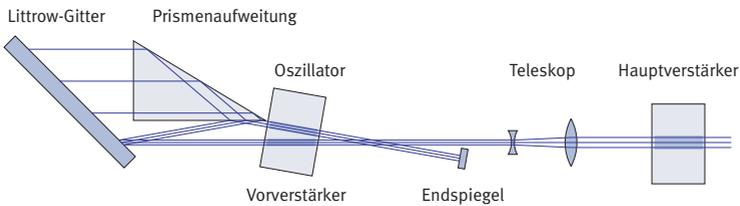


Abbildung 3.13.: Prinzipskizze des Farbstofflasers

Aufbau

Bei beiden Modellen handelt es sich um eine Kombination aus transversal gepumptem Oszillator, Vor- und Hauptverstärker. Im Falle des LPD 3002 werden verschiedene Regionen innerhalb einer gemeinsamen Küvette als Inversionsgebiet für Oszillator und Vorverstärker benutzt (siehe Abb. 3.13).

Der Resonator des LPD 3002 ist vom Typ eines offenen *Multiple-Prism-Littrow*-Resonators (MPL) [Duarte und Hillman 1998]. Die Wellenlängenselektion geschieht durch Verkippen eines Gitters in Littrow-Anordnung mit 600 Strichen/mm. Eine Schrittmotorsteuerung ermöglicht die Wahl der Gitterposition. Die Schrittweite beträgt 3.15 pm pro Gitterordnung, welches bei den hier vorgestellten Messungen in fünfter bis siebter Ordnung betrieben wurde. Bei zusätzlicher Frequenzverdopplung ergeben sich Schrittweiten zwischen 0.23 und 0.32 pm.

Mit einer Strahlaufweitung durch mehrere Prismen kann eine Ausleuchtung des Gitters für größere Einfallswinkel erreicht werden, was zu einer Reduktion der Reflexionsverluste führt. Die Oberfläche eines Prismas dient als Strahlteiler zur Auskopplung des Laserstrahls, der nochmals am Gitter gebeugt wird. Der Anteil der verstärkten spontanen Emission (*amplified spontaneous emission* – ASE) wird dadurch auf wenige Promille der Pulsleistung reduziert [Demtröder 1998].

Kapitel 3. Experimentelle Details

Nach der Vorverstärkung erfolgt eine Aufweitung und Kollimation des Laserstrahls in einem strahlaufweitenden Teleskop und die anschließende Hauptverstärkung.

Optional ist eine Frequenzverdopplung in temperaturstabilisiertem Kalium-Dihydrogen-Phosphat (KDP) oder in β -Barium-Borat-Kristallen (BBO) möglich. Die Kristalle werden zusammen mit einer Kompensationsplatte durch eine sogenannte *Tracking unit* verkippt. Diese ermöglicht das strahlversatzfreie synchrone Durchstimmen von Gitter, Verdopplungskristall und Kompensationsplatte und erlaubt so die Aufnahme von Spektren auch für den frequenzverdoppelten Laser.

Der zugängliche Wellenlängenbereich der Farbstofflaser erstreckt sich von 380 bis 1040 nm, wenn als Pumplaser die ersten und zweiten Harmonischen eines Nd:YAG-Lasers verwendet werden. Der Bereich vergrößert sich durch Anwendung der Frequenz-Verdopplung bis hinab zu 206 nm. In einigen Fällen (in Kombination mit dem Continuum ND 60) wurde eine Frequenzverdreifung durch Mischung von Fundamentaler und erster Harmonischer in einem BBO-Kristall vorgenommen.

Die maximal möglichen Pulsenergien E_{\max} und die minimalen Pulsdauern Δt_{\min} und Linienbreiten $\Delta \nu_{\min}$ sind für beide Systeme in Tabelle 3.4 aufgelistet. Im Fall des LPD 3002 wird dabei von einem frequenzverdreifachten Nd:YAG-Laser als Pumplichtquelle ausgegangen. Die Daten des Continuum ND 60 gelten für einen frequenzverdoppelten SBS-komprimierten Nd:YAG-Laser als Pumplaser (siehe Abschnitt 3.4.3), da diese Konfiguration für alle Messungen mit diesem Farbstofflaser verwendet wurde.

Laser	E_{\max}	Δt_{\min}	$\Delta \nu_{\min}$
Lambda Physik LPD 3002	5 mJ	5 ns	5.4 GHz
Continuum ND 60	15 mJ	0.7 ns	1.5 GHz

Tabelle 3.4.: Eigenschaften der verwendeten Farbstofflaser

Separabilität

Das am Detektor beobachtbare partiell gesättigte Fluoreszenzsignal ist gemäß Gl. 1.23 abhängig vom räumlichen, zeitlichen und spektralen Strahlprofil des Lasers. Da die vollständige Information über das Laserprofil der einzelnen Pulse schwer zu erlangen ist, beschreibt man den Puls durch ein Produkt von Verteilungsfunktionen für die einzelnen unabhängigen Variablen (Separationsansatz):

$$\rho(r, t, \nu) = I_0 \cdot f_r(r) \cdot f_t(t) \cdot f_\nu(\nu). \quad (3.1)$$

Die Separabilität des Lasers ist keinesfalls selbstverständlich: Das Auftreten zweier zeitlich wie räumlich versetzter Moden würde im räumlichen und zeitlichen Profil zu jeweils zwei Maxima führen. Die in diesem Falle fälschliche Annahme der Separabilität würde dies gemäß Gl. 3.1 als vier Maxima in der räumlich-zeitlichen Verteilung interpretieren.

Der Laser lässt sich auf Separabilität untersuchen, indem der zeitliche Verlauf an zwei Punkten des räumlichen Profils verglichen wird. Im Falle der Breitbandanregung ist die spektrale Verteilung f_ν wesentlich breiter als das Absorptionsprofil des Atoms und damit inhärent als Konstante abseparierbar. Ein reproduzierbares räumliches Profil kann in Form eines Histogramms berücksichtigt werden.

Zeitliche Modenstruktur

Beim Aufmitteln des zeitlichen Profils ergibt sich nach Entfaltung mit dem Apparateprofil des Detektors ein ca. 5-10 ns breiter Puls mit einer mehr oder weniger ausgeprägten Modenstruktur. Werden hingegen einzelne Pulse zur Auswertung herangezogen, lässt sich die Wahrscheinlichkeitsdichte einer bestimmten Intensität I zu einem Zeitpunkt t in Form eines zweidimensionalen Histogramms darstellen. Eine Falsch-

Kapitel 3. Experimentelle Details

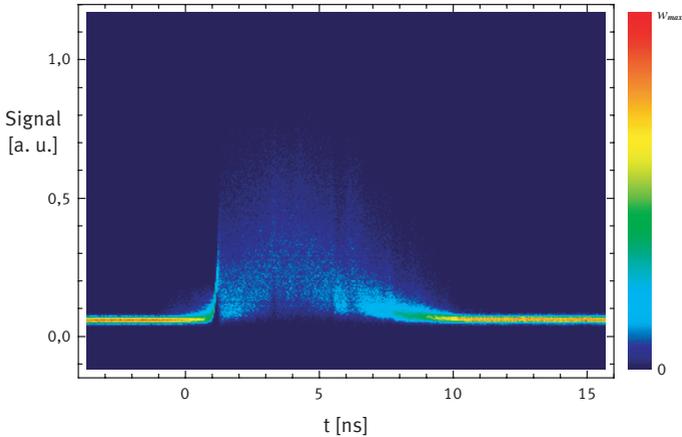


Abbildung 3.14.: Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung der zeitabhängigen Intensität

farbendarstellung eines solchen Histogramms für $w(I, t)$ zeigt Abb. 3.14 für den Farbstofflaser LPD3002. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Vorhersagbarkeit der Intensität nach Anschwingen des Lasers ausgesprochen schlecht ist.

Ursache hierfür sind Änderungen der Resonatorlänge durch Brechungsindexfluktuationen im Farbstoff. Zusammen mit dem Vorgang der Modenkonkurrenz resultieren sie in einem instabilen zeitlichen Interferenzbild der Multimodenstrahlung [Demtröder 1998, Seite 255ff].

Die Pulsenergie ist mit einer relativen Standardabweichung von etwa 12.4 % deutlich stabiler und folgt den Energieschwankungen des Pump lasers. Der Laserpuls lässt sich also nicht durch ein konstantes zeitliches Profil zusammen mit einem Histogramm der Pulsenergie beschreiben. Die Energie verteilt sich innerhalb des Pulses für jeden Puls neu. Dies ist in Abbildung 3.15 zu sehen. Jeder Einzelpuls besteht aus einer Folge kurzer Sub-Pulse, im Folgenden zur besseren Unterscheidung

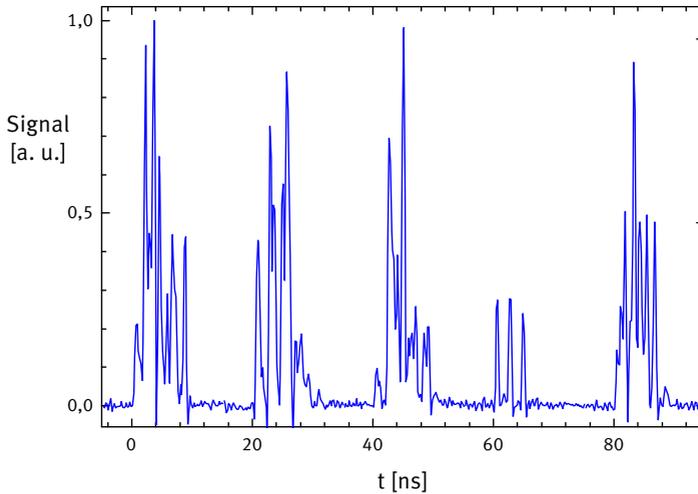


Abbildung 3.15.: Puls-zu-Puls-Fluktuationen des zeitlichen Laserpulsprofils (der zeitliche Abstand der Pulse ist verkürzt dargestellt)

Spikes genannt. Ein Puls enthält zwischen drei und zwanzig solcher *Spikes*. Die einzelnen Pulse werden nicht annähernd durch das aufgemittelte Profil wiedergegeben. Sie unterscheiden sich untereinander in der Anzahl, den zeitlichen Abständen und den relativen Höhen der einzelnen *Spikes*. Eine Aufteilung der Einzelpulse in Klassen mit ähnlichem zeitlichen Verlauf ist aufgrund der großen Formenvielfalt nicht sinnvoll möglich.

Auffällig ist dabei, dass der Laserpuls ausschließlich aus sehr kurzzeitigen Strukturen zusammengesetzt ist. Abbildung 3.16 zeigt eine Wahrscheinlichkeitsverteilung der *Spike*-Breiten. Als *Spike* wurde dabei jede Struktur gewertet, welche eine vorgegebene Signalschwelle übersteigt.

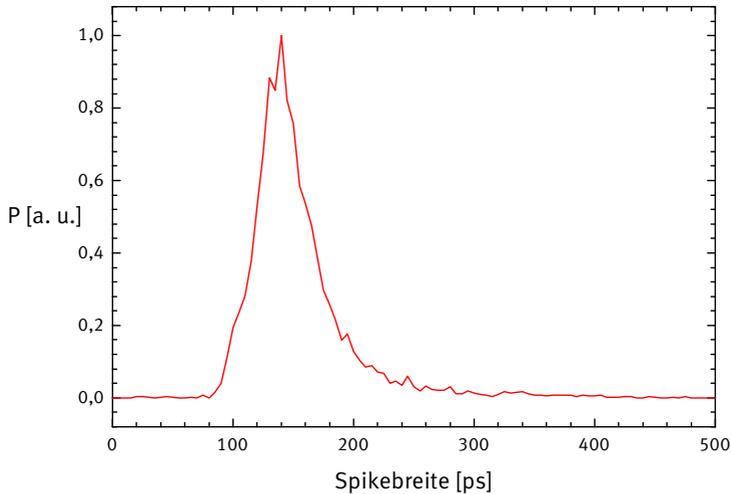


Abbildung 3.16.: Pulsbreitenverteilung der *Spikes* im Einzelpuls

Die Verteilung ist weitgehend unabhängig vom gewählten Schwellwert, solange dieser nur deutlich über dem Rauschpegel liegt. Die *Spikes* sind im Mittel 140 ps breit, Strukturen mit einer Breite von mehr als 300 ps kommen nicht vor.

Spektrale Modenstruktur

Ohne den Einsatz eines optionalen Etalons zwischen Prismenaufweitung und Littrow-Gitter liefert das Farbstoff-Lasersystem Multimoden-Laserstrahlung. Die Linienbreite des Lasers wird beim Betrieb mit Rhodamin 6G mit 0.18/cm angegeben, dies entspricht etwa 5.4 GHz oder 6 pm. Messungen der frequenzverdoppelten Laserstrahlung mit einem 2m-Echelle-Spektrographen ergaben eine Linienbreite von 12 GHz bei

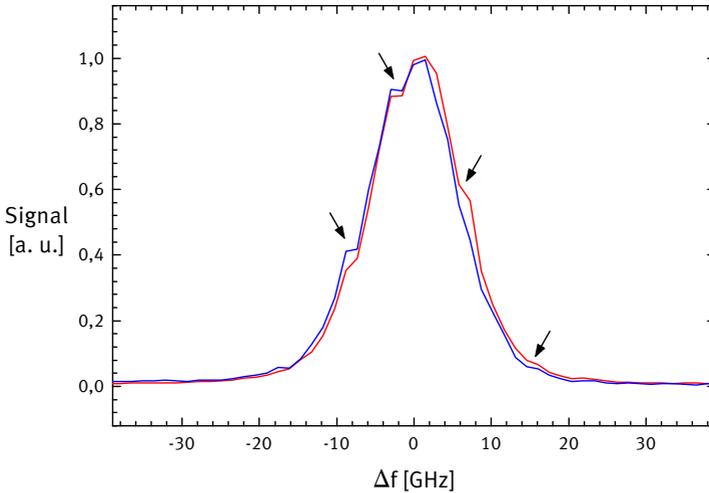


Abbildung 3.17.: Messung des spektralen Laserprofils per Durchstimmen des Lasers über eine atomare Linie

einer Wellenlänge von 230 nm [Schnabel 1999], was einer ähnlichen relativen spektralen Breite entspricht. In Abb. 3.17 sind zwei Messungen des gemittelten Linienprofils des Lasers durch einen Scan über eine atomare Linie dargestellt. Dies entspricht einer Aufnahme des Profils mit einem Spektrographen, dessen Apparatefunktion das Linienprofil des Atoms ist. Dessen Halbwertsbreite kann auf unter 2 GHz abgeschätzt werden. Das Auflösungsvermögen und der Messpunktanstand von 0,23 pm ermöglichen die Beobachtung einer reproduzierbaren spektralen Unterstruktur (Einkerbung am Maximum und an den Flanken). Nach Herausrechnen der atomaren Linienbreite ergibt sich eine für die Breitbandanregung hinreichende spektrale Breite von 12.2 ± 0.3 GHz, was gut mit den Angaben bei [Schnabel 1999] übereinstimmt.

Räumliche Modenstruktur

Das durch Blenden beschnittene räumliche Profil des Lasers zeigt, wenn es mit einer CCD-Kamera aufgenommen wird, eine gute Puls-zu-Puls-Reproduzierbarkeit und eine Intensitätsverteilung, deren Histogramm nur unwesentlich vom dem einer TEM₀₀-Mode abweicht. Aufgrund der Zeitauflösung des CCD-Chips kann auf diese Weise jedoch nur die über die Pulsdauer gemittelte räumliche Intensitätsverteilung gemessen werden. Um festzustellen, ob in verschiedenen Raumgebieten der Laserpuls durch ein identisches Zeitverhalten beschrieben wird, wurde die Korrelation zweier zeitlicher, an verschiedenen Orten gemessener Pulsprofile bestimmt.

Eine normierte Form der Korrelationsfunktion lässt sich formulieren als

$$K_{fg} = \max_{\Delta t} \frac{\int_{-\infty}^{\infty} f(t) \cdot g(t - \Delta t) dt}{\sqrt{\int_{-\infty}^{\infty} f^2(t) dt \int_{-\infty}^{\infty} g^2(t) dt}}. \quad (3.2)$$

Die Korrelation einer Funktion mit sich selbst ist offensichtlich 1, die zweier statistisch um den Nullpunkt schwankender Rauschsignale 0. Da die so definierte Funktion für zwei auf positive Werte beschränkte, unkorrelierte Rauschsignale 0.75 beträgt, kann man für positive Funktionen (wie z. B. eine Intensität) eine modifizierte Korrelationsgröße angeben:

$$K_{fg}^+ = 4 \left(K_{fg} - \frac{3}{4} \right). \quad (3.3)$$

Zur Messung der Korrelation wurde der Strahl mit einem Strahlteiler auf zwei Photoröhren verteilt und jeweils durch eine 0.5 mm-Blende beschnitten. Durch eine weitere Blende vor dem Strahlteiler konnte der Nullpunkt des räumlichen Versatzes der Photoröhren gefunden werden. Während die eine Photoröhre am Ort maximaler Intensität ver-

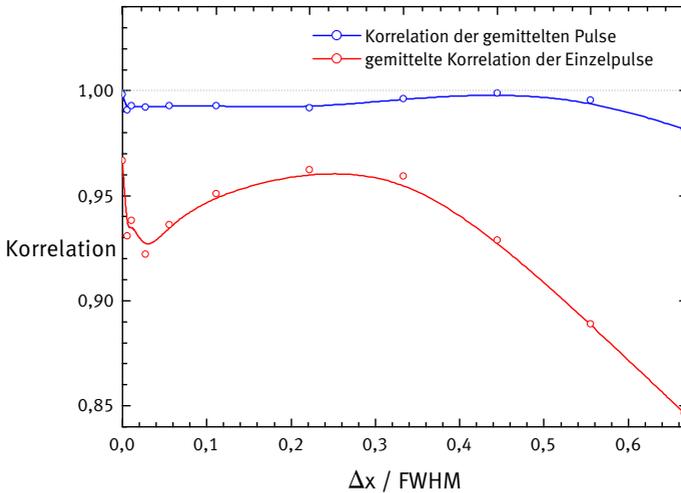


Abbildung 3.18.: Raumzeitliche Korrelation des Laserprofils

blieb, wurde die andere nach Entfernen der Justierblende verschoben. Für verschiedene Relativpositionen wurde jeweils eine Pulsfolge von 1000 Pulsen aufgenommen.

Die Bestimmung von K_{fg}^+ erfolgte, indem der eine Datensatz der einen Photoröhre durch Verschieben und vertikales Skalieren an den der anderen Photoröhre angepasst wurde (jeweils nach Entfaltung mit der jeweiligen Apparatefunktion, siehe Abschnitt 4.2.1). Dies war zugleich ein Stabilitäts- und Geschwindigkeitstest für das in Abschnitt 4.3.2 vorgestellte nichtlineare Regressionsverfahren. Die Anpassung von 10000 Messkurven benötigte 100 Minuten bei jeweils 7 bis 20 Iterationen bis zum Erreichen der Konvergenz. Das Ergebnis ist in Abb. 3.18 für die Korrelation der Einzelpulse und ihrer Mittel dargestellt. Es zeigt ein scharfes Hauptmaximum bei verschwindender Distanz und ein weiches Nebenmaximum bei einem Versatz von etwa 0.2 Halbwertsbreiten, wel-

Kapitel 3. Experimentelle Details

ches eine Folge von Symmetrien des Laserstrahls sein könnte.

Die gemittelte Kurve täuscht eine bessere Korrelation vor, ihr Wert geht für einen Versatz von 0.6 Halbwertsbreiten nur um 6% zurück.

Wird das räumliche Profil auf etwa die halbe Halbwertsbreite beschnitten, geht der Wert der Korrelation nur um etwa 10 % gegenüber dem maximal gemessenen zurück. Man kann dann von einem in guter Näherung separablen raumzeitlichen Laserpulsprofil ausgehen.

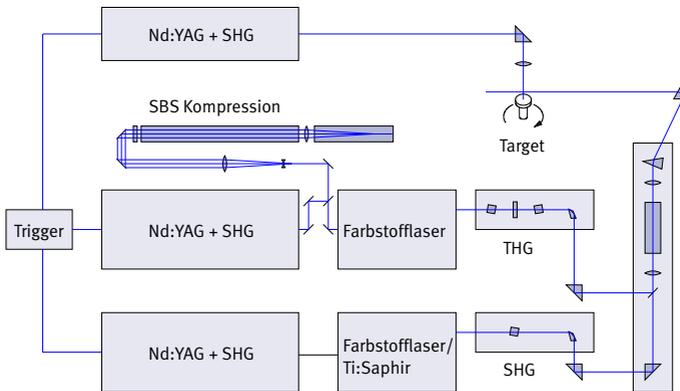


Abbildung 3.19.: VUV-Lasersystem

3.4.3. Besonderheiten des VUV-Lasersystems

Das VUV-Lasersystem im Lund Laser Center (LLC) ist ebenfalls ein durch Nd:YAG-Laser gepumptes, durchstimmbares Farbstoff- bzw. Titan-Saphir-Lasersystem (vgl. Abb. 3.19). Es weist jedoch zwei Besonderheiten auf: Durch stimulierte Brillouin-Streuung kann ein Fourier-limitierter Pumpimpuls zeitlich um einen Faktor von etwa 20 komprimiert werden. Durch Anwendung der stimulierten Raman-Streuung und Vierwellenmischung ist die Erzeugung von Vakuum-UV-Laserstrahlung bis etwa 120 nm möglich.

Stimulierte Brillouin-Streuung

Ein Phonon der Frequenz ω_p in einem Medium lässt sich als Dichtefluktuation auffassen, welche bei Einstrahlen eines Lasers der Frequenz ω_0 zu einer Zunahme an Rayleigh-Streulicht der Frequenz ω_R führt. Die beteiligten Frequenzen sind aus Gründen der Energieerhaltung über

Kapitel 3. Experimentelle Details

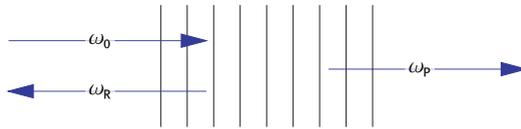


Abbildung 3.20.: Prinzipskizze zur stimulierten Brillouin-Streuung

$\omega_0 = \omega_P + \omega_R$ verknüpft (siehe Abb. 3.20). Wird das Phonon durch die einfallende Laserstrahlung selbst erzeugt, spricht man von stimulierter Brillouin-Streuung (SBS). Sobald der stimulierte Streuprozess einsetzt, können sich Streulicht und Dichteschwankung durch Interferenz gegenseitig verstärken. Die rückgestreute Welle, die zur einfallenden Welle phasenkonjugiert ist, beinhaltet dann nahezu die gesamte Energie des eingestrahnten Pulses – das induzierte Phonon wirkt wie ein sich mit nahezu Lichtgeschwindigkeit dem Licht entgegenbewegender Spiegel, welcher den einfallenden Puls komprimiert. Eine detaillierte Behandlung der SBS findet sich in [Boyd 1992].

Es gibt zahlreiche Veröffentlichungen zur experimentellen Umsetzung von Pulscompressionsverfahren, welche sich der SBS in flüssigen oder gasförmigen Medien bedienen. Doch erst mit der Arbeit von [Schiemann u. a. 1997] wurde durch SBS in Kohlenstofftetrachlorid, Methanol oder destilliertem Wasser eine Realisierung gefunden, die Kompressionsraten von über 20 mit einer energetischen Effizienz von bis zu 90 % vereinigte.

In der vorliegenden Arbeit wurde eine Oszillator-Verstärker-Konfiguration verwendet, die an [Schiemann u. a. 1997] angelehnt ist und im Detail bei [Norin 1998] beschrieben wurde (siehe Abb. 3.21). Die Pulsdauer des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers, die mit 8 ns nahe dem Fourier-Limit lag, konnte durch SBS in entmineralisiertem Wasser auf bis zu 1 ns verkürzt werden. Für den frequenzverdreifachten Farbstoff-

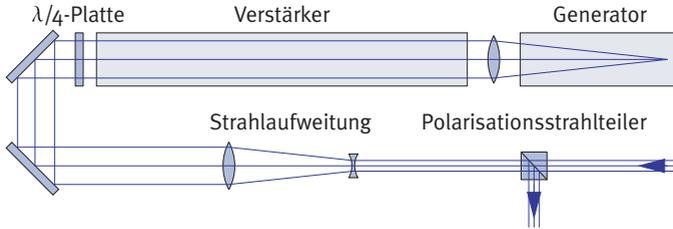


Abbildung 3.21.: Generator-Verstärker-Konfiguration zur Pulsverkürzung mittels stimulierter Brillouin-Streuung

laser konnten so Pulsdauern bis hinab zu 0,7 ns erzielt werden. Die Effizienz des Energietransfers vom eingestrahlichten in den komprimierten Puls liegt bei ca. 25 % und ist durch Reflexions- und Streuverluste begrenzt. Voraussetzung für den Betrieb der Pulskompression ist, dass der Nd:YAG-Laser an einen *Seeder* modengekoppelt wird. Im freilaufenden Betrieb führt das in Abschnitt 3.4.2 dargestellte *Spiking* zur Erzeugung mikroskopischer Gasbläschen im Medium, die nur langsam aufsteigen und das Licht folgender Pulse sehr stark streuen.

Die Verkürzung der Pulsdauer ist für Lebensdaueremessungen mit kurzen Lebensdauern, aber auch allgemein für die Effizienz aller nachgeschalteten nichtlinearen Prozesse von Interesse.

Stimulierte Raman-Streuung

Der Wellenlängenbereich, der durch frequenzvervielfachte Farbstofflasersysteme abgedeckt werden kann, ist zu kurzen Wellenlängen hin begrenzt durch die Eigenschaften der nichtlinearen Kristalle. Für BBO (β -Barium-Borat) liegt diese Untergrenze bei etwa 204,8 nm, obwohl der Kristall bis zu einer Wellenlänge von etwa 190 nm transparent ist [Kato 1986]. Bedient man sich zusätzlich der Frequenzmischung, liegt die Untergrenze mit aktuellen Materialien bei etwa 190 nm.

Kapitel 3. Experimentelle Details

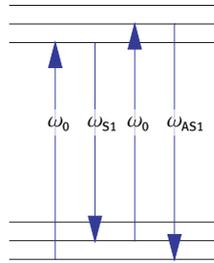


Abbildung 3.22.: Prinzipskizze zur stimulierten Raman-Streuung

Zur Erzeugung kürzerer Wellenlängen kann der Effekt der stimulierten Raman-Streuung (SRS) verwendet werden, welcher als nichtresonante, super- oder inelastische Streuung an Vibrationszuständen molekularer Gase verstanden werden kann. Beim Einstrahlen eines Lasers in ein Molekülgas entsteht ein kammförmiges Streuspektrum, dessen Seitenbandabstand durch den energetischen Abstand zweier Vibrations- oder Rotationszustände gegeben ist [Shen 1984, Kapitel 10]. Der rotverschobene Teil des Streuspektrums, der sogenannte Stokes-Zweig, entsteht, wenn durch die Streuung höhere Vibrations- oder Rotationszustände des Moleküls besetzt werden. Der Anti-Stokes-Prozess transferiert innere Energie aus dem Molekül in das Photon und erhöht dessen Frequenz. Voraussetzung dazu ist eine Besetzung höherer Rotations-Vibrations-Zustände im Gas durch eine ausreichende Temperatur oder durch vorhergegangene Stokes-Streuprozesse (siehe Abb. 3.22). Im letzteren Fall schafft der Laser selbst die Besetzung, man spricht daher von stimulierter Raman-Streuung.

Der energetische Abstand der Vibrationsniveaus ist in Wasserstoff aufgrund des geringen Kerngewichts sehr groß und beträgt 4155 cm^{-1} , was bei einer Laserwellenlänge von ca. 200 nm einer Verschiebung um gut

15 nm entspricht. Da die gestreute Intensität zu höheren Seitenbändern hin rasch abnimmt, wird meist nur ein einzelner Anti-Stokes-Schritt zur Frequenzverschiebung genutzt. Für laserspektroskopische Zwecke geeignete Pulse können daher bis hinab zu etwa 180 nm erzeugt werden.

Im Experiment werden die Fundamente des Farbstofflasers, die erste und die zweite Harmonische gemeinsam in eine mit Wasserstoff gefüllte Raman-Zelle fokussiert, um durch Stokes-Streuprozesse eine möglichst hohe Besetzung in höheren Vibrationszuständen zu schaffen. Die erzeugten Stokes- und Anti-Stokes-Linien werden anschließend mit einem Pellin-Broca-Prisma aus Lithiumfluorid separiert.

Die Absorption in Luft ist bei den so erzielten Wellenlängen noch gering, so dass auf ein Evakuieren des Strahlengangs verzichtet werden kann.

Vierwellenmischung

Die Vierwellenmischung ist ein nichtlinearer Prozess mit vier wechselwirkenden elektromagnetischen Feldern. Sie ist im Falle der schwachen Wechselwirkung der Wellen proportional zur nichtlinearen Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$. Als solche ist sie, im Gegensatz zu Prozessen zweiter Ordnung, in allen Medien, auch solchen ohne ausgezeichnete Raumachsen, möglich. Sie kann daher auch in Gasen durchgeführt werden, was eine Reihe von Vorteilen mit sich bringt: So ist es, im Gegensatz zu Kristallen, ohne weiteres möglich, große Wechselwirkungszonen zu realisieren. Hinzu kommt eine im Vergleich zu nichtlinearen Kristallen höhere Zerstörungsschwelle, wobei die Zerstörung in der Ionisation des Gases besteht. Durch Rekombination regeneriert sich das Medium selbsttätig („Selbstheilung“).

Kapitel 3. Experimentelle Details

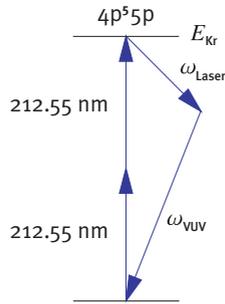


Abbildung 3.23.: Prinzipskizze zur Vierwellenmischung in Krypton

Die Effizienz der Vierwellenmischung ist jedoch im Allgemeinen wegen $|\chi^{(3)}| \ll |\chi^{(2)}|$ wesentlich geringer als bei Prozessen zweiter Ordnung. Eine Erhöhung der Effizienz ist möglich, wenn eine oder mehrere der verwendeten Wellen zu Übergängen im Medium resonant sind. Eine ausführliche Behandlung findet sich in [Shen 1984, Kapitel 14].

Zur Erzeugung von Wellenlängen unterhalb von 180 nm wurde das Prinzip der resonant überhöhten Summen-Differenz-Vierwellenmischung in Krypton angewandt, wie sie bei [Hilber u. a. 1987] vorgeschlagen wurde. Dazu werden zwei Laserstrahlen in eine Kryptonzelle der Firma GWU Lasertechnik fokussiert. Der erste Laserstrahl stammt von einem frequenzverdreifachten Farbstofflaser, welcher mit DCM betrieben und von einem mittels SBS pulskomprimierten Nd:YAG-Laser gepumpt wird. Er wird bei einer Wellenlänge von 212,55 nm festgehalten und ist damit resonant zu einem Zwei-Photonen-Übergang zwischen dem Grundzustand und dem $4p^5 5p$ -Zustand in Krypton. Er stellt somit zwei der vier zur Vierwellenmischung notwendigen Felder.

Das dritte Feld stammt von einem durchstimmbaren, optional frequenzverdoppelten Farbstoff- oder Titan:Saphir-Laser, der ebenfalls durch

einen Nd:YAG-Laser gepumpt wird. Diese Welle legt die Frequenz der erzeugten VUV-Laserstrahlung fest über (vgl. Abb. 3.23)

$$\hbar \omega_{\text{VUV}} = E_{\text{Kr}} - \hbar \omega_{\text{Laser}}, \quad (3.4)$$

wobei E_{Kr} die Anregungsenergie des $4p^5 5p$ -Zustandes ist.

Die drei auftretenden Frequenzen werden nach der Gaszelle durch ein drehbares Lithium-Fluorid-Prisma separiert. Der Strahlengang muss für die VUV-Laserstrahlung evakuiert werden oder mit einem im VUV-Bereich transparenten Gas wie z. B. Argon geflutet werden.

Die Pulsenergie kann auf den Bereich zwischen einigen Nanojoule und wenigen Mikrojoule abgeschätzt werden. Eine Messung der Energie des VUV-Pulses war jedoch nicht möglich, da kein Detektor mit kalibrierter Effizienz für diesen Wellenlängen-Bereich zur Verfügung stand.

3.5. Lineare Paul-Falle

3.5.1. Fallengeometrien

Im Rahmen dieser Arbeit wurde mit drei verschiedenen Paul-Fallen experimentiert, welche sich in ihren Proportionen und bezüglich der Möglichkeit der longitudinalen Stabilisierung unterscheiden. Ihre Eigenschaften sind Tabelle 3.5 zu entnehmen.

Falle	$r_0 + r_s$	r_s	l	3D-Falle
PT1	26.9 mm	4 mm, 8 mm	300 mm	Siebelektrode
PT2	12.5 mm	4.5 mm	50 mm	segmentiert
PT3	5.5 mm	2.5 mm	125 mm	nein

Tabelle 3.5.: Eigenschaften der verwendeten linearen Quadropole. Die letzte Spalte beschreibt, auf welche Weise eine axiale Stabilisierung erreicht wird.

Kapitel 3. Experimentelle Details

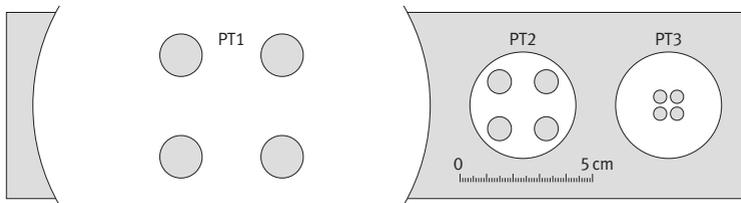


Abbildung 3.24.: Die verwendeten Fallen im Größenvergleich

Im Vergleich zu den (bezüglich der Vermeidung höherer Multipolordnungen) idealen Proportionen sind die Stabradien der Fallen PT1 und PT2 geringer, um ein möglichst großes Öffnungsverhältnis der abbildenden Optik zu ermöglichen. Einen Größen- und Proportionsvergleich ermöglicht die Skizze der Fallenquerschnitte in Abb. 3.24.

Für Lebensdauermessungen in Verbindung mit der Hohlkathode als Teilchenquelle kam ausschließlich die Falle PT1 zum Einsatz. Sie hat die größten Abmessungen und erlaubt die axiale Stabilisierung mit Hilfe von Siebelektroden bei geeigneten Entladungsbedingungen.

Die Fallen PT2 und PT3 wurden als Module für den Einsatz in Verbindung mit NW 40 Vakuum-Bauteilen konstruiert. So konnte die Falle PT2 auch in Verbindung mit lasererzeugten Plasmen und dem Lund-VUV-Lasersystem untersucht werden. Sie ermöglicht die Erzeugung axialer Felder durch segmentierte Fallenstäbe (siehe Abb. 3.25). Die Falle PT3 diente zur Untersuchung von Falleneigenschaften und wurde nicht in Verbindung mit Fluoreszenzmessungen eingesetzt.

Allen Fallen gemeinsam ist die Verwendung von poliertem Kupfer als Elektrodenmaterial und die sorgfältige Abschirmung aller nichtleitenden Bauteile zur Vermeidung von statischen Aufladungen und den daraus resultierenden Verzerrungen des Fallenpotentials.



Abbildung 3.25.: Photo der segmentierten Fallenstäbe der linearen Paul-Falle PT2

3.5.2. Erzeugung der Fallenpotentiale

In Kapitel 2 wurde dargelegt, welche Anforderungen eine Spannungsquelle zur Versorgung einer Paul-Falle in Abhängigkeit von Teilchenmasse und Elektrodenabmessungen zu erfüllen hat. Für ein möglichst tiefes effektives Potential und eine hohe Ionendichte sind hohe Wechselspannungs-Amplituden erforderlich (Gleichungen 2.20 und 2.23), typisch sind Amplituden von einigen hundert Volt bis zu einigen Kilovolt. Zur Speicherung leichter Teilchen benötigt man hohe Frequenzen (Gl. 2.9), üblicherweise im Megahertz-Bereich.

Die Spannungsversorgung der Ionenfalle besteht aus einem Signalgenerator des Typs Hameg 8133-2, einem Breitband-Leistungsverstärker der Firma Kalmus und einem Hochfrequenztransformator.

Zu Beginn dieser Arbeit kam hierfür ein herkömmlicher Transformator mit Ferritkern zum Einsatz, dessen Kernmaterial für hohe Frequenzen und Amplituden optimiert war. Auf diese Weise konnten Frequenzen

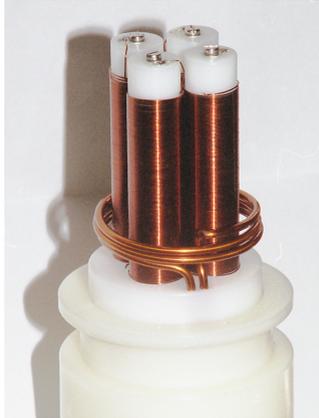


Abbildung 3.26.: Kernloser Resonanztransformator

bis etwa 400 kHz und Amplituden von 800 V_{SS} erreicht werden. Der Vorteil eines solchen Transformators ist die Durchstimmbarkeit der Frequenz und die hohe Effizienz der Leistungsübertragung in den Sekundärkreis. Begrenzend wirken hingegen die durch den Ferritkern drastisch erhöhte Induktivität des Sekundärkreises, die zusammen mit Wickelkapazität und der Kapazität der Fallenelektroden die Resonanzfrequenz absenkt. Der Ferritkern zeigt außerdem Sättigungseffekte bei hohen Amplituden. Dies führt zum Zusammenbrechen der Fundamentalfrequenz und zur Erzeugung von Oberwellen. In der Praxis wurde der Transformator ebenfalls nahe der Resonanz betrieben.

Um höhere Wechselspannungs-Frequenzen und -Amplituden zu erreichen, wurde ein Resonanztransformator mit Luftspulen konstruiert. Er besteht aus drei Primärwicklungen und vier auswechselbaren Sekundärspulen, die auf Delrinkörper gewickelt sind. Jede Sekundärspule versorgt ein Paar Elektrodensegmente und kann mit einem variablen Gleichspannungsanteil belegt werden. Die in Abb. 3.26 abgebildeten

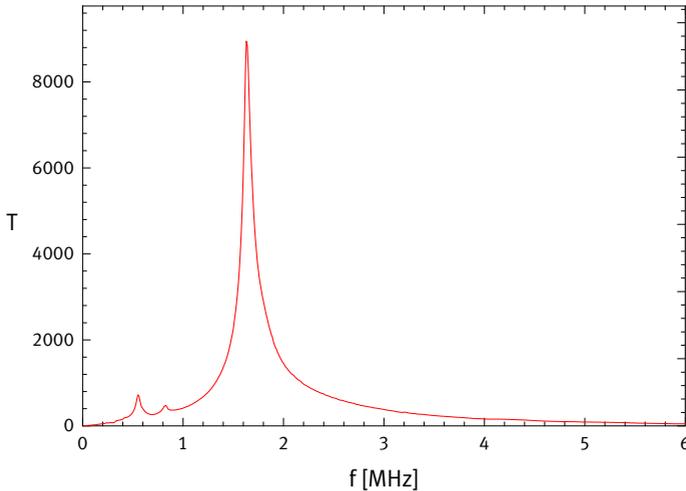


Abbildung 3.27.: Spannungsüberhöhung durch die verwendete Verstärker-Transformator-Kombination

Sekundärspulen haben etwa 140 Sekundärwicklungen. Durch Änderung der Wicklungsanzahl und des Windungsdurchmessers kann so die sekundärseitige Induktivität variiert werden, um die gewünschte Resonanzfrequenz zu erreichen. Darüber hinaus können jeweils zwei Spulen parallel oder in Reihe geschaltet werden, wenn keine longitudinale Stabilisierung benötigt wird. Die Resonanzfrequenz kann auf diese Weise zwischen 1.7 und 6 MHz gewählt werden; Amplituden bis etwa 5 kV_{SS} sind möglich. Abbildung 3.27 zeigt den frequenzabhängigen Überhöhungsfaktor der Verstärker-Transformator-Kombination bei einer Abstimmung des Transformators auf eine Resonanzfrequenz von 1.7 MHz. Die aus der Resonanzkurve ermittelte Güte des Schwingkreises beträgt 18.5.

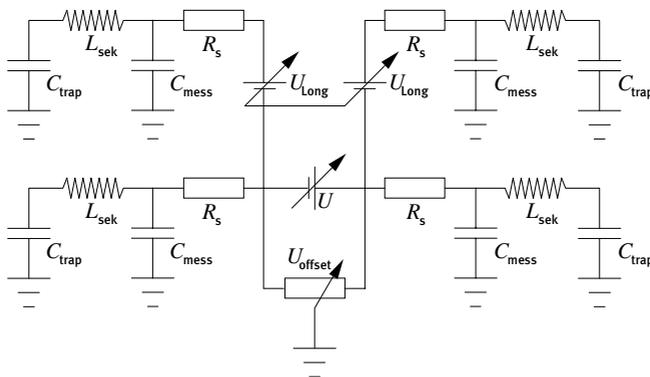


Abbildung 3.28.: Beschaltungsskizze der Sekundärseite des Resonanztransformators

3.5.3. Beschaltung

Die in Abb. 3.28 dargestellte Beschaltung der Falle hat die Aufgabe, die einzelnen Elektrodensegmente mit verschiedenen Gleichspannungsanteilen zu versorgen und über kapazitive Spannungsteiler Monitorsignale des Wechselspannungsanteils zu erzeugen.

Die Wechselspannung wird in den vier Sekundärspulen L_{sek} des bereits beschriebenen Transformators erzeugt. Die Resonanzfrequenz ist über deren Induktivität und Wickelkapazität und die Kapazität der Fallenelektroden C_{trap} gegeben. Alle Gleichspannungs-Netzteile werden vor einlaufender Wechselspannung jeweils durch einen hochohmigen Widerstand R_s geschützt. Die im Vergleich zur Fallenkapazität deutlich größere Kapazität C_{mess} fungiert als HF-Erdung des Fußpunktes der Spule und als kapazitiver Spannungsteiler zur Messung der Fallenpotentiale mit einem Tektronix TDS 210 Speicheroszilloskop.

Ein erdfreies Netzteil liefert den Gleichspannungsanteil U für das Fallenpotential, welcher durch den Abgriff bei U_{offset} asymmetrisch an die

Fallenstäbe angelegt werden kann. Zur longitudinalen Stabilisierung stehen zwei weitere erdfreie Netzteile zur Verfügung, welche die hinteren Elektrodensegmente mit einem separaten Gleichspannungsoffset U_{long} versehen können.

3.5.4. Betrieb

Die verschiedenen Fallen wurden während der Lebensdauermessungen in Abhängigkeit vom untersuchten Element mit Spannungen zwischen 300 V und 3 kV_{SS}, in Einzelfällen mit bis zu 5 kV_{SS} betrieben. Die verwendeten Transformatoren waren bei Frequenzen zwischen 300 kHz und 3 MHz resonant.

Während der Lebensdauermessungen ist die verwendete Wechselspannungs-Amplitude meist durch den eingestellten Kühlgasdruck begrenzt. Da sich druckabhängig ab einer bestimmten Amplitude der Wechselspannung eine RF-Entladung im Messvolumen ausbildet, wurden meist Spannungen zwischen 1 und 3 kV_{SS} verwendet. Die RF-Entladung macht sich durch einen sprunghaften Anstieg des Signals und des Signaluntergrunds am LIF-Detektor bemerkbar. Auch mit bloßem Auge ist eine diffuse Entladung im Messvolumen zu sehen. Außerdem führen in einigen Fällen Stöße mit freien Elektronen zu einer signifikanten Verkürzung der gemessenen Lebensdauer.

Als Kühlgas werden Gase mit einem jeweils deutlich geringeren Atomgewicht als das zu untersuchende Material verwendet. Die Kühlgasdrücke betragen für Neon etwa 2 bis 8 Pa, für Helium 5 bis 20 Pa. Bei Erhöhung des Kühlgasdruckes kommt es zunächst aufgrund der Kühlung zu einer Erhöhung der Teilchendichte und einem Anstieg der Fluoreszenzintensität. Wenn die Stoßrate die Größenordnung der Fallenfrequenz erreicht, werden Mikrobewegung und Speicherwirkung des Quadrupols gestört, was zu einer Reduktion der Teilchendichte führt.

Kapitel 3. Experimentelle Details

Dies ermöglicht eine grobe Abschätzung einer Obergrenze der strahlungsfreien Abregung des oberen Niveaus durch Stöße (*Quenching*). Die maximale Stoßrate, bei der die Falle noch eine stabilisierende Wirkung auf die Teilchenbewegung zeigt, ist gegeben, wenn Fallenfrequenz und Stoßrate den gleichen Wert erhalten. Wenn alle diese Stöße zu einer strahlungslosen Entvölkerung des oberen Niveaus führen, verhalten sich ungestörte, gemessene und maximal verkürzte Lebensdauer gemäß

$$\tau_{\text{ideal}} \geq \tau_{\text{mess}} \gtrsim \frac{\tau_{\text{mess}}}{1 + \tau_{\text{mess}} \omega_{\text{Falle}}}. \quad (3.5)$$

Da üblicherweise eine Schwingungsperiode der Falle um zwei bis drei Größenordnungen größer ist als die Lebensdauer, kann der Einfluss von *Quenching* vernachlässigt werden. Für lange Lebensdauern in Verbindung mit hohen Fallenfrequenzen und Kühlgasdrücken hingegen kann eine Druckvariation zum Ausschluss von *Quenching* sinnvoll sein. Bei allen Fluoreszenzmessungen in dieser Arbeit, bei denen eine Hohlkathode als Teilchenquelle verwendet wurde, konnte kein Einfluss auf die Lebensdauer beobachtet werden, solange sich im Beobachtungsvolumen keine RF-Entladung ausbildete.

Kapitel 4.

Aufnahme und Auswertung der Messdaten

In diesem Kapitel wird auf Aspekte der Gerätesteuerung, Datenerfassung und Algorithmen zur Datenauswertung eingegangen. Die gesamte hierfür verwendete Software wurde selbst geschrieben und in der Programmiersprache Java implementiert. Die Wahl einer Sprache, deren Name eher mit Internet und geringer Performance assoziiert wird, mag zunächst überraschen. Bei genauerer Betrachtung bietet Java jedoch eine Reihe von Vorteilen, welche kurz erläutert werden sollen.

Java wurde 1991 bei Sun Microsystems als Teil eines Projektes zur Gerätekommunikation und -steuerung entwickelt. Mit der Zeit etablierte sich Java aber vor allem als plattformunabhängige Programmiersprache für das Internet. Als Lösungsweg wurde dabei eine Kombination von *Compiler*- und Interpretersprache gewählt. Der *Compiler* erzeugt aus dem Quellcode einen Plattform-unabhängigen sogenannten *Byte-code*. Die *Virtual Machine* führt diesen aus und stellt einen standardisierten (virtuellen) Computer dar. Java ähnelt von der Syntax her der Sprache C++, ist in Punkten wie z. B. der Speicherverwaltung aber wesentlich sicherer und komfortabler.

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

Java-Applikationen sind meist klein, portabel (Plattform-unabhängig), netzwerkfähig, grafikfähig und sicher im Sinne einer Rechtevergabe für Klassen und Funktionen, der Möglichkeit der verschlüsselten Kommunikation etc. Zudem ermöglicht Java als moderne, objektorientierte Sprache Programmier-Techniken wie die Vererbung oder das Überladen von Funktionen (Polymorphismus) [Lemay und Cadenhead 1999]. Mit der Java API steht eine umfangreiche Funktions-Bibliothek für verschiedenste Aufgaben zur Verfügung. Über das Internet hat man außerdem Zugriff auf eine frei verfügbare, stetig wachsende Zahl an Klassen für zahlreiche Problemstellungen.

Aufgrund der daten- und rechenzeitintensiven Algorithmen, die in dieser Arbeit verwendet wurden, scheint die Verwendung einer Programmiersprache wie C++, die als hardwarenah und schnell gilt, naheliegend. Ein Performance-Vergleich anhand einfacher mathematischer Operationen zwischen Java (Sun JDK 1.4) und C++ (Microsoft Visual C++ 6.0) ergab einen Geschwindigkeits-Gewinn bei Verwendung der C-Routinen von unter 10%. Die Ursache hierfür liegt wahrscheinlich darin, dass Java mathematische Funktionen an eine binäre, plattform-spezifische Bibliothek weiterleitet. So entscheidet letztlich die Qualität der verwendeten Bibliotheken bzw. der darin enthaltenen Algorithmen über die Geschwindigkeit in der Ausführung. Die Ausführungsgeschwindigkeit einzelner Funktionen (wie zum Beispiel die der Wurzelfunktion) kann daher unter Java höher sein als unter C++. Java benutzt standardmäßig die *freely distributable math library* (fdlibm) aus der *netlib*-Bibliothek in der Version vom Januar 1995.

Für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Klassen wurden der Sun JDK 1.4 *Compiler* und die Java *Virtual Machine JVM 1.4* verwendet. Als Entwicklungsumgebung diente das Programm RealJ.

4.1. Gerätekommunikation und Datenaufnahme

4.1.1. GPIB

GPIB ist ein von der Firma Hewlett Packard entwickeltes und später unter der Norm IEEE 488.2 standardisiertes Protokoll zur rechnergestützten Auslesung und Steuerung von Laborgeräten [IEEE488 1975]. Es erlaubt sowohl die Kommunikation zwischen einem Rechner und bis zu 31 Geräten, wie auch die der Geräte untereinander. Die Kommunikation erfolgt durch einen Satz genormter GPIB-Befehle; die gerätespezifischen Funktionen können über ASCII-Zeichenketten angesprochen werden. Datenraten bis zu 1 MByte/s und die Möglichkeiten der Synchronisation mittels sogenannter *Service Requests* sowie *Polling* erlauben Lösungen für die meisten labortypischen Problemstellungen. Die *Interface*-Karte zur Anbindung des Rechners an den GPIB-Bus ist eine „GPIB for PCMCIA“-Steckkarte der Firma Ines.

4.1.2. Native Interface

Java-Programme können als systemunabhängiger *Bytecode* keine hardware- und damit plattformspezifischen Funktionen aufrufen. Es gibt jedoch die Möglichkeit, Funktionen aufzurufen, welche in *shared libraries* oder *dynamic link libraries* bereitgestellt werden, wie das bereits im Zusammenhang mit mathematischen Funktionen erwähnt wurde.

Dieser Weg kann ebenfalls gewählt werden, wenn auf Hardware, die nicht zu den Standardkomponenten eines Rechners zählt, zugegriffen werden soll. Die notwendigen Funktionsbibliotheken sind Teil der Gerätetreiber, die Funktionsaufrufe zum Ansprechen der jeweiligen Geräte spezifizieren und bereitstellen. Zur Nutzung dieser plattformspezifischen Funktionen wurde ein sogenanntes *Java Native Interface* als

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

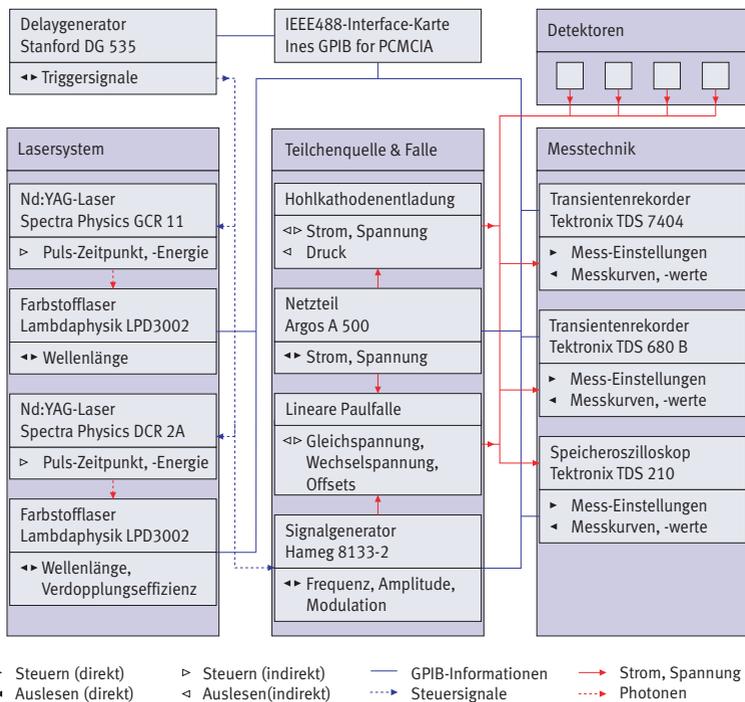


Abbildung 4.1.: Auslesung und Steuerung der Laborgeräte

Schnittstelle zwischen Java-Aufrufen und den binären Funktionen der jeweiligen Rechnerplattform erstellt. Es besteht aus einer Java-Klasse und einem C-Programm zur Weiterleitung der Aufrufe an die Bibliotheksfunktionen und macht den Funktionsumfang der Ines GPIB-Karte für die Java-Programme verfügbar. Durch die Nutzung des GPIB-Busses unter Java konnten nahezu alle Komponenten des Experiments gesteuert oder ausgelesen werden (siehe Abb. 4.1).

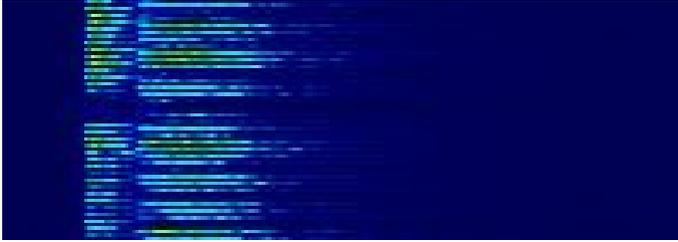


Abbildung 4.2.: Falschfarbendarstellung gemessener Einzelpuls-Fluoreszenzsignale des doppelt ionisierten Bors

4.1.3. Erfassung der Messdaten

Eine Messkurve lässt sich als eindimensionales Feld von Intensitätswerten darstellen, eine Folge von Messkurven entsprechend als zweidimensionales Intensitätsfeld. Die Speicherung einer Pulsfolge in einem Graphikformat ist daher naheliegend. Für die Berücksichtigung von Einzelpulseffekten partiell gesättigter Fluoreszenzsignale ist es notwendig, für jeden Puls zeitliches Laserprofil und Fluoreszenzsignal aufzuzeichnen. Statt für jede Signalquelle eine Grafikdatei zu erzeugen, wurde es vorgezogen, alle zu einer Messung gehörigen Informationen in einer einzigen Datei abzuspeichern.

Eine Falschfarbendarstellung einer solchen Einzelpuls-Fluoreszenzmessung an zweifach geladenem Bor ist in Abb. 4.2 zu sehen. Jede Zeile stellt eine Messkurve dar, alternierend sind zeitliche Laserpulsprofile und Fluoreszenzsignale zu erkennen. Der Laserpuls ist zeitlich kürzer und wird einige Nanosekunden vor dem Fluoreszenzsignal registriert, sein Maximum ist daher etwas nach links verschoben.

Zum Abspeichern der Messdaten wurde eine Variante des *Tagged Image File Format* (TIFF) verwendet, das in der Lage ist, Graustufen mit einer Tiefe von 16 bit abzuspeichern. Dies entspricht der vertikalen Auf-

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

lösung der von den Speicheroszilloskopen erzeugten Messkurven. Außerdem bietet das Format einen nahezu beliebig erweiterbaren Datei-Header, in dem sich alle Parameter der Messung speichern lassen [Fischer 2002]. Die Verwendung eines gebräuchlichen Dateiformats ist von Vorteil, da es die sofortige Darstellung der Messung und das Zurückgreifen auf bereits vorhandene Methoden zur Datenverarbeitung ermöglicht. So konnten zur Erzeugung und zum Einlesen der Dateien Klassen des Pakets *ImageJ* verwendet werden, die für die Protokollierung experimenteller Einstellungen erweitert wurden.

Bei der Messung gemittelter zeitlicher Fluoreszenzsignale stellt die Aufnahme- bzw. Übertragungsgeschwindigkeit in der Praxis keine Limitierung dar. Im Einzelpulsbetrieb hingegen wird sie dadurch begrenzt, dass die Speicheroszilloskope während der Übertragung der Messkurven angehalten werden müssen. Andernfalls kommt es gelegentlich zu einer zwischenzeitlichen Messung eines neuen Pulses. Das Fluoreszenzsignal ist dann nicht die Antwort auf den bereits übertragenen Laserpuls.

Daher wird für jeden Puls das Oszilloskop in Bereitschaft versetzt und der Start einer einzelnen Messung durch den Laserpuls ausgelöst. Nach Registrierung des Pulses wird das Oszilloskop angehalten, die Kanäle werden einzeln ausgelesen und das Oszilloskop wird bereitgemacht für den nächsten Puls. Diese Befehlsfolge, im Speziellen das Starten und Anhalten des Oszilloskops und der Kanalwechsel während der Auslesung, begrenzt die pro Sekunde messbare Pulszahl auf drei bis fünf Pulse. Messungen, welche typischerweise 1000 Pulse beinhalten, dauern zwischen drei und sechs Minuten und erreichen Dateigrößen von einem bis zehn Megabyte. Wird nur ein Kanal ausgelesen, wie bei der Messung einer Apparatefunktion, entfällt der Kanalwechsel beim Auslesen, und es können bis zu 20 Pulse pro Sekunde übertragen werden.

4.2. Bestimmung der Apparatfunktionen

Wird ein Signal mit einem linearen Detektor gemessen, ist das Mess-Signal eine Faltung von Signal und Apparatfunktion des Detektors. Die Faltung zweier Funktionen f und g ist definiert über:

$$f * g = \int_{-\infty}^{\infty} f(t_0) g(t_0 - t) dt. \quad (4.1)$$

In der Praxis bedient man sich zur Berechnung einer Faltung oft der schnellen Fourier-Transformation (*Fast Fourier Transform* - FFT), da für die Fourier-Transformierten von f und g gilt:

$$\mathcal{F}\{g * f\} = G(u) \cdot F(u) = \mathcal{F}\{g\} \cdot \mathcal{F}\{f\}. \quad (4.2)$$

Eine Entfaltung ergibt sich analog durch Rücktransformation des Quotienten aus $G(u)$ und $F(u)$. Obwohl sich Faltung und Entfaltung im mathematischen Sinne sehr ähnlich sind, ist in der Praxis ihre Wirkung sehr verschieden: Während eine Faltung einer Verschmierung oder Glättung eines Signals entspricht, führt eine Entfaltung zu einer Aufsteilung des Signals und geht normalerweise mit einer Zunahme des Rauschpegels einher. Dies kann im Frequenzraum verstanden werden, da dort das Teilen durch kleine, verrauschte spektrale Anteile der Apparatfunktion starke Auswirkung auf das Spektrum der entfalteten Funktion hat.

Wird das entfaltete Signal nachträglich durch eine Mittelung geglättet, geht dies immer mit einem Verlust an Zeitauflösung bzw. Bandbreite einher. Ziel einer verbesserten Entfaltung wäre somit die gezielte Unterdrückung des Rauschens mit geringstmöglicher Beeinträchtigung des Signals.

4.2.1. Wiener-Filter

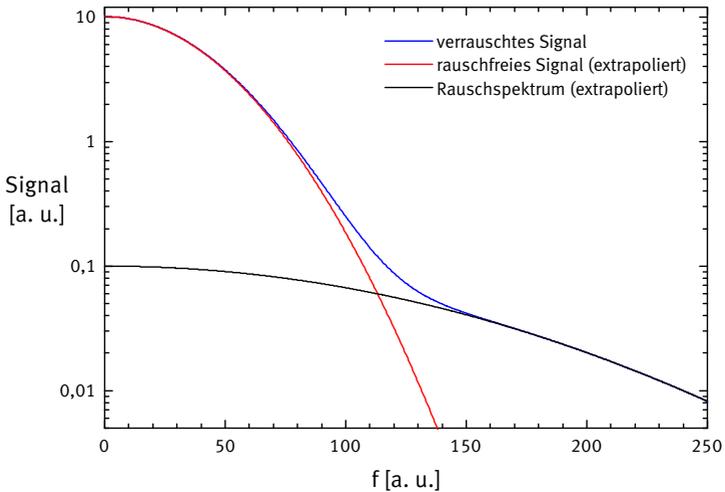


Abbildung 4.3.: Prinzip der Zerlegung des Mess-Signals in Rauschuntergrund und Signalspektrum

Der Ansatz hierfür ist eine Zerlegung des gemessenen Signals in ein reales Signal und ein Rauschspektrum. Das eigentliche Signal u wird mit der Antwortfunktion des Detektors r gefaltet und so zu einem leicht modifizierten Signal c . Diesem ist ein Rauschsignal überlagert:

$$s = u * r + n = c + n. \tag{4.3}$$

Das Spektrum des ungestörten Signals soll sich nun wie üblich durch Division des Spektrums der Apparatfunktion ergeben, wobei eine zusätzliche Filterfunktion Φ die Unterdrückung des Rauschens vornimmt:

4.2. Bestimmung der Apparatefunktionen

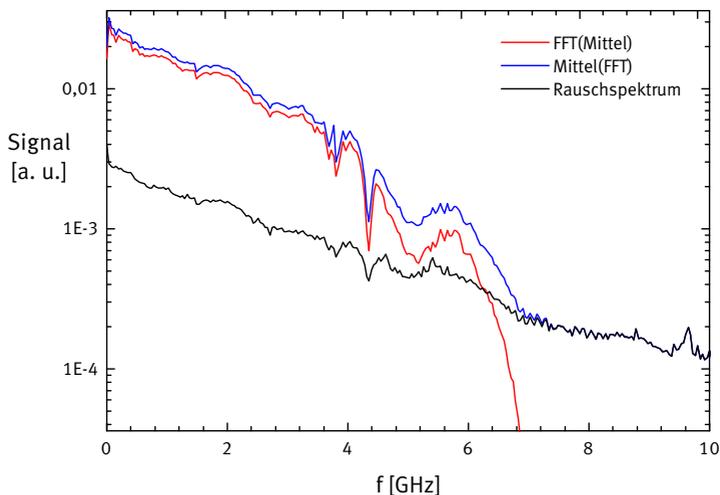


Abbildung 4.4.: Zerlegung des Apparateprofils in Rauschuntergrund und Signalspektrum

$$\tilde{U}(f) = \frac{C(f) \Phi(f)}{R(f)}. \quad (4.4)$$

Die optimale Filterfunktion lässt sich bestimmen zu [Press u. a. 1994]:

$$\Phi(f) = \frac{|S(f)|^2}{|S(f)|^2 + |N(f)|^2}. \quad (4.5)$$

Bei der Konstruktion der Filterfunktion ist man im Normalfall gezwungen, Signal- und Rauschspektrum in Teilen des Spektrums zu extrapolieren, wie in Abb. 4.3 dargestellt. Wird die Apparatefunktion jedoch im Einzelpulsverfahren aufgenommen, bietet sich die Möglichkeit, zwischen reproduzierbaren und fluktuierenden Anteilen (Rauschen) zu un-

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

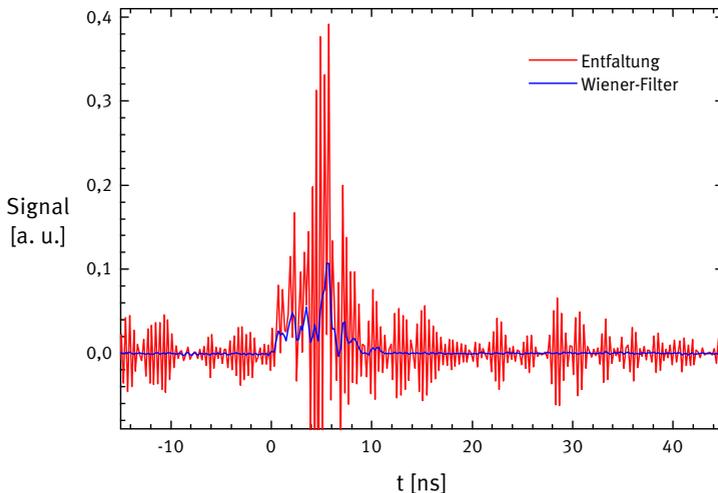


Abbildung 4.5.: Anwendung des Wiener-Filters zur Entfaltung des zeitlichen Laserpulsprofils

terscheiden. Das Rauschspektrum wird also gemessen, die Filterfunktion kann auf diese Weise ungleich exakter bestimmt werden (siehe Abbildung 4.4).

Das Rauschspektrum ist ein technisches Rauschen und zum Mess-Signal unkorreliert. Daher ist es bei der Messung der Apparatefunktion und in späteren Messungen des zeitlichen Laserprofils identisch. Hier sollte noch einmal angemerkt werden, dass das beschriebene Verfahren auch nur dieses technische Rauschen unterdrückt und nicht die realen Fluktuationen des Lasers und der Fluoreszenz. Das Signalspektrum ändert sich jedoch durch den während der Fluoreszenzmessung zeitlich längeren Laser. Es ergeben sich zusätzlich niederfrequente Anteile im Leistungsspektrum des Signals. Trotzdem ist es möglich, die Filterfunktion ohne Kenntnis des Signalspektrums in die Apparatefunk-

4.2. Bestimmung der Apparatefunktionen

tion zu integrieren; dabei wird einfach das Spektrum der gemessenen Apparatefunktion als Signalspektrum benutzt. Dies führt lediglich zu einer geringeren Unterdrückung des Rauschens im niederfrequenten Bereich, in dem das Signal ohnehin nicht vom Rauschen dominiert wird. Die Filterfunktion kann auf diese Weise in die Apparatefunktion integriert werden. Bemerkenswert ist hierbei, dass die so erzeugte Apparatefunktion im Vergleich zur ungefilterten wesentlich stärker verrauscht ist – der Rauschpegel des entfalteten Signals hingegen wird reduziert.

Der Vergleich einer Entfaltung unter Anwendung des optimalen oder Wiener-Filters mit einer gewöhnlichen Entfaltung des gemessenen Signals in Abb. 4.5 zeigt, dass das Verfahren sehr gut funktioniert und letztlich eine Voraussetzung für die Auswertung von Einzelpulsen darstellt. Wird eine gewöhnliche Entfaltung angewandt, steigt der Rauschpegel so weit an, dass der Informationsgehalt des so ermittelten zeitlichen Laserpulsprofils für eine zuverlässige Integration der Ratengleichungen nicht mehr hinreichend ist. Insbesondere lassen sich die Zeitpunkte, außerhalb derer die Laserintensität zu vernachlässigen ist, nicht mehr bestimmen.

4.2.2. Jitter-Korrektur

Es wurde eine verbesserte Methode zur Bestimmung der Apparatefunktion von *Photomultiplier*- und MCP-Detektoren entwickelt, die ebenfalls auf der Einzelpulsauswertung beruht. Da die Amplitude von Einzelphotonensignalen im Wesentlichen von der (statistisch schwankenden) Verstärkung des Detektors abhängt, ergeben sich als Antwortfunktion auf Einzelphotonen Pulse gleicher Form, jedoch mit schwankender Intensität. Diese durchlaufen einen am Oszilloskop gewählten *Trigger*-Pegel aufgrund ihrer unterschiedlichen Amplituden zu verschiede-

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

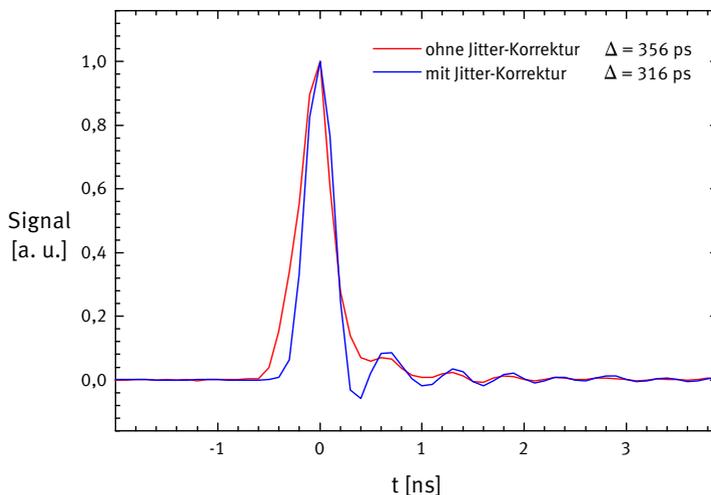


Abbildung 4.6.: Entfernung des *Jitters* aus dem Apparateprofil

nen Zeitpunkten und erzeugen so einen *Jitter*. Bei einer Aufmittlung führt dies zu einer Verschmierung des Signals über einen Zeitraum in Größenordnung des *Jitters*, welcher aufgrund der Flankensteilheit des Signals typischerweise einige Prozent der Halbwertsbreite beträgt. Darüber hinaus ist die Form der Apparatefunktion von der Wahl des *Trigger*-Pegels abhängig. Der hier beschriebene *Jitter* tritt während einer LIF-Messung hingegen nicht auf, da dann das Laserpulsprofil als *Trigger* dient. Wird die Apparatefunktion im Einzelpulsverfahren aufgenommen, können die zeitlichen Verschiebungen herauskorrigiert und die Einzelpulse „phasenrichtig“ aufgemittelt werden. Dies geschieht, indem durch jede Messkurve ein kubischer *Spline* gelegt wird, dessen Maximum die Information über die jeweilige zeitliche Verschiebung enthält. Das Ergebnis ist eine stärker modulierte Apparatefunktion mit einer um bis zu 40 % reduzierten Halbwertsbreite (siehe Abb. 4.6).

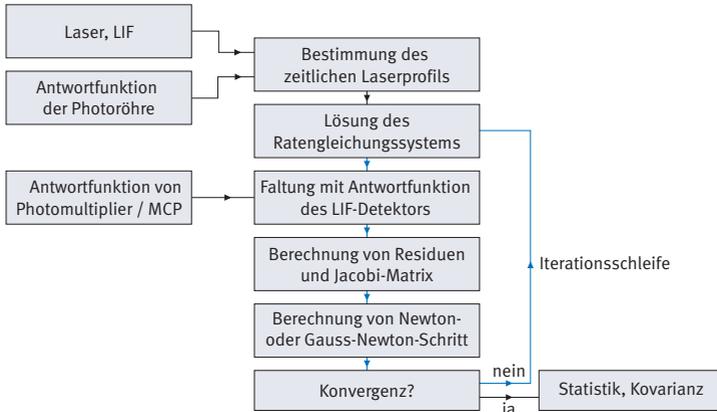


Abbildung 4.7.: Auswertung der Mess-Signale

4.3. Auswertung

Die im Mess-Signal implizit enthaltenen Informationen sind die Lebensdauer des oberen Niveaus, seine Verzweigung und eine relative Signalstärke, die durch eine Kalibration mittels Rayleigh-Streulicht in eine absolute Teilchendichte umgewandelt werden kann. Hinzu kommt noch der Zeitversatz zwischen gemessenem Laserpuls und Fluoreszenzsignal, welcher ohne Modifikationen am Aufbau (Verkabelung, Änderung des Strahlengangs etc.) konstant bleibt.

In Kapitel 1.3 wurde dargelegt, wie ein gegebenes zeitliches Laserprofil über die Ratengleichungen zu einem Fluoreszenzsignal führt. Nur die Teilchendichte ist ein linearer Koeffizient der Funktion, alle anderen gehen nichtlinear ein. Zur Auswertung wird daher ein nichtlineares Regressionsverfahren benötigt. Die Eingangsgrößen der Auswertung sind die Apparatfunktionen der verwendeten Detektoren und die Mess-Signale für zeitliches Laserprofil und Fluoreszenzsignal.

Die Vorgehensweise einer Messung bis zum eigentlichen Messwert

durchläuft folgende Schritte (vgl. Abb. 4.7): Zuerst wird für jeden Puls mit dem bereits in Abschnitt 4.2.1 geschilderten Wiener-Filter das reale zeitliche Laserprofil berechnet. Danach werden Start- und Endpunkt des Laserpulses als Eingangsgrößen für die numerische Lösung des Ratengleichungssystems bestimmt. Dies ist für Einzelpulse wesentlich einfacher als für gemittelte Signale, da die Einzelpulse nicht durch einen *Jitter* verschmiert sind und daher wesentlich definierter beginnen und enden. Der Laser wird auf ein Zeitfenster beschnitten, in dem das Signal aus dem Rauschpegel heraustritt. Dieser Pegel wird aus dem Anfangsteil der Messkurve, also in einem Zeitbereich vor Beginn des Laserpulses, bestimmt. Eine Darstellung des so gewonnenen zeitlichen Einzelpuls-Laserprofils findet sich in Abschnitt 3.3.1.

Dieses Profil erlaubt zusammen mit einem hypothetischen Satz an atomaren Konstanten, Teilchendichten etc. die Berechnung eines gesättigten Fluoreszenzsignals. Dieser Parametersatz wird im nichtlinearen Regressionsverfahren variiert, um eine optimale Übereinstimmung von Messkurve und simulierter Kurve zu erhalten. Nach erfolgter Anpassung kann die Messung auf Korrelationen der Parameter und auf die Verteilung der Residuen untersucht werden.

4.3.1. Lösung des Ratengleichungssystems

Die einfachste Möglichkeit, das Ratengleichungssystem zu lösen, ist eine Integration mit abschnittsweise als konstant angenommener Laserintensität. Dies ist jedoch, verglichen mit dem Rechenaufwand für eine lineare LIF-Kurve, sehr zeitaufwendig. Die Rechenzeit kann aber reduziert werden, indem das Zeitfenster der Lasertätigkeit bestimmt wird. In diesem Zeitraum wird das Ratengleichungssystem numerisch gelöst, danach kann die Besetzungsänderung des oberen Zustands durch den exponentiellen Zerfall beschrieben werden. Kritisch ist die

Wahl der Schrittweite während des Laserpulses, da sich innerhalb eines Schrittes die Besetzungsdichten nicht signifikant ändern dürfen. Die Besetzungsänderung kann für hohe Sättigungsgrade jedoch auf Zeitskalen weit unterhalb des Messpunktabstands geschehen. Der Laser muss dann für die nötigen Zwischenschritte mit Hilfe z. B. einer *Spline*-Interpolation berechnet werden. Die durchgängige Verwendung einer sehr kleinen Schrittweite von einer Pikosekunde wie in [Schnabel und Kock 2000] führt zu einer hohen Anzahl von Integrationsschritten. Stattdessen kann die Schrittweite adaptiv gewählt werden, indem abschnittsweise die Zeitskala für Besetzungsänderungen aus dem aktuellen, zeitabhängigen Sättigungsparameter über Gl. 1.18 abgeschätzt wird.

Ein alternativer Ansatz, der im Rahmen dieser Arbeit untersucht worden ist, wurde durch die Notwendigkeit der Berechnung von Zwischenschritten des zeitlichen Laserpulsprofils inspiriert. Er beschreibt das zeitliche Verhalten sowohl des Lasers wie auch der Besetzungsdichten durch kubische *Splines*. Das Ratengleichungssystem wird dadurch in eine Berechnungsvorschrift der *Spline*-Koeffizienten umgewandelt. Über ein Glattheitskriterium der Besetzungsdichte lässt sich feststellen, ob die gegebene Schrittweite bei den aktuellen Sättigungsgraden hinreichend ist.

Bezüglich der Rechengeschwindigkeit ist zwischen den beiden Verfahren kein signifikanter Unterschied festzustellen. Für das Regressionsverfahren wurde im Normalfall die „bewährte“ Integrationsmethode gewählt.

4.3.2. Anpassung der Messdaten

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein quadratisch konvergierendes nicht-lineares Regressionsverfahren entwickelt, welches die Vorzüge von Gauss-Newton- und Quasi-Newton-Verfahren kombiniert und übertrifft. Dafür wurde ein stabiles Gauss-Newton-Verfahren den Vorschlägen von [Moré 1977] folgend und ein Quasi-Newton-Verfahren in Anlehnung an [Dennis und Schnabel 1983] zunächst in Maple implementiert. Anschließend wurden beide Algorithmen in einem Hybridverfahren kombiniert und schließlich auf Java portiert.

Diese Vorgehensweise hat zwei wesentliche Vorteile: Zum einen ermöglicht Maple als Computer-Algebra-System eine Umsetzung der Algorithmen in enger Anlehnung an ihre mathematische Formulierung. So konnten die komplexen Verfahren relativ zügig umgesetzt und Programmierfehler aufgespürt werden. Zum anderen bietet Maple eine frei wählbare Rechengenauigkeit aufgrund einer eigenen Dezimaldarstellung. Insbesondere beim Quasi-Newton-Verfahren lässt sich so die quadratische Konvergenz und der damit verbundene Gewinn an Genauigkeit von einigen hundert Dezimalstellen innerhalb weniger Iterationen eindrucksvoll beobachten. Was die Geschwindigkeit und Skalierbarkeit des Problems anbelangt, ist die Portierung auf eine Programmiersprache wie Java unumgänglich – der Schwerpunkt von Computer-Algebra-Systemen liegt weder bei numerischen Berechnungen, noch bei großen Datenmengen. Die Java-Implementation zeigt erwartungsgemäß eine um mehr als drei Größenordnungen höhere Ausführungsgeschwindigkeit für identische Problemstellungen.

Ein Regressionsverfahren zur Anpassung von Einzelpulssignalen muss insbesondere zwei Eigenschaften vorweisen können. Zum ersten muss es effizient und schnell arbeiten, da pro Messung mehrere hundert Kurven angepasst werden müssen. Zweitens muss es sehr robust sein, das

heißt, dass die Lösung ausgehend von Anfangslösungen aus einem möglichst großen Konvergenzradius reproduzierbar gefunden wird. Eine individuelle Kontrolle der Qualität der Anpassung, wie sie bei gemittelten Signalen üblich ist, ist durch die hohe Anzahl an Messkurven unpraktikabel. Eine skalierungsinvariante Messzahl der Güte einer Anpassung ist daher wünschenswert.

Zur Auswertung nichtlinearer Effekte bei Einzelpulsen können, je nach Signalqualität, zwei Wege beschritten werden:

Bei einem guten Signal-zu-Rausch-Verhältnis ist es möglich, alle Kurven separat auszuwerten. Das Ergebnis im Falle einer Fluoreszenzmesung ist eine große Anzahl von Anpassungsdaten. Aus diesen können Aussagen über Korrelationen der gesuchten Größen, aber auch über reale Effekte innerhalb der Messung, wie Driften oder Dichtefluktuationen einer Teilchenquelle untersucht werden.

Bei schwachen bzw. verrauschten Fluoreszenzsignalen, bei denen pro Puls nur wenige Photonen detektiert werden, ist die Zuordnung der Anpassungsparameter für einen Einzelpuls prinzipiell nicht möglich, da diese ja kollektive Effekte beschreiben. Die Anpassung der Einzelpulse wird in solchen Fällen häufig numerisch instabil. In einem solchen Fall wird zunächst das Ratengleichungssystem für alle Laserpulse gelöst. Die vorausgesagten Fluoreszenzsignale werden addiert und ergeben so die zu erwartende gemittelte rauschärmere Signalkurve für die Anpassung. Die Pulsprofilschwankungen des Lasers werden also weiterhin berücksichtigt – alle anderen Größen, wie z. B. die Teilchendichte, müssen für alle Pulse als konstant angenommen werden. Dies bedeutet auch, dass man z. B. nicht mehr für jeden Puls einen maximalen Sättigungsparameter anpasst, sondern eine für die gesamte Pulsfolge identische Proportionalitätskonstante zwischen Detektorsignal und Sättigungsparameter.

4.3.3. Quasi-Newton- und Gauss-Newton-Verfahren

Grundlage aller Regressionsverfahren ist die Maximierung der Wahrscheinlichkeit, mit der aus der angepassten Funktion durch Verrauschen der gemessene Datensatz hervorgehen kann. Für ein normalverteiltes Rauschen entspricht dies der Minimierung der Summe der Fehlerquadrate χ^2 (*Nonlinear Least Squares*-Problem). Dies wird durch eine Optimierung des Vektors \mathbf{x}_k , welcher die Funktion und damit den Residuenvektor $\mathbf{R}(\mathbf{x}_k)$ parametrisiert, erreicht:

$$\chi_k^2 = f(\mathbf{x}_k) = \frac{1}{2} \mathbf{R}(\mathbf{x}_k)^T \mathbf{R}(\mathbf{x}_k) = \frac{1}{2} \mathbf{R}_k^T \mathbf{R}_k = \frac{1}{2} \sum_i r_i^2(\mathbf{x}_k). \quad (4.6)$$

Die Gradientenverfahren bedienen sich dabei der Nullstellensuche für die Ableitung der Residuen. Das mehrdimensionale iterative Newton-Verfahren zur unbeschränkten Minimierung für $f : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}$ lautet:

$$\nabla^2 f(\mathbf{x}_k) \mathbf{s}_k = -\nabla f(\mathbf{x}_k) \quad \mathbf{x}_{k+1} = \mathbf{x}_k + \mathbf{s}_k. \quad (4.7)$$

Die erste Ableitung berechnet sich unter Verwendung der Jacobi-Matrix $\mathcal{J}_k = \nabla \mathbf{R}_k$ zu:

$$\nabla f(\mathbf{x}_k) = \frac{1}{2} \nabla (\mathbf{R}_k^T \mathbf{R}_k) = \mathcal{J}_k^T \mathbf{R}_k. \quad (4.8)$$

Die Berechnung der zweiten Ableitung (Hesse-Matrix) ist im Allgemeinen sehr zeitaufwendig. Sie lässt sich jedoch über die Jacobi-Matrix darstellen als:

$$\nabla^2 f(\mathbf{x}_k) = \mathcal{H}_k = \mathcal{J}_k^T \mathcal{J}_k + \sum_i r_i(\mathbf{x}_k) \nabla^2 r_i(\mathbf{x}_k) = \mathcal{J}_k^T \mathcal{J}_k + \mathcal{S}_k. \quad (4.9)$$

Wird \mathcal{S}_k ohne Berechnung der zweiten Ableitung konstruiert, spricht man von einem Quasi-Newton-Verfahren.

Das Gauss-Newton-Verfahren nähert \mathcal{S}_k durch eine Nullmatrix und nimmt an, dass der Residuenvektor sich in der Nähe von \mathbf{x}_k als affine Funktion der Parameter darstellen lässt. Das Quasi-Newton-Verfahren geht von der schwächeren Annahme aus, dass sich f um diesen Punkt quadratisch entwickeln lässt und ist deshalb besser für Problemstellungen mit großen Residuen oder Nichtlinearitäten geeignet. Beide Modelle sagen mit ihrer jeweiligen Hesse-Matrix \mathcal{H}_k in der Nähe von \mathbf{x}_k die Summe der Fehlerquadrate voraus als:

$$q_k(\mathbf{s}) = f(\mathbf{x}_k) + \mathbf{s}^T \mathcal{J}_k^T \mathbf{R}_k + \frac{1}{2} \mathbf{s}^T \mathcal{H}_k \mathbf{s}. \quad (4.10)$$

Zu Beginn des Algorithmus wird die Matrix \mathcal{S}_0 mit einer Nullmatrix initialisiert. Danach ist sie in Anlehnung an das DFP-Verfahren aus der Funktionsoptimierung gegeben durch [Dennis und Schnabel 1983]:

$$\begin{aligned} \mathbf{y}_k &= \mathcal{J}_k^T \mathbf{R}_k - \mathcal{J}_{k-1}^T \mathbf{R}_k, \\ \mathbf{y}_k^* &= \mathcal{J}_k^T \mathbf{R}_k - \mathcal{J}_{k-1}^T \mathbf{R}_{k-1}, \\ \mathbf{z}_k &= \mathbf{y}_k^* - \mathcal{S}_{k-1} \mathbf{s}_k, \\ \mathcal{S}_{k+1} &= \mathcal{S}_k + \frac{\mathbf{z}_k \mathbf{y}_k^T + \mathbf{y}_k \mathbf{z}_k^T}{\mathbf{y}_k^T \mathbf{s}_k} - \frac{\mathbf{z}_k^T \mathbf{s}_k}{(\mathbf{y}_k^T \mathbf{s}_k)^2}. \end{aligned} \quad (4.11)$$

Eine echte Matrixinversion ist für das gegebene Problem oft numerisch instabil, da \mathcal{H}_k häufig nahezu singular wird. In der Praxis haben sich zur Lösung des Gleichungssystems Dekompositionsverfahren bewährt. In dieser Arbeit wurde die Singulärwert-Zerlegung aus dem JAMA-Paket der Java *Numerics Group* verwendet, welche auch dann die Berechnung einer Pseudoinversen \mathcal{H}_k^- erlaubt, wenn das zu lösende Gleichungssystem nicht den vollen Rang hat [Björck 1996].

4.3.4. Gültigkeitsbereich des Modells

Residuenvektor, Jacobi- und Hesse-Matrix stellen lokale Eigenschaften der Funktion f am Punkt \mathbf{x}_k dar. Beim Gauss-Newton- und Quasi-Newton-Verfahren werden sie dazu verwendet, einen neuen Kandidaten zur Minimierung von f zu berechnen. Die Verlässlichkeit der Vorhersage wird offensichtlich umso geringer, je weiter der neue Stützwert vom aktuellen Wert entfernt ist. Man definiert daher einen Gültigkeitsbereich des aktuellen Modells und sucht nach einer Lösung von Gl. 4.7 innerhalb dieses Bereiches. Dies geschieht durch Lösen des modifizierten Gleichungssystems:

$$\mathbf{x}_{k+1} - \mathbf{x}_k = \mathbf{s}_k = (\mathcal{J}_k^T \mathcal{J}_k + \mathbf{S}_k + \lambda \mathcal{A}_k^T \mathcal{A}_k)^{-1} \mathcal{J}_k^T \mathbf{R}_k. \quad (4.12)$$

Das Skalar λ wird Levenberg-Marquardt-Parameter genannt und so gewählt, dass $\mathcal{H}_k^* = \mathcal{H}_k + \lambda \mathcal{A}_k^T \mathcal{A}_k$ positiv definit wird und die Schrittweite von \mathbf{s}_k auf den aktuellen Gültigkeitsbereich beschränkt bleibt. Insbesondere wird dieser Parameter, wann immer es möglich ist, auf Null gesetzt, was die Konvergenzgeschwindigkeit erheblich steigert. In dieser Arbeit wurde zur Bestimmung von λ das iterative Verfahren von Hebden angewandt [Spelucci 1993]. Mit diesem Algorithmus wird die optimale Schrittweite zu einem gegebenem Gültigkeitsbereich zumeist innerhalb von zwei Iterationen gefunden.

Ist \mathcal{A}_k eine Einheitsmatrix, geht das Verfahren für große Levenberg-Marquardt-Parameter in das Verfahren des steilsten Abstiegs (*steepest descent*) über mit einer zu λ_k reziproken Schrittweite [Press u. a. 1994]. Eine in vielen Fällen günstigere Wahl für \mathcal{A}_k ist:

$$\mathcal{A}_0^{jj} = |\mathcal{J}_0^j| \quad \mathcal{A}_k^{jj} = \max(c_k \cdot \mathcal{A}_{k-1}^{jj}, |\mathcal{J}_k^j|), \quad c_k \in [0, 1], \quad (4.13)$$

so dass die Diagonalelemente der Matrix im Wesentlichen die Norm der Spaltenvektoren der Jacobi-Matrix enthalten [Moré 1977]. Dadurch wird die Schrittweite in den Richtungen stärker beschränkt, in denen die partiellen Ableitungen des Residuenvektors vom Betrag her besonders groß sind. Diese Konstruktion macht den Algorithmus skalierungs-invariant und resultiert in einer besseren Stabilität, insbesondere auch für Anpassungsgrößen von sehr unterschiedlicher Größenordnung.

Der Gültigkeitsbereich wird zu Beginn des Algorithmus mit der Schrittweite der ersten Iteration initialisiert und im weiteren Verlauf je nach Qualität der Iterationsschritte kontrahiert oder expandiert.

Durch die Einführung des Gültigkeitsbereiches und der skalierungsinvarianten Formulierung der Matrix \mathcal{A}_k vergrößert sich der Konvergenzradius so weit, dass der Algorithmus von Startparametern aus konvergiert, für die der Betrag des Residuenvektors im Vergleich zur endgültigen Lösung um mehr als elf Zehnerpotenzen größer ist.

4.3.5. Modellwechsel

Es gibt zahlreiche Strategien, um die Stabilität eines Levenberg-Marquardt-Verfahrens mit der quadratischen Konvergenz und der Robustheit des Quasi-Newton-Verfahrens gegenüber starker Nichtlinearität und großen Residuen zu verbinden.

Einer der einfachsten Ansätze ist es, die ersten Iterationsschritte von einem Levenberg-Marquardt-Algorithmus berechnen zu lassen und dann zum Quasi-Newton-Verfahren zu wechseln, in der Hoffnung, dass sich mittlerweile eine stabile Hesse-Matrix ergeben hat. Je nach Qualität der Startvektoren kann die sinnvolle Zahl der Gauss-Newton-Schritte jedoch stark variieren. Eine andere Möglichkeit ist es, für jeden Schritt die erreichte Verkleinerung des Residuenvektors mit der Vorhersage des aktuellen Modells zu vergleichen und bei schlechter Über-

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

einstimmung zum jeweils anderen Modell zu wechseln. Je nach Übereinstimmung kann auch optional innerhalb des Schrittes der Gültigkeitsbereich des Modells neu skaliert werden. Ein möglicher Nachteil ist in diesem Fall, dass das Verfahren nicht automatisch quadratisch konvergiert, solange alle Gauss-Newton-Schritte nicht zu schlecht sind. Möglicherweise wird auch voreilig zum eigentlich schlechteren Modell gewechselt, solange beide Modelle noch keine zuverlässigen Vorhersagen erlauben.

Die in dieser Arbeit favorisierte Lösung baut auf dem letzteren Ansatz, wie er in [Dennis u. a. 1981] beschrieben wird, auf. Das Verfahren wurde in zwei Punkten modifiziert. Die zugrundeliegenden Erkenntnisse sind zum einen, dass ein Levenberg-Marquardt-Verfahren zunächst gute Konvergenzeigenschaften aufweist, solange nicht allzu große Nichtlinearitäten oder Residuen einen Quasi-Newton-Schritt sinnvoll machen. Zum anderen führt die verbesserte Näherung der Hesse-Matrix durch das Quasi-Newton-Verfahren in der Umgebung der gesuchten Lösung zu einer quadratischen Konvergenz.

Eine versuchsweise Lösung mittels des Quasi-Newton-Verfahrens erfolgt daher bei schlechten Iterationsschritten, führt jedoch nicht zur Favorisierung dieses Modells zur Lösung des nächsten Schrittes. Andererseits wird, sobald die Änderung des Parametervektors einen vorgegebenen Schwellwert unterschreitet, standardmäßig zum Quasi-Newton-Verfahren gewechselt. So konvergiert das Verfahren auf den letzten Schritten immer quadratisch. Auch die interne Skalierung des Gültigkeitsbereiches für sehr gute oder sehr schlechte Schritte wurde übernommen und führt zu einer Reduktion der zur Konvergenz nötigen Iterationsschritte.

In der Praxis funktioniert das hier beschriebene Verfahren außerordentlich gut. Je nach Problemstellung werden bis zu einem Drittel weniger

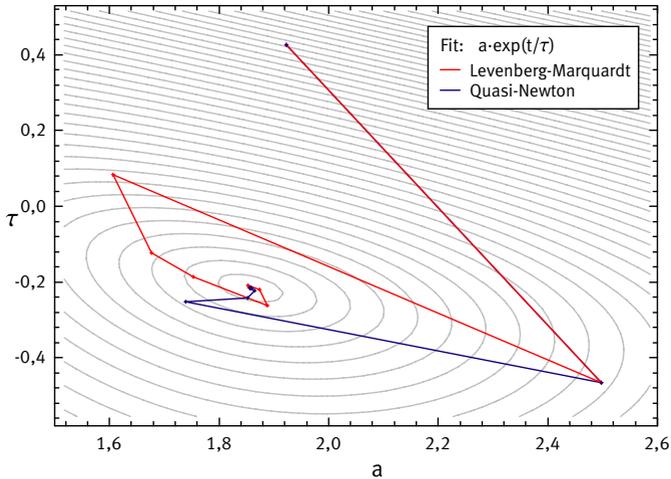


Abbildung 4.8.: Konvergenz des Parametervektors bei Levenberg-Marquardt- und Quasi-Newton-Verfahren

Iterationen im Vergleich zu allen obigen Varianten benötigt. Die Berechnung der Kriterien zur Entscheidung, ob das Modell gewechselt werden soll, fällt bei der Rechenzeit kaum ins Gewicht. Die Rechenzeit beträgt daher im ungünstigsten Fall etwa solange, wie der Levenberg-Marquardt-Algorithmus von Moré, kann aber in anderen Fällen bis zu 40 % weniger Zeit benötigen.

In Abb. 4.8 ist die Konvergenz von Levenberg-Marquardt- und Quasi-Newton-Verfahren zu sehen. Man erkennt, dass auch bei einem Quasi-Newton-Verfahren der erste Schritt wegen der Initialisierung von S_0 mit einer Nullmatrix ein Gauss-Newton-Schritt ist. Die verschiedenen Konvergenzgrade beider Algorithmen lassen sich besser durch einen Vergleich der Schrittweiten in Abb. 4.9 verdeutlichen. Man erkennt die

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

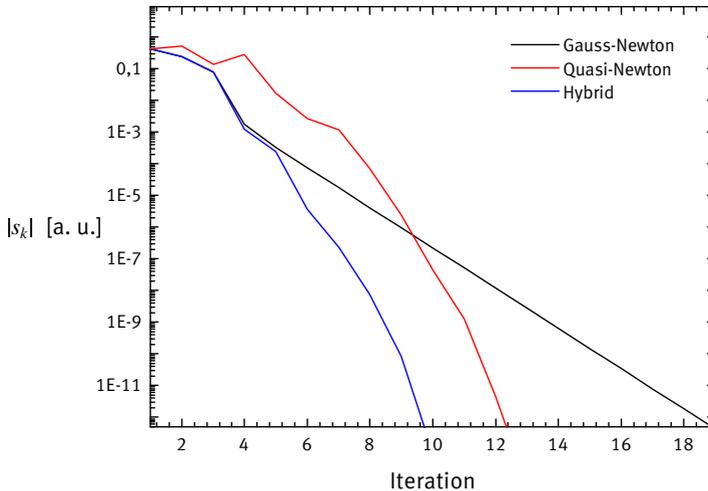


Abbildung 4.9.: Konvergenz der Schrittweite bei Levenberg-Marquardt-, Quasi-Newton- und Hybridverfahren

quadratische Konvergenz des Quasi-Newton-Verfahrens und das schnellere Einmünden in diese beim Hybrid-Verfahren durch die günstigeren Gauss-Newton-Schritte während der ersten Iterationen.

4.3.6. Konvergenzkriterien

Um die nichtlineare Regression im Einzelpulsbetrieb automatisch zu beenden und um unnötige Iterationsschritte zu vermeiden, ist die Formulierung von Abbruchkriterien notwendig, bei welchen der Algorithmus anhält. Die beiden häufigsten Kriterien, die zu einer (erfolgreichen) Beendigung der Iteration führen, sind die sogenannte relative Funktionskonvergenz und die relative Parameterkonvergenz.

Relative Funktionskonvergenz wird erreicht, wenn das aktuelle Modell eine vernachlässigbare Verkürzung des Residuenvektors vorhersagt.

$$\frac{f(\mathbf{x}_k) - q_k(\mathbf{s}_k)}{f(\mathbf{x}_k)} < \epsilon_R \quad (4.14)$$

Relative Parameterkonvergenz bedeutet, dass die berechnete relative Änderung des Parametervektors geringer ausfallen würde als der gewünschte Grad an Genauigkeit.

$$\frac{\max_j \left(\mathcal{A}_k^{jj} |s_k^j| \right)}{\max_j \left(\mathcal{A}_k^{jj} (|\mathbf{x}_k^j| + |\mathbf{x}_k^j + \mathbf{s}_k^j|) \right)} < \epsilon_X \quad (4.15)$$

Die Konvergenzschranken ϵ_R und ϵ_X werden so gewählt, dass Konvergenz eintritt, kurz bevor die Rundungsfehler der *double*-Dezimaldarstellung Iterationsschritte signifikant verfälschen.

Weiterhin gibt es noch eine Reihe von Konvergenzkriterien, die Spezialfälle abfangen oder auf ein Versagen des Algorithmus hinweisen. Zu nennen sind hier die absolute Funktionskonvergenz, die Konvergenz mit einer (nahezu) singulären Hesse-Matrix, die Konvergenz an einem nichtkritischen Punkt und die Überschreitung einer maximal zulässigen Iterationsanzahl. Die Implementierung der Abbruchkriterien orientiert sich eng an [Dennis u. a. 1981]. Die Art des Abbruchs wird protokolliert und gibt Auskunft über Erfolg oder Misserfolg der Anpassung.

4.3.7. Startwerte

Die Kenntnis guter Startwerte ist für die Konvergenzgeschwindigkeit von Levenberg-Marquardt- und Quasi-Newton-Verfahren von entscheidender Bedeutung. Insbesondere können beide Verfahren bei schlecht gewählten Startvektoren in Punkten konvergieren, welche lediglich Ne-

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

benminima des Residuenvektors sind. Es ist daher sinnvoll, durch eine gesonderte Routine möglichst gut die Werte des Lösungsvektors abzuschätzen und diese Näherungslösung dann dem iterativen Prozess als Startwert zu übergeben. Bei einem partiell gesättigten Fluoreszenzsignal ist eine Abschätzung für einige Größen einfach möglich: So gibt die Halbwertsbreite des Signals Aufschluss über die ungefähre Lebensdauer; die Signalthöhe lässt sich im ungesättigten Fall einfach in eine Teilchendichte umwandeln und liefert daher eine untere Abschätzung für den gesättigten Fall. Verzweigung und Sättigungsparameter hingegen sind aus dem Mess-Signal nicht in ähnlich einfacher Weise zu entnehmen. Ist der Konvergenzradius des Regressionsverfahrens hinreichend groß, kann mit mittleren Werten, etwa einem Sättigungsparameter von 10 und einer Verzweigung von 50 % begonnen werden.

Ist eine gute Vorabschätzung aufgrund spezieller Eigenschaften der Funktion nicht möglich, kann dem eigentlichen Regressionsverfahren ein sogenannter genetischer oder evolutionärer Algorithmus vorschaltet werden. Diese Verfahren stellen allgemeine Optimierungsansätze dar, die mit minimalen Vorkenntnissen über das zu lösende Problem auskommen. Insbesondere benötigen diese keine Information darüber, wie eine gegebene Lösung lokal zu verbessern ist (partielle Ableitung). Eine umfassende Darstellung dieser Techniken findet sich in [Whitley 1993] und in der bei [Goldberg und Thomas 1986] aufgeführten Literatur.

Grundlage der breiten und erfolgreichen Anwendbarkeit genetischer Algorithmen auf die unterschiedlichsten Optimierungsprobleme ist die Tatsache, dass eine qualitative Beurteilung einer Testlösung ungleich einfacher ist als die Angabe eines allgemeinen Verfahrens zum Auffinden der bestmöglichen aller Lösungen (globales Optimum). Die Optimierung geschieht hierbei in Anlehnung an evolutionäre Prinzipien

durch eine Folge von Versuchslösungen, deren Bewertung, Selektion und Modifikation. Vorteilhaft an diesem Ansatz ist, dass durch die gleichzeitige Existenz vieler Versuchslösungen innerhalb einer Generation die Möglichkeit besteht, das Problem auf lokale und globale Minima zu untersuchen. Über eine Änderung der Bewertungsfunktion ist eine Einbindung der *robust estimation* im Gegensatz zu Gauss-Newton- und Quasi-Newton-Verfahren in einfacher Weise möglich. Die Konvergenzgeschwindigkeit ist allerdings, insbesondere in der Nähe des Optimums, nicht mit der Effizienz von Gradientenverfahren vergleichbar.

4.3.8. Programmumfang und Rechenzeit

Das Kernprogramm umfasst etwa 600 Programmzeilen, hinzu kommen Programmteile in ausgelagerten Klassen, wie etwa 400 Zeilen zur Initialisierung der Anpassung und zur Berechnung von Jacobi-Matrizen und Residuen, 1100 Zeilen für Matrizen und Vektoroperationen, nicht eingerechnet die verwendeten Funktionen des Jama-Pakets.

Für die meisten praktischen Probleme konvergiert der Algorithmus von Startwerten innerhalb des Konvergenzradius aus in 5 bis 15 Iterationen. Eine Gauss-Funktion mit 1000 Datenpunkten wird typischerweise auf einem Pentium™ 3 mit 800 MHz in etwa 60 Millisekunden angepasst. Die Anpassung einer gesättigten LIF-Funktion ist aufgrund der wesentlich komplizierteren Berechnung der Funktionswerte deutlich langsamer und dauert etwa 2 Sekunden. Die Auswertung einer Einzelpulsmessung mit typischerweise 1000 Pulsen benötigt daher etwa 30 bis 45 Minuten.

Die prozentuale Aufteilung der Rechenzeit auf die verschiedenen Abschnitte der Regression ist für die Anpassung von Gauss-Pulsen exemplarisch in Tabelle 4.1 angegeben, wobei die einzelnen Anteile je nach Iterationspfad mit einer gewissen Schwankung behaftet sind. Es

Kapitel 4. Aufnahme und Auswertung der Messdaten

ist deutlich zu erkennen, dass die Berechnung der Jacobi-Matrix den größten Anteil der Rechenzeit in Anspruch nimmt. Dies ist auch ein Hinweis darauf, dass der erhöhte Programmieraufwand für das Quasi-Newton-Verfahren, die verbesserte Behandlung des Gültigkeitsbereiches und der Modellwechsel sich lohnen, wenn dadurch im Mittel Iterationsschritte und damit die Berechnung von Jacobi-Matrizen eingespart werden.

Jacobi-Matrix	68.1 %
Lösung des Gleichungssystems	17.2 %
Skalierungsinvarianter Gültigkeitsbereich	9.8 %
Matrizenoperationen	2.9 %
Bewertung der Anpassung	1.2 %
Näherung der zweiten Ableitungen	0.5 %
Modellwechsel	0.3 %

Tabelle 4.1.: Prozentuale Aufteilung der Rechenzeit auf die verschiedenen Elemente des Quasi-Newton-Verfahrens am Beispiel einer Gauss-Funktion

Kapitel 5.

Ausgewählte Messergebnisse

5.1. Pulsprofilfluktuationen

Zunächst soll an einem Beispiel die verbesserte Anpassung der Fluoreszenzkurven durch die Berücksichtigung von Einzelpulsen demonstriert werden. Abbildung 5.1 zeigt den Betrag der Residuen zwischen angepassten Kurven und Fluoreszenzsignalen für eine Messung des $3^2S_{1/2}-3^2P_{3/2}$ Übergangs des einfach ionisierten Magnesiums. Die Residuen für die einzelnen Pulse sind zeilenweise in Form einer Falschfarbendarstellung abgebildet. Als Teilchenquelle wurde eine Hohlkathodenentladung mit einem Magnesium-Einsatz verwendet. Die Entladung wurde mit Argon bei einem Druck von 70 Pa betrieben. Bei einem Strom von 0.3 A betrug die Brennspannung 265 V.

Im linken Bild sind die Residuen dargestellt, wie sie sich durch Vergleich mit der gemittelten Anpassung ergeben. Im rechten Bild ist das Ergebnis für einzeln angepasste Pulse zu sehen. Deutlich zu erkennen ist die verbesserte Übereinstimmung von gemessenem und angepasstem Signal für die Einzelpulsauswertung. Die vom Betrag her geringeren Residuen sind sowohl auf Schwankungen der Intensität, als auch auf Fluktuationen der Form des Fluoreszenzsignals zurückzuführen.

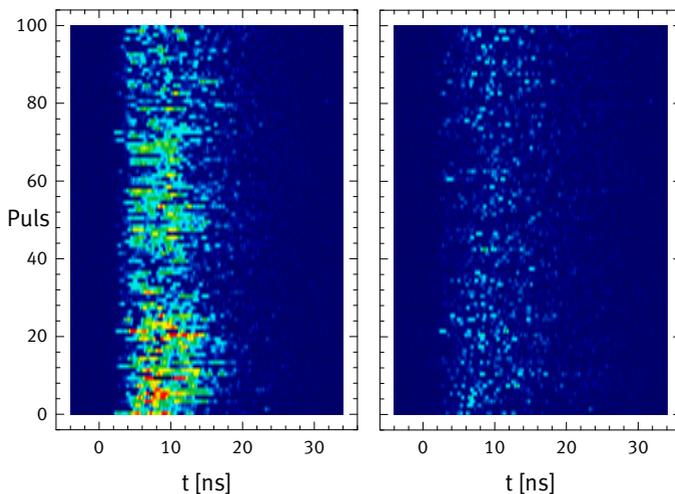


Abbildung 5.1.: Residuen der gemittelten Lösung und von Einzelpulsanpassungen im Vergleich

Während sich Residuen, die eine Folge von Dichteschwankungen sind, letztlich herausmitteln und zu keiner systematischen Änderung der angepassten Werte führen, bleibt der nichtlineare Einfluss der Schwankungen in der Signalform erhalten und führt zu einer etwas besseren Übereinstimmung der Summe aller Anpassungen und des gemittelten Fluoreszenzsignals.

Die vom Absolutbetrag her größten Abweichungen zwischen Mess-Signal und Anpassung ergeben sich auch für die Einzelpulsauswertung zu Zeitpunkten der Laserwechselwirkung. Dies könnte als Abweichung von den Ratengleichungen und damit als Hinweis auf eine nicht vollständig inkohärente Anregung interpretiert werden. Andererseits ist allein aufgrund der Photonenstatistik ein Maximum der absoluten Abweichungen zu Zeiten des größten Signals zu erwarten.

5.2. Teilchendichtefluktuationen

Die in Einzelpulsen enthaltene Information kann auch dazu verwendet werden, um Aussagen über Zeitabhängigkeiten des Mess-Signals zu erlangen, wenn also die Reproduzierbarkeit gar nicht angestrebt wird. Ein Beispiel hierfür ist die Vermessung von Dichtefluktuationen der verwendeten Teilchenquellen. Die Intensität eines Fluoreszenzsignals kann in eine absolute Teilchendichte umgewandelt werden, wenn die Empfindlichkeit der Messapparatur kalibriert worden ist. Eine Messung des relativen Dichteverlaufs ist bereits ohne eine solche Kalibration, welche typischerweise durch Aufnahme eines Rayleigh-Streusignals vorgenommen wird, möglich.

Abbildung 5.2 zeigt die Intensitätsverläufe von Fluoreszenzsignalen für die beiden verwendeten Teilchenquellen-Typen. Die relative Kurzzeit-Stabilität der Hohlkathodenentladung, demonstriert an einem Fluoreszenzsignal an Magnesium, erweist sich als besser als 10 %.

Das Fluoreszenzsignal der in einem Ablationsplasma erzeugten Boratome zeigt eine auffällige periodische Struktur, die in der Beschaffenheit der *Target*-Oberfläche begründet ist. Bor ist ein sehr hartes, sprödes und schwer zu bearbeitendes Material. Das verwendete granuläre *Target* wies daher eine unebene Oberfläche auf. Diese führte bei Drehung des *Targets* zu periodisch modulierten Plasmabedingungen und Teilchendichten. Die Fourier-Analyse der schwankenden Teilchendichte erlaubt die nachträgliche Bestimmung der Rotationsfrequenz des *Targets* zu etwa 0.8 Hz.

Die Langzeitstabilität der Teilchendichten ist, sowohl für die Hohlkathodenentladung, als auch für ein lasererzeugtes Plasma, durch eine deutliche Drift gekennzeichnet. Bei der Hohlkathodenentladung wird, je nach Entladungsbedingungen, im Bereich der Austrittsblende Mate-

Kapitel 5. Ausgewählte Messergebnisse

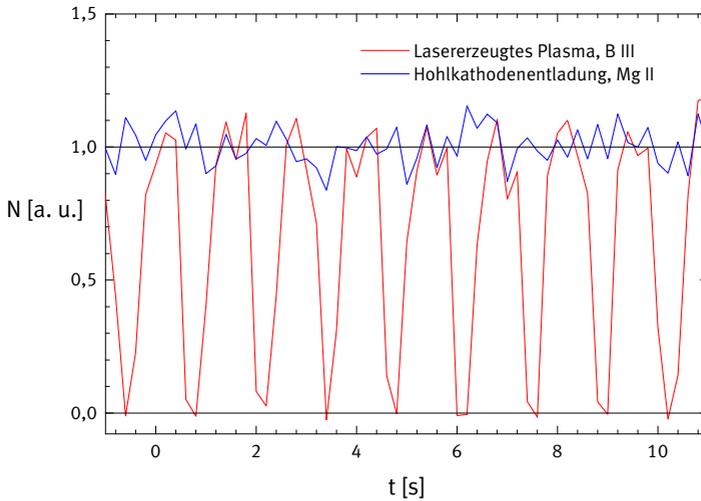


Abbildung 5.2.: Relative Teilchendichtefluktuationen für eine Hohlkathodenentladung und ein lasernerzeugtes Plasma

rial abgetragen oder aber gesputtertes Wandmaterial redeponiert. Dies kann einerseits zu einem völligen Verschluss der Blende, oder aber andererseits zu einer Aufweitung auf mehrere Millimeter führen. Infolgedessen sind die Brennbedingungen auf einer Zeitskala von Stunden immer durch eine Änderung der Teilchendichten um eine Größenordnung gekennzeichnet und erfordern letztendlich das Auswechseln der Blende nach einigen Betriebsstunden. Für das lasernerzeugte Plasma führt die wiederholte Ablation am rotierenden *Target* zur Bildung eines ringförmigen Einschnitts. Mit zunehmender Tiefe der Kerbe verschlechtert sich die Effizienz der Plasmabildung. In solchen Fällen kann durch seitliches Verschieben des Fokus des Ablationslasers, ohne Wechsel des *Targets*, eine neue Spur und damit eine unversehrte Oberfläche zur Plasmaerzeugung genutzt werden.

5.3. Parametrisierung von Messungen

Die im letzten Abschnitt beschriebene Beobachtung zeitabhängiger Effekte lässt es naheliegend erscheinen, eine künstliche Zeitabhängigkeit durch Ändern der experimentellen Bedingungen zwischen den einzelnen Pulsen einzuführen. Möglich wird dies durch die in den Abschnitten 4.1.1 und 4.1.2 beschriebenen Erweiterungen des Experiments durch Nutzung des GPIB-Busses. Die damit verbundenen Möglichkeiten sind ein flexibles Instrument zur automatisierten Aufnahme von Messreihen und Parametervariationen.

Als erstes Beispiel hierfür sei hier eine Charakterisierung des Nd:YAG-Lasers genannt. Dieser wurde in Bezug auf seine Amplitudenstabilität, sein Zeitverhalten und die optimalen Betriebsbedingungen beim Einsatz des *Seeders* untersucht. Dabei wurde auch die Abhängigkeit der Anschlagzeit t_B vom Zeitversatz t_D der *Trigger*-Signale zum Zünden der Blitzlampe und zum Auslösen der Güteschaltung analysiert.

Dazu wurde mit der Photoröhre zu einem festen Zeitpunkt nach Auslösung der Güteschaltung das zeitliche Intensitätsprofil der Pulse aufgezeichnet. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Die Achse für das Zeitverhalten der Laserpulse ist vertikal angeordnet. Jede Spalte ist eine Mittelung über zehn Laserpulse. Deutlich zu erkennen ist ein Minimum in der Anschlagzeit des Pulses.

Diese Anschlagzeit kann als Maß für die Inversion im Lasermedium gedeutet werden. Wegen der Leuchtdauer der Blitzlampenentladung wird die Inversion über einen längeren Zeitraum aufgebaut und erreicht ein Maximum, woraus ein Minimum der Anschlagzeit resultiert. Bei einer weiteren Vergrößerung des Zeitversatzes geht die Inversion aufgrund von Resonatorverlusten und der begrenzten Lebensdauer des oberen Zustands wieder zurück.

Kapitel 5. Ausgewählte Messergebnisse

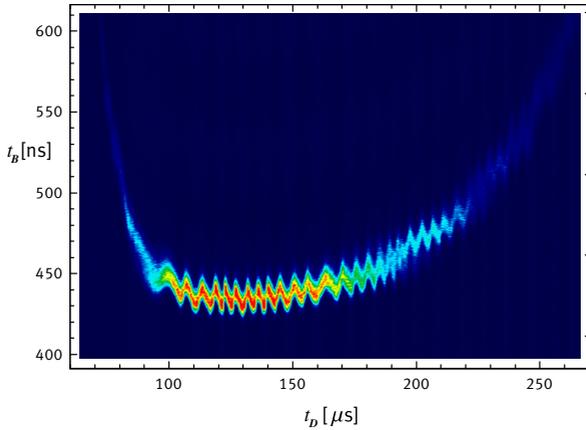


Abbildung 5.3.: Abhängigkeit der Bildungsdauer des Nd:YAG-Pulses vom Zeitversatz zwischen Blitzlampe und Güteschaltung

Das Minimum der Anschlagzeit wird für das untersuchte Nd:YAG-Lasersystem bei einer Verzögerung von etwa $130 \mu s$ zwischen Zündung der Blitzlampe und Schalten der Güteschaltung mit etwa 435 ns erreicht. Die Verzögerung von $130 \mu s$ ist allerdings kein direktes Maß für die Lebensdauer des oberen ${}^4F_{3/2}$ -Zustands des Laserübergangs. Sie ist auch von den spezifischen Eigenschaften des Lasers abhängig. Für ein anderes verwendetes Nd:YAG-Lasersystem liegt dieser Wert beispielsweise bei $265 \mu s$. Die Oszillationen in der Aufbauzeit sind ein Artefakt der Messung und verschwinden für einen konstanten Zeitversatz.

In einem zweiten Beispiel wurde die Sättigungsverbreiterung eines Linienprofils des neutralen Nickels vermessen. Als oberes Niveau wurde der Zustand mit einer Energie von 43089 cm^{-1} ausgewählt. Er zeigt ei-

5.3. Parametrisierung von Messungen

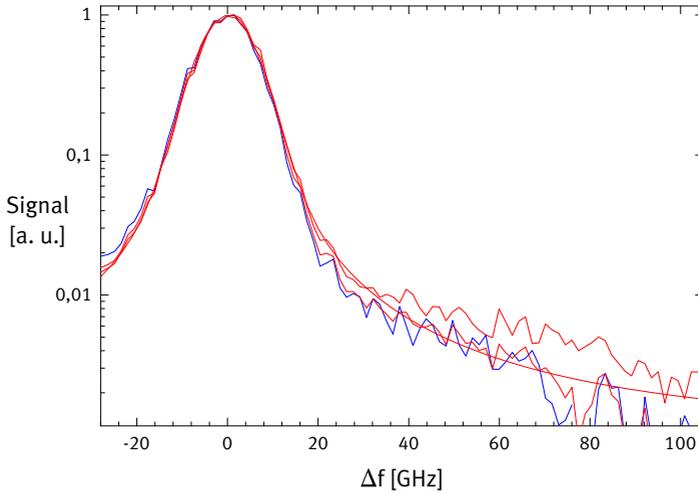


Abbildung 5.4.: Sättigungsverbreiterung

ne hohe Übergangswahrscheinlichkeit und eine Lebensdauer von unter 2 ns und damit eine hohe natürliche Linienbreite. Daher war hier die Beobachtung der Sättigungsverbreiterung optimal möglich.

Dazu wurde der Anregungslaser über das Linienprofil des Anregungsübergangs durchgestimmt. Für jeden Wellenlängenschritt wurde die Amplitude des Fluoreszenzsignals über 100 Pulse gemittelt. So konnte eine hohe Dynamik des Signals erreicht werden. Die Erfassung des Spektrums benötigte etwa 20 Minuten.

Durch Auswertung des spektralen Profils unter Berücksichtigung der spektralen Apparatefunktion des Anregungslasers erhält man eine Abschätzung des gemittelten maximalen Sättigungsparameters von etwa 1300. Die Genauigkeit dieses Wertes wird dadurch beeinträchtigt, dass bei der Analyse des für die Sättigungsverbreiterung relevanten Lorentz-

Anteils vor allem die Bereiche geringer Signalintensität eingehen. Diese sind jedoch durch die lange Messzeit, die Drift der Entladungsbedingungen, Ungenauigkeiten in der Apparatefunktion und einen Restuntergrund verfälscht.

5.4. Lebensdauermessungen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Fluoreszenzmessungen an Bor, Magnesium, Aluminium, Eisen, Nickel, Cadmium, Indium und Wolfram durchgeführt. Ein Teil davon soll im Folgenden vorgestellt werden.

5.4.1. Eisen II

Eisen spielt im Verständnis von Sternenmodellen, insbesondere der Photosphäre, eine Schlüsselrolle. Die hohe stellare Häufigkeit von Eisen und sein Reichtum an Linien erlauben Aussagen über die Plasmabedingungen in der Region der Linienentstehung. Die Bestimmung astrophysikalischer Eisenhäufigkeiten steht daher seit langem im Blickpunkt des Interesses und wird immer wieder durch Messungen neuer Übergangswahrscheinlichkeiten stimuliert [Garz u. a. 1969]. Zur Bestimmung von astrophysikalischen Elementhäufigkeiten sind besonders Linien geeignet, die frei von *Blends* sind und geringe Äquivalentbreiten aufweisen. Ideal sind daher Linien mit hohen unteren Niveaus und geringen Übergangswahrscheinlichkeiten.

Die in Tabelle 5.1 aufgeführten Lebensdauern waren Teil des FERRUM-Projekts, das sich zum Ziel gesetzt hat, absolute Übergangswahrscheinlichkeiten für schwache Linien oder Übergänge mit hochliegenden unteren Niveaus zu bestimmen. Als unterer Zustand für alle Lebensdauer-messungen diente hierbei ein hochliegendes metastabiles Niveau mit

5.4. Lebensdauermessungen

einer Energie von 15831 cm^{-1} , welches es ermöglichte, obere Zustände mit Energien von über 60000 cm^{-1} ohne Verwendung von VUV-Laserstrahlung zu besetzen.

Die Lebensdauermessungen wurden am Lund Laser Centre (LLC) durchgeführt. Als Teilchenquelle diente ein Ablationsplasma, das durch Fokussierung eines gütegeschalteten frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers auf ein rotierendes Reineisen-*Target* erzeugt wurde.

Der Anregungslaser war ein Farbstofflaser, der mit DCM betrieben wurde. Er wurde durch einen frequenzverdoppelten, mittels SBS pulskomprimierten Nd:YAG-Laser gepumpt. Die Laserstrahlung wurde in KDP frequenzverdoppelt und durch anschließende Mischung in BBO frequenzverdreifacht.

Trotz spektral selektiver Detektion des Fluoreszenzlichts war im Signal ein zeitabhängiger Untergrund durch Rekombinationsleuchten zu beobachten. Dieser konnte aber wegen seiner im Vergleich zum Fluoreszenzsignal sehr viel langsameren Zeitabhängigkeit automatisch vom Fluoreszenzsignal unterschieden und vom Mess-Signal subtrahiert werden.

Störeinflüsse durch *Quenching* und Flugzeiteffekte wurden durch Variation der Plasmabedingungen und durch relative Verschiebung von Anregungs- und Beobachtungsvolumen untersucht. Die Präzision der gemessenen Lebensdauern ist durch die Signalqualität und die Plasmabedingungen begrenzt, welche notwendig waren, um solch einen hochliegenden metastabilen Zustand zu besetzen. Zudem ermöglichte die bei diesen Messungen verwendete Auswertungs-Software keine Berücksichtigung des Einflusses von Sättigung.

Die Einzelheiten dieser Messungen, zusammen mit einer Beschreibung der Bestimmung der dazugehörigen Verzweigungsverhältnisse und der Kombination der Messwerte zu absoluten Übergangswahrscheinlich-

Kapitel 5. Ausgewählte Messergebnisse

keiten finden sich in [Sikström u. a. 1999].

Für die meisten der gemessenen Lebensdauern existieren keine Vergleichswerte in der Literatur. Lediglich bei [Smith und Whaling 1973] wird eine als sehr präzise eingeschätzte Lebensdaueremessung mit einem relativen Fehler von ca. 0.2 % angegeben. Die Tatsache, dass dieser Wert mit der *Beam-Foil*-Methode [Engström 1993] gemessen wurde, welche bei Vernachlässigung von Kaskaden oft wesentlich größere Fehler mit sich bringt, lässt diese Unsicherheit jedoch als zu optimistisch erscheinen.

E	J	λ_{exc}	λ_{obs}	τ	Lit. ^a
61513	9/2	218.903	251.176	3.5 ± 0.4	
62066	7/2	216.285	254.667	3.5 ± 0.4	
62662	11/2	213.528	275.329	4.1 ± 0.5	4.83 ± 0.01
62945	2/2	212.245	249.890	2.8 ± 0.3	
63949	9/2	207.816	243.008	2.7 ± 0.3	
64041	7/2	207.4189	243.2261	2.7 ± 0.3	

^a [Smith und Whaling 1973]

Tabelle 5.1.: Lebensdauern von $3d^6(a\ ^3\text{H})4p$ -Niveaus des einfach ionisierten Eisens

5.4.2. Magnesium II

Die Lebensdauern des $3^2P_{1/2}$ und des $3^2P_{3/2}$ -Zustandes von einfach ionisiertem Magnesium wurden mit einer Hohlkathodenentladung als Teilchenquelle bestimmt. Die Entladung wurde mit Argon bei Drucken zwischen 50 und 600 Pa betrieben. Bei Strömen bis zu 1.5 A fielen an der Entladung Spannungen bis zu 500 V ab.

Ein Teil der Messungen wurde unter Verwendung der linearen Paul-Falle durchgeführt. Diese wurde bei einer Resonanzfrequenz von 1.7 MHz und Amplituden von bis zu 3 kV_{SS} betrieben.

Als Kühlgas im Beobachtungsvolumen wurde Helium mit Drucken bis zu 200 Pa verwendet. In diesem Bereich konnte kein Einfluss von *Quenching* beobachtet werden. Bei weiterer Erhöhung, insbesondere in Verbindung mit dem Betrieb der Paul-Falle, kam es gelegentlich zur Bildung einer RF-unterstützten Entladung im Beobachtungsgefäß. Dann sank die Lebensdauer durch vermehrte Stöße mit freien Elektronen auf ca. 2.5 ns. Die Zerfallskurve entsprach in solchen Fällen auch nur in schlechter Näherung einem exponentiellen Verlauf, da es sowohl zu strahlungsloser Entvölkerung, wie auch zur Rückbesetzung während der Lebensdauermessung kommen kann.

Die Elektronenkonfiguration von ionisiertem Magnesium entspricht der eines Alkalimetalls. Die beiden P-Zustände weisen daher keine anderen Verzweigungen auf, so dass die Lebensdauer ohne weitere Verfälschung durch Verzweignungsverhältnisse in eine präzise absolute Übergangswahrscheinlichkeit umgewandelt werden kann.

Die Vergleichswerte von [Nagourney u. a. 1983], entnommen aus [Church 1993] wurden durch die Vermessung der natürlichen Linienbreite von lasergekühlten Magnesiumionen in einer miniaturisierten Paul-Falle bestimmt.

Kapitel 5. Ausgewählte Messergebnisse

E [cm^{-1}]	J	$\lambda_{\text{exc,obs}}$ [nm]	τ [ns]	A_{ik} [10^8 s^{-1}]	Lit. ^a
35669	1/2	280.271	4.23 ± 0.13	2.36 ± 0.07	
35761	3/2	279.553	4.27 ± 0.13	2.34 ± 0.07	3.48 ± 0.5

^a [Church 1993]

Tabelle 5.2.: Lebensdauern und absolute Übergangswahrscheinlichkeiten der $3P$ -Niveaus des einfach ionisierten Magnesiums

5.4.3. Wolfram III

Wolfram ist in der Plasmadiagnostik von Interesse, da es wegen seines hohen Schmelzpunktes oft als Elektroden- oder Wandmaterial in Verbindung mit Plasmen eingesetzt wird und durch Sputterprozesse in das Plasma gelangt. Absolute Wolfram-Übergangswahrscheinlichkeiten wurden beispielsweise bei Untersuchungen von Erosionsprozessen an Wolfram-Kathoden in freibrennenden Bögen verwendet [Kühn u. a. 2002].

In der Fusionsforschung wird Wolfram seit längerem als Wandmaterial in Betracht gezogen [Krieger u. a. 2001, Neu u. a. 2002]. Aufgrund der hohen Ordnungszahl besteht aber die Gefahr der Strahlungskühlung. Die in Tabelle 5.3 angegebenen Lebensdauern waren Teil eines Programms zur Messung atomarer Übergangswahrscheinlichkeiten für neutrales Wolfram und seine ersten Ionisationsstufen [Schnabel und Kock 1997, Schnabel u. a. 1998, Schultz-Johanning u. a. 2001].

Die Lebensdauermessungen wurden am Lund Laser Centre (LLC) durchgeführt. Doppelt ionisierte Atome wurden in einem lasererzeugten Ablationsplasma durch Fokussierung eines frequenzverdoppelten, güte-

5.4. Lebensdauermessungen

geschalteten Nd:YAG-Lasern auf ein rotierendes Wolfram-*Target* bereitgestellt. Die Pulsenergie des Ablationslasers betrug dabei wenige Millijoule. Als untere Zustände für die Anregungsübergänge wurden der Grundzustand und metastabile Zustände bei 2256 und 7687 cm^{-1} verwendet. Die Wellenlängen des Anregungslasers lagen im Vakuum-UV-Bereich bei etwa 165 nm und wurden durch Vierwellenmischung zweier frequenzverdoppelter bzw. -verdreifachter Farbstofflaser in Krypton erzeugt. Beide Laser wurden durch Nd:YAG-Laser gepumpt, von denen einer durch stimulierte Brillouin-Streuung pulskomprimiert wurde. Das Fluoreszenzlicht wurde mit einer Lithium-Fluorid-Linse auf den Eintrittsspalt eines Monochromators mit einer Fokallänge von 0.2 m abgebildet. Der Eintrittsspalt lag dabei horizontal und damit parallel zum Laser, so dass ein möglichst großer Überlapp von Anregungs- und Beobachtungsvolumen erreicht wurde, um die Intensität des schwachen Fluoreszenzsignals zu optimieren. Bei dieser Anordnung ist jedoch die Anfälligkeit des Signals auf Flugzeiteffekte höher. Die Existenz einer systematischen Verschiebung der gemessenen Lebensdauern durch diese Effekte wurde durch relative Verschiebung von Anregungs- und Beobachtungsvolumen ausgeschlossen.

Das Fluoreszenzlicht wurde selektiv auf einem Zerfallskanal mit einer *Photomultiplier*-MCP detektiert. Trotzdem war auch bei diesen Messungen teilweise eine nachträgliche Subtraktion eines Plasmauntergrunds notwendig.

Durch Variation des Zeitversatzes zwischen Plasmaerzeugung und Laseranregung wurden die der Fluoreszenzmessung zugrundeliegenden Plasmabedingungen kontrolliert verändert und dienten zum Ausschluss von systematischen Fehlern durch Stöße. Aufgrund der geringen Signalstärken, der Reproduzierbarkeit der Signale und der Abschätzung der Störeinflüsse wurde der Fehler der Lebensdauern mit

Kapitel 5. Ausgewählte Messergebnisse

5 % (1σ) abgeschätzt. Bisher existieren keinerlei Vergleichsdaten in der Literatur.

Durch die Lebensdauern konnte ein Teil eines Satzes von Verzweigungsverhältnissen, die von R. Kling am National Institute for Standards and Technology (NIST) in Gaithersburg an einem VUV-Fourier-Transform-Spektrometer gemessen wurden, absolut angeschlossen werden. Die Lebensdauern, Verzweigungsverhältnisse und absoluten Übergangswahrscheinlichkeiten, sowie Details der Messungen finden sich in [Schultz-Johanning u. a. 2001].

E	J	λ_{exc}	λ_{obs}	τ
60196	1	166.125	209.275	1.78 ± 0.09
62822	2	165.110	209.209	2.10 ± 0.10
67732	5	166.541	207.834	2.42 ± 0.12

Tabelle 5.3.: Lebensdauern von Niveaus des doppelt ionisierten Wolframs

5.4.4. Bor III

Bor ist als leichtes Element bei der Untersuchung und Klassifizierung von Sternen und für Modelle der Nukleosynthese interessant. Durch die kurzen Übergangswellenlängen von doppelt ionisiertem Bor können seine Absorptionlinien nur von nicht erdgebundenen Teleskopen aus vermessen werden, die dadurch frei von Beeinträchtigungen durch atmosphärische Absorption sind. Resonanzlinien des doppelt ionisierten Bors wurden in zahlreichen astrophysikalischen Objekten beispielsweise durch den *Space Telescope Imaging Spectrograph* (STIS) oder den *Goddard High Resolution Spectrograph* (GHRS) des *Hubble Space Telescopes* beobachtet. Wegen seiner einfachen Elektronenkonfiguration, welche der des neutralen Lithiums entspricht und nur aus drei Elektronen besteht, sind zudem sehr präzise Berechnungen von Übergangswahrscheinlichkeiten möglich.

Die Messungen an doppelt ionisiertem Bor wurden im LLC mit einem lasererzeugten Plasma als Teilchenquelle durchgeführt. Aufgrund der Materialeigenschaften von Bor wurde unebenes, granulares Material als *Target* verwendet. Die Fluktuationen der Teilchendichte wurden in Abschnitt 5.2 beschrieben, beeinträchtigten die Signalqualität aber nicht.

Der Anregungslaser war ein mit DCM betriebener Farbstofflaser. Er wurde, wie bei den Messungen an Eisen und Wolfram, durch einen frequenzverdoppelten, SBS-pulskomprimierten Nd:YAG-Laser gepumpt. Die Laserstrahlung wurde in KDP frequenzverdoppelt und durch Mischung anschließend in BBO frequenzverdreifacht.

Wegen des geringen Atomgewichts von Bor wurden bei der Messung von Lebensdauern an lasererzeugten Plasmen hohe Fluchtgeschwindigkeiten im Bereich von 10^4 ms^{-1} beobachtet. Um eine Verfälschung durch Flugzeiteffekte zu vermeiden, wurde bei diesen Messungen der

Kapitel 5. Ausgewählte Messergebnisse

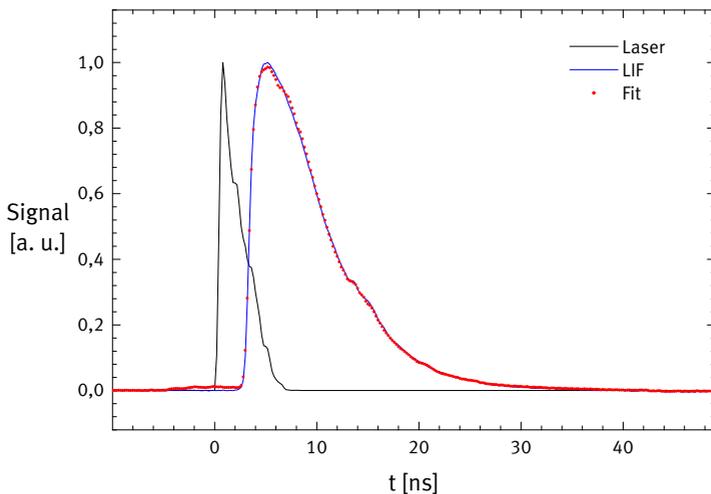


Abbildung 5.5.: Laserpuls und Fluoreszenzsignal bei einer Lebensdauerermessung an B III

Monochromatorspalt senkrecht zum Anregungslaser ausgerichtet. Die Detektionseffizienz wurde dabei zwar stark reduziert, die Anfälligkeit gegenüber Flugzeiteffekten verringerte sich jedoch ebenfalls um mehrere Größenordnungen. Trotz der ineffizienteren Abbildung konnten sehr gute Signal zu Rausch-Verhältnisse erzielt werden.

Aufgrund der hohen Fluchtgeschwindigkeiten waren die Verzögerungen zwischen der Erzeugung des Plasmas und der Messung mit 300 bis 700 ns sehr kurz. Für sehr kurze Verzögerungen und geringe Entfernungen zum *Target* konnte eine leichte Tendenz zur Verkürzung der Lebensdauer beobachtet werden. Das Beobachtungsvolumen lag bei den meisten Messungen mit Entfernungen von bis zu 5 cm extrem weit vom Target entfernt, was Grund zur Annahme gibt, dass eine Beeinflus-

5.4. Lebensdauermessungen

sung durch das Plasma bei diesen Messungen nicht stattfand. Auch bei diesen Messungen wurden Zeitpunkt und Ort der Messung zum Ausschluss systematischer Fehler variiert. Bei einigen Messungen war ebenfalls ein nachträgliches Abziehen eines Plasmauntergrundes notwendig.

Wie auch bei Magnesium, ist das Verzweigungsverhältnis der beiden P-Zustände gleich 1 und erlaubt eine direkte Umwandlung der Lebensdauern in eine absolute Übergangswahrscheinlichkeit.

Der Vergleichswert von [Proffitt u. a. 1999] ist das Ergebnis einer *Multi Configuration Hartree Fock*-Rechnung. Sein Fehler wird mit unter einem Prozent abgeschätzt.

E [cm ⁻¹]	J	λ [nm]	τ [ns]	A _{ik} [10 ⁸ /s]	A _{ik} ^a
48358	1/2	206.723	5.16 ± 0.13	1.94 ± 0.05	
48392	3/2	206.578	5.42 ± 0.29	1.85 ± 0.10	1.8858 ± 0.02

^a [Proffitt u. a. 1999]

Tabelle 5.4.: Lebensdauern von Niveaus des doppelt ionisierten Bors

Anhang A.

Verwendete Bezeichnungen und Abkürzungen

Atomare Übergänge

A_{21}	Einstein-A-Wert für Absorption
B_{21}	Ratenkoeffizient für Absorption
B_{12}	Rate für induzierte Emission
L, L	Bahndrehimpuls und sein Betrag
S, S	Elektronenspin und sein Betrag
J, J	Gesamtdrehimpuls gemäß LS -Kopplung und sein Betrag
g_i	statistisches Gewicht des Zustandes i
E_i	Energie des Zustandes i
ρ_{mn}	Dichtematrix
λ, ν, ω	Wellenlänge, Frequenz, Kreisfrequenz
\mathcal{D}_{ik}	Dipolmatrixelement
τ_i	Lebensdauer des Zustandes i
$\langle i , i \rangle$	Zustandsrepräsentation des Zustandes i im Hilbert-Raum

Anhang A. Verwendete Bezeichnungen und Abkürzungen

Quadrupol

U	Wechselspannungsanteil
V	Gleichspannungsanteil
ω	Kreisfrequenz der Wechselspannung
ϕ	elektrostatiches Potential
ψ	effektives Potential
E	elektrisches Feld
a, q	Stabilitätsparameter

Apparative Abkürzungen

CCD	<i>Charge Coupled Devices</i>
LIF	Laserinduzierte Fluoreszenz
MCP	<i>Microchannel Plate</i> – Mikrokanalplatte
Nd:YAG	Neodym-Yttrium-Aluminium-Granat
SHG	<i>Second Harmonic Generation</i> – Frequenzverdopplung
THG	<i>Third Harmonic Generation</i> – Frequenzverdreifachung
BBO	β -Barium-Borat
KDP	Kalium-Dihydrogen-Phosphat
MPL	<i>Multiple Prism Littrow Resonator</i>
SBS	Stimulierte Brillouin-Streuung
SRS	Stimulierte Raman-Streuung
VUV	Vakuum-Ultraviolett
XUV	Extrem-Ultraviolett
RF	Radiofrequenz
HF	Hochfrequenz

Mathematische Bezeichnungen

e	Eulersche Zahl (im Gegensatz zur Elementarladung e)
i	imaginäre Zahl (im Gegensatz zum Laufindex i)
d	Differential
a	Skalar
\mathbf{a}	Vektor
\mathcal{A}	Matrix

Kursivdruck bezeichnet im Fließtext aus dem Englischen übernommene gebräuchliche Begriffe.

Anhang B.

Konstanten

Naturkonstanten gemäß CODATA-Empfehlung [Mohr und Taylor 2000]:

Größe	Symbol	Wert	Einheit
Plancksches Wirkungsquantum	h	6.62606876	$\cdot 10^{-34}$ Js
Lichtgeschwindigkeit	c	2.99792458	$\cdot 10^8$ m/s
Permeabilität des Vakuums	μ_0	12.566370614	$\cdot 10^{-7}$ T ² m ³ /J
Vakuum-Dielektrizitätskonstante	ϵ_0	8.854187817	$\cdot 10^{-12}$ C ² /Jm
Elementarladung	e	1.602176462	$\cdot 10^{-19}$ C
Elektronenruhemasse	m_e	9.10938188	$\cdot 10^{-31}$ kg
Elektronenradius	r_e	2.817940285	$\cdot 10^{-15}$ m
Protonenruhemasse	m_p	1.67262158	$\cdot 10^{-27}$ kg
Bohrsches Magneton	μ_B	9.27400899	$\cdot 10^{-24}$ J/T
Einheit der Atommasse	amu	1.66053873	$\cdot 10^{-27}$ kg
Bohrscher Radius	a_0	5.291772083	$\cdot 10^{-11}$ m
Molvolumen	V	22.413996	m ³ /kmol
Rydberg-Konstante	R_∞	10.973731568549	$\cdot 10^6$ /m
Boltzmann-Konstante	k_B	1.3806503	$\cdot 10^{-23}$ J/K
Avogadro-Konstante	N_A	6.02214199	$\cdot 10^{23}$ /mol

Anhang C.

Dank

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. M. Kock, für die Betreuung und Freiheit in der Durchführung meiner Promotion, für Einblicke in die Plasmaphysik und nicht zuletzt für seine Unterstützung bei der Suche nach einer Postdocstelle.

Den Mitarbeitern der Abteilung Plasmaphysik danke ich für viele anregende Diskussionen, für jedwede Unterstützung und das Korrekturlesen der Arbeit in der zeitlich knappen Schlussphase.

Dr. Fred Könemann danke ich besonders für wertvolle Ratschläge zur Emissionsspektroskopie und Plasmaphysik. Ihm und Dipl.-Phys. Volker Gies danke ich für Hilfestellungen bei der objektorientierten Programmierung, der Verwendung des GPIB-Busses und der Erstellung des *Native Interface*.

Dr. Roman Schnabel und Dr. Wolfgang Mende danke ich für Einblicke in die Techniken der Laserphysik, Spektroskopie, Laserjustage und LIF. Ein großer Dank geht an Dipl.-Phys. Gerrit Kühn und Dipl.-Phys. Andreas Knoche für ihre Hilfe bei TeX-Problemen, Computerdingen und mathematischen Fragestellungen. Besonders möchte ich Dipl.-Phys. Jens Reiche für die enge, leider viel zu seltene, Zusammenarbeit und den Austausch von Ideen danken.

Anhang C. Dank

Den Mitarbeitern aus der Feinmechanik-Werkstatt Hans Melching, Friedrich Simm und Jan Diedrich danke ich für konstruktive Verbesserungsvorschläge und die schnelle, wie unproblematische Herstellung präziser Bauteile. Karl-Heinz Zwick-Meinheit, Klaus Haupt und insbesondere Heiko zur Mühlen sei für ihre Hilfe bei Fragestellungen in Vakuumtechnik, Elektrotechnik und Elektronik gedankt.

Für die Bereitstellung des Femtosekundenlasersystems zur Kalibrierung der zeitlichen Antwortfunktion der verwendeten Photoröhren danke ich Dipl.-Phys. Carsten Reinhardt.

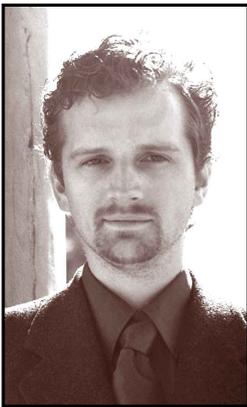
Ein großer Dank gilt auch den Mitarbeitern des LLC und der Spektroskopiegruppe in Lund, hier seien Hans Lundberg, Zhongshan Li, Carl-Martin Sikstöm, Hampus Nilsson und Sveneric Johansson genannt. Vielen Dank auch an Marie Holdahl-Svensson für ihre Unterstützung in formellen Dingen jedweder Art. Für die gemeinsame Messzeit am LLC danke ich Dr. Roman Schnabel und Dipl.-Phys. Andreas Knoche.

Diese Arbeit wurde durch verschiedene Förderungen unterstützt. Zu nennen sind hier das TMR Programm „Acces to Large Scale Facilities“, Fördernummer ERBFMGECT950020(DG12) und die Förderung durch die DFG Nr. Ko 678-15/1.

Der größte Dank gilt meiner Frau, für Ihre Unterstützung und Aufmunterung, und für eine schöne Zeit, von der ich viel zuwenig mit ihr verbracht habe.

Anhang D.

Lebenslauf



D.1. Persönliche Daten

Name	Michael Johanning, geb. Schultz
Geburtsdatum	19. 6. 1972 in Hannover
Nationalität	Deutsch
Familienstand	verheiratet, ein Kind

D.2. Bildungsweg

August 1978 – Juli 1991	Schulbildung mit Abschluss Abitur; Notendurchschnitt 1.5
September 1991 – Oktober 1992	Zivildienst: Individuelle Schwerstbehindertenbetreuung
Oktober 1992 – März 1998	Studium der Physik an der Universität Hannover
März 1998	Abschluss der Diplomarbeit am Institut für Atom- und Molekül- physik, Abteilung Plasmaphysik: <i>Eine lineare Paulfalle für Lebens- dauermessungen an Ionen</i> , No- tendurchschnitt 1.2
April 1998 – April 2003	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Atom- und Molekül- physik, Abteilung Plasmaphysik
voraussichtlich Juni 2003	Promotion

D.3. Publikationsliste

[Schultz 1997]

Schultz, M.: *Eine lineare Paulfalle für Lebensdauermessungen an Ionen*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1997

[Schnabel u. a. 1998]

Schnabel, R. ; Schultz-Johanning, M. ; Kock, M.: Radiative lifetimes of excited W II levels. In: *European Physical Journal D* 4 (1998), Nr. 3, S. 267-269

[Schultz u. a. 1999]

Schultz, M. ; Schnabel, R. ; Kock, M.: Eine lineare Paulfalle für Lebensdauermessungen an Ionen. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 1999, S. 250

[Schnabel u. a. 1999]

Schnabel, R. ; Schultz-Johanning, M. ; Kock, M.: Zeitaufgelöste partiell gesättigte laserinduzierte Fluoreszenz. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 1999, S. 253

[Schultz-Johanning u. a. 1999]

Schultz-Johanning, M. ; Schnabel, R. ; Kock, M.: A linear Paul trap for radiative lifetime measurements on ions. In: *European Physical Journal D* 5 (1999), Nr. 3, S. 341-344

[Sikström u. a. 1999]

Sikström, C. M. ; Schultz-Johanning, M. ; Kock, M. ; Li, Z.-S. ; Nilsson, H. ; Johansson, S. ; Lundberg, H. ; Raassen, A. J. J.: The FERRUM project:

Anhang D. Lebenslauf

experimental lifetimes of highly excited Fe II $3d(6)4p$ levels and transition probabilities. In: *Journal Of Physics B* 32 (1999), Nr. 24, S. 5687-5698

[Schultz-Johanning u. a. 2000]

Schultz-Johanning, M. ; Schnabel, R. ; Kling, R. ; Kock, M. ; Li, Z. ; Lundberg, H. ; Johansson, S.: Übergangswahrscheinlichkeiten des doppelt ionisierten Wolframs. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 2000, S. 944

[Reiche u. a. 2001]

Reiche, J. ; Schultz-Johanning, M. ; Kock, M.: Spectroscopy on a laser-generated Aluminium-Argon-Plasma. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 2001, S. 170

[Schultz-Johanning u. a. 2001]

Schultz-Johanning, M. ; Kling, R. ; Schnabel, R. ; Kock, M. ; Li, Z. ; Lundberg, H. ; Johansson, S.: Lifetimes, branching fractions, and oscillator strengths of doubly ionized Tungsten. In: *Physica Scripta* 63 (2001), Nr. 5, S. 367-37

[Johansson u. a. 2002]

Johansson, S. ; Derkatch, A. ; Donnelly, M. P. ; Hartman, H. ; Hibbert, A. ; Karlsson, H. ; Kock, M. ; Li, Z. S. ; Leckrone, D. S. ; Litzen, U. ; Lundberg, H. ; Mannervik, S. ; Norlin, I. O. ; Nilsson, H. ; Pickering, J. ; Raassen, T. ; Rostohar, D. ; Royen, P. ; Schmitt, A. ; Johanning, M. ; Sikstrom, C. M. ; Smith, P. L. ; Svanberg, S. ; Wahlgren, G. M.: The FERRUM project: New f-value data for Fe II and astrophysical applications. In: *Physica Scripta* T100 (2002), S. 71-80

Literaturverzeichnis

- [IEEE488 1975] IEEE Standard digital interface for programmable instrumentation / The Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc. 1975. – IEEE Std 488-1975 4.1.1
- [Becker u. a. 2002] BECKER, T. ; ZANTHIER, J. V. ; PEIK, E. ; TAMM, C.:
Optische Frequenznormale mit gespeicherten Ionen. In: *Physik Journal* 1 (2002), S. 47–53 2.1
- [Bergström u. a. 1988] BERGSTRÖM, H. ; FARIS, G. W. ; HALLSTADIUS, H. ; LUNDBERG, H. ; PERSSON, A. ; WAHLSTRÖM, C.-G.: Radiative lifetime and hyperfine-structure studies on laser-evaporated boron. In: *Zeitschrift für Physik D* 8 (1988), S. 17–23 3.2.2
- [Björck 1996] BJÖRCK, A.: *Numerical methods for least squares problems*. SIAM, 1996 4.3.3
- [Blanch 1972] BLANCH, G.: Mathieu Functions. In: ABRAMOVITZ, M. (Hrsg.) ; STEGUN, I. A. (Hrsg.): *Handbook of mathematical functions*. Dover Publications, 1972, Kap. 20, S. 721–750 2.2
- [Blatt u. a. 1995] BLATT, R. ; CIRAC, J. I. ; PARKINS, A. S. ; ZOLLER, P.:
Quantum motion of trapped ions. In: *Physica Scripta* T59 (1995), S. 294–302 2.2

Literaturverzeichnis

- [Blatt u. a. 1988] BLATT, R. ; LAFYATIS, G. ; PHILLIPS, W. D. ; STENHOLM, S. ; WINELAND, D. J.: Cooling in traps. In: *Physica Scripta* T22 (1988), S. 216–223 2.5
- [Blum 1978] BLUM, K.: Density matrix formalism and applications in spectroscopy. In: HANLE, W. (Hrsg.) ; KLEINPOPPEN, H. (Hrsg.): *Progress in Atomic Spectroscopy* Bd. A. Plenum Press, 1978, S. 71–110 1.2
- [Bollinger u. a. 1985] BOLLINGER, J. J. ; PRESTAGE, J. D. ; ITANO, W. M. ; WINELAND, D. J.: Laser-cooled-atomic frequency standard. In: *Physical Review Letters* 54 (1985), Nr. 10, S. 1000–1003 2.1
- [Boyd 1992] BOYD, R. W.: *Nonlinear Optics*. Academic Press, 1992 3.4.3
- [Briegel u. a. 1999] BRIEGEL, H.-J. ; CIRAC, I. ; ZOLLER, P.: Quantencomputer. In: *Physikalische Blätter* 55 (1999), Nr. 9, S. 37–43 2.1
- [Carlhoff u. a. 1981] CARLHOFF, C. ; KRAMETZ, E. ; SCHÄFER, J. H. ; SCHILDBACH, K. ; UHLENBUSCH, J. ; WROBLEWSKI, D.: Continuous optical discharges at very high pressure. In: *Physica* 103C (1981), S. 439–447 3.2.2
- [Church 1993] CHURCH, D. A.: Collision measurements and excited-level lifetime measurements on ions stored in Paul, Penning and Kingdon ion traps. In: *Physics Reports* 228 (1993), Nr. 5 & 6, S. 253–358 5.4.2
- [Cutler u. a. 1985] CUTLER, L. S. ; GIFFARD, R. P. ; MCGUIRE, M. D.: Thermalization of ^{199}Hg ion macromotion by a light background gas in an rf quadrupole trap. In: *Applied Physics B* 36 (1985), S. 137–142 2.5.3

- [Danzmann u. a. 1988] DANZMANN, K. ; GÜNTHER, M. ; FISCHER, J. ; KOCK, M. ; KÜHNE, M.: High current hollow cathode as a radiometric transfer standard source for the extreme vacuum ultraviolet. In: *Applied Optics* 27 (1988), Nr. 23, S. 4947–4951 3.2.1
- [Danzmann und Kock 1981] DANZMANN, K. ; KOCK, M.: Population densities in a titanium hollow cathode. In: *Journal of Physics B* 14 (1981), S. 2989–2993 3.2.1
- [Dawson 1976] DAWSON, P. H.: *Quadrupole mass spectrometry and its applications*. Elsevier Scientific Publishing Company, 1976 2.1, 2.2, 2.3
- [Dawson und Whetten 1969] DAWSON, P. H. ; WHETTEN, N. R.: The three-dimensional quadrupole ion trap. In: *Naturwissenschaften* 56 (1969), S. 109–112 2.1
- [Dehmelt 1988] DEHMELT, H.: A single atomic particle forever floating at rest in free space: New value for electron radius. In: *Physica Scripta T22* (1988), S. 102–110 2.1
- [Dehmelt 1967] DEHMELT, H. G.: Radiofrequency spectroscopy of stored ions I: Storage. In: *Advances in Atomic and Molecular Physics* 3 (1967), S. 53–72 2.4, 2.4
- [Demtröder 1998] DEMTRÖDER, W.: *Laser Spectroscopy*. 2nd enlarged edition. Springer, 1998 3.4.2, 3.4.2
- [Dennis u. a. 1981] DENNIS, J. E. ; GAY, D. M. ; WELSCH, R. E.: An adaptive nonlinear least-squares algorithm. In: *ACM Transactions on Mathematical Software* 7 (1981), Nr. 3, S. 348–368 4.3.5, 4.3.6

Literaturverzeichnis

- [Dennis und Schnabel 1983] DENNIS, J. E. ; SCHNABEL, R. B.: *Numerical Methods for Unconstrained Optimization*. Kap. 10, S. 218–238, Prentice Hall, 1983 4.3.2, 4.3.3
- [Diedrich und Walther 1987] DIEDRICH, F. ; WALTHER, H.: Nonclassical radiation of a single stored ion. In: *Physical Review Letters* 58 (1987), Nr. 3, S. 203–206 2.1
- [Duarte und Hillman 1998] DUARTE, F. J. ; HILLMAN, L. W.: *Dye Laser Principles*. Kap. 4. Narrow-linewidth pulsed dye laser oscillators, S. 133–184, Academic Press, 1998 3.4.2
- [Engström 1993] ENGSTRÖM, L.: Beam-foil measurements of atomic lifetimes. In: *Physica Scripta* T47 (1993), S. 49–53 5.4.1
- [Ertmer u. a. 1997] ERTMER, W. ; BIRKL, G. ; SENGSTOCK, K.: Wie kühlt und speichert man Atome mit Laserlicht? In: *Physikalische Blätter* 53 (1997), Nr. 12, S. 1189–1192 2.1
- [Fill 1988] FILL, E. E.: Röntgenlaser für das Laboratorium. In: *Physikalische Blätter* 44 (1988), S. 155–160 3.2.2
- [Fischer 1959] FISCHER, E.: Die dreidimensionale Stabilisierung von Ladungsträgern in einem Vierpolfeld. In: *Zeitschrift für Physik* 156 (1959), S. 1–26 2.1
- [Fischer u. a. 1984] FISCHER, J. ; KÜHNE, M. ; WENDE, B.: Spectral radiant power measurements of VUV and soft x-ray sources using the electron storage ring BESSY as a radiometric standard source. In: *Applied Optics* 23 (1984), S. 4252–4260 3.2.2
- [Fischer 2002] FISCHER, S.: *Grafikformate Ge-Packt*. mitp-Verlag, 2002 4.1.3

- [Fisk 1997] FISK, P. T. H.: Trapped-ion and trapped-atom microwave frequency standards. In: *Reports on Progress in Physics* 60 (1997), S. 761–817 2.1
- [Fisk u. a. 1993] FISK, P. T. H. ; LAWN, M. A. ; COLES, C.: Laser cooling of $^{171}\text{Yb}^+$ ions in a linear Paul trap. In: *Applied Physics B* 57 (1993), S. 287–291 2.6
- [Foot 1991] FOOT, C. J.: Laser cooling and trapping of atoms. In: *Contemporary Physics* 32 (1991), Nr. 6, S. 369–381 2.5.1
- [Friedman u. a. 1982] FRIEDMAN, M. H. ; YERGEY, A. L. ; CAMPANA, J. E.: Fundamentals of ion motion in electric radio-frequency multipole fields. In: *Journal of Physics E* 15 (1982), S. 53–61 2.2
- [Garz u. a. 1969] GARZ, T. ; KOCK, M. ; RICHTER, J. ; BASCHEK, B. ; HOLWEGER, H. ; UNSÖLD, A.: Abundances of iron and some other elements in the sun and meteorites. In: *Nature* 223 (1969), Nr. 5212, S. 1254–1255 5.4.1
- [Gerlich 1992] GERLICH, P.: Inhomogeneous RF fields: a versatile tool for the study of processes with slow ions. In: *Advances in Chemical Physics* LXXXII (1992), S. 1–176 2.2
- [Ghosh 1995] GHOSH, P. K.: *Ion Traps*. Oxford University Press, 1995 (Oxford Science Publications) 2.1, 2.5
- [Goldberg und Thomas 1986] GOLDBERG, D. E. ; THOMAS, A. L.: Genetic algorithms: A bibliography 1962-1986 / TCGA, Department of Engineering Mechanics, University of Alabama. 1986. – Forschungsbericht 4.3.7

Literaturverzeichnis

- [Hannaford und Lowe 1981] HANNAFORD, P. ; LOWE, R. M.: Determination of atomic lifetimes using pulsed laser excitation of sputtered metal vapours. In: *Journal of Physics B* 14 (1981), S. L5–L9 1.2
- [Hilber u. a. 1987] HILBER, G. ; LAGO, A. ; WALLENSTEIN, R.: Broadly tunable vacuum-ultraviolet/extreme-ultraviolet radiation generated by resonant third-order frequency conversion in krypton. In: *Journal of the Optical Society of America B* 4 (1987), S. 1753–1764 3.4.3
- [Hänsch und Schawlow 1975] HÄNSCH, T. W. ; SCHAWLOW, A. L.: Cooling of gases by laser radiation. In: *Optics Communications* 13 (1975), S. 68 2.1, 2.5.1
- [Holzscheiter 1988] HOLZSCHEITER, M. H.: Cooling of particles stored in electromagnetic traps. In: *Physica Scripta* T22 (1988), S. 73–78 2.5
- [Holzscheiter 1995] HOLZSCHEITER, M. H.: A brief history in time of ion traps and their achievements in science. In: *Physica Scripta* T59 (1995), S. 69–76 2.1
- [Itano u. a. 1988a] ITANO, W. M. ; BERGQUIST, J. C. ; HULET, R. G. ; WINELAND, D. J.: Precise optical spectroscopy with ion traps. In: *Physica Scripta* T22 (1988), S. 79–84 2.1
- [Itano u. a. 1988b] ITANO, W. M. ; BERGQUIST, J. C. ; WINELAND, D. J.: Photon antibunching and sub-Poissonian statistics from quantum jumps in one and two atoms. In: *Physical Review A* 38 (1988), Nr. 1, S. 559–562 2.1
- [Johansson u. a. 2002] JOHANSSON, S. ; DERKATCH, A. ; DONNELLY, M. P. ; HARTMAN, H. ; HIBBERT, A. ; KARLSSON, H. ; KOCK, M. ; LI, Z. S. ; LECKRONE, D. S. ; LITZEN, U. ; LUNDBERG, H. ; MANNERVIK, S. ; NORLIN,

- L. O. ; NILSSON, H. ; PICKERING, J. ; RAASSEN, T. ; ROSTOHAR, D. ; ROY-EN, P. ; SCHMITT, A. ; JOHANNING, M. ; SIKSTROM, C. M. ; SMITH, P. L. ; SVANBERG, S. ; WAHLGREN, G. M.: The FERRUM Project: New f-value data for Fe II and astrophysical applications. In: *Physica Scripta* T100 (2002), S. 71–80 D.3
- [Kato 1986] KATO, K.: Second-harmonic generation to 2048 Å in β -BaB₂O₄. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* QE22 (1986), S. 1013–1014 3.4.3
- [Kühn u. a. 2002] KÜHN, G. ; KÖNEMANN, F. ; KOCK, M.: 2D display of tungsten impurity in a free-burning arc using laser-induced fluorescence. In: *Journal of Physics D* 35 (2002), S. 2096–2104 5.4.3
- [Krieger u. a. 2001] KRIEGER, K. ; MAIER, H. ; NEU, R. ; ROHDE, V. ; TABASSO, A.: Plasma-wall interaction at the ASDEX Upgrade tungsten heat shield. In: *Fusion Engineering and Design* 56-57 (2001), S. 189–193 5.4.3
- [Lemay und Cadenhead 1999] LEMAY, L. ; CADENHEAD, R.: *Java 2 in 21 Tagen*. Markt & Technik Verlag, 1999 4
- [van Lessen u. a. 1998] LESSEN, M. van ; SCHNABEL, R. ; KOCK, M.: Population densities of Fe I and Fe II levels in an atomic beam from partially saturated LIF signals. In: *Journal of Physics B* 31 (1998), Nr. 9, S. 1931–1946 3.2.1
- [Lunney u. a. 1992] LUNNEY, M. D. N. ; BUCHINGER, F. ; MOORE, R. B.: The temperature of buffer-gas cooled ions in a Paul trap. In: *Journal of Modern Optics* 39 (1992), S. 349–360 2.5.3
- [Milloni 1984] MILLONI, P. W.: Why spontaneous emission? In: *American Journal of Physics* 52 (1984), S. 340–343 1.1

Literaturverzeichnis

- [Mohr und Taylor 2000] MOHR, P. J. ; TAYLOR, B. N.: CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 1998. In: *Reviews of Modern Physics* 72 (2000), Nr. 2, S. 351–495 B
- [Moré 1977] MORÉ, J. J.: The Levenberg-Marquardt algorithm: Implementation and theory. In: *Lecture Notes in Mathematics* 630 (1977), S. 105–116 4.3.2, 4.3.4
- [Nagourney u. a. 1983] NAGOURNEY, W. ; JANIK, G. ; DEHMELT, H. G.: In: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 80 (1983), 643 S 5.4.2
- [Nasse und Foot 2001] NASSE, M. ; FOOT, C.: Influence of background pressure on the stability region of a Paul trap. In: *European Journal of Physics* 22 (2001), S. 563–573 2.5.3
- [Neu u. a. 2002] NEU, R. ; DUX, R. ; GEIER, A. ; KALLENBACH, A. ; PUGNO, R. ; ROHDE, V. ; BOLSHUKHIN, D. ; FUCHS, J. C. ; GEHRE, O. ; GRUBER, O. ; HOBIRK, J. ; KAUFMANN, M. ; KRIEGER, K. ; LAUX, M. ; MAGGI, C. ; MURMANN, H. ; NEUHAUSER, J. ; RYTER, F. ; SIPS, A. C. C. ; STÄBLER, A. ; STOBER, J. ; SUTTROP, W. ; ZOHM, H.: Impurity behaviour in the ASDEX Upgrade divertor tokamak with large area tungsten walls. In: *Plasma Physics and Controlled Fusion* 44 (2002), S. 811–826 5.4.3
- [Norin 1998] NORIN, J.: *Development of a Laser-Pulse Compression Device based on Stimulated Brillouin Scattering*, Faculty of Technology at Lund University, Diplomarbeit, 1998 3.4.3
- [Parks und Szöke 1995] PARKS, J. H. ; SZÖKE, A.: Simulation of collisional relaxation of trapped ion clouds in the presence of space charge fields. In: *Journal of Chemical Physics* 103 (1995), Nr. 4, S. 1422–1439 2.4

- [Paul und Steinwedel 1953] PAUL, W. ; STEINWEDEL, H.: Ein neues Massenspektrometer ohne Magnetfeld. In: *Zeitschrift für Naturforschung A8* (1953), S. 448–450 2.1
- [Press u. a. 1994] PRESS, W. H. ; FLANNERY, B. P. ; TEUKOLSKY, S. A. ; VETTERLING, W. T.: *Numerical Recipes in Pascal*. Cambridge University Press, 1994 4.2.1, 4.3.4
- [Prestage u. a. 2001] PRESTAGE, J. D. ; TJOELKER, R. L. ; MALEKI, L.: Recent Developments in Microwave Ion Clocks. In: *Topics in Applied Physics* 79 (2001), S. 195–211 2.2
- [Proffitt u. a. 1999] PROFFITT, C. R. ; JÖNSSON, P. ; LITZEN, U. ; PICKERING, J. C. ; WAHLGREN, G. M.: Goddard high-resolution spectrograph observations of the B III resonance doublet in early B stars: abundances and isotope ratios. In: *The Astrophysical Journal* 516 (1999), S. 342–348 5.4.4
- [Raizen u. a. 1992] RAIZEN, M. G. ; GILLIGAN, J. M. ; BERGQUIST, J. C. ; ITANO, W. M. ; WINELAND, D. J.: Ionic crystals in a linear Paul trap. In: *Physical Review A* 45 (1992), Nr. 9, S. 6493–6501 2.6
- [Reiche u. a. 2001] REICHE, J. ; SCHULTZ-JOHANNING, M. ; KOCK, M.: Spectroscopy on a lasergenerated Aluminium-Argon-Plasma. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, 2001*, S. 170 D.3
- [Sauter u. a. 1988] SAUTER, T. ; BLATT, R. ; NEUHAUSER, W. ; TOSCHEK, P. E.: Quantum jumps in a single ion. In: *Physica Scripta T22* (1988), S. 128–132 2.1
- [Schiemann u. a. 1997] SCHIEMANN, S. ; UBACHS, W. ; HOGERVORST, W.: Efficient temporal compression of coherent nanosecond pulses

Literaturverzeichnis

- in a compact SBS generator-amplifier setup. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 33 (1997), Nr. 3, S. 356–366 3.4.3, 3.4.3
- [Schmid u. a. 1987] SCHMID, E. W. ; SPITZ, G. ; LÖSCH, W.: *Theoretische Physik mit dem Personal Computer*. Springer, 1987 2.7
- [Schnabel 1999] SCHNABEL, R.: *Zeitaufgelöste, nichtlineare laserinduzierte Fluoreszenz zur Messung von Lebensdauern, Übergangswahrscheinlichkeiten und Besetzungsdichten*, Universität Hannover, Dissertation, 1999 3.3.1, 3.4.2
- [Schnabel und Kock 1997] SCHNABEL, R. ; KOCK, M.: Radiative lifetimes of excited W I levels. In: *Zeitschrift für Physik D* 41 (1997), Nr. 1, S. 31–34 3.2.1, 5.4.3
- [Schnabel und Kock 2000] SCHNABEL, R. ; KOCK, M.: f-value measurements of the Be I resonance line using a nonlinear timeresolved laser-induced-fluorescence technique. In: *Physical Review A* 61 (2000), Nr. 062506, S. 1–7 1.3, 4.3.1
- [Schnabel u. a. 1999] SCHNABEL, R. ; SCHULTZ, M. ; KOCK, M.: Zeitaufgelöste partiell gesättigte laserinduzierte Fluoreszenz. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 1999, S. 253 D.3
- [Schnabel u. a. 1998] SCHNABEL, R. ; SCHULTZ-JOHANNING, M. ; KOCK, M.: Radiative lifetimes of excited W II levels. In: *European Physical Journal D* 4 (1998), Nr. 3, S. 267–269 5.4.3, D.3
- [Schultz 1997] SCHULTZ, M.: *Eine lineare Paulfalle für Lebensdauer-messungen an Ionen*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1997 2.6, 3.2.1, D.3

- [Schultz u. a. 1999] SCHULTZ, M. ; SCHNABEL, R. ; KOCK, M.: Eine lineare Paulfalle für Lebensdauermessungen an Ionen. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 1999, S. 250 D.3
- [Schultz-Johanning u. a. 2001] SCHULTZ-JOHANNING, M. ; KLING, R. ; SCHNABEL, R. ; KOCK, M. ; LI, Z. ; LUNDBERG, H. ; JOHANSSON, S.: Lifetimes, branching fractions, and oscillator strengths of doubly ionized tungsten. In: *Physica Scripta* 63 (2001), S. 367–371 5.4.3, D.3
- [Schultz-Johanning u. a. 2000] SCHULTZ-JOHANNING, M. ; SCHNABEL, R. ; KLING, R. ; KOCK, M. ; LI, Z. ; LUNDBERG, H.: Übergangswahrscheinlichkeiten des zweifach ionisierten Wolframs. In: *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, 2000, S. 944 D.3
- [Schultz-Johanning u. a. 1999] SCHULTZ-JOHANNING, M. ; SCHNABEL, R. ; KOCK, M.: A linear Paul trap for radiative lifetime measurements on ions. In: *The European Physical Journal D* 5 (1999), S. 341–344 D.3
- [Shen 1984] SHEN, Y. R.: *Principles of nonlinear optics*. Wiley New York, 1984 3.4.3, 3.4.3
- [Sikström u. a. 1999] SIKSTRÖM, C. M. ; SCHULTZ-JOHANNING, M. ; KOCK, M. ; LI, Z.-S. ; NILSSON, H. ; JOHANSSON, S. ; LUNDBERG, H. L. ; RAASSEN, A. J. J.: The FERRUM project: experimental lifetimes of highly excited Fe II 3d(6)4p levels and transition probabilities. In: *Journal of Physics B* 32 (1999), Nr. 24, S. 5687–5698 5.4.1, D.3
- [Smith und Whaling 1973] SMITH, P. L. ; WHALING, W.: Absolute transition probabilities for Fe II and the solar iron abundance. In: *Astrophysical Journal* 183 (1973), S. 313–322 5.4.1
- [Spelucci 1993] SPELUCCI, P.: *Numerische Verfahren der nichtlinearen Optimierung*. Kap. 3.1.4, S. 192–241, Birkhauser, 1993 4.3.4

Literaturverzeichnis

- [Spitzer 1956] SPITZER, L.: *Physics Of Fully Ionized Gases*. Wiley (Interscience) New York, 1956 2.4
- [Szabo 1986] SZABO, I.: New ion-optical devices utilizing oscillatory electric fields. I. Principle of operation and analytical theory of multipole devices with two-dimensional electric fields. In: *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* 73 (1986), S. 197–235 2.2
- [Todd u. a. 1980] TODD, J. F. J. ; WAHLDRÉN, R. M. ; MATHER, R. E.: The quadrupole ion storage (quistor). Part IX. Space charge and ion stability. A theoretical background and experimental results. In: *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics* 34 (1980), S. 325 2.4
- [Toschek und Neuhauser 1989] TOSCHEK, P. E. ; NEUHAUSER, W.: Optical cooling revisited. In: *Journal of the Optical Society of America B* 6 (1989), Nr. 11, S. 2220–2226 2.5.1
- [Turchette u. a. 2000] TURCHETTE, Q. A. ; MYATT, C. J. ; KING, B. E. ; SACKETT, C. A. ; KIELPINSKI, D. ; ITANO, W. M. ; MONROE, C. ; WINELAND, D. J.: Decoherence and decay of motional quantum states of a trapped atom coupled to engineered reservoirs. In: *Physical Review A* 62 (2000), Nr. 053807, S. 1–22 2.1
- [Udem u. a. 2002] UDEM, T. ; HOLZWARTH, R. ; HÄNSCH, T. W.: Uhrenvergleich auf der Femtosekundenskala. In: *Physik Journal* 1 (2002), Nr. 2, S. 39–45 2.1
- [Walther 1993] WALTHER, H.: Phase transitions of stored laser cooled ions. In: *Advances in Atomic and Molecular Spectroscopy* 31 (1993), S. 137–182 2.4

- [Walz u. a. 2000] WALZ, J. ; PAHL, A. ; EIKEMAAND, K. S. E. ; HÄNSCH, T. W.: Towards laser spectroscopy of antihydrogen. In: *Hyperfine Interactions* 127 (2000), S. 167–174 2.1
- [Wellegehausen u. a. 1996] WELLEGEHAUSEN, B. ; MOSSAVI, K. ; EGBERT, A. ; CHICHKOV, B. N. ; WELLING, H.: Short-pulse high-intensity excimer lasers – A powerful tool for the generation of coherent VUV and XUV radiation. In: *Applied Physics B* 63 (1996), S. 451–461 3.3.1
- [Whitley 1993] WHITLEY, D.: A genetic algorithm tutorial / Department of Computer Science, Colorado State University. 1993 (CS-93-103). – Forschungsbericht 4.3.7
- [Wineland und Dehmelt 1975] WINELAND, D. ; DEHMELT, H.: Proposed $10^{14} \Delta\nu/\nu$ laser fluorescence spectroscopy on Ti^+ mono-ion oscillator. In: *Bulletin of the American Physical Society* 20 (1975), S. 637 2.1, 2.5.1
- [Wineland u. a. 1992] WINELAND, D. J. ; DALIBARD, J. ; COHEN-TANNOUJDI, C.: Sisyphus cooling of a bound atom. In: *Journal of the Optical Society of America B* 9 (1992), Nr. 1, S. 32–42 2.5.1
- [Wuerker u. a. 1959] WUERKER, R. F. ; SHELTON, H. ; LANGMUIR, R. V.: Electrodynamic containment of charged particles. In: *Journal of Applied Physics* 30 (1959), S. 342 2.2, 2.5.3