

Inaugural-Dissertation

**zur
Erlangung der Doktorwürde
der
Naturwissenschaftlich-Mathematischen
Gesamtfakultät
der Ruprecht-Karls-Universität
Heidelberg**

**vorgelegt von
Dipl.-Phys. Günter Brenner
aus Wangen i. Allgäu**

Tag der mündlichen Prüfung: 17.07.2007

Quantenelektrodynamische Einflüsse auf die Lebensdauer metastabiler Zustände

**Gutachter: PD. Dr. José Ramón Crespo López-Urrutia
Prof. Dr. Thomas Stöhlker**

Zusammenfassung:

In dieser Arbeit wurden hochpräzise Messungen der Lebensdauer des metastabilen $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in borartigem Ar XIV sowie des $3s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in aluminiumartigem Fe XIV unter Verwendung der Heidelberg Elektronenstrahl-Ionenfalle (HD-EBIT) durchgeführt. Die Lebensdauern wurden durch die Aufnahme des zeitlichen Verlaufs der optischen Zerfallskurven beim magnetischen Dipolübergang ($M1$) $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o - ^2P_{1/2}^o$ bzw. $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o - ^2P_{1/2}^o$ in den Grundzustand mit einer Übergangswellenlänge von 441.256 nm bzw. 530.29 nm bestimmt. Mögliche systematische Störeffekte wurden im Detail untersucht, indem die Abhängigkeit der Zerfallszeiten von unterschiedlichen Fallenbedingungen mit äußerst hoher statistischer Signifikanz vermessen wurde. Ein neues und erstmalig bei Lebensdauerermessungen an einer EBIT angewandtes Speicherschema ermöglichte Messungen mit einer im Bereich von hochgeladenen Ionen bis dato nicht erreichten Präzision. Die Resultate von $9.573(4)_{(-5)}^{(+12)}$ ms (stat)(syst) bei Ar XIV bzw. $16.726(10)(+17)$ ms (stat)(syst) bei Fe XIV mit einer relativen Genauigkeit von 0.14% bzw. 0.13% machen diese Messungen erstmalig sensitiv auf quantenelektrodynamische Effekte wie das anomale magnetische Moment des Elektrons (EAMM). Die Ergebnisse, welche die Präzision bisheriger Messungen um einen Faktor 10 im Falle von Ar und einen Faktor 6 im Falle von Fe verbessern, weisen eine klare Diskrepanz von etwa 3σ bzw. 4σ zum Trend existierender theoretischer Modelle auf, die auf das EAMM hin korrigiert wurden und welche in beiden Fällen kürzere Lebensdauern vorhersagen. Der offensichtliche Widerspruch zwischen Experiment und den theoretischen Vorhersagen deutet auf die Unvollständigkeit der verwendeten theoretischen Modelle hin.

Abstract:

High-precision lifetime measurements of the metastable $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ level in boronlike Ar XIV and the $3s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ level in aluminumlike Fe XIV were performed at the Heidelberg electron beam ion trap (HD-EBIT). The lifetimes were inferred by monitoring their optical decay curves resulting from the magnetic dipole ($M1$) transition $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o - ^2P_{1/2}^o$ and $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o - ^2P_{1/2}^o$ to the ground state configuration with transition wavelengths of 441.256 nm and 530.29 nm, respectively. Possible systematic error sources were investigated by studying the dependence of the decay times of the curves on various trapping conditions with high statistical significance. A new trapping scheme for lifetime measurements at an EBIT has been applied and allowed to reach an unprecedented precision in the realm of lifetime determinations on highly charged ions. The results of $9.573(4)_{(-5)}^{(+12)}$ ms (stat)(syst) for Ar XIV and $16.726(10)(+17)$ ms (stat)(syst) for Fe XIV with a relative accuracy of 0.14% and 0.13%, respectively, make these measurements for the first time sensitive to quantum electrodynamic effects like the electron anomalous magnetic moment (EAMM). The results, improving the accuracy of previous measurements by factors of 10 and 6, respectively, show a clear discrepancy of about 3σ and 4σ to the trend of existing theoretical models, which in almost all cases predict a shorter lifetime, when adjusted for the EAMM. The obvious disagreement between experimental results and the predictions points at the incompleteness of the theoretical models used.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	3
1 Theorie der Struktur von Atomen und hochgeladenen Ionen	11
1.1 Relativistische Quantentheorie von Ein-Elektronen-Systemen	12
1.1.1 Dirac-Gleichung	13
1.1.2 Relativistisches Spektrum wasserstoffähnlicher Systeme	14
1.2 Quantenelektrodynamik (QED)	16
1.2.1 Die Selbstenergie des Elektrons	17
1.2.2 Vakuumpolarisation	17
1.3 Mehr-Elektronen-Systeme	18
1.3.1 Der relativistische Mehr-Körper-Hamiltonian	19
1.3.2 Variationsverfahren	21
1.3.3 Perturbative Methoden	22
1.4 Elektromagnetische Übergänge	23
1.4.1 Emission und Absorption von Photonen	23
1.4.2 Lebensdauern angeregter Zustände	28
1.4.3 Magnetische Dipolübergänge	29
1.4.4 Das anomale magnetische Moment des Elektrons	30
2 Experiment	33
2.1 Messmethoden zur Bestimmung von Lebensdauern	33
2.1.1 Klassische Methoden	33
2.1.2 Laserbasierte Methoden	38
2.2 Die Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT)	41
2.2.1 Aufbau und Funktionsprinzip einer EBIT	42

2.2.2	Atomare Prozesse in der EBIT	43
2.2.3	Dynamik von Elektronen und Ionen	46
2.3	Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung	53
2.3.1	Prinzip der Messung	53
2.3.2	Fluoreszenzdetektion und Datenaufnahme	56
2.3.3	Aufbau und Charakterisierung des Lasersystems	59
3	Lebensdauermessungen an Ar¹³⁺ und Fe¹³⁺	73
3.1	Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus	73
3.1.1	Systematische Untersuchungen	81
3.1.2	Mögliche Ursachen für die langsame Zerfallskomponente	92
3.1.3	Laserspektroskopische Untersuchungen	99
3.2	Bestimmung der Lebensdauer des Fe XIV $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus	106
3.2.1	Modifiziertes Messschema	110
3.2.2	Systematische Untersuchungen	113
4	Ergebnisse	121
4.1	Diskussion des Ergebnisses für Ar ¹³⁺ und Theorievergleich	121
4.1.1	Experimentelles Ergebnis	121
4.1.2	Vergleich mit der Theorie	124
4.2	Diskussion des Ergebnisses für Fe ¹³⁺ und Theorievergleich	128
4.2.1	Experimentelles Ergebnis	128
4.2.2	Vergleich von Theorie und Experiment	128
4.3	Abschließende Diskussion	132
5	Zusammenfassung und Ausblick	135
	Literaturverzeichnis	139

Einleitung

Hochpräzisionsexperimente zur Bestimmung physikalischer Größen stellen in Verbindung mit theoretischen Modellen die wesentliche Quelle zum Verständnis des Aufbaus der Materie dar, was nicht zuletzt auch für die Struktur von Atomen gilt. Dabei erlaubt die heutzutage in den Experimenten erreichte Präzision sowohl die Überprüfung fundamentaler Prinzipien und Symmetrien der Physik als auch Tests der hoch entwickelten und komplexen Theorien mit oft sehr hoher Genauigkeit. Nun wird die atomare Struktur weitestgehend über Messungen von Photonenübergängen zwischen zwei diskreten elektronischen Niveaus, welche schließlich zu den charakteristischen Spektren der Atome führen, untersucht. Somit stellen Übergangsenergien und Lebensdauern angeregter Zustände fundamentale Observablen zur Bestimmung der Atomstruktur dar. Die Messung der Übergangsenergie zwischen zwei elektronischen Zuständen erlaubt z.B. eine Aussage über die Bindungsenergien der beiden beteiligten Niveaus. Aus theoretischer Sicht testet die präzise experimentelle Vermessung von Übergangsenergien hauptsächlich den radialen Verlauf der beteiligten Wellenfunktionen, die bei der Berechnung von Übergangsenergien verwendet werden. Dagegen sind Messungen der Lebensdauer angeregter Zustände speziell auf die detaillierte Gesamtstruktur und den räumlichen Überlapp der Wellenfunktionen der beteiligten Zustände sensitiv, welche typischerweise sehr viel schwieriger zu berechnen sind als die Energieeigenwerte eines atomaren Zustands. Insofern bieten hochpräzise Energie- und Lebensdauer messungen zu einander komplementäre Informationen und sind somit gemeinsam in der Lage, die Qualität der benutzten Wellenfunktionen vollständig zu überprüfen und damit die modernsten atomaren Vielteilchentheorien, die neben relativistischen Effekten auch Elektronenkorrelationen und Beiträge der Quantenelektrodynamik (QED) berücksichtigen, umfassend zu testen.

Historisch betrachtet ist die Entwicklung der Messungen atomarer Lebensdauern angeregter Zustände eng verbunden mit kernphysikalischen Entdeckungen und Techniken, welche erfolgreich in den atomaren Kontext integriert wurden. Mit der Entdeckung der Radioaktivität und der damit verbundenen Formulierung des exponentiellen Zerfallsgesetzes im Jahre 1899 durch E.W. Rutherford [1] wurde erstmals das mathematische Konzept des exponentiellen Zerfalls als fundamentale Eigenschaft statistisch dominierter Prozesse in der Natur experimentell nachgewiesen. Ebenso war es Rutherford, der zeitgleich mit F. Soddy das Konzept der *Halbwertszeit* bzw. der *mittleren Lebensdauer* einführte [2, 3]. Jedoch bezog sich diese Nomenklatur zunächst ausschließlich auf die Stabilität des Kerns und nicht auf elektronische Zustände in der Atomhülle.

Hinsichtlich der Frage, wie lange ein Elektron in einem angeregten Zustand verweilt bzw. „lebt“ gab es bereits Anfang des 20. Jahrhunderts einige experimentelle Versuche, die emittierte Strah-

lung angeregter freier Atome in so genannten *Kanalstrahlen* nachzuweisen und quantitativ zu erfassen. So schickte L. Dunoyer Natrium-Atome durch einen Strahl von Natrium-Licht, welches prinzipiell in der Lage ist, die durchfliegenden Natrium-Atome anzuregen, scheiterte allerdings bei dem Versuch, das während des Abregungsprozesses emittierte Licht der aus dem Lichtstrahl wieder austretenden Atome aufzunehmen [4]. Auf theoretischer Seite wurde erstmals durch Einstein im Jahre 1916 bei der Untersuchung atomarer Strahlungsprozesse formal eine Zerfallskonstante eingeführt [5, 6], welche heute allgemein als Einstein-Koeffizient bezeichnet wird und die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen zwei elektronischen Zuständen angibt.

Die erste erfolgreiche Aufnahme einer exponentiellen Zerfallskurve und die Bestimmung einer mittleren Lebensdauer aus der Zerfallskonstante der Intensität des emittierten Lichts gelang 1919 durch W. Wien bei der Untersuchung von Wasserstoff-Kanalstrahlen [7]. Hierzu ließ er einen schnellen Wasserstoff-Atomstrahl, der in einer Entladungsröhre erzeugt und gleichzeitig angeregt wurde, in eine hochevakuierte Beobachtungskapillare strömen und stellte dabei ein, über eine gewisse Wegstrecke, graduelles Abschwächen der Intensität des emittierten Lichts des Kanalstrahls fest. Durch Messungen der Intensitätsabhängigkeit der Strahlung vom Druck in der Beobachtungskammer sowie durch Bestimmung der Geschwindigkeit der Atome mit Hilfe des Dopplereffekts, war er in der Lage, die Zerfallskonstante der H_{α} -, H_{β} - und H_{γ} -Übergänge der Balmer-Serie in atomarem Wasserstoff zu bestimmen. So ermittelte er z.B. für den H_{β} -Übergang eine Zerfallskonstante von $6.4 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, was einer mittleren Lebensdauer von 15.6 ns entspricht. Dieser Wert gilt heutzutage als eine der ersten gemessenen Lebensdauern eines atomaren Zustands. Ähnliche Experimente wurden zeitgleich von A.J. Dempster durchgeführt [8, 9]. Frühere Arbeiten an metastabilen Quecksilberatomen in der Gasphase durch H.W. Webb und L.J. Hayner [10, 11] sowie von M. Asterblum [12] über „die Dauer des Nachleuchtens des Quecksilberdampfes“ weiteten den Bereich der Lebensdaueremessungen auf langlebige Zustände – in den erwähnten Arbeiten betrug die gemessenen Lebensdauern etwa 10^{-4} bis 10^{-5} s – aus. Ebenso hat sich K.W. Meissner mit seinen Messungen an metastabilem Neon [13] verdient gemacht, welcher zudem in einem Artikel mit dem Titel „Über die Messung der Lebensdauer angeregter Atomzustände“ im Jahre 1928 den metastabilen Zuständen eine fundamentale Rolle bei der Beantwortung vieler Fragen in der Atom- und Plasmaphysik zusprach [14].

Parallel zu den experimentellen Arbeiten wurden theoretische Anstrengungen unternommen, die Beobachtungen mittels atomarer Modelle zu deuten. So ergaben sich Anfang der 20er Jahre durch die Kombination der klassischen Strahlungstheorie mit dem bereits formulierten Bohrschen Atommodell eine erste quantenmechanische Interpretation des beobachteten „Nachleuchtens“ angeregter Atome [15, 16], sowie eine Umdeutung der Halbwertsbreite einer Spektrallinie und, damit verbunden, der mittleren Lebensdauer eines atomaren Zustands [17]. Während in der klassischen Elektronen-Dispersionstheorie die Dämpfungskonstante in der Schwingungsgleichung des harmonischen Oszillators die natürliche Linienbreite $\Delta\nu$ der Spektrallinie bestimmt, und deren reziproker Wert die Zeit angibt, in der die Schwingungsamplitude des Oszillators in Folge der Emission von Strahlung auf den e -ten Teil ihrer Anfangsintensität abgeklungen ist, trat bei der vollzogenen Umdeutung an Stelle der klassischen Abklingzeit die mittlere Lebensdauer der durch die Quantenmechanik beschriebenen und im angeregten Zustand befindlichen Atome auf. Im Falle einer Resonanzlinie wurde nun die mittlere Lebensdauer τ_k des Atoms im Zustand $|k\rangle$ mit der Ein-

steinschen Wahrscheinlichkeit A_{ik} für den spontanen Übergang vom Anfangszustand $|k\rangle$ in den Endzustand $|i\rangle$ in reziproker Weise gleichgesetzt [18]:

$$\Delta\nu \cong \frac{1}{\tau_k} = A_{if}. \quad (1)$$

Jedoch erlaubte erst die Entwicklung der Quantenmechanik durch W. Heisenberg, E. Schrödinger und P.A.M. Dirac, sowie schließlich die Formulierung der Quantenelektrodynamik (QED) eine vollständige und konsistente Beschreibung des spontanen Emissionsprozesses, welcher letztendlich die Grundlage für die Existenz einer mittleren Lebensdauer ist (siehe Kapitel 1.4). Im Rahmen der QED ist die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Photons pro Zeiteinheit in den Raumwinkel $d\Omega$ beim Übergang eines angeregten Zustands $|\Psi_i\rangle$ in den Endzustand $|\Psi_f\rangle$ durch das Matrixelement

$$\mathcal{W}_{d\Omega} = \frac{e^2\omega}{2\pi\hbar c} \left| \langle \Psi_f | \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}} | \Psi_i \rangle \right|^2 d\Omega \quad (2)$$

gegeben [19]. Hierbei beschreibt $\omega = (E_f - E_i)/\hbar$ die Frequenz des emittierten Photons, $\boldsymbol{\epsilon}$ dessen Polarisation, \mathbf{k} den Photonenimpuls und $\boldsymbol{\alpha}$ die Dirac-Matrizen. Ψ_i und Ψ_f sind die relativistischen Wellenfunktionen, die man aus der Dirac-Gleichung erhält (vgl. Abschnitt 1.1). Aus der Gleichung ist ersichtlich, dass die Übergangswahrscheinlichkeit sowohl von der Energiedifferenz der beteiligten Zustände als auch vom Übergangsmatrixelement, das allgemein die Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit dem Elektron beinhaltet, abhängt.

Hochionisierte atomare Systeme (hochgeladene Ionen) bieten ausgezeichnete Möglichkeiten, um die Beiträge der QED, Relativistik und Elektronenkorrelationen zu Übergangsenergien bzw. Lebensdauern angeregter Zustände gezielt zu untersuchen. In hochgeladenen Ionen (*highly charged ions*, HCI) skalieren relativistische, Kernstruktur- und quantenelektrodynamische Effekte, welche in äußeren Schalen neutraler Atome meist nur einen sehr kleinen Beitrag aufweisen, häufig mit hohen Potenzen der Kernladungszahl Z , so dass bei diesen Systemen, die aufgrund ihrer geringeren Anzahl von Elektronen zudem eine einfachere elektronische Struktur aufweisen und somit besser zu berechnen sind als Vielteilchensysteme, der relative Beitrag des jeweiligen Effekts zur gesamten Übergangsenergie zum Teil stark zunimmt und dadurch in verstärkter Form beobachtbar ist. So skalieren z.B. sowohl die Beiträge der QED als auch die Feinstrukturaufspaltung, die einen relativistischen Effekt darstellt und durch die Spin-Bahn-Kopplung auf den Elektronenspin hinweist, mit Z^4 , die Verschiebung der Niveaus aufgrund von Kerngrößenbeiträgen mit Z^6 und die Hyperfeinstrukturaufspaltung mit Z^3 . Abhängig von der Art des Übergangs ist ebenso für die Übergangsrate und damit die Lebensdauer eines angeregten Zustands eine starke Z -Abhängigkeit gegeben. Im speziellen machen sich magnetische Dipolübergänge ($M1$), die aufgrund von Auswahlregeln in erster Näherung unterdrückt sind (*verbotene Übergänge*) und in neutralen Systemen nur sehr geringe Übergangsraten besitzen, in hochgeladenen Ionen verstärkt bemerkbar, da sie zum Teil mit Z^{10} skalieren. Als Beispiel sei hier der für die Radioastronomie sehr wichtige „21 cm“ Hyperfeinstrukturübergang ($F = 1 \rightarrow F = 0$) des Grundzustands in atomarem Wasserstoff (H) genannt, dessen energetisch höherer Zustand eine Lebensdauer von etwa 10^7 Jahren aufweist, welche sich jedoch bei wasserstoffartigem Holmium ($Z = 67$) auf nur noch einige wenige Millisekunden verkürzt [20].

Von besonderer Relevanz für die Entwicklung relativistischer und quantenelektrodynamischer Theorien in starken elektromagnetischen Feldern erweisen sich Messungen zwischen Feinstrukturturniveaus, welche nicht über die elektrische Dipolwechselwirkung ($E1$) zerfallen können. Die Übergangsenergie zwischen zwei Niveaus des selben LS -Terms (Feinstrukturaufspaltung) kann sehr sensitiv auf QED-Beiträge sein, da die Zustände relativistischen Ursprungs sind und ihre Übergangsenergie typischerweise klein im Vergleich zu QED-Effekten ist. Mittels *ab initio* Berechnungen im Rahmen der QED, deren Präzision in den letzten Jahren entscheidend verbessert wurde, konnte so z.B. der QED-Beitrag zur Übergangsenergie des elektrisch dipol-verbotenen $M1$ -Übergangs $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ in borartigem Ar XIV ($Z = 18$) zu 0.2% vorhergesagt werden [21], während der berechnete Beitrag zur Lebensdauer des metastabilen $2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus mehr als 0.5% beträgt [22]. Hochpräzise Messungen der Übergangsenergie dieses verbotenen Übergangs, der sich unter anderem in der Sonnenkorona beobachten lässt, ergaben bei einer relativen Genauigkeit von etwa 0.3 ppm (*parts-per-million*) eine Übergangswellenlänge von 441.2559(1) nm. Dagegen beläuft sich die Genauigkeit der drei bisherigen Lebensdauermessungen dieses metastabilen Zustands auf nur etwa 2% und erlaubt aufgrund der fehlenden Präzision bisher keine Unterscheidung zwischen verschiedenen theoretischen Modellen. Eine Verbesserung der Genauigkeit auf unter 0.5% würde somit erstmals die faszinierende Möglichkeit eröffnen, Aufschluss über den Beitrag der Relativistik und der QED-Effekte zur Lebensdauer dieses Zustands zu erlangen.

Elektrisch dipol-verbotene Übergänge zwischen Feinstrukturturniveaus in der Grundzustandskonfiguration hochgeladener Ionen sind auch aufgrund eines weiteren Aspekts von weitreichendem Interesse, da diese Art von Übergang in verschiedenen, astrophysikalischen Objekten beobachtet werden kann und nicht zuletzt auch eine wichtige Rolle bei der Diagnose von Hochtemperaturplasmen spielt. Im Jahre 1942 identifizierte Edlén eine ganze Reihe, bereits 1869 beobachteter, prominenter Spektrallinien der Sonnenkorona, wobei die beiden auffallendsten, die so genannte *grüne* und *rote Eisenlinie*, vom magnetischen Dipol-Übergang $3s^2 3p^2 P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ in aluminiumartigem Eisen (Fe XIV) und dem $3s^2 3p^5 {}^2P_{3/2}^o - {}^2P_{1/2}^o$ in chlorartigem Eisen (Fe X) herrühren und Übergangswellenlängen von 530.29 nm bzw. 637.64 nm besitzen [23]. Da Eisen das häufigste schwere Element im Universum ist, sind diese Linien nicht nur in der Sonnenkorona, sondern sowohl als interstellare Absorptionslinien [24], in symbiotischen Sternensystemen [25] und Seyfert Galaxien [26], als auch in Überresten von Supernovaexplosionen [27] zu finden. Entsprechend gibt es aufgrund des weit verbreiteten Vorkommens dieser prominenten Linien eine Vielzahl von Berechnungen der Übergangsenergie und der Übergangsrate, um die Linienidentifikation von Absorptionsspektren zu erleichtern und eine verlässliche Modellierung der jeweiligen Plasmen zu gewährleisten. So kann beispielsweise bei bekannter Übergangs- und Stoßrate aus der gemessenen Intensität der Spektrallinien die lokale Temperatur des Plasmas bestimmt werden [28]. Ebenso kann das Intensitätsverhältnis zwischen verbotenen und erlaubten Übergängen als Maß für die lokale Plasmadichte dienen. Da die theoretisch erworbenen Übergangsraten meist über eine begrenzte Genauigkeit verfügen bzw. innerhalb der verwendeten theoretischen Modelle stark variieren, ist die Unterstützung der Modelle durch möglichst präzise, experimentell gewonnene Lebensdauern unerlässlich.

Prinzipiell ist es für die Theorie aufgrund des komplexen Zusammenspiels der relativistischen, Elektronenkorrelations- und QED-Effekte eine große Herausforderung, Lebensdauern angeregter Zustände und Übergangsenergien mit der erforderlichen Präzision vorherzusagen. Einen besonders interessanten Bereich hinsichtlich der Kernladungszahl stellt dabei das mittlere Z -Regime um $Z = 26$ dar, weil dort der relativistische Effekt der Spin-Bahn-Kopplung, der mit $(Z\alpha)^4$ [$\alpha \approx 1/137$ die Sommerfeldsche Feinstrukturkonstante] skaliert, in der selben Größenordnung liegt, wie die interelektronische Coulomb-Wechselwirkung (Ordnung $Z\alpha^2$), so dass diese bei theoretischen Berechnungen der atomaren Struktur gleichermaßen gut berücksichtigt werden müssen. Auch aus diesem Grund können hochpräzise Lebensdaueremessungen in diesem Bereich wegen ihrer oben bereits erwähnten Sensitivität auf die elektronische Wellenfunktion wesentlich dazu beitragen, die entwickelten Modelle zu testen.

Kernladung Z

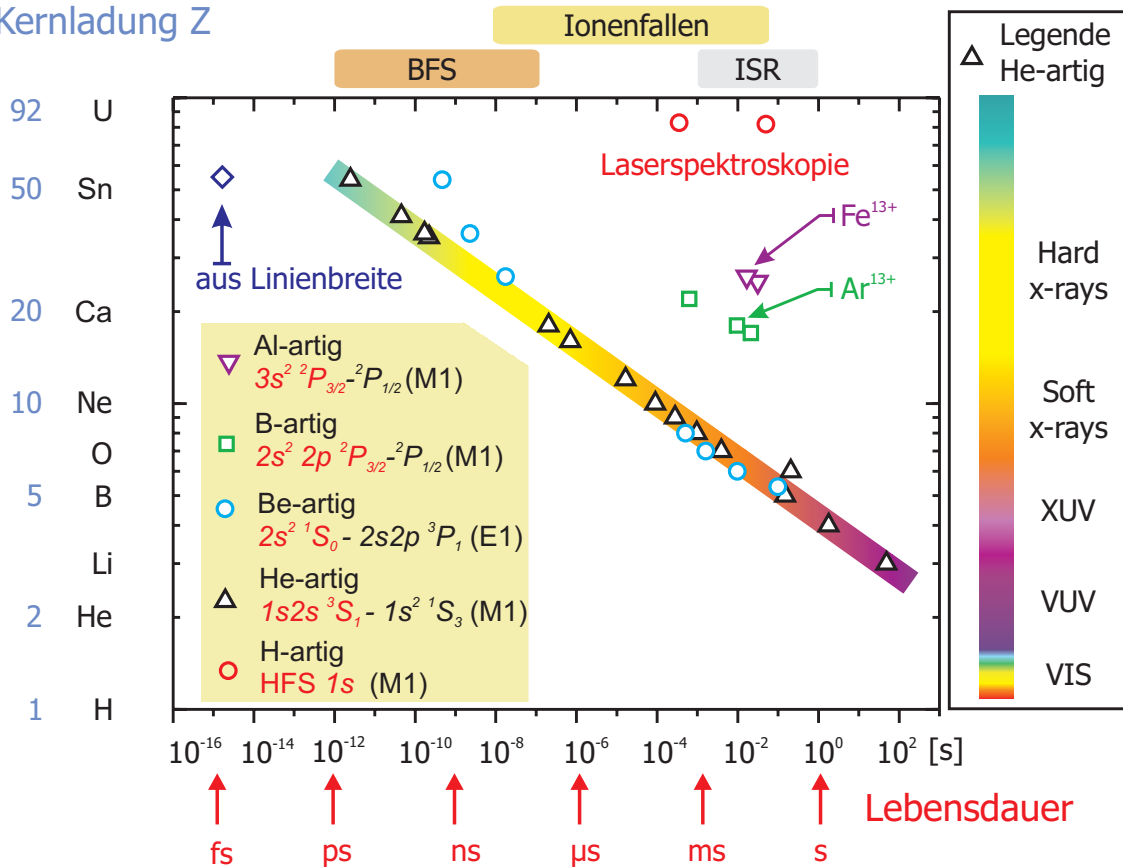


Abbildung 1: Auswahl von Lebensdaueremessungen verschiedener metastabiler angeregter Zustände, die mit Hilfe diverser Messmethoden erlangt wurden. Die Farblegende auf der rechten Seite kodiert die Übergangsenergien der heliumartigen Sequenz (schwarze Dreiecke). Die folgenden Referenzen beziehen sich auf die unterschiedlichen Übergänge und sind entsprechend der Datenpunkte von links nach rechts zu lesen. He-artig: [29–43]. Be-artig: [44–50]. B-artig: [51], [52], [53]. Al-artig: [54], [55]. H-artig (Laserspektroskopie): [56], [57]. Aus Linienbreite ($3d_{5/2}-2d_{3/2}$ E1-Übergang in Cs^{45+}): [58].

Zur Erzeugung und Speicherung hochgeladener Ionen im Labor wurden erst in jüngerer Zeit effektive Methoden entwickelt. Dabei weisen sowohl Beschleunigeranlagen in Verbindung mit

Schwerionen-Speicherringen als auch Ionenfallen, wie z.B. die Elektronenstrahl-Ionenfalle (engl.: *Electron Beam Ion Trap*, EBIT) die notwendigen Bedingungen auf, hochgeladene Ionen in ausreichender Menge zu erzeugen und hinreichend lange zu speichern. Des Weiteren wurden verschiedene Messverfahren zur Bestimmung von Lebensdauern metastabiler Zustände entwickelt. Abhängig von der Mess- und Speichertechnik decken diese unterschiedliche Bereiche hinsichtlich der messbaren Lebensdauer ab. So erlaubt die so genannte *Beam-Foil-Spektroskopie* Zugang zu Messungen von Lebensdauern zwischen 10^{-12} und 10^{-7} Sekunden. Ionenfallen umfassen einen Messbereich von mehreren Sekunden bis hin zu 10^{-8} s, während Ionenspeicherringe im Bereich von 10^{-3} bis 1 s agieren. In Kapitel 2.1 werden die gängigsten Verfahren samt ihrer Vor- und Nachteile ausführlich vorgestellt. Mit Hilfe dieser Methoden wurden in den letzten Jahren umfangreiche Messungen verschiedenartiger Übergänge entlang isoelektronischer Sequenzen diverser Elemente durchgeführt. Abb. 1 gibt eine Auswahl der bereits durchgeführten Messungen wieder. Aus der Abbildung ist ersichtlich, dass die Messungen einen außerordentlich großen Bereich abdecken (10^{-15} bis 10^2 s). Dabei stellt der $M1$ -Übergang der heliumartigen Ionen die mit am Besten systematisch untersuchte Sequenz dar. Neben den oben genannten Techniken wurden auch laserspektroskopische Lebensdauerermessungen an H-artigem Bismut ($Z = 83$) [56] bzw. Blei ($Z = 82$) [57] durchgeführt. Weiterhin sind die in dieser Arbeit gemessenen Lebensdauern in aluminiumartigem Fe XIV und borartigem Ar XIV eingezeichnet.

Tabelle 1: Die bisher am genauesten gemessenen Lebensdauern metastabiler Zustände.

Ion	Niveau	Lebensdauer	rel. Genauigkeit	Messtechnik	Referenz
C^{2+}	$2s2p\ ^3P_1^o$	9.714(13) ms	0.13%	TSR	[49]
C^{4+}	$1s2s\ ^3S_1$	3.905(47) ms	0.23%	TSR	[40]
Cd^+	$5p\ ^2P_{1/2}$	3.148(11) ns	0.35%	Ionenfalle	[59]

Während Übergangsenergien mittlerweile äußerst präzise vermessen werden können ($\Delta E/E \approx 10^{-14}$ beim $1s-2s$ Übergang in neutralem Wasserstoff [60]), stellen hochpräzise Lebensdauerermessungen nach wie vor eine große experimentelle Herausforderung dar, da die Kontrolle und Berücksichtigung von systematischen Störeffekten wie z.B. die Verlustrate von Ionen/Atomen hohe Anforderungen an das Experiment stellen. Aus diesem Grund ist die bisher erreichte Präzision bei Lebensdauern im Vergleich zu Übergangsenergien deutlich geringer; die bisherige relative Genauigkeit der besten Lebensdauerermessungen liegen im Bereich von 0.1% – 0.5% (siehe Tab. 1). Allerdings wurden diese Messungen an Ionen in niedrigen Ladungszuständen durchgeführt, wo relativistische und QED-Effekte weniger stark ausgeprägt sind. Die bis dato höchste erzielte Genauigkeit der in dieser Arbeit untersuchten Zustände $2p\ ^2P_{3/2}^o$ in Ar^{13+} und $3p\ ^2P_{3/2}^o$ in Fe^{13+} beläuft sich mit 9.70(15) ms und 16.74(12) ms auf 1.5% [61] bzw. 0.7% [52]. Beide Werte wurden durch Messungen mit Hilfe einer EBIT bestimmt. Die EBIT bietet gegenüber Speicherringen den Vorteil, dass die Ionen in einem begrenzten Volumen stationär gefangen sind und sich nur mit thermischen Geschwindigkeiten bewegen. Weiterhin reduzieren die exzellenten Vakuumbe-

dingungen – in einer EBIT werden typischerweise Drücke von weniger als 10^{-12} mbar erreicht – den Einfluss der bei Lebensdauermessungen metastabiler Zustände zu beachtenden, systematischen Fehlerquellen, wie z.B. das Abregen (*Quenchen*) der Niveaus aufgrund von Stößen mit benachbarten Atomen.

Ein entscheidender Punkt bei der Bestimmung von Lebensdauern ist die genaue Kenntnis und Kontrolle solcher systematischen Störeffekte, welche unter Umständen die gemessene, scheinbar natürliche Lebensdauer künstlich verkürzen oder verlängern können. So bilden z.B. Ionenverluste aus der Falle einen zusätzlichen Zerfallskanal und verringern so die gemessene Lebensdauer, während Kaskadeneffekte, bei denen Elektronen von höher angeregten Zuständen in das untersuchte Niveau zerfallen, zu einer Verlängerung führen können. In dieser Arbeit wurden umfangreiche Untersuchungen durchgeführt, um den Einfluss der unterschiedlichen systematischen Fehlerquellen auf die gemessenen Lebensdauern zu reduzieren bzw. möglichst genau zu kennen und zu verstehen.

Die Anregung der Zustände in der EBIT geschieht über den Mechanismus der Elektronenstoßanregung mit Hilfe des Elektronenstrahls. Obwohl durch Einstellung der Strahlenergie der gewünschte Ladungszustand des Ions präzise ausgewählt werden kann, ist nicht ausgeschlossen, dass es neben der erwünschten Anregung in das metastabile Niveau auch zu Anregungen in höher gelegene Zustände kommen kann, welche sich daraufhin über Kaskaden abregen würden. Eine klarere und definiertere Präparation des angeregten Zustands wäre durch die Anregung mittels eines geeigneten gepulsten Lasers möglich. Durch Abstimmung der Laserenergie auf die Übergangsenergie zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand lässt sich die Anregung höherer Niveaus ausschließen und so das Problem der Kaskadenbildung beseitigen. Aus diesem Grund wurde im Zuge dieser Arbeit auch eine Machbarkeitsstudie zu laserinduzierten Lebensdauermessungen durchgeführt.

Das erste Kapitel dieser Dissertation gibt einen Überblick über die theoretische Beschreibung relativistischer Ein-Elektronen-Systeme. Dabei werden die verschiedenen physikalischen Effekte, die einen Einfluss auf die Bindungsenergie haben, beschrieben. Weiterhin werden die heute gängigsten Verfahren zur Lösung von Mehr-Körper-Problemen erläutert und aus der Wechselwirkung des Elektrons mit einem elektromagnetischen Feld die allgemeine Form der spontanen Emission bzw. der Übergangsrate hergeleitet, gefolgt von einer Betrachtung magnetischer Dipolübergänge und der Einfluss des QED-Beitrags niedrigster Ordnung auf die Lebensdauer. Kapitel 2 widmet sich eingangs den verschiedenen Messmethoden zur Bestimmung von Lebensdauern, diskutiert deren Vor- und Nachteile, und beschreibt im Anschluss den Aufbau und das Funktionsprinzip der EBIT sowie die in der Falle stattfindenden dynamischen Elektronen- und Ionenprozesse. Der letzte Teil beschreibt die experimentellen Aufbauten zur Lebensdauermessung. Die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen und systematischen Untersuchungen an Ar XIV und Fe XIV sind in Kapitel 3 wiedergegeben. In Kapitel 4 werden die erhaltenen Ergebnisse präsentiert und mit der Theorie verglichen. Die Zusammenfassung und ein Ausblick auf zukünftige Möglichkeiten hinsichtlich der Messung von Lebensdauern beschließen die Arbeit.

Kapitel 1

Theorie der Struktur von Atomen und hochgeladenen Ionen

Das heutige Verständnis des Aufbaus der Materie, insbesondere der Struktur von Atomen, beruht sowohl auf experimentellen Präzisionsmessungen als auch auf der Entwicklung von Modellen und Theorien, und somit auf dem gleichzeitigen Zusammenspiel von experimentellen mit theoretischen Fortschritten. Ausgehend von den im Jahre 1911 von E. Rutherford durchgeführten Streuversuchen mit α -Teilchen an einer Goldfolie [62], aus denen hervorging, dass sich nahezu die gesamte Masse des Atoms auf einen schweren, positiv geladenen Kern im Zentrum des Atoms konzentriert, entwickelte Bohr das so genannte Planetenmodell des Atoms [63, 64], bei dem sich die Elektronen strahlungslos auf stationären, diskreten Kreisbahnen im Coulombfeld des Kerns bewegen. Dieses, später durch Sommerfeld noch verfeinerte [65], empirisch aufgestellte Modell, war in der Lage, die von J. Balmer bereits im Jahre 1885 beobachteten Emissions-Spektren des Wasserstoffatoms zu erklären. Es stellte zudem die Grundlage der in den frühen Jahren des 20. Jahrhunderts durch W. Heisenberg, E. Schrödinger und P.A.M. Dirac entwickelten Quantenmechanik dar [66]. In dieser, konzeptionell neuen, und auf dem von de Broglie formulierten Welle-Teilchen-Dualismus aufbauenden Theorie, wird ein Teilchen durch eine (komplexwertige) Wellenfunktion $\Psi(\mathbf{r}, t)$ dargestellt, deren reale physikalische Bedeutung sich aus ihrem Absolut-Quadrat $\Psi(\mathbf{r}, t) \cdot \Psi^*(\mathbf{r}, t)$ ergibt und als Wahrscheinlichkeitsdichte für den Aufenthalt eines Teilchens am Ort \mathbf{r} zur Zeit t interpretiert wird. Die Dynamik eines Teilchens - z.B. eines Elektrons - wird durch die nichtrelativistische zeitabhängige Schrödingergleichung

$$\mathcal{H}\Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (1.1)$$

beschrieben. Hierbei ist \mathcal{H} der Gesamthamilton-Operator

$$\mathcal{H} = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(\mathbf{r}, t) \quad , \quad (1.2)$$

der als Observable der Gesamtenergie des Systems entspricht, \hbar ist das Planck'sche Wirkungsquantum und $V(\mathbf{r}, t)$ das Potential, in dem sich ein Teilchen der Masse m zur Zeit t befindet. Die

sich im Falle eines zeitunabhängigen Potentials $V(\mathbf{r})$ ergebende stationäre Schrödingergleichung

$$\mathcal{H}\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}) \quad (1.3)$$

ist in der Lage, die quantisierten Energiezustände des Elektrons im Wasserstoffatom zu erklären. Dabei sind die atomare Energieniveaus mit unterschiedlichem Drehimpuls im Rahmen der Schrödingertheorie bezüglich der Hauptquantenzahl n entartet, d.h. sie besitzen dieselben Energieeigenwerte. Dies deckt sich jedoch nicht mit der in einigen Spektren experimentell beobachteten Feinstrukturaufspaltung, die konsistent erst durch die von P.A.M Dirac entwickelte, vollständig relativistische Quantentheorie wiedergegeben werden konnte [67].

Gemäß der Dirac-Theorie haben Zustände mit gleicher Hauptquantenzahl n und gleicher Gesamtdrehimpulsquantenzahl j nun dieselbe Energie. Allerdings ergaben auch hier Messungen von W.E. Lamb und R.C. Retherford an atomaren Wasserstoff entgegen dieser Vorhersage eine Aufspaltung der $2s_{1/2}$ - und $2p_{1/2}$ -Niveaus [68]. Diese Beobachtung gab den Anstoß zur Entwicklung der Quantenelektrodynamik (QED), die im Rahmen einer quantenfeldtheoretischen Betrachtung die Wechselwirkung geladener Teilchen sowohl mit dem elektromagnetischen Strahlungsfeld als auch untereinander durch Austausch virtueller Photonen beschreibt. Sie konnte die gemeinhin als Lambverschiebung bezeichnete Energieaufspaltung mit beeindruckender Genauigkeit wiedergeben. Darüberhinaus legt die QED als erste abelsche und renormierbare Eichfeldtheorie die konzeptionelle Grundlage für alle modernen Quantenfeldtheorien, wie die Quantenchromodynamik, welche die starke Wechselwirkung beschreibt, oder das Standardmodell der Elementarteilchen. Bis heute ist die QED die präziseste und experimentell am genauesten überprüfte Theorie der Physik überhaupt. Als Beispiel soll hier die $1s$ - $2s$ Übergangsenergie von atomaren Wasserstoff genannt werden, die mit einer relativen Genauigkeit von $1.4 \cdot 10^{-14}$ in der Gruppe von T.W. Hänsch (Nobelpreis 2005) gemessen wurde. Hierbei beträgt der relative QED-Beitrag zur Gesamtenergie $3 \cdot 10^{-6}$ [60, 69].

Im ersten Teil dieses Kapitels soll nun ein Überblick über die relativistische Beschreibung von Ein-Elektronen-Systemen, die verschiedenen Effekte, die Einfluss auf die Bindungsenergie haben, und die theoretischen Ansätze zur Lösung von Mehr-Körper-Problemen gegeben werden. Der zweite Teil führt über die allgemeine Beschreibung elektromagnetischer Übergänge hin zur Diskussion der Lebensdauer angeregter Zustände und schließt mit der Behandlung magnetischer Dipolübergänge und dem Einfluss des anomalen magnetischen Moment des Elektrons auf die Übergangswahrscheinlichkeit.

1.1 Relativistische Quantentheorie von Ein-Elektronen-Systemen

Die empirisch aufgestellte Schrödingergleichung (1.1) erlaubt nur eine unzureichende Beschreibung der atomaren Elektronenstruktur, da sie sich unter einer Lorentztransformation nicht invariant verhält. Sie berücksichtigt demnach keine relativistischen Effekte wie z.B. die relativistische Korrektur des Elektronenimpulses und der Gesamtenergie des Elektrons. Des Weiteren ist sie nicht

in der Lage, den Spin des Elektrons vorherzusagen. Um die spezielle Relativitätstheorie mit in die Schrödingergleichung einzubinden, formulierte Dirac im Jahre 1928 ausgehend von der relativistischen Energie-Impuls-Beziehung eine Theorie, in der die Wellenfunktion $\Psi(\mathbf{r}, t)$ nicht als Skalar, sondern als 4-komponentiger Tensor (Spinor) behandelt wird, und die zur Dirac-Gleichung führt.

1.1.1 Dirac-Gleichung

Die allgemeine Form der Dirac-Gleichung für ein kräftefreies Teilchen der Masse m lautet:

$$(i\hbar c\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla - \beta mc^2)\Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} , \quad (1.4)$$

mit den (4×4) Dirac-Matrizen

$$\alpha_i = \begin{pmatrix} 0 & \boldsymbol{\sigma} \\ \boldsymbol{\sigma} & 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \beta = \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & -I \end{pmatrix} , \quad (1.5)$$

welche die (2×2) Einheitsmatrix I und die drei (2×2) Pauli Spinmatrizen $\sigma_{1,2,3}$ enthalten:

$$\sigma_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} , \quad \sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} , \quad \sigma_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} . \quad (1.6)$$

Die Matrizen α_i und β erfüllen dabei die Antikommutatorbedingungen

$$\begin{aligned} \{\alpha_i, \alpha_k\} &= 2\delta_{ik} \\ \{\alpha_i, \beta\} &= 0 \\ \alpha_i^2 &= \beta^2 = 1 . \end{aligned} \quad (1.7)$$

Da es sich bei α_i und β um 4×4 -Matrizen handelt, besteht die Lösung der Dirac-Gleichung aus einer 4-komponentigen Wellenfunktion (Spinor)

$$\Psi = \begin{pmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_2 \\ \varphi_3 \\ \varphi_4 \end{pmatrix} . \quad (1.8)$$

Um die Wechselwirkung eines punktförmigen Teilchens mit einem äußeren, klassischen elektromagnetischen Feld, das in kovarianter Schreibweise durch das Viererpotential

$$A^\mu = (A^0, \mathbf{A}) \quad (1.9)$$

mit A^0 dem skalaren Potential des elektrischen Feldes und dem Vektorpotential \mathbf{A} des magnetischen Feldes beschrieben wird, zu berücksichtigen, kann die freie Dirac-Gleichung mit Hilfe der so genannten minimalen Kopplung in die Dirac-Gleichung bei Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes übergeführt werden ([70]):

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} &= [\boldsymbol{\alpha} \cdot (-i\hbar c \nabla - ce\mathbf{A}) + \beta mc^2 + eA^0] \Psi(\mathbf{r}, t) \\ &= \underbrace{(-i\hbar c \boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla + \beta mc^2)}_{\mathcal{H}_D} \Psi(\mathbf{r}, t) + \underbrace{(-e\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A} + eA^0)}_{\mathcal{H}_{\text{int}}} \Psi(\mathbf{r}, t) . \end{aligned} \quad (1.10)$$

Hierbei beschreiben \mathcal{H}_D den Dirac-Hamiltonoperator des freien Teilchens und \mathcal{H}_{int} den elektromagnetischen Wechselwirkungsterm. Um Lösungen für die Wellenfunktionen dieser Gleichung zu erhalten, kann der 4-komponentige Spinor Ψ in zwei kleinere, 2-komponentige Spinoren $\phi(\mathbf{r}, t)$ und $\chi(\mathbf{r}, t)$ aufgespalten werden, wobei $\phi(\mathbf{r}, t)$ die beiden Komponenten mit positiver Energie und $\chi(\mathbf{r}, t)$ die beiden Komponenten mit negativer Energielösung repräsentieren. Im nichtrelativistischen Limit ($v/c \rightarrow 0$) und der Annahme eines schwachen elektrostatischen Feldes, geht Gleichung (1.10) in die so genannte Pauli-Gleichung über, die als nichtrelativistisches Analogon der Dirac-Gleichung gilt und bei Berücksichtigung von $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$ lautet:

$$i\hbar\frac{\partial\phi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \left[\frac{1}{2m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} + eA^0 \right] \phi(\mathbf{r}, t) . \quad (1.11)$$

Sie unterscheidet sich von der Schrödingergleichung nur durch den Term

$$\mathcal{H}_{\text{mag}} = \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} , \quad (1.12)$$

der die Wechselwirkung $-\boldsymbol{\mu}_s \cdot \mathbf{B}$ des intrinsischen magnetischen Moments des Elektrons, das aufgrund des Elektronenspins gegeben ist, mit dem Magnetfeld \mathbf{B} beschreibt. Die zwei Komponenten des Spinors ϕ spiegeln die beiden Freiheitsgrade $s = \pm 1/2$ des Spins wider. Klassisch ist die Energie eines magnetischen Dipols $\boldsymbol{\mu}$ im Magnetfeld \mathbf{B} gegeben durch

$$E = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B} = \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} . \quad (1.13)$$

Mit dem Spinoperator $\mathbf{S} = \hbar\boldsymbol{\sigma}/2$ lässt sich somit das magnetische Moment des Elektrons schreiben als:

$$\boldsymbol{\mu}_s = \frac{e}{m} \frac{\hbar\boldsymbol{\sigma}}{2} = 2 \left(\frac{e}{2m} \right) \mathbf{S} . \quad (1.14)$$

Da das gyromagnetische Verhältnis g_s des Elektrons über

$$\boldsymbol{\mu}_s = g_s \mu_B \frac{\mathbf{S}}{\hbar} \quad (1.15)$$

definiert ist, wobei $\mu_B = e\hbar/2m$ das Bohr'sche Magneton bezeichnet, lässt sich durch Vergleich von Gleichung (1.14) und (1.15) ablesen, dass nach der Dirac-Theorie der g -Faktor des Elektrons den Wert $g = 2$ besitzt. Eine vollständig relativistische Behandlung bestätigt diese Vorhersage [71]. Experimentelle Untersuchungen stellten Abweichungen dieses Wertes fest, die sich jedoch im Rahmen der Quantenelektrodynamik mit sehr hoher Präzision erklären lassen (siehe Abschnitt 1.4.4).

1.1.2 Relativistisches Spektrum wasserstoffähnlicher Systeme

Die Dirac-Gleichung für ein Teilchen mit Spin $s = 1/2$ im sphärisch symmetrischen Coulombpotential $V(\mathbf{r}) = \frac{Z\alpha}{r}$, wie es beim Wasserstoffatom, bzw. bei wasserstoffähnlichen Ionen und bei Vernachlässigung der endlichen Kernaussdehnung vorliegt, lässt sich schreiben als

$$\left(-i\hbar c \boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla + \beta m_e c^2 - \frac{Z\alpha}{r} \right) \Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} , \quad (1.16)$$

mit $\alpha = e^2/\hbar c \cong 1/137$ der Sommerfeldschen Feinstrukturkonstante, e der Elementarladung und m_e der Ruhemasse des Elektrons. Gleichung (1.16) kann unter Annahme eines unendlich schweren, punktförmigen Kerns analytisch gelöst werden, und man erhält folgende diskrete Energieeigenwerte:

$$E_{nj} = m_e c^2 \left\{ \left[1 + \left(\frac{Z\alpha}{n - (j + \frac{1}{2}) + \sqrt{(j + \frac{1}{2})^2 - (Z\alpha)^2}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} - 1 \right\}, \quad (1.17)$$

mit der Hauptquantenzahl n und dem Gesamtdrehimpuls j , der die Werte $j = |l - s|, \dots, l + s$ annehmen kann. Die Bindungsenergie eines Zustandes hängt gemäß der Dirac-Theorie also nur von der Hauptquantenzahl n und der Gesamtdrehimpulsquantenzahl j ab. Des Weiteren ergibt sich die Feinstrukturaufspaltung zwischen Energieniveaus verschiedener Gesamtdrehimpulse j , die unter Anderem auf die Wechselwirkung des Elektronenspins s mit dem Bahndrehimpuls l und der relativistischen Massenzunahme des Elektrons zurückzuführen ist, direkt aus der Lösung der Dirac-Gleichung. Entwickelt man Gleichung (1.17) in Ordnungen von $(Z\alpha)$, so ergibt sich der Ausdruck

$$E_{nj} = m_e c^2 \left[1 - \frac{(Z\alpha)^2}{2n^2} - \frac{(Z\alpha)^4}{2n^3} \left(\frac{1}{j + \frac{1}{2}} - \frac{3}{4n} \right) + \dots \right]. \quad (1.18)$$

Der erste Term in Gleichung (1.18) entspricht der Ruhemasse des Elektrons, während der zweite Term den Anteil der nichtrelativistischen Bindungsenergie wiedergibt, der mit den Energieeigenwerten der Schrödingergleichung übereinstimmt. Die relativistischen Korrekturen niedrigster Ordnung $(Z\alpha)^2$ sind im letzten angegebenen Term enthalten. Hierzu gehören die Spin-Bahn-Wechselwirkung als auch die relativistische Massenänderung des Elektrons, sowie der so genannte Darwin Term. Die Feinstrukturaufspaltung für verschiedene j wird durch die Dirac-Theorie in erster Ordnung ohne weitere Korrekturen mit beeindruckender Genauigkeit wiedergegeben.

Obwohl die Dirac-Gleichung für ein Elektron im Coulombfeld eines punktförmigen Kerns analytisch lösbar ist (siehe z.B. [72]) und relativistische Korrekturen höherer Ordnung prinzipiell exakt angegeben werden können, ist es aufgrund der geringen Größe der Korrekturen hinsichtlich der Bindungsenergie (bei hinreichend kleinem Z) teilweise ausreichend, diese mit Hilfe störungstheoretischer Methoden einzubeziehen. So kann der relativistische Dirac-Hamiltonian \mathcal{H}_D bis zur Ordnung v^2/c^2 angenähert werden als

$$\mathcal{H}_D = \mathcal{H}_{\text{NR}} + \mathcal{H}_{\text{MREL}} + \mathcal{H}_{\text{SO}} + \mathcal{H}_{\text{Darwin}}, \quad (1.19)$$

mit dem nichtrelativistischen Hamiltonian \mathcal{H}_{NR} und drei Korrekturtermen. $\mathcal{H}_{\text{MREL}}$ berücksichtigt die relativistische Massenzunahme des Elektrons durch seine Bewegung um den Kern, \mathcal{H}_{SO} beschreibt die Wechselwirkung zwischen Bahndrehimpuls und magnetischem Moment des Elektrons (Spin-Bahn-Wechselwirkung). Der so genannte Darwin-Term $\mathcal{H}_{\text{Darwin}}$, der als „Zitterbewegung“ des Elektrons verstanden werden kann und als Konsequenz dessen auftritt, dass die Position des Elektrons nicht genauer als die Comptonwellenlänge \hbar/mc angegeben werden kann und somit das Elektron im Mittel mit einem ausgedehnten elektrischem Feld wechselwirkt.

Aufgrund des Spinorcharakters der Dirac'schen Wellenfunktionen erlaubt die Dirac-Theorie neben den gebundenen Lösungen mit positiven Energieeigenwerten und dem positiven Kontinuum auch Lösungen mit negativer Energie [73]. Prinzipiell sollte es dem Elektron also möglich sein, vom niedrig gelegenen, positiven Eigenzustand – dem Grundzustand – aus unter Emission eines Photons in einen Zustand mit negativem Energieeigenwert überzugehen. Da der Grundzustand jedoch stabil erscheint, folgerte Dirac, dass im Einklang mit dem Pauli-Prinzip alle negativen Energiezustände (der so genannte Dirac-See) bereits durch Elektronen besetzt sind und somit keine Elektronen mehr im See der negativen Energien untergebracht werden können. Die Absorption eines Photons durch ein Elektron negativer Energie führt zu einem Loch im Dirac-See, das als ein Elektron mit positiver Ladung (Positron) interpretiert werden kann. In der Tat konnte nur einige Jahre später, 1932, Anderson die Existenz des Positrons – das Antiteilchen des Elektrons – experimentell nachweisen und die Vorhersage Diracs bestätigen [74].

1.2 Quantenelektrodynamik (QED)

Obwohl die analytische und exakte Lösung (1.17) der Dirac-Gleichung die Hauptbeiträge der Relativistik beinhaltet, beschreibt sie das Wasserstoffatom nur unzureichend. So zeigten im Jahre 1947 W.E. Lamb und R.C. Retherford experimentell, dass entgegen der Vorhersage der Dirac-Theorie die Energiezustände $2s_{1/2}$ und $2p_{1/2}$ – also Zustände mit gleicher Hauptquantenzahl n und gleicher Gesamtdrehimpulsquantenzahl j – nicht entartet sind [68]. Der Unterschied zwischen der von Dirac vorhergesagten Bindungsenergie und dem echten Wert wird gemeinhin als Lambverschiebung bezeichnet. Die festgestellte Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie kann nicht allein auf eine Modifikation des Kernpotentials, das in Gleichung (1.16) idealerweise von einem punktförmig angenommenen Kern unendlicher Masse herrührt, oder auf den relativistischen Rückstoßeffekt des Kerns, zurückgeführt werden. Vielmehr kann die Lambverschiebung nur im theoretischen Rahmen der Quantenelektrodynamik (QED) verstanden werden. In der QED wird das elektromagnetische Feld quantisiert behandelt (zweite Quantisierung), und die Wechselwirkung geladener Teilchen mit dem Feld und sich selbst wird über den Austausch virtueller

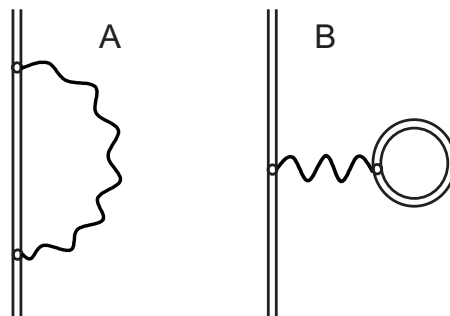


Abbildung 1.1: Feynmangraphen für die Selbstenergie (A) und die Vakuumpolarisation (B) eines gebundenen Elektrons.

bzw. reeler Photonen beschrieben. Diese Wechselwirkungen werden üblicherweise durch die so genannten Feynmann-Diagramme charakterisiert. So illustriert Abb. 1.1 die beiden Hauptbeiträge der QED zur Lambverschiebung: die Selbstenergie (SE) des Elektrons und die Vakuumpolarisation (VP). Mathematisch wird die Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld störungstheoretisch (perturbativ) mit der Feinstrukturkonstanten α als Expansionsparameter behandelt. Die Ordnungszahl (α^n), $n = 1, 2, 3, \dots$ gibt dabei die Anzahl der ausgetauschten virtuellen Photonen an. Da die Kernwechselwirkung über den Parameter $Z\alpha$ vermittelt wird, kann diese, solange der Expansionsparameter ($Z\alpha$) $\ll 1$ ist, ebenso als Störung aufgefasst werden, während das im Feld des Kerns gebundene Elektron als quasifreies Teilchen behandelt wird. Dies gilt insbesondere für Systeme mit niedriger Kernladungszahl Z , wie das Wasserstoff-, und Heliumatom, aber auch für exotische Systeme wie das Positronium und das Muonium, an denen der störungstheoretische Ansatz eine beeindruckende Übereinstimmung von Theorie und Experiment ergibt (siehe [75] und Referenzen darin). Beim Übergang zu schweren Systemen ist $Z\alpha$ keine kleine Zahl mehr, so dass der perturbative Formalismus nicht anwendbar ist. Vielmehr müssen zur Berücksichtigung der Wechselwirkung mit dem Kern höhere Ordnungen in $(Z\alpha)$ berücksichtigt werden. Dies gelingt mit dem sog. *All-Order* Ansatz, bei dem keine Entwicklung in $(Z\alpha)^n$ vorgenommen wird, sondern alle Ordnungen in $(Z\alpha)$ in die Rechnung mit einbezogen werden. Das Kernfeld ist dabei von Anfang an in der Wellenfunktion des gebundenen Elektrons und dessen Propagator enthalten. Die sich ergebenden gebundenen Zustände dienen als Ausgangspunkt für die Berechnung der Selbstenergie-, und Vakuumpolarisations-Korrekturen. In Abb. 1.1 ist der Propagator des gebundenen Elektrons als offene Doppellinie dargestellt.

1.2.1 Die Selbstenergie des Elektrons

Die dominante QED-Korrektur in Ein-Elektronen-Systemen ist die Selbstenergie des Elektrons. Sie führt zu einer Verminderung der Bindungsenergie und kann anschaulich als Emission und Reabsorption eines virtuellen Photons durch das gebundene Elektron interpretiert werden. Dieser Prozess ist im Rahmen der Heisenberg'schen Unschärferelation $\Delta E \cdot \Delta t \leq \hbar$ für sehr kurze Zeiten erlaubt und stellt dementsprechend keine Verletzung des Energiesatzes dar. Die durch die ständige Emission und Absorption virtueller Photonen verursachte Vakuumschwankung des elektromagnetischen Feldes führt zu einer Ausschmierung der ansonsten punktförmigen Ladung des Elektrons. Die daraus resultierende, effektiv räumlich verteilte Ladung des Elektrons führt zu einer Potentialänderung und damit zu einer Modifikation des Coulombfeldes. Um die in der klassischen Theorie auftretende unendliche Masse des Elektrons zu beseitigen, wird in der QED eine Renormierung der Elektronenmasse durchgeführt, die das Auftreten der erwähnten Divergenz verhindert [76].

1.2.2 Vakuumpolarisation

Die Vakuumpolarisationskorrektur kann beschrieben werden als Wechselwirkung des gebundenen Elektrons mit virtuellen Elektron-Positron-Paaren, die beim Austausch virtueller Photonen mit dem Vakuumfeld entstehen und sich entsprechend ihrer Ladung im Coulombfeld des Kerns

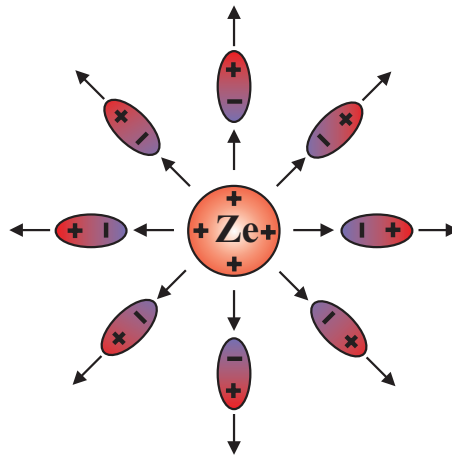


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der Vakuumpolarisation (VP).

ausrichten. Dadurch erfolgt eine Polarisierung des Vakuums, durch die das Elektron eine effektiv höhere Kernladung spürt und somit stärker an den Kern gebunden ist (Absenkung der Zustandsenergie). Eine anschauliche Darstellung gibt Abbildung 1.2. Die VP erster Ordnung kann in zwei Hauptanteile zerlegt werden: (1) dem so genannten Uehlingpotential, welches die Korrektur des Coulombpotentials aufgrund des Austauschs nur eines virtuellen Photons wiedergibt [77] und (2) die so genannte Wichmann-Kroll-Korrektur, die alle Beiträge höherer Ordnung beinhaltet [78].

1.3 Mehr-Elektronen-Systeme

Bei Mehr-Elektronen-Systemen muss neben den relativistischen und quantenelektrodynamischen Effekten zusätzlich die Wechselwirkung der Elektronen untereinander berücksichtigt werden. Es besteht jedoch das Problem, dass allein das Hinzufügen eines weiteren Elektrons in das Coulombfeld des Kerns eines wasserstoffähnlichen Systems prinzipiell keine analytische Lösung mehr zulässt. So entwickelten sich unter Annahme unterschiedlicher Näherungen verschiedene theoretische Verfahren, um dem komplexen Wechselspiel zwischen den Effekten der Relativistik, QED und Elektronenkorrelationen, welche allesamt unterschiedlich mit der Kernladungszahl Z skalieren, beizukommen. Die verschiedenen Ansätze können rechentechnisch im Wesentlichen in zwei Klassen eingeteilt werden: zum Einen in Methoden, die auf dem Variationsprinzip beruhen und zum Anderen jene Modelle, die einen nicht variativen Ansatz, wie z.B. den störungstheoretischen, verfolgen. Abbildung 1.3 ordnet die vorwiegend benutzten mathematischen Modelle in Abhängigkeit der Kernladungszahl Z und der Anzahl der Elektronen in ihren Gültigkeitsbereich (niedriges Z – hohes Z) ein.

Ausgehend vom relativistischen Mehrkörper-Hamiltonian soll nun nachfolgend ein Überblick über die gängigsten Verfahren zur Berechnung der Struktur von Mehr-Elektronen-Systemen gegeben werden.

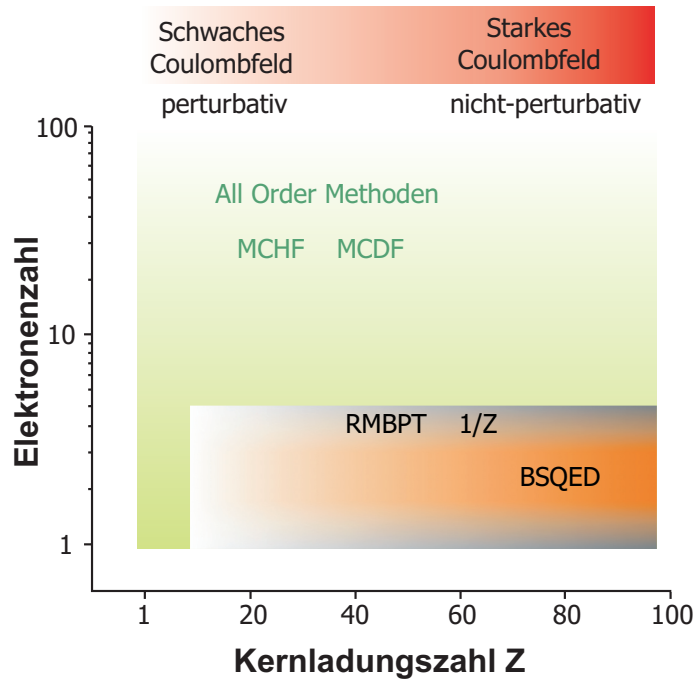


Abbildung 1.3: Theoretische Ansätze zur Berechnung von Mehr-Elektronen-Systemen. Hierbei bezeichnen: *Multi-Configuration-Dirac-Fock* (MCDF) [79], *Multi-Configuration-Hartree-Fock* (MCHF) [80], *Relativistic Many-Body Perturbation Theory* (RMBPT) [81], *Bound State QED* (BSQED) [82].

1.3.1 Der relativistische Mehr-Körper-Hamiltonian

Ausgangspunkt für die relativistische Berechnung von Mehr-Elektronen-Systemen ist der Mehr-Körper Dirac-Hamiltonian

$$\mathcal{H} = \sum_i h_D^{(i)} + \sum_{i < j} \mathcal{V}_{ij} \quad (1.20)$$

mit dem Ein-Teilchen Dirac-Hamiltonoperator ($\hbar = c = 1$)

$$h_D^{(i)} = \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}^{(i)} + \beta m - \frac{Z\alpha}{r_i}, \quad (1.21)$$

und dem Wechselwirkungspotential $\mathcal{V}_{ij} = 1/r_{ij}$, das sich aufgrund der gegenseitigen Coulomb-Abstoßung der sich im Abstand $r_{ij} = |r_i - r_j|$ befindlichen Elektronen i und j ergibt. In dieser Beschreibung wird die Elektron-Elektron Wechselwirkung als instantan angenommen, sie berücksichtigt also weder die Retardierung des Potentials, d.h. die Zeit, die dieses aufgrund der endlichen Zeitdauer der Signalausbreitung braucht, um zu wirken, noch die magnetische Wechselwirkung, die bei bewegten Ladungen ebenfalls eine Rolle spielt. Der Coulomb-Abstoßungsterm in Gleichung (1.20) ist somit nur eine nichtrelativistische Approximation.

Der Dirac-Coulomb-Breit Operator

Die relativistische Korrektur in niedrigster Ordnung, die sowohl die magnetische Wechselwirkung, als auch die Retardierung berücksichtigt, erhält man durch Einführung der so genannten Breit Wechselwirkung in den relativistischen Dirac Hamiltonian in Form des Breit Operators

$$\mathcal{V}_B = -\frac{1}{2r_{ij}} \left(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^2} \right). \quad (1.22)$$

Der sich neu ergebene Hamiltonian

$$\mathcal{H} = \sum_i h_D^{(i)} + \sum_{i<j} \mathcal{V}_{ij} + \sum_{i<j} \mathcal{V}_B \quad (1.23)$$

wird als Dirac-Coulomb-Breit Hamiltonian bezeichnet. Er lässt sich bis zur Ordnung $(v/c)^2$ in einzelne Komponenten aufspalten, die die verschiedenen elektronischen Wechselwirkungen beschreiben:

$$\mathcal{H}_{\text{Tot}} = \mathcal{H}_{\text{NR}} + \mathcal{H}_{\text{MREL}} + \mathcal{H}_{\text{SO}} + \mathcal{H}_{\text{Darwin}} + \mathcal{H}_{\text{OO}} + \mathcal{H}_{\text{SS}} + \mathcal{H}_{\text{SOE}} + \mathcal{H}_{\text{SOO}}. \quad (1.24)$$

Hierbei ist \mathcal{H}_{NR} der nichtrelativistische Hamiltonoperator, $\mathcal{H}_{\text{MREL}}$ berücksichtigt die relativistische Massenzunahme des Elektrons, \mathcal{H}_{SO} beschreibt die Spin-Bahn-Kopplung während $\mathcal{H}_{\text{Darwin}}$ den Darwin-Term repräsentiert. Die letzten vier Terme sind Konsequenzen der Mehr-Elektron-Wechselwirkungen. \mathcal{H}_{OO} , die Orbit-Orbit Wechselwirkung, gibt die Wechselwirkung der Elektronladungen über ihre Dipolmomente wieder. \mathcal{H}_{SS} beschreibt die Spin-Spin Wechselwirkung, \mathcal{H}_{SOE} beinhaltet die Wechselwirkung des Spins und des magnetischen Moments mit einem externen Feld [83].

Die No Virtual Pair-Näherung

Aufgrund der negativen Energiezustände, die man als Teillösung der Dirac-Gleichung erhält (siehe Kapitel 1.1.2), ergibt sich das Problem, dass die Energieeigenwerte des Mehr-Elektronen-Hamiltonian keine stabile Lösung bilden, da für deren Energie keine untere Grenze gegeben ist [84]. Um dieser Unzulänglichkeit beizukommen, können mittels Einsatz von Projektionsoperatoren die negativen Energiezustände vernachlässigt werden. Dies wird als *No Virtual Pair*-Näherung bezeichnet. Nachteil dieser Näherung ist, dass QED-Effekte, die auf virtuellen Elektron-Positron Paaren beruhen, nachträglich wiedereingeführt werden müssen. Tatsächlich gestattet nur die so genannte *Bound State QED*-Methode (BSQED) eine konsequente Einbeziehung der QED-Strahlungskorrekturterme Selbstenergie und Vakuumpolarisation unter Berücksichtigung der negativen Energiezustände, die im Rahmen der BSQED als Positronen mit positiver Energie, welche rückwärts in der Zeit propagieren, interpretiert werden [85].

1.3.2 Variationsverfahren

Methoden, die auf dem Variationsprinzip beruhen sind *All-Order-Methoden*, bei denen die Gesamtwellenfunktion des Atoms als Testfunktion behandelt wird, um eine Lösung des Gesamthamiltonian aus Gleichung (1.20) zu erhalten. Die Gesamtwellenfunktion Ψ_{Tot} , die dem Hamiltonoperator H_{Tot} aus Gleichung (1.24) genügt, kann unter Beachtung des Pauli-Prinzips als antisymmetrisches Produkt von Ein-Elektron-Wellenfunktionen ausgedrückt und in Form der so genannten Slater-Determinante geschrieben werden. Man erhält nun die optimale Wellenfunktion durch iterative Variation dieser Einzelwellenfunktionen, unter der Randbedingung, dass der Erwartungswert des Gesamthamiltonoperators, sprich die Energie des Systems, minimiert wird. Da bei jedem Schritt der Iteration die zuvor berechneten Wellenfunktionen als neuer Ausgangspunkt in einer selbstkonsistenten Art und Weise benutzt werden, spricht man auch von einem selbstkonsistenten Feldansatz (*Self Consistent Field*, SCF).

Abhängig von der Form der Testfunktionen können die unterschiedlichen Variationsverfahren in drei Gruppen aufgeteilt werden. In der ersten Gruppe ist die Gesamtwellenfunktion aus einer Linearkombination $\Psi = \sum_{\nu} c_{\nu} \Phi_{\nu}$ von Ein-Teilchen Wellenfunktionen aufgebaut, die nur von der Koordinate \mathbf{r}_i des i -ten Elektrons abhängt und nicht vom relativen Abstand $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$ zweier Elektronen i und j . Sind die Mischkoeffizienten die einzigen Variationsparameter, so wird die Methode als *Configuration Interaction* (CI) bezeichnet. Werden neben den Mischkoeffizienten auch die Ein-Teilchen Wellenfunktionen (Orbitale) optimiert, so wird das Verfahren im Fall der Verwendung von Dirac-Wellenfunktionen für die einzelnen Elektronen *Multi-Configuration Dirac-Fock*-Methode genannt. Hängen die Testfunktionen explizit von r_{ij} oder anderen Koordinaten ab, so spricht man von der Hylleraas Technik. Diese kann jedoch nicht direkt auf relativistische Probleme angewandt werden, gibt jedoch für leichte Systeme, wo Korrelationseffekte die relativistischen und QED-Effekte überwiegen, sehr gute Resultate.

Die *Multi-Configuration-Dirac-Fock*-Methode

Ausgehend von der weit verbreiteten nichtrelativistischen Hartree-Fock Methode [86, 87], bei der die Energie eines Elektrons im gemittelten Summenpotential der restlichen, als statisch angenommenen, Elektronendichteverteilung, durch Variationsverfahren berechnet wird, entwickelte man das so genannte *Multi-Configuration-Hartree-Fock* Verfahren (MCHF) [80], das zusätzlich in der Lage ist, Winkelkorrelations-Effekte zwischen den Elektronen in den Berechnungen zu berücksichtigen.

Um neben relativistischen Effekten auch die magnetische Wechselwirkung mit einzubeziehen und somit die erreichbare Präzision der Rechnungen zu erhöhen, kann das MCHF Verfahren mit Hilfe der Ein-Elektronen Dirac-Wellenfunktionen auf die relativistische *Multi-Configuration-Dirac-Fock*-Methode (MCDF) erweitert werden [79]. Bei der MCDF-Methode ist die Gesamtwellenfunktion $\Psi_{\Pi, J, M}$, die von der Parität Π , dem Gesamtdrehimpuls J und der magnetischen Quantenzahl M abhängt, über die Linearkombination von Konfigurations-Zustandsfunktionen (CSF)

$|\Psi_{\Pi,J,M}\rangle$ definiert:

$$|\Psi_{\Pi,J,M}\rangle = \sum_{\nu=1}^n c_{\nu} |\nu\Pi JM\rangle . \quad (1.25)$$

Die CSF sind Eigenfunktionen der Parität Π , des Gesamtdrehimpulses \mathbf{J}^2 und seiner Projektion J_z , und werden aus dem antisymmetrischen Produkt von Ein-Elektron Wellenfunktionen aufgebaut. Sie lassen sich als Linearkombination von Slater-Determinanten mit Dirac-Spinoren schreiben:

$$|\nu\Pi JM\rangle = \sum_{i=1}^{N_{\nu}} d_i \begin{vmatrix} \psi_1^i(x_1) & \dots & \psi_m^i(x_1) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \psi_1^i(x_m) & \dots & \psi_m^i(x_m) \end{vmatrix} . \quad (1.26)$$

Die Aufgabe besteht nun in der Bestimmung der Mischkoeffizienten c_{ν} und den Orbitalen ψ^i durch Anwendung des Variationsprinzips auf die Energieeigenwerte des Hamiltonians hinsichtlich der Gesamtwellenfunktion $\Psi_{\Pi,J,M}$.

Für gebundene Zustände in neutralen Atomen oder auch Ionen wurden die relativistischen Dirac-Fock Gleichungen in der Multikonfigurations-Näherung erstmals numerisch durch Desclaux [88] und Grant [89] gelöst.

1.3.3 Perturbative Methoden

Die Beschreibung von schweren Ionen mit einigen wenigen Elektronen findet üblicherweise im Rahmen von störungstheoretischen Methoden statt. Als Beispiel seien die *Relativistic Many-Body Perturbation Theory* (RMBPT) [81] und die $1/Z$ -Methode genannt. Ist die Anzahl der Elektronen sehr viel kleiner als die Kernladungszahl Z , so wechselwirken in nullter Ordnung die Elektronen nur mit dem Coulombpotential des Kerns und ihre Bindungsenergie wird als Summe der Ein-Teilchen Dirac-Coulomb Bindungsenergien definiert. Elektron-Elektron Wechselwirkungen und radiative Korrekturen werden als Störung behandelt. Da der Entwicklungsparameter für die Elektron-Kern Wechselwirkung (αZ) ist und die Wechselwirkung der Elektronen aufgrund ihrer einfachen Ladung durch α vermittelt wird, ist die Elektronenkorrelation durch den, im Falle hoher Kernladung Z , rasch konvergierenden Parameter $\alpha/(\alpha Z) = 1/Z$ gegeben. Es zeigt sich jedoch, dass die RMBPT und die $1/Z$ -Methode für leichte Ionen schwer anwendbar sind, da in störungstheoretischer Entwicklung viele Korrekturterme mitgenommen werden müssen, um die erwünschte Präzision zu erreichen.

Ein weiterer perturbativer Ansatz ist die sog. *Bound State QED* (BSQED), welche ebenso für einfache, schwere Systeme am Besten geeignet ist. So wird in dieser Methode die Wechselwirkung der Elektronen untereinander vollständig im Rahmen der QED durch Photonenaustausch beschrieben. Allerdings ist auch dieser direkte QED-Ansatz für Viel-Elektronen Systeme weiterhin sehr aufwendig, so dass die BSQED-Methode bisher nur auf heliumartige (zwei Elektronen) [82] und lithiumartige (drei Elektronen) [90] Systeme angewandt wurde.

1.4 Elektromagnetische Übergänge

Die heutige Kenntnis über die Struktur der Atome und Ionen verdankt man größtenteils spektroskopischen Untersuchungen. Absorptions- und Emissionsspektren geben dabei Aufschluss über die elektronische Struktur der Atome und tragen viel zum Verständnis ihrer Eigenschaften bei. Grundlage von Prozessen wie die Photoabsorption und -Emission ist die Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und Materie. Deren klassische Formulierung mittels der Elektrodynamik kann viele makroskopische Phänomene ausreichend gut erklären. Allerdings ist eine exakte Beschreibung der Wechselwirkung von Strahlungsfeldern mit der Materie im Allgemeinen nicht ohne die Berücksichtigung der relativistischen Quantenmechanik bzw. der QED möglich. Um die spontane Emission von Strahlung – die Anlass zur Formulierung einer mittleren Lebensdauer gibt – durch ein angeregtes Atom bzw. Ion oder auch die Absorption einzelner Photonen ohne phänomenologische Ansätze beschreiben zu können, muss zusätzlich zur quantisierten Beschreibung des Atoms auch das elektromagnetische Feld quantisiert, also mittels Photonen, behandelt werden.

Symmetriebetrachtungen an den bei einem elektromagnetischen Übergang beteiligten Zuständen führen zu gewissen Auswahlregeln, die wiederum unterschiedlich große Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen zwei Niveaus bedingen und das Auftreten von langlebigen (metastabilen) angeregten Zuständen zur Folge haben können.

Die theoretische Berechnung von Übergangsraten erfordert aufgrund der unter Anderem durch die in der hier vorliegende Arbeit mittlerweile experimentell erreichten Präzision die Einbeziehung quantenelektrodynamischer Effekte in die Übergangsamplitude. Diese Effekte blieben bisher weitgehend unberücksichtigt, da sie wesentlich kleiner als die Fehlerbalken der bis dato genauesten Messungen waren.

Es soll im folgenden Abschnitt die Wechselwirkung eines Atoms mit einem quantisierten Strahlungsfeld beschrieben und im Zuge dessen die Übergangswahrscheinlichkeit für elektromagnetische Übergänge abgeleitet werden. Des Weiteren wird der magnetische Dipolübergang ($M1$) erläutert und der Einfluss des anomalen magnetischen Moments des Elektrons auf die Lebensdauer eines metastabilen Zustands, der durch einen $M1$ -Übergang zerfällt, beschrieben.

1.4.1 Emission und Absorption von Photonen

Ein beliebiges quellfreies elektromagnetisches Feld kann durch das Vektorpotential $\mathbf{A}(\mathbf{x}, t)$ repräsentiert und als Superposition monochromatischer ebener Wellen geschrieben werden. Gemäß der relativistischen Quantentheorie wird dieses Strahlungsfeld als quantisiertes Feld behandelt. Dies erreicht man, indem man die in der Entwicklung des klassischen Feldes enthaltenen Fourierkomponenten durch die entsprechenden Erzeugungs-, und Vernichtungsoperatoren ersetzt und auf diese Weise den Feldoperator des elektromagnetischen Feldes erhält (zweite Quantisierung) [19]:

$$\mathcal{A}(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\alpha} c \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega}} \left[a_{\mathbf{k},\alpha}(0) \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}-\omega t)} + a_{\mathbf{k},\alpha}^{\dagger}(0) \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}-\omega t)} \right]. \quad (1.27)$$

Hierbei ist V das Normalisierungsvolumen, und \mathbf{k} der Wellenvektor, der die Propagationsrichtung der elektromagnetischen Welle angibt und senkrecht auf dem Polarisationsvektor $\boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)}$ steht ($\mathbf{k} \perp \boldsymbol{\epsilon}$). Die Summation erfolgt über alle Wellenvektoren und Polarisationsfreiheitsgrade. Im Falle von linearer Polarisation nimmt α die Werte $\alpha = 1, 2$ an. Der Operator $a_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger$ erzeugt bei Anwendung auf einen allgemeinen Photonenzustand $|n_{\mathbf{k}}\rangle$ ein Photon im Zustand (\mathbf{k}, α) , während $a_{\mathbf{k},\alpha}$ entsprechend ein Photon vernichtet.

Die Wechselwirkung zwischen einem Elektron und einem externen quellfreien elektromagnetischen Feld wird im Rahmen der relativistischen Quantentheorie durch den Hamiltonoperator

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{int} &= -ec \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathcal{A}(\mathbf{x}, t) \\ &= -ec \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega V}} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\alpha} \left[a_{\mathbf{k},\alpha}(0) \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}-\omega t)} + a_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger(0) \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}-\omega t)} \right] \\ &= \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\alpha} \left[h_I(\mathbf{x}) a_{\mathbf{k},\alpha}(0) e^{i\omega t} + h_I^\dagger(\mathbf{x}) a_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger(0) e^{-i\omega t} \right], \end{aligned} \quad (1.28)$$

dargestellt, wobei die Operatoren $h_I(\mathbf{x})$ nach der Vorschrift

$$h_I(\mathbf{x}) = -ec \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega V}} \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}} \quad (1.29)$$

definiert werden, und $\boldsymbol{\alpha}$ die Dirac-Matrix aus Gleichung (1.5) ist. Fasst man die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Feld als Störung auf, so dass der Gesamt-Hamiltonian durch

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_D + \mathcal{H}_{int} \quad \text{mit} \quad \mathcal{H}_D |\Psi\rangle = E |\Psi\rangle \quad (1.30)$$

gegeben ist, wobei der Dirac-Spinor $|\Psi\rangle$ ein Eigenzustand des ungestörten Dirac-Hamiltonians \mathcal{H}_D mit dem Energieeigenwert E darstellt, so lässt sich mit Hilfe der Dirac'schen zeitabhängigen Störungstheorie die Übergangsamplitude S_{fi} für einen Übergang eines Anfangszustands $|\Phi_i\rangle$ in einen Endzustand $|\Phi_f\rangle$ angeben. In erster Ordnung ergibt sich

$$\mathcal{S}_{fi}^{(1)} = \langle \Phi_f | \mathcal{S}^{(1)} | \Phi_i \rangle = -\frac{i}{\hbar} \int dt \langle \Phi_f^\dagger | e^{i\mathcal{H}t/\hbar} \mathcal{H}_{int} e^{-i\mathcal{H}t/\hbar} | \Phi_i \rangle. \quad (1.31)$$

Der Zustandsvektor $|\Phi\rangle$ entspricht einem Eigenvektor des Gesamthamiltonoperators \mathcal{H} und ist über das Produkt

$$|\Phi_{\mathbf{k}}\rangle = |\Psi_{\mathbf{k}}\rangle |n_{\mathbf{k}}\rangle \quad (1.32)$$

des atomaren Zustands $|\Psi_{\mathbf{k}}\rangle$ und des Photonenzustands $|n_{\mathbf{k}}\rangle$ definiert. Der Erzeugungsoperator $a_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger$ in Gleichung (1.28) führt bei Anwendung von \mathcal{H}_{int} auf einen Anfangszustand $|\Psi_i\rangle$ mit n_i Photonen zu einem Übergang in einen Zustand mit $n_i + 1$ Photonen (Emission), während der Vernichtungsoperator $a_{\mathbf{k},\alpha}$ die Anzahl der Photonen auf $n_i - 1$ reduziert (Absorption).

Die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für einen Übergang eines Zustands Ψ_i in einen Zustand Ψ_f

1.4. Elektromagnetische Übergänge

ist durch das Quadrat der Übergangsamplitude S_{if} gegeben. Unter Berücksichtigung der Energiebedingung $E_f - E_i = \hbar\omega$ ergibt sich Falle der spontanen Emission eines Photons in den Raumwinkel $d\Omega$

$$\mathcal{W}_{d\Omega} = \frac{e^2\omega}{2\pi\hbar c} \underbrace{\left| \langle \Psi_f | \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}} | \Psi_i \rangle \right|^2}_{T_{fi}^2} d\Omega. \quad (1.33)$$

Die relativistischen Wellenfunktionen Ψ_f bzw. Ψ_i sind nach Gleichung (1.30) Lösungen der Dirac-Gleichung. Entwickelt man in der Übergangsamplitude

$$T_{fi} = \int d^3x \Psi_f^\dagger(\mathbf{x}) \boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}} \Psi_i(\mathbf{x}) \quad (1.34)$$

den exponentiellen Term

$$e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{x}} = 1 + (i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}) + \frac{1}{2!} (i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x})^2 + \frac{1}{3!} (i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x})^3 + \dots, \quad (1.35)$$

so kann durch Vernachlässigung von Termen höherer Ordnung der Wechselwirkungsoperator des elektromagnetischen Feldes vereinfacht werden. Da bei atomaren Übergängen im optischen Bereich die Wellenlänge $\lambda = 2\pi/|\mathbf{k}|$ typischerweise sehr viel größer als die räumliche Ausdehnung \mathbf{x} des Atoms ist, kann das elektromagnetische Feld im Bereich des Atoms als konstant angenommen werden. Daher lässt sich der exponentielle Faktor in Gleichung (1.35) durch $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}) = 1$ ersetzen. Diese Näherung wird *elektrische Dipolnäherung* genannt. Übergänge dieser Art werden dementsprechend als elektrische Dipolübergänge ($E1$) bezeichnet. Berücksichtigt man Terme höherer Ordnung, so erhält man neben dem magnetischen Dipolübergang ($M1$) auch die zur Übergangsamplitude beitragenden Multipolterme, wie z.B. der elektrische bzw. magnetische Quadrupolübergang ($E2$ bzw. $M2$), und so weiter.

In einer nichtrelativistischen Näherung zur Dipolnäherung, bei der sich die Ersetzungen

$$\boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} \longrightarrow \frac{\mathbf{p} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)}}{mc} \quad \text{und} \quad \mathbf{p} \longrightarrow im\mathbf{x} \quad (1.36)$$

vornehmen lassen, wobei \mathbf{p} der Impuls des Elektrons ist, erhält man ausgehend von Gleichung (1.33) und Integration über den Raumwinkel $d\Omega$ und die Polarisationsrichtungen im Falle elektrischer Dipolstrahlung ($E1$) die bekannte kubische Abhängigkeit der Übergangswahrscheinlichkeit von der Frequenz ω

$$\mathcal{W}_{if}^{E1} = \frac{4\omega^3}{3\hbar c^3} |\langle \Psi_f | \mathcal{D} | \Psi_i \rangle|^2, \quad (1.37)$$

mit dem Übergangsmatrixelement $\langle \Psi_f | \mathcal{D} | \Psi_i \rangle$ und dem Dipoloperator $\mathcal{D} = -e\mathbf{x}$.

Es zeigt sich also, dass die Übergangswahrscheinlichkeit im Wesentlichen durch zwei Faktoren bestimmt ist. Sie hängt zum Einen vom Überlappintegral der beiden beteiligten Wellenfunktionen und zum Anderen von der Energiedifferenz $E_i - E_f = \hbar\omega$ des Anfangs- und Endzustands ab.

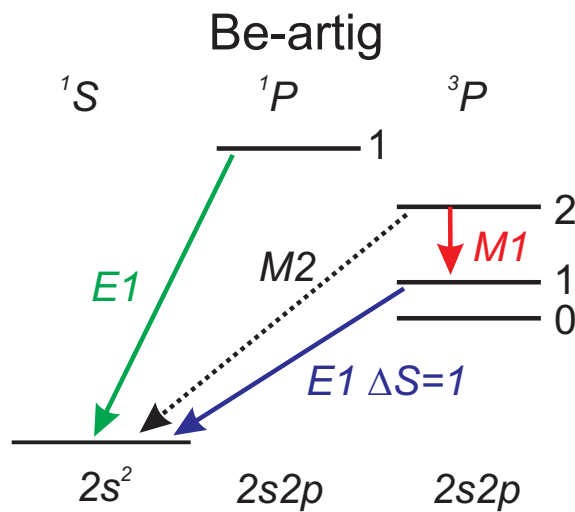


Abbildung 1.4: Vereinfachtes Termschema eines Ions mit vier Elektronen (Be-artig). Eingezeichnet sind der elektrische Dipolübergang ($E1$), der Interkombinationsübergang ($E1, \Delta S = 1$), sowie zwei Übergänge höherer Multipolordnung ($M1, M2$).

Basierend auf der Art des Übergangs ($E1, M1, E2, \dots$) zwischen zwei Zuständen kommen zudem verschiedene Auswahlregeln zum Tragen, die sich auf die Übergangsraten auswirken und die von den Quantenzahlen des Anfangs- und Endzustands abhängen. Aus Symmetriebetrachtungen der beitragenden Zustände ergibt sich, dass der wahrscheinlichste Übergang – d.h. der Übergang mit der höchsten Rate – der elektrische Dipolübergang ($E1$) ist, der zwei Zustände unterschiedlicher Parität P miteinander verbindet (vgl. Abb. 1.4). Übergänge, die den Auswahlregeln eines $E1$ -Übergangs genügen, werden als *erlaubte* Übergänge bezeichnet. Ist ein elektrischer Dipolübergang aufgrund der Auswahlregeln nicht möglich, so kann aufgrund der höheren Multipolmomente aus Gleichung (1.33) der angeregte Zustand über elektrisch Dipol-verbotene Übergänge zerfallen. Hierzu gehören z.B. der bereits oben angesprochene magnetische Dipolübergang ($M1$) oder auch der elektrische Quadrupolübergang ($E2$). Da die Wahrscheinlichkeit – und damit auch die Rate – mit der $E1$ -verbotene Übergänge stattfinden, geringer ist als die eines $E1$ -Übergangs, wird der angeregte Zustand als metastabil bezeichnet. Tabelle 1.4.1 fasst die wichtigsten Auswahlregeln für $E1, M1$ und $E2$ Übergänge zusammen.

Obwohl die Übergangswahrscheinlichkeiten für verbotene Übergänge sehr klein sein können, machen sich diese Prozesse verstärkt in hochgeladenen Ionen bemerkbar, da die Übergangswahrscheinlichkeit für $M1$ -, $E2$ -, ..., Übergängen von der Kernladungszahl Z des Ions abhängt. So skaliert z.B. die Übergangswahrscheinlichkeit eines $M1$ -Übergangs in H-artigem Ionen, deren Niveaueaufspaltung hauptsächlich durch die Spin-Bahn-Kopplung vermittelt wird, mit Z^{10} . Entsprechend können die Übergangsraten verbotener Übergänge in hochgeladenen Ionen sehr groß sein. In Abb. 1.5 sind die Übergangswahrscheinlichkeiten für $E1$ - und $M1$ -Übergänge entlang der H-artigen isoelektronischen Sequenz gegen die Kernladungszahl Z des jeweiligen Ions aufgetragen. Wie in dem Doppel-logarithmischen Schaubild zu erkennen ist, ist die Übergangswahr-

1.4. Elektromagnetische Übergänge

Übergang	Elektrisch Dipol (E1) „erlaubt“	Magnetischer Dipol (M1) „verboten“	Elektrischer Quadrupol (M2) „verboten“
Strenge Regeln	$\Delta J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0)	$\Delta J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0)	$\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2$ (0 ↔ 0) (1/2 ↔ 1/2) (0 ↔ 1)
	$\Delta M_J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0 wenn $\Delta J = 0$)	$\Delta M_J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0 wenn $\Delta J = 0$)	$\Delta M_J = 0, \pm 1, \pm 2$
	$\Delta P = 1$	$\Delta P = 0$	$\Delta P = 0$
Bei LS-Kopplung	$\Delta S = 0$	$\Delta S = 0$	$\Delta S = 0$
	$\Delta L = \pm 1$ (0 ↔ 0)	$\Delta L = 0$ $\Delta J = \pm 1$	$\Delta L = 0, \pm 2$ (0 ↔ 0), (0 ↔ 1)

Tabelle 1.1: Auswahlregeln für Übergänge zwischen atomaren Zuständen.

scheinlichkeit für $E1$ -Übergänge deutlich größer als für $M1$ -Übergänge. Jedoch führt die starke Z -Abhängigkeit der $M1$ -Übergangswahrscheinlichkeit bei hohem Z zu vergleichbaren Übergangsraten, wie sie bei $E1$ -Übergängen im mittleren Z -Bereich üblich sind.

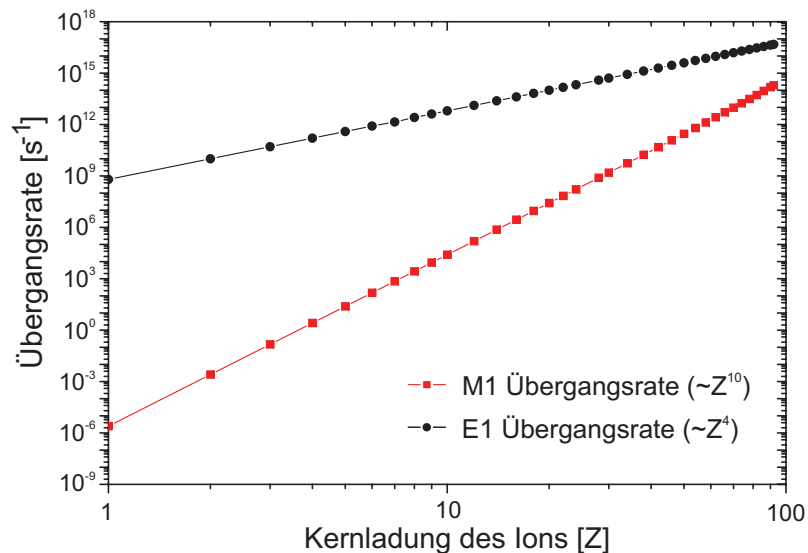


Abbildung 1.5: Berechnete Übergangswahrscheinlichkeiten der $E1\ 2^2P_{1/2}-1^2S_{1/2}$ Übergänge (schwarze Kreise) und der $M1\ 2^2S_{1/2}-1^2S_{1/2}$ Übergänge (rote Quadrate) für die isoelektronische Sequenz H-artiger Ionen aufgetragen gegen die Kernladungszahl Z der Ionen. Die Daten sind aus [85] entnommen.

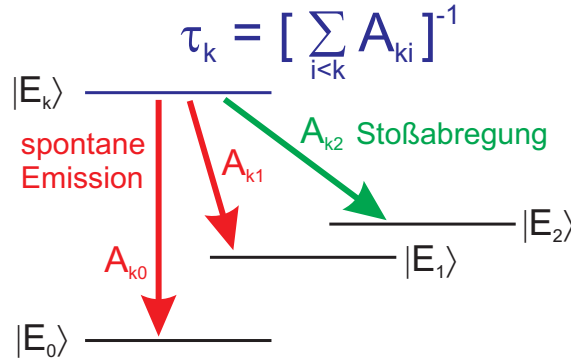


Abbildung 1.6: Verschiedene Zerfallskanäle eines angeregten Zustands. Neben der spontanen Emission (rot) tragen auch andersartige Prozesse, wie z.B. die Stoßabregung (grün), zur gesamten Übergangswahrscheinlichkeit bei. Die Lebensdauer des angeregten Zustands ergibt sich aus der reziproken Summe der Übergangswahrscheinlichkeiten der jeweiligen Kanäle.

1.4.2 Lebensdauern angeregter Zustände

Ein Atom oder Molekül, welches sich aufgrund der Absorption eines Photons oder auch nach einem Elektronenstoß in einem angeregten Energiezustand E_k befindet und zudem nicht dem Einfluss externer Felder, Strahlung oder Kollisionen unterworfen ist, kann unter spontaner Emission eines Photons in einen energetisch tiefer gelegenen Zustand E_i übergehen. Die spontane Emissionswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit ist gegeben durch

$$\mathcal{W}_{ki}^{spo} = A_{ki}, \quad (1.38)$$

mit A_{ki} dem Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission. Für die zeitliche Abnahme der Besetzungsdichte dN_k im Zustand E_k gilt

$$dN_k = -A_k N_k dt, \quad (1.39)$$

wobei $A_k = \sum_i A_{ki}$ die gesamte spontane Übergangswahrscheinlichkeit angibt, da der angeregte Zustand E_i über mehrere Zerfallskanäle verfügen kann (siehe Abb. 1.6). Integration mit der Anfangsbedingung $N_k(t=0) = N_{k0}$ liefert

$$N_k = N_{k0} e^{-tA_k}. \quad (1.40)$$

Die mittlere Lebensdauer ergibt sich dann definitionsgemäß zu

$$\langle t_k \rangle = \tau_k = \int_0^\infty t \mathcal{W}_k(t) dt = \int_0^\infty t A_k e^{-tA_k} dt = \frac{1}{A_k}, \quad (1.41)$$

oder

$$\tau_k = \left[\sum_{i < k} A_{ik} \right]^{-1}. \quad (1.42)$$

Der exponentielle Abfall der Population des angeregten Zustands spiegelt sich experimentell in der Abnahme des detektierten Intensitätssignals (Photonen/Sekunde)

$$I(t) = I(0) e^{-t/\tau}, \quad (1.43)$$

mit der τ Lebensdauer des angeregten Zustands und $I(0)$ der Anfangsintensität, wider.

1.4.3 Magnetische Dipolübergänge

Berücksichtigt man in Gleichung (1.33) höhere Ordnungsterme in der Entwicklung des exponentiellen Faktors $\exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{x})$, so erhält man die Beiträge der Multipolstrahlung zur Übergangsamplitude. Die höheren Multipolmomente führen unter anderem zu den oben bereits erwähnten magnetischen Dipolübergängen ($M1$ -Übergänge). Die relativistische Übergangswahrscheinlichkeit eines magnetischen Dipolübergangs ist gegeben durch [91]

$$\mathcal{W}_{if}^{M1} = \frac{4\omega^3}{3c^3} \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{m_i} \sum_{m_f} |\langle f | \mathcal{M} | i \rangle|^2, \quad (1.44)$$

wobei hier bereits die Summation über die Photonenpolarisation $\epsilon^{(\alpha)}$ und die Integration über den Raumwinkel $d\Omega$ erfolgte. Der Anfangszustand $|i\rangle$ ist über den Gesamtdrehimpuls J_i , der Projektion m_i auf die z-Achse, und der Energie E_i charakterisiert. Entsprechend kennzeichnen die Quantenzahlen J_f , m_f und E_f den Endzustand $|f\rangle$. Der Term $2J_i + 1$ gibt die Multiplizität des Anfangszustandes wieder. Die Summation erfolgt über alle magnetischen Unterzustände von $|i\rangle$ und $|f\rangle$. Der Dipoloperator \mathcal{M} für magnetische Dipolstrahlung kann durch das Vektorprodukt

$$\mathcal{M} = \frac{1}{\sqrt{2}} j_1(\omega r/c) \frac{[\mathbf{r} \times \boldsymbol{\alpha}]}{r} = \frac{\sqrt{2}}{r} j_1(\omega r/c) \boldsymbol{\mu} \quad (1.45)$$

ausgedrückt werden, wobei $j_1(\omega r/c)$ die sphärische Besselfunktion erster Ordnung darstellt, ω die Frequenz des emittierten Photons ist, und $\boldsymbol{\mu} = -e[\mathbf{r} \times \boldsymbol{\alpha}]/2$ der relativistische Operator des magnetischen Moments des Elektrons bezeichnet. Im nichtrelativistischen Limit ist dieser Operator gegeben durch

$$\boldsymbol{\mu}_{nr} = -\mu_B(\mathcal{L} + g_e \mathcal{S}), \quad (1.46)$$

mit dem Bahndrehimpulsoperator \mathcal{L} , dem Spinoperator \mathcal{S} , dem Landé-Faktor g_e des freien Elektrons und dem Bohr'schen Magneton $\mu_B = e\hbar/(2mc)$. Der Zusammenhang zwischen dem nichtrelativistischen $M1$ -Übergangoperator \mathcal{M}_{nr} und dem Operator $\boldsymbol{\mu}_{nr}$ des magnetischen Moments ergibt sich zu

$$\mathcal{M}_{nr} = \frac{\sqrt{2}}{3} \frac{\omega}{c} \boldsymbol{\mu}_{nr}. \quad (1.47)$$

Mit Hilfe des Wigner-Eckart Theorems [92] lässt sich die Übergangswahrscheinlichkeit in Form des reduzierten Matrixelements $\langle f || \mathcal{M} || i \rangle$, das nicht von den Magnetquantenzahlen m_i und m_f abhängt, schreiben als

$$\mathcal{W}_{if}^{M1} = \frac{4\omega^3}{3c^3} \frac{1}{2J_i + 1} |\langle f || \mathcal{M} || i \rangle|^2. \quad (1.48)$$

Im Rahmen der LS -Kopplung, die im nichtrelativistischen Fall erfüllt ist, kann also das reduzierte Matrixelement in Abhängigkeit des Bahndrehimpulsoperators \mathcal{L} , des Spinoperators \mathcal{S} und des Landé-Faktors g_e ausgedrückt werden:

$$\langle f \| \mathcal{M}_{\text{nr}} \| i \rangle = \frac{\sqrt{2}}{3} \frac{\omega}{c} \mu_B \langle f \| \mathcal{L} + g_e \mathcal{S} \| i \rangle, \quad (1.49)$$

wobei die Übergangswahrscheinlichkeit nur für Feinstrukturübergänge mit $\Delta J = \pm 1$ ungleich Null ist [93]. Unter der Annahme, dass der Landé-Faktor des Elektrons $g_e = 2$ ist, kann die Übergangswahrscheinlichkeit $\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}}$ für $M1$ -Übergänge zwischen Zuständen eines gegebenen LS -Terms durch Verwendung der so genannten Racah-Algebra [94] berechnet werden. Es zeigt sich, dass unter Berücksichtigung von $J_f = J_i - 1$ die nichtrelativistische Übergangswahrscheinlichkeit $\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}}$ allein durch die Übergangsfrequenz ω und die Quantenzahlen des Drehimpulses L , des Spins S sowie des Gesamtdrehimpulses J , bestimmt ist:

$$\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}} = \frac{4\omega^3}{3c^3} \frac{1}{2J_i + 1} \frac{\mu_B^2}{4J_i} (L + S + J_i + 1)(L + S - J_i + 1) \times (J_i + S - L)(J_i + L - S). \quad (1.50)$$

$\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}}$ kann mit der dimensionslosen Linienstärke S_{if}^{nr} , die für $M1$ -Übergänge durch

$$\begin{aligned} S_{if}^{\text{nr}} &= \mu_B |\langle f \| \mathcal{L} + g_e \mathcal{S} \| i \rangle|^2 \\ &= \frac{\mu_B^2}{4J_i} (L + S + J_i + 1)(L + S - J_i + 1) \\ &\quad \times (J_i + S - L)(J_i + L - S) \end{aligned} \quad (1.51)$$

definiert ist, in Verbindung gebracht werden. Man erhält den vereinfachten Ausdruck

$$\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}} = \frac{4\omega^3}{3c^3} \frac{1}{2J_i + 1} S_{if} = \frac{32}{3} \frac{\pi^3}{c^3 \lambda^3} \frac{1}{2J_i + 1} S_{if}. \quad (1.52)$$

Aus Gleichung (1.51) ist nach Einsetzen der entsprechenden Quantenzahlen ersichtlich, dass im nichtrelativistischen Limit die Linienstärke für Feinstrukturübergänge der Art ${}^2P_{3/2}^o - {}^2P_{1/2}^o$ gleich der konstanten Zahl $(4/3)\mu_B^2$ sein sollte. Insbesondere erhält man für den ${}^2P_{3/2}^o - {}^2P_{1/2}^o$ Übergang

$$\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}} = \frac{4\omega^3}{9c^3} \mu_B^2 = \frac{1}{3} \frac{\pi^3}{c^3 \lambda^3} \frac{1}{2J_i + 1} S_{if}. \quad (1.53)$$

1.4.4 Das anomale magnetische Moment des Elektrons

Das intrinsische magnetische Moment μ_s des Elektrons ist über das gyromagnetische Verhältnis g_e mit dem Elektronenspin s verknüpft:

$$\boldsymbol{\mu} = g_e \mu_B \frac{\mathbf{s}}{\hbar}, \quad (1.54)$$

mit $\mu_B = e\hbar/2m_e$ dem Bohrschen Magneton. Der Proportionalitätsfaktor g_e wird auch als Landé-Faktor bzw. g -Faktor bezeichnet. Er gibt allgemein das Verhältnis zwischen dem magnetischen

1.4. Elektromagnetische Übergänge

Dipolmoment und dem Bahndrehimpuls eines Teilchens an. Wie in Abschnitt 1.1.1 gezeigt, sagt die Dirac-Theorie für das magnetische Moment des freien Elektrons mit Spin 1/2 einen g -Faktor von $g_e = 2$ voraus. Jedoch ergaben von P. Kusch und H.M. Foley im Jahre 1948 durchgeführte experimentelle Untersuchungen des gyromagnetischen Verhältnisses des Elektrons eine kleine Abweichung vom Dirac-Wert [95]. Diese Messungen veranlassten J. Schwinger zu einer quantenelektrodynamischen Betrachtung des magnetischen Moments des Elektrons, wobei sich herausstellte, dass die Abweichung durch Berücksichtigung von QED-Strahlungskorrekturen erklärt werden kann [96]. Diese experimentellen und theoretischen Arbeiten sowie die Entdeckung der Lamb-Verschiebung in atomarem Wasserstoff waren Meilensteine in der Entwicklung der QED.

Die Abweichung des von Dirac vorhergesagten Wertes $g_e = 2$ aufgrund von QED-Korrekturen wird allgemein durch die Größe

$$a_e = \frac{g_e - 2}{2} \quad (1.55)$$

dargestellt und als anomales magnetisches Moment des Elektrons (*Electron Anomalous Magnetic Moment*, EAMM) bezeichnet. In Abbildung 1.7 B ist das Feynman-Diagramm der in erster

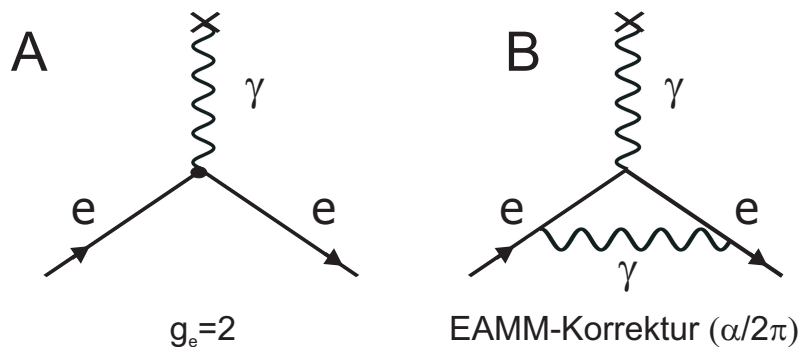


Abbildung 1.7: Feynman-Diagramme zum anomalen elektromagnetischen Moment des Elektrons. (A) stellt die Vorhersage der Dirac-Theorie dar, während (B) die QED-Korrektur erster Ordnung illustriert.

Ordnung zum EAMM beitragenden QED-Korrektur, die durch Schwinger berechnet wurde, aufgezeigt. Sie hat den Wert $a_e = \alpha/2\pi \approx 0.001161$, mit α der Feinstrukturkonstanten, und stimmt hervorragend mit dem experimentellen Wert von Kusch und Foley überein. Heute gilt der g -Faktor des freien Elektrons als eine der genauest bekannten Größen in der Physik. So bestimmten Dehmelt *et. al.* [97] den g -Faktor eines in einer Penningfalle eingeschlossenen Elektrons mit einer Genauigkeit von ungefähr 4×10^{-12} . Die exzellente Übereinstimmung moderner QED-Rechnungen [98] mit dem experimentellen Wert festigte die Rolle der QED als die zur Zeit genaueste physikalische Theorie überhaupt.

Um diesen hohen Grad an Genauigkeit in der Theorie zu erlangen, müssen selbstverständlich höhere Ordnungsterme der QED bei der Berechnung des EAMM berücksichtigt werden. Diese

können durch Einführung des EAMM-Faktors κ_e mit einbezogen werden, so dass sich der g -Faktor schreiben lässt als [91]

$$g_e = 2(1 + \kappa_e), \quad (1.56)$$

wobei κ_e gegeben ist durch

$$\kappa_e = \left[\frac{\alpha}{2\pi} - 0.328487965 \dots \left(\frac{\alpha}{\pi} \right)^2 + \right]. \quad (1.57)$$

Prinzipiell können QED-Effekte die Linienstärke und damit die Übergangsrate eines elektronischen Übergangs modifizieren. In Bezug auf die hier in dieser Arbeit experimentell untersuchten $M1$ -Übergänge können die QED-Korrekturen niedrigster Ordnung zur theoretischen $M1$ -Übergangsamplitude berücksichtigt werden, indem der nichtrelativistische Operator des atomaren magnetischen Moments $\boldsymbol{\mu}_{\text{nr}}$ auf das anomale magnetische Moment des freien Elektrons korrigiert wird, so dass gilt:

$$\boldsymbol{\mu}_{\text{nr}} = -\mu_B[\boldsymbol{\mathcal{L}} + 2\boldsymbol{\mathcal{S}}] \longrightarrow \boldsymbol{\mu}_a = -\mu_B[\boldsymbol{\mathcal{L}} + 2(1 + \kappa_e)\boldsymbol{\mathcal{S}}]. \quad (1.58)$$

Somit ergibt sich für Feinstrukturübergänge mit $\Delta J = \pm 1$ die korrigierte Übergangsrate [91]

$$\mathcal{W}_{if}^{\text{QED}} = \frac{32}{3} \frac{\pi^3}{c^3 \lambda^3} (1 + 4\kappa_e) \frac{1}{2J_i + 1} S_{if}. \quad (1.59)$$

Wie leicht zu überprüfen ist, trägt der Korrekturfaktor $4\kappa_e$ [$\kappa_e \cong \alpha/(2\pi)$] ungefähr 0.45% zur Übergangswahrscheinlichkeit bei. Liegt die erzielte experimentelle Genauigkeit bei Messungen von Lebensdauern respektive Übergangswahrscheinlichkeiten unterhalb von 0.5%, so muss zur Überprüfung der verschiedenen theoretischen Modelle und Ansätze das EAMM in die Berechnungen miteinbezogen werden, bzw. die Ergebnisse auf das EAMM korrigiert werden.

Kapitel 2

Experiment

2.1 Messmethoden zur Bestimmung von Lebensdauern

Lebensdauern atomarer Zustände werden schon seit mehreren Jahrzehnten experimentell bestimmt. Dabei entwickelten sich eine Reihe verschiedener Techniken, die es erlauben, Lebensdauern über einen viele Größenordnungen umfassenden Bereich (10^{-12} Sekunden bis hin zu einigen Sekunden) zu messen. Die Methoden lassen sich im Wesentlichen in zwei Klassen aufteilen, die auch die zeitliche Entwicklung widerspiegeln: (a) Klassische Methoden, wie die zeitaufgelöste Beam-Foil Spektroskopie, als auch die Verwendung von Schwerionen-Speicherringen und Ionenfallen, die speziell den Zugang zur Messung metastabiler Niveaus ermöglichen, und (b) laserbasierte Methoden, wie z.B. die *Fast Ion Beam Laser Spectroscopy* (FIBLAS). Im Folgenden soll ein Überblick über die verschiedenen Techniken gegeben, ihre Vor-, und Nachteile diskutiert, und die Methoden bezüglich ihres Zugangsbereichs eingeordnet werden.

2.1.1 Klassische Methoden

Zeitaufgelöste Beam-Foil-Spektroskopie

Viele Jahre hindurch bot die so genannte Beam-Foil Spektroskopie (BFS) die einzige Möglichkeit, präzise Lebensdauern hochgeladener Ionen zu messen. Sie wurde Anfang der 60ziger Jahre von Kay [99] und Bashkin [100] vorgeschlagen. Bei dieser Technik wird ein wohlkollimierter hochenergetischer Ionenstrahl durch eine dünne Folie geschickt, welche durch Stoßionisation und Stoßanregung mit den Ionen wechselwirkt. Dies führt dazu, dass die Ionen die Folie in verschiedenen angeregten Niveaus und Ladungszuständen verlassen. Die angeregten Elektronen gehen nach einer für das entsprechende Niveau typischen Lebensdauer unter Aussendung von Photonen in den Grundzustand über, während die Ionen sich mit konstanter Geschwindigkeit weiterbewegen. Die emittierte Strahlung kann als Funktion des Abstands zur Folie aufgenommen werden, was bei bekannter Geschwindigkeit der Ionen als Zeit seit der Anregung durch die Folie übersetzt werden kann. Die Lebensdauer wird also aus der räumlich aufgelösten Strahlung des Zerfalls angeregerter

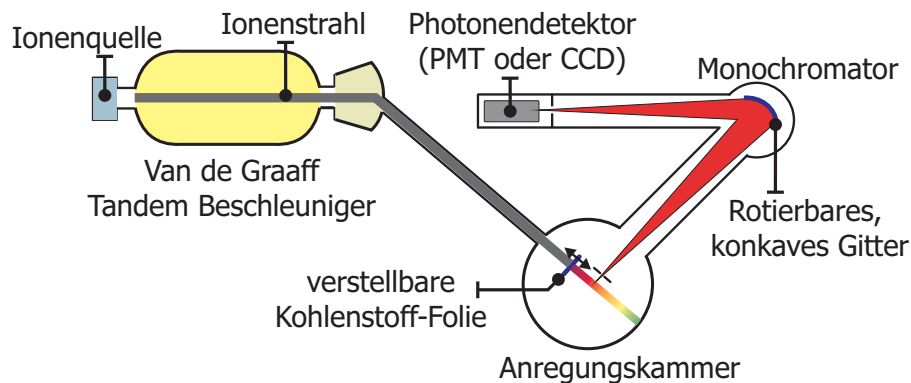


Abbildung 2.1: Typischer experimenteller Aufbau zur Beam-Foil Spektroskopie (BFS).

Zustände ermittelt. Eine typische experimentelle Anordnung zur Beam-Foil-Spektroskopie ist in Abb. 2.1 gezeigt. Der experimentelle Aufbau besteht im Wesentlichen aus einer Ionenquelle, einem Beschleuniger, der Anregungsfolie, einem System zur Detektion der emittierten Strahlung und einem Ionenstrahl-Monitor. Zur Erzeugung der Ionen stehen verschiedene Ionenquellen zur Verfügung. Einfach geladene Ionen können mit Hilfe von z.B. Radiofrequenzquellen oder auch Hohlkathodenentladungen hergestellt werden. Die Ionen werden daraufhin mit Hilfe eines Beschleunigers und oft auch durch „Strippen“ der Elektronen in Folien oder im Gas weiterionisiert und auf verschieden hohe Energien (100 keV bis 10 MeV) gebracht werden. Der große auswählbare Energiebereich erlaubt die Untersuchung von Lebensdauern zwischen 1 ps und 100 ns. Des Weiteren können im Prinzip jegliche Ladungszustände erzeugt werden. Nach Separation der gewünschten Ladung mittels eines Magneten wird der Ionenstrahl zur Wechselwirkungskammer geleitet, in der die Folie zur Anregung der Ionen installiert ist. Als Folien werden im Allgemeinen sehr dünne (5–50 nm) Kohlenstofffolien verwendet, die aufgrund ihrer kleinen Kernladungszahl ($Z=6$) sowohl den Energieverlust der einfallenden Ionen als auch die Rutherford Streuung klein halten. Die bei der Abregung emittierte Strahlung wird üblicherweise mit einem Monochromator spektral selektiert und die Photonen werden mit Hilfe eines Photonenzählers oder eines Channeltron-Detektors registriert. In einem typischen Beam-Foil-Lebensdauer Experiment wird das Detektorsystem festgehalten, während die Folie unter gleichzeitiger Beobachtung der Fluoreszenz schrittweise entlang der Ionenstrahlachse verfahren wird.

Nachteil der Methode ist, dass die Anregungen des Ions beim Durchgang der Folie nicht selektiv stattfinden, d.h. es werden sehr viele Niveaus von Elektronen bevölkert, die dann je nach Übergang über Kaskaden zu unterschiedlichen Zeiten zerfallen und zu einer Wiederbevölkerung des zu vermessenden Zustands führen kann, was wiederum die gemessene Lebensdauer auf künstliche Weise verlängern würde. Es werden also aufgrund der Kaskadenbevölkerung im Allgemeinen multiexponentielle Zerfallskurven beobachtet, deren Analyse oft schwierig ist und dadurch die erreichbare Präzision begrenzen. Neben des Kaskadenzerfalls, der den größten systematischen Störeffekt darstellt, müssen bei Beam-Foil Messungen auch Effekte, die durch die kurze Anregungszeit der Ionen durch die Folie ($\cong 10$ fs) auftreten, berücksichtigt werden. So können z.B. Quanten-Beat-Signale entstehen, die durch die wohldefinierte, mit fester relativer Phase stattfin-

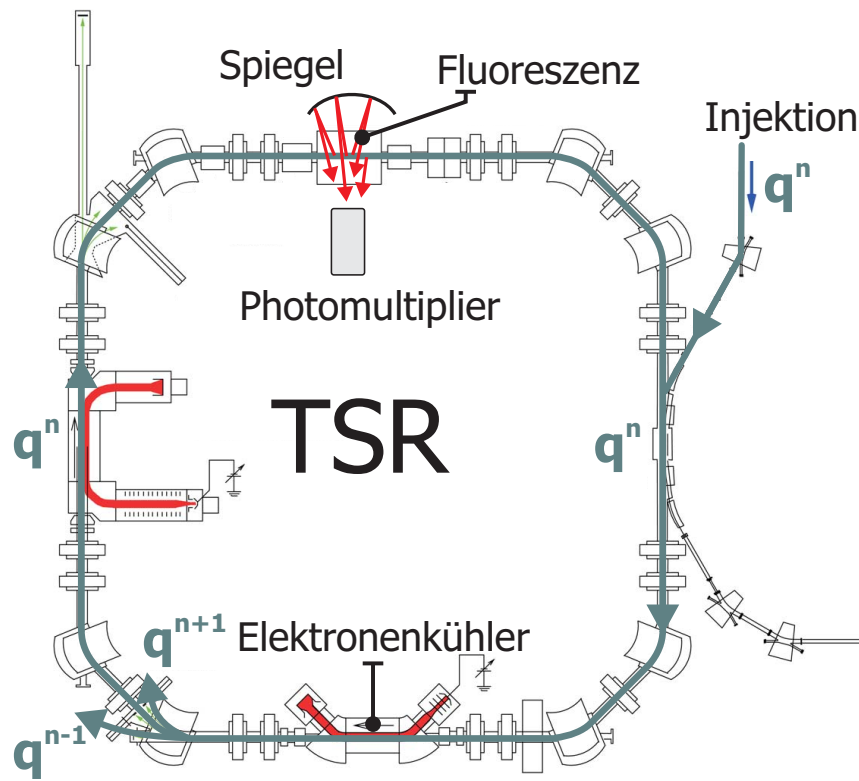


Abbildung 2.2: Aufbau und Prinzip der Lebensdauermessungen am Schwerionen-Testspeicherring TSR des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg. Bereits angeregte Ionen des gewünschten Ladungszustands werden in den Ring injiziert, elektronengekühlt, und das Zerfallssignal über einen am Ring installierten Detektor aufgenommen. Neben dieser direkten Methode lassen sich Lebensdauern auch durch Beobachtung von z.B. resonanten Prozessen wie der dielektronischen Rekombination messen.

dende, Anregung von magnetischen und Hyperfeinstruktur-niveaus verursacht werden (Zeeman bzw. *hyperfine quanten beats*) [101]. Die Unsicherheit für Lebensdauern im Bereich von 0.1-100 ns beträgt bei Beam-Foil Messungen typischerweise 10% [102].

Schwerionen-Speicherringe

Die Messung von Lebensdauern metastabiler Niveaus mit Hilfe eines Schwerionen-Speicherrings ist eine Erweiterung der oben beschriebenen Beam-Foil Technik. Während bei der traditionellen Beam-Foil Spektroskopie die untersuchten Niveaus Lebensdauern zwischen ps bis ns haben und ihr Zerfall im Abstand von typischerweise einigen Millimetern bis Metern hinter der Anregungsfolie beobachtet wird, würden Lebensdauern von einigen Millisekunden bis hin zu Sekunden Ionenflugstrecken von Tausenden von Kilometern erfordern. Um dies praktikabel zu machen, werden die bereits in der Ionenquelle oder nach Durchgang einer Folie angeregten Ionen ladungsselektiv getrennt und dann in einen Speicherring injiziert, den sie während des Zerfalls viele Male umrunden. Dabei passieren sie bei jedem Umlauf den Detektor (siehe Abb. 2.2). Die Anzahl der Ionen, die in den Ring injiziert werden können, ist prinzipiell phasenraumbegrenzt, die Ionendichte kann

jedoch mittels Elektronenkühlung erhöht werden [103,104]. Dabei wird dem Ionenstrahl ein kalter Elektronenstrahl überlagert, dessen Geschwindigkeit ähnlich der der Ionen ist. Die Wechselwirkung der Ionen mit den Elektronen (elastische Streuung) führt zu einer Reduzierung des Phasenraums der Ionen und erlaubt die Speicherung einer größeren Zahl von Ionen im Ring. Allerdings können gerade für niedrig geladene Ionen die Kühlzeiten in der Größenordnung von 1 s oder mehr liegen. Solche Kühlzyklen sind unter Umständen sehr viel länger als die zu untersuchenden Lebensdauern, so dass sich in derartigen Fällen durch das Kühlen des Ionenstrahls kein wirklicher Vorteil ergibt.

Die ersten Messungen atomarer Lebensdauern mit Hilfe eines Speicherrings wurden an negativen Ionen unter der Verwendung des Speicherrings ASTRID in Aarhus, Dänemark, durchgeführt. Einige dieser Ionen (z.B. He^- , Ne^- , Be^-) sind metastabil gegenüber der Auger-artigen Freisetzung des vorher zugeführten Elektrons. Die Lebensdauer dieser angeregten Zustände wird im Wesentlichen über den Abfall des Strahlstroms gemessen, da sich beim Zerfall der Ladungszustand des Ions ändert und die Teilchen nicht mehr im Ring gespeichert werden können. Ein detaillierter Überblick über die so untersuchten Systeme ist in [105] zu finden.

Im Fall von positiven Ionen (einfach oder hoch geladen) beobachtet man bei der Abregung normalerweise keine Änderung des Ladungszustands, so dass andere Methoden nötig sind, um zwischen Ionen im Grundzustand und angeregtem Zustand zu unterscheiden. Neben der Detektion laser-induzierter Fluoreszenz (siehe 2.1.2), bietet die Ausnutzung resonanter Prozesse, wie z.B. der *dielektronischen Rekombination* (DR), die Möglichkeit, Lebensdauerkurven metastabiler Ionen aufzunehmen. So wurde als eine der ersten Lebensdauermessungen am Schwerionen-Speicherring TSR in Heidelberg mit Hilfe der DR die natürliche Lebensdauer des 2^3S Zustands in heliumartigem C^{4+} zu (20.589 ± 0.045) ms bestimmt [40]. Eine weitere Methode ist die direkte Detektion der emittierten Strahlung mittels eines am Ring installierten Detektors. Sie erlaubt hochpräzise Messungen der Übergangsrate metastabiler Zustände, wie am Beispiel des $2s2p\ ^3P_0^1$ Niveaus in berilliumartigem C^{2+} gezeigt wurde [49]. Die dort erreichte Präzision von 0.2% gehört mit zu den genauesten Messungen atomarer Lebensdauern.

Der Vorteil eines Speicherrings liegt in der räumlich getrennten Produktion der Ionen und deren Ladungszustand, und dem Speichern der Ionen als auch Detektieren des Signals. Beides kann unabhängig voneinander optimiert und so die Effizienz und damit die Präzision der Messungen gesteigert werden. Das oben erwähnte Problem der Kaskadenbevölkerung wird für langlebige Zustände dadurch reduziert, dass Messungen erst dann gestartet werden, wenn andere Niveaus schon entweder in den Grundzustand oder in das metastabile Niveau zerfallen sind.

Ionenfallen

Ionenfallen sind in der Lage, Ionen in einem kleinen Volumen und über einen großen Beobachtungszeitraum zu speichern. Es existieren verschiedene Sorten von Ionenfallen, die auf unterschiedlichen Speicherprinzipien basieren. So werden zur Speicherung neben konventionellen elektrostatischen (Kingdonfalle [106]), magnetischen (Penningfalle [107]) oder elektromagnetischen Radiofrequenzfeldern (Paulfalle [108]) auch die Kombination von elektrischen und magnetischen Feldern genutzt (Elektronenstrahl-Ionenfalle, *Electron Beam Ion Trap* – EBIT). Der Vorteil von

2.1. Messmethoden zur Bestimmung von Lebensdauern

Ionenfallen ist das stationäre Speichern der Ionen. Dadurch ergeben sich neue Möglichkeiten zur Kühlung und Manipulation der Ionen, die eine weitere Erhöhung der experimentellen Auflösung und Genauigkeit garantiert.

Neben der EBIT, die in der vorliegenden Arbeit zur Messung von Lebensdauern genutzt wurde und ausführlich im nächsten Kapitel behandelt wird, bietet unter Anderem die elektrostatische Kingdonfalle die Möglichkeit, hochgeladene Ionen über einen ausreichend langen Zeitraum (ca. 1 s) zu speichern und Übergänge mit Lebensdauern bis hin zu einigen Millisekunden zu untersuchen [109]. Dabei werden die hochgeladenen Ionen zunächst mit Hilfe einer Elektronenzyklotron Resonanz-Ionenquelle (*Electron Cyclotron Resonance Ion Source* – ECRIS [110, 111]) erzeugt und gleichzeitig angeregt, daraufhin durch einen Magneten ladungsselektiert und über ein Iontentransportsystem zur Ionenfalle gebracht und injiziert. Die Kingdonfalle selbst besteht hauptsächlich aus einem dünnen, auf negativem Potential liegenden Draht, der wiederum von einem Zylinder ummantelt ist, welcher in Bezug auf den Draht ein positiveres Potential besitzt. Der Zylinder ist oben und unten durch zwei Elektroden abgeschlossen, die den axialen Einschluss der Ionen gewährleisten. Ein Teil des senkrecht zur axialen Symmetrieachse injizierten Ionenstrahls wird durch plötzliches Schalten der Potentiale auf stabile Trajektorien um den negativen Draht gezwungen und somit für einige Sekunden gespeichert (siehe Abb. 2.1.1). Der während dieser Zeit

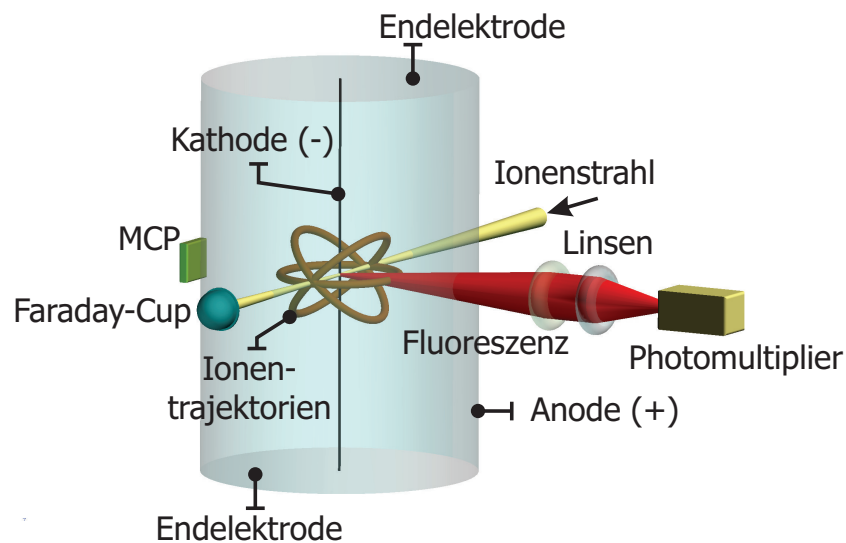


Abbildung 2.3: Schematischer Aufbau zur Lebensdauerbestimmung mittels einer Kingdonfalle. Die bereits angeregten und über den Ionenstrahl in die Falle injizierten Ionen umlaufen für eine gewisse Zeit den negativen Draht (Kathode) auf stabilen Trajektorien und senden währenddessen Fluoreszenzphotonen aus, welche über ein Linsensystem auf einen Photomultiplier (PMT) abgebildet werden. Der Ionenstrom wird mit Hilfe eines Faraday-Cups (FC) gemessen und überwacht. Ein Multichannelplate (MCP) registriert die Anzahl der, zu regelmäßigen Zeiten aus der Falle „gekickten“ Ionen, woraus sich die Ionenverlustrate in der Falle bestimmen lässt.

stattfindende optische Zerfall kann über einen PMT detektiert werden. Um die Ionenverlustrate in der Falle, welche als Korrektur bei der Analyse der Zerfallskurven einfließen muss, zu bestimmen, wird zu verschiedenen Speicherzeiten die Falle durch einen Spannungspuls entleert, so dass die

Ionen auf einen Detektor (z.B. ein *Multi-Channel-Plate* – MCP) treffen, der als Verlustmonitor agiert.

In den vergangenen Jahren wurden Messungen verschiedener metastabiler Niveaus in sowohl niedrig-, als auch hochgeladenen Ar, Mn und Fe Ionen (bis hin zu einem Ladungszustand $q = 14$) durchgeführt [55, 109, 112]. Die dabei ermittelten Lebensdauern decken einen Bereich von einigen wenigen, bis hin zu mehreren Millisekunden ab. Die erreichte Genauigkeit bewegt sich je nach untersuchtem System zwischen 1% und 15%. So bestimmten Smith *et al.* mit Hilfe einer Kingdonfalle unlängst die auch in dieser Arbeit diskutierte Lebensdauer des $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ metastabilen Niveaus in Fe XIV zu (17.0 ± 0.2) ms, und schätzten somit die relative Ungenauigkeit von 1.2% ab [113].

2.1.2 Laserbasierte Methoden

Der zweite Bereich, in den die Techniken zur Bestimmung von Lebensdauern atomarer Systeme eingeordnet werden können, ist charakterisiert durch die Verwendung von Lasersystemen. Der Nachteil der oben beschriebenen zeitaufgelösten BFS ist die nichtselektive Anregung der Energieniveaus während des Passierens der Anregungsfolie und die damit verbundenen Kaskadeneffekte, welche die Analyse der gemessenen Zerfallskurven erschweren. Diese Unzulänglichkeit kann vermieden werden, indem die Folie als Anregungsmechanismus durch ein Lasersystem ersetzt wird. Die Speicherung der Ionen in einem Speicherring oder einer Ionenfalle erlaubt des Weiteren eine Untersuchung von langlebigen Niveaus verschiedener Spezies (insbesondere hochgeladene Ionen) mittels Laseranregung. Diese Methode der Ionenanregung in Verbindung mit einem schnellen Ionenstrahl (keV Energie) wird allgemein als *Fast Ion Beam Laserspectroscopy* (FIBLAS) bezeichnet. Zudem entwickelten sich im Lauf der Jahre verschiedene Schemata zur Detektion der laserinduzierten Fluoreszenz; erwähnt sei hier z.B. die Laser-Probe Technik [114], die unten im Text eingehender beschrieben wird, oder die zeitkorrelierte Einzelphoton-Zähltechnik [115].

Die FIBLAS kombiniert die Prinzipien der BFS und der Speicherung von Ionen in einem Speicherung mit der Anregungstechnik durch Laserstrahlung. Prinzipiell gibt es zwei Ansätze, Lebensdauerermessungen mit Hilfe von Lasern durchzuführen. Neben der direkten Anregung und dem zeitaufgelösten Nachweis der Fluoreszenz des untersuchten Übergangs, besteht die Möglichkeit, mit Hilfe des Lasers ausgehend vom metastabilen Zustand einen erlaubten Übergang zu treiben, welcher im Vergleich zur Lebensdauer des metastabilen Niveaus wiederum sehr schnell zerfällt. Dessen zu verschiedenen Zeiten aufgenommene Intensität ist ein Maß für die Population des Ausgangszustands (siehe Abb. 2.4). Letztere Technik, die auch *Laser-Probe-Technik* (LPT) genannt wird, wurde in Stockholm am CRYRING entwickelt und zu umfangreichen Lebensdaueruntersuchungen metastabiler Niveaus einfach geladener Ionen genutzt. Durch systematische Variation der Verzögerung zwischen der Ioneninjektion und des Laserpulses können die atomaren Lebensdauerkurven aufgenommen werden. Einen Überblick über die Methode und der bis dato durchgeführten Messungen ist in [116] gegeben. Es zeigte sich zudem, dass eine kollineare Anregungsgeometrie der Ionen durch den Laser die erreichbare spektrale Auflösung erhöht und dadurch Linienbreiten unterhalb von 100 MHz zugänglich werden. Begründet ist die hohe spektrale Auflösung in

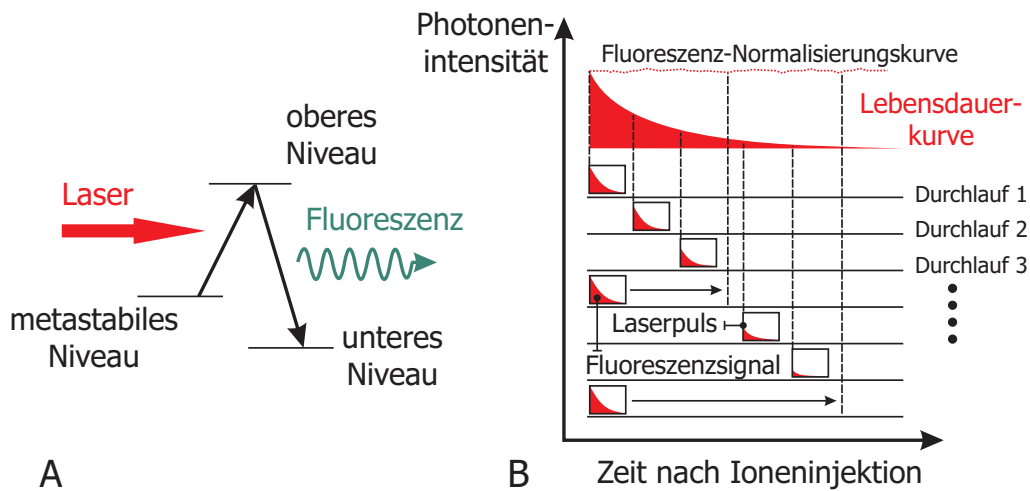


Abbildung 2.4: Darstellung der Laser-Probe Technik wie sie an CRYRING eingesetzt wird. Die Lebensdauerkurve entsteht durch schrittweise Verzögerung des Laserpulses bezüglich des Injektionspunkts und der Speicherung der Ionen. Zur Normalisierung der Intensität werden während der Messung zu festgelegten Verzögerungszeiten Normalisierungspulse verwendet (siehe Abb. B).

der Komprimierung der Geschwindigkeitsverteilung der Ionen in longitudinaler Richtung während der Beschleunigung [114]. Die mit Hilfe der LPT an metastabilen Niveaus einfach geladener Ionen durchgeführten Messungen, deren Lebensdauern sich zwischen 0.1 s und 100 s bewegen, erreichen typischerweise eine Präzision von 5 – 10% [117]. Alternativ zur LPT kann das metastabile Niveaumittel, ausgehend vom Grundzustand, auch durch optisches Pumpen angeregt werden. Dies wurde erfolgreich am $4d^2D_{3/2}$ Niveaumittel in einfach geladenem Strontium (Sr^+) durchgeführt (E2-Übergang), und ergab eine Lebensdauer von 405(4) ms mit einer relativen Unsicherheit von ca. 1% [118].

Während die gerade beschriebenen Messungen sich hauptsächlich auf die Untersuchung einfach-, bzw. niedriggeladener Systeme beschränkte, gelang es am Schwerionenspeicherring ESR der GSI in Darmstadt die laserinduzierte Fluoreszenz des M1-Hyperfeinstrukturübergangs im Grundzustand wasserstoffähnlichen Wismuts (Bi^{82+}) zu beobachten und neben der Übergangswellenlänge von $\lambda = 243.87(4)$ nm auch die Lebensdauer des oberen metastabilen Niveaumittels ($F = 5$) zu 0.351(16) ms zu bestimmen [56].

Systematische Effekte, wie z.B. die Restgas bedingte Stoßabregung (*Quenching*) des angeregten Niveaumittels aber auch Stoßanregungen können die gemessene natürliche Lebensdauer beeinflussen. Trotz des Ultrahochvakuums (ca. 10^{-11} mbar), das im Speicherring erreicht wird, ist aufgrund der hohen Geschwindigkeit der Ionen die Stoßfrequenz mit Restgasatomen hoch. Entsprechend muss dieser Effekt bei der Messung langer Lebensdauern berücksichtigt werden. In Ionenfallen sind die Ionengeschwindigkeiten wesentlich geringer, so dass Stoßeffekte dieser Art üblicherweise kleiner sind.

Wie oben bereits erwähnt, können Ionen in verschiedenen Fällen gespeichert und untersucht werden. So wurde z.B. die natürliche Lebensdauer des metastabilen $4d^2D_{5/2}$ Niveaumittels an einem ein-

zelen, in einer Paul-Falle gespeicherten und lasergekühlten, Sr^+ -Ion durch direkte Laseranregung bestimmt [119]. Die Zerfallszeit wurde mit Hilfe der sog. Dehmelt'schen Elektronenablagemethode gemessen [120] und ergab einen Wert von 390.8(1.6) ms.

Neben langlebigen Zuständen ist es auch möglich, erheblich kürzere Lebensdauern (ns) mit Hilfe ultrakurzer Laserpulse (ps) an Ionen, die in einer Paul-Falle gespeichert sind, zu vermessen. Die Nutzung von zeitkorrelierter Einzelphoton-Zähltechnik erlaubt es, die Ankunftszeit des vom Ion spontan emittierten Photons in Korrelation mit dem Laseranregungspuls aufzunehmen, und die Lebensdauer des untersuchten Niveaus aus der Aufnahme vieler solcher, zeitlich zueinander versetzter Ereignisse, zu bestimmen. Auf diese Weise wurde z.B. die natürliche Lebensdauer des $4p^2P_{1/2}$ Niveaus in Cd^+ zu 3.148(11) ns gemessen [59]. Die relative Unsicherheit der Messung ist kleiner als 0.4% und zeigt das Potential dieser Technik.

Nach diesem Überblick über die gängigen Messmethoden zur Bestimmung von Lebensdauern, soll nun im Folgenden ausführlich auf die in dieser Arbeit verwendete Ionenfalle – die EBIT – eingegangen werden, dabei deren Aufbau und Funktionsprinzip erklärt, die in ihr stattfindenden atomaren Prozesse erläutert, und die Dynamik der Elektronen und Ionen in der Falle dargestellt werden.

2.2 Die Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT)

Hochgeladene Ionen können in der Natur über verschiedene Prozesse erzeugt werden, so z.B. durch thermische Anregung, Photoionisation oder auch Stoßwellen in Plasmen. Bei der Erzeugung hochgeladener Ionen im Labor (Laborplasma) spielt die Elektronenstoß-Ionisation die wichtigste Rolle [121]. Um ein Elektron durch Elektronenstoß aus dem Atom zu lösen, muss die für den Stoß verfügbare Schwerpunktsenergie größer als die Bindungsenergie des Elektrons im Atom sein. Die Produktion hochgeladener Ionen wird mit zunehmender Ionenladung immer schwieriger, da die zum Herauslösen eines Elektrons aus dem Atom benötigte Schwerpunktsenergie ansteigt, der Wirkungsquerschnitt der Elektronenstoß-Ionisation stark abnimmt, und gleichzeitig konkurrierende Rekombinationsprozesse, wie z.B. der Ladungsaustausch beim Auftreffen der Ionen auf Restgasatome, schneller werden und somit in diesem Fall die Anforderungen an das Vakuumsystem erhöhen. Eine Möglichkeit, die erforderlichen Schwerpunktsenergien zu erreichen, ist die Verwendung eines relativistisch beschleunigten Ionenstrahls, welcher durch Wechselwirkung mit einem stationären Folien- oder Gastarget auf höhere Ladungszustände gebracht werden kann (*beam foil stripping*). Allerdings erfordert diese Methode große, sehr kostenintensive Einrichtungen (Beschleuniger meist verbunden mit Speicherring), um den Ionenstrahl auf die erforderliche Schwerpunktsenergie zu beschleunigen, denn der Anteil der zur Ionisation zur Verfügung stehenden kinetischen Energie ist im sich bewegenden Schwerpunktsystem um den Faktor m_e/m_{ion} kleiner.

Eine andere Möglichkeit besteht darin, einen Elektronenstrahl auf ein festes Iontarget oder auf Ionen in einer Falle zu richten und durch Beschleunigen des Elektronenstrahls die zur Ionisation benötigte Schwerpunktsenergie zu erzeugen. Letztere Methode wird bei der EBIT verwendet und birgt im Vergleich zu der vorher erwähnten Methode neben dem sehr viel kleineren Aufwand den Vorteil, dass annähernd 100% der kinetischen Energie des Elektronenstrahls als Schwerpunktsenergie zur Verfügung steht, da in diesem Fall das Schwerpunktsystem nahezu im Laborsystem ruht. Für spektroskopische Untersuchungen ergibt sich im Allgemeinen weiterhin der Vorteil, dass die Ionen in der Falle nur thermische Energien besitzen und somit ihre Strahlung mit größerem Raumwinkel und geringerer Dopplerverbreiterung vermessen werden kann.

Nachdem 1957 das erste Mal erfolgreich hochgeladene Ionen erzeugt und durch die Raumladung eines in einem Magnetfeld eingeschlossenen Elektronenstrahls gespeichert wurden [122], folgte ein Jahrzehnt später, 1969, durch E. Donets und seine Gruppe am Joint Institute for Nuclear Research in Dubna (ehemals USSR) der Bau der ersten *Electron Beam Ion Source* (EBIS) [123]. Aufbauend auf dem Konzept der EBIS wurde daraufhin am Lawrence Livermore National Laboratory (USA) durch M. A. Levine *et al.* die erste EBIT entwickelt, um Messungen an hochgeladenen, gespeicherten Ionen durchführen zu können [124]. Hier gelang es auch zum ersten Mal, Ionen bis hin zu „nacktem“ Uran (U^{92+}) in einer Falle zu erzeugen und zu speichern [125]. Die Entwicklung und Konstruktion der EBIT des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg (HD-EBIT), an der die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente durchgeführt wurden, fand an der Universität Freiburg im Jahre 1998 statt [126], von wo aus sie nach zweijährigem Betrieb im Juli 2001

nach Heidelberg übergeführt wurde. Sie gehört ebenso wie die EBIT in Livermore zu der Klasse der Hochenergie-EBITs und erlaubt nach ihren Designwerten eine Elektronenstrahlenergie von bis zu 350 keV und einen Strahlstrom von bis zu 750 mA. Zwei weitere EBITs wurden in den letzten zwei Jahren in Heidelberg konstruiert und fertig gestellt: Eine Hochstrom-EBIT (5 A), die an der ISAC Anlage des TRIUMF Instituts in Vancouver in Betrieb genommen worden ist und dort im Rahmen des TITAN Projekts als Ladungsbrüter radioaktiver Isotope fungieren wird [127], und eine weitere EBIT zur Durchführung von Experimenten am VUV Freien-Elektronen-Laser (*Free Electron Laser – FLASH*) bei DESY in Hamburg.

2.2.1 Aufbau und Funktionsprinzip einer EBIT

Eine EBIT besteht im Wesentlichen aus einer Elektronenkanone, einem supraleitenden Magneten, in dessen Mitte sich eine Anzahl von zylindrischen Fallenelektroden (sog. Driftröhren) befinden, und einem Elektronenkollektor (siehe Abb. 2.5). Elektronen, die aus der thermionischen Kathode der in Pierce-Geometrie [128] aufgebauten und auf negativem Potential gelegten Elektronenkanone austreten, werden mit Hilfe einer Fokuselektrode gebündelt und durch die positive Anode angezogen. Eine zwischen der Elektronenkanone und den Driftröhren anliegende Potentialdifferenz beschleunigt die so extrahierten Elektronen in Richtung der Fallenelektroden. Je nach Beschleunigungsspannung erreichen die Elektronen dabei typischerweise Energien von einigen hundert Elektronenvolt bis hin zu mehreren keV. Der Elektronenstrahl taucht auf dem Weg zur Fallennitte in ein 8 T starkes axiales Magnetfeld ein, das durch die Helmholtzspulen eines supraleitenden Magneten erzeugt wird, und das in der Falle sein Maximum erreicht. Den Elektronenstrahl wird dadurch im Fallenzentrum auf einen Durchmesser von weniger als 100 μm komprimiert. Aufgrund der Verkleinerung des Strahldurchmessers werden Stromdichten von über 10^4 A/cm^2 erreicht. Nach Durchlaufen der Driftröhren werden die Elektronen abgebremst und treffen mit kleinerer Energie auf den Kollektor.

Je nachdem, ob die zu ionisierenden Atome in gasförmigen Zustand oder als Festkörper vorliegen, können sie mittels eines mehrstufig differentiell gepumpten Atomstrahlensystems oder mit Hilfe einer Laserionenquelle [129] in die Fallenregion injiziert werden. Atome, die vom Elektronenstrahl getroffen werden, werden ionisiert sobald wie oben beschrieben die Elektronenenergie die Bindungsenergie der jeweiligen Elektronen übersteigt. Der hohe Fluss monoenergetischer Elektronen sorgt dabei für eine sehr effiziente Ionisation. Die erzeugten positiven Ionen werden radial durch die negative Raumladung des Elektronenstrahls angezogen und können in dieser Richtung das Fallenvolumen nicht mehr verlassen. Der axiale Einschluss wird durch Anlegen eines, je nach Bedarf veränderbaren, geeigneten elektrostatischen Potentials an die Driftröhren gewährleistet. Aufgrund der radialen Anziehung durchkreuzen die Ionen wiederholt den Elektronenstrahl und werden durch Elektronenstoßionisation sukzessive auf immer höhere Ladungszustände gebracht, solange bis das Ionisationspotential des nächsthöheren Ladungszustands größer als die Stoßenergie des Elektronenstrahls ist und somit dieser Ladungszustand nicht mehr erzeugt werden kann. Die Stöße der Elektronen mit den Ionen führen gleichzeitig zu einer elektronischen Anregung des Ions, welches nach einer gewissen Lebensdauer des angeregten Niveaus unter Emission eines Photons in den Grundzustand relaxiert. In der Fallenregion finden neben der Ionisation und

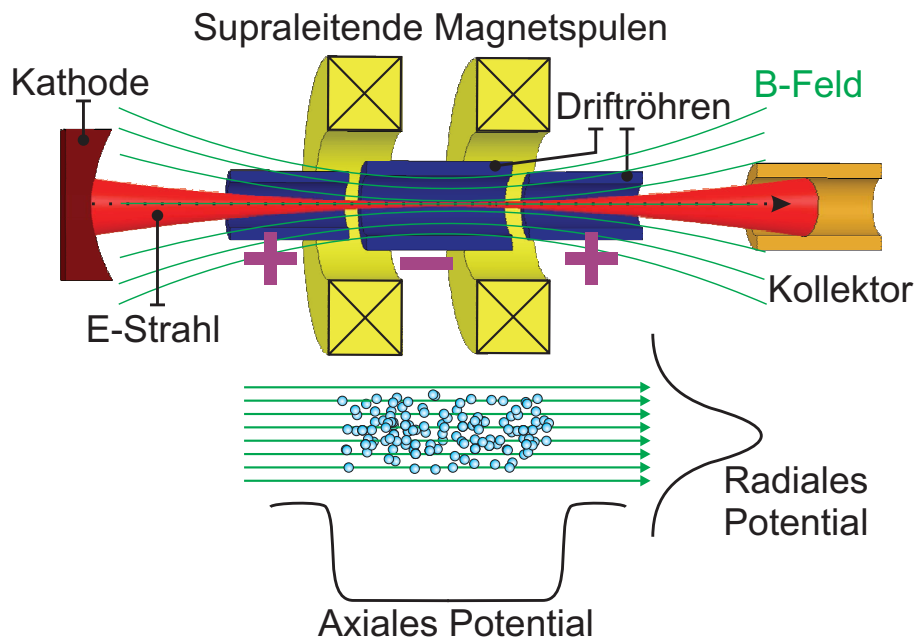


Abbildung 2.5: Das Funktionsprinzip einer EBIT. Der Elektronenstrahl wird in Richtung der Driftröhren (drei von neun Elektroden sind in der schematischen Skizze gezeigt) beschleunigt und durchläuft diese mit nahezu konstanter Geschwindigkeit. Vor dem Kollektor wird der Strahl abgebremst, um die beim Auftreffen auf den Kollektor entstehende Röntgenstrahlung und den Wärmeeintrag zu minimieren. Der radiale Einschluss der durch Elektronenstoß gebildeten Ionen wird durch das negative Raumladungspotential des Elektronenstrahls gewährleistet, während in axialer Richtung die Ionen durch entsprechende elektrostatische Potentiale an den Driftröhren in der Falle gehalten werden.

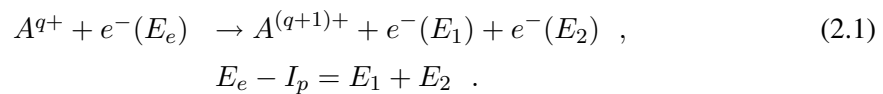
Anregung auch Prozesse der Rekombination (radiative und dielektronische) und des Ladungsaustausches statt, bei denen Elektronen aus dem Elektronenstrahl bzw. von benachbarten neutralen Restgasatomen eingefangen werden und in freie Zustände des Ions rekombinieren, wodurch sich entsprechend dessen Ladung verringert und das Gesamtladungsgleichgewicht zu niedrigeren Ladungen verschoben wird. Das Zusammenspiel all dieser Prozesse führt im Allgemeinen nach einer gewissen Zeit zu einem Gleichgewichtszustand. Wie schnell dieser erreicht wird ist in erster Linie von der Elektronenstrahlenergie, der Stromdichte, und vom Injektions- sowie Restgasdruck abhängig. Aufgrund der kryogenischen Umgebung (die zentralen Bestandteile der Apparatur sind auf 4 K gekühlt) und dem effektiven differentiellen Pumpen der beiden thermischen Schilde, die den Flüssigheliumtank umgeben und auf einer Temperatur von 40 bzw. 16 K gehalten werden, ist die Dichte neutraler Gasteilchen im Fallenzentrum extrem gering (weniger als 10^{-12} mbar).

2.2.2 Atomare Prozesse in der EBIT

Um Aussagen über das Ladungsgleichgewicht der Ionen – welches insbesondere bei Lebensdauerermessungen von Bedeutung ist, da ein nicht konstantes Ladungsgleichgewicht zu einem Verlust von Ionen im untersuchten Ladungszustand führen kann und so die gemessene Lebensdauer sich scheinbar verkürzen würde – und die emittierte Strahlung zu machen, ist es wichtig, die einzelnen beitragenden Wechselwirkungen, zu verstehen.

Ionisation

In den meisten Plasmen ist die *Elektronenstoßionisation* der dominante Prozess zur Produktion von Ionen. Man unterscheidet direkte und indirekte Prozesse. Als direkte Ionisation wird das Herauslösen eines Elektrons aus einer inneren oder äußeren Schale des Ions durch direkten Stoß des einfallenden Elektrons bezeichnet. Indirekte Ionisation kann als Folge des Auger-Zerfalls eines autoionisierenden Zwischenniveaus, dessen Zerfallsenergie größer als das Ionisationspotential des Elektrons ist, auftreten. Der einfachste Fall der *direkten Einfachionisation* lässt sich wie folgt beschreiben:



Die Ionisation findet statt, wenn die Elektronenstrahlenergie E_e das Ionisationspotential I_p des zu ionisierenden Elektrons übertrifft. Dabei entspricht die Summenenergie der beiden gestreuten Elektronen nach dem Stoß der Energie des einfallenden Elektrons minus der Bindungsenergie des gebundenen Elektrons. Direkte Multielektronenionisation wie z.B. die Zweifach-, oder Dreifachionisation sind üblicherweise unterdrückt, da die Wirkungsquerschnitte dieser Prozesse typischerweise mindestens zwei Größenordnungen kleiner sind als der für Einfachionisation.

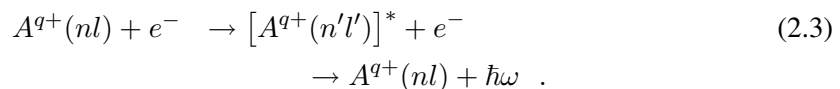
Wirkungsquerschnitte für die Elektronenstoßionisation eines Ladungszustands q_i nach q_{i+1} können mit Hilfe der nach Lotz benannten Formel [130]

$$\sigma = \sum_j \frac{a_{ij} \zeta_j}{E_e I_j} \ln \frac{E_e}{I_j} \left\{ 1 - b_{ij} \exp \left(-c_{ij} \left[\frac{E_e}{I_j} - 1 \right] \right) \right\} \quad (2.2)$$

näherungsweise berechnet werden. Hierbei ist E_e die Energie des Elektronenstrahls, ζ_j die Anzahl der Elektronen in der j ten Unterschale, I_j die Bindungsenergie und a_{ij} , b_{ij} , c_{ij} Konstanten. Für Ladungszustände $q_{i+1} \geq 4$ und unter Verwendung von $a_{ij} = 4.5 \times 10^{-14} \text{cm}^2 \text{eV}^2$ und $b_{ij} = c_{ij} = 0$ erzielt die Lotz-Formel gute Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen [131].

Anregung durch Elektronenstoß

Ist die kinetische Energie E_e des einfallenden Elektrons größer als der Energieunterschied $\Delta E = E(n'l') - E(nl)$ zweier Energieniveaus nl und $n'l'$, so kann das Ion durch Elektronenstoß angeregt werden. Das angeregte Ion stabilisiert sich bei höheren Kernladungszahlen üblicherweise durch Emission eines Photons bestimmter Energie. Dieser Prozess wird *direkte Anregung* genannt:

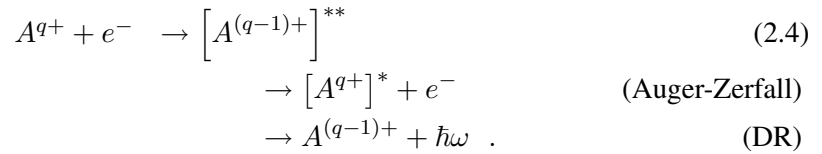


Rekombinationsprozesse

Neben der direkten Stoßanregung kann die Anregung auch durch resonante Rekombination eines Elektrons in einen gebundenen Zustand erfolgen. Hierbei führt der Einfang des einfallenden

2.2. Die Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT)

Elektrons und die gleichzeitige Anregung von Innerschalenelektronen zu einem doppelt angeregten Zwischenzustand des Ions, der entweder durch Aussendung eines Auger-Elektrons oder durch Emission eines Photons zerfallen kann. Letzterer Prozess wird als *Dielektronische Rekombination* (DR) bezeichnet:



Eine eingehende Beschreibung und Untersuchungen der dielektronischen Rekombination an hochgeladenen Ionen unter Verwendung einer EBIT findet sich in [132].

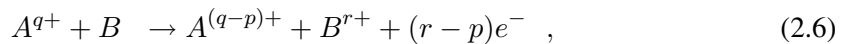
Findet die Rekombination des Elektrons nicht resonant statt, also ohne Anregung eines Innerschalenelektrons, so spricht man von *radiativer Rekombination* (RR),



Im Wesentlichen handelt es sich bei der RR um den Umkehrprozess der Photoionisation. Eine semi-empirische Formel zur Berechnung radiativer Wirkungsquerschnitte wurde von Kim und Pratt abgeleitet und ist in [133] zu finden.

Ladungsaustausch

Hochgeladene Ionen in einer EBIT können durch Einfang von Elektronen neutraler Restgasatome oder -Moleküle ihren Ladungszustand verringern:



mit der Elektronenanzahl r , die vom Target (B) beim Stoßprozess entfernt werden, und p der Anzahl der Elektronen, die das Projektil (A) aufnimmt (der Einfang nur eines Elektrons ($p = 1$) ist beim Ladungsaustausch der dominierende Prozess; direkte Ionenstoßionisation des Atoms ($r > p$) ist ebenfalls bei den niedrigen Ionengeschwindigkeiten in der EBIT stark unterdrückt). Der Ladungsaustausch zwischen Ionen ist aufgrund der Coulomb-Abstoßung, der hohen Bindungsenergie der Restelextronen, und der vergleichsweise niedrigen kinetischen Energien der Ionen sehr unwahrscheinlich und kann demzufolge vernachlässigt werden. Da sich durch den Elektroneneinfang das Ladungsgleichgewicht ändert, kann dieser Prozess als ein Verlustmechanismus von Ionen in einem bestimmten Ladungszustand verstanden werden, was insbesondere bei Lebensdauermessungen berücksichtigt werden muss.

Bereits im Jahre 1980 präsentierten Müller und Salzborn ein mit der Kernladungszahl Z skalierendes Gesetz zur Berechnung von absoluten Wirkungsquerschnitten [134, 135], wobei keine Aussage über die Anzahl der vom Target entfernten Elektronen gemacht wurde und die empirisch aufgestellte Formel weitgehend auf experimentellen Daten mit Ladungszuständen $q > 10$ basierte:

$$\sigma_{q,q-1} = 1.43 \times 10^{-12} Z_q^{1.17} I_0^{-2.76} \quad [\text{cm}^2] \quad (2.7)$$

mit der Kernladungszahl Z_q des Ions und I_0 das Ionisationspotential (in eV) des neutralen Targetatoms. Weitergehende experimentelle Untersuchungen des Ladungstransfers bei langsamen Stößen zwischen Xe^{q+} ($15 \leq q \leq 45$) mit neutralem He, Ar und Xe zeigten, dass die Wirkungsquerschnitte für den Austausch mehrerer Elektronen bei hochgeladenen Ionen in derselben Größenordnung liegen können wie für den einfachen Ladungsaustausch [136]. Gestützt auf diese experimentellen Daten konnte eine weitere Formel zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte des Austauschs von r Elektronen angegeben werden:

$$\sigma_{q,q-r} = (2.7 \times 10^{-13}) q_i r \left/ \left[I_1^2 I_r^2 \sum_{j=1}^N (j/I_j^2) \right] \right. , \quad (2.8)$$

wobei I_j das Ionisationspotential des j ten Elektrons in eV und N die Anzahl der Elektronen in der äußersten Schale des Targetatoms ist.

2.2.3 Dynamik von Elektronen und Ionen

Die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Ionen in einer EBIT spielt eine tragende Rolle bei der Produktion von hochgeladenen Ionen und der Realisierung einer Ionenfalle. Während die Elektronenstrahlenergie E_e den Ladungszustand der Ionen definiert, ist die Ionisationsrate hauptsächlich von der Stromdichte I_e der Elektronen abhängig. Des Weiteren muss bei der Bestimmung der Elektronenstrahlenergie die, durch die negative Ladungsdichte der Elektronen verursachte, radiale Raumladung V_{sp} des Elektronenstrahls, berücksichtigt werden, da diese die effektive Wechselwirkungsenergie gegenüber der angelegten Beschleunigungsspannung der Elektronen absenkt. Im Folgenden werden die Eigenschaften des Elektronenstrahls, der über die Elektron-Ion-Wechselwirkung bedeutend zur Energetik der Ionen beiträgt, vorgestellt, dessen Raumladungspotential und die Kompensation dieses Potentials durch die positive Ladung der Ionen diskutiert, und im zweiten Teil dieses Abschnitts die grundlegende Dynamik der Iontemperatur unter Einfluss der wesentlichen Prozesse (Aufheizen der Ionen durch den Elektronenstrahl, Energieaustausch der Ionen über Ion-Ion-Wechselwirkung, Verlust von Ionen aus der Falle) anhand ihrer Ratengleichungen aufgezeigt.

Eigenschaften des Elektronenstrahls

Aufbauend auf einer durch Brillouin beschriebenen Betrachtung [137] eines idealisierten, laminaren Elektronenstrahls bei Anwesenheit eines gleichförmigen, axialen Magnetfelds B entwickelte Herrmann [138] eine theoretische Beschreibung eines zylindrischen, nicht-laminaren Strahls thermischer Elektronen, die von einer Kathode emittiert und axial in ein Magnetfeld B injiziert werden. Gemäß dieses Modells lässt sich die effektive radiale Ausdehnung des Elektronenstrahls durch den sog. Herrmann-Radius

$$r_H = r_B \sqrt{\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{1 + 4 \left(\frac{8m_e k_B T_c r_c^2}{e^2 r_B^2 B^2} + \frac{B_c^2 r_c^4}{B^2 r_B^2} \right)}} \quad (2.9)$$

2.2. Die Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT)

ausdrücken. Dabei ist r_H definiert als der Radius, der 80% des Strahlstroms beinhaltet. Es gibt T_c die Kathodentemperatur, B_c die magnetische Feldstärke auf der Oberfläche der Kathode und r_c den Kathodenradius an. k_B ist die Boltzmannkonstante und e die Elementarladung. Der Brillouin-Radius r_B beschreibt den Radius eines idealisierten Elektronenstrahls, der sich insbesondere durch die Annahme eines laminaren Fluss von Elektronen, die von einer magnetfeldfreien ($B_c = 0$ T) Kathode emittiert wurden und keine thermische Energie besitzen, auszeichnet. Er lässt sich wie folgt angeben:

$$r_B = \sqrt{\frac{2m_e I_e}{\pi \epsilon_0 v_e e B^2}}, \quad (2.10)$$

wobei m_e die Elektronenmasse, I_e die Stromdichte, B das lokale axiale Magnetfeld, v_e die Geschwindigkeit der Elektronen und ϵ_0 die Permeabilität des Vakuums bezeichnen. Gleichung (2.10) kann auf folgende Form reduziert werden:

$$r_B [\mu m] = 829.91 \frac{\sqrt{I_e} [A]}{B [T] E_e^{1/4} [eV]}. \quad (2.11)$$

Die Elektronenstrahlenergie E_e ist durch die allgemein relativistische Geschwindigkeit der Elektronen

$$v_e = c \sqrt{1 - \left(\frac{E_e}{m_e c^2} + 1 \right)^{-2}} \quad (2.12)$$

gegeben, die sich im Falle niedriger Energien auf die nicht-relativistische Formel $v_e = \sqrt{\frac{2eE_e}{m_e}}$ vereinfacht. In Abb. 2.6 ist der Herrmann-Radius in Abhängigkeit der Elektronenstrahlenergie E_e und des Emissionsstrom I_e dargestellt. Es zeigt sich dass der Elektronenstrahlradius relativ stabil gegenüber Änderungen von E_e und I_e ist. Messungen des Durchmessers an der Tokyo EBIT mit Hilfe von Thomson-Streuung bestätigen dies [139].

Raumladungspotential und Ionenkompensation

Die Elektronenstrahlenergie E_e ist im Wesentlichen durch die angelegte Potentialdifferenz (Beschleunigungsspannung) zwischen der Kathode der Elektronenkanone und den Driftröhren bestimmt. Die negative Elektronendichte des Strahls verursacht jedoch ein radiales Raumladungspotential V_{sp} , welches eine Absenkung des Potentials in der Strahlmitte nach sich zieht und so zu einer Reduzierung der Energie des Elektronenstrahls führt. Die Größe der Raumladungskompensation hängt in erster Linie vom Emissionsstrom I_e , der Elektronenstrahlenergie E_e und dem Radius r_e des Elektronenstrahls sowie dem Driftröhrenradius r_{dt} ab. Sie ist in der Näherung eines Stromfadens konstanter Dichte in der Strahlmitte ($r = 0$) am größten und kann im Falle relativistischer Geschwindigkeiten durch

$$V_{sp}(0)[V] \approx \frac{30 I_e [A]}{\sqrt{1 - \left(\frac{E_e [keV]}{511} + 1 \right)^{-2}}} \left[\ln \left(\frac{r_e}{r_{dt}} \right)^2 - 1 \right] \quad (2.13)$$

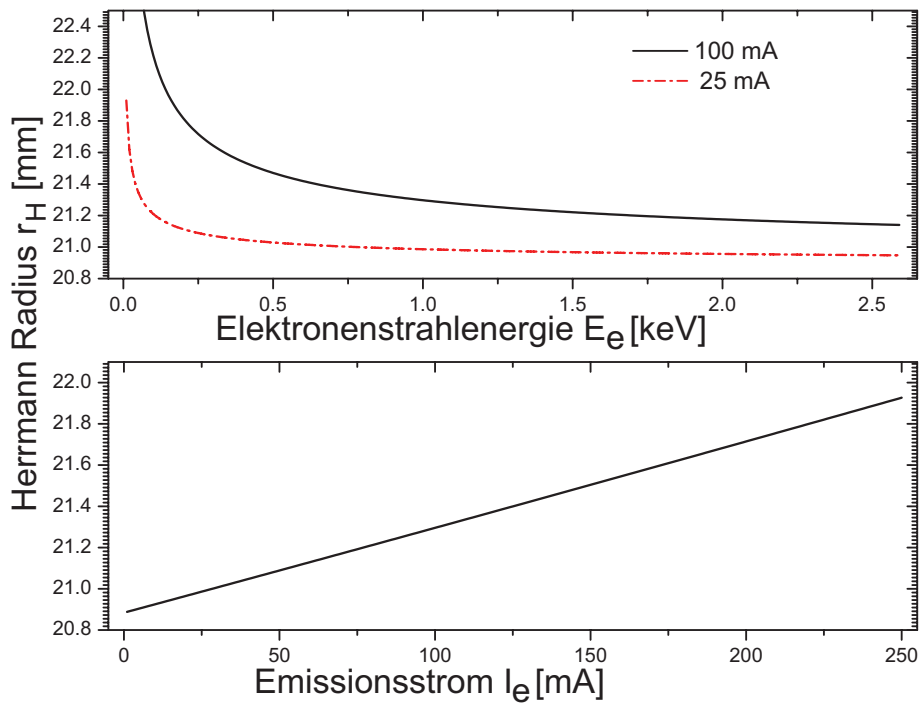


Abbildung 2.6: Abhängigkeit des Herrmann Radius r_H von der Elektronenstrahlenergie E_e und dem Emissionsstrom I_e . Aus obiger Abbildung ist ersichtlich, dass sich für geringe Emissionsströme und bei einer Energie oberhalb 0.5 keV der Radius im Wesentlichen konstant verhält.

angenähert werden [140]. Wie aus Gleichung (2.13) ersichtlich, besteht eine lineare Abhängigkeit des radialen Raumladungspotentials V_{sp} vom Emissionsstrom I_e . In Abb. 2.7 ist die berechnete radiale Raumladung V_{sp} in Abhängigkeit der Elektronenstrahlenergie E_e für verschiedene Emissionsströme I_e aufgetragen. Die in dieser Arbeit experimentell eingestellte Energie des Elektronenstrahls zur Produktion der Ladungszustände Fe^{13+} und Ar^{13+} bewegte sich zwischen 0.3 keV und 1 keV, so dass sich für die obere Grenze bei einem Elektronenstrahlradius von $r_e = 22 \mu\text{m}$ und einem Emissionsstrom $I_e = 100 \text{ mA}$ eine negative Raumladung von -156 eV berechnen lässt, die durch eine erhöhte Beschleunigungsspannung kompensiert werden muss, um den erwünschten Ionisationsgrad zu erreichen. Nicht unerwähnt bleiben soll die Tatsache, dass aufgrund der unterschiedlichen Durchmesser der verschiedenen Driftröhren entlang der Strahlachse neben dem radialen Raumladungspotential auch ein axiales Potential V_{sp}^{ax} im Fallenzentrum besteht, das bei der momentanen Geometrie der Heidelberg-EBIT und einem 0.7 keV, 50 mA Elektronenstrahl in der Strahlmitte ($r = 0$) einen Potentialwall von ca. 70 eV erzeugt; ausreichend genug, um den Einschluss von Ionen entlang der Achse im Fallenzentrum zu erreichen, ohne eine Spannung an die Driftröhren anlegen zu müssen [141].

Das effektive (negative) Raumladungspotential wird durch die (positive) Raumladung der sich in der Falle befindlichen, hochgeladenen Ionen reduziert. Dieser Effekt wird durch den so genannten Kompensationsfaktor f berücksichtigt, der das Verhältnis zwischen der Summe positiver

2.2. Die Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT)

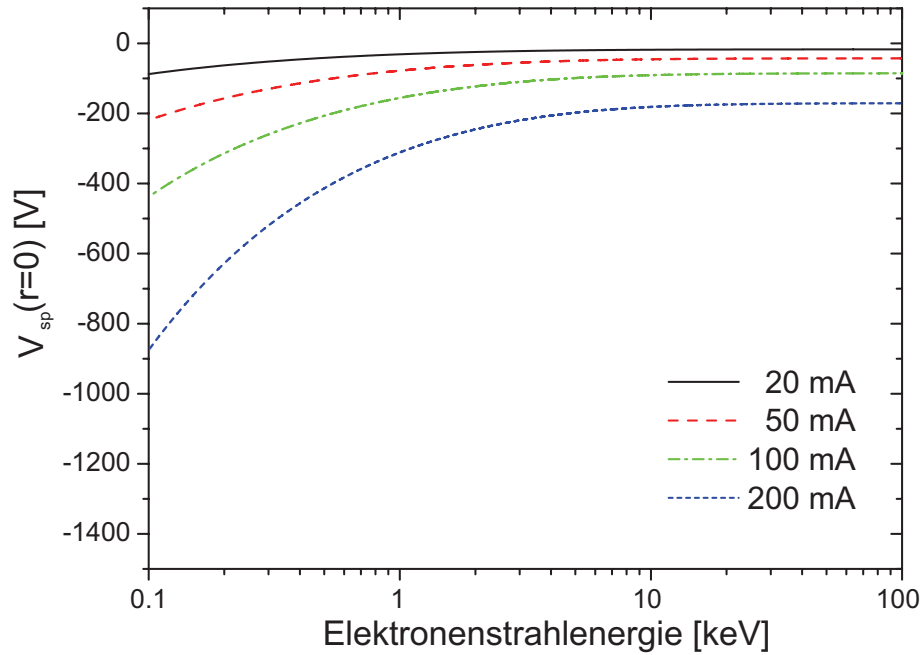


Abbildung 2.7: Das Raumladungspotential im Zentrum ($r = 0$) des Elektronenstrahls als eine Funktion der Elektronenstrahlenergie für verschiedene Emissionsströme I_e . Zur Berechnung wurde ein konstanter Elektronenstrahlradius von $22 \mu\text{m}$ angenommen, während der Driftröhrenradius der zentralen Driftröhre $r_{\text{dt}} = 5 \text{ mm}$ beträgt.

Ionenladungen n_q mit Ladung q und der negativen Elektronenladung n_e angibt [142]:

$$f = \frac{\sum_q n_q q}{n_e}. \quad (2.14)$$

Prinzipiell ist die Anzahl der gespeicherten Ionen und deren Ladungsverteilung sowohl stark von den eingestellten Parametern wie z.B. der Elektronenenergie, des Elektronenstroms, Injektionsdruck etc. als auch vom injizierten Element selbst abhängig. Untersuchungen der Energieverschiebung dielektronischer Resonanzen in hochgeladenem Quecksilber (Hg^{75+} bis Hg^{78+} , [143]) als Funktion des Elektronenstrahl-Stroms I_e ergaben eine mittlere Ionenkompensation von ca. 30 bis 40%, die aber bei kontinuierlich injizierten, gasförmigen Elementen noch höher liegen kann.

Es lässt sich nun unter Beachtung der Raumladungseffekte eine effektive Elektronenstrahlenergie E_e^{eff} angeben:

$$E_e^{\text{eff}} = -V_{\text{Kathode}} + V_{\text{dt}} - V_{\text{sp}}(1 - f). \quad (2.15)$$

Die Bestimmung der effektiven Strahlenergie ist aufgrund des allgemein unbekanntem Faktors f nur experimentell möglich. Dies gelingt durch die Beobachtung eines bestimmten, den Ladungszustand X^{q+} kennzeichnenden, spektralen Merkmals oder Signals (z.B. Fluoreszenzphotonen), welches nur dann auftaucht bzw. verschwindet, wenn dieser spezielle Ladungszustand X^{q+} produziert wird und die Elektronenstrahlenergie somit wenigstens das Ionisationspotential

$I_p^{(q-1)+}$ des $X^{(q-1)+}$ Ion besitzt. Durch Aufnahme des Kathodenpotentials V_{Kathode} und der angelegten Beschleunigungsspannung V_{dt} kann nun durch Untersuchung des Schwellwertverhaltens (bei $E_e^{\text{eff}} = I_p^{(q-1)+}$) des charakteristischen Signals mit Hilfe von Gleichung (2.15) der Kompensationsfaktor f ermittelt werden (siehe Kapitel 3.2).

Die Temperaturdynamik der Ionen in einer EBIT

Die Verteilung der Iontemperatur in einer EBIT respektive die Energie der Ionen wird durch verschiedene Mechanismen beeinflusst. So gewinnen z.B. die Ionen in der Falle Energie vom Elektronenstrahl aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung mit den Elektronen (Elektron-Ionen Stöße). Diese Energie wird wiederum durch Ion-Ion Coulomb-Stöße in der Falle umverteilt. Die dabei von jedem einzelnen Ion gewonnene Energie bestimmt die Verweildauer der Ionen im Elektronenstrahl bzw. den Anteil der Zeit, in der sich das Ion außerhalb des Elektronenstrahls befindet. Da der Transport von Ionen in der Falle sehr viel schneller von statten geht als der Energieaustausch, ist es sinnvoll die Energieverteilung der Ionen mit Hilfe einer Maxwell'schen Verteilungsfunktion zu beschreiben, die durch eine einzelne Temperatur für jeden Ladungszustand charakterisiert ist [144]. Auf der anderen Seite führen Prozesse, die einen Verlust von Ionen aus der Falle verursachen, gegebenenfalls zu einer Kühlung der verbleibenden Ionen und somit zu einer Verminderung der Iontemperatur (evaporatives Kühlen). Das Wechselspiel all dieser Mechanismen resultiert in einer komplexen Dynamik und Entwicklung der kinematischen Verhältnisse der Ionen. Selbiges gilt für die zeitliche Entwicklung der Ionendichte verschiedener Ladungszustände, die durch das Gleichgewicht zwischen Elektronenstoßionisation (EI), radiativer Rekombination (RR) und Ladungsaustausch (CE) gegeben ist.

Die Iontemperatur in einer EBIT ist im Wesentlichen bestimmt durch das Aufheizen der Ionen mittels Elektron-Ionen Stöße, dem Energieaustausch unter den Ionen, und radialer als auch axialer Ionenverluste. Die Ratengleichung für die Entwicklung der Iontemperatur ist gegeben durch [131]:

$$\frac{d}{dt}(n_i k T_i) = \left[\frac{d}{dt}(n_i k T_i) \right]^{\text{heat}} + \left[\frac{d}{dt}(n_i k T_i) \right]^{\text{ex}} - \left[\frac{d}{dt}(n_i k T_i) \right]^{\text{esc}}, \quad (2.16)$$

mit n_i der Ionendichte einer im Ladungszustand q_i befindlichen Ionensorte, k der Boltzmann-Konstante und T_i der Iontemperatur. Der erste Term gibt das Heizen der Ionen durch den Elektronenstrahl wieder und lässt sich schreiben als [145]

$$\left[\frac{dE_i}{dt} \right]^{\text{heat}} = \left[\frac{d}{dt}(n_i k T_i) \right]^{\text{heat}} = \frac{4m_e}{3M_i} \nu_{ei} n_i E_e, \quad (2.17)$$

wobei m_e die Elektronenmasse, M_i die Masse des betrachteten Ions, E_e die Elektronenstrahlenergie und ν_{ei} die Rate (Frequenz) der Coulombartigen Elektron-Ionenstöße ist:

$$\nu_{ei} = 4\pi \frac{n_e}{v_e^3} \left(\frac{q_i e^2}{4\pi \epsilon_0 m_e} \right)^2 \ln \Lambda_i. \quad (2.18)$$

2.2. Die Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT)

Die Stoßfrequenz ν_{ei} hängt ab von der Elektronendichte n_e , der Geschwindigkeit v_e der Elektronen und dem sog. Coulomb Logarithmus $\ln\Lambda_i$, der das Verhältnis zwischen minimalem und maximalem Elektron-Ionen-Stoßparameter als Folge der Debye-Abschirmung angibt und typischerweise einen Wert zwischen 10 und 20 hat [146]. Aus Gleichung (2.17) ist ersichtlich, dass das Aufheizen der Ionen durch den Elektronenstrahl um so effizienter ist, je höher geladen die Ionen sind, da ν_{ei} quadratisch mit dem Ladungszustand q_i anwächst.

Der zweite Term in Gleichung (2.16) beschreibt den durch Stöße zwischen Ionen der Ladung q_i und q_j verursachten Energieaustausch, der ausgedrückt werden kann als [147, 148]

$$\left[\frac{dE_i}{dt}\right]^{\text{ex}} = \left[\frac{d}{dt}(n_i kT_i)\right]^{\text{ex}} = \sum_j 2\nu_{ij}^{\text{eff}} n_i \frac{M_i}{M_j} \frac{k(T_j - T_i)}{\left(1 + \frac{M_i T_j}{M_j T_i}\right)^{3/2}}, \quad (2.19)$$

mit der effektiven Kollisionsrate

$$\nu_{ij}^{\text{eff}} = \frac{4}{3} \sqrt{2\pi} n_j \left(\frac{q_i q_j e^2}{4\pi\epsilon_0 M_i}\right)^2 \left(\frac{M_i}{kT_i}\right)^{3/2} \ln\Lambda_{ij} f(r_i, r_j). \quad (2.20)$$

Der Faktor $f(r_i, r_j)$ berücksichtigt den Überlapp der Ionenwolken mit Ladungszustand q_i und q_j , deren Geschwindigkeit mit Hilfe einer Boltzmann-Verteilung beschrieben werden.

Ist die Energie der Ionen groß genug, können sie die Falle entweder in radialer oder axialer Richtung verlassen und dabei Energie abführen, was sich nach einer Rethermalisierung der verbleibenden Ionen in einer reduzierten Iontemperatur bemerkbar macht (evaporatives Kühlen). Da insbesondere bei Lebensdauermessungen metastabiler Zustände hochgeladener Ionen in einer EBIT der Verlust von Ionen einen zusätzlichen Zerfallskanal darstellt, der die gemessene natürliche Lebensdauer des untersuchten Zustands künstlich verkürzen kann, ist die Minimierung dieser Verlustprozesse durch eine geeignete Wahl der Parametern, wie z.B. des axiales Fallenpotentials oder auch des Emissionsstroms des Elektronenstrahls, unerlässlich. Der letzte Term in Gleichung (2.16) stellt allgemein den Energieverlust durch axiales als auch radiales Entweichen der Ionen aus der Falle dar und kann als approximative Lösung der so genannten Fokker-Planck Gleichung dargestellt werden [149]:

$$\left[\frac{dE_i}{dt}\right]^{\text{esc}} = \left[\frac{d}{dt}(n_i kT_i)\right]^{\text{esc}} = \left[\frac{2}{3} n_i \nu_i e^{-\omega_i} - \frac{dn_i}{dt}\right] kT_i \quad (2.21)$$

mit der Ionenverlustrate

$$\frac{dn_i}{dt} = n_i \left[\frac{3}{\sqrt{2}} \nu_i \left(\frac{\exp^{-\omega_i}}{\omega_i} - \sqrt{\omega_i} [\text{erf}(\omega_i) - 1] \right) \right]. \quad (2.22)$$

und ν_i der totalen Coulomb Stoßrate aus Gleichung (2.20). Je nachdem, ob radiales bzw. axiales Entweichen der Ionen betrachtet wird, ist ω_i gegeben durch:

$$\omega_i^{\text{ax}} = \frac{q_i e V_{\text{tr}}}{kT_i} \quad \text{bzw.} \quad \omega_i^{\text{rad}} = \frac{q_i e V_{\text{rad}} + q_i e B r_{\text{dt}} \left(\frac{2kT_i}{3M_i}\right)^{1/2}}{kT_i}, \quad (2.23)$$

wobei V_{tr} das durch die an die Fallenelektroden angelegten Spannungen definierte axiale Potential angibt, während V_{rad} das radiale Potential, verursacht durch die Raumladung des Elektronenstrahls (siehe Gleichung (2.13)), beschreibt. Aus Gleichung (2.22) ist ersichtlich, dass im axialen

Fall die Verlustrate der Ionen exponentiell vom Verhältnis ω_i^{ax} des Potentialwalls (Elektronenladung e mal Driftröhrenpotential V_{tr} mal Ladungszustand q_i) zur durchschnittlichen kinetischen Energie der Ionen (gegeben durch die Temperatur T_i der translatorischen Freiheitsgrade) abhängt. Bei ausreichend großer Falltiefe (großes axiales Fallenpotential) kann aufgrund der exponentiellen Abhängigkeit die Verlustrate der Ionen verschwindend klein und als praktisch Null angesehen werden.

2.3 Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

Nachdem im letzten Abschnitt ausführlich auf die zur Erzeugung und Speicherung hochgeladener Ionen genutzte EBIT eingegangen wurde, sollen im Folgenden das Prinzip der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen erläutert und die experimentellen Aufbauten aufgezeigt werden. Da sich die Ionen in der EBIT prinzipiell durch zwei verschiedene Methoden in den metastabilen Anregungszustand bringen lassen – durch Stoßanregung der Ionen mittels des Elektronenstrahls oder mittels Laseranregung – und beide Methoden zur Anwendung kamen, lassen sich die zwei Konzepte ohne Laser und mit Laser zur Bestimmung von Lebensdauern metastabiler Zustände in hochgeladenen Ionen aufzeigen. Nach Darstellung dieser beiden, und wie nachfolgend aufgezeigt, aufeinander bauenden Messprinzipien, wird die Fluoreszenzdetektion und das Datenaufnahmesystem beschrieben, gefolgt von einer Charakterisierung des benutzten Lasersystems und der zur Laseranregung notwendigen, experimentellen Aufbauten. Eine Abschätzung der zu erwartenden Signalarate bei Laseranregung beschließt das Kapitel.

2.3.1 Prinzip der Messung

Es wird hier zunächst auf das Messprinzip der „klassischen“ Methode, also der Anregung durch Elektronenstoß ohne Verwendung des Lasers, eingegangen.

Die Bestimmung der Lebensdauer des metastabilen Zustands wird durch die zeitliche Aufnahme der optischen Zerfallskurve, die beim spontanen Übergang der Elektronen vom zu untersuchenden Niveau in den Grundzustand entsteht, gemessen. Das Messprinzip ist in Abb. 2.8 schematisch dargestellt. Für die Messung wird das entsprechende Element zunächst über ein differentiell gepumptes Vakuumsystem - gemeinhin als Gasinjektor bezeichnet - als neutraler Atomstrahl in das Fallenzentrum eingelassen, wo es den Elektronenstrahl kreuzt. Dieser bringt die Atome durch sukzessive Elektronenstoßionisation auf den gewünschten Ladungszustand. Zudem befördert der kontinuierliche Elektronenstrahl mittels Elektronenstoßanregung stetig Elektronen in höher gelegene Niveaus, von wo aus sie nach der mittleren Lebensdauer des entsprechenden Zustands durch spontane Emission und unter Aussendung von Fluoreszenzphotonen in den Grundzustand zerfallen und dann wieder neu angeregt werden können.

Um nun die Fluoreszenzphotonen und damit die optische Zerfallskurve aufnehmen zu können, wird die EBIT im sog. *magnetic trapping mode* betrieben [150, 151]. Hierzu wird der Elektronenstrahl zyklisch an- und wieder abgeschaltet. Das Schalten des Elektronenstrahls wird durch entsprechendes Anlegen einer positiven bzw. negativen Hochspannung an die Fokuselektrode der Elektronenkanone realisiert. Ein Hochspannungs-Schalttransistor, der prinzipiell Schaltzeiten von einigen ns zuläßt, gewährleistet eine Schaltzeit der benutzten Hochspannungsnetzgeräte von unter 500 μs , was für Messungen von Lebensdauern, die sich im ms Bereich bewegen, ausreichend kurz ist. Wird der Elektronenstrahl für eine Zeitdauer, die sehr viel länger als die mittlere Lebensdauer des untersuchten Zustands ist, ausgeschaltet, so relaxieren die angeregten Elektronen in den Grundzustand, wo sie dann verweilen, da bei abgeschaltetem Elektronenstrahl keine weitere Anregung stattfindet. Obwohl während der Abwesenheit des Elektronenstrahls kein radialer Einschluss der Ionen durch die negative Raumladung des Elektronenstrahls gegeben ist, gehen die Ionen nicht

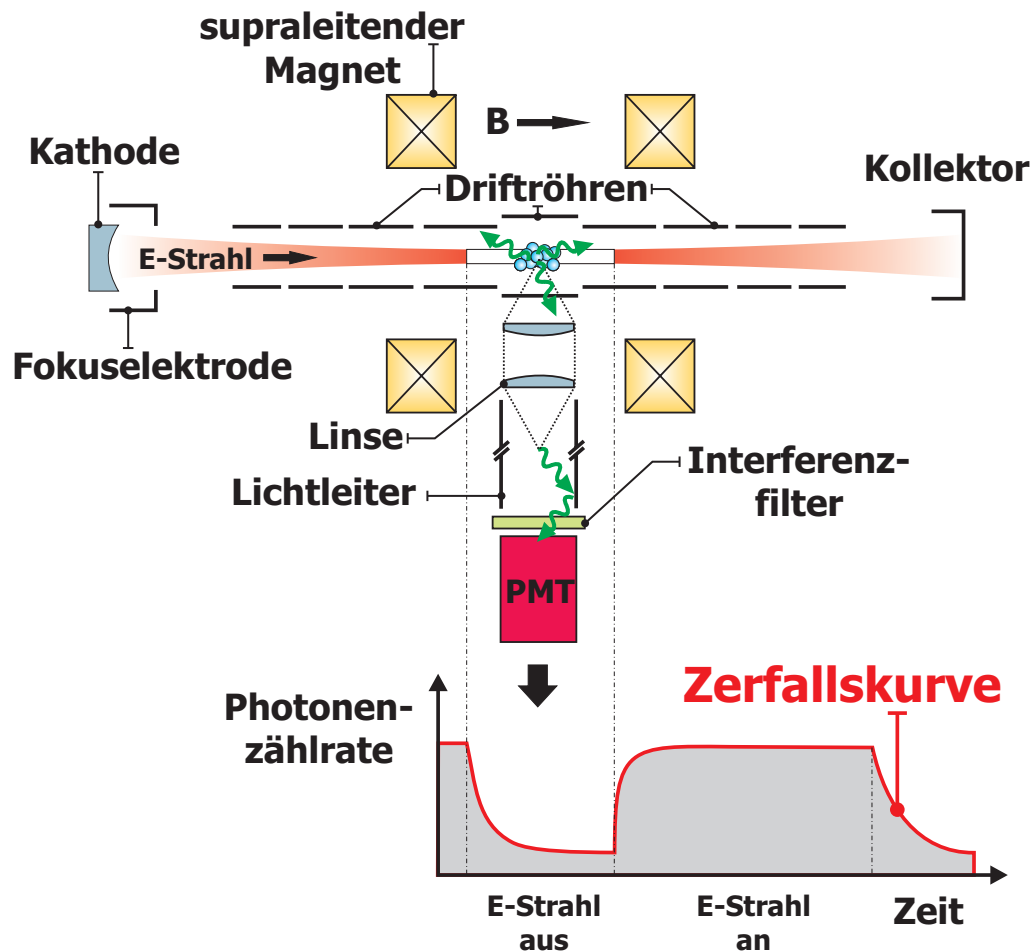


Abbildung 2.8: Das Prinzip und der experimentelle Aufbau zur Messung von Lebensdauern mit der HD-EBIT.

sofort aus der Falle verloren, da sie aufgrund des Magnetfelds der EBIT und der Lorentzkraft nur um die Magnetfeldlinien gyrieren können und so im Fallenzentrum gehalten werden (magnetic trapping mode). Es findet lediglich ein langsames Expandieren der Ionenwolke statt, da Ion-Ion Stöße einen langsamen Drift quer zu den Magnetfeldlinien ermöglichen. Aufgrund der Erhaltung des kanonischen Impulses und der ähnlichen Massen der Ionen verschiebt sich der Massenschwerpunkt bei Ion-Ion Stößen nur geringfügig.

Ein Teil der, in den gesamten Raumwinkel emittierten, Fluoreszenzphotonen wird über ein Linsensystem nach außen abgebildet und zu einem geeigneten Detektorsystem geleitet (siehe Abschnitt 2.3.2), wo eine zeitliche Aufnahme der Photonenzählrate stattfindet. Nach einer gewissen Zeit wird der Elektronenstrahl wieder eingeschaltet und es findet erneut die Anregung der sich nun im Grundzustand befindenden Elektronen statt. In Abb. 2.8 ist der typische Verlauf der exponentiell abfallenden Zerfallskurve schematisch illustriert. Während der exponentielle Abfall des Photonensignals auf den Übergang der Elektronen vom metastabilen Niveau in den Grundzustand zurückzuführen ist, spiegelt der Anstieg des Signals den zeitlichen Verlauf der Wiederbevölkerung des energetisch höheren Zustands aufgrund von Elektronenstoßanregung wieder. Durch die

2.3. Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

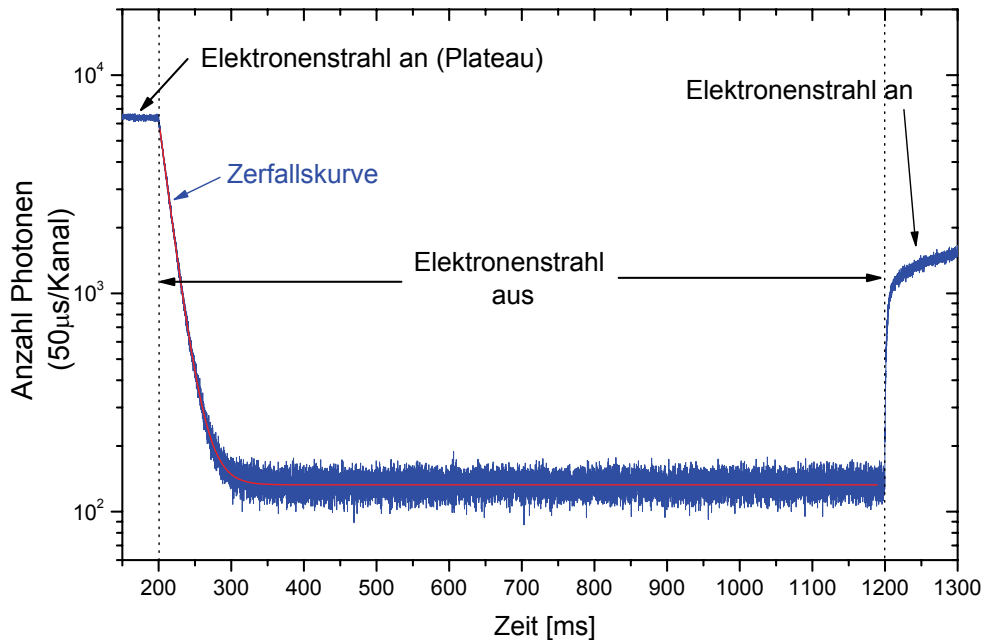


Abbildung 2.9: Typische Lebensdauermessung zur Fluoreszenz des $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ metastabilen Niveaus in aluminiumartigem Fe XIV, aufgenommen mit der HD-EBIT. Die optische Zerfallskurve ergibt sich durch zeitliche Aufnahme der Fluoreszenzphotonen, die beim magnetischen Dipolübergang ($M1$) $3s^2 3p^2 P_{1/2}^o \rightarrow 3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ mit einer Wellenlänge von 530.29 nm („grüne Korona-Linie“) emittiert werden. Die Aufnahmezeit betrug ca. 18 h.

Expansion der Ionenwolke besteht nach Wiederanschalten des Elektronenstrahls zunächst ein reduzierter Überlapp der Elektronen mit den Ionen, so dass der unmittelbare Signalanstieg weniger stark ausgeprägt ist. Das Schalten zwischen den beiden Messzuständen – Anregung und freier Zerfall – geschieht zyklisch über die gesamte Messzeit. In Abb. 2.9 ist eine typische Zerfallskurve, wie sie durch Addition vieler Messzyklen zustande kommt, zu sehen.

Die zweite Methode zur experimentellen Bestimmung von Lebensdauern, nutzt die Anregung mittels eines **Lasers** aus, da die Anregung der Ionen prinzipiell auch durch einen geeigneten, gepulsten Laser, der auf die Übergangsenergie zwischen angeregtem Zustand und Grundzustand abgestimmt ist, erfolgen kann. Aufbauend auf dem oben erläuterten Messprinzip lassen sich durch Überlagerung eines Laserstrahls mit der Ionenwolke und entsprechender Anregung somit auch Lebensdauermessungen laserangeregter Zustände durchführen. Das Lasersystem sowie der experimentelle Aufbau zu den in dieser Arbeit durchgeführten laserspektroskopischen Untersuchungen ist ausführlich in Abschnitt 2.3.3 beschrieben.

Um elektronische Zustände mit Hilfe des Lasers anregen zu können, müssen sich die in der Falle gespeicherten Ionen im Grundzustand befinden. Dies ist jedoch nach Abschalten des Elektronen-

strahls nach einer gewissen Relaxationszeit automatisch gewährleistet, da die angeregten Elektronen aufgrund der fehlenden Elektronenstoßanregung in den Grundzustand zerfallen und dann dort verbleiben, sofern keine anderweitigen Anregungsprozesse, wie z.B. die Anregung durch niederenergetische Elektronen, die sich gleichzeitig mit den Ionen im Fallenvolumen aufhalten können (siehe Kapitel 3.1.2), stattfinden. Die abgeregten Elektronen werden nun mit Hilfe eines kurzen Laserpulses, dessen Dauer sehr viel kürzer als die mittlere Lebensdauer des untersuchten Zustands ist, in das obere Niveau gepumpt, von wo aus sie spontan und unter Emission von Fluoreszenzphotonen wiederum in den Grundzustand übergehen. Die erwartete Signalspur zum Nachweis laserinduzierter Fluoreszenz und zur Lebensdauerermessung mittels eines Lasers ist im nächstfolgenden Abschnitt, in der die Methode der Fluoreszenzdetektion und das Datenaufnahmesystem behandelt wird, beschrieben.

2.3.2 Fluoreszenzdetektion und Datenaufnahme

Zum Nachweis des Fluoreszenzlichts muss ein geeignetes Sammel-, und Detektionssystem verwendet werden. Da überwiegend verbotene Übergänge untersucht werden sollen und die Anzahl der gespeicherten Ionen in etwa 10^5 bis 10^7 beträgt, ist die zu erwartende Zählrate, insbesondere bei laserinduzierter Fluoreszenz, gering (eine Abschätzung ist in Abschnitt 2.3.3 gegeben). Des Weiteren verlangen der einsehbare, reduzierte Raumwinkel und eventuell kleine Anregungsquerschnitte eine möglichst hohe Quanteneffizienz des Detektors, um bei moderater Messzeit die höchstmögliche statistische Signifikanz zu erreichen.

Der hier verwendete experimentelle Aufbau zur Detektion der Fluoreszenzphotonen ist in Abb.

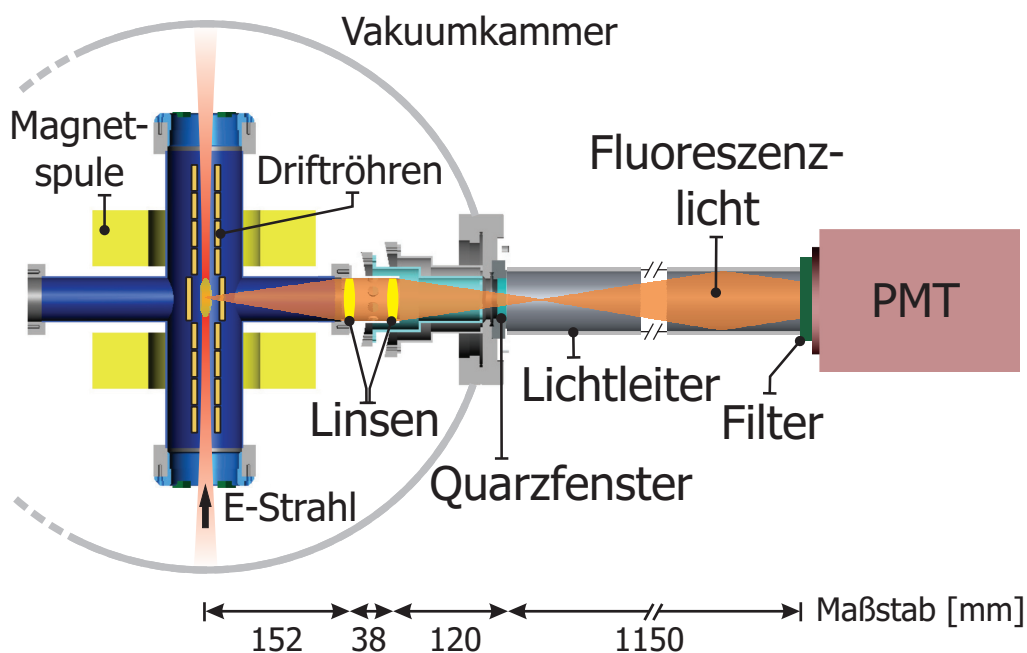


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung der Komponenten des Detektionssystems.

2.3. Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

2.10 dargestellt. Generell kann die in der HD-EBIT in den gesamten Raumwinkel emittierte Strahlung (z.B. Röntgenstrahlung, ultraviolettes Licht oder sichtbares Licht) durch zwei, auf gegenüberliegenden Seiten der HD-EBIT waagrecht verlaufenden, Öffnungen beobachtet werden. Da die hier untersuchten Übergänge im sichtbaren Bereich liegen (441.26 nm in Ar XIV und 530.29 nm in Fe XIV), ist das Detektorsystem auf der Seite der EBIT aufgebaut, die über ein Quarzfenster Zugang zum optischen Spektrum ermöglicht.

Zwei, sich im Vakuum der EBIT befindliche $f/4$ Quarzlinsen (\varnothing 38 mm, $f=150$ mm) sammeln das von den Ionen in der mittleren Driftröhre emittierte Licht und bilden es außerhalb der EBIT ab. Dadurch entsteht nach dem Vakuumfenster (Transmission 90 %) ein reelles Zwischenbild der zigarrenförmigen Ionenwolke. Eine zwischen Vakkumfenster und Detektor installierte, 1150 mm lange und innen hochpolierte Aluminiumröhre dient der hocheffizienten Weiterleitung der Photonen zu einer peltiergekühlten Photokathode eines Photomultipliers (PMT). Eine direkte Montage des PMT (Quanteneffizienz 15 % bei 440 nm) am Ausgangsfenster der EBIT ist nicht möglich, da das Streumagnetfeld des supraleitenden Magneten der EBIT eine störungsfreie Arbeitsweise des Detektors verhindern würde. Um die interessierende Wellenlänge zu selektieren und mögliches Fluoreszenzlicht anderer optischer Übergänge zu unterdrücken, dient ein direkt vor dem PMT installierter Interferenzfilter mit einer Transmission von 60 % und einer Bandbreite von 3 nm (FWHM) bei 442 nm (für Messungen an Ar XIV) bzw. 530 nm (für Messungen an Fe XIV). Der Akzeptanzwinkel des Filters beträgt 5° . Mit Hilfe dieser Filter wird sichergestellt, dass ausschließlich die untersuchte Spektrallinie beobachtet wird und Emissionslinien, die von anderen Ionen in der Falle (z.B. C, N, O, Ba, W), welche von Verunreinigungen her rühren, ausgeschlossen werden. Des Weiteren besteht die Aufgabe des Filters darin, das durch das Glühen der thermischen Kathode der EBIT bedingte Streulicht, zu reduzieren.

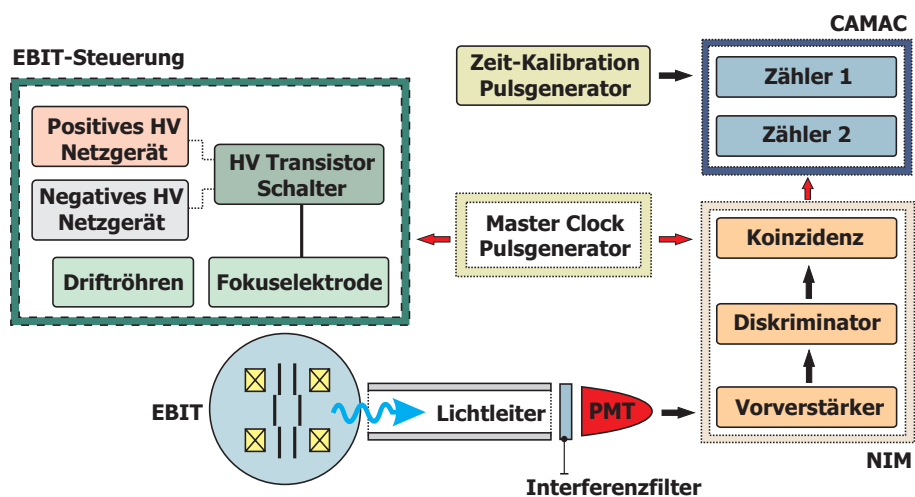


Abbildung 2.11: Übersicht über das Detektions- und Datenaufnahmesystem, das bei Elektronenstoßanregung zur Messung von Lebensdauern verwendet wurde.

Die durch die Fluoreszenzphotonen ausgelösten Pulse des PMT müssen mit einem geeigneten

Datenaufnahmesystem weiterverarbeitet werden. Zudem gilt es, das Ein- und Ausschalten des Elektronenstrahls mit der Datenaufnahme (*data acquisition*, DAQ) zeitlich zu korrelieren. Abb. 2.11 veranschaulicht das aufgebaute Datenaufnahmesystem. Die Pulse des PMT werden zunächst durch einen Vorverstärker geschickt, dann durch einen Diskriminator, der den Rauschanteil unterdrückt, weiterverarbeitet und zu einer Koinzidenzeinheit gesendet, die ein Zeitfenster (*Gate*) definiert, innerhalb dessen Daten aufgenommen werden. Der Zähler (*Scaler*) eines Mehrzweck CAMAC *event mode* Datenaufnahmesystem registriert die von der Koinzidenzeinheit weitergeleiteten Ereignisse. Die Zeitkalibration wird mittels eines zweiten Zählers, der die Pulse eines quartzstabilisierten digitalen Verzögerungs-/Pulsengenerators mit einer Taktfrequenz von 9 bzw. 20 kHz registriert, durchgeführt. Diese Frequenz definiert die Breite des Kanals (50 bzw. 111.11 μs), in den die registrierten Photonen eingeordnet werden und enthält zudem die zeitliche Information über die ankommenden Signale.

Die Akquisition der vom PMT kommenden Pulse erfolgt bei positiver Spannung des Gate-Pulses eines Mehrkanal-Funktionsgenerators, der als Haupttaktgeber fungiert und über einen weiteren Puls gleichzeitig den Hochspannungsschalter zum Schalten des Elektronenstrahls steuert. Die im Experiment definierte zeitliche Sequenz (Anregung durch Elektronenstrahl) ist in Abb. 2.12 A dargestellt. Ein Datenaufnahmezyklus beginnt kurz vor dem Ausschalten des Elektronenstrahls (typischerweise 20 ms vorher). Das Koinzidenzfenster gibt die Zeitdauer der Datenaufnahme vor, die üblicherweise kurz nach Wiederanschalten des Elektronenstrahls geschlossen wird. Während der Elektronenstrahls an ist, findet im Wesentlichen keine Datenaufnahme statt. Der Gesamtzyklus endet kurz vor dem erneuten Ausschalten des Elektronenstrahls. Die Zerfallskurven, aus denen sich letztendlich die Lebensdauer extrahieren lässt, entstehen durch Akkumulation vieler einzelner Messzyklen.

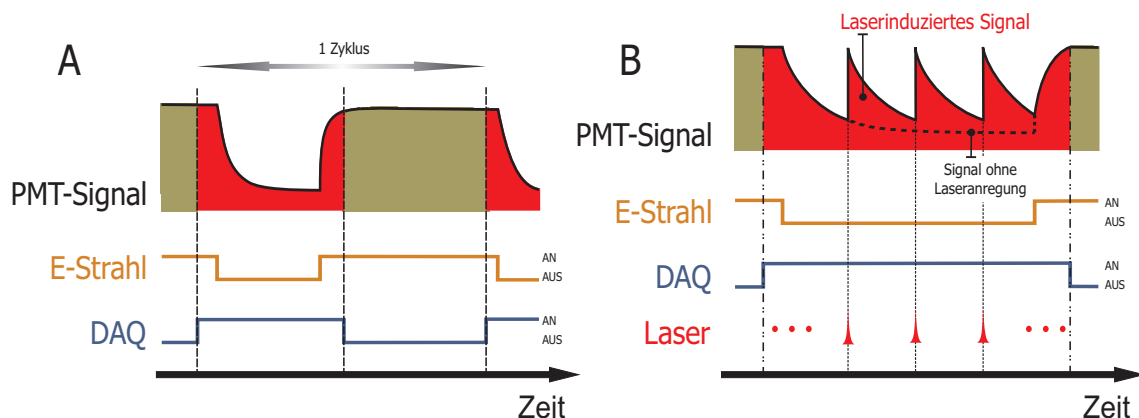


Abbildung 2.12: Messzyklus zur Lebensdauerermessung. (A) ohne Laser und (B) mit Laser.

Will man Lebensdauerermessungen mit Hilfe von Laseranregung durchführen, so erweitert sich die Datenaufnahmesequenz um den, den Laser betreffenden Teil. Das hier benutzte, gepulste Lasersystem, das ausführlich im nächsten Abschnitt aufgezeigt wird, liefert Laserpulse mit einer Dauer von 8 ns und einer Repetitionsrate von 100 Hz. In Abb. 2.12 B ist das Zeit-Schema der

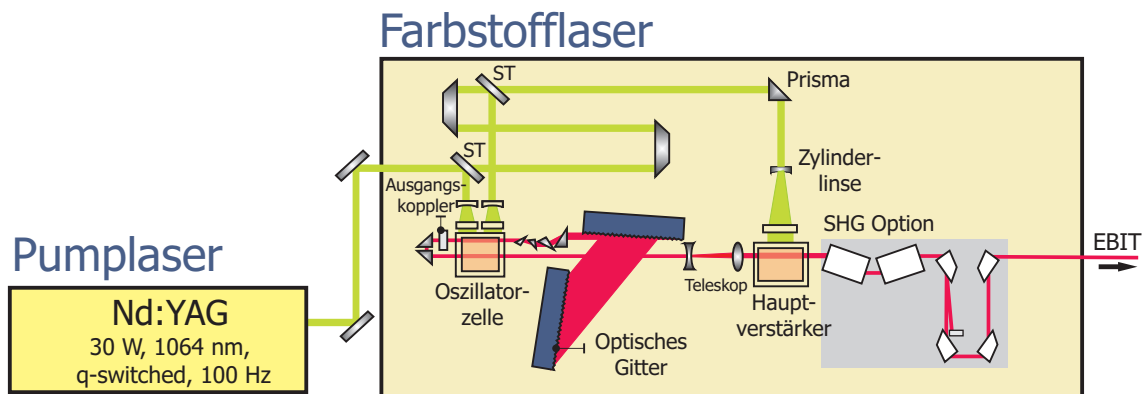


Abbildung 2.13: Übersicht über das Lasersystem, das bei den laserspektroskopischen Untersuchungen genutzt wurde.

Datenaufnahme und das zu erwartende Fluoreszenzsignal nach laserinduzierter Anregung gezeigt. Bezüglich der Datenaufnahme übernimmt bei diesem Messschema die Repetitionsrate des Lasers die Aufgabe des Haupttaktgebers. Hierzu wird ein Teil des Laserlichts auf eine schnelle Photodiode geleitet, die immer dann, wenn ein Laserpuls registriert wird (also mit 100 Hz) den oben bereits erwähnten Funktionsgenerator triggert, der daraufhin mit einer konstanten Rate, die einem (einstellbaren) Vielfachen der Wiederholungsrate des Lasers entspricht, den Datenaufnahmezyklus startet.

2.3.3 Aufbau und Charakterisierung des Lasersystems

Das hier verwendete Lasersystem besteht aus einem Nd:YAG Festkörperlaser, der als Pumplaser agiert und eine Repetitionsrate von 100 Hz hat, und einem durchstimmbaren Farbstofflaser. Eine ausführliche Beschreibung der Funktionsweise und der beiden Laser als auch deren Merkmale ist in [152] gegeben. Abb. 2.13 stellt die Laser schematisch dar. Das Lasersystem zeichnet sich vor allem durch seine Vielseitigkeit aus. Die Durchstimmbarkeit des Farbstofflasers über den gesamten optischen Bereich von 330 nm bis 900 nm im Normalbetrieb, der zudem unter Verwendung des *second harmonic generator* (SHG) bzw. *third harmonic generator* (THG) bis in den UV-, (205 nm) respektive tiefen UV-Bereich (189 nm) erweitert werden kann, macht die Untersuchung unterschiedlichster Übergänge in Atomen/Ionen mittels Laserspektroskopie möglich. Die mit dem gepulsten System einhergehenden hohen Ausgangsleistungen von 50 mJ/Puls im Sichtbaren bis 5 mJ/Puls bei 205 nm und einer Pulslänge von 8 ns erlauben neben der direkten Anregung verbotener Übergänge (laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie) auch die Anwendung nicht-linearer Spektroskopiemethoden, wie z.B. die Multiphotonenspektroskopie. Die Kenndaten der beiden Laser sind in Tabelle 2.3.3 zusammengefasst.

Um den in dieser Arbeit untersuchten elektrisch dipolverbotenen ($M1$) Übergang $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - 2P_{3/2}^o$ in aluminiumartigem Ar XIV mit einer Übergangswellenlänge von $\lambda = 441.256$ nm mittels des Lasers anzuregen, muss ein geeigneter Farbstoff gewählt werden, der es erlaubt, den Farbstofflaser auf die Übergangswellenlänge abzustimmen. Der hier zum Einsatz kommende Farbstoff ist

A Nd:YAG-Laser		
Wellenlänge [λ]	Pulsdauer [ns]	Pulsenergie [mJ]
1064	8-9	325
532	6-7	120
355	5-6	50
Linienbreite		$\Delta\nu \simeq 30$ GHz
Repetitionsrate		100 Hz
Strahldivergenz		< 0.5 mrad
B Farbstofflaser		
Wellenlängengenauigkeit		< 30 pm
Wellenlängenstabilität		2 pm/ $^{\circ}$ C
Divergenz (typisch)		0.5 mrad
Polarisation		$> 98\%$ (vertikal)
ASE (amplified stimulated emission)		< 0.5 %
Linienbreite $\Delta\nu$		0.04 cm $^{-1} \simeq 1.2$ GHz

Tabelle 2.1: Kenndaten des Nd:YAG-Lasers (*Spectra Physics*) und des Farbstofflasers (*Sirah Dye Precision Scan*).

das Coumarin 120 (Wellenlängenbereich 429 nm . . . 460 nm, Pumpwellenlänge 355 nm), dessen Konversionseffizienz bei 441 nm maximal ist und 13% beträgt. Somit beläuft sich die maximale Pulsenergie des Farbstofflasers, bei einer Linienbreite von $\Delta\nu_L = 1.2$ GHz, auf ca. 6.5 mJ.

Kalibrierung des Farbstofflasers

Die Einstellung der Wellenlänge durch die Beugungsgitter ist nur auf etwa 60 ppm genau. Eine wesentlich exaktere Kalibrierung der Laserwellenlänge wird über die Methode der optogalvanischen Spektroskopie (OGS) durchgeführt. Diese nutzt den optogalvanischen Effekt aus, nämlich, dass sich der Strom bei einer Gasentladung abhängig von der Besetzungszahl eines Niveaus N_k geringfügig ändert.

Das Laserlicht des Farbstofflasers wird dabei auf eine gasgefüllte Entladungszelle (Hohlkathodenlampe) geschickt, deren Entladungsstrom das optogalvanische Signal darstellt. Wird die Laserfrequenz ν_L resonant auf einen Übergang $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$ des Entladungsgases eingestellt, so ändert sich aufgrund der Anregung die Besetzungszahldichte N_k der Gasatome. Gleichzeitig erhöht sich bei gleichbleibender Entladungsspannung wegen der niedrigeren Bindungsenergie der angeregten Elektronen und der damit verbundenen größeren Ionisierungswahrscheinlichkeit der Entladungsstrom der Zelle. Da die Übergänge der einfach ionisierten Gasatome bekannt sind, können durch Durchstimmen der Laserfrequenz über einen größeren Wellenlängenbereich (mehrere Resonanzen) und gleichzeitige Aufnahme des Entladungsstroms Referenzlinien aufgenommen werden, die der Kalibrierung der Laserwellenlänge dienen. Je nach Füllgas der Entladungszelle lassen sich verschiedene Wellenlängenbereiche abdecken.

2.3. Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

Abb. 2.14 zeigt ein typisches Kalibrationsspektrum, wie es sich bei Verwendung einer mit Neon gas gefüllten Fe-Hohlkathodenlampe ergibt. Die Laserwellenlänge wurde dabei über einen großen Bereich in 0.001 nm Schritten variiert. Die im Diagramm ebenfalls eingezeichneten Datenpunkte sind Ergebnisse der Gaußschen Fitfunktionen, die verwendet wurden, um die Peakposition der Linienprofile zu bestimmen. Die hier identifizierten Linien sind alle dem Ne I zuzuschreiben. Es lassen sich auch weitere Linien des Spektrums identifizieren, die Kennzeichnung dieser Linien ist der Übersicht wegen jedoch nicht aufgezeigt.

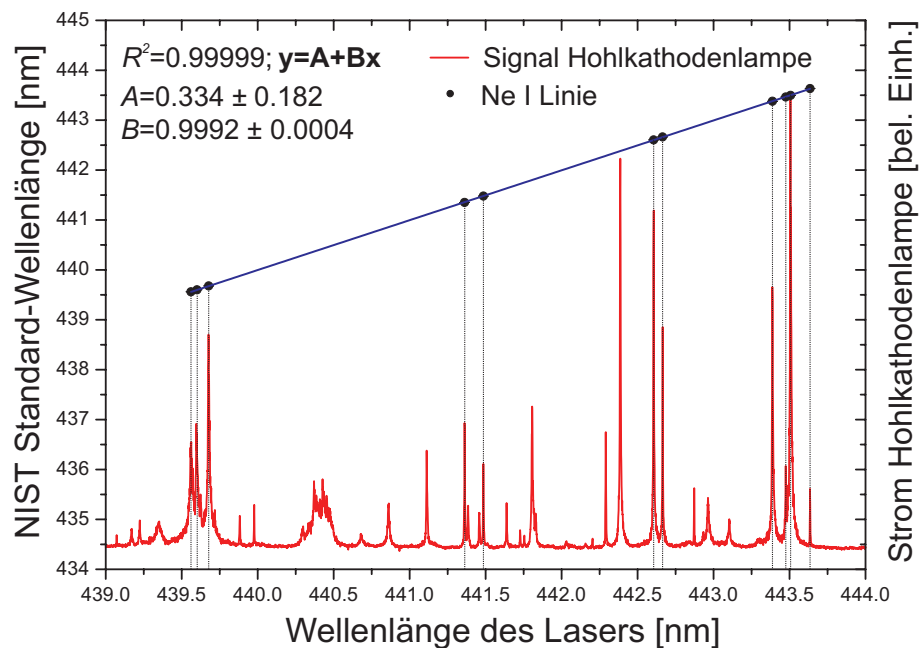


Abbildung 2.14: Kalibrationsspektrum mit einer Neongefüllten Fe-Hohlkathodenlampe. Das Verfahren der Laserwellenlänge über einen solch großen Bereich verläuft extrem linear, wie der Fit einer Geraden durch die Datenpunkte zeigt.

Strahlführung des Lasers zur EBIT

Der Strahlengang des Lasers zur Anregung der Ionen in der EBIT ist in Abb. 2.15 aufgezeigt. Sowohl der Aufbau der Strahlführung als auch die Entwicklung einer Vakuumkammer zur Einkopplung des Strahls in das Vakuumsystem und gleichzeitiger Fokussierung auf das Fallenzentrum wurde im Rahmen einer Diplomarbeit entwickelt [152]. In dieser ist auch eine ausführliche Beschreibung der einzelnen Komponenten aufgeführt, weswegen im Folgenden nur die für das Experiment wesentlichen Punkte herausgearbeitet und beschrieben werden.

Nach Austritt aus dem Farbstofflaser und Aufweitung bzw. Kollimierung durch ein Linsensystem werden 10% des Laserstrahls zu einer Hohlkathodenlampe geleitet, die der Durchführung der optogalvanischen Spektroskopie dient und die Kalibration des Farbstofflasers ermöglicht. Der Hauptstrahl wird über eine geeignete Wanddurchführung vom Laserlabor in das benachbarte

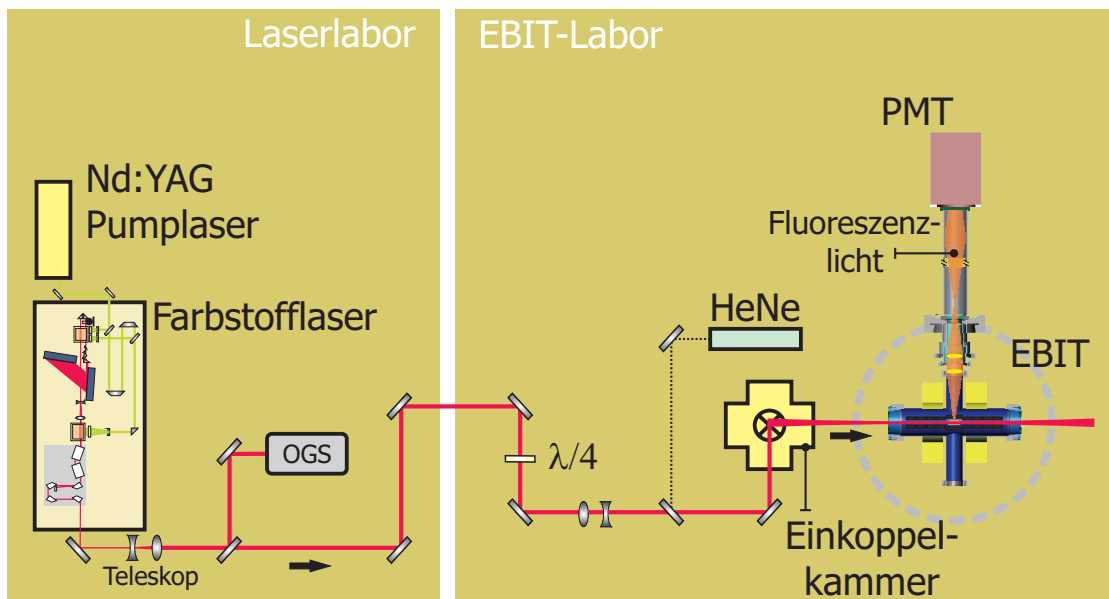


Abbildung 2.15: Schematische Darstellung des Strahlengangs.

EBIT-Labor geführt, wo er auf einen, über der Extraktions-Strahlführung der EBIT installierten, optischen Tisch gelangt. Nach Passieren eines Lambda-Viertel Plättchens und Reduzierung des Strahldurchmessers um einen Faktor 2 mit Hilfe eines Galilei'schen Teleskopsystems wird der Strahl durch ein Loch in der Platte des optischen Tisches auf die unter dem Tisch befindliche Vakuumkammer gelenkt und über ein Quarzfenster in das Vakuumsystem eingekoppelt. Die Anordnung zur Einkopplung in das Vakuumsystem ist in Abb. 2.16 als vertikaler Schnitt schematisch dargestellt. Zur Einkopplung des Laserstrahls dient eine Vakuumkammer, die direkt mit dem Ultrahochvakuumsystem der EBIT verbunden ist.

Der Aufbau dieser Kammer erfüllt im Wesentlichen zwei Zwecke: (a) Umlenken des vertikal verlaufenden Laserstrahls in eine horizontale Lage und (b) Fokussierung des Strahls auf die Elektronenstrahlachse in Richtung Fallenzentrum, um die zur direkten Anregung verbotener Übergänge nötigen Intensitäten zu erzielen. Der kollimierte Laserstrahl trifft auf einen, über der Kammer mit einer Justagevorrichtung angebrachten 90° off-axis Parabolspiegel mit Brennweite $f_1 = 25.4$ mm und wird im Brennpunkt $F1$ fokussiert. Ein zweiter 90° off-axis Parabolspiegel mit einer sechsmal größeren Brennweite $f_2 = 152.4$ mm reflektiert den Strahl um 90° und fokussiert ihn bei entsprechendem Abstand der Spiegel im Punkt $F2$. Dieser zweite Spiegel ist so orientiert, dass der im Brennpunkt $F1$ fokussierte Strahl genau dann achsenparallel reflektiert wird, wenn der Brennpunkt $F1$ des ersten off-axis Parabolspiegels mit der Brennweite f_2 des zweiten Parabolspiegels zusammenfällt. Ist dies nicht der Fall, so wird der Strahl abhängig vom Abstand der beiden Parabolspiegel fokussiert bzw. divergent reflektiert. Stellt man den Abstand so ein, dass die Abstandsweite zwischen Brennpunkt $F1$ und dem zweiten Parabolspiegel größer ist als die Brennweite f_2 , so kommt es zu einer Fokussierung des Laserstrahls im Punkt $F2$. Durch Variation des Abstandes

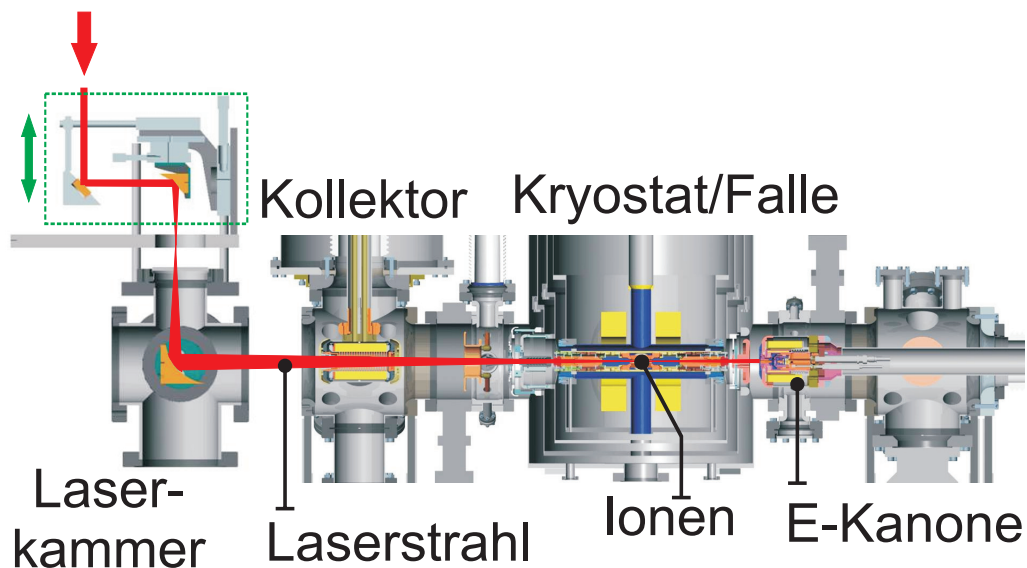


Abbildung 2.16: Dargestellt ist ein vertikaler Schnitt durch die Apparatur. Zu sehen ist links die Vakuumkammer zur Einkopplung des Laserstrahls mit dem im Vakuum montierten 90° off-axis Parabolspiegel, der den Laserstrahl horizontal in die EBIT fokussiert.

der beiden Spiegel voneinander kann der Fokuspunkt auf der Strahlachse verschoben werden. Das Justageverfahren, das den Laserstrahl mit minimal möglicher Streulichterzeugung und maximaler Intensität in der Fallenmitte auf die dort gespeicherten Ionen treffen läßt, ist in [152] beschrieben. Nach Durchlaufen der Fallenregion trifft der Laserstrahl auf die Elektronenkanone, die als Strahlstopp wirkt. Zur Kontrolle, ob der Laserstrahl die EBIT verlustfrei durchläuft, dient ein mit Hilfe eines Längsverschiebemanipulators ein- und ausfahrbarer Spiegel, über den das Laserlicht vor der Elektronenkanone ausgekoppelt und diagnostiziert werden kann.

Streulichtunterdrückung

Die Geometrie des oben gezeigten Aufbaus zur Strahlführung und Fokussierung des Laserstrahls in das Fallenzentrum der EBIT ist prinzipiell so ausgelegt, dass beim Einkoppeln des Laserstrahls in die EBIT und Durchlaufen der Driftröhren möglichst wenig Streulicht entsteht bzw. den hoch empfindlichen Detektor erreicht. Dennoch zeigten erste Messungen, dass selbst bei optimaler Justage des Laserstrahls, d.h. bei nahezu verlustfreiem Passieren der Driftröhrenregion, der Anteil der an der Elektronenkanone gestreuten Photonen groß genug ist, um den PMT nachhaltig zu sättigen (selbst bei einer Pulsenergie von nur 2 mJ und einer Repetitionsrate von 100 Hz passieren etwa 4×10^{17} Photonen pro Sekunden die Falle). Dieser Umstand verhindert die einwandfreie Funktion des Detektorsystems, die bei den zu erwartenden, niedrigen Signalmraten bei Anregung verbotener Übergänge hochgeladener Ionen unabdingbar ist.

In Abb. 2.17 A ist ein Ausschnitt der zeitlichen Aufnahme der Dunkelzählrate des PMT, der mit einer Kathodenspannung von $V_K = 1250$ V betrieben wurde, zu sehen. Bei dieser Spannung beträgt die Dunkelzählrate typischerweise etwa 30 c/s. Im Diagramm aufgetragen ist die Anzahl der

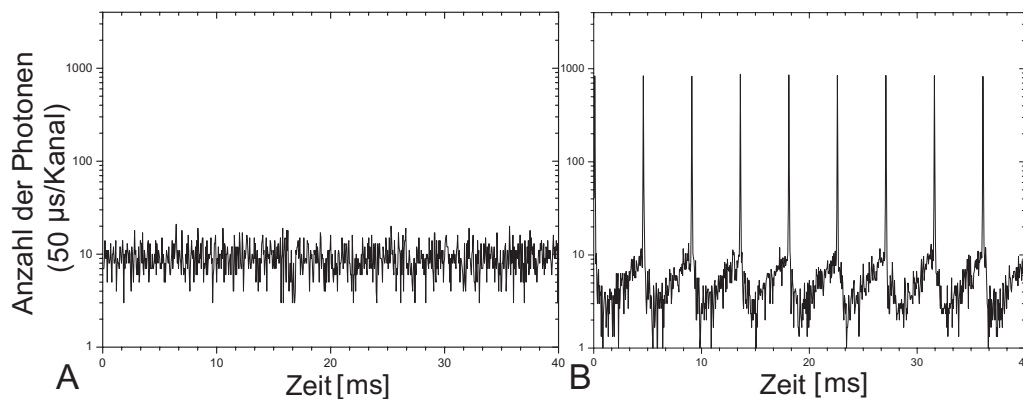


Abbildung 2.17: Untergrundzählrate des PMT bei ausgeschalteter EBIT und ohne Laser (A) sowie bei eingekoppeltem Laserstrahl (B). Die Ereignisse sind über 2 Stunden hinweg akkumuliert.

pro Kanal registrierten Photonen, wobei die Kanalbreite $50 \mu\text{s}$ beträgt. Die Messung wurde bei abgeschalteter EBIT und geschlossenem Gasinjektor durchgeführt, so dass sich keine Ionen in der Falle befanden, die in irgendeiner Weise zum Signal hätten beitragen können. Die Daten wurden insgesamt 2 Stunden lang akkumuliert. Zu sehen ist ein konstantes Hintergrundsignal, das statistisch fluktuiert.

Die Messung wurde bei Anwesenheit des Laserstrahls in der Falle wiederholt, wobei die Wellenlänge des Lasers auf das Transmissionsmaximum des vor dem PMT installierten Interferenzfilters abgestimmt ist. Bei vollständiger Unterdrückung des Streulichts würde man bei gleichbleibender Messdauer keine Änderung zur vorangegangenen Messung erwarten. Es ergibt sich jedoch Abb. 2.17 B. Deutlich zu erkennen ist eine Peakstruktur, die äquidistant im Abstand von 10 ms auftaucht, und welche die Repetitionsrate des gepulsten Lasers (100 Hz) widerspiegelt. Das pro Laserpuls (Dauer $t_p = 9 \text{ ns}$) entstehende Streulicht wird innerhalb einer Kanalbreite von $50 \mu\text{s}$ registriert. Weiterhin ist unmittelbar nach dem Laserpuls ein Signaleinbruch zu erkennen, was auf die Sättigung des PMT deutet. Bei Verminderung der Laserleistung reduziert sich zwar die Rate, mit der die Peaks anwachsen, das Gesamtverhalten – insbesondere die Sättigung des PMT – ändert sich jedoch nicht. Da das gesamte Streulicht innerhalb einer Zeitdauer von 100 ns auftritt, und die zu untersuchenden Lebensdauern sehr viel länger sind, besteht die Möglichkeit, durch negatives Schalten der ersten Dynodenspannung des PMT mit Hilfe eines schnell schaltbaren Hochspannungsgeräts, den Detektor für die Zeitdauer einiger $100 \mu\text{s}$ „blind“ zu machen. Es stellte sich jedoch heraus, dass aufgrund der hohen Laserleistung, die Zahl der gestreuten Photonen so groß ist, dass das Schalten des PMT nicht ausreicht, um die detektierte Streulichtrate effizient genug zu unterdrücken. Dies wird sowohl auf die Sättigung der Photokathode als auch auf die große Anzahl von Sekundärelektronen, die trotz negativer ersten Dynode die nachfolgenden Dynoden erreichen können und letztendlich einen Signalpuls auslösen, zurückgeführt.

Aus diesem Grund wurde im Zuge dieser Arbeit ein mechanisches Verschlussystem entwickelt, das die Streulichtphotonen am Erreichen des Detektors hindert, und damit die einwandfreie Funktionstüchtigkeit des PMT gewährleistet. Da die Repetitionsrate des Lasers 100 Hz beträgt, muss

2.3. Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

das System in der Lage sein, alle 10 ms den Zugang der Photonen zum Detektor zu verschließen. Dabei sollte die Verschlusszeit so kurz wie möglich gehalten werden, um über eine möglichst große Zeitspanne zwischen zwei aufeinander folgenden Laserpulsen Fluoreszenzphotonen zur Bestimmung der Lebensdauer aufnehmen zu können. Des Weiteren sollte der Verschlusszeitpunkt über mehrere Stunden frequenzstabil und synchronisiert mit dem Laserpuls gehalten werden können.

Die hier gewählte Methode ist die Nutzung eines mechanischen Unterbrecherrads – im Folgenden *Chopperrad* genannt –, das den entsprechenden geometrischen und experimentellen Anforderungen genügt. Der Gesamtaufbau zur Streulichtunterdrückung ist in Abb. 2.18 zu sehen.

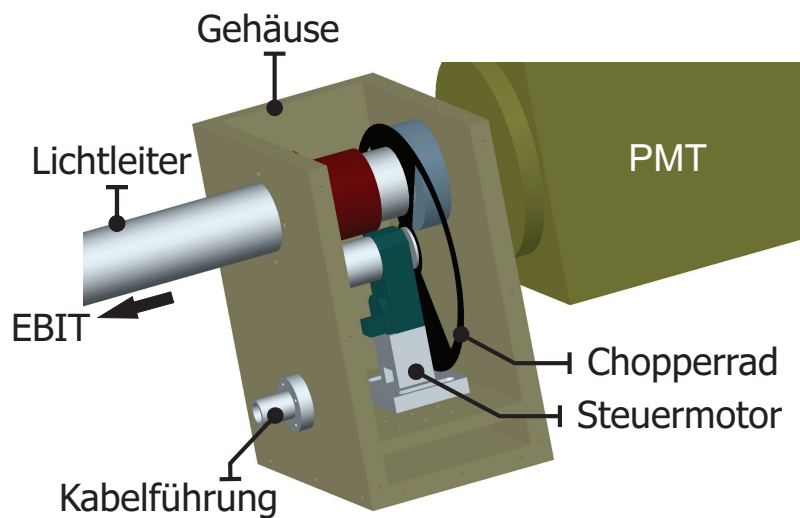


Abbildung 2.18: Der Gesamtaufbau zur Streulichtunterdrückung. Das Chopperrad und der Steuermotor sind in einem lichtundurchlässigen Gehäuse untergebracht.

Das Herzstück des Aufbaus stellt das zweiblättrige Chopperrad dar, das einen Durchmesser von 180 mm und eine Dicke von 1 mm besitzt. Der Öffnungswinkel der beiden Flügelblätter und der Durchmesser des Rads sind so dimensioniert, dass die Blätter die Öffnung des lichtleitenden Aluminiumrohrs vollständig verdecken können. Die Drehfrequenz f_C des Chopperrads entspricht der Hälfte der Repetitionsrate des Lasers, also 50 Hz, was zu einer Signalunterbrechungsrate von 100 mal pro Sekunde führt ($2 \text{ Blätter} \times f_C$). Die Drehfrequenz wird mit Hilfe einer photosensitiven Infrarotdiode, deren Empfangssignal durch das sich drehende Chopperrad unterbrochen wird, überwacht. Das Rad ist mitsamt des Steuermotors in einem lichtundurchlässigen Gehäuse fest installiert, während das Gehäuse auf der detektorzugewandten Seite über eine Öffnung mit dem PMT und auf der EBIT-Seite mit dem Lichtleiterrohr verbunden ist. Das Chopperrad und die theoretisch berechnete Öffnungsfunktion $g(t)$ sind in Abb. 2.19 dargestellt.

Die zeitliche Synchronisation und der Phasenabgleich mit dem Laserpuls gelingt mit Hilfe des Frequenzmonitorsignals des Chopper-Steuergeräts, das mit der aktuellen Chopperfrequenz ein TTL

Signal ausgibt, das den Q-Switch des Pumpasers triggert, welcher den Laserpuls auslöst. Um die Phase zwischen Laserpuls und Chopperrad anpassen zu können, wird das TTL Signal so verzögert, dass das Verdecken der Durchgangsöffnung zum PMT zeitgleich mit der Anwesenheit des Laserpulses stattfindet. Da das Steuergerät eine maximale Chopperfrequenz von 99 Hz zulässt, wird der Laser ebenso mit einer Repetitionsrate von 99 Hz betrieben.

Abb. 2.20 zeigt das Untergrundsignal des PMT bei Anwesenheit des Lasers und ausgeschalte-

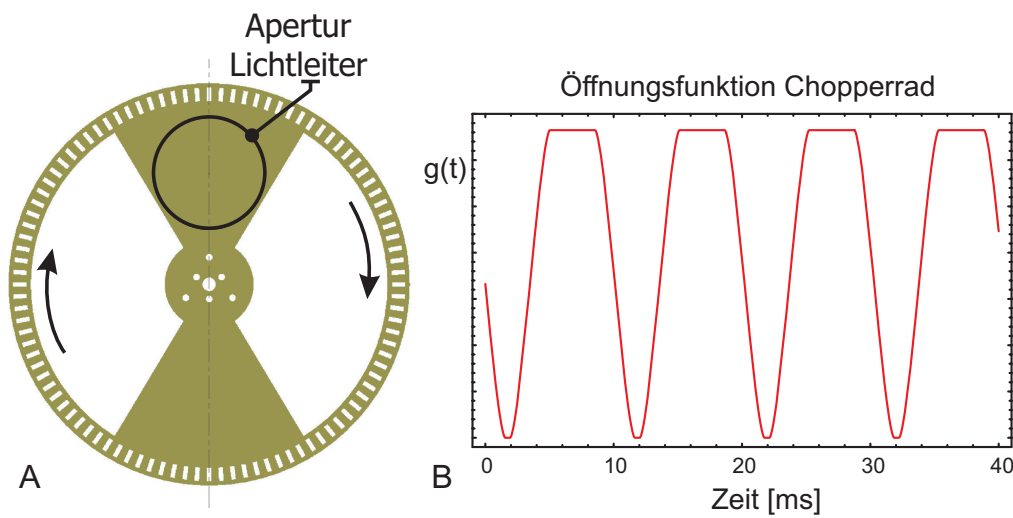


Abbildung 2.19: Das Chopperrad (A) und die theoretisch berechnete Öffnungsfunktion (B) bei einer Unterbrechungs-frequenz von 100 Hz.

ter EBIT, wobei nun das Laserstreulicht mit Hilfe des Chopperrads erfolgreich unterdrückt ist. Auch bei dieser Messung wurden die Ereignisse über 2 Stunden akkumuliert. Die periodische Untergrundstruktur ist auf ein elektronisches Übersprechen des PMT mit dem Chopperrad (Motor) zurückzuführen, da die Struktur auch dann auftritt, wenn der Detektor und die Choppereinheit vollständig abgekoppelt und isoliert von der EBIT betrieben werden. Das sehr nahe am PMT montierte Chopperrad verursacht eine periodisch leicht erhöhte Untergrundzählrate, die sich trotz entsprechender Erdung und Entkopplung beider Geräte nicht vollständig beseitigen ließ.

Die experimentell aufgenommene Öffnungsfunktion ist in Abb. 2.21 zu sehen. Für diese Messung wurde Argongas in die Falle injiziert und die Elektronenstrahlenergie so eingestellt, dass sich Ar^{13+} Ionen in der Falle befinden, welche bei konstant angeschaltetem Elektronenstrahl durch Elektron-Ion Stöße vom $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o$ Grundzustand aus in das metastabile $2P_{3/2}^o$ Niveau angeregt werden und sich nach einer mittleren Lebensdauer von ca. 10 ms unter Aussendung von Fluoreszenzphotonen der Wellenlänge 441.26 nm wieder abregen. Diese Photonen gelangen über den Lichtleiter durch den Interferenzfilter und das Gehäuse des Chopperrads zum PMT. Der Laser durchläuft die Fallenregion und ist auf eine Laserwellenlänge von 441 nm eingestellt, so dass die Wellenlänge der Streulichtphotonen innerhalb der Bandbreite des Interferenzfilters liegt. Der Phase zwischen Laserpuls und Verschlussstellung des Chopperrads wurde sinngemäß angepasst.

Das eigentlich zeitlich konstante Fluoreszenzsignal der Ar^{13+} -Ionen wird durch den Chopper periodisch unterbrochen, so dass sich im Abstand von 10 ms ein symmetrischer Einschnitt im

2.3. Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

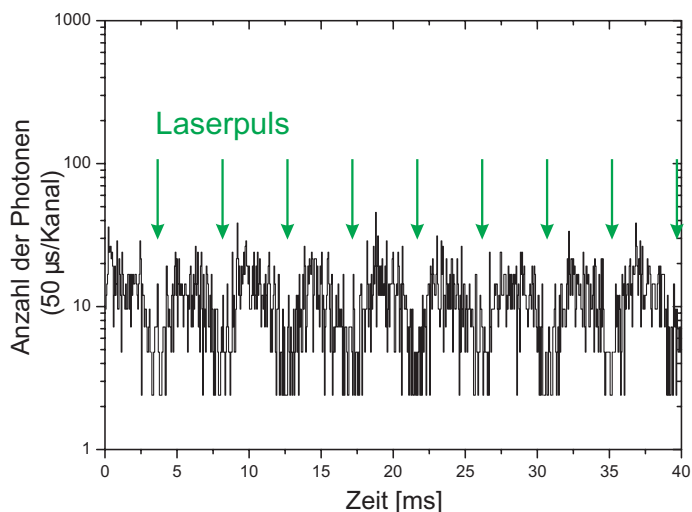


Abbildung 2.20: Die Untergrundzählrate des PMT bei Anwesenheit des Lasers und ausgeschalteter EBIT (Aufnahmezeit 2 Stunden). Die periodische Struktur ist auf ein elektronisches Übersprechen des PMT mit dem Chopperrad zurückzuführen.

aufgenommenen Signal ergibt. Die zeitliche Lage des Laserpulses stimmt mit den periodischen Signalminima überein. Die Signalform – insbesondere das Plateau – entspricht der Erwartung, da die Laserwellenlänge nicht auf die Resonanzenergie des Übergangs abgestimmt war und die Fluoreszenzphotonen allein auf die Stoßanregung des Elektronenstrahls zurückzuführen sind.

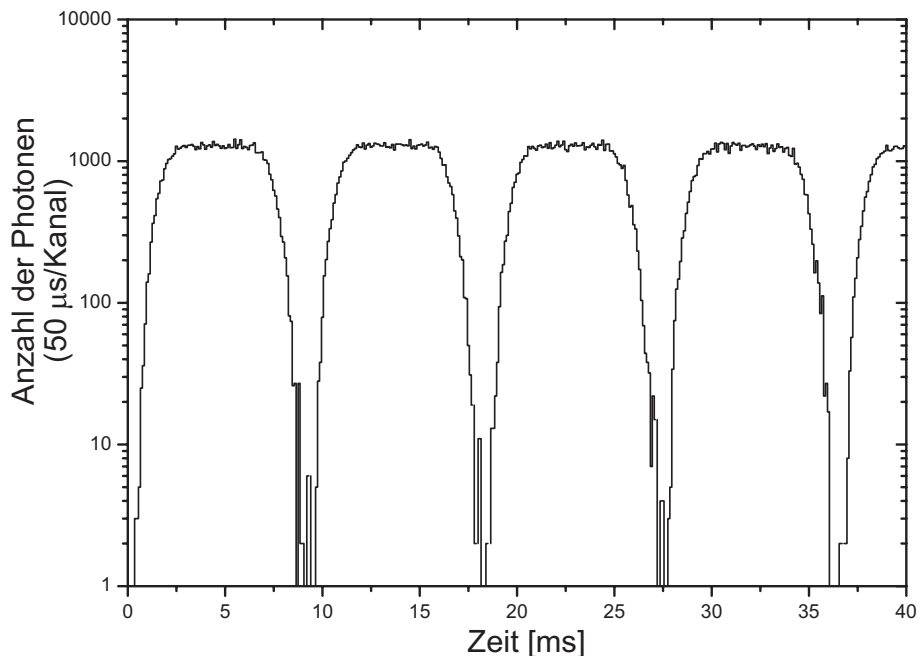


Abbildung 2.21: Messung der Öffnungsfunktion des Chopperrads bei Anwesenheit des Lasers in der EBIT und konstanter Emission von Fluoreszenzlichts des $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - P_{3/2}^o$ Übergangs in Ar^{13+} bei einer Wellenlänge von 441.26 nm.

Abschätzung der Signalrate bei Laseranregung der verbotenen Übergänge in der EBIT

Unter Berücksichtigung der experimentellen Parameter und der spektralen Eigenschaften des eingesetzten Lasers kann die Anregungswahrscheinlichkeit für einen bestimmten Übergang berechnet werden. Dies ermöglicht unter Hinzunahme der Effizienz des Detektorsystems und der spontanen Zerfallsrate die Bestimmung der zu erwartenden Signalrate.

Repräsentativ für weitere elektrisch dipolverbotene Übergänge wird dies im Folgenden am magnetischen Dipolübergang (M1) $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - P_{3/2}^o$ in Ar XIV durchgeführt.

Die experimentell bestimmte Wellenlänge des M1-Übergangs ist mit $\lambda = 441.2559(1)$ nm angegeben [22]. Eine relativistische Berechnung ergibt für den Einsteinkoeffizienten A_{ik} der spontanen Emission den Wert $A_{ik} = 100.4 \text{ s}^{-1}$ [153]. Somit ist die theoretisch berechnete Lebensdauer des $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ - Zustands gegeben durch das Inverse des Einsteinkoeffizienten A_{ik}

$$\tau = \frac{1}{A_{ik}} \approx 10 \text{ ms.} \quad (2.24)$$

Die natürliche Linienbreite hängt von der Lebensdauer τ des angeregten Zustands ab. Wegen der sehr langen Lebensdauer hat der Übergang mit

$$\Delta\nu_N = \frac{1}{2\pi\tau} \approx 16 \text{ Hz} \quad (2.25)$$

ein extrem schmale natürliche Linienbreite.

Die thermische Bewegung der Ionen in der Falle verursacht eine Verbreiterung der beobachteten Linienbreite (Dopplerverbreiterung). Die Breite der Resonanzkurve ist von der Temperatur der Ionen abhängig, die bei einem Elektronenstrahlstrom von $I_e = 50 \text{ mA}$ und einem nicht zu tiefen axialen Fallenpotential (50-100 eV) typischerweise als

$$T_{\text{ion}} \approx 100 \text{ eV} = 1.2 \times 10^6 \text{ K} \quad (2.26)$$

angenommen werden kann. Die Halbwertsbreite ist somit gegeben durch

$$\Delta\nu_D = 7.16 \cdot 10^{-7} \nu_0 \sqrt{\frac{T_{\text{ion}}[\text{eV}]}{M}} \approx 84 \text{ GHz}, \quad (2.27)$$

mit $\nu_0 = 6.8 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$ der Resonanzfrequenz des Übergangs und M der Atommasse von Argon ($M = 40$). Da die Linienbreite des Lasers

$$\Delta\nu_L = 1.2 \text{ GHz} \quad (2.28)$$

beträgt und somit um einen Faktor 70 kleiner als die Dopplerbreite ist, hat dies zur Folge, dass nur die Ionen resonant angeregt werden, deren dopplerverschobene Resonanzfrequenz $\nu_L = \nu_0 - \mathbf{k}\mathbf{v}$ sich innerhalb der Linienbreite des Lasers befindet (inhomogene Verbreiterung). Dies ist in Abb. 2.22 schematisch veranschaulicht.

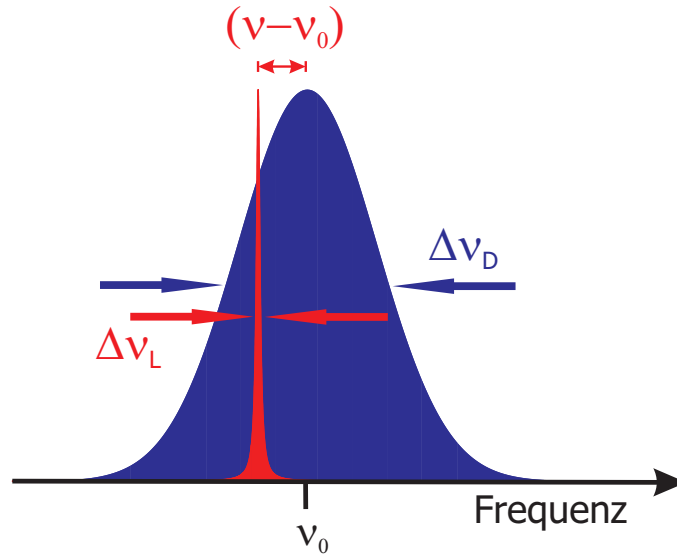


Abbildung 2.22: Spektrale Verteilung des Laserpulses (rot) im Vergleich mit der dopplerverbreiterten Resonanzkurve (blau). Nur der Anteil der Ionen, deren Geschwindigkeit es zulässt, wechselwirkt mit dem Laserlicht und kann angeregt werden.

Die Signalrate berechnet sich allgemein durch

$$R(\nu) = N_0 \cdot \sigma(\nu) \cdot \Phi(\nu) \cdot f_L \cdot \eta_D, \quad (2.29)$$

wobei N_0 die Anzahl der Ionen in der Falle darstellt, $\sigma(\nu)$ der frequenzabhängige Anregungswirkungsquerschnitt unter Berücksichtigung der Dopplerverbreiterung des Übergangs ist und $\Phi(\nu)$ den spektralen Photonenfluss des Laserpulses beschreibt. η_D bezeichnet die Detektionseffizienz und f_L die Repetitionsrate des gepulsten Lasers.

Der frequenzabhängige Photonenfluss ist gegeben durch

$$\Phi(\nu) = \frac{n_p(\nu)}{A} \cdot \frac{2\sqrt{2\ln 2}}{\sqrt{2\pi}\Delta\nu_L} \exp\left[-\left(\frac{(\nu - \nu_0)2\sqrt{2\ln 2}}{\Delta\nu_L}\right)^2\right]. \quad (2.30)$$

Hierbei gibt A die Querschnittsfläche an, durch die die Photonen fließen, und $n_p(\nu)$ ist die Anzahl der Photon bei einer bestimmten Laserenergie. Die Laserintensität ist über einen Frequenzbereich verteilt, der durch die Breite der Laserlinie gegeben ist und durch ein Gaussprofil dargestellt wird. Geht man von einer vollständigen Überlappung bei entsprechender Fokussierung des Laserstrahls mit dem Fallenvolumen aus und nimmt einen Durchmesser der Ionenwolke von $500 \mu\text{m}$ an, so ergibt sich für einen kreisförmigen Querschnitt $A = \pi r^2 \approx 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$.

Die Anzahl der Photonen $n_p(\nu)$ pro Laserpuls lässt sich aus der Pulsenergie des Lasers berechnen:

$$n_p(\nu) = \frac{E_{\text{Puls}}}{E_{\text{Photon}}(\nu)} \quad (2.31)$$

Die Pulsenergie ist durch die Parameter des Nd:YAG Lasers und die Effizienz des verwendeten Farbstoffs gegeben. Das verwendete Coumarin 120 hat sein Effizienzmaximum von 13 % bei

der Wellenlänge $\lambda \approx 441$ nm, was im Resonanzbereich des zur Abschätzung exemplarisch verwendeten Übergangs liegt. Man erhält eine maximale Pulsenergie am Ausgang des Lasers von $E_{\text{puls}} = 6.5$ mJ. Reflektions- und Transmissionsverluste durch optische Elemente auf dem Weg zur Fallenregion der EBIT reduzieren die im Fallenzentrum zur Verfügung stehende Pulsenergie um ca. 60 % auf 3 mJ.

Der Absorptionswirkungsquerschnitt $\sigma(\nu)$ eines inhomogen verbreiterten (hier dopplerverbreitert) Mediums ist im Allgemeinen frequenzabhängig und kann durch eine Gaußförmige Verteilung dargestellt werden [154]:

$$\sigma(\nu) = \frac{\lambda^2}{8\pi\tau} \frac{2\sqrt{2\ln 2}}{\sqrt{2\pi}\Delta\nu_D} \exp \left[- \left(\frac{(\nu - \nu_0)2\sqrt{2\ln 2}}{\Delta\nu_D} \right)^2 \right]. \quad (2.32)$$

Da die Ionen die Fluoreszenzphotonen in alle Richtungen emittieren, der Detektor aber nur einen Teil des gesamten Raumwinkels erfassen kann, muss bei der Abschätzung der zu erwartenden Signalrate der effektive Nachweisraumwinkel beachtet werden. Dieser berechnet sich bei den im Experiment gegebenen geometrischen Verhältnissen zu $\Omega_{\text{eff}} = 4 \times 10^{-3}$. Unter Berücksichtigung der Quanteneffizienz des PMT (15% bei der Wellenlänge 440 nm), der Transmissionseffizienz der optischen Elemente und der zur Weiterleitung der Photonen zum Photomultiplier verwendeten Aluminiumröhre (40 %), ergibt sich eine Gesamtnachweiseffizienz von $\eta_D = 8 \times 10^{-5}$. Des weiteren hängt die Rate quadratisch vom Überlapp des Laserstrahls mit der Ionenwolke ab.

Bei einer Laserenergie von 3 mJ (Pulslänge $t_p = 9$ ns), einer typischen Anzahl von $N_0 = 10^6$ Ionen mit einer Iontemperatur von 100 eV, und Abstimmung des Lasers auf die unverschobene Resonanzfrequenz ν_0 – hier ist der Wirkungsquerschnitt der Anregung am größten –, ergibt sich bei vollständigem Überlapp des Laserstrahls mit den Ionen und einer Pulsrepetitionsrate von $f_L = 100$ Hz nach Gleichung (2.29) und Integration über die volle spektrale Halbwertsbreite des Laserpulses eine maximale Zählrate pro Sekunde am PMT von:

$$\begin{aligned} R &= N_0 \int_{\nu_0 - 0.5\Delta\nu_L}^{\nu_0 + 0.5\Delta\nu_L} \sigma(\nu)\Phi(\nu) d\nu \cdot f_L \cdot \eta_D \\ &= 10^6 \cdot 0.17 \cdot 100 \cdot 8 \times 10^{-5} \\ &\approx 1.3 \text{ kHz} . \end{aligned} \quad (2.33)$$

Diese Rate sollte prinzipiell für den Nachweis der laserinduzierten Fluoreszenzphotonen und zur Bestimmung der Lebensdauer eines metastabilen Niveaus bzw. zur laserspektroskopischen Untersuchung von Resonanzenergien verbotener Übergänge in hochgeladenen Ionen ausreichend sein, sie hängt jedoch stark von den gegebenen experimentellen Parametern, wie der Laserenergie E_L , der Iontemperatur T_{ion} , und dem Überlapp des Lasers mit den Ionen, ab. In Abb. 2.23 ist die berechnete Rate für verschiedene Iontemperaturen in Abhängigkeit von der Laserenergie, bzw. des Fokussdurchmessers des Laserstrahls in 3-dimensionaler Darstellung aufgetragen. Als Durchmesser der Ionenwolke wurde der bereits oben erwähnte Wert von $d_{\text{ion}} = 500 \mu\text{m}$ zu Grunde gelegt. Aus der Abbildung ist unter anderem ersichtlich, dass sich bei höherer Iontemperatur die

2.3. Experimentelle Aufbauten zur Lebensdauermessung

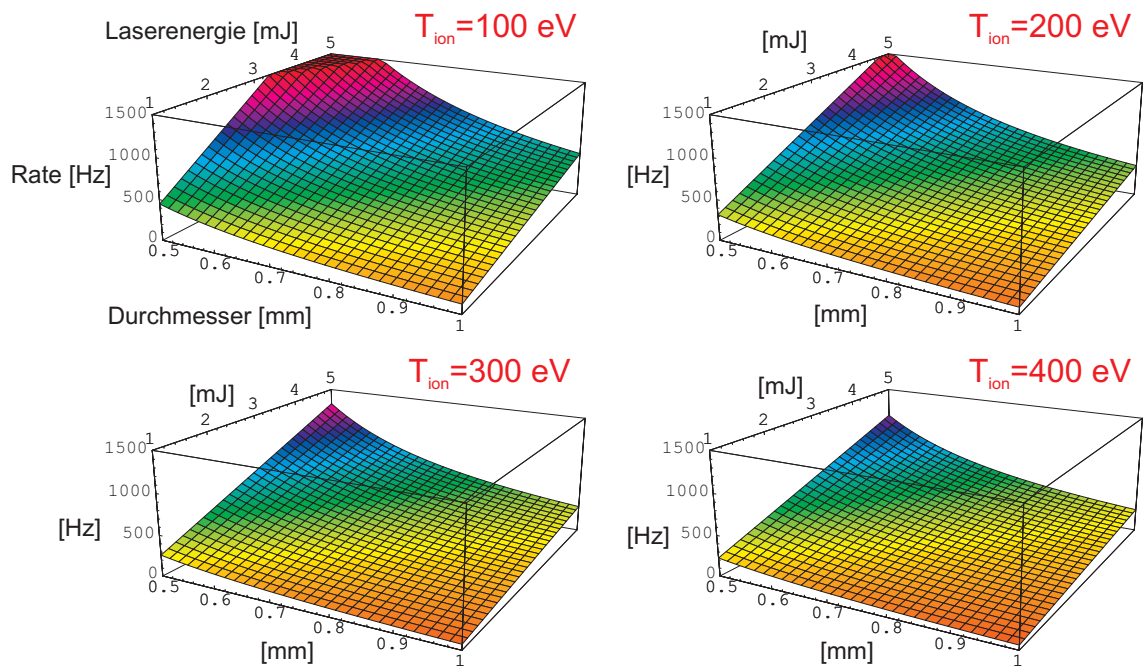


Abbildung 2.23: Die erwartete theoretische Fluoreszenzrate in Abhängigkeit von der Laserenergie, der Ionentemperatur T_{ion} und des Laserstrahldurchmessers A im Fokusbereich. Zur Berechnung wurde ein Durchmesser der Ionenwolke von 0.5 mm angenommen.

Signalrate verringert, da aufgrund der erhöhten thermischen Bewegung der Ionen, die Dopplerverbreiterung größer wird und somit der Laserpuls, dessen spektrale Breite konstant ist, anteilhaft nur mit einer geringeren Anzahl von Ionen wechselwirken kann.

Allgemein ergibt sich aus den vorangegangenen Abschätzungen zur Anregung verbotener Übergänge hochgeladener Ionen in der EBIT, dass diese zwar mit den hier gegebenen experimentellen Bedingungen prinzipiell machbar sein sollte, dass jedoch die erwartete Zählrate kritisch sowohl von der Optimierung des Überlapps zwischen Laserstrahl und Ionenwolke, als auch von der Anzahl der Ionen, die aufgrund ihres Dopplerprofils in Resonanz mit der Laserenergie sind, abhängt.

Kapitel 3

Lebensdauermessungen an Ar^{13+} und Fe^{13+}

Es wurden im Rahmen dieser Arbeit mit Hilfe des in Kapitel 2.3 beschriebenen experimentellen Aufbaus die Lebensdauern des $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in borartigem Ar XIV und des $3s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus in aluminiumartigem Fe XIV bestimmt. In diesem Kapitel werden die einzelnen Messungen beschrieben, sowie insbesondere die umfangreichen Untersuchungen zu möglichen systematischen Fehlerquellen im Detail erläutert.

3.1 Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Die Feinstrukturaufspaltung des Grundzustandes in borartigem Argon (Ar XIV) führt zu dem magnetischen Dipolübergang ($M1$) $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - 2p^2 P_{3/2}^o$ mit einer Übergangswellenlänge von 441.2559(1) nm [22]. Abb. 3.1 zeigt das Termschema dieses elektrisch dipolverbotenen Übergangs. Zur Bestimmung der Lebensdauer des metastabilen $2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus, wurden mit der Standardmethode (Elektronenstoßanregung) zwei Messreihen mit unterschiedlichen Datenaufnahme-Sequenzen aufgenommen, sowie auch laserspektroskopische Untersuchungen durchgeführt. Da der überwiegende Teil der Ergebnisse mit der „klassischen Methode“ – also ohne Laseranregung – ermittelt wurde, wird zunächst auf diese eingegangen.

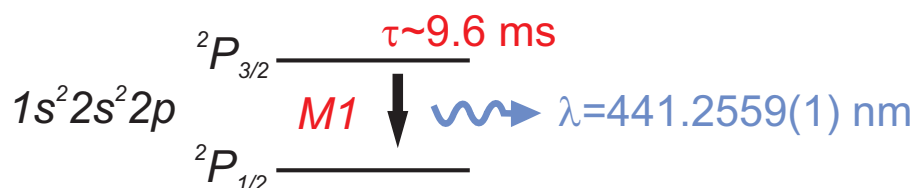


Abbildung 3.1: Termschema der Feinstrukturaufspaltung des Grundzustandes von borartigem Ar XIV.

Das Prinzip der Messungen ist ausführlich in Kapitel 2.3.1 dargestellt. Bei sämtlichen Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit wurde die EBIT mit einer magnetischen Flussdichte von 8 T betrieben. In einer ersten Messreihe wurde zur Beschleunigung der Elektronen, eine Kathodenspannung von -800 V angelegt, während das Driftröhren-Ensemble auf einem Potential von 220 V lag. Der Emissionsstrom betrug typischerweise 100 mA. Die effektive Elektronenstrahlenergie ergibt sich aus der Potentialdifferenz V_{dt} zwischen den Driftröhren und der Elektronenkathode V_{kath} unter Berücksichtigung des Raumladungspotentials Φ_T , das sich aus der Summe der Raumladung des Elektronenstrahls Φ_{elek} und der Ionenwolke Φ_{ion} ergibt (vgl. Gleichung (2.15)):

$$E_{eff} = V_{kath} + V_{dt} + \underbrace{\Phi_{elec} + \Phi_{ion}}_{\Phi_T} . \quad (3.1)$$

Das zur effizienten Produktion von Ar XIV Ionen nötige Beschleunigungspotential kann experi-

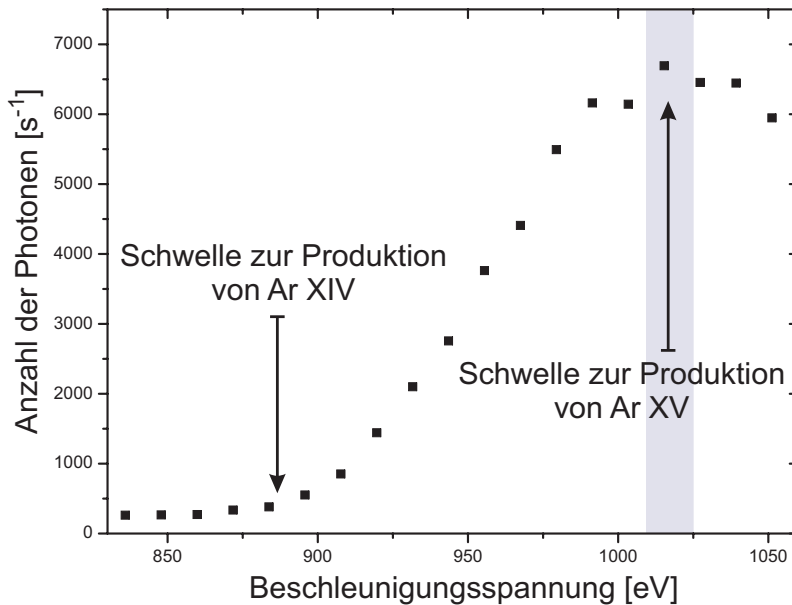


Abbildung 3.2: Zählrate des Fluoreszenzsignals des Übergangs $\text{Ar}^{13+} 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - 2P_{3/2}^o$ in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung des Elektronenstrahls. Der deutliche Anstieg des Signals gibt die mit der Strahlenergie stetig wachsende Produktionsrate von Ar^{13+} wieder. Ist die effektive Strahlenergie größer als das Ionisationspotential von Ar XIV, so wird der nächsthöhere Ladungszustand erzeugt (Abfallen des Fluoreszenzsignals).

mentell bestimmt werden, indem die Elektronenenergie E_{eff} durch Variation des Driftröhrenpotentials V_{dt} in der Nähe des Ionisationspotential von Ar XIV schrittweise verändert und auf die Energie eingestellt wird, bei der die Fluoreszenzrate am PMT maximal ist. In dieser Einstellung entspricht die effektive Energie E_{eff} dann ungefähr dem Ionisationspotential von Ar XIV (755 eV) [155]. In Abb. 3.2 ist die Anzahl der pro Sekunde registrierten Fluoreszenzphotonen gegen die Beschleunigungsspannung des Elektronenstrahls aufgetragen. Der Anstieg der Zählrate bei einer Schwellenspannung von $\cong 900$ eV gibt das Einsetzen der Produktion von Ar^{13+} Ionen wieder, während der Abfall des Signals bei $\cong 1025$ eV die nun beginnende Ionisation von Ar XIV kennzeichnet. Für die Messungen wurde die Beschleunigungsspannung so eingestellt, dass eine

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

maximale Fluoreszenzrate gegeben ist (schraffierter Bereich in Abb. 3.2). Die effektive Strahlenergie wurde mit Hilfe von Gleichung (3.1) abgeschätzt. Das Raumladungspotential Φ_{elek} des Elektronenstrahls kann nach Gleichung (2.13) berechnet werden und ergibt für einen Herrmann-Radius von $25 \mu\text{m}$, einem Strom $I_e = 100 \text{ mA}$ und einer Elektronenstrahlenergie $E_e = 1020 \text{ eV}$ den Wert $\Phi_{\text{elek}} = -550 \text{ eV}$. Die Kompensation durch die Ionenladung liegt entsprechend bei ungefähr $\Phi_{\text{ion}} = \Phi_T - \Phi_{\text{elek}} = 250 \text{ eV}$. Dabei wurde die gesamte Raumladungskompensation Φ_T durch $\Phi_T = -0.0028 I_e [\text{mA}] / \sqrt{E_{\text{eff}} [\text{keV}]}$ angenähert, wobei der Vorfaktor experimentell bestimmt wurde, indem für verschiedene Emissionsströme I_e die Energie, bei der das Maximum der Fluoreszenzkurve aus Abb. 3.2 gegeben ist, aufgenommen wurde. Nach dieser Beziehung ergibt sich bei den hier gewählten Einstellungen eine effektive Energie der mit den Ionen wechselwirkenden Elektronen von $E_{\text{eff}} = 700 \text{ eV}$. Diese Energie ist ausreichend, um effizient Ar XIII (Ionisationspotential (IP) 686 eV) zu ionisieren, jedoch nicht groß genug, um den nächsthöheren Ladungszustand zu erreichen, da das IP von Ar XIV 755 eV beträgt.

Der Elektronenstrahl wurde in der ersten Serie von Messungen für jeweils 200 ms aus- und für 483 ms wieder angeschaltet, indem alternierend an die Fokuselektrode eine Spannung von -1300 bzw. 1000 V angelegt wurde. Die Datenaufnahme innerhalb einer Sequenz startete 10 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls und dauerte 225 ms bei einer Wiederholungsrate von 1.464 s^{-1} (Sequenzperiode 683 ms , siehe Abb. 3.3 A).

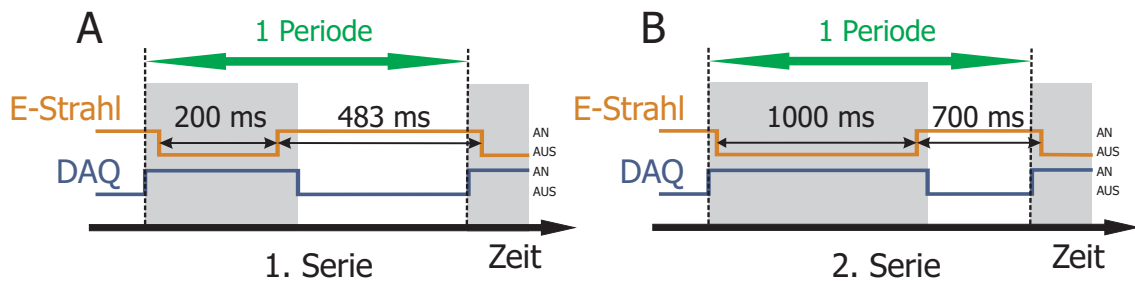


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Datenaufnahmesequenz für die erste (A) und zweite (B) Messreihe. Die Datenaufnahme (DAQ, blau) wurde jeweils 10 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls (orange) gestartet und 15 ms nach Wiederanschalten des Strahls beendet.

Die Dunkelzählrate des PMT wurde bei einer Betriebsspannung von $V_{\text{PMT}} = -1500 \text{ V}$ zu 34 s^{-1} gemessen. Dieser Wert ergab sich durch verschiedene, unabhängige Messungen. So zeigt Abbildung 3.4 den konstanten Hintergrund der Photonenzählrate nach einer Aufnahmezeit von 60 Minuten. Bei dieser Messung wurde die Kathodenspannung auf 0 V gesetzt, so dass der Elektronenstrahl beim Schalten der Fokuselektrode bereits ausgeschaltet war. Des Weiteren war das Ventil zum Gasinjektor geöffnet, so dass neutrales Argon in die Falle gelangen konnte. Der konstante Hintergrund dieser Messung deckt sich mit den Ergebnissen anderer Messungen, bei denen z.B. der Elektronenstrahl angeschaltet, jedoch der Gasinjektor geschlossen war, so dass kein Ar in die Falle injiziert wurde. Ebenso ergaben Messungen bei angeschaltetem Elektronenstrahl (Kathodenspannung ungleich Null), jedoch negativ angelegter Spannung an der Fokuselektrode und offenem Gasinjektor im Wesentlichen die gleiche Dunkelzählrate.

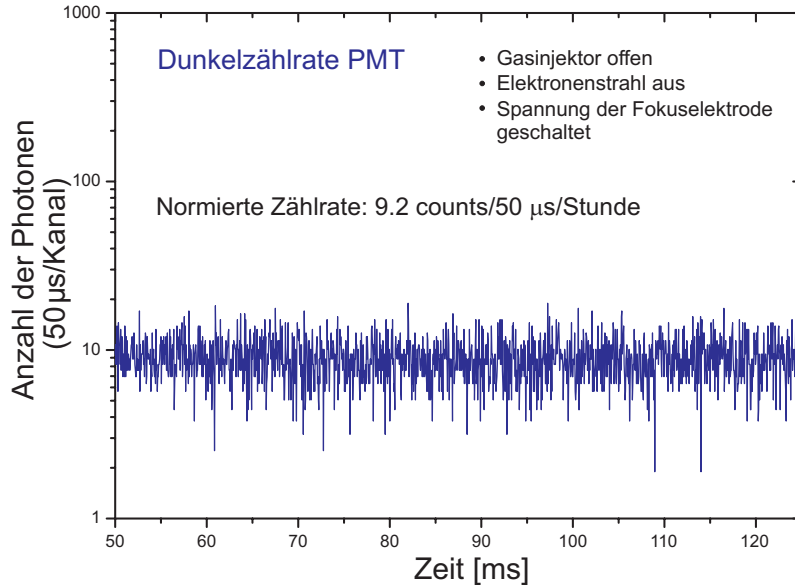


Abbildung 3.4: Die Dunkelzählrate des PMT nach einer Messzeit von 60 Minuten. Der normierte Wert von 9.2 counts/50µs/Stunde entspricht bei einer Sequenzrate von 1.464 s^{-1} einer Dunkelzählrate von 34 s^{-1} . Dabei wurde der PMT bei einer Betriebsspannung von $V_{\text{PMT}} = -1500 \text{ V}$ bereits 4 Stunden vor Beginn der Messung in Betrieb genommen.

Wie weiter hinten aufgezeigt, weisen die Zerfallskurven der ersten Messreihe neben dem erwarteten „schnellen“ Zerfallskanal noch eine zweite „langsame“ Zerfallskomponente des Untergrundsignals auf. Um diese langsame Komponente gezielt untersuchen zu können, wurde eine zweite Messreihe aufgenommen, bei der der Elektronenstrahl für eine im Vergleich zur ersten Messreihe längere Zeit ausgeschaltet blieb und auch das Datenaufnahmefenster vergrößert wurde (vgl. Abb. 3.3 A und 3.3 B).

Bei dieser zweiten Serie von Messungen an Ar XIV betrug die Spannung am Driftröhren-Ensemble 200 V, während der Emissionsstrom fest auf 90 mA eingestellt war. Der im Vergleich zur ersten Messreihe etwas niedrigere Emissionsstrom wurde gewählt, um Instabilitäten des Elektronenstrahls beim Ein-, bzw. Ausschalten zu vermeiden. Des Weiteren wurde die Position der Elektronenkanone in radialer Richtung neu ausgerichtet, um den sog. *Suppressorstrom* zu minimieren. Der Suppressor ist eine ringförmige Elektrode, die vor der Kollektorelektrode angebracht ist und eine Apertur von 16 mm besitzt. Ihre Aufgabe ist es, Sekundärelektronen, die beim Auftreffen des Elektronenstrahls auf die Innenfläche des Kollektors entstehen können, abzuweisen und am Eintritt in die Driftröhrenregion zu hindern. Der Strom, der am Suppressor entsteht, stammt von Strahlelektronen, die von der zentralen Elektronenstrahl-Trajektorie abweichen. Sein Wert, der typischerweise einige wenige μA beträgt, ist ein guter Indikator für eine entsprechend gute Elektronenstrahleinstellung.

Die Energie des Elektronenstrahls entsprach bei diesen Messungen $\cong 715 \text{ eV}$. Der Elektronenstrahl wurde für 1 s aus-, bzw. für 700 ms angeschaltet, indem -1800 V – eine etwas größere negative Spannung als bei der ersten Messreihe – bzw. 1000 V an die Fokuselektrode angelegt

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

wurde. Die Datenaufnahmesequenz der zweiten Messreihe ist in Abb. 3.3 B wiedergegeben. Die Datenaufnahme fand für eine Dauer von 1025 ms statt, während die Sequenzrate 0.588 s^{-1} betrug (Sequenzperiode 1700 ms). Die Messung der Dunkelzählrate des PMT ergab bei einer Kathodenspannung von 1250 V eine Hintergrundrate von 30 s^{-1} .

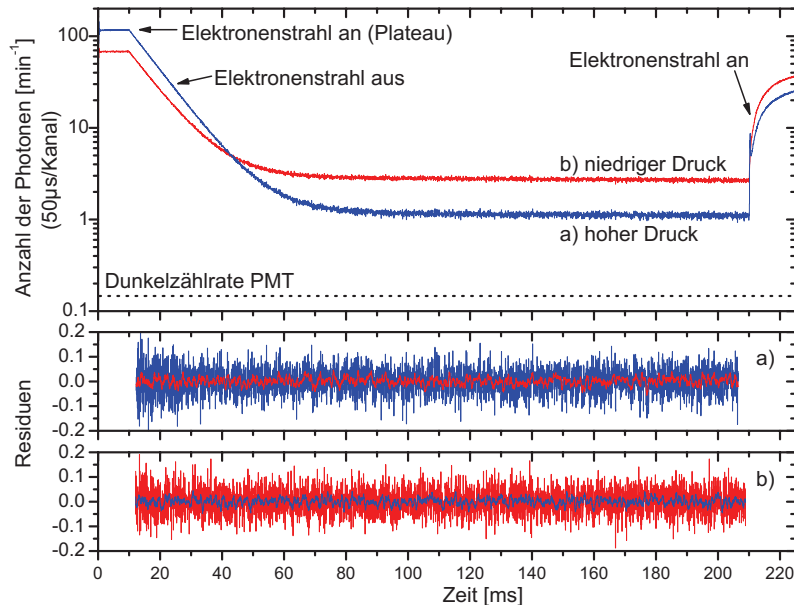


Abbildung 3.5: Typische Zerfallskurven (normiert auf 60 s Datenaufnahme), aufgenommen während der ersten Messreihe bei zwei unterschiedlichen Gasdrücken [(a) $p = 8.4 \times 10^{-8}$ mbar und (b) $p = 8.6 \times 10^{-9}$ mbar] mit einer Ausschaltzeit des Elektronenstrahls von 200 ms. Zu den ebenso dargestellten Residuen eines zweikomponentigen Exponentialfits siehe Abb. 3.8 und den dazugehörigen Text.

Das neutrale gasförmige Argon (99.60% ^{40}Ar , 0.34% ^{36}Ar , und 0.06% ^{38}Ar) wurde als ballistischer Atomstrahl über den mehrstufig differentiell gepumpten Gasinjektor in die EBIT injiziert. Der Druck in der ersten Stufe des Gasinjektors betrug bereits 10^{-8} mbar. Außerhalb des auf 40 K gekühlten äußeren thermischen Schildes des EBIT-Magneten wird typischerweise ein Druck von ungefähr 10^{-10} mbar erreicht, welcher auf dem Weg zum Fallenzentrum durch die von den thermischen Schilden auf 40 K, 15 K und durch den Magneten auf 4 K gekühlten Volumina kontinuierlich abnimmt. Der Gasdruck im Fallenzentrum kann wegen des starken Magnetfelds nicht direkt gemessen werden, eine Abschätzung an der EBIT des Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL-EBIT) ergab einen Druck in der Größenordnung von 5×10^{-11} Torr [142]. Aufgrund des verbesserten differentiellen Pumpens in der HD-EBIT kann jedoch von einem noch niedrigeren Wert für den totalen Gasdruck in der Fallenmitte ausgegangen werden.

Um die Ionen axial in der Falle einzuschließen, wurde an die beiden direkt neben der zentralen Fallenelektrode gelegenen Driftröhren (DT#4 und DT#5) eine Spannung von 1500 V angelegt. Dieses elektrostatische Potential ist ausreichend groß, um Ionenverluste aus der Falle zu verhindern (siehe Abschnitt 3.1.1). Die Akkumulation schwerer Elemente, wie Barium (Ba) oder Wolf-

ram (W), die von der Kathode der Elektronenkanone evaporieren und in die Falle diffundieren können, wird verhindert, indem die Falle mittels eines 100 ms lang andauernden, positiven Hochspannungspulses an der zentralen Driftröhre alle 10 s entleert wird.

In Abb. 3.5 und Abb. 3.6 sind je zwei typische Zerfallskurven, die während der ersten bzw. zweiten Messreihe bei jeweils unterschiedlichen Gasinjektordrücken aufgenommen wurden, zu sehen. Die Kurven sind auf eine Datenaufnahmezeit von 60 s normalisiert. Die Gesamtaufnahmezeit betrug für die erste Messreihe 480 min (hoher Injektordruck (a) $p = 8.4 \times 10^{-8}$ mbar) und 468 min (niedriger Injektordruck (b) $p = 8.6 \times 10^{-9}$ mbar) bzw. für die zweite Messreihe 1873 min (hoher Injektordruck (a) $p = 7.9 \times 10^{-8}$ mbar) und 600 min (niedriger Injektordruck (b) $p = 8.2 \times 10^{-9}$ mbar).

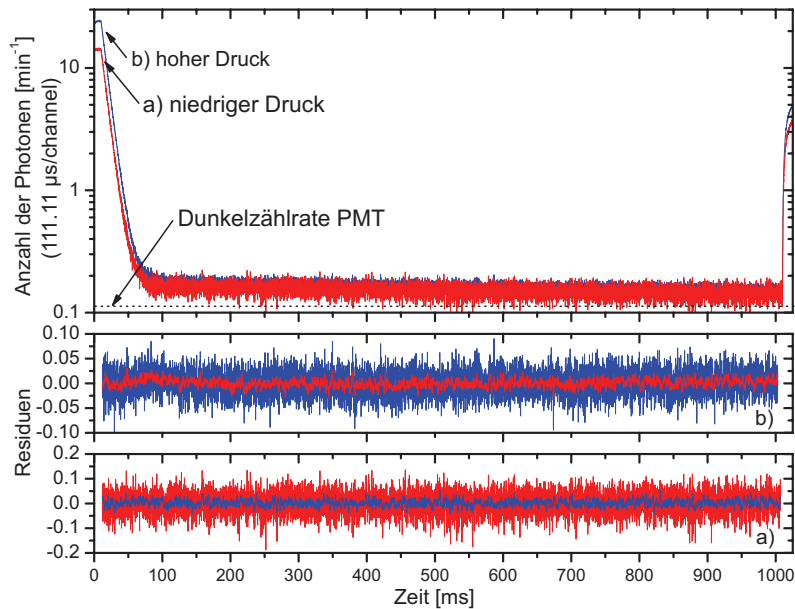


Abbildung 3.6: Normierte Zerfallskurven der zweiten Messreihe. Die beiden Kurven wurden bei unterschiedlichen Gasinjektordrücken aufgenommen [(a) $p = 8.2 \times 10^{-9}$ mbar und (b) $p = 7.9 \times 10^{-8}$ mbar]. Zu den Residuen eines zweikomponentigen Exponentialfits vergleiche Abb. 3.8 und Text.

Die außergewöhnliche, exzellente Qualität der Zerfallskurven gibt Abb. 3.7 wieder, wo die ersten 80 ms ($\cong 720$ Kanäle) der beiden Messkurven aus Abb. 3.6 nochmal dargestellt sind. Aus den Kurven ist deutlich erkennbar, dass ein erhöhter Gasinjektordruck eine erhöhte Intensität der Zählrate bewirkt, was sich in der Höhe der Plateaus 10 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls widerspiegelt. Des Weiteren zeigen beide Messkurven zwei unterscheidbare Zerfallskomponenten: Eine schnelle Komponente mit einer mittleren Zerfallszeit von $\cong 10$ ms, die auf den Zerfall des metastabilen $2p \ ^2P_{3/2}^o$ Zustands zurückzuführen ist, und eine langsame Zerfallskomponente mit einer ungefähr 1 s langen Zerfallszeit. Dies ist in Abb. 3.8 nochmal hervorgehoben. Bei der Datenanalyse konnte keine Korrelation zwischen der kurzen Zerfallszeit und der langsam

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

zerfallenden Komponente festgestellt werden, d.h. die langsame Zerfallskomponente beeinflusst nicht die Lebensdauerermessung des untersuchten Niveaus. Letzendlich wird sie der Anregung des $2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands der Ar XIV Ionen durch niederenergetische Elektronen zugeschrieben (siehe Abschnitt 3.1.2).

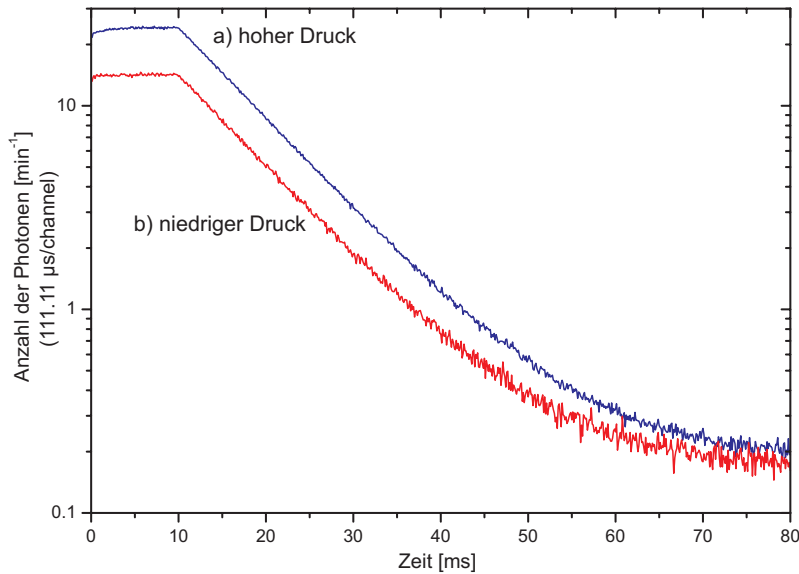


Abbildung 3.7: Ausschnitt aus den beiden Zerfallskurven aus Abb. 3.6.

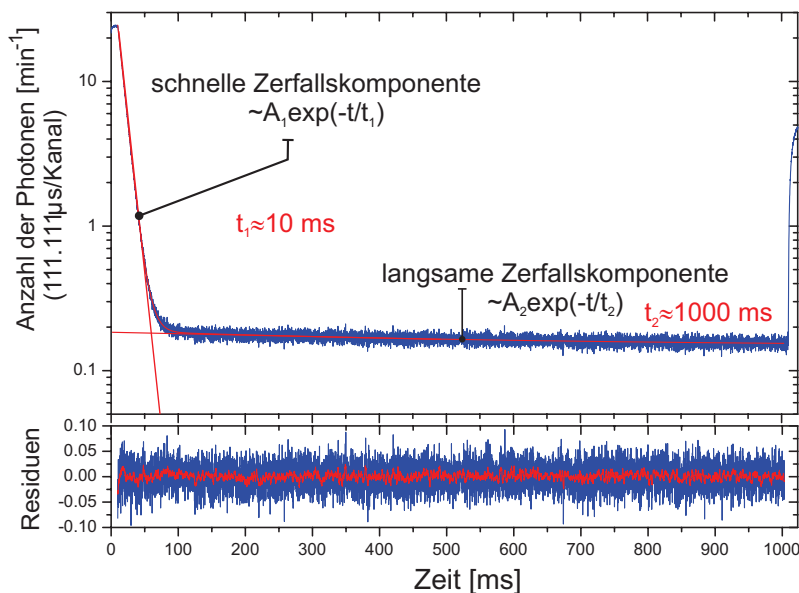


Abbildung 3.8: Die kurze und die lange Zerfallskomponente am Beispiel einer Messkurve aus der zweiten Serie.

Die beiden Zerfallszeiten wurden durch einen exponentiellen Fit (Methode der kleinsten Qua-

Modell der Fitfunktion		
$N(t) = a_1 e^{-t/t_1} + a_2 e^{-t/t_2} + y_0$		
schnelle Komp.	t_1 [ms]	a_1
	9.523 ± 0.012	130300 ± 300
langsame Komp.	t_2 [ms]	a_2
	1050 ± 300	91 ± 10
Untergrund $y_0 = 16.211 \pm 0.89$		
$\chi^2 = 1.08528 \quad R^2 = 0.99629$		

Tabelle 3.1: Ergebnisse des Fits an die Zerfallskurve aus Abb. 3.8.

drate, statistische Gewichtung) der erhaltenen Messkurven bestimmt, wobei die Fitfunktion die experimentell gemessene, mittlere Totzeit t_{acq} des DAQ-Systems für ein registriertes Ereignis berücksichtigt, die durch

$$N_{\text{obs}} = N_{\text{true}} \left(1 + \frac{N_{\text{obs}} t_{\text{dead}}}{t_{\text{acq}}} \right)^{-1} \quad (3.2)$$

gegeben ist. Dabei ist N_{obs} die Anzahl der pro Kanal im Zeitintervall t (50 und 111.111 μs für die erste bzw. zweite Messserie) registrierten Photonen, t_{acq} die Gesamtaufnahmezeit pro Kanal, und N_{true} die wirkliche Anzahl der Photonen.

Die Funktion, welche die experimentellen Daten am Besten beschreibt, besteht aus der Summe zweier Exponentialfunktionen mit einem konstanten Untergrund:

$$N_{\text{true}}(t) = a_1 e^{-t/t_1} + a_2 e^{-t/t_2} + y_0, \quad (3.3)$$

mit den freien Parametern a_1 und a_2 , die die anfänglichen Intensitäten der schnellen und langsamen Komponenten repräsentieren, und den entsprechenden Zerfallszeiten t_1 bzw. t_2 . Der konstante Untergrund y_0 entspricht der gemessenen Dunkelzählrate des PMT.

In Tabelle 3.1 sind die Ergebnisse der Kurvenanpassung an die in Abb. 3.8 dargestellten Messkurve zusammengestellt. Die vorläufige, scheinbare Lebensdauer des $2p \ ^2P_{3/2}^o$ Niveaus ergibt sich aus dieser Einzelmessung zu 9.523(12) ms. Es wurde bei der Datenanalyse die experimentell bestimmte Totzeit von 1.4 μs mit einbezogen (zur Messung der Totzeit siehe Abschnitt 3.1.1). Für die langsame Zerfallskomponente ergibt sich eine Zerfallszeit von $t_2 \cong 1050$ ms. Die exzellente Übereinstimmung der Modellfunktion mit den Daten, die über eine Dauer von ca. 31 h akquiriert wurden, ist in den Werten von χ^2 bzw. R^2 zu erkennen. Es ist jedoch zu beachten, dass in diesem bisherigen Ergebnis keine systematischen Effekte, wie z.B. der Ionenverlust aus der Falle oder Ladungsaustausch, die die gemessene Lebensdauer beeinflussen können, berücksichtigt sind.

Die Verwendung anderer Fitfunktionen mit drei oder mehr exponentiellen Termen führte zu einer unzureichenden Wiedergabe der Messdaten. Dies zeigte sich sowohl in sehr großen χ^2 -Werte bzw. einer Verminderung der R^2 -Werte, als auch durch die Tatsache, dass manche Fitfunktionen

nicht konvergierten, d.h. die Fehler der angepassten Werte größer waren als die Werte selbst. Die nach Auswertung aller gemessenen Kurven durchschnittlichen χ^2 und R^2 ergaben sich zu 1.15 bzw. 0.999. Um mögliche systematische Effekte aufgrund von Instabilitäten beim Schalten des Elektronenstrahls zu vermeiden, wurde die Fitprozedur jeweils 2 ms nach dem Ausschalten gestartet. Eine Untersuchung der Kurven hinsichtlich verschiedener Fit-Startpunkte (*Standard tail-fit* Analyse, siehe Abschnitt 3.1.1) ergab hauptsächlich Fluktuationen der Lebensdauer innerhalb der statistischen Unsicherheit der jeweiligen Einzelmessung.

3.1.1 Systematische Untersuchungen

Die natürliche Lebensdauer eines Zustands kann aufgrund systematischer Störeffekte (z.B. Ionenverluste, Rekombinationsprozesse, Stoßabregung (*Quenchen*)) künstlich verlängert oder verkürzt gemessen werden. Die Bestimmung der „echten“ natürlichen Lebensdauer aus den Zerfallskurven erfordert demnach ein detailliertes Verständnis dieser Fehlerquellen. Um den Einfluss der verschiedenen Mechanismen, die zu einer Änderung der Ionenpopulation in der Falle führen können, auf die gemessene Lebensdauer zu ermitteln, wurden umfangreiche systematische Untersuchungen zum Ionenverlust und zur Repopulation des metastabilen Niveaus in Ar XIV durchgeführt, welche im Folgenden dargestellt und diskutiert werden.

Radialer und axialer Ionenverlust

Verschiedene systematische Effekte können die Ar¹³⁺ Population in der Falle modifizieren. Neben dem Ionenverlust durch Ladungsaustausch mit neutralen Restgasatomen, Elektron-Ion-Rekombination und dem systematischen Entleeren der Falle (*dump*), hat der Verlust durch Austritt der Ionen aus der Falle den größten Einfluss auf die gemessene Lebensdauer. Allgemein führt der Verlust von Ionen aus der Falle zu einer verkürzt erscheinenden Lebensdauer, da sich neben dem natürlichen Zerfall ein weiterer Zerfallskanal auftut, und somit der exponentielle Abfall der Fluoreszenzkurve, aus der die Lebensdauer des oberen Zustands des untersuchten Übergangs ermittelt wird, schneller stattfindet.

Prinzipiell können die Ionen nach Ausschalten des Elektronenstrahls die Falle in radialer und axialer Richtung verlassen. Die Ionen, die durch das Magnetfeld und dem, von den Driftröhren erzeugten, axialen Potentialwall in der Falle gehalten werden, weisen eine kinetische Energieverteilung auf, die einer Iontemperatur von typischerweise einigen 100 eV ($\approx 1.2 \times 10^6$ K) entspricht. Stöße zwischen den Ionen resultieren bei einem Teil der Ionen in einem kinetischen Energiezuwachs, der groß genug sein kann, um die axiale Potentialbarriere zu überwinden und die Falle zu verlassen. Dies führt zu einer Abkühlung des Ionen-Ensembles (evaporatives Kühlen), jedoch auch zu einem langsamen Verlust der Ar XIV Ionen, was sich in einer erheblichen Verminderung der gemessenen, natürlichen Lebensdauer niederschlagen könnte.

Um den Effekt des axialen Ionenverlusts zu untersuchen, wurden für verschiedene axiale Driftröhrenpotentiale Zerfallskurven mit hoher statistischer Signifikanz gemessen und die daraus extrahierten Lebensdauern miteinander verglichen. Die Driftröhrenpotentiale (DT#4 und DT#5) wurden

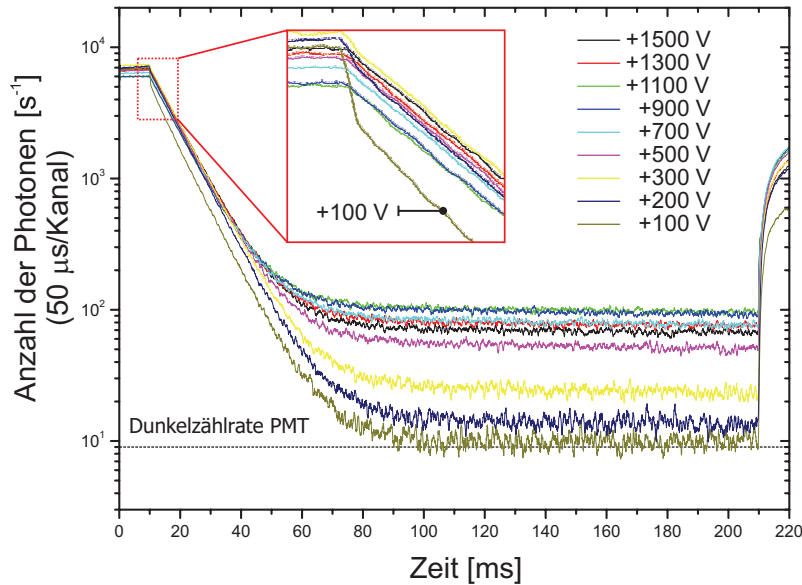


Abbildung 3.9: Zerfallskurven für verschiedene axiale Driftröhrenpotentiale. Die Akquisitionszeit betrug jeweils 1 h. Der Übersicht wegen wurden die Daten etwas geglättet (10-point average smoothing). Mit größer werdenden Driftröhrenpotentialen wächst die Amplitude (a_2 in Gleichung (3.3)) der langsamen Zerfallskomponente. Der vergrößerte Bildausschnitt zeigt den unmittelbaren Abfall der Zerfallskurve nach Ausschalten des Elektronenstrahls bei niedriger Fallentiefe (100 eV).

dabei schrittweise von 100 bis 1500 V (erste Messreihe) bzw. von 0 V bis zu einem Maximum von 2500 V erhöht (zweite Messreihe). Abbildung 3.9 zeigt gemessene Zerfallskurven der ersten Serie. Im vergrößerten Bildausschnitt ist bei niedrigem Fallenpotential (100 eV) ein unmittelbarer Signaleinbruch direkt nach Ausschalten des Elektronenstrahls zu erkennen, was auf einen plötzlichen Verlust von Ionen aus der Falle deutet. Der unerwartete Anstieg der Untergrundintensität mit steigendem Driftröhrenpotential kann, wie sich zeigt, über die Anwesenheit niederenergetischer, in der Falle mit den Ionen koexistierender, Elektronen erklärt werden, die eine neuerliche Anregung der Ar XIV Ionen in das metastabile Niveau bewirken (zur ausführlichen Diskussion siehe Abschnitt 3.1.2).

Die Abhängigkeit der kurzen Lebensdauer (t_1) vom Driftröhrenpotential ist für beide Messreihen in Abb. 3.10 dargestellt. Wie aus der Abbildung ersichtlich, erscheint die Zerfallszeit für niedrige Fallenpotentiale von 0 bis ca. 500 V verkürzt, was darauf hindeutet, dass die kinetische Energie eines Teils der Ionen immer noch groß genug ist, um die gegebene Potentialbarriere zu überwinden und die Falle zu verlassen. Mit steigendem Driftröhrenpotential wächst die gemessene Lebensdauer an und erreicht für Fallentiefen ab 500 V ein Plateau, welches bis 2500 V auf konstantem Wert bleibt. Die Schwankungen der Datenpunkte in diesem Bereich sind rein statistischer Natur. Daraus kann geschlossen werden, dass die Verlustrate der Ionen für Driftröhrenpotentiale jenseits von 500 V vernachlässigbar klein im Vergleich zur kurzen Zerfallsrate ist.

Auf den ersten Blick könnte der langsame Zerfall (t_2) des Untergrundsignals ein Maß für die Verlustrate von Ionen bei längeren Speicherzeiten sein. Ist dies der Fall, so muss die Zerfallsrate des

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

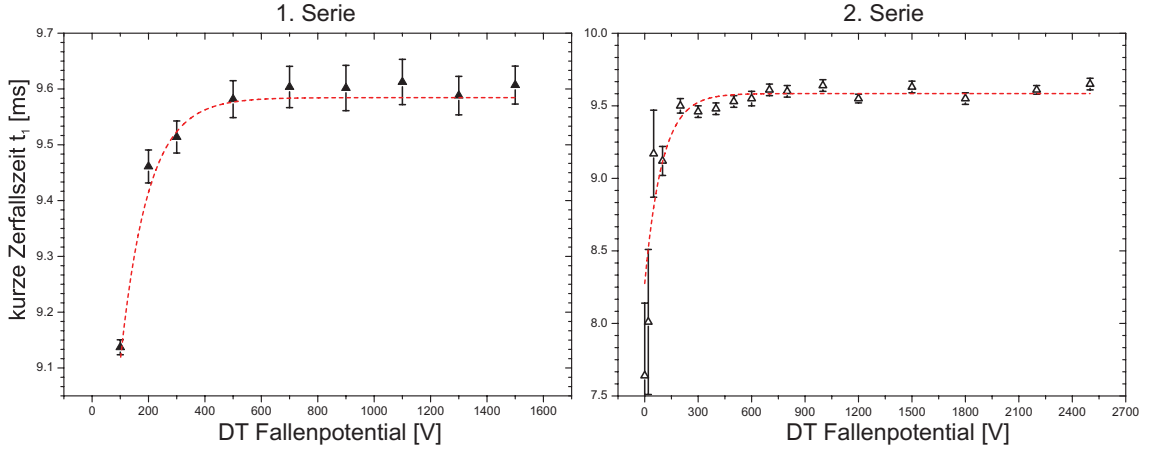


Abbildung 3.10: Die gemessenen Lebensdauern t_1 in Abhängigkeit vom Driftröhrenpotential für beide Messreihen. Die gestrichelte Linie ist bei beiden Diagrammen identisch und dient der besseren Visualisierung.

Untergrunds von der scheinbaren Übergangsrate abgezogen werden, um eine effektive Lebensdauer des metastabilen $^2P_{3/2}^o$ Niveaus zu erhalten:

$$\tau_{\text{eff}} = \left(\frac{1}{t_1} - \frac{1}{t_2} \right)^{-1} \quad (3.4)$$

Abbildung 3.11 A und 3.11 B zeigen die aus den Messkurven der beiden unabhängigen Aufnahmeserien erhaltenen Lebensdauern, sowie die mit der Zerfallsrate des Untergrunds jeweils korrigierten Lebensdauern (3.11 A und 3.11 B oben) in Abhängigkeit vom Fallenpotential. Die gemessene Zerfallsrate des Untergrunds ist ebenfalls aufgetragen (3.11 A bzw. 3.11 B unten). Entsprechend nun die Zerfallsrate der langsamen Komponente der Ionenverlustrate von Ar XIV, so sollte die Differenz zwischen den Zerfallsraten der schnellen und langsamen Komponente $[(1/t_1 - 1/t_2)^{-1}]$ konstant als Funktion des Driftröhrenpotentials sein. Wie jedoch aus der Abbildung ersichtlich, hat die Korrektur bezüglich der Untergrund-Zerfallsrate zur Folge, dass die korrigierte Lebensdauer τ_{eff} bei abnehmender Driftröhrenspannung leicht zunimmt. Aus diesem Grund wird angenommen, dass die so getestete Korrektur zu einer überschätzten Lebensdauer des metastabilen Zustands führt und somit die langsame Zerfallskomponente nicht nur auf den Verlust von Ar XIV Ionen zurückzuführen ist. Des Weiteren ergaben sich praktisch keinerlei Korrelationen zwischen der kurzen Zerfallsrate und der Zerfallsrate der langsamen Komponente (siehe weiter unten).

Eine theoretische Abschätzung der Ionenverlustrate kann gegeben werden unter der Annahme, dass sich die Ar XIV Ionen in der Falle durch eine Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung beschreiben lassen und dass nur die Ionen die Falle verlassen können, deren kinetische Energie größer als das Driftröhrenpotential ist. Nach Gleichung (2.22) ist die Anzahl der pro Zeiteinheit die Falle verlassenden Ionen gegeben durch

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{3}{\sqrt{2}} n_i \nu_{ij} \left(\frac{\exp^{-\omega_i}}{\omega_i} - \sqrt{\omega_i} [\text{erf}(\omega_i) - 1] \right), \quad (3.5)$$

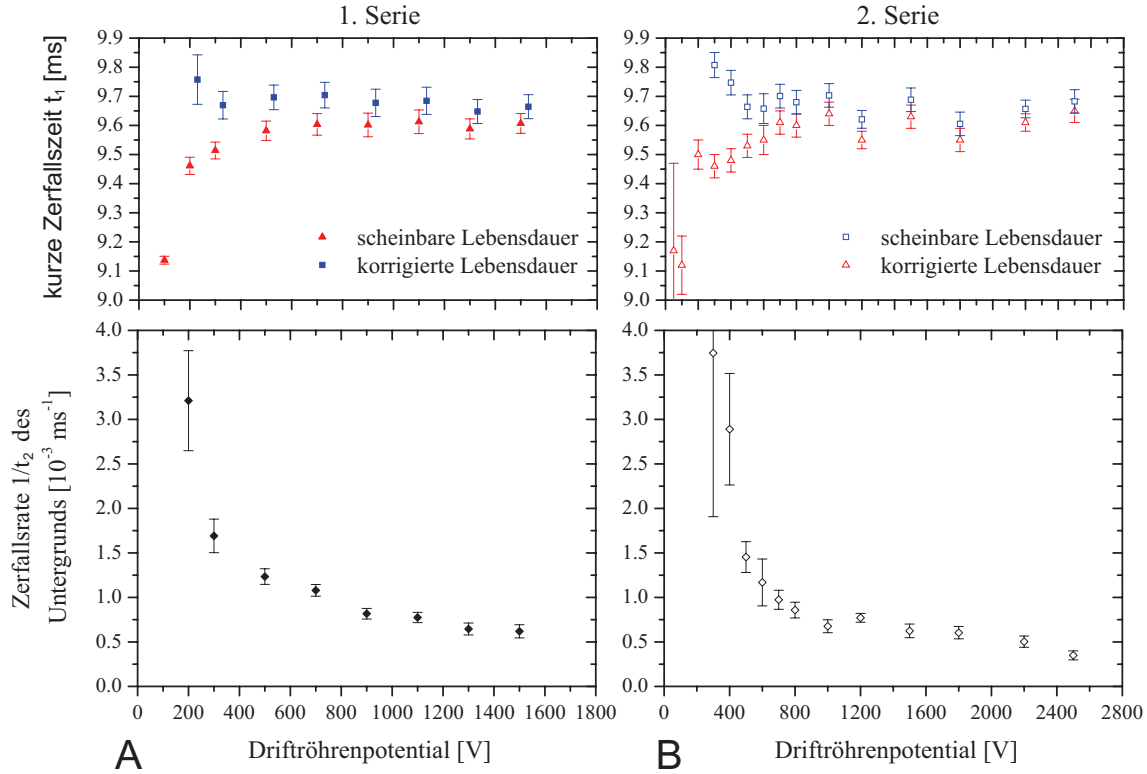


Abbildung 3.11: Variation der kurzen Zerfallszeit t_1 (oben) und der Zerfallsrate $1/t_2$ der langsamen Komponente (unten) beider Messreihen als Funktion des Driftröhrenpotentials. Der konstante Wert der kurzen Zerfallszeit oberhalb von 500 V Fallenpotential stimmt mit theoretischen Abschätzungen überein, die einen vernachlässigbaren axialen Ionenverlust innerhalb der Millisekunden-Zeitskala voraussagen. Die Quadrate resultieren aus der hypothetischen Korrektur $(1/t_1 - 1/t_2)$ durch die Zerfallsrate der langsamen Komponente.

mit

$$\omega_i^{\text{ax}} = \frac{q_i e V_{\text{tr}}}{k T_i}, \quad (3.6)$$

und der Ion-Ion Coulomb Stoßrate

$$\nu_{ij} = \frac{4}{3} \sqrt{2\pi} n_j \left(\frac{q_i q_j e^2}{4\pi \epsilon_0 M_i} \right)^2 \left(\frac{M_i}{k T_i} \right)^{3/2} \ln \Lambda_{ij} f(r_i, r_j), \quad (3.7)$$

mit dem Coulomb Logarithmus $\ln \Lambda_{ij}$, der typischerweise einen Wert zwischen 10 und 20 annimmt. Geht man davon aus, dass nur Ar XIV Ionen in der Falle gespeichert sind, so ist er bei den hier gegebenen experimentellen Bedingungen auf $\ln \Lambda_{ij} \approx 19$ abgeschätzt worden.

Die Temperatur der Ar XIV Ionen kann über die Dopplerbreite der verbotenen Resonanzlinie, die mit Hilfe des in [22, 141] ausführlich beschriebenen Aufbaus unter Verwendung eines optischen Spektrometers bestimmt werden. Durch Entfaltung der sechs nicht-aufgelösten Zeeman-Komponenten des $M1$ -Übergangs mit Hilfe einer entsprechenden mehrkomponentigen Gauss'schen Fitfunktion, ergab sich eine Iontemperatur von annähernd $T_i = 350 \text{ eV}/k_B$. Für eine

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des $\text{Ar XIV } 1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Ionenladung von $q = 13$ und einem Driftröhrenpotential von 1500 V, erhält man für das Verhältnis $\omega_i \approx 50$. In Abb. 3.12 ist die nach Gleichung (3.5) berechnete axiale Verlustrate in Abhängigkeit vom Fallenpotential dargestellt. Man sieht, dass für ein Driftröhrenpotential von 500 V die theoretische Verlustrate in der Größenordnung 10^{-8} s^{-1} liegt und damit als vernachlässigbar im Vergleich zur der Zerfallsrate des untersuchten metastabilen Zustands angenommen werden kann. Schlussfolgernd lässt sich sagen, dass bei den gegebenen experimentellen Einstellungen der Einfluss des axialen Verlusts von Ionen aus der Falle auf die Bestimmung der Lebensdauer ausgeschlossen ist.

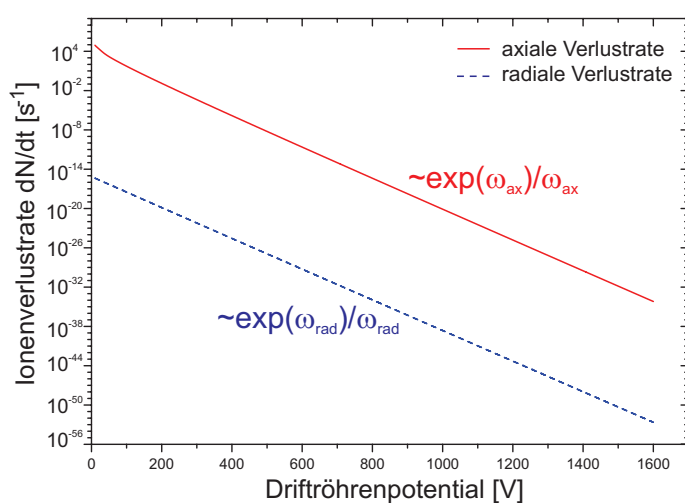


Abbildung 3.12: Theoretisch berechnete axiale und radiale Verlustrate in Abhängigkeit vom Driftröhrenpotential.

Neben dem axialen Entweichen könnten die Ionen die Falle auch in radialer Richtung verlassen. Durch das homogene Magnetfeld in der EBIT gyrieren die geladenen Teilchen unter Einfluss der Lorentzkraft $\mathbf{F}_L = q(\mathbf{v} \times \mathbf{B})$ um die Magnetfeldlinien und bleiben dadurch in einem Volumen, das durch ihren Gyrationradius gegeben ist, in der Falle gefangen. Bei einer Iontemperatur von $T_i = 350 \text{ eV}/k_B$ beträgt der Gyrationradius für Ar XIV Ionen ungefähr $200 \mu\text{m}$. Stöße der Ionen mit neutralen Atomen als auch mit Ionen können zu einem Impulsaustausch führen, der die Ionen in Richtung einer Region mit kleinerer Teilchendichte diffundieren lässt (transversale *cross-field* Diffusion, [156]). Aus Impulserhaltungsgründen bleibt die Schwerpunktslage der Ionen jedoch mehr oder weniger erhalten, d.h. der transversale Versatz der Wolke ist insgesamt nur sehr gering. Zur Unterstützung dieser These ist die Berechnung der theoretischen radialen Verlustrate in Abhängigkeit vom gesamten Raumladungspotential Φ_T des Elektronenstrahls, das zu ungefähr 300 eV bestimmt wurde, in Abb. 3.12 dargestellt. Der radiale Verlust ist im Vergleich zum axialen Fall nochmals mehrere (18!) Größenordnungen kleiner und wird daher im folgenden nicht weiter als systematische Fehlerquelle miteinbezogen.

Zur Bestimmung der Lebensdauer des ${}^2P_{3/2}^o$ Zustands in Ar XIV wurden mehrere Zerfallskurven aufgenommen, deren Messzeit jeweils zwischen 3 und 5 h lag. Abbildung 3.13 zeigt die Ge-

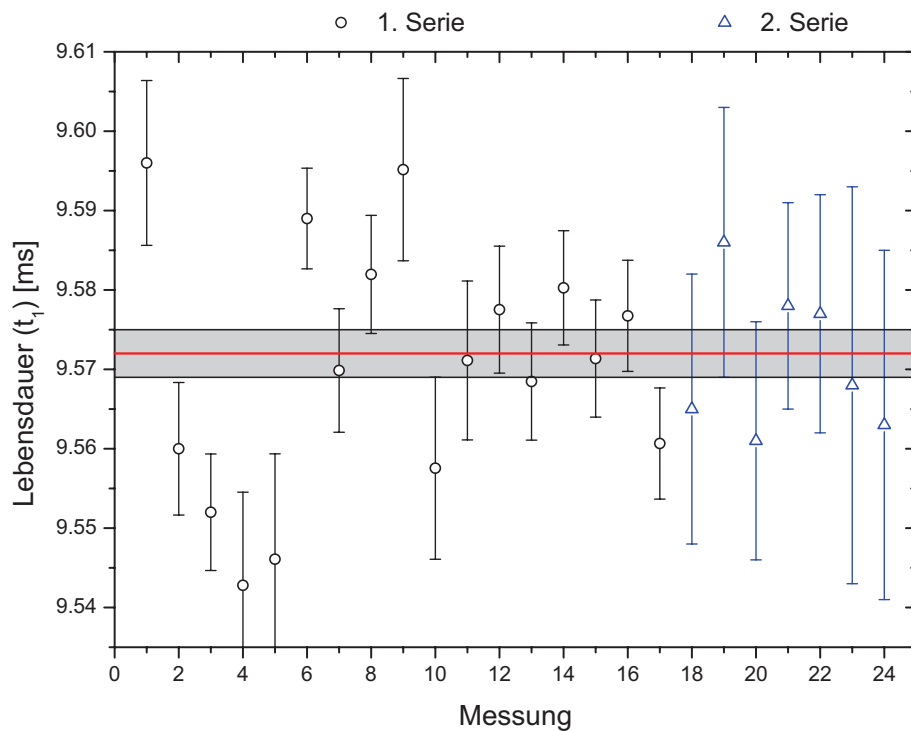


Abbildung 3.13: Statistisch gewichteter Durchschnitt der Datenpunkte, die bei Fallenpotentialen zwischen 500 und 2500 V in beiden Messreihen aufgenommen wurden. Die Gesamtaufnahmezeit betrug ungefähr 116 h. Die schwarzen Linien repräsentieren die 1σ Standardabweichung. Der Durchschnittswert von 9.572(4) ms berücksichtigt noch keine systematischen Effekte, wie das Entleeren der Falle (*dump*) oder dem Ladungsaustausch.

samtheit an Messungen aus der ersten und zweiten Messreihe, bei denen das Driftröhrenpotential zwischen 500 und 2500 V lag, so dass keine Ionenverluste gegeben waren. Durch Bildung des gewichteten Durchschnitts der Messdatenpunkte erhält man für die Lebensdauer einen Wert von 9.572(4) ms mit einer relativen Ungenauigkeit von 0.04%. Der Fehler gibt die statistische Unsicherheit der totzeitkorrigierten Messungen wieder, berücksichtigt bisher jedoch keinerlei weiteren systematischen Störeffekte, wie z.B. den Ladungsaustausch oder den Einfluss des regelmäßigen Entleerens der Falle (*dump*).

Ladungsaustausch

Der Ladungsaustausch mit neutralen Restgasatomen oder -Molekülverbindungen kann das Ladungsgleichgewicht in der EBIT ändern und somit einen Verlust oder eine Zunahme der Anzahl metastabiler Ar XIV Ionen verursachen und so unter Umständen zu einer kürzeren oder längeren scheinbaren Lebensdauer als die natürlichen Lebensdauer führen.

Um den Zuwachs von Ar XIV Ionen durch Elektroneneinfang von höher ionisierten Ar-Ionen aus dem Restgas zu vermeiden, wurde die Elektronenstrahlenergie so gewählt, dass sie unterhalb des Ionisationspotentials des nächsthöheren Ladungszustands lag, so dass keine höheren Ladungszustände des Ar in der Falle präsent waren. Der Elektroneneinfang von neutralen Atomen des

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Restgases resultiert aufgrund der Verminderung des Ladungszustands der Ar XIV Ionen in einem Verlust der metastabilen Ar XIV Ionen und würde die gemessene Lebensdauer entsprechend verkürzen. Allgemein kann der Effekt jedoch minimiert werden, indem die Neutralgasdichte soweit reduziert wird, bis die Ladungsaustauschrate vernachlässigbar im Vergleich zur Übergangsrate des untersuchten Systems wird.

Der Einfluss des Ladungsaustauschs auf die gemessene kurze Lebensdauer wurde experimentell überprüft, indem verschiedene Zerfallskurven bei unterschiedlichen Gasinjektordrücken und jeweils gleicher Fallenkonfiguration aufgenommen wurden. Dabei wurde der Gasinjektordruck um fast zwei Größenordnungen zwischen 8.2×10^{-9} und 3×10^{-7} mbar variiert. Wie in Abb. 3.14 zu sehen ist, konnten dabei keine statistisch signifikanten Unterschiede bei den gemessenen kurzen Zerfallszeiten festgestellt werden.

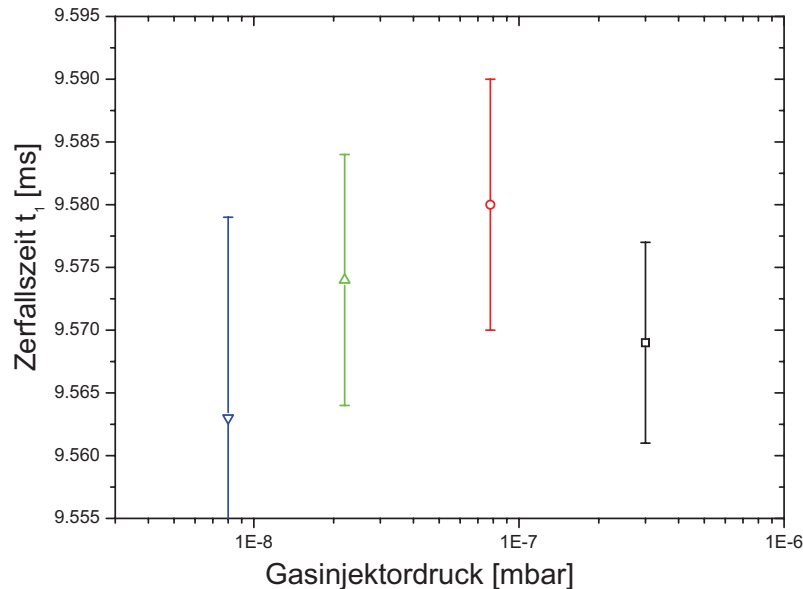


Abbildung 3.14: Messungen der kurzen Zerfallszeit für verschiedene Gasinjektordrücke.

Eine Abschätzung der Ladungsaustauschrate kann mit Hilfe der Müller-Salzborn Formel (Gleichung (2.7)) gemacht werden, mit der sich der Wirkungsquerschnitt für den Einfang eines einzelnen Elektrons berechnen lässt. Unter der Annahme, dass sich die Neutralteilchendichte in der EBIT zwischen $10^4 - 10^6$ Atomen pro cm^{-3} bewegt, erhält man unter Berücksichtigung der Detektionseffizienz eine theoretische obere Grenze der Ladungsaustausch-Verlustrate der Ionen von 0.06 s^{-1} . Da der Druck im Fallenzentrum nicht direkt gemessen werden kann und obwohl trotz beträchtlicher Variation des Gasinjektordrucks keine signifikante Änderung der gemessenen Lebensdauer feststellbar war, wird eine Ionenverlustrate von 0.1 s^{-1} als systematischer Fehler in die letztendliche Bestimmung der Lebensdauer miteinbezogen.

Dump-induzierte Verluste

Um die Akkumulation schwerer Elemente, die aus der Kathode der Elektronenkanone evaporieren und in die Fallenregion diffundieren können, zu verhindern, wird periodisch alle 10 s ein 100 ms lang andauernder Hochspannungspuls an die zentrale Fallenelektrode angelegt (*dump*). Dieser Hochspannungspuls, der die zentrale Driftröhre auf ein positives Potential hebt und so die Ionen zwingt, die Falle zu verlassen, konnte bei den vorliegenden Messungen zeitlich nicht mit dem Schaltzyklus des Elektronenstrahls synchronisiert werden. Das periodische Entleeren der Falle

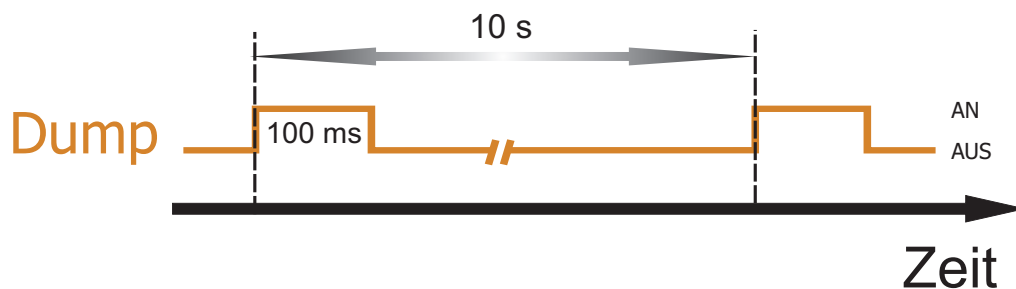


Abbildung 3.15: Das periodische Entleeren der Falle wird periodisch alle 10 s mittels eines 100 ms langen Hochspannungspuls an der zentralen Fallenelektrode verursacht.

verursacht einen kurzzeitigen Verlust aller Ionen und ist somit ein effektiver Verlustkanal, der die gemessene Lebensdauer verkürzt. Statistisch fällt der zwar periodisch anliegende, nicht jedoch mit der Messung synchronisierte *dump* mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit in die jeweiligen Messzeitfenster. Die zugehörige Verlustrate lässt sich zu 10^{-2} s^{-1} bestimmen.

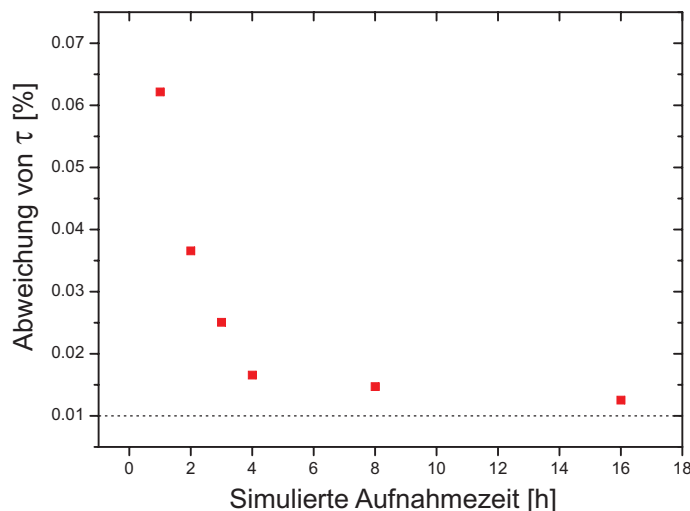


Abbildung 3.16: Ergebnisse der Simulation des Einflusses des periodisch, jedoch zu zufälligen Zeiten relativ zum Messzyklus auftretenden Entleerens der Falle (*dump*) auf die gemessene Lebensdauer. Aufgetragen ist die relative Abweichung der erhaltenen Lebensdauer in Bezug auf die Zerfallszeit der anfänglich „perfekten“ Exponentialfunktion gegen die Integrationszeit.

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des $Ar\ XIV\ 1s^2\ 2s^2\ 2p^2\ P_{3/2}^o$ Niveaus

Dieser, auf der Basis statistischer Überlegungen bestimmte Korrekturwert gilt nur im Limes beliebig langer Messzeiten. Um den Einfluss der Datenaufnahmezeit zu ermitteln, wurden somit Simulationsrechnungen unter Zugrundelegung eines idealen Datensatzes, der die experimentellen Daten repräsentierte, durchgeführt, und die Abweichung der Zerfallszeit von derjenigen der anfangs „perfekten“ Exponentialfunktion als Funktion der Messzeit aufgenommen, wobei der Dunkelzählrate des PMT zusätzlich Rechnung getragen wurde. Die relative Abweichung der durch das Anpassen von Exponentialfunktionen an die so erhaltenen Datensätze extrahierten Lebensdauern von der Zerfallszeit der ungestörten Exponentialfunktion ist in Abb. 3.16 für verschieden lange Simulationszeiten dargestellt. Aus der Abbildung ist zu erkennen, dass sich wie erwartet die relative Abweichung nach langer Messzeit dem Wert 0.01 % annähert, was in Übereinstimmung mit der oben gemachten Abschätzung ist.

Da die aktuellen Messzeiten für die verschiedenen Datenpunkte zwischen 3 und 18 Stunden lagen, wurde ein maximaler Fehler von 0.025 % für alle Messreihen angenommen und die Messwerte entsprechend korrigiert, obwohl dieser Wert typisch zweimal kleiner als die statistische Unsicherheit des Mittelwertes aller Datenpunkte ist.

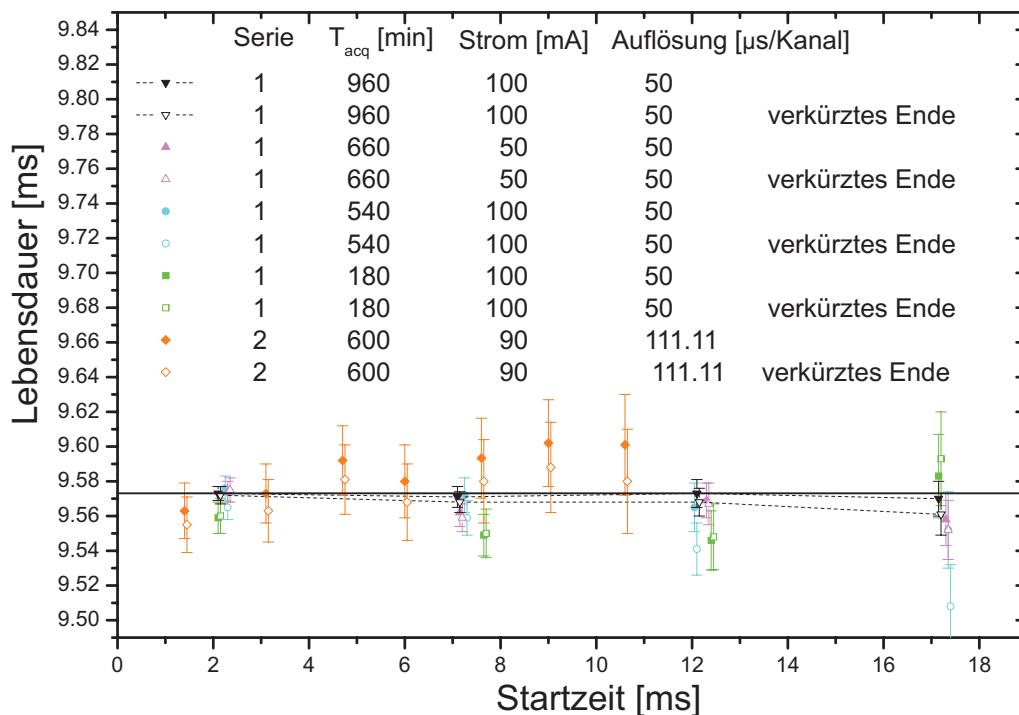


Abbildung 3.17: Tail-fit-Analyse für verschiedene Lebensdauerkurven. Neben Kurven, die mit 100 mA (1. Messreihe) bzw. 90 mA (2. Messreihe) aufgenommen wurden, sind auch einige Kurven mit 50 mA Emissionsstrom untersucht worden. Die gestrichelten Linien verdeutlichen die Ergebnisse der Zerfallskurven mit der jeweils höchsten Statistik.

Tail-fit-Analyse und Untersuchung von Korrelationen

Um die Validität der zum Anpassen der experimentell gewonnenen Daten benutzten Funktion zu prüfen, als auch um eventuelle systematische Fehler, die am Beginn der Zerfallskurve durch z.B. Kaskadenwiederbevölkerung des angeregten Niveaus, die Totzeit des DAQ-Systems oder auch eine intensitätsabhängige PMT-Detektoreffizienz verursacht werden können, zu untersuchen, wurde eine so genannte *Tail-fit*-Analyse durchgeführt. Hierbei werden die Zerfallskurven mit unterschiedlichen Start-, und Endzeitpunkten gefittet und die erhaltenen Lebensdauern miteinander verglichen. Die Startzeitpunkte der Fits wurden von 2 ms bis hin zu 17 ms nach Ausschalten des Elektronenstrahls variiert, während der Endpunkt um einen Faktor zwei verkürzt wurde (von 200 auf 100 ms bzw. von 1000 auf 500 ms). Die Ergebnisse sind in Abb. 3.17 zu sehen.

Die Datenpunkte zeigen keine wesentlichen Schwankungen oder unerwartete Entwicklungen auf, woraus sich schließen lässt, dass die verwendete Fitfunktion die Messkurven gut repräsentiert und auch keine verborgenen systematischen Fehler vorhanden sind. Der beobachtbare scheinbar ansteigende Trend für die Kurven der zweiten Messreihe ist statistisch nicht signifikant.

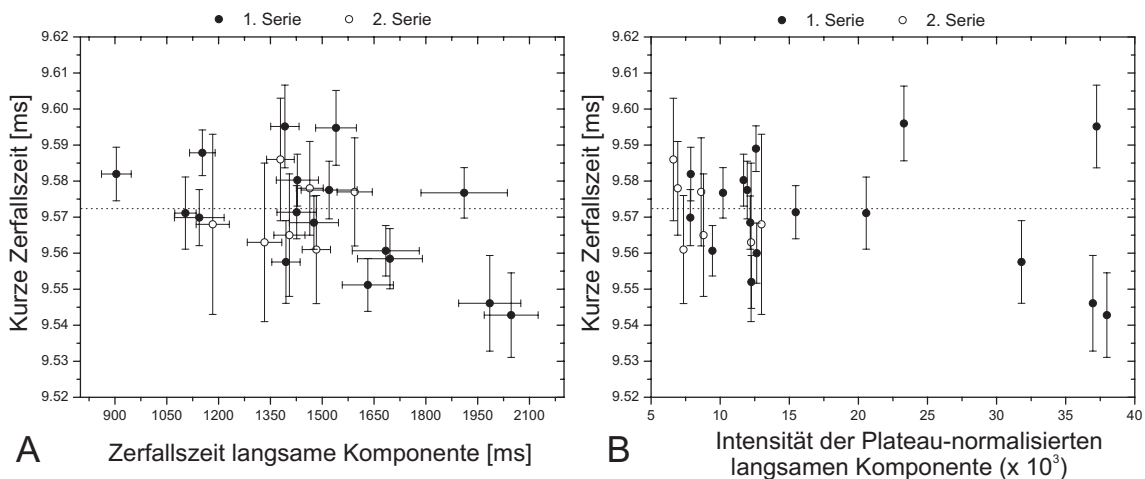


Abbildung 3.18: Untersuchung möglicher Korrelationen zwischen kurzer Zerfallszeit und der Zerfallszeit der langsamen Komponente (A) und ihrer Plateau-normierten Intensität (B).

Im Abschnitt über den axialen Verlust von Ionen aus der Falle wurde behauptet, dass die langsame Zerfallskomponente nicht als Maß bzw. Ursache für einen eventuellen Ionenverlust interpretiert werden kann. Diese These wird unterstützt durch Abb. 3.18 A, in der die Zerfallszeit der schnellen Komponente gegen die der langsamen aufgetragen ist. Wäre die langsame Zerfallskomponente ein Indikator für den Ionenverlust, so müssten die beiden gemessenen Zerfallszeiten eine inverse Korrelation aufweisen. Wie jedoch in Abbildung 3.18 A zu sehen, besteht zwischen der kurzen Zerfallszeit und der langsamen Komponenten keine signifikante Abhängigkeit oder Korrelation; sie ist lediglich statistischen Schwankungen unterworfen. Dasselbe ergibt sich, wenn man die kurze Zerfallszeit als Funktion des Verhältnisses von Untergrundniveau zur Höhe des beobachteten Plateaus vor Ausschalten des Elektronenstrahls, betrachtet (Abb. 3.18 B). Auch hier wird

keinerlei Korrelation festgestellt, und die vorhandenen Schwankungen sind rein statistischer Natur.

Totzeit des Datenaufnahmesystems

Wie oben bereits erwähnt, wurde die Totzeit (siehe Gleichung 3.2) des Datenaufnahmesystems in der Analyse der Daten berücksichtigt. Sie ist neben dem Ladungsaustausch die relevanteste systematische Fehlerquelle. Die Totzeit ist dasjenige Zeitintervall, in dem das Datenaufnahmesystem aufgrund der Verarbeitung vorangegangener Signale nicht in der Lage ist, den nächsten ausgelösten Puls des Detektors zu registrieren. Sie spielt vor allem bei hohen Zählraten (kHz Bereich) eine Rolle, da dort die Wahrscheinlichkeit, dass ein Überlapp zwischen der Verarbeitung eines Pulses und dem Ankommen des Nachfolgenden auftritt, sehr viel höher ist als bei niedrigen Zählraten.

Allgemein muss zwischen der Totzeit des Zählers (*Scaler*), der die registrierten Ereignisse zählt und im CAMAC *event mode* Datenaufnahmesystem verarbeitet, und der vorangehenden Elektronik (PMT, Vorverstärker, Diskriminator etc.) unterschieden werden. Der *Scaler* ist nach den Spezifikationen in der Lage, Zählraten von bis zu 100 MHz (10 ns Auflösung) zu verarbeiten. Entsprechend spielt die Totzeit des Zählers bei den hier gegebenen Zählraten (bis zu 50 kHz) keine Rolle. Die Totzeit der vorangegangenen Elektronik wurde experimentell bestimmt, indem zu verschiedenen Zeitpunkten mit Hilfe eines Oszilloskops großer Bandbreite (Tektronix, 500 MHz, 1 GS/s) bei konstant angeschaltetem Elektronenstrahl und unterschiedlichen Zählraten (9 und 20 kHz) das kleinste Zeitintervall zwischen zwei aufeinander folgend registrierten Pulsen gemessen wurde. Der gemessene Wert der jeweils unabhängigen Messungen ist innerhalb der statistischen Unsicherheit konstant und beläuft sich auf $t_{\text{dead}} = 1.4(1) \mu\text{s}$.

Um den Fehler, der durch die Unsicherheit der Bestimmung der Totzeit verursacht wird, zu untersuchen, wurden alle aufgenommenen Kurven sowohl mit einer Totzeit von $1.3 \mu\text{s}$ als auch $1.5 \mu\text{s}$ (obere und untere Grenze) gefittet. Die Differenz des statistisch gewichteten Durchschnitts jedes individuell korrigierten Datensatzes betrug typischerweise 0.005 ms, was einem relativen Fehler von $\sim 0.06\%$ entspricht. Dieser systematische Fehler wird bei der endgültigen Bestimmung der Lebensdauer des ${}^2P_{3/2}^o$ Zustands im Fehlerbudget berücksichtigt (siehe Kap. 4.1.1).

Wiederbevölkerung

Die Wiederbevölkerung des metastabilen ${}^2P_{3/2}^o$ ausgehend von höher gelegenen Niveaus kann im Prinzip zu einer künstlich verlängert gemessenen Lebensdauer führen und somit einen systematischen Fehler der Messung verursachen. In [157, 158] sind Übergangsraten von den nächstgelegenen $2l2l'2l''$ und $2l2l'3l''$ Zuständen für einige borartige Ionen in der isoelektronischen Sequenz berechnet. Skalierung der berechneten Lebensdauern mit der Kernladungszahl Z hin zu den hier interessierenden Ionen ergibt, dass alle niedrig gelegenen Niveaus durch VUV-Übergänge innerhalb von wenigen μs oder weniger zerfallen und entsprechend keinen signifikanten Beitrag zur gemessenen Lebensdauer erbringen können (siehe Abb. 3.19).

Der angeregte $1s^2 2s 2p^2 {}^4P_{3/2}$ Zustand mit einer Lebensdauer von ungefähr $10 \mu\text{s}$ ($0.1 \mu\text{s}$ in

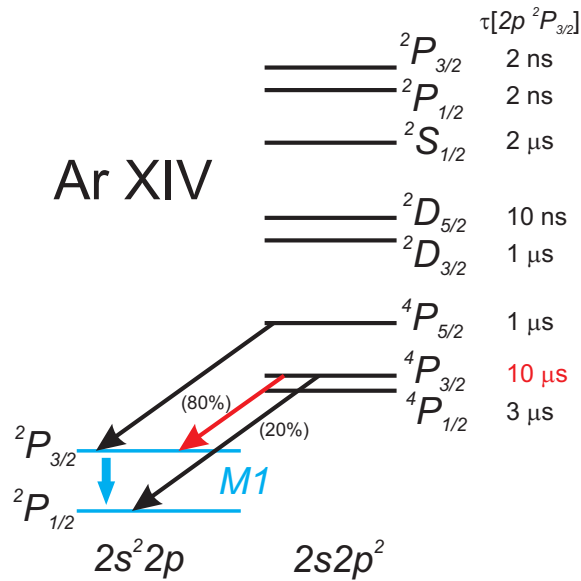


Abbildung 3.19: Teil des Niveauschemas von Ar XIV . Neben der Feinstrukturaufspaltung der Grundzustandskonfiguration sind die nächstgelegenen $2s 2p^2$ Zustände gezeigt. Der $^4P_{3/2}$ Zustand hat eine skalierte Lebensdauer von $\sim 10 \mu\text{s}$ bei einem Verzweungsverhältnis von 80% zu 20% in Bezug auf das metastabile $^2P_{3/2}^o$ Niveau. Mit Ausnahme des M1-Übergangs liegen die Übergangsenergien alle im UV und VUV-Bereich.

borartigem Fe ($Z=26$) [158]) ist das metastabile, niedrig gelegene Niveau mit der zweitlängsten Lebensdauer in borartigem Ar XIV , und könnte noch am ehesten die Lebensdauermessung beeinflussen. Da die Wiederbevölkerung des $^2P_{3/2}^o$ größtenteils in den ersten μs nach Abschalten des Elektronenstrahls stattfindet und die Fitprozedur erst 2 ms (~ 100 mittlere Lebensdauern des $^4P_{3/2}$ Zustands) später beginnt, kann sichergestellt werden, dass eine Wiederbevölkerung durch die Kaskade dieses Niveaus keine Auswirkung auf die gemessene Lebensdauer hat. Dies zeigt sich auch in der Tail-fit-Analyse, wo keinerlei Anomalie kurz nach Abschalten des Elektronenstrahls festgestellt wurde.

Neben den niedrig gelegenen Niveaus könnten auch Kaskaden von höher gelegenen Rydberg-Zuständen mit möglichen Lebensdauern im Millisekunden-Bereich Einfluss auf die Messung nehmen. Jedoch werden diese Rydberg-Niveaus durch Stark-induziertes Vermischen der l -Zustände [159], verursacht durch das elektrische Feld des Elektronenstrahls, der Driftröhren und durch Ion-Ion-Stöße, in niedriger gelegene l -Rydberg Zustände abgeregt, die wiederum Lebensdauern von nur einigen μs haben. Schlussfolgernd lässt sich sagen, dass alle Rydberg-Niveaus bereits vor Beginn der Fitprozedur in den Grundzustand abgeregt sind und deswegen im Rahmen der angegebenen Genauigkeit keinen Einfluss auf die Bestimmung der Lebensdauer haben.

3.1.2 Mögliche Ursachen für die langsame Zerfallskomponente

Neben der erwarteten kurzen Zerfallskomponente, welche sich durch die Abregung des metastabilen $^2P_{3/2}^o$ Zustands in den Grundzustand erklären lässt, wird in den gemessenen Zerfallskurven zusätzlich ein langsam abnehmendes Untergrundsignal mit einer Lebensdauer zwischen einer

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

und zwei Sekunden beobachtet. Wie oben gezeigt, beeinflusst dieser Untergrund die Messung der Lebensdauer des angeregten Niveaus nur innerhalb der experimentellen Unsicherheit, die durch andere Fehlerquellen dominiert ist. Des Weiteren wurde argumentiert, warum sich der langsame Zerfall nicht auf, bei den gewählten Fallentiefen theoretisch schwer zu erklärende, Ionenverluste zurückführen lässt. Im Folgenden Abschnitt sollen nun weitere mögliche Ursachen für die langsame Zerfallskomponente aufgezeigt und diskutiert werden.

Das Auftreten dieser Zerfallskomponente bedingt die neuerliche Bevölkering (Repopulation) des metastabilen Zustands nach Ausschalten des Elektronenstrahls. So können im Wesentlichen vier Mechanismen für den beobachteten Untergrund verantwortlich sein:

- (i) Anregung durch Coulomb-artige Ion-Ion-Stöße,
- (ii) Stöße zwischen Ar^{14+} Ionen mit neutralen Atomen, die einen Ladungsaustausch nach sich ziehen,
- (iii) kaskadenbedingte Wiederbevölkering des metastabilen Niveaus ausgehend von höher gelegenen angeregten Zuständen,
- (iv) Elektronenstoßanregung durch, mit den Ionen in der Falle koexistierenden, niederenergetischen Penning-Elektronen.

Die Anregung durch Ion-Ion-Stöße (i) und die Wiederbevölkering des metastabilen Niveaus durch Ladungsaustauschprozesse (ii) können als Ursache ausgeschlossen werden, da die Intensität der langsam abfallenden Komponente für hohe Gasinjektordrücke abnimmt (siehe Abb. 3.5), obwohl bei größerer Argonteilchendichte in der Falle beide Prozesse verstärkt auftreten müssten, und eine Zunahme der Untergrundintensität bewirken sollten. Prozess (i) ist zudem ausgeschlossen, da bei der gegebenen Ionentemperatur in der Falle von ca. $350 \text{ eV}/k_B$ die kinetische Energie der hochgeladenen Ionen nicht ausreicht, um die gegenseitige Coulombabstoßung zu überwinden und reaktiv miteinander zu stoßen. Des Weiteren ist die Elektronenstrahlenergie in der Fallmitte so gewählt, dass sie unterhalb des Ionisationspotentials von Ar^{13+} liegt und somit zu niedrig ist, um Ar^{14+} Ionen zu produzieren, was wiederum (ii) unmöglich macht. Die Kaskadenbevölkering des angeregten Zustands (iii) kann ebenso als Ursache ausgeschlossen werden, da sich für Ionen mit mittlerer Kernladungszahl Z – wie bereits zuvor im Detail dargestellt – alle bekannten, höher gelegenen Rydberg-Niveaus mittlere Lebensdauern von wenigen μs haben und sich somit nicht auf einer Sekundenzeitskala abregen [160].

Anregung durch niederenergetische Elektronen

Dem Ausschlussprinzip folgend ist also der Prozess (iv), genauer die Elektronenstoßanregung des $2.8 \text{ eV } M1$ -Übergangs durch niederenergetische Elektronen ($E_e < 100 \text{ eV}$), die sich für ausreichend lange Zeiten nach Ausschalten des Elektronenstrahls im selben Volumen wie die Ionen aufhalten müssen, als Grund für den langsamen Zerfall des Untergrundsignals anzunehmen. Im Folgenden

werden Argumente aufgezeigt, die die Koexistenz von gefangenen Elektronen und Ionen im Fallenvolumen untermauern und damit die eben genannte These stützen.

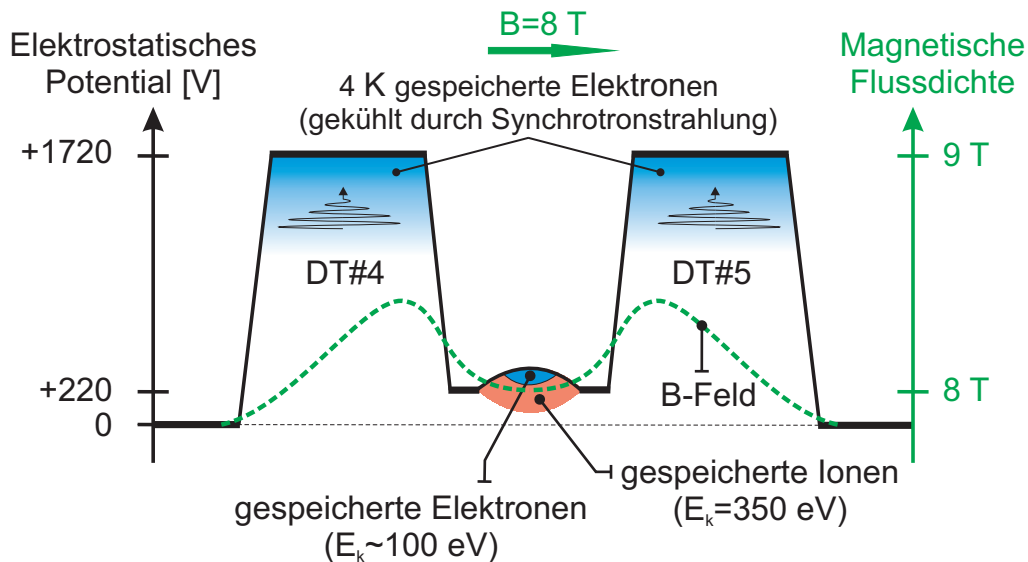


Abbildung 3.20: Schematische Darstellung des elektrostatistischen, axialen Driftröhrenpotentials und die magnetische Flussdichte entlang der Elektronenstrahlachse (grüne gestrichelte Linie). Die Magnetfeldlinien formen eine magnetische Flaschenkonfiguration, die in der Lage ist niederenergetische Elektronen zu speichern.

Freie, niederenergetische Elektronen, die, wie Abschätzungen zeigen, durch die vereinten Effekte des EBIT-Magnetfelds und der positiven Raumladung der Ionenwolke in der Fallenregion gespeichert werden können, entstehen beim Ausschalten des Elektronenstrahls, der durch die alternierende Spannung an der Fokuselektrode kurz defokussiert wird, bevor er komplett auf Null abgefallen ist. Ein Teil der Elektronen, die während dieser Defokussierungsphase ihre axiale Propagationsrichtung entlang des Driftröhren-Ensembles verloren haben, können durch das positive Potential der Driftröhren zur Fallenmitte hingezogen werden und dort durch das EBIT-Magnetfeld, das als magnetische Flasche wirkt, in der Fallenmitte gespeichert werden. Wie in Abb. 3.20 illustriert, erzeugen die supraleitenden Spulen der EBIT, die in einer nicht perfekten Helmholtzkonfiguration angeordnet sind, ein Magnetfeld mit zwei Maxima von 8.3 T Feldstärke, die axial 25 mm vom Fallenzentrum (8 Tesla) entfernt sind. Dieser Gradient des Magnetfeldes fällt mit der axialen elektrischen Fallenbegrenzung (Rand der beiden benachbarten Driftröhren) nahezu zusammen. Bei Vernachlässigung von Plasma-, und Stoßeffekten kann gezeigt werden, dass niederenergetische Elektronen ($E_e < 100$ eV), die in der Mitte der Falle mit einem Steigungswinkel $> 77^\circ$ bezüglich der Elektronenstrahlachse geboren werden, eine Reflexion erfahren [161], und somit nicht in die tiefen positiven Potentialwälle, die auf beiden Seiten der zentralen Driftröhre für den axialen Einschluss der Ionen sorgen, fallen können.

Neben dem magnetischen Einschluss können die Elektronen auch durch die positive Raumladung der gespeicherten Ionenwolke (*Ion Space Charge Potential, ISCP*) in der EBIT gehalten werden. Wie bereits Anfang des Kapitels abgeschätzt, beträgt das ISCP ungefähr +250 eV. Dieser Wert ist

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

prinzipiell groß genug, um niederenergetische Elektronen, die in der magnetischen Flasche gefangen sind, zum Fallenzentrum hin zu ziehen und zu speichern. Wie in Abb. 3.9 zu sehen, wächst die Intensität des Untergrunds mit steigendem Driftröhrenpotential – und damit auch einer größeren Zahl gespeicherter Ionen –, was darauf hinweist, dass das ISCP direkt mit der Zahl der Elektronen korreliert ist, die mit der Ionenwolke überlappen.

Um die Ar XIV Ionen in das metastabile Niveaus anzuregen, müssen die in der Ionenwolke koexistierenden Elektronen eine kinetische Energie gleich oder höher als die Anregungsenergie von 2.8 eV (441.25 nm) besitzen. Die mittlere kinetische Energie des gespeicherten Elektronenensembles ist durch deren Temperatur T_e gegeben. Diese lässt sich bei Vernachlässigung des Magnetfelds über das Verhältnis $\omega_e = e\Phi_{\text{ion}}/(k_B T_e)$ zwischen der Potentialbarriere und der Elektronentemperatur abschätzen. Geht man von einem thermischen Gleichgewichtszustand der gespeicherten Teilchen aus, so ist deren kinetische Energie (und damit deren Temperatur) niedriger als die zur Überwindung des Potentialwalls nötige Energie und ω_e nimmt in diesem Fall typischerweise Werte zwischen 2 und 10 an [144]. Somit erhält man für ein ISCP von $\Phi_{\text{ion}} = 250$ V eine Elektronentemperatur von $T_e = 25 - 125$ eV/ k_B , welche in der Tat groß genug ist, um die Ionen in das metastabile Niveaus anzuregen.

Ferner lässt sich bei bekannter Elektronentemperatur T_e die Dichte der gespeicherten Elektronen aus der Untergrundzählrate N_s der langsamen Komponente berechnen, die gegeben ist durch

$$N_s = \frac{\varepsilon_{\text{eff}} N_i k n_e (1/\tau)}{1/\tau + 2k n_e}, \quad (3.8)$$

mit N_i der Gesamtzahl gespeicherter Ionen, die sich auf ca. 5×10^7 beläuft, k dem temperaturabhängigen Ratenkoeffizienten für die Anregung bzw. Abregung durch Elektronen, n_e der Dichte der Elektronen, $\varepsilon_{\text{eff}} = 7.7 \times 10^{-5}$ der Gesamtdetektionseffizienz und der Lebensdauer τ des metastabilen Zustands. Für eine mittlere Elektronentemperatur von 75 eV und einem maxwellverteilten Elektronenstoß-Anregungskoeffizienten erhält man eine Elektronendichte von 5×10^7 cm⁻³. Aus der bekannten Geometrie der Falle (Länge 40 mm, Durchmesser ca. 0.7 mm) wird nun die Gesamtzahl der Elektronen zu 8×10^5 abgeschätzt, was ungefähr 60 mal weniger als die Zahl der gespeicherten Ionen in der Falle ist.

Die vorangegangene Abschätzung berücksichtigt nicht das 8-T starke Magnetfeld. In diesem kühlen sich die niederenergetischen Elektronen durch Emission von Synchrotronstrahlung innerhalb einer Zeitkonstante von $\tau_s \approx 50$ ms stark ab und verlieren so ihre gesamte kinetische Energie. Dementsprechend würden die Elektronen nach einer kurzen Zeit nicht mehr genügend kinetische Energie besitzen, um die gespeicherten Ionen anzuregen. Dies sollte sich in einer abrupten Änderung der Form der Zerfallskurve des Untergrundsignals bemerkbar machen. Wie aus den Residuen in z.B. Abb. 3.6 zu sehen, ist ein solcher Effekt in den Zerfallskurven jedoch auch über lange Zeiten hinweg nicht zu erkennen. Das Abkühlen der Elektronen kann jedoch, wie Abschätzungen zeigen, durch elastische Stöße mit den Ionen, bei denen die Elektronen letztendlich die Temperatur der Ionen annehmen, drastisch verlangsamt werden. Dabei spielt das Verhältnis der Zahl gespeicherter Ionen zu der Zahl gespeicherter Elektronen für die Abkühlzeit eine entscheidende

Rolle.

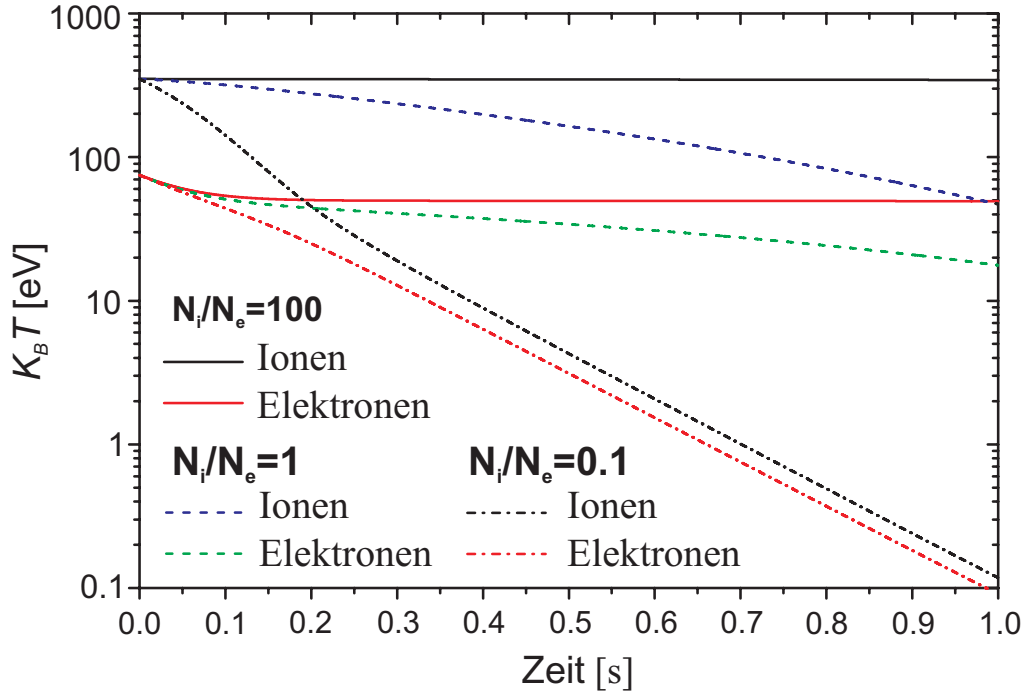


Abbildung 3.21: Theoretische Entwicklung der Temperatur von gleichzeitig in der Falle gespeicherten Ar XIV Ionen und Elektronen für verschiedene Verhältnisse der Anzahl der Ionen zu Elektronen von $N_i/N_e=0.1, 1,$ und 100 . Die Temperaturen wurden für einen Ionenwolkenradius von $400 \mu\text{m}$ und einer Länge von 30 mm berechnet. Die anfängliche Ionen-, und Elektronentemperatur betrug 350 bzw. 75 eV .

Eine realistische Abschätzung der Elektronen- und Iontemperatur und deren zeitliche Entwicklung kann durch die Auswertung von Ratengleichungen gewonnen werden, die den kinetischen Energieaustausch der Elektronen mit den Ionen beschreiben. So kann die zeitliche Entwicklung von T_i und T_e durch folgende zwei Ratengleichungen beschrieben werden:

$$\frac{d}{dt} T_i = -\frac{1}{\tau_{eq}} (T_i - T_e), \quad (3.9)$$

$$\frac{d}{dt} T_e = \frac{N_i}{N_e} \frac{1}{\tau_{eq}} (T_i + T_e) - \frac{1}{\tau_s} (T_e - T_0), \quad (3.10)$$

mit der Coulomb-Stoß Zeitkonstante τ_{eq} , die die Zeit bis zum Erreichen des thermischen Equilibriums der Ionen und Elektronen wiedergibt. Diese wiederum lässt sich unter Verwendung der Spitzer-Gleichung [147] durch

$$\tau_{eq} = \frac{3 \cdot 2^{1/2} \pi^{3/2} \epsilon_0^2 M_i m_e k_B^{3/2}}{n_e q_i^2 e^4 \ln \Lambda_{ei}} \left(\frac{T_e}{m_e} + \frac{T_i}{M_i} \right)^{3/2} \quad (3.11)$$

berechnen. Der Coulomb-Logarithmus $\ln \Lambda_{ei}$ für Elektron-Ionen-Stöße ist durch

$$\Lambda_{ei} = \frac{4\pi}{q_i e^2} (\epsilon_0 k_B)^{3/2} \left(\frac{T_e}{n_e} \right)^{1/2} \left(T_e + \frac{T_i m_e}{M_i} + 2 \sqrt{\frac{m_e}{M_i} T_i T_e} \right) \quad (3.12)$$

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

gegeben.

Simulationen mit verschiedenen Dichteverhältnissen N_i/N_e der gespeicherten Elektronen und Ionen zeigen (Abb. 3.21), dass für das im Experiment geschätzte Verhältnis $N_i/N_e \approx 60$ und den oben genannten Dichten der Elektronen und Ionen (Umgebungstemperatur $T_0 = 4$ K, Ionentemperatur $T_i = 350$ eV/ k_B), das Abkühlen der Elektronen durch Synchrotronstrahlung durch die Thermalisation mit den gespeicherten Ionen extrem verlangsamt wird. Die Ionen, die aufgrund ihrer größeren Masse sehr viel langsamer ihre kinetische Energie durch Synchrotronstrahlung verlieren, agieren als Wärmereservoir für die niederenergetischen Elektronen. Somit können die Elektronen ihre anfängliche Energie von ungefähr 100 eV über eine sehr lange Zeit beibehalten und sind so in der Lage, noch eine Sekunde oder mehr nach Ausschalten des Elektronenstrahls die Ar XIV Ionen ins metastabile Niveau anzuregen.

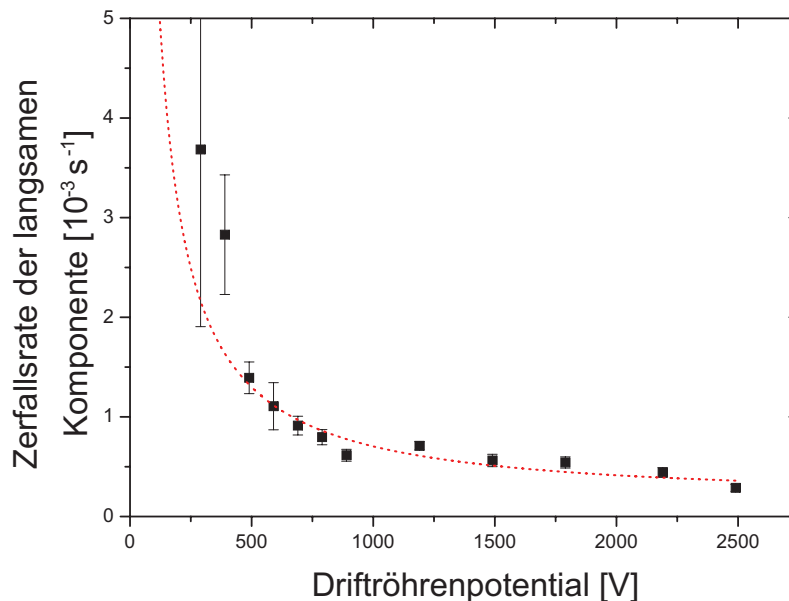


Abbildung 3.22: Die Zerfallsrate $1/t_2$ der langsamen Komponente in Abhängigkeit von der Falltiefe. Die gestrichelte Linie gibt einen exponentiellen Verlauf der Form $\exp(-\omega_i)/\omega_i$ wieder.

Abfallen der langsamen Komponente

Wie oben bereits gezeigt, konnte keine Korrelation zwischen der langsamen Zerfallskomponente und ihrer Intensität als Funktion der kurzen Zerfallszeit festgestellt werden (siehe Abb. 3.18 A und 3.18 B), und auch die Verlustrate von Ar XIV beim Erhöhen des Fallenpotentials von 500 zu 2500 V blieb nahezu konstant. Gleichzeitig fiel die Rate, mit der das Untergrundsignal zerfällt, nach Abb. 3.11 mit ansteigendem Driftröhrenpotential ab. Der Abfall des Signals kann zudem gut mit der Exponentialfunktion $\exp(-\omega_i)/\omega_i$ als Funktion der Falltiefe beschrieben werden (siehe Abb. 3.22). Die Falltiefe ist direkt mit der Anzahl der gespeicherten Ionen korreliert. Diese wie-

derum sind für das Auftreten der positiven Raumladung verantwortlich, die das Einfangen langsamer Elektronen verursacht. Je tiefer die Falle, umso mehr Ionen werden darin gespeichert und umso tiefer ist das davon herrührende Raumladungspotential. Entsprechend niedriger sind daher die Verdampfungsverluste der gefangenen Elektronen. Aus diesen und den im vergangenen Abschnitt diskutierten Argumenten lässt sich schließen, dass der Zerfall der langsamen Komponente auf den Verlust von gespeicherten Elektronen, die die Ionenwolke exponentiell durch evaporatives Kühlen verlassen, zurückzuführen ist.

Quenchen durch gespeicherte Elektronen

Die oben diskutierten, gespeicherten Elektronen können natürlich auch durch Elektronenstoß-Anregung in höhere Niveaus bzw. stoßinduzierte Abregung die Zahl der im metastabilen Niveau angeregten Ionen reduzieren; ein Prozess der als *Quenchen* bezeichnet wird und der bei der Bestimmung der natürlichen Lebensdauer des untersuchten Zustands berücksichtigt werden muss. Vernachlässigt man jegliche Verluste aus der Falle, so lässt sich die zeitliche Entwicklung der Bevölkerung des metastabilen Niveaus $N_M(t)$ bei Einbeziehung von Elektronenstößen mit Hilfe einer Ratengleichung beschreiben. Für ein Zwei-Niveau System erhält man [162]

$$N_M(t) = \left(N_M(0) - \frac{N_i k n_e}{1/\tau + 2k n_e} \right) e^{-(1/\tau + 2k n_e)t} + \frac{N_i k n_e}{1/\tau + 2k n_e}, \quad (3.13)$$

wobei $N_M(0)$ die anfängliche Zahl metastabiler Ionen vor Ausschalten des Elektronenstrahls ist, τ die natürliche Lebensdauer, N_i die Gesamtzahl an Ar^{13+} und n_e die Elektronendichte in der Falle bezeichnen. Der erste Term beschreibt im Wesentlichen den Zerfall des metastabilen Zustands, wobei die effektive Lebensdauer $t_1 = (1/\tau + 2k n_e)^{-1}$ von der natürlichen Zerfallszeit abhängt und zudem aufgrund der Anwesenheit gespeicherter Elektronen um die Quenchrates $(2k n_e)$ verkürzt ist. Der letzte Term in Gleichung (3.13) gibt den konstanten Untergrund wieder, der durch Elektronenstoßanregung vom Grundzustand in den metastabilen Zustand verursacht wird. Aus der Intensität der langsamen Zerfallskomponente lässt sich die Quenchrates abschätzen (vgl. Gleichung (3.8)). Bei einer Gesamtzahl von $N < 5 \times 10^7$ Ionen in der Falle und der Berücksichtigung der höchsten gemessenen Intensität der langsamen Zerfallskurve erhält man als obere Grenze für die Quenchrates einen Wert von 0.33 s^{-1} . Dies entspricht ungefähr 0.3% der natürlichen Lebensdauer. Allerdings wird die Rate stark überschätzt, da sie entscheidend vom Verhältnis der Elektronen zu Ionen in der Falle abhängt und die angenommene Zahl der Ionen aus unabhängigen Extraktionsexperimenten bei einer Falltiefe von 300 V geschätzt wurde, die Lebensdauermessungen jedoch bei einem Fallpotential von 1500 V durchgeführt worden sind. Da bei höherem Potential die Anzahl der Ionen größer ist, erwartet man entsprechend eine geringere Quenchrates als oben angegeben.

Falls Quenchen ein entscheidender Faktor wäre, würde man des Weiteren eine systematische Abhängigkeit zwischen der kurzen Zerfallszeit t_1 und dem Verhältnis der Intensität des Untergrunds der langsamen Komponente zu der Intensität des Plateaus vor Ausschalten des Elektronenstrahls – dies ist ein Maß für die Zahl gespeicherter Elektronen – ausfindig machen können. Dies ist in Abb. 3.18 B jedoch nicht zu erkennen, was darauf hindeutet, dass das Elektronenstoß bedingte

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Quenchen die Lebensdauer des metastabilen Niveaus innerhalb der statistischen Ungenauigkeit nicht signifikant beeinflusst.

3.1.3 Laserspektroskopische Untersuchungen

Um den Übergang spezifisch Anregen zu können wurde zusätzlich zur Verwendung der „klassischen Methode“ zur Bestimmung von Lebensdauern an einer EBIT, auch die Machbarkeit der sehr viel schwierigeren Methode der laserspektroskopischen Anregung am $2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - 2P_{3/2}^o$ Übergang in Ar XIV mit Hilfe eines gepulsten Lasersystems ausgetestet. Der experimentelle Aufbau und das Messprinzip ist bereits in Kapitel 2.3.1 ff. dargestellt worden.

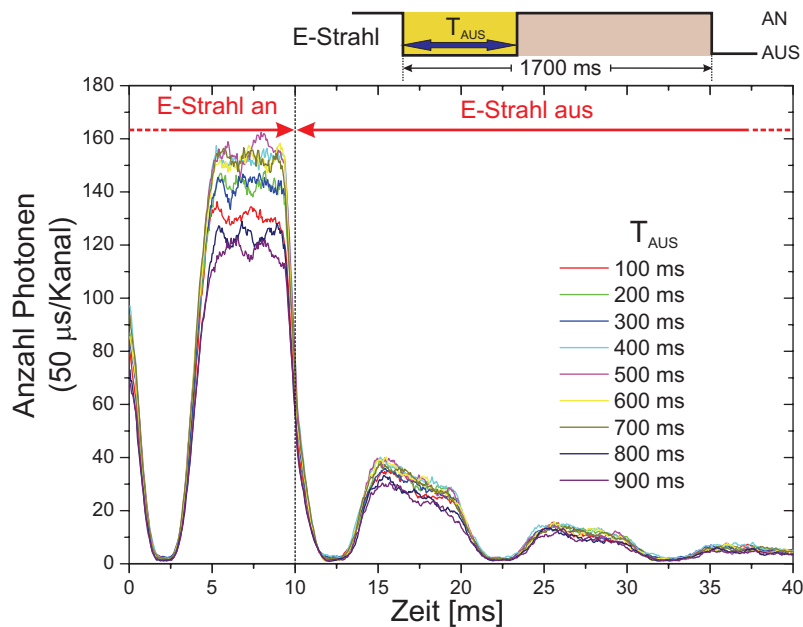


Abbildung 3.23: Optimierung der Zählrate durch Variation der Ausschaltzeit des Elektronenstrahls bei konstanter Schaltperiode (1700 ms). Dargestellt sind die verschiedenen Zerfallskurven (10 *point average smoothing*) nach einer jeweiligen Aufnahmezeit von 10 min. Die periodisch auftretenden Unterbrechungen in den Messkurven sind auf das Chopperrad zurückzuführen. Die Optimierungen wurden ohne Anwesenheit des Lasers durchgeführt.

Zur Produktion von Ar XIV wurden im Wesentlichen die selben Einstellungen hinsichtlich Elektronenstrahlenergie, Injektionsdruck, als auch Emissionsstrom und Falltiefe wie bei den oben beschriebenen Messungen vorgenommen. Die effektive Elektronenstrahlenergie betrug $\cong 700$ eV, während der Emissionsstrom auf $I_e=100$ mA eingestellt war. Bei einem Gasinjektordruck von 1.8×10^{-8} mbar und einer Falltiefe von 600 eV, das durch die Potentiale der beiden, nächst zur zentralen Fallenelektrode gelegenen, Driftröhren DT#4 und DT#5 definiert war, ergab sich bei konstant angeschaltetem Elektronenstrahl eine Fluoreszenzzählrate von ungefähr 10 kHz. Um die durch den Elektronenstrahl angeregten Ionen in den Grundzustand relaxieren zu lassen, von dem aus sie mittels des Laserpulses angeregt werden können, wurde der Elektronenstrahl bei ei-

Tabelle 3.2: Die Polarisationskomponenten von Übergängen zwischen verschiedenen Zeeman-aufgespaltenen magnetischen Unterniveaus. Der Winkel Θ gibt die Beobachtungsrichtung in Bezug auf die Magnetfeldachse an. π und σ sind linear polarisiert, während r und l rechtshändig bzw. linkshändig elliptisches und zirkuläres Licht bezeichnen.

Typ des Übergangs		Transversal ($\Theta = 90^\circ$)	Diagonal ($\Theta = 45^\circ$)	Longitudinal ($\Theta = 0^\circ$)
E1	$\Delta M_j = 0$	π	π	–
	$\Delta M_j = \pm 1$	σ	elliptisch (r, l)	zirkular (r, l)
M1	$\Delta M_j = 0$	σ	σ	–
	$\Delta M_j = \pm 1$	π	elliptisch (r, l)	zirkular (r, l)
E2	$\Delta M_j = 0$	–	π	–
	$\Delta M_j = \pm 1$	π	elliptisch (r, l)	zirkular (r, l)
	$\Delta M_j = \pm 2$	σ	elliptisch (r, l)	–

ner Zyklusperiode von 1700 ms für eine Zeitdauer von 450 ms ausgeschaltet. Das gewählte Verhältnis zwischen der Aus- bzw. An-Phase des Elektronenstrahls ergab sich aus der Optimierung der Aufnahmesequenz hinsichtlich der maximal erreichbaren Zählrate bei angeschaltetem Elektronenstrahl (siehe Abb. 3.23). Der Elektronenstrahl wurde jeweils 10 ms nach Öffnen des Datenaufnahmefensters ausgeschaltet bzw. 25 ms vor Schließen des Datenaufnahmefenster wieder angeschaltet.

Im Anschluss an diese Optimierungsarbeiten, wurde der Laser mit einer, vor dem Eintritt in das Vakuumsystem der EBIT, maximal gemessenen Pulsenergie von 3 mJ in die EBIT eingekoppelt und auf die Ionenwolke fokussiert. Die Wellenlänge des Lasers wurde für diese Messung konstant auf die Zentralwellenlänge $\lambda = 441.256$ nm des Übergangs eingestellt. Die Repetitionsrate des Lasers betrug 99 Hz. Aufgrund der hohen Temperatur der Ionen in der Falle erscheint die Resonanzlinie des ${}^2P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs, deren natürliche Linienbreite aufgrund der sehr langen Lebensdauer extrem schmal ist ($\Delta\nu_N \cong 16$ Hz), dopplerverbreitert (bei einer Iontemperatur von 350 eV ergibt sich eine Verbreiterung zu $\Delta\nu_D \cong 158$ GHz).

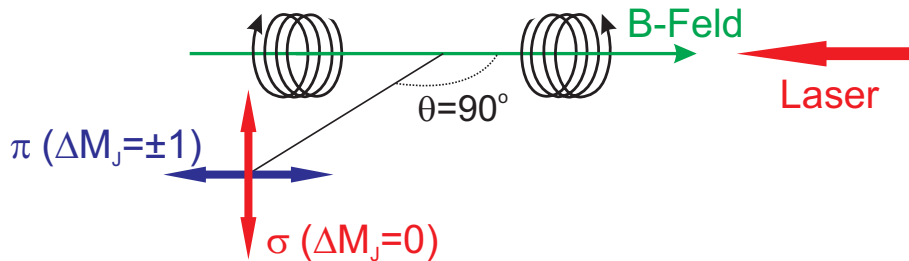


Abbildung 3.24: Unter einem Beobachtungswinkel von $\theta = 90^\circ$ erscheinen die π - und σ -Komponenten eines $M1$ -Übergangs parallel bzw. senkrecht zum Magnetfeld linear polarisiert. Zur Laseranregung kollinear zum Magnetfeld muss das Laserlicht zirkular polarisiert sein.

Des Weiteren führt das starke Magnetfeld der EBIT (8 T) zu einer Zeeman-Aufspaltung der magnetischen Unterniveaus des ${}^2P_{3/2}^o$ bzw. ${}^2P_{1/2}^o$ Zustands. Nun verhalten sich bei $M1$ -Übergängen

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

die Polarisationskomponenten σ bzw. π – der Konvention nach ist σ -Licht immer senkrecht zu den Feldlinien des äußeren Magnetfelds polarisiert, π -Licht parallel zum Magnetfeld – gerade umgekehrt als bei $E1$ -Übergängen (siehe Tab. 3.2). So erscheint wie in Abb. 3.24 dargestellt für magnetische Dipolübergänge die zentrale Komponente ($\Delta M_J = 0$) bei transversaler Beobachtung ($\perp B$) senkrecht zum externen Magnetfeld polarisiert (σ -Licht), und nicht, wie bei $E1$ -Übergängen, als π -Licht. Entsprechendes gilt für Übergänge zwischen Niveaus, die der Auswahlregel $\Delta M_J = \pm 1$ genügen, d.h. es wird unter senkrechter Richtung zum Magnetfeld bei $\Delta M_J = \pm 1$ Übergängen parallel polarisiertes π -Licht beobachtet [163]. Im Fall von longitudinaler Beobachtungsrichtung ($\parallel B$) hingegen, kann nur die $\Delta M_J = \pm 1$ -Komponente observiert werden. Insbesondere tritt sie ausschließlich zirkular polarisiert auf. Da der Laser kollinear zum Elektronenstrahl in die EBIT fokussiert wird, und somit parallel zu den Magnetfeldlinien verläuft, kann er nur Übergänge mit $\Delta M_J = \pm 1$ anregen. Hierzu muss das Laserlicht zirkular polarisiert sein [164]. Dies wird mit Hilfe eines Lambda-Viertel Plättchens sichergestellt.

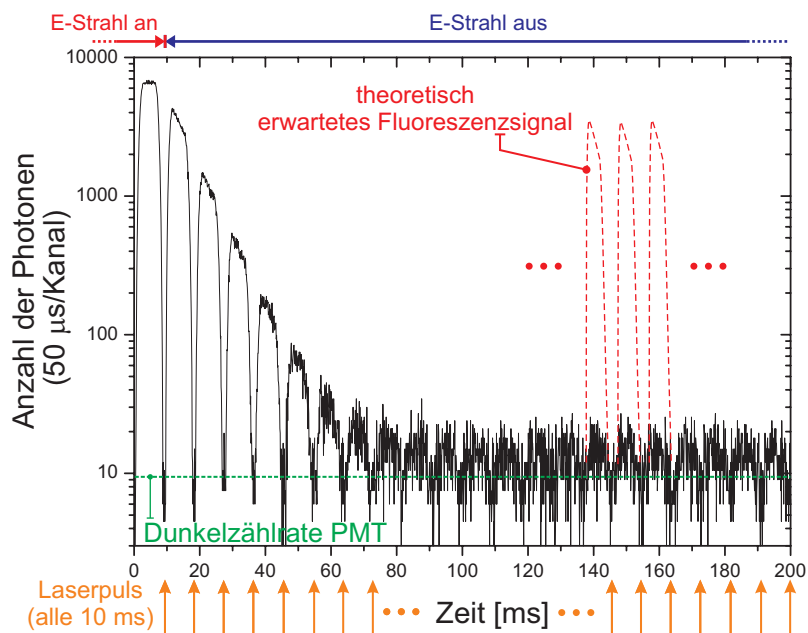


Abbildung 3.25: Zerfallskurve bei Anwesenheit des Lasers in der EBIT. Die Messkurve wurde auf eine Aufnahmezeit von einer Minute normiert. Die Laserwellenlänge entsprach der Übergangsenergie des ${}^2P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs in Ar XIV.

Abbildung 3.25 zeigt exemplarisch einen Ausschnitt einer der zahlreich aufgenommenen Zerfallskurven bei Anwesenheit des Lasers in der EBIT. Die Daten wurden über eine Zeitdauer von 120 min akkumuliert. Deutlich ist der exponentielle Abfall der Photonenzählrate zu erkennen, der von der Abregung des ${}^2P_{3/2}^o$ in den Grundzustand nach Ausschalten des Elektronenstrahls her rührt. Die regelmäßig auftauchenden Einschnitte in der Zerfallskurve sind auf das Chopperrad zurückzuführen, das mit 99 Hz synchron mit dem 9 ns kurzen Laserpuls periodisch den Zugang von Photonen zum PMT verhindert, und so das Streulicht, das durch den Laser entsteht, unterdrückt

(siehe Abschnitt 2.3.3). Die periodische Untergrundstruktur der Messkurve ist wiederum auf das Übersprechen des PMT mit dem Chopperrad (Motor) zurückzuführen. Beachtet man die logarithmische Darstellung des Schaubilds, so erkennt man, dass dieser Effekt nur sehr klein ist und prinzipiell reproduzierbar auftritt, so dass er bei der Datenanalyse herausgerechnet werden kann.

Die theoretisch erwartete Signalspur laserinduzierter Fluoreszenz, sprich die Ausbildung eines Anregungspeaks gefolgt von einem, der Lebensdauer des angeregten Zustands entsprechenden, exponentiellen Abfall, welche sich für jeden Laserpuls immer wiederholt ergeben sollte, ist in Abb. 3.25 jedoch nicht auszumachen. Trotz wiederholter Justage des Laserstrahls, die darauf zielte, den Überlapp der Strahls mit den Ionen zu variieren bzw. zu optimieren, konnte nach zahlreichen Messungen mit vergleichbar langer bzw. längerer Datenaufnahmezeit kein laserinduziertes Fluoreszenzsignal beobachtet werden. Auch das schrittweise Verstimmen der Laserwellenlänge über einen Bereich ± 1 nm ausgehend von der Resonanzwellenlänge 441.256 nm ergab keinerlei signifikante Änderung der oben gezeigten Signalform. Weiterhin konnte bei einer Messung ohne Laser, jedoch mit ansonsten gleichen Einstellungen, keinerlei Änderung des Spektrums festgestellt werden.

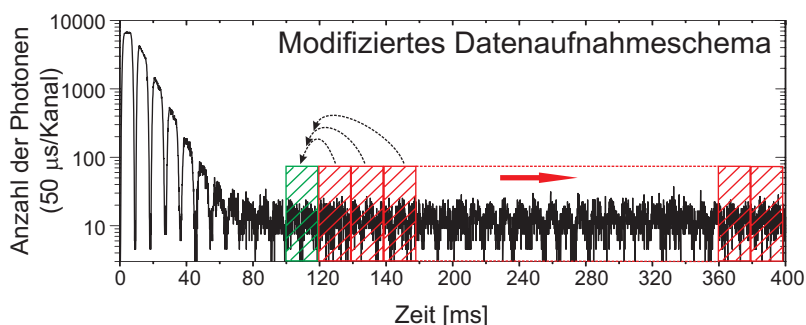


Abbildung 3.26: Modifiziertes Aufnahmeschema. Die Ereignisse innerhalb der Periode zweier Laserpulse (20 ms) werden kontinuierlich aufintegriert. Das Aufsummieren startet 100 ms nach Abschalten des Elektronenstrahls und wird für eine Zeitdauer von 700 ms (35 Zyklen) durchgeführt.

Um die Signalanalyse zu erleichtern, wurde das Datenaufnahmesystem dahingehend modifiziert, dass für den Untergrundbereich (100 bis 800 ms nach Abschalten des Elektronenstrahls) alle Ereignisse, die innerhalb der Periode zweier Laserpulse (20 ms) stattfinden, synchronisiert mit dem Laserpulstrigger aufaddiert werden. Dies ist in Abb. 3.26 schematisch dargestellt. Abbildung 3.27 zeigt die Messung dreier solcher Aufnahmesequenzen bei gleicher Datenaufnahmezeit (20 min). Dabei wurde die Laserwellenlänge für jede der drei Kurven variiert. Die grüne Kurve wurde bei einer Wellenlänge von 440.0 nm aufgenommen, welche somit außerhalb der möglichen Anregungswellenlängen der dopplerverbreiterten Resonanzlinie liegt. Die beiden weiteren Wellenlängeneinstellungen waren 441.15 nm (rote Kurve) und 441.25 nm (blaue Kurve). Da bei den gegebenen experimentellen Parametern der EBIT die Halbwertsbreite der dopplerverbreiterten Spektrallinie etwa 0.1 nm beträgt, kann davon ausgegangen werden, dass sich die beiden Anregungsenergien innerhalb des erwarteten Dopplerprofils befinden.

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Aus der Abbildung kann der Eindruck entstehen, als ob die Messkurven, bei der der Laser auf die

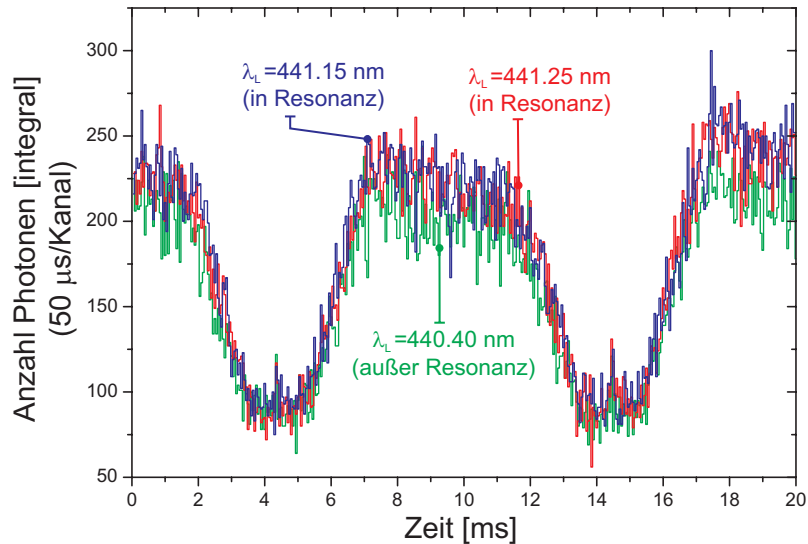


Abbildung 3.27: Beispiel für Messkurven mit modifizierter Aufnahmesequenz (lineare Darstellung). Die Aufnahmezeit betrug jeweils 20 min. Das Fluoreszenzsignal erscheint bei den Messungen, bei denen der Laser auf die Resonanzwellenlänge des $^2P_{1/2}^o - ^2P_{3/2}^o$ Übergangs (441.256 nm) eingestellt war, minimal verstärkt.

Resonanzwellenlänge des Übergangs abgestimmt war (blaue und rote Kurven) gegenüber der grünen Kurve ein etwas erhöhtes Signal aufweisen. Des Weiteren ist ein leichtes Abfallen der Kurven zu erkennen. Dies mag ein Indiz auf die Beobachtung laserinduzierter Fluoreszenz sein. Jedoch ist der Signalunterschied zwischen den in Resonanz und der außerhalb der Resonanz aufgenommenen Kurven angesichts der geringen Statistik nicht besonders ausgeprägt. Insbesondere ist der sehr leichte Abfall des Plateaus auch bei der Messung festzustellen, bei der der Laser aus der Resonanz verstimmt war (grüne Kurve). Testmessungen bei ausgeschalteter EBIT (keine Ionen in der Falle) allerdings bei Anwesenheit des Lasers zeigen, dass der leichte Signalabfall auch dann beobachtet wird, wenn prinzipiell keine Fluoreszenz beobachtbar sein sollte (siehe Abb. 3.28). So kann dieser Effekt nicht dem Zerfall des $^2P_{3/2}^o$ Niveaus zugeschrieben werden, sondern wird vielmehr einem Übersprechen des PMT aufgrund einer anscheinend nicht vollständigen Unterdrückung des Laserstreulichts zugeordnet, welches in der Kammer des Chopperrades entsteht und bei der vorherigen, nicht aufintegrierenden Methode der Datenaufnahme nicht festgestellt werden konnte (vgl. Abb. 2.20). Die dadurch um etwa einen Faktor 2 erhöhte „Dunkelzählrate“ des PMT verschlechtert zwar das Signal-Rausch Verhältnis, sollte jedoch angesichts der zu erwarteten Fluoreszenzrate von ca. 1 kHz die Beobachtung laserinduzierter Fluoreszenz weiterhin ermöglichen.

Umfangreiche weitergehende Untersuchungen bei höheren Gasinjektordrücken, die eine erhöhte Zählrate bei den Messungen erlaubten, als auch bei unterschiedlichen Fallenpotentialen, ließen allerdings keinen eindeutigen laserinduzierten Fluoreszenznachweis zu. Letztendlich wird dies auf den möglicherweise unzureichenden Überlapp zwischen der Ionenwolke und dem Laserstrahl zurückgeführt. Wie die Signalaratenabschätzung in Kapitel 2.3.3 zeigte, sollte das zigarrenförmige

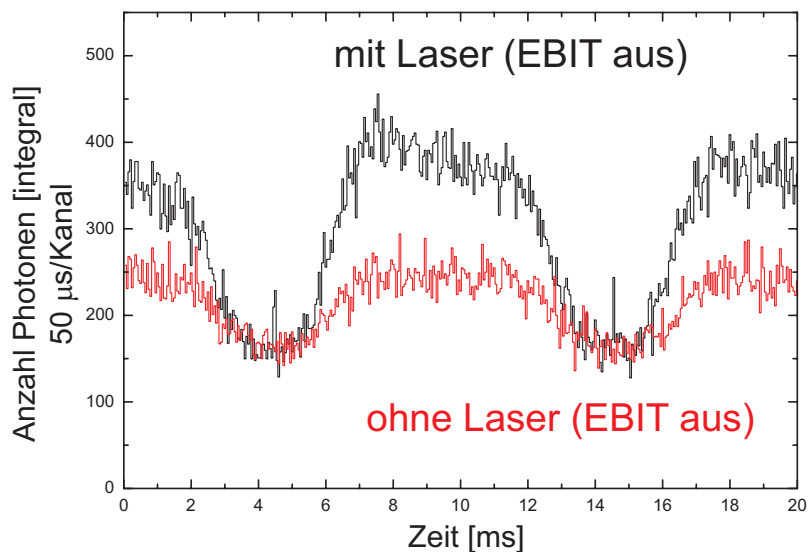


Abbildung 3.28: Messung mit und ohne Laser bei abgeschalteter EBIT. Die Aufnahmezeit betrug jeweils 40 min. Deutlich ist die Signalüberhöhung bei Anwesenheit des Lasers zu erkennen, welche nicht auf den Zerfall des ${}^2P_{3/2}^o$ Niveaus zurückzuführen ist, da sich keine Ionen in der Falle befanden.

Volumen der Ionenwolke optimal mit dem Fokusbereich des Laserstrahls übereinstimmen, um bei der gegebenen Detektoreffizienz eine vernünftige nachweisbare Fluoreszenzrate zu erhalten. Die Justageprozedur, bei der der Laser schrittweise lateral in vertikaler als auch horizontaler Richtung abgerastert wurde, deckt prinzipiell den gesamten Aufenthaltsbereich der Ionen im Fallenvolumen ab, geht jedoch davon aus, dass die Ionenwolke, deren axiale Lage durch den Elektronenstrahl bzw. die Magnetfeldlinien vorgegeben ist, sich achsensymmetrisch zu den Aperturen des Driftröhren-Ensembles und des Kollektors verhält. In erster Näherung ist dies sicher gewährleistet, jedoch kann es durchaus sein, dass eine leichte Verkippung der Symmetrieachse der Magnetfeldlinien dazu führt, dass der bestmögliche Überlapp bei dieser Art der Optimierung verfehlt wird. Zudem ist eine experimentelle Überprüfung der Position des Laserfokus nur bedingt möglich, da der zentrale Fallenbereich schwer einsehbar ist und keine einfache Diagnose des Strahlprofils am Wechselwirkungsort mit den Ionen zulässt. Diese technischen Ursachen sind höchstwahrscheinlich der Grund für das Fehlen des Fluoreszenzsignals.

Eine Möglichkeit, den Überlapp zwischen Laserstrahl und Ionen systematisch überprüfen zu können, wäre eine Diagnoseeinheit in Form eines fluoreszierenden Kristalls in Verbindung mit einer bzw. zwei CCD-Kameras. Der Kristall könnte durch einen der seitlichen Schlitze der zentralen Driftröhre mit Hilfe eines senkrecht zur Elektronenstrahlachse montierten Linear-Manipulators in die Fallenregion eingeführt werden. Der eingekoppelte Laserstrahl erzeugt beim Auftreffen auf den Kristall einen Lichtpunkt, dessen Position mittels einer CCD-Kamera aufgenommen und bestimmt werden kann. Ebenso kann nach Entfernen des Kristalls und der Produktion von Ar XIV über das Fluoreszenzlicht des hier untersuchten $M1$ -Übergangs die Lage der Ionenwolke ermittelt werden. Aufgrund der begrenzten Anzahl der Zugangsöffnungen der HD-EBIT (zwei horizontal zugängliche) ergeben sich jedoch zusätzliche Einschränkungen, welche eine Online-Diagnose des

3.1. Bestimmung der Lebensdauer des Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Überlapps ohne aufwendige Umbauarbeiten deutlich erschweren. Diese Verbesserungen werden wesentlich leichter an der neuen FLASH-EBIT durchzuführen sein, da an dieser Maschine die Anzahl der optischen Zugänge zum Fallenbereich größer ist. Entsprechende Vorbereitungen dafür sind bereits im Gange. Weiterhin sollte das Kühlen der Ionen und die damit verbundene Reduzierung der Dopplerbreite nebst einer Linienbreitenverbreiterung des Farbstofflasers aufgrund der erhöhten Anzahl von resonant wechselwirkenden Ionen zu einer Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses führen.

3.2 Bestimmung der Lebensdauer des $\text{Fe XIV } 3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Mit der bereits ausführlich bei Ar XIV vorgestellten und diskutierten, klassischen Methode (Elektronenstoßanregung), wurde im Rahmen dieser Arbeit auch die Lebensdauer des metastabilen $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus in aluminiumartigem Fe XIV bestimmt, dessen magnetischer Dipolübergang ($M1$) $3s^2 3p^2 P_{1/2}^o - 2P_{3/2}^o$ in das Grundzustandsniveau mit der Übergangswellenlänge $\lambda = 530.29$ nm die prominente *grüne Eisenlinie* darstellt, die im sichtbaren Spektrum der Sonnenkorona beobachtet werden kann. Das Termschema des betrachteten Übergangs ist in Abb. 3.29 dargestellt. Bei dieser Messung wurde eine etwas modifizierte Messabfolge verwendet; so wurde erstmals nicht nur der Elektronenstrahl periodisch geschaltet, sondern auch die Falltiefe synchron mit dem Elektronenstrahl verändert.

Es sollen im Folgenden in Kürze die zur Messung verwendeten experimentellen Einstellungen wiedergegeben werden, gefolgt von der Darstellung des veränderten Messschemas und der, ähnlich wie bei Ar XIV , systematischen Untersuchungen, die letztendlich eine hochpräzise Bestimmung der Lebensdauer des $\text{Fe XIV } 2P_{3/2}^o$ Zustands erlauben.

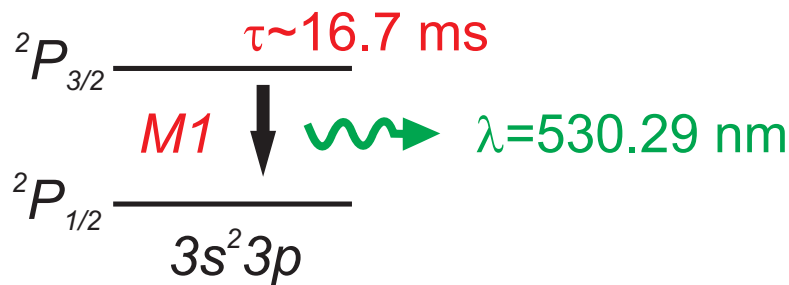


Abbildung 3.29: Termschema der Feinstrukturaufspaltung des Grundzustandes von aluminiumartigem Fe XIV .

Der grundsätzliche experimentelle Aufbau und die Messprozedur zur Lebensdauerbestimmung ist bereits in Kapitel 2.3 ausführlich beschrieben worden (siehe Abb. 2.8 und Text). Zur Produktion der Fe XIV Ionen wurde Fe als gasförmige molekulare Verbindung (Eisenpentacarbonyl, $\text{Fe}(\text{CO})_5$) kontinuierlich über das differentiell gepumpte Gasinjektorsystem in die EBIT geleitet. Der Injektionsdruck von $p_{\text{inj}} = 7.7 \times 10^{-8}$ mbar wurde während der gesamten Messzeit durch das temperaturgesteuerte Ventil des Gasinjektors konstant gehalten. Das Ionisationspotential (IP) von Fe XIII beträgt 358 eV, so dass die hier gewählte, effektive Elektronenstrahlenergie von 375 eV im Zentrum der Falle einerseits ausreichend ist, um Fe XIV zu produzieren, und andererseits deutlich unterhalb des IP von Fe XIV liegt (392 eV) [155]. Zur Beschleunigung der aus der Kathode der Elektronenkanone austretenden Elektronen wurde eine Kathodenspannung von -320 V und eine Driftröhrenspannung von 130 V angelegt. Aufgrund dieser niedrigen Strahlenergie wurde die EBIT mit einem maximalen Emissionsstrom von typischerweise 25 mA betrieben, um einen stabilen Messablauf zu gewährleisten. Das Fluoreszenzlicht der Ionen wird über das Sammelsystem der Linsen und dem anschließenden Lichtleiter zum Detektor (PMT) geleitet (vgl. Abb. 2.10). Der vor dem PMT installierte, schmalbandige Interferenzfilter selektiert die Spektrallinie des ge-

3.2. Bestimmung der Lebensdauer des $\text{Fe XIV } 3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

messenen Übergangs in Fe XIV und hindert Streulicht anderer Wellenlängen daran, den Detektor zu erreichen. Um insbesondere Streulicht bedingt durch das Glühen der thermischen Kathode der Elektronenkanone zu reduzieren und so die Hintergrundzählrate am Detektor so klein wie möglich zu halten, wurde das Heizfilament mit der niedrigst möglichen Spannung betrieben, die noch den erwünschten Emissionsstrom erlaubt. Die gemessene Dunkelzählrate des PMT betrug bei einer Betriebsspannung von 1230 V 36 s^{-1} .

Die optimale Einstellung der Beschleunigungsspannung des Driftröhren-Ensembles ist gegeben, wenn eine höchstmögliche Produktionsrate von Fe XIV Ionen vorliegt. Um dieses Optimum zu erreichen, wurde ähnlich wie bei Argon die Strahlenergie zwischen 320 eV und 600 eV variiert, während gleichzeitig die Fluoreszenzrate mit Hilfe des PMT aufgenommen wurde. Abb. 3.30 zeigt die Abhängigkeit der Photonenzählrate von der Beschleunigungsspannung des Elektronenstrahls für verschiedene Emissionsströme.

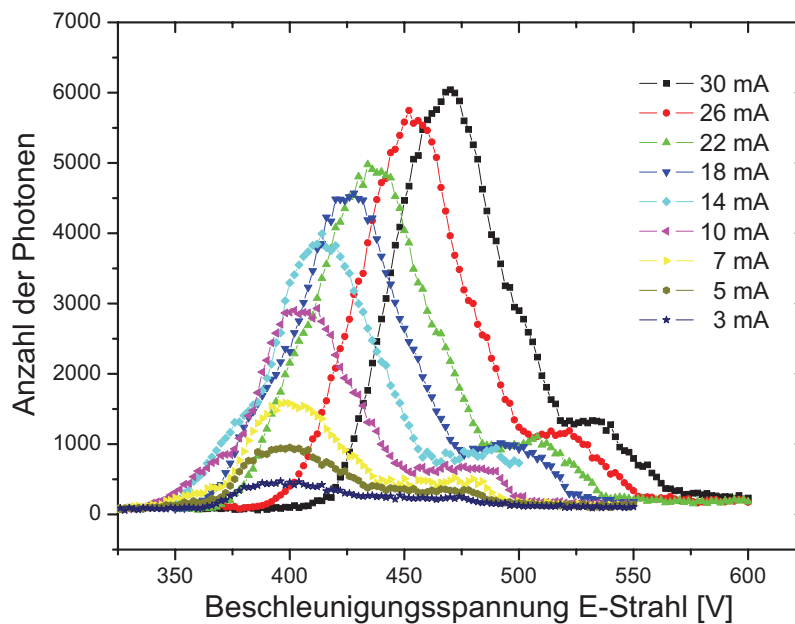


Abbildung 3.30: Zählrate des Fluoreszenzsignals des Übergangs $\text{Fe}^{13+} 3s^2 3p^2 P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ aufgetragen gegen die Beschleunigungsspannung des Elektronenstrahls für verschiedene Emissionsströme. Die Aufnahmezeit für jeden Datenpunkt der unterschiedlichen Kurven betrug 10 s. Für diese Messungen war der Elektronenstrahl kontinuierlich an (kein Schalten).

Der Anstieg der Kurven erklärt sich durch den, nach Überschreiten der Ionisationsschwelle, stetig anwachsenden Wirkungsquerschnitt zur Stoßionisation von Ar XIII, der bei einer gewissen Elektronenstrahlenergie sein Maximum erreicht. Der folgende Abfall der Fluoreszenzzählrate gibt das Einsetzen der Produktion des nächsthöheren Ladungszustands wieder, was die Fe XIV Konzentration in der Falle und damit auch das Fluoreszenzsignal reduziert. Deutlich zu erkennen ist auch die Verschiebung des jeweiligen Maximums der Kurven hin zu niedrigeren Beschleunigungs-

spannungen bei abnehmendem Emissionsstrom. Dies ist auf das reduzierte Raumladungspotential Φ_{elek} des Elektronenstrahls, das vom Emissionsstrom abhängt, und der damit verbundenen geringeren Kompensation der Beschleunigungsspannung zurückzuführen (vgl. Gleichung 3.1). Das Plateau bei höheren Strahlenergien ist nicht vollständig verstanden, könnte jedoch auf Kaskaden-Wiederbevölkerung des metastabilen Fe XIV durch höher gelegene Niveaus, die sich nahe am Ionisationskontinuum von Fe XIV befinden und die bei höheren Energien aufgrund eines größeren Wirkungsquerschnitts besser angeregt werden können, zurückzuführen sein.

Neben dem Emissionsstrom können auch unterschiedliche Fallenpotentiale in der Fallenregion die effektive Strahlenergie modifizieren, da die Zahl der gespeicherten Ionen von der gewählten Falltiefe abhängig ist. Eine tiefere Falle (größeres Driftröhrenpotential) speichert mehr hochgeladene, positive Ionen, was zu einer größeren Kompensation der negativen Raumladung des Elektronenstrahls führt. Die Raumladungskompensation beeinflusst auf diesem Wege die effektive Wechselwirkungsenergie des Elektronenstrahls mit den Ionen. Daher wurde für jede individuelle Lebensdauermessung die Strahlenergie mit Hilfe eines Energiescans sorgfältig angepasst, um eine maximale Photonenzählrate auf dem Detektor zu erreichen.

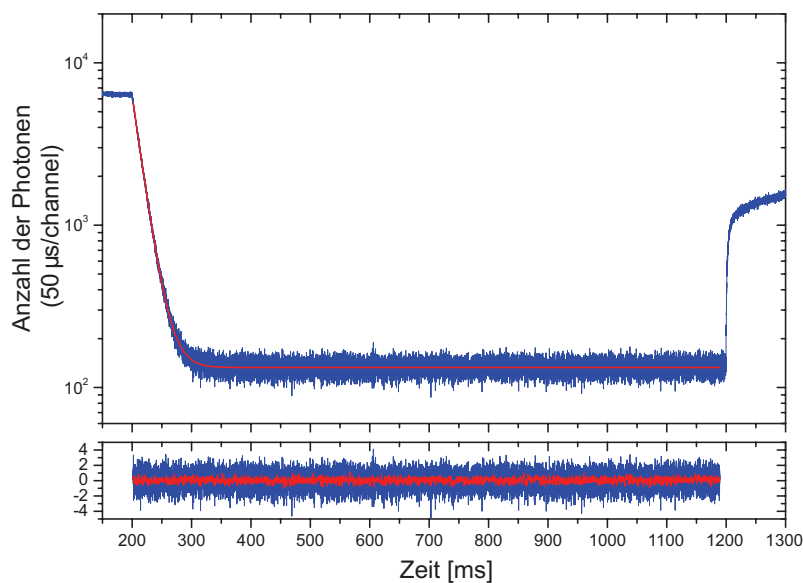


Abbildung 3.31: Typische Aufnahme einer einzelnen Fluoreszenz-Zerfallskurve (logarithmischer Maßstab) und die Residuen eines einfachen exponentiellen Fits (normiert mit \sqrt{N} , wobei N die Anzahl der Ereignisse pro Kanal ist). Der Elektronenstrahl wurde bei einer Sequenzperiode von 2 s für 1 s ausgeschaltet, während die Akkumulationszeit dieser Messung ca. 18 h betrug.

Eine typische Zerfallskurve des metastabilen $3p^2P_{3/2}^o$ Niveaus in Fe XIV und die Residuen einer einfachen exponentiellen Fitfunktion sind in Abb. 3.31 dargestellt. Der Elektronenstrahl wurde für die Messungen an Fe XIV durch Anlegen einer positiven bzw. negativen Hochspannung von 1000 bzw. -1800 V an der Fokuselektrode periodisch bei jedem Messzyklus für 1 s an-, und ausgeschaltet. Dies ist in Abb. 3.32 nochmal schematisch dargestellt. Das Datenaufnahmefenster öffnete sich jeweils 200 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls und schloss sich 300 ms nach

3.2. Bestimmung der Lebensdauer des Fe XIV $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Wiederanschalten des Strahls. Die beiden Driftröhren DT#4 und DT#5 wurden auf ein Potential von 1400 V gelegt, um den axialen Einschluss der Ionen zu gewährleisten und Ionenverluste aus der Falle zu verhindern (siehe Abschnitt 3.2.2).

Abb. 3.33 stellt nochmal einen Ausschnitt der bereits gezeigten Daten aus Abb. 3.31 dar, diesmal

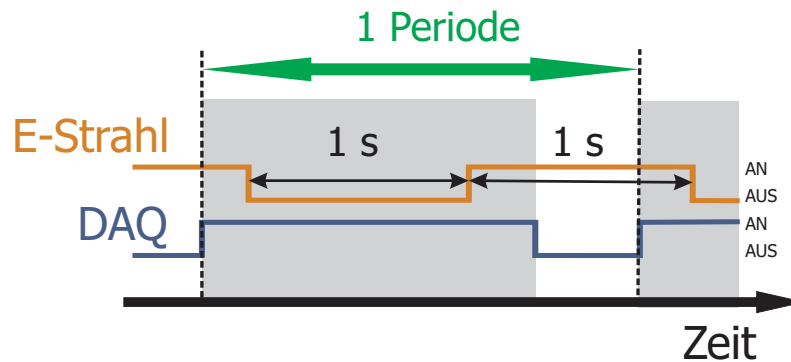


Abbildung 3.32: Schematische Darstellung der Datenaufnahmesequenz. Die Datenaufnahme wurde jeweils 200 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls gestartet und endete 300 ms nach Wiederanschalten des Strahls. Die Periodendauer eines Messzyklus betrug 2 s.

allerdings nach Abzug eines konstanten Untergrunds und einem 10-fachen Binning der Kanäle. Wie auch bei den Zerfallskurven von Ar XIV ist in diesem Diagramm der, über mehrere Größenordnungen reichende, in der logarithmischen Darstellung beeindruckend linear verlaufende, exponentielle Zerfall zu sehen. Die „Sauberkeit“ der Kurve gibt die hervorragenden experimentellen Einstellungen und Bedingungen wieder, welche es letztendlich ermöglichen, hochpräzise Lebensdauermessungen metastabiler Zustände in hochgeladenen Ionen zu messen.

Die Daten der Zerfallskurve können mit einer einfachen Exponentialfunktion der Form

$$N_{\text{true}}(t) = a_1 e^{-t/t_1} + y_0, \quad (3.14)$$

hervorragend angenähert werden, wobei a_1 , t_1 und y_0 freie Parameter sind und die Anfangsintensität, die Zerfallszeit bzw. die gemessene Dunkelzählrate des PMT repräsentieren. N_{true} berücksichtigt nach Gleichung (3.2) die Totzeit des Datenaufnahmesystems und gibt die wirkliche Anzahl an detektierten Ereignissen wieder. Die aus der Anpassung mit der Modelfunktion aus Gleichung (3.14) erhaltenen χ^2 und R^2 ergaben durchschnittliche Werte von 1.15 bzw. 0.999, was wiederum die exzellente Übereinstimmung der Fitfunktion mit den Daten widerspiegelt. Die Fitprozedur wurde jeweils 2 ms nach Ausschalten des Elektronenstrahls gestartet, um eventuelle systematische Effekte, die während des Schaltens des Elektronenstrahls auftreten könnten, zu vermeiden.

Im Gegensatz zu den Lebensdauermessungen an Ar XIV weist das Untergrundsignal bei Fe XIV keinerlei langsame Zerfallskomponente auf, sondern verhält sich im Rahmen der statistischen Schwankungen konstant. Das Fehlen eines zweiten Zerfalls zeigt sich insbesondere auch darin, dass Fitfunktionen, die zwei oder mehr Exponentialfunktionen beinhalteten, keinen weiteren langsamen Zerfallskanal offen legten. Die möglichen Gründe für das Fehlen dieser langsamen Zerfalls-

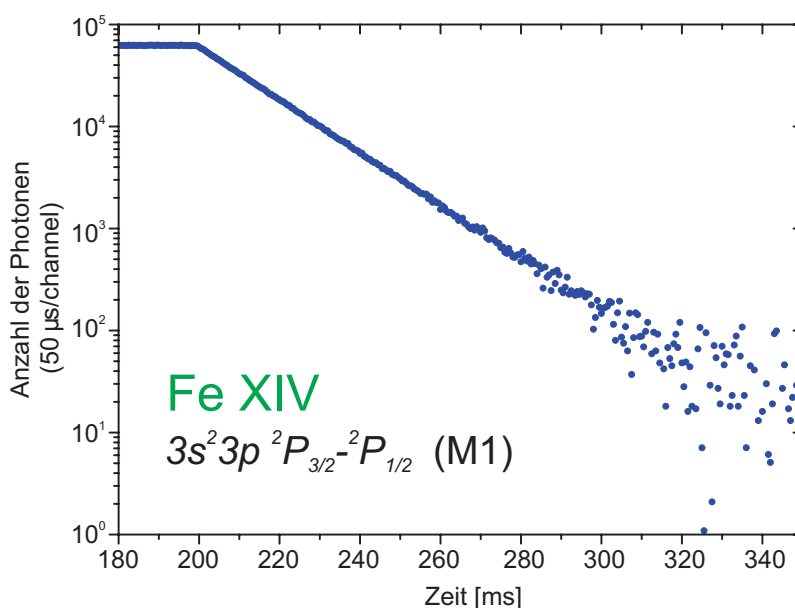


Abbildung 3.33: Illustration der „Sauberkeit“ des exponentiellen Zerfalls. Das Diagramm zeigt dieselben Daten wie in Abb. 3.31 nach Abzug eines Untergrunds von 1337 counts (10-fach gebinnt).

komponente werden im Text weiter unten diskutiert (siehe Abschnitt 3.2.2).

3.2.1 Modifiziertes Messschema

Bei den vorangegangenen Messungen an Ar XIV wurde zur Aufnahme der Lebensdauerkurven jeweils eine konstante Einstellung des Driftröhrenpotentials – und damit der Falltiefe – gewählt, die sich während der Akkumulationszeit der Daten nicht änderte. Für die Messreihe an Fe XIV wurde dieses Messschema erweitert und erstmals neben dem Elektronenstrahl auch das Driftröhrenpotential periodisch und synchron mit dem Elektronenstrahl geschaltet (siehe Abb. 3.34).

Während des Ionisations- und Anregungsprozesses, während also der Elektronenstrahl an war, wurde eine sehr seichte Fallenkonfiguration gewählt, indem das Potential der beiden innersten Driftröhren DT#4 und DT#5 zunächst auf Null gesetzt wurde und der axiale Einschluss der Ionen durch, in Bezug auf das Fallenzentrum, weiter außen liegende Elektroden (DT#1,2 und DT#6,7) gewährleistet wurde, deren Potentiale sich im Bereich von 100 bis 500 V bewegten. Diese sehr flache Fallenkonfiguration führt zu einem verstärkten Kühlen der Ionen und somit zu einer Energieverteilung, bei der die durchschnittliche Energie der Ionen geringer ist, als wenn sie sich während des Ionisationsprozesses in einem tieferen Potentialwall befinden würden. Der moderate Emissionsstrom von 25 mA verursacht kein allzu starkes Aufheizen der Ionen und reduziert so die möglichen axialen Verluste der Ionen aus der Falle.

3.2. Bestimmung der Lebensdauer des Fe XIV $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

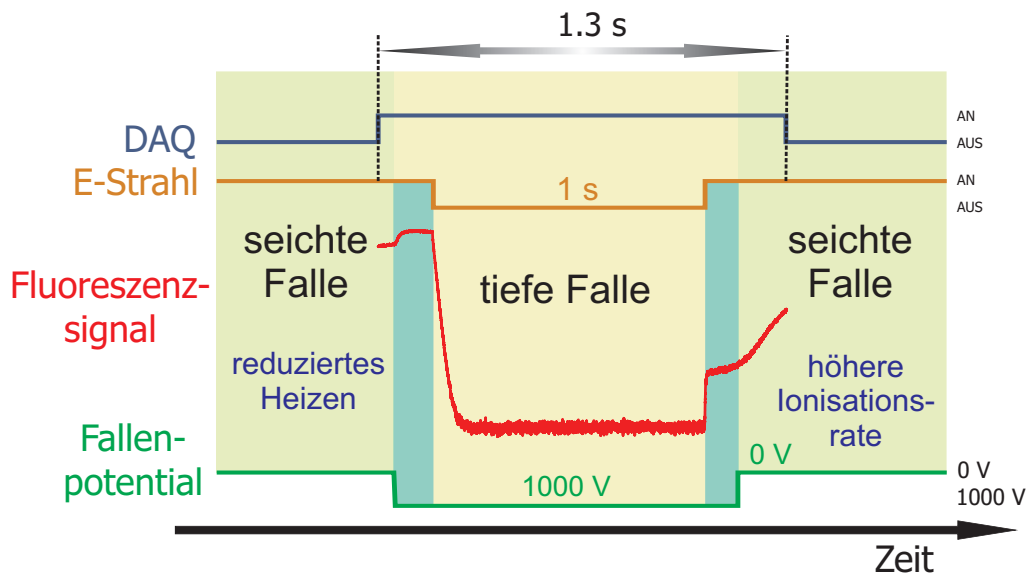


Abbildung 3.34: Neuartiges Messschema zum Laden und Speichern der Fe XIV Ionen bei Lebensdauerermessungen. Neben dem Elektronenstrahl wird erstmalig auch die Fallentiefe synchron verändert, was zu einer erhöhten Ionisationsrate und stärkerem Kühlen der Ionen führt. Gezeigt ist ein gesamter Messzyklus mit einer Periodendauer von 2 s.

Weiterhin wurde beobachtet, dass sich auf diese Weise die Ionisationsrate und damit auch die Gesamtrate des Fluoreszenzsignals erhöht. Dies ist in Abb. 3.35 illustriert. Dort ist die zeitliche Entwicklung des PMT-Signals für verschiedene Fallenkonfigurationen nach mehrmaligem Entleeren der Falle (Dump) aufgetragen. Für diese Messung wurde der Elektronenstrahl im kontinuierlichen Modus bei einem Strahlstrom von $I_e=30$ mA betrieben und die Elektronenstrahlenergie für jede Fallenkonfigurationen so optimiert, dass eine maximale Photonenzählrate von ca. 4 kHz auf dem Detektor erfasst wurde. Das Entleeren der Falle fand alle 120 s statt. Man sieht im Diagramm deutlich den regelmäßig auftauchenden Signaleinbruch, sobald der Dump für ein instantanes Verlassen der Ionen aus der Falle gesorgt hat. Zudem ist zu erkennen, dass das Erreichen des ursprünglichen Signalplateaus für eine tiefe Falle länger dauert als bei einer der seichten Fallenkonfiguration. Die erneute Ionisation neutral injizierten Argonatome ist also bei niedrigem Driftröhrenpotential deutlich effizienter. Wird der Elektronenstrahl zusätzlich im Schaltmodus betrieben – wie es für die Lebensdauerermessungen nötig ist – so ist somit insbesondere auch die mittlere Fluoreszenzrate am PMT (counts/Sekunde) bei Wahl einer seichten Falle deutlich höher.

150 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls werden innerhalb einer Schaltzeit von 150 μ s die beiden Driftröhren DT#4 und DT#5 auf ein hohes Potential gebracht (tiefe Falle). Dieses Potential wird bis 200 ms nach Wiederanschalten des Elektronenstrahls beibehalten.

Das Umschalten auf ein tiefes Potential kurz bevor der Elektronenstrahl ausgeschaltet wird, sollte im Prinzip zu einem erhöhten Ionenverlust und einer Abnahme der Signalarate führen, da die Ionen nun ein stärkeres Aufheizen durch den Elektronenstrahl erfahren. Stattdessen wird eine Verstärkung des Signals beobachtet (linke dunkelgrüne Region). Der Grund für die Signalerhöhung ist, dass die plötzliche Potentialänderung Ionen, die bereits im richtigen Ladungszustand sind, sich jedoch irgendwo im Bereich der langen, flachen Fallenregion aufhalten und bisher nicht zum detek-

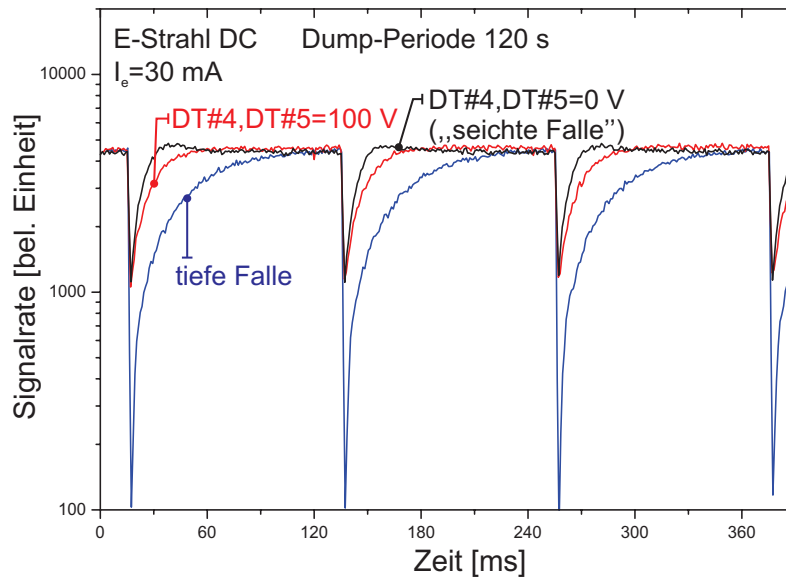


Abbildung 3.35: Unterschiedlich schneller Ladeprozess der Ionen für verschiedene Driftröhrenkonfigurationen. Die Zählrate variiert bei den verschiedenen Kurven. Zur besseren Illustration wurden die Kurven mittels der gegebenen Faktoren auf eine gleiche Plateauzählrate normiert.

tierten Fluoreszenzsignal beitragen, axial in Richtung der Observationsregion angezogen werden, in diese eintreten und so eine Erhöhung der Signalrate verursachen. Sobald der Elektronenstrahl aus ist, findet kein Aufheizen mehr statt und die Ionen sind sicher zwischen den tiefen Potentialwällen gespeichert. Lässt man den Elektronenstrahl an, so beobachtet man ein langsames Abnehmen des Photonensignals, was auf das evaporative Entweichen von Ionen aus der Falle hindeutet. Durch Ion-Ion Stöße kommt es ohne Elektronenstrahl zu einer irreversiblen radialen Expansion der Ionenwolke, die jedoch nicht groß genug ist, um aus dem Sichtfeld der Sammellinsen des Detektionssystems auszutreten. Mit erneutem Anschalten des Elektronenstrahls – bei anhaltend tiefer Falle – ist ein instantaner Sprung, gefolgt von einem leichten Anstieg des Fluoreszenzsignals zu erkennen (rechte dunkelgrüne Region). Die oben angesprochene Expansion der Ionenwolke und der damit verbundene, reduzierte Überlapp der Ionen mit dem Elektronenstrahl, sorgt dafür, dass die unmittelbare Signalerhöhung und der Signalanstieg deutlich weniger ausgeprägt auftritt. Wird die Falle nun wieder auf die flache Konfiguration zurückgeschaltet, vergrößert sich Ionisationsrate, und damit auch die Signalrate, drastisch, wie klar auf der rechten Seite der Abb. 3.34 illustriert ist.

Die flache Falle verbessert den Ladeprozess der Ionen und hält die Iontemperatur wegen erhöhten evaporativen Kühlens niedriger. Insgesamt führt dies zu einer kälteren und größeren Ionenpopulation bevor das Driftröhrenpotential kurz vor dem erneuten Ausschalten des Elektronenstrahls wieder angehoben wird und verbessert damit unter Anderem die Statistik der Messung, was sich wiederum in der hohen Präzision des Messergebnisses widerspiegelt.

3.2.2 Systematische Untersuchungen

Auch beim Fe wurden umfassende Messreihen zur Untersuchung der systematischen Effekte wie z.B. der axiale Ionenverlust, Verluste durch Ladungsaustausch oder auch die Repopulation der angeregten Fe XIV Ionen, welche alle Einfluss auf die Bestimmung der natürlichen Lebensdauer des metastabilen $3p^2 P_{3/2}^o$ Zustands nehmen können, durchgeführt. Diese sollen im Folgenden ähnlich der Darstellung bei Ar XIV vorgestellt und diskutiert werden.

Axialer Ionenverlust

Der Methode bei Ar XIV folgend, wurde der axiale Ionenverlust untersucht, indem das Driftröhrenpotential schrittweise von 0 bis 1800 V variiert und zu jeder eingestellten Fallentiefe eine Zerfallskurve mit hoher Statistik aufgenommen wurde. Der Vergleich der aus den Messkurven extrahierten Zerfallszeiten erlaubt wiederum eine Aussage über die Verlustrate der Ionen in Abhängigkeit vom axialen Fallenpotential. Die Ergebnisse dieser Messreihe sind in Abb. 3.36 dargestellt. Wie aus der Abbildung zu erkennen ist, erscheinen die gemessenen Lebensdauern für Driftröh-

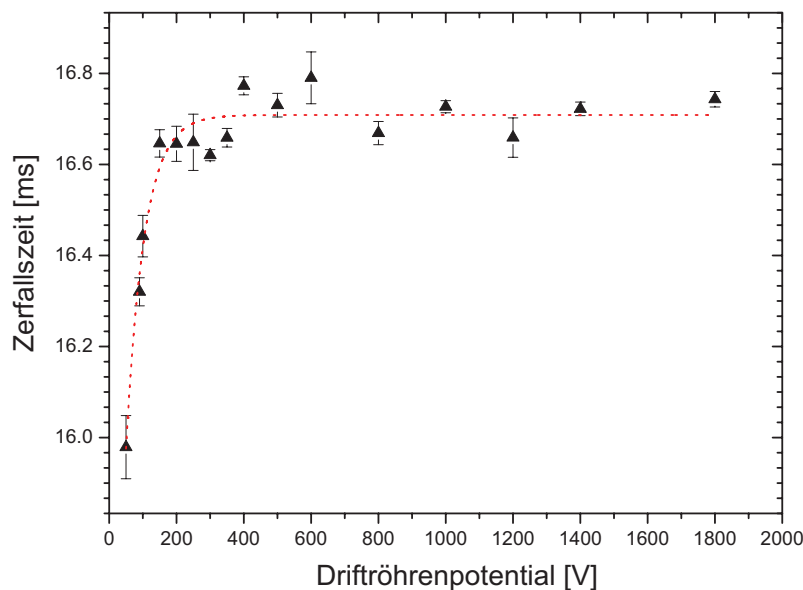


Abbildung 3.36: Die gemessenen scheinbaren Lebensdauern des Fe XIV $3p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in Abhängigkeit vom Driftröhrenpotential (DT#4,DT#5). Die Gesamtaufnahmezeit der Daten entspricht ca. 160 h. Die gestrichelte Linie dient nur der besseren Visualisierung des beobachtbaren Trends der Datenpunkte.

renpotentiale zwischen 0 und 400 V verkürzt (bei 50 V um nahezu 5%). Bei diesen Fallentiefen kann also von einem signifikanten Ionenverlust durch axiales Entweichen aus der Falle ausgegangen werden. Im Plateaubereich oberhalb von 400 V sind die Schwankungen der Datenpunkte rein statistisch verteilt und die Ionenverlustrate kann als vernachlässigbar klein in Bezug auf die statistischen Schwankungen erachtet werden.

Die effektive Lebensdauer des Fe XIV $3p^2 P_{3/2}^o$ Zustands wurde nun durch statistische Gewich-

tung aller Datenpunkte, die bei einem Driftröhrenpotential von 500 bis 1800 V gemessen worden sind, ermittelt (siehe Abb. 3.37). Die schwarzen Linien in der Abbildung deuten die Konfidenzsicherheit von 68% (1σ) an. Die sich ergebende, scheinbare Lebensdauer beträgt 16.723(10) ms mit einer relativen Ungenauigkeit von 0.06 %. Der statistische Fehler von ± 0.010 ms ist die Standardabweichung des Durchschnittswertes der betrachteten Messungen. Variiert man den zur Durchschnittsbildung gewählten Fitbereich zu den Bereichen 400 bis 1800 V bzw. 600 bis 1800 V, so ergibt sich eine Schwankung der abgeleiteten effektiven Lebensdauer von 0.005 ms bzw. 0.001 ms, welche deutlich innerhalb der statistischen Unsicherheit liegt. Die ermittelte scheinbare Lebensdauer berücksichtigt allerdings noch keinerlei weiteren systematischen Effekte, wie z.B. den Ladungsaustausch oder den Einfluss des regelmäßigen Entleerens der Falle.

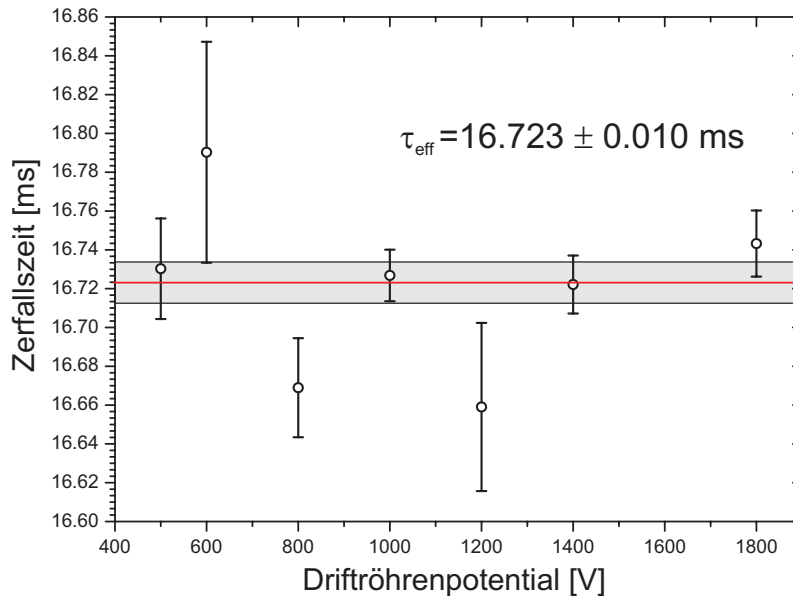


Abbildung 3.37: Statistisch gewichteter Durchschnitt der gemessenen scheinbaren Lebensdauern, die bei Fallenpotentialen zwischen 500 und 1800 V aufgenommen wurden. Die schwarzen Linien repräsentieren die 1σ Standardabweichung des ermittelten Durchschnittswertes von 16.723(10) ms.

Ladungsaustausch

Um den Einfluss der durch Ladungsaustausch mit neutralen Restgasatomen induzierten Verluste der Fe XIV Ionen zu untersuchen, wurden bei verschiedenen Gasinjektordrücken mehrere Zerfallskurven aufgenommen. Die eingestellten Fallenparameter wurden für diese Messungen konstant beibehalten. Die Neutralteilchendichte wurde dabei um mehr als eine Größenordnung von 1×10^{-8} bis 2×10^{-7} mbar Gasinjektordruck variiert. Die Differenz $d\tau$ der bei diesen beiden Drücken gemessenen Lebensdauern war statistisch nicht signifikant. Aus diesem Grund wurde eine obere Grenze für den maximalen Differenzwert aus der quadratischen Summe der jeweiligen statistischen Unsicherheiten der beiden Messungen berechnet. Es ergibt sich ein Wert von $d\tau = +0.15\%$ bei einer Druckänderung von 2×10^{-7} mbar. Da die Messreihe für Fe XIV bei ei-

nem 2.5 Mal größeren Gasinjektordruck (7.7×10^{-7} mbar) durchgeführt worden sind, bedeutet dies einen maximalen Effekt von 0.08% bei dieser Druckeinstellung. Diese maximal abgeschätzte Unsicherheit ist etwas größer als die 0.06% Standardabweichung des gewichteten Durchschnitts der Ergebnisse aus der Messreihe mit verschiedenen Driftröhrenpotentialen (Abb. 3.37). Entsprechend wird der systematische Effekt des Ladungsaustauschs in der endgültigen Fehlerbetrachtung berücksichtigt.

Repopulation des metastabilen Zustands

Die Lebensdauerkurve kann prinzipiell durch Zerfälle anderer, in der Falle gespeicherter, Ionen beeinflusst werden, sofern die Spektrallinien der Übergänge eine Wellenlänge besitzen, die innerhalb der Bandbreite des Interferenzfilters liegen und somit vom Detektor registriert werden kann. Jedoch können in diesem Fall solche Beiträge ausgeschlossen werden, da keine Spektrallinie möglicher anderer Ionen in der Falle mit ähnlichen Parametern bekannt ist. Durch die in Abb. 3.30 erläuterte Optimierung der Elektronenstrahlenergie wurde zudem gewährleistet, dass nur Fe XIV zum beobachteten Signal beiträgt.

Die Wiederbevölkerung des metastabilen $3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus durch Kaskadenabregung niedrig gelegener Zustände innerhalb des Spektrums von Fe XIV spielt aus verschiedenen Gründen ebenfalls keine Rolle. So zerfallen die nächstgelegenen $3l3l'3l''$ Niveaus, die im Prinzip durch einfache Anregung vom Grundzustand aus bevölkert werden können, auf einer ns-Zeitskala – sehr viel kürzer als die erwartete natürliche Lebensdauer des untersuchten $3p^2 P_{3/2}^o$ Zustands, die im ms-Bereich liegt. Ausgenommen ist der $3s3p3d^4 F_{9/2}^o$ Zustand, der nur über $M1$ - und $M2$ -Übergänge zerfallen kann und somit eine längere Lebensdauer besitzen könnte (siehe Abb. 3.38). Gemäß einer Analyse und theoretischer Berechnungen, die von Beiersdorfer *et al.* [52] durchgeführt wurden, beträgt die Lebensdauer dieses Zustands ungefähr 19 ms. Dieser Wert liegt zu nahe an der zu bestimmenden Lebensdauer (~ 17 ms), als dass dieser Zerfallskanal mit Hilfe eines multiexponentiellen Fits isoliert werden könnte. Allerdings ist der in [52] berechnete Stoßanregungsquerschnitt des $J = 9/2$ Niveaus fünf Größenordnungen kleiner als der Anregungsquerschnitt des $3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus in Fe XIV. Aus diesem Grund kann davon ausgegangen werden, dass eine mögliche Kaskaden-Repopulation ausgehend von diesem langlebigen Zustand zu klein ist, um signifikant die gemessene Lebensdauer zu beeinflussen.

Für die hochgelegenen Rydberg-Niveaus, die durchaus natürliche Lebensdauern von einigen ms haben können, gilt dasselbe Argument wie bei der Diskussion der Wiederbevölkerung bei Ar XIV: Sie werden aufgrund der elektrischen Felder des Elektronenstrahls, der Driftröhrenpotentiale und der Ion-Ion-Stöße durch Stark-induziertes Mischen von l -Zuständen auf Rydbergzustände mit kleinem l gequench [159], deren Lebensdauern sich im Bereich von einigen wenigen μs bewegen. Indem die Fitprozedur erst 2 ms nach Ausschalten des Elektronenstrahls gestartet wird, kann sichergestellt werden, dass eine Wiederbevölkerung durch Kaskaden dieser Niveaus keinerlei Auswirkung auf die gemessene Lebensdauer hat. Somit lässt sich folgern, dass die Kaskaden-Repopulation im Rahmen der Messgenauigkeit keinen systematischen Fehler bei der Bestimmung der natürlichen Lebensdauer des $3p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in Fe XIV verursacht.

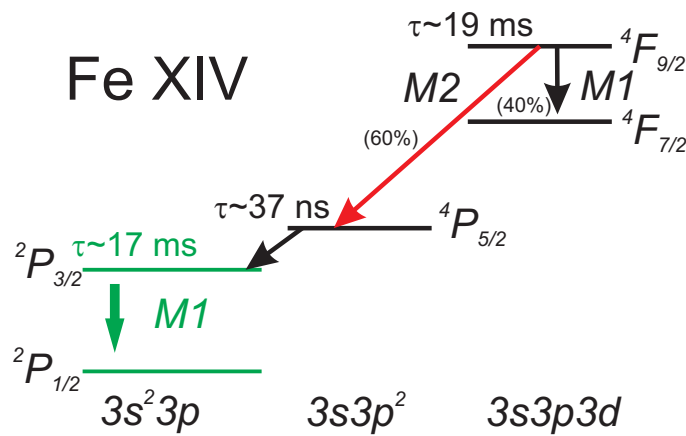


Abbildung 3.38: Teil des Termschemas von Fe XIV. Zu sehen ist die Feinstrukturaufspaltung des Grundzustands mit dem metastabilen $2P_{3/2}^o$ Niveau (grün). Der metastabile Zustand $3s3p3d\ 4F_{9/2}^o$ kann nur über einen M1- bzw. M2-Übergang (Verzweigungsverhältnis 40% zu 60%) zerfallen und hat eine berechnete Lebensdauer von ~ 19 ms. Aufgrund des geringen Anregungsquerschnitts im Vergleich zum $2P_{3/2}^o$ Niveau, kann die Wiederbevölkerung des untersuchten Zustands vernachlässigt werden (siehe Text).

Totzeit des Datenaufnahmesystems

Für die Messungen an Fe XIV wurde dasselbe Datenaufnahmesystem wie bei den vorangegangenen Untersuchungen an Ar XIV verwendet. Die Totzeit des Datenaufnahmesystems wurde zu verschiedenen Zeiten während der Messreihe und bei unterschiedlich hohen Zählraten erneut bestimmt. Es ergab sich in Übereinstimmung mit dem Ergebnis bei Argon eine Signaltotzeit von $1.4(1) \mu\text{s}$. Diese wurde bei der Datenanalyse gemäß Gleichung (3.2) berücksichtigt. Aufgrund dieser Korrektur erschienen die Lebensdauern der Totzeit-korrigierten Daten um ca. 0.1% verlängert. Dies ist in Abb. 3.39 illustriert. Um den Einfluss des Fehlers, der durch die Ungenauigkeit der gemessenen Totzeit zustande kommt, auf die Lebensdauerbestimmung zu ermitteln, wurden alle Datenpunkte zwischen 500 und 1800 V mit der oberen und unteren Grenze (1.3 bzw. $1.4 \mu\text{s}$) totzeitkorrigiert und die Differenz des statistisch gewichteten Mittelwerts eines jeden Datensatzes bestimmt. Der sich ergebene Differenzwert beträgt ~ 0.0015 ms. Da dieser Fehler eine Größenordnung kleiner als die statistische Unsicherheit von 0.01 ms ist, spielt der systematische Fehler der Totzeit des Datenaufnahmesystems bei der letztendlichen Lebensdauerbestimmung keine Rolle.

Periodisches Entleeren der Falle

Wie auch bei den Lebensdauermessungen an Ar XIV wird die Falle in regelmäßigen Abständen vollständig mit Hilfe eines positiven Hochspannungspulses an der zentralen Driftröhre entleert. Die Sequenzabfolge des *Dumps* ist dieselbe wie bei den Messungen an Ar, d.h. der Puls tritt unkorreliert zum Schaltzeitpunkt des Elektronenstrahls alle 10 s für eine Dauer von 100 ms auf. Somit ergibt sich wiederum eine vorhersagbare Ionenverlustrate von 10^{-2} s^{-1} . Diese Verlustrate wird bei der Bestimmung der effektiven natürlichen Lebensdauer des metastabilen $2P_{3/2}^o$ Zustands in Fe XIV berücksichtigt.

3.2. Bestimmung der Lebensdauer des $\text{Fe XIV } 3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

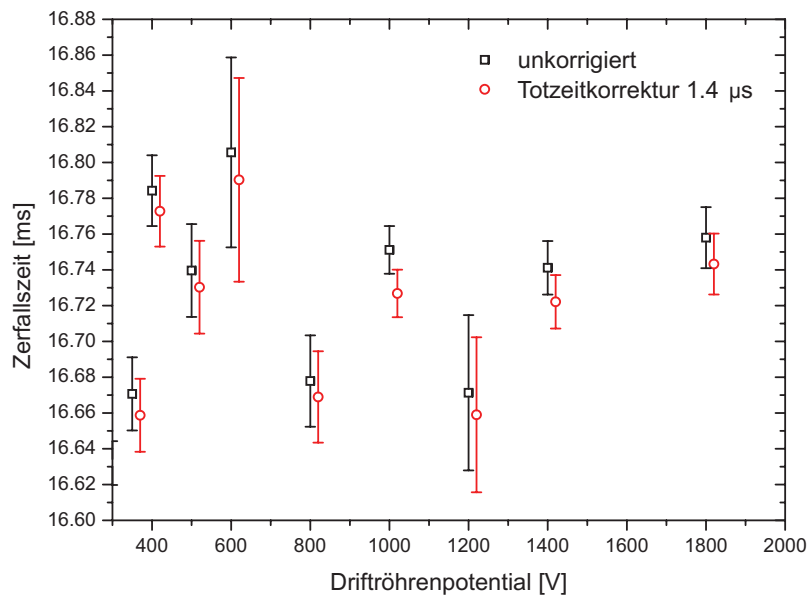


Abbildung 3.39: Unterschied zwischen den Totzeit-korrigierten Lebensdauern und den unkorrigierten Zerfallszeiten.

Tail-fit-Analyse

Als Standardprozedur bei der Bestimmung von Lebensdauern aus experimentell gewonnenen Zerfallskurven wurde wie auch beim Ar XIV eine *Tail-fit*-Analyse durchgeführt. Der Startzeitpunkt des Fits wurde dabei jeweils zwischen 2 und 20 ms variiert und anschließend die aus den Fits erhaltenen Lebensdauern miteinander verglichen. Abb. 3.40 stellt die Ergebnisse der Analyse dar. Die Resultate der Fitreihe jeder individuellen Zerfallskurve weisen im Wesentlichen nur Schwankungen auf, die mit den statistischen Fluktuation vereinbar sind.

Mögliche Ursachen für das Fehlen der langsamen Zerfallskomponente bei Fe XIV

Im Gegensatz zu den Messungen an Ar XIV offenbarten die bei Fe XIV aufgenommenen Zerfallskurven neben des erwarteten schnellen Zerfallskanals keine weitere langsame Zerfallskomponente des Untergrundsignals. Die langsame Zerfallskomponente bei Ar XIV wurde auf den Verlust von niederenergetischen Elektronen zurückgeführt, welche während ihrer Verweilzeit in der Falle eine Wiederbevölkerung des metastabilen Niveaus aufgrund von Elektronenstoßanregung bewirkten. Prinzipiell ist die Koexistenz niederenergetischer Elektronen auch bei den Messungen an Fe XIV nicht ausgeschlossen. Es kann jedoch sein, dass die Energie der Elektronen nicht ausreicht, um eine erneute Anregung des metastabilen Niveaus zu erreichen. So müssten die Penning-Elektronen über einen ausreichend langen Zeitraum die zur Anregung nötige Mindestenergie von 2.33 eV beibehalten. Wie die Simulationen in Kapitel 3.1.2 bei den Ar-Messungen zeigten, hängt die Entwicklung der Elektronenenergie stark vom Verhältnis der Ionendichte zu der Dichte der koexistierenden niederenergetischen Elektronen in der Falle ab.

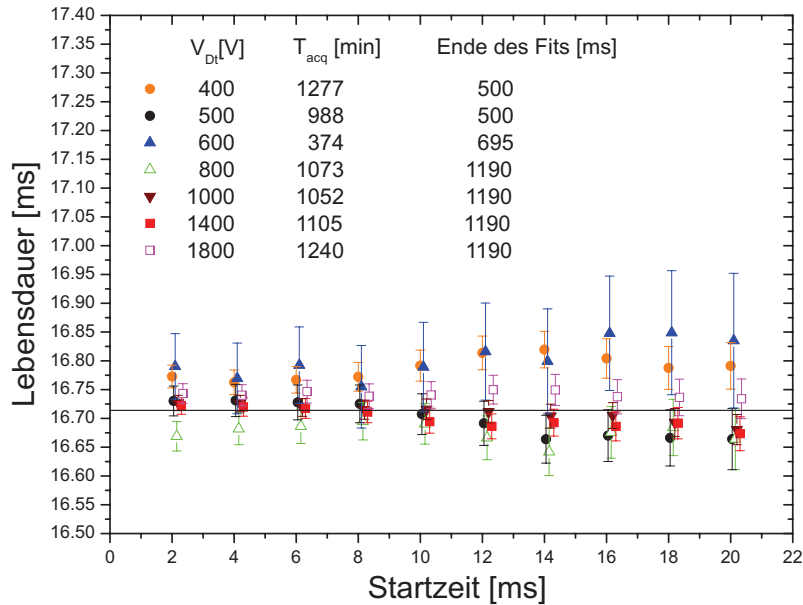


Abbildung 3.40: Tail-Fit Analyse der Zerfallskurven von Fe XIV.

Wegen des geringeren Emissionsstrom von $I_e = 25$ mA bei den Messungen an Fe (bei Ar betrug $I_e = 100$ mA) und der damit verbundenen kleineren Ionisationseffizienz, befinden sich bei ähnlichem Injektionsdruck insgesamt weniger Fe XIV Ionen in der Falle als bei Ar. Dies zeigt sich auch in der maximal erreichbaren Photonenzählrate, die bei vergleichbarer Detektionseffizienz (die Quanteneffizienz des PMT ist bei 530 nm lediglich um 5% gegenüber der bei 440 nm verringert) bei Fe um einen Faktor 10 kleiner war. Weiterhin kann aufgrund des geringeren Aufheizens durch den Elektronenstrahl und des zusätzlichen evaporativen Kühlens der Ionen durch das Schalten der Falltiefe von einer niedrigeren mittleren Ionentemperatur als beim Ar ausgegangen werden.

Um bei der niedrigen Elektronenstrahlenergie von ca. 400 eV einen Emissionsstrom von $I_e = 25$ mA zu erreichen und gleichzeitig Strahlstabilität gewährleisten zu können, musste die Elektronenkanone etwa 5 cm näher an das Driftröhren-Ensemble gebracht werden. Diese etwas unterschiedliche Justage der Elektronenkanone im Vergleich zu den Ar Messungen kann dafür verantwortlich sein, dass während der Defokussierungsphase beim Schalten des Elektronenstrahls bedeutend weniger Elektronen in die Falle diffundiert sind. Somit wäre die Zahl der in die Falle beim Ausschalten des Elektronenstrahls eingefangenen Elektronen im Falle der Fe-Messung wesentlich kleiner. Um den Einfluss der Position der Elektronenkanone zu testen, wurden für unterschiedliche Ausrichtungen Lebensdauerkurven aufgenommen und deren Untergrund untersucht. Dabei konnte keinerlei zweite Zerfallskomponente festgestellt werden.

Selbst wenn die Energie der gespeicherten Elektronen ausreichend wäre, um nach Ausschalten des Elektronenstrahls eine erneute Anregung des metastabilen Niveaus zu realisieren, so kann die Anregungsrate so klein sein, dass die „langsame“ Komponente im Untergrundsignal des PMT verschwindet. Unter Umständen führen auch Effekte, die durch das periodische Schalten der Driftröhrenspannungen – und damit der Falltiefe – bedingt sind, dazu, dass die Elektronen aus der

3.2. Bestimmung der Lebensdauer des Fe XIV $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus

Falle gedrängt werden und somit keinerlei weitere Anregung stattfinden kann.

Schlussfolgernd wird davon ausgegangen, dass selbst wenn niederenergetische Elektronen aus dem Elektronenstrahl aufgrund der magnetische Flaschenkonfiguration in der EBIT mit den Fe XIV Ionen koexistieren, diese wegen ihrer geringen Konzentration keinen Einfluss auf die Bestimmung der Lebensdauer des $^2P_{3/2}^o$ Zustands in Fe XIV haben.

Kapitel 4

Ergebnisse

4.1 Diskussion des Ergebnisses für Ar^{13+} und Theorievergleich

4.1.1 Experimentelles Ergebnis

Nach eingehenden Untersuchungen der verschiedenen systematischen Effekte und deren Einfluss auf die Bestimmung der natürlichen Lebensdauer kann nun unter Berücksichtigung der dominierenden Fehlerbeiträge die gemessene Lebensdauer des $\text{Ar XIV } 2p \ ^2P_{3/2}^o$ Zustands angegeben werden. Das experimentelle Ergebnis lautet $\tau = 9.573(4)_{(-5)}^{(+12)}$ ms (Statistik)(Systematik). Der Wert ermittelt sich aus dem gewichteten Durchschnitt der kurzen Zerfallszeiten, die aus den verschiedenen Zerfallskurven zweier Messreihen, aufgenommen bei Fallenpotentialen zwischen 500 und 2500 V und über eine Gesamtzeit von ungefähr 116 Stunden, bestimmt wurden. Weiterhin beinhaltet er die Korrektur aufgrund der Dump-induzierten Verluste, die mit 0.025 % abgeschätzt wurden. Der statistische Fehler von ± 0.004 ms entspricht der Standardabweichung des Mittelwerts der Messungen. Die systematischen Fehler von -0.005 ms und $+0.012$ ms ergeben sich aus der quadratischen Summe der Unsicherheit der Totzeit des Datenaufnahmesystems (± 0.005 ms) und der oberen Grenze für die Verlustrate durch Ladungsaustauschprozesse ($+0.009$ ms). Die Asymmetrie der systematischen Fehlergrenzen ist darin begründet, dass der Ladungsaustausch ausschließlich zu einer verkürzt gemessenen Lebensdauer führen kann und somit die dadurch verursachte Messungenauigkeit auf eine obere Fehlergrenze hin beschränkt ist.

In Tabelle 4.1.1 sind die Fehlerbeiträge der verschiedenen systematischen Effekte zusammengefasst, die sich aus den vorangegangenen systematischen experimentellen Untersuchungen ergaben. Aus der Tabelle geht hervor, dass die oben berücksichtigten Fehler die einzigen sind, die signifikant zum Gesamtfehler der gemessenen natürlichen Lebensdauer des $\text{Ar XIV } 2p \ ^2P_{3/2}^o$ Niveaus beitragen.

Die in dieser Arbeit hochpräzise gemessene Lebensdauer von $9.573(4)_{(-5)}^{(+12)}$ ms mit einer relativen Ungenauigkeit von 0.1% wird in Abb. 4.1 mit bisherigen, unter Nutzung verschiedener

Systematischer Effekt	Relativer Beitrag [%]
Verluste durch Ladungsaustausch	$\cong 0.1$
Totzeit	≤ 0.06
Statistik	$\cong 0.05$
Dump-induzierte Verluste	$\cong 0.025$
Axiale Ionenverluste	\emptyset
Radiale Ionenverluste	\emptyset
Kaskadenrepopulation	\emptyset
Quenchen	\emptyset

Tabelle 4.1: Beiträge der verschiedenen Fehlerquellen.

Messmethoden, experimentell erhaltenen Ergebnissen verglichen. Sie stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der jüngsten Messung der LLNL-EBIT überein [61], deren Lebensdauer mit 9.70(15) ms angegeben ist, jedoch 0.8 Standardabweichungen über dem hier ermittelten Wert liegt und eine mehr als eine Größenordnung größere relative Ungenauigkeit von 1.5% besitzt. Die beiden früheren Messungen mittels einer Kingdonfalle [165] und der NIST-EBIT [166] ergaben Lebensdauern von 9.12(18) ms bzw. 8.7(5) ms, und sind, bei ebenfalls bedeutend größerer Ungenauigkeit im Vergleich zum Messergebnis dieser Arbeit, um 2.5 bzw. 1.7 Standardabweichungen kürzer. Die Diskrepanz bezüglich des Messwertes der Kingdonfalle ist mit ziemlicher Sicherheit auf eine

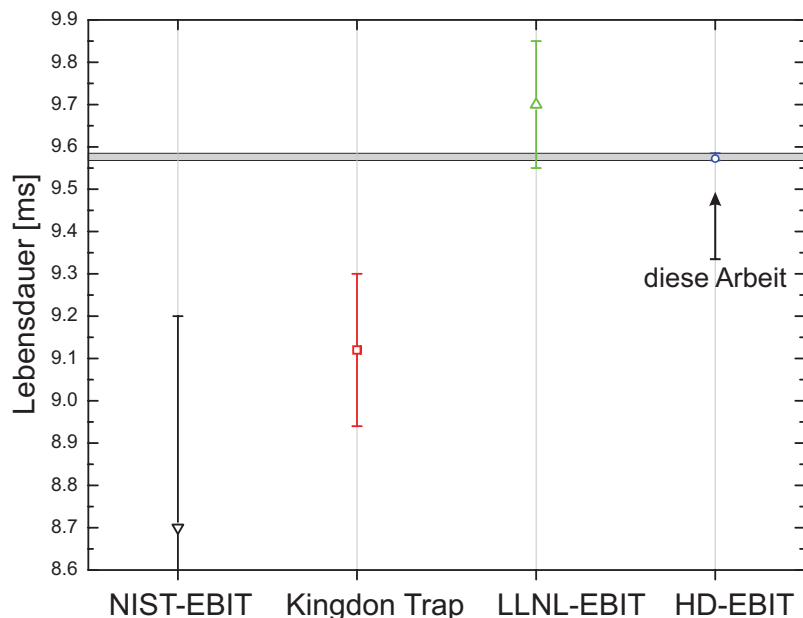


Abbildung 4.1: Vergleich der in dieser Arbeit gemessenen Lebensdauer des Ar XIV $2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands mit anderen experimentellen Ergebnissen.

ungenügende Kontrolle der in der Kingdonfalle systematisch beitragenden Effekte, wie z.B. des

Ionenverlusts durch Ladungsaustausch, zurückzuführen. So wird zwar die Ionenverlustrate über die Zahl der Ionen, die nach Abschalten der Fallenpotentiale durch einen MCP-Detektor registriert werden, bestimmt und in die Analyse der Fluoreszenzdaten mit eingerechnet, allerdings ist der Detektor offensichtlich nicht in der Lage, alle Ionen, die die Falle in beliebiger Richtung verlassen können, aufzunehmen. Zudem ist er nicht empfindlich auf den Ladungszustand des Ions. Ionen, die während der Speicherzeit durch Ladungsaustausch ihren Ladungszustand geändert haben, können zwar nicht mehr zum Fluoreszenzsignal beitragen, werden jedoch unter Umständen weiterhin in der Falle gespeichert und können so beim kontrollierten Entleeren der Falle vom Ionendetektor gezählt werden. Dies kann zu einer scheinbar längeren Speicherzeit der Ionen und einer zu kleinen systematischen Korrektur hinsichtlich der gemessenen Lebensdauer führen. Die genaue Abschätzung der systematischen Fehlerquellen bei Messungen mittels der Kingdonfalle stellt nach wie vor einen zum Teil erheblichen Unsicherheitsfaktor dar, und stellt somit die Verlässlichkeit der so gemessenen Lebensdauern insgesamt in Frage.

Der Datenpunkt der NIST-EBIT weicht signifikant von den Messungen der LLNL-EBIT und der HD-EBIT ab. Die deutlich kürzer gemessene Lebensdauer weist auf eine fehlerhafte bzw. unzureichende Abschätzung der Ionenverluste hin. Betrachtet man die an der NIST-EBIT verwendeten Elektronenstrahlenergien, die zur optimalen Signalausbeute eingestellt wurden, so fällt auf, dass diese sehr viel größer (mehrere keV) als die nominell benötigte Ionisationsenergie zur Produktion von Ar XIV (deutlich unter 1 keV) waren. Dies deutet auf unzureichende Vakuumbedingungen, bei denen vor allem Ladungsaustauschprozesse einen erheblichen Ionenverlust verursachen und zu einer verkürzt gemessenen Lebensdauer führen können.

Des Weiteren muss erwähnt werden, dass zur Fluoreszenzdetektion an der NIST-EBIT ein Monochromator mit Eintrittsspalt und einem PMT verwendet wurde. Das Sammellinsensystem der NIST-EBIT und der einstellbare Eintrittsspalt des Spektrometers erlaubten ein effektives Sichtfeld auf die Ionenwolke von 2 mm Breite. Dieses kleine Sichtfeld könnte die Lebensdauermessung empfindlich auf eine, über diesen Wert hinaus gehende, radiale Expansion der Ionenwolke machen. Es wurden zwar systematische Untersuchungen bei verschiedenen Spaltbreiten als auch Spaltpositionen durchgeführt, um den Beitrag dieses systematischen Fehlers hinsichtlich der Gesamtungenauigkeit von mehreren Prozent zu bestimmen. Der beobachtete plötzliche scharfe Abfall der Zerfallskurve unmittelbar nach Ausschalten des Elektronenstrahls weist jedoch klar auf einen Austritt (und damit Verlust) der Ionen aus dem Sichtfeld des Detektionssystems hin (radial und axial). Auch dieser Effekt führt, falls nicht richtig korrigiert, zu einer scheinbar verkürzt gemessenen Lebensdauer. Dagegen besitzt die HD-EBIT aufgrund der nahe an der Falle installierten Sammellinsen und der 10 mm breiten Apertur seitlich der Driftröhren ein sehr viel größeres Sichtfeld, welches es erlaubt, mit Hilfe einer CCD-Kamera das Abbild der Ionenwolke samt den Aperturen der Driftröhren vollständig aufzunehmen, so dass hier davon ausgegangen werden kann, dass die Detektionseffizienz nicht von einer Expansion der Ionenwolke auf einige Millimeter Durchmesser beeinträchtigt wird. Zudem wurde für hohe Fallenpotentiale oberhalb von 500 V kein plötzlicher Abfall des Fluoreszenzsignals beobachtet.

4.1.2 Vergleich mit der Theorie

Nach Gleichung (1.42) ist die mittlere Lebensdauer eines Zustands invers mit der Übergangsrate zwischen zwei gegebenen Zuständen verknüpft ($\tau \equiv 1/A_{if}$). Allgemein hängt die Übergangsrate A_{if} von der Übergangsenergie und der Übergangsamplitude, also dem Matrixelement des Wechselwirkungsoperators, der den Anfangszustand mit dem Endzustand verknüpft, ab (vgl. Gleichung (1.44)). Im Falle eines $M1$ -Übergang lässt sich im nichtrelativistischen Limes die Übergangsrate als

$$W_{if}^{\text{nr}} = \frac{32\pi^3}{3} \frac{1}{\lambda^3} \frac{S_{if}}{2J_i + 1} \quad (4.1)$$

schreiben, mit λ der Vakuumwellenlänge des betrachteten Übergangs, $2J_i + 1$ der Multiplizität des oberen Zustands und S_{if} der Linienstärke des $M1$ -Übergangs, die im Bereich der LS -Kopplung nur vom Gesamtdrehimpuls J , dem Bahndrehimpuls L und der Spinquantenzahl S des Anfangs-, und Endzustands abhängt (siehe Gleichung 1.52).

Ein typischer Ansatz zur Berechnung theoretischer Übergangswahrscheinlichkeiten besteht darin, eine nach einer selbstkonsistenten *ab initio* Methode theoretisch berechnete Übergangswellenlänge mit einer ebenso berechneten Übergangsamplitude zu kombinieren, und über Gleichung (4.1) die theoretische mittlere Lebensdauer eines Zustands zu bestimmen. Da die Übergangsrate jedoch invers proportional zur dritten Potenz der Übergangswellenlänge (λ^{-3}) ist, ist sie sehr sensitiv auf eventuelle Ungenauigkeiten der berechneten Übergangsenergie. Die Präzision der theoretischen Übergangsrate lässt sich erhöhen, indem ein semiempirischer Ansatz verfolgt wird, und zwar durch Kombination einer experimentell hochpräzise gemessenen Übergangswellenlänge mit der nach wie vor theoretisch berechneten Linienstärke des betrachteten Übergangs. Auf diese Weise lassen sich für Elemente mit mittlerer Kernladungszahl Z Übergangswahrscheinlichkeiten mit einer Genauigkeit von weniger als 1% ermitteln.

Bislang wurden QED-Korrekturen hinsichtlich der Lebensdauer eines Zustands in den theoretischen Betrachtung bis auf einige wenige Fälle nicht berücksichtigt, da die bisherige experimentelle Genauigkeit nicht die Präzision erlangte, um den vorhergesagten Einfluss der QED auf die Übergangswahrscheinlichkeit in den unterschiedlichen theoretischen Ansätzen überprüfen zu können. Der Hauptbeitrag der QED-Korrektur zur $M1$ -Übergangsamplitude bzw. Linienstärke ist durch das anomale magnetische Moment des freien Elektrons (EAMM) gegeben, welches in niedrigster Ordnung durch den Faktor $\kappa_e = \alpha/2\pi$ berücksichtigt werden kann und im Falle eines $M1$ -Feinstrukturübergangs zweier Zustände mit gleichem LS -Term die Übergangswahrscheinlichkeit um den Faktor $(1+4\kappa_e)$ erhöht (vgl. Kapitel 1.4.4):

$$A_{if} = \frac{32\pi^3}{3} \frac{1}{\lambda^3} (1 + 4\kappa_e) \frac{S_{if}}{2J_i + 1}. \quad (4.2)$$

Entsprechend vermindert sich bei Berücksichtigung des EAMM die mittlere Lebensdauer um 0.45%.

4.1. Diskussion des Ergebnisses für Ar^{13+} und Theorievergleich

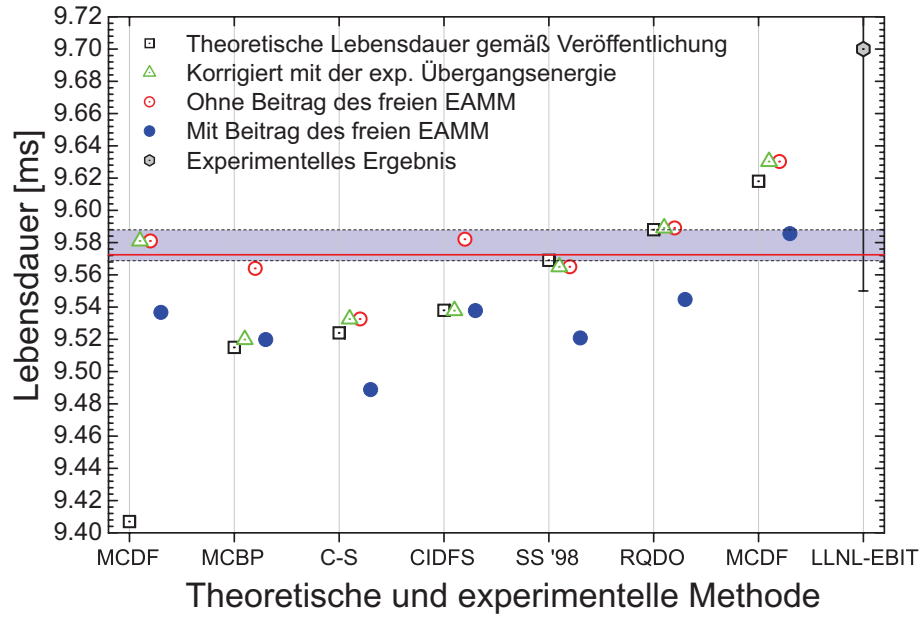


Abbildung 4.2: Vergleich theoretisch berechneter Lebensdauern des metastabilen $2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in Ar XIV mit experimentellen Ergebnissen. Für Referenzen siehe Text. Das Ergebnis dieser Arbeit ist als rote Linie, der Gesamtfehler als farbiges Band eingezeichnet.

Abb. 4.2 vergleicht das experimentelle Ergebnis dieser Arbeit mit der theoretisch von einigen Modellen vorhergesagten Lebensdauer des metastabilen $2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in Ar XIV . Dabei wurden neben nichtrelativistischen Methoden (C-S [167], Breit-Pauli [MCBP] [168]) auch relativistische (Super-Structure (SS) [169], MCDF [170, 171], CIDFS [91], RQDO [172]) Berechnungen durchgeführt. Um eine höhere Präzision in den Vorhersagen sowie eine bessere Vergleichbarkeit zu erhalten, wurden die theoretischen Übergangswahrscheinlichkeiten auf die experimentell sehr genau bekannte Übergangswellenlänge so korrigiert, dass

$$A_{if} = A_{if}^{\text{theo}} \times \frac{\lambda_{\text{theo}}^3}{\lambda_{\text{exp}}^3}, \quad (4.3)$$

wobei λ_{exp} die in [22] experimentell bestimmte Übergangswellenlänge von 441.2559(1) nm in Luft, korrigiert auf 441.3799(1) nm in Vakuum, ist.

Wie in Abb. 4.2 zu sehen, stimmen die meisten aus dieser Korrektur resultierenden Lebensdauern innerhalb des experimentellen Fehlers mit der gemessenen Lebensdauer überein, solange die QED-Korrektur aufgrund des EAMM nicht berücksichtigt wird. Außer bei den Berechnungen von Froese Fischer (MCBP) [168] und Tupitsyn *et al.* (CIDFS) [91] wurde bei den theoretischen Vorhersagen der Beitrag des EAMM zum g -Faktor des freien Elektrons vernachlässigt, indem dieser als $g_e = 2$ angenommen wurde. Um den EAMM-Beitrag mit einzubeziehen, wurden die bereits auf die experimentelle Wellenlänge korrigierten theoretischen Lebensdauern entsprechend Gleichung (4.2) zusätzlich durch den Faktor $(1+4\kappa_e)$ geteilt. Vergleicht man in Abb. 4.2 die so erhaltenen theoretischen Lebensdauern mit dem experimentellen Ergebnis, so sieht man, dass der Beitrag des EAMM alle vorhergesagten Lebensdauern, bis auf die von Verhey *et al.* (MCDF) [171], aus

den experimentellen Fehlergrenzen heraus verschiebt und sich um den Durchschnittswert 9.53 ms konzentrieren – etwa 3σ abweichend vom experimentellen Wert.

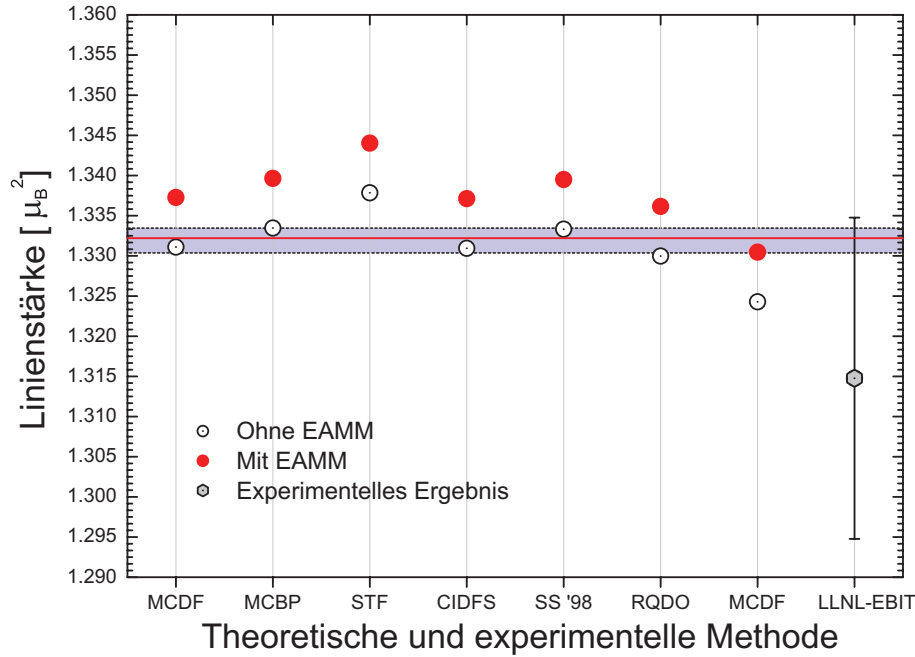


Abbildung 4.3: Theoretische und experimentelle Linienstärken. Das Ergebnis dieser Arbeit ist als rote Linie, der Gesamtfehler als farbiges Band dargestellt.

Diese Unstimmigkeit ist in Abb. 4.3 nochmal verdeutlicht dargestellt, wo die nach Gleichung (4.1) abgeleiteten, theoretischen und experimentellen Linienstärken S_{if} in Einheiten von μ_B^2 aufgetragen sind. Es fällt auf, dass die Linienstärke von $1.3322^{(+9)}_{(-18)} \mu_B^2$ des Ar XIV $2p^2 P_{1/2}^o - 2P_{3/2}^o$ Übergangs, die aus der gemessenen Lebensdauer abgeleitet wurde, zufällig erstaunlich gut mit der nichtrelativistischen Linienstärke, die sich gemäß Gleichung (1.51) zu $(4/3)\mu_B^2 = 1.3333 \mu_B^2$ berechnet, übereinstimmt.

In [91] ist die Übergangswahrscheinlichkeit des ${}^2P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs in Ar XIV mit Hilfe der sog. Configuration-Interaction Methode in der Dirac-Fock-Sturm Basis (CIDFS) in Verbindung mit der Methode der Störungstheorie in der Ordnung $1/Z$ theoretisch berechnet worden. Bei diesen, von Tupitsyn *et al.* durchgeführten Berechnungen wurde erstmalig eine systematische Analyse der verschiedenartigen Effekte, die zur Übergangswahrscheinlichkeit beitragen, vorgenommen. Hierzu wurde die Übergangswahrscheinlichkeit \mathcal{W}_{if} in die einzelnen Beitragsterme, die separat berechnet wurden, aufgespalten:

$$\mathcal{W}_{if} = \mathcal{W}_{if}^{\text{nr}} + \Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{D}} + \Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{CI}} + \Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{neg}} + \Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{QED}} + \Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{freq}}, \quad (4.4)$$

wobei $\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}}$ die nichtrelativistische $M1$ -Übergangswahrscheinlichkeit im Rahmen der LS -Kopplung darstellt und $\Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{D}}$ den relativistischen Korrekturterm wiedergibt. Der Beitrag der interelek-

4.1. Diskussion des Ergebnisses für Ar^{13+} und Theorievergleich

tronischen Wechselwirkung ist in $\Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{CI}}$ enthalten. Der Einfluss der negativen Energiezustände auf \mathcal{W}_{if} ist in $\Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{neg}}$ berücksichtigt. Der QED-Korrektur $\Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{QED}}$ wird in niedrigster Ordnung durch das anomale magnetische Moment des Elektrons Rechnung getragen, indem – dem oben beschriebenen Formalismus folgend – der Korrekturfaktor $4\kappa_e$ auf die Linienstärke des Übergangs angewandt wurde. $\Delta\mathcal{W}_{if}^{\text{freq}}$ gibt den frequenzabhängigen Anteil der Elektron-Elektron-Wechselwirkung (Breit-Wechselwirkung) auf die Übergangswahrscheinlichkeit wieder.

Die theoretisch ermittelten relativistischen, quantenelektrodynamischen Korrekturen und auch der Einfluss der Elektron-Elektron Wechselwirkung hinsichtlich der nichtrelativistischen Übergangswahrscheinlichkeit $\mathcal{W}_{if}^{\text{nr}}$ sind in Tabelle 4.2 zusammengestellt. Die Berechnungen ergaben,

Ar XIV ($M1$) $1s^2 2s^2 2p^2 P_{1/2}^o - 2P_{3/2}^o$	
Wellenlänge [nm]	441.3799(1)
\mathcal{W}^{nr}	104.56308
$\Delta\mathcal{W}^{\text{D}}$	-0.23145
$\Delta\mathcal{W}^{\text{CI}}$	0.03723
$\Delta\mathcal{W}^{\text{neg}}$	-0.00929
$\Delta\mathcal{W}^{\text{QED}}$	0.48502
$\Delta\mathcal{W}^{\text{freq}}$	0.00049
\mathcal{W}^{tot}	104.85(2)
τ [ms]	9.538(2)
τ^{exp} [ms]	9.573(4) $_{(-5)}^{(+12)}$

Tabelle 4.2: Die berechnete Zerfallsrate \mathcal{W} (s^{-1}) und die Lebensdauer des ${}^2P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs in Ar XIV, sowie die entsprechenden Korrekturbeiträge. Für die Übergangswellenlänge wurde der hochpräzise gemessene experimentelle Wert von 441.3799(1) nm (in Vakuum gemessen) [22] angenommen. Der jeweilige Fehler ist in Klammern angegeben.

dass die relativistische Ein-Elektronen-Korrektur W_D die nichtrelativistische Übergangswahrscheinlichkeit um ca. 0.22% absenkt, während der Beitrag von ca. 0.03% der relativistischen Elektron-Elektron Wechselwirkung, bei deren Berechnung die negativen Kontinuums-Energiezustände berücksichtigt wurden, eine Erhöhung voraussagt. Der Hauptbeitrag der QED-Korrektur zur $M1$ -Übergangsamplitude bzw. Linienstärke ist durch das anomale magnetische Moment des freien Elektrons gegeben. Entsprechend vermindert sich bei Berücksichtigung des EAMM die mittlere Lebensdauer um 0.45%. Der Einfluss dieser Korrektur ist ungefähr einen Faktor 2 größer als der relativistische Beitrag zur Linienstärke des ${}^2P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs (siehe Tab. 4.2). Zudem ist er vergleichbar mit dem 0.65% Beitrag der QED zur Übergangswahrscheinlichkeit, der durch die QED bedingte Verschiebung der Übergangswellenlänge von 0.2% verursacht wird [22]. Es zeigte sich, dass die Ein-Elektron QED-Strahlungsbeiträge (Vakuumpolarisation und Selbstenergie) um mehrere Größenordnungen kleiner sind als der Beitrag des EAMM zur Übergangswahrscheinlichkeit [173], so dass sie nicht weiter berücksichtigt bzw. aufgeführt werden.

Die theoretische Vorhersage der oben diskutierten CIDFS-Rechnung von 9.538(2) ms weicht um 0.36% vom hochpräzisen experimentellen Ergebnis dieser Arbeit ab, was weniger als der QED-

Beitrag des EAMM von 0.45% ist. Die Unsicherheit des theoretischen Werts ist hauptsächlich auf die nicht berechnete Rückstoßkorrektur zurückzuführen [173].

4.2 Diskussion des Ergebnisses für Fe¹³⁺ und Theorievergleich

4.2.1 Experimentelles Ergebnis

Unter Berücksichtigung aller signifikant beitragenden systematischen Fehler, ergibt sich experimentell für die natürliche Lebensdauer des $3p\ ^2P_{3/2}^o$ Zustands in aluminiumartigem Fe XIV der Wert von $\tau = 16.726(10)(+17)$ ms (stat)(syst). Die angegebene Lebensdauer wurde durch die statistisch gewichtete Durchschnittsbildung der Zerfallszeiten, die bei ausreichend großen Driftrohrpotentialen gemessen wurden, so dass der systematische Effekt durch axiale Ionenverluste vernachlässigbar war, ermittelt. Der so erhaltene Wert wurde zusätzlich mit der abgeschätzten Dump-Rate von $2 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, die ein Verlustrate darstellt und somit die gemessene Lebensdauer künstlich verkürzt, nach oben korrigiert. Die statistische Unsicherheit von ± 0.010 ms des gewichteten Durchschnitts der Lebensdauern, wurde aus den, über eine Gesamtzeit von ca. 160 Stunden, aufgenommenen Zerfallskurven extrahiert. Die nach oben angegebene Unsicherheit von +0.017 ms berücksichtigt den systematischen Fehler durch Ladungsaustauschverluste, der mit einem maximalen Effekt von 0.1% auf die gemessene Lebensdauer wirken kann. Andere systematische Fehler erwiesen sich als statistisch nicht signifikant, so dass sie bei der Angabe der letztendlichen Messunsicherheit nicht mit einbezogen werden (siehe Tab. 4.2.1).

Systematischer Effekt	Relativer Beitrag [%]
Verluste durch Ladungsaustausch	≤ 0.1
Statistik	$\cong 0.06$
Dump-induzierte Verluste	$\cong 0.02$
Totzeit	\emptyset
Axiale Ionenverluste	\emptyset
Radiale Ionenverluste	\emptyset
Kaskadenrepopulation	\emptyset

Tabelle 4.3: Beiträge der systematischen Effekte.

4.2.2 Vergleich von Theorie und Experiment

Das starke Interesse und auch die astrophysikalische Bedeutung der hier untersuchten grünen Eisenlinie zeigt sich in der Vielzahl der theoretischen Berechnungen der Übergangsrate des $M1\ 3p\ ^2P_{1/2}^o - ^2P_{3/2}^o$ Übergangs in Fe XIV, die in den letzten 4 Jahrzehnten durchgeführt worden sind.

4.2. Diskussion des Ergebnisses für Fe^{13+} und Theorievergleich

Theoretische Berechnungen				
τ [ms]	A [s^{-1}]	Theoriemodell	Abb.4.4	Referenz
16.65	60.06	HF	1	[174]
16.58	60.31	Scaled TF	2	[175]
16.58	60.31	HF	3	[176]
16.6	60.2	CA	4	[177]
16.65	60.06	CD	5	[178]
16.61	60.20	CD	6	[179]
19.8	50.5	MCHF-BP	7	[180]
16.66	60.02	MCDF	8	[181]
16.6	60.24	CD	9	[23]
16.52	60.53	HFR	10	[182]
21.38	46.77	SS	11	[183]
16.61	60.20	MCDF	12	[184]
17.01	58.79	CI	13	[185]
16.61	60.20	RMBPT	14	[186]
16.53	60.45	CIDFS	15	[187]
Experimentelle Ergebnisse				
τ [ms]	A [s^{-1}]	Fallentyp	Abb.4.4	Referenz
16.726(10)(+17)	59.76 ± 0.03	HD-EBIT	Band	diese Arbeit
17.0±0.2	58.8±0.7	Kingdon	16	[113]
16.74±0.12	59.74±0.43	LLNL-EBIT	17	[52]
18.0±1.2	55.5±3.7	TSR	18	[188]
17.52±0.29	57.08±0.95	Kingdon	19	[112]

Tabelle 4.4: Berechnete Lebensdauern und experimentelle Ergebnisse für das metastabile $\text{Fe XIV } 3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ Niveau. Die zur Berechnung verwendeten Modelle sind: HF: *Hartree-Fock*, TF: *Thomas-Fermi*, CA: *Coulomb approximation*, CD: *Compiled data*, MCHF-BP: *Multiconfiguration Hartree-Fock Breit-Pauli*, MCDF: *Multiconfiguration Dirac-Fock*, HFR: *Relativistic Hartree-Fock*, SS: *Superstructure*, CI: *Configuration Interaction*, RMBPT: *Relativistic Many-Body Perturbation Theory*, CIDFS: *Configuration Interaction in der Dirac-Fock-Sturm Basis*.

Ebenso wurden mit Hilfe verschiedener Methoden – darunter die Verwendung einer elektrostatischen Falle (Kingdonfalle), eines Schwerionenspeicherrings (TSR) und auch der EBIT – eine Reihe von experimentellen Untersuchungen über die Lebensdauer des metastabilen $3p^2 P_{3/2}^o$ Zustands angestellt (siehe Tab. 4.4).

In Abbildung 4.4 wird die in dieser Arbeit experimentell bestimmte Lebensdauer sowohl mit den theoretischen Vorhersagen als auch mit früheren experimentellen Ergebnissen verglichen. Neben den theoretisch berechneten Lebensdauern gemäß den jeweiligen Veröffentlichungen, sind auch die – falls nicht sowieso übereinstimmend – auf die experimentell bestimmte Wellenlänge von

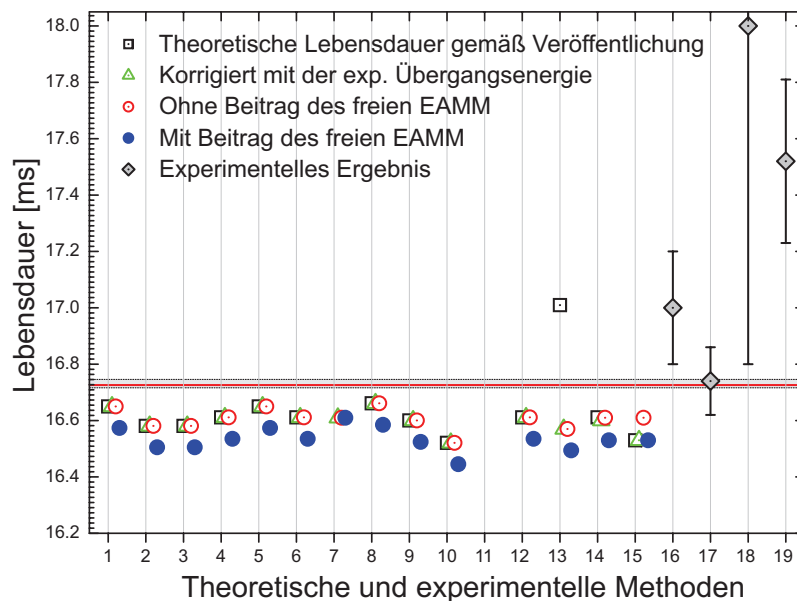


Abbildung 4.4: Darstellung theoretisch und experimentell bestimmter Lebensdauern. Die Zahlen auf der x-Achse kennzeichnen Ergebnisse, die mit Hilfe verschiedener theoretischer und experimenteller Methoden erzielt wurden. Die zugehörigen Referenzen sind in Tabelle 4.2.2 angegeben. Die theoretische Vorhersage bei Kennzeichnung 11 (SS) befindet sich mit 21.38 ms außerhalb des Diagrammbereichs.

530.29 nm (in Luft) korrigierten Lebensdauern eingezeichnet. Da die relative Ungenauigkeit der Messung von 0.12% sensitiv auf die QED-Korrektur niedrigster Ordnung, also dem EAMM des freien Elektrons, ist, wurde in Abb. 4.4 wie auch beim Ar XIV die Lebensdauer dargestellt, die sich bei Berücksichtigung des EAMM in den Berechnungen ergibt.

Die gemessene Lebensdauer von $16.726(10)(+17)$ ms mit einer relativen Ungenauigkeit von 0.12% stimmt mit der Messung von Beiersdorfer *et al.* an der EBIT des Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL-EBIT) innerhalb deren Fehlergrenzen überein (16.74(12) ms) [52], allerdings ist die Ungenauigkeit LLNL-EBIT Messung um einen Faktor 6 größer. Eine unlängst mit Hilfe einer Kingdonfalle getätigte Messung ergab eine Lebensdauer von 17.0(2) ms [113]. Obwohl diese Messung eine deutliche Verbesserung der Genauigkeit eines früheren experimentellen Ergebnisses (17.52(29) ms, Label 19) erzielt, findet der Wert keine Übereinstimmung mit der an der HD-EBIT ermittelten Lebensdauer und hat zudem einen um eine Größenordnung größeren Fehler. Die Messung mittels des Schwerionenspeicherrings TSR am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg (Label 18) ist aufgrund eines schlechten Rausch-Signal-Verhältnisses bedingt durch den verwendeten rotempfindlichen PMT statistisch nicht signifikant genug, um eine entsprechende Wertung vornehmen zu können.

Ein Vergleich des experimentellen Ergebnisses mit den vielzählig vorhandenen theoretischen Berechnungen zeigt, dass alle Theorien dazu tendieren, eine kürzere Lebensdauer des metastabilen $^2P_{3/2}^o$ Niveaus in Fe XIV vorherzusagen. Vernachlässigt man das Ergebnis der Superstructure (SS)

4.2. Diskussion des Ergebnisses für Fe^{13+} und Theorievergleich

Rechnung von Bhatia & Kastner (Label 11 in Abb. 4.4, [183]), welches sehr stark von den experimentellen Werten abweicht, so schwanken die, auf die experimentelle Übergangswellenlänge korrigierten, theoretischen Voraussagen um einen Durchschnittswert von 16.61 ms – ungefähr 5σ kürzer als die in dieser Arbeit gemessene Lebensdauer.

Die *ab initio* Multikonfiguration Dirac-Fock (MCDF) Rechnung von Huang (Label 8, [181]) ergab eine Lebensdauer von 16.66 ms in Übereinstimmung mit der LLNL-EBIT Messung (Label 17) und, wenn auch kürzer als die aktuell experimentell ermittelte Lebensdauer, am Nächsten an deren unterer Fehlergrenze liegend. Die Vorhersagekraft dieses theoretischen Ansatzes zur Berechnung von $M1$ -Übergangsraten in komplexen Mehrelektronensystemen muss jedoch als eingeschränkt betrachtet werden, da sie beispielsweise nicht in der Lage ist, die Übergangswahrscheinlichkeit des sehr ähnlichen $M1$ $^2P_{3/2}^o - ^2P_{1/2}^o$ Übergangs in chlorartigem Fe X korrekt vorauszusagen [189]. Eine gute Übereinstimmung erreichten weiterhin Moehs *et al.* [185] mit ihrer relativistischen Configuration Interaction (CI) Methode (17.01 ms, Label 13) bezüglich ihres experimentellen Werts von 17.0(2) ms. Dies gilt jedoch nur, wenn das theoretische Ergebnis, das als einziges nicht dem Trend anderer Rechnungen hin zu kürzeren Lebensdauern folgt, nicht auf die experimentelle Wellenlänge hin korrigiert wird. Die korrigierte Lebensdauer von 16.57 ms ist klar unterhalb der hier gemessenen Lebensdauer und ebenso klar außerhalb der Fehlergrenzen der Kingdonfallen-Messung.

Hervorzuheben ist die neueste Rechnung von Vilkas und Ishikawa (Label 14, [186]), die mit Hilfe einer relativistischen Multireferenz Møller-Plesset Mehrkörper-Störungstheorie-Methode einen korrigierten Wert von 16.60 ms erzielten. Dieser ist in Übereinstimmung mit der LLNL-EBIT Messung, jedoch klar außerhalb der Ungenauigkeit des Wertes der HD-EBIT. Obwohl dieser theoretische Ansatz keine überzeugende Übereinstimmung mit dem sehr genauen experimentellen Ergebnis bei Fe XIV erlangt, kommt dieselbe Methode bei der Berechnung der Lebensdauer des, ebenso in dieser Arbeit diskutierten, metastabilen $1s^2 2s^2 2p$ $^2P_{3/2}^o$ Niveaus in borartigem Ar XIV sehr nahe (vergleiche 9.59 ms mit $9.573(4)_{(-5)}^{(+12)}$ ms).

Die Genauigkeit von 0.12% macht die Messung ebenfalls empfindlich auf QED-Beiträge zur Übergangsamplitude des untersuchten $M1$ -Übergangs. Insbesondere ist es wie auch beim Ar XIV nötig, das EAMM des freien Elektrons, dessen Beachtung die Lebensdauer des $^2P_{3/2}^o$ Zustands um ca. 0.5% reduziert, mit in die theoretischen Betrachtungen einzubeziehen. Die Berücksichtigung dieser QED-Korrektur niedrigster Ordnung führt jedoch auch bei Fe XIV zu einer vergrößerten Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie, wie in Abb. 4.4 zu erkennen ist (ausgefüllte blaue Kreise). Verdeutlicht ist diese Diskrepanz in Abb. 4.5 herausgearbeitet, wo die Wellenlängenunabhängige theoretische Linienstärke sowohl mit als auch ohne EAMM-Korrektur mit den experimentellen Ergebnissen der HD-EBIT und der LLNL-EBIT verglichen wird. Ebenso wie beim Ar, ist im Fall von Fe keinerlei Übereinstimmung der theoretischen und der experimentellen Linienstärke gegeben.

Wie schon für Ar XIV wurde mit Hilfe der CIDFS-Methode ebenso die Übergangswahrschein-

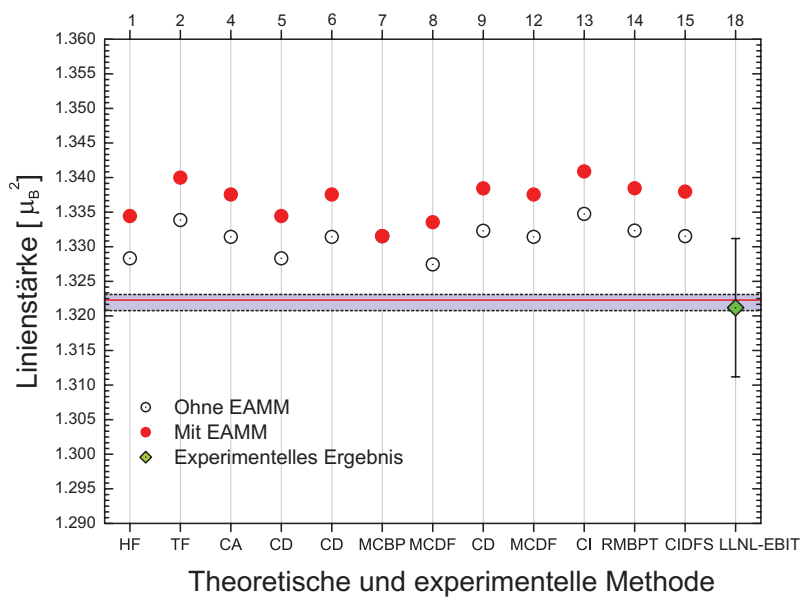


Abbildung 4.5: Vergleich der theoretischen Linienstärken, die mittels unterschiedlicher theoretischer Methoden vorhergesagt werden, mit der hier bei Fe XIV experimentell bestimmten Linienstärke von $1.3223(8)\mu_B^2$ und der Linienstärke, die sich aus der LLNL-EBIT Messung ergibt. Die Zahlen auf der oberen x-Achse beziehen sich auf die in Tab. 4.2.2 gegebenen Referenzen der verschiedenen theoretischen Methoden. Das Ergebnis dieser Arbeit ist als rote Linie (Mittelwert), sowie als farbiges Band (Gesamtfehler) eingezeichnet.

lichkeit des ${}^2P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs in Fe XIV unter Berücksichtigung der relativistischen und quantenelektrodynamischen Effekte, als auch der Elektron-Elektron-Wechselwirkung, berechnet [187]. Ein Vergleich der beiden Ergebnisse ist insofern interessant, als dass die Art des Übergangs bei beiden Systemen gleich ist. Tabelle 4.2.2 fasst die Ergebnisse der CIDFS-Rechnung hinsichtlich des $M1$ -Übergangs in Fe XIV zusammen.

Die berechnete Lebensdauer von $16.54(4)$ ms liegt ca. 1% unterhalb des experimentellen Wertes von $16.726(10)(+17)$ ms. Die nichtrelativistische Übergangswahrscheinlichkeit wird aufgrund der relativistischen Ein-Elektronen Korrektur $\Delta\mathcal{W}^D$ um ca. 0.1% abgesenkt. Aus der Rechnung ergibt sich weiterhin, dass der Einfluss der relativistischen Elektron-Elektron-Wechselwirkung (0.02%) auf die Lebensdauer bei Fe XIV geringer ist, als bei Ar XIV. Der Hauptkorrekturbeitrag von 0.45% ist wiederum durch die QED-Korrektur aufgrund des EAMM gegeben.

4.3 Abschließende Diskussion

Die experimentellen Ergebnisse der beiden hochpräzisen Messungen der natürlichen Lebensdauer des metastabilen Niveaus $2p\ {}^2P_{3/2}^o$ in aluminiumartigem Ar XIV bzw. $3p\ {}^2P_{3/2}^o$ in borartigem Fe XIV weisen eine deutliche Diskrepanz zum Trend der theoretischen Vorhersagen auf. Während bei Ar XIV die meisten, auf die experimentelle Wellenlänge korrigierten, theoretischen Lebensdauern, welche allerdings nicht auf das anomale magnetische Moment des freien Elektrons hin korrigiert wurden, zufälligerweise innerhalb des experimentellen Fehlers der gemessenen Lebensdauer lie-

4.3. Abschließende Diskussion

Fe XIV ($M1$) $3s^2 3p^2 P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$	
Wellenlänge [nm]	530.43(1)
\mathcal{W}^{nr}	60.24514
$\Delta\mathcal{W}^{\text{D}}$	-0.06476
$\Delta\mathcal{W}^{\text{CI}}$	-0.01535
$\Delta\mathcal{W}^{\text{neg}}$	-0.00243
$\Delta\mathcal{W}^{\text{QED}}$	0.27945
$\Delta\mathcal{W}^{\text{freq}}$	0.00011
\mathcal{W}^{tot}	60.44(14)
τ [ms]	16.54(4)
τ^{exp} [ms]	16.726(10)(+17)

Tabelle 4.5: Die berechnete Zerfallsrate \mathcal{W} (s^{-1}) und die Lebensdauer des $3p^2 P_{1/2}^o - {}^2P_{3/2}^o$ Übergangs in Fe XIV, sowie die entsprechenden Korrekturbeiträge. Für die Übergangswellenlänge wurde 530.43(1) nm (in Vakuum gemessen) [22] angenommen. Der jeweilige Fehler ist in Klammern angegeben.

gen, kann im Falle von Fe XIV keinerlei Übereinstimmung festgestellt werden. Die Berücksichtigung des EAMM verkürzt die theoretisch berechneten Lebensdauern um ca. 0.45% und bringt sie sowohl bei Ar XIV als auch bei Fe XIV in Widerspruch mit den experimentellen Ergebnissen. Ein ähnliches Verhalten lässt sich bei einer am Schwerionenspeicherring TSR durchgeführten Lebensdauerermessung des metastabilen $3s^2 3p^5 {}^2P_{1/2}^o$ Zustands in chlorartigem Cu XIII [190] feststellen, bei welcher der gemessene Wert von 2.390(5) ms mit einer relativen Genauigkeit von 0.2% in exzellenter Übereinstimmung mit drei theoretischen Vorhersagen (2.39 ms) ist, solange das EAMM nicht mit einberechnet wird. Fügt man allerdings den EAMM-Beitrag zum theoretischen Ergebnis hinzu, so reduziert sich die vorhergesagte Lebensdauer auf 2.379 ms. Allgemein ist es aufgrund der erreichten experimentellen Genauigkeit (0.14% bei Ar XIV und 0.13% bei Fe XIV) auf Seiten der Theorie streng erforderlich diese QED-Korrektur niedrigster Ordnung in die Berechnungen mit einzubeziehen, um präzise Vorhersagen bezüglich atomarer Lebensdauern machen zu können.

Die offensichtliche Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment kann nach heutigem Stand der Kenntnis nicht abschließend erklärt werden. Auf experimenteller Seite könnten unerwartete, bisher nicht berücksichtigte, systematische Effekte bei Messungen langlebiger metastabiler Niveaus in EBITs, Speicherringen oder allgemein in Plasmaumgebungen eine mögliche Erklärung geben. Jedoch würden möglicherweise nicht beachtete Zerfallskanäle die experimentell gemessene und entsprechend korrigierte natürliche Lebensdauer im Vergleich zur „wahren“ Lebensdauer nur verlängern, während sich auf Seiten der Theorie die vorhergesagte Lebensdauer verkürzen würde, so dass dieser Umstand keine Erklärung für die Diskrepanz sein kann. Die bei EBITs und Speicherringen gegenüber den theoretischen Vorhersagen gleichermaßen festgestellte Tendenz zu längeren Lebensdauern deutet auf bisher in der Theorie nicht berücksichtigte, grundsätzliche Elemente bei der Berechnung von Lebensdauern hin. Es stellt sich die Frage, ob beispielsweise die Beiträge der QED, die sowohl in der Übergangsenergie als auch in der Übergangsamplitude berücksichtigt

werden, fälschlicherweise „doppelt“ in die Berechnung der Übergangsrate eingehen.

Die Tatsache, dass *ab initio* Berechnungen, die keine semi-empirischen Korrektur hinsichtlich der experimentellen Übergangsenergie beinhalten, meist keine zufrieden stellende Übereinstimmung mit experimentell gemessenen Lebensdauern aufweisen, zeigt die Schwierigkeiten, quantentheoretische Grundkonzepte zur Lösung von Vielkörperproblemen in Computer-Codes zu implementieren und dabei verlässliche Resultate zu erlangen.

Allerdings muss erwähnt werden, dass die Fehlerangabe in der Theorie grundsätzlich sehr schwierig ist. Gleichwohl würde sich die Nützlichkeit theoretischer Ergebnisse erhöhen, wenn die Theorie, wie im Fall von Ar XIV [91], in zukünftigen Berechnungen eine detaillierte Fehlerbetrachtung der einzelnen, zur Übergangsrate beitragenden Terme, angeben würde. Dennoch führt im vorliegenden Fall auch die Berücksichtigung der theoretischen Unsicherheiten nicht zur Auflösung der bestehenden Diskrepanz.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, Lebensdauermessungen metastabiler Zustände an hochgeladenen Ionen mit Hilfe einer EBIT durchzuführen, und die bisher in solchen Experimenten erreichte Präzision soweit wie möglich zu erhöhen, um sensitiv auf QED-Effekte zu werden und so eine neue Richtlinie für die Weiterentwicklung der Theorie verbotener Strahlungsübergänge zu ermöglichen. Vorhandene Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment sollten durch die genaueren Ergebnisse entweder aufgelöst bzw. bestätigt werden. Dieses Ziel ist durch die Messungen der mit Abstand genauesten Lebensdauern im Bereich hochgeladener Ionen auf beeindruckende Weise gelungen. Die Ergebnisse dieser Arbeit sind in [54, 191, 192] veröffentlicht.

Es wurden die natürlichen Lebensdauern des $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Zustands in borartigem Ar XIV und des $3s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Niveaus in aluminiumartigem Fe XIV zu $9.573(4)_{-5}^{+12}$ ms (stat)(syst) bzw. $16.726(10)(17+)$ ms (stat)(syst) bestimmt. Die relative Genauigkeit der Messungen von 0.14% bei Ar XIV und 0.13% Fe XIV übertreffen die vormals experimentell erreichten Präzision im Falle von Ar um mehr als eine Größenordnung und bei Fe um einen Faktor 6. Diese Präzision ist bis auf eine Messung ähnlicher Genauigkeit die Höchste, die je in der Atomphysik im Bereich der Lebensdauermessungen erreicht worden ist. Insbesondere sind die Resultate erstmalig sensitiv auf die Anomalie des magnetischen Moments des Elektrons (EAMM), dessen berechneter Beitrag zur Linienstärke eines $M1$ -Übergangs in niedrigster Ordnung 0.45% beträgt.

Die jeweilige Lebensdauer wurde aus den zeitlichen Verläufen der optischen Zerfallskurven abgeleitet, die aus dem magnetischen Dipolübergang ($M1$) des metastabilen Zustands in den Grundzustand bei zyklischem An- und Ausschalten des Elektronenstrahls der HD-EBIT (*magnetic trapping mode*) resultieren. Mögliche systematische Effekte wurden umfangreich untersucht, indem die Abhängigkeit der Zerfallszeit von verschiedenen Falleneinstellungen mit hoher statistischer Signifikanz gemessen wurde. Dabei wurde bei ansteigenden Fallenpotentialen ein asymptotischer Trend der Zerfallszeiten festgestellt, welcher ab einer bestimmten Fallentiefe einen, auf der ms-Zeitskala vernachlässigbaren Ionenverlust zu erkennen gibt. Diese Beobachtung ist in Übereinstimmungen mit theoretischen Modellen, die die Ionenverlustrate in elektrostatischen Fallen beschreibt. Diese und weiterführende Untersuchungen bezüglich des Ladungsaustauschs und der Totzeit des Daten-

aufnahmesystems erlaubten zusammen mit der hervorragenden Statistik und Detektionseffizienz der EBIT die außerordentlich hohe Genauigkeit der Messungen. Bei hohen Driftröhrenpotentialen wurde bei Ar XIV eine weitere, unerwartete langsame Zerfallskomponente im verlängerten Untergrundarm der Exponentialkurve festgestellt, die nach einer detaillierten Analyse der Zerfallskurven und unterstützt durch theoretische Betrachtungen auf niederenergetische Elektronen in der EBIT, die im gleichen räumlichen Volumen wie die Ionen gespeichert werden können, zurückgeführt wird. Es wurden zudem der Ursprung, die Dynamik und die Temperatur dieser *Penning-Elektronen* diskutiert und auch ihren möglichen Einfluss auf die natürliche Lebensdauer des entsprechenden Zustands untersucht. Für die Messungen an Fe XIV wurde ein neues Speicherschema angewandt. So wurde erstmalig nicht nur der Elektronenstrahl periodisch geschaltet, sondern auch die Falltiefe synchron mit dem Elektronenstrahl verändert. Dies führte zu einer deutlich gesteigerten Ionisations- und Fluoreszenzrate und war letztendlich entscheidend für die bei diesen Messungen erreichte hervorragende Statistik und Präzision.

Die Ergebnisse weisen in beiden Fällen eine Übereinstimmung mit den experimentellen Werten der LLNL-EBIT auf, finden jedoch keine Vereinbarkeit mit älteren Messungen, die an einer Kingdonfalle bzw. am Ionenspeicherring TSR vorgenommen wurden. Jene Resultate waren jedoch aufgrund größerer, notwendiger systematischer Korrekturen bedeutend weniger zuverlässig als die hier präsentierten.

Hinsichtlich theoretischer Vorhersagen wird eine abschließend nicht erklärbare Diskrepanz festgestellt. Der theoretische Trend hin zu kürzeren Lebensdauern, der sich bei Berücksichtigung des EAMM zur Übergangsamplitude des $M1$ -Übergangs ergibt, muss als bislang nicht verstanden angesehen werden. Eine ältere Arbeit mit ähnlicher Genauigkeit wird unter diesem neuen Gesichtspunkt ebenso als diskrepant reinterpretiert. Jedoch sollten die Erkenntnisse dieser Arbeit aufgrund der bislang unerreichten Präzision wesentlich bei der Weiterentwicklung der theoretischen Behandlung verbotener Strahlungsübergänge in Mehrelektronensystemen im Rahmen der QED und unter Berücksichtigung von interelektronischen Wechselwirkungen beitragen. In jedem Fall setzen die Messungen aus experimenteller Sicht neue Standards hinsichtlich der Untersuchung systematischer Effekte bei Lebensdauermessungen und dem Einfluss relativistischer, quantenelektrodynamischer und Elektronenkorrelations-Effekten auf die Lebensdauer eines atomaren Zustands.

Um zukünftig eine weitere Erhöhung der Präzision bei Lebensdauermessungen metastabiler Zustände in Übergängen des sichtbaren Wellenlängenspektrums hochgeladener Ionen zu erreichen, muss die Detektionseffizienz gesteigert werden. Der momentan detektierbare Raumwinkel von etwa 4×10^{-3} lässt sich durch die Kombination mehrerer Photomultiplikatoren, die an den diversen optischen Zugängen der HD-EBIT bzw. der seit letztem Jahr ebenso am MPI für Kernphysik operierenden FLASH-EBIT [193] angebracht werden können, deutlich erhöhen. Eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses sollte es insbesondere möglich machen, die Lebensdauer des $3s^2 3p^5 \ ^2P_{3/2}^o$ Niveaus in Fe X präzise zu bestimmen, dessen Übergang in den Grundzustand die astrophysikalisch relevante *rote Eisenlinie* darstellt, und bisher aufgrund von hohen Untergrundzählraten bedingt durch das Glühen der Kathode in einer EBIT nicht gemessen werden konnte. Weiterhin sollten, wie in Kapitel 3.1.3 ausgeführt, Optimierungsarbeiten bezüglich des Überlapps

des Laser mit der Ionenwolke bei gleichzeitiger Erhöhung der Detektionseffizienz die gezielte Anregung metastabiler Niveaus mittels des gepulsten Lasersystems und den anschließenden Nachweis laserinduzierter Fluoreszenz ermöglichen. Dies würde neben der sauberen Präparation des Anfangszustands bei Lebensdauer-messungen gleichzeitig das Fenster zu laserspektroskopischen Untersuchungen der Hyperfeinstrukturaufspaltung des Grundzustands wasserstoffartiger Ionen öffnen, deren Übergänge sich für einige Elemente, wie z.B. $^{165}\text{Ho}^{66+}$ oder $^{209}\text{Bi}^{82+}$ aufgrund der starken Z -Abhängigkeit in den optischen Bereich verschieben. Die Energien dieser Übergänge sind sensitiv bezüglich QED-Korrekturen höherer Ordnung, der Verteilung der Kernladung (Breit-Schawlow-Effekt) und speziell der Verteilung der Kernmagnetisierung (Born-Weisskopf-Effekt). Schließlich wird die jüngste Entwicklung neuer, ultra-brillanter Lichtquellen wie des Freie Elektronen Laser (*Free Electron Laser, FLASH*) und später des X-FEL am DESY in Hamburg es aufgrund der hohen Photonenflüsse im VUV-Bereich bis in den Röntgenbereich und Pulslängen von etwa 20 fs bis möglicherweise hin in den Attosekundenbereich erstmals möglich machen, mit Hilfe der EBIT Lebensdauer-messungen an hochgeladenden Ionen in einem bis dato unerreichbaren Zeit-Energie-Regime durchzuführen. Die hochpräzise Bestimmung von Lebensdauern angeregter Zustände entlang isoelektronischer Sequenzen verschiedener Elemente in diesem Bereich sollte zusammen mit der genauen Bestimmung von Übergangsenergien einen neuen Einblick und ein vertieftes Verständnis der Struktur von Atomen und Molekülen erlauben.

Literaturverzeichnis

- [1] E. Rutherford. Radioactivity produced in substances by the action of thorium compounds. *Phil.Mag.* **49**, 161 (1900).
- [2] E. Rutherford. Bakerian Lecture: The Succession of Changes in Radioactive Bodies. *Phil. Trans. Roy. Soc. London A* **204**, 204 (1904).
- [3] F. Soddy. Researches relating to Radium. *Nature* **69**, 297 (1904).
- [4] L. Dunoyer. *Le Radium* **10**, 400 (1913).
- [5] A. Einstein. Emission and absorption of radiation according to the quantum theory. *Verh. Dtsch. Phys. Ges.* **18**, 318 (1916).
- [6] A. Einstein. The quantum theory of radiation. *Phys. Z.* **18**, 121 (1917).
- [7] W. Wien. Measurements in the luminous duration („Leuchtdauer“) of atoms, and the damping of spectral lines. I. *Ann. d. Phys.* **60**, 597 (1919).
- [8] Minutes of the Chicago Meeting. *Phys. Rev.* **15**, 126 (1920).
- [9] A. J. Dempster. The Duration of the Process of Light Emission in Hydrogen. *Astrophys. J.* **57**, 193 (1923).
- [10] Minutes of the New York Meeting. *Phys. Rev.* **21**, 473 (1923).
- [11] H. W. Webb. The Metastable State in Mercury Vapor. *Phys. Rev.* **24**, 113 (1924).
- [12] M. Asterblum. Über die Dauer des Nachleuchtens des Quecksilberdampfes. *Z. Phys. A* **41**, 294 (1926).
- [13] K. W. Meissner. Absorption in angeregtem Neon. *Ann. d. Phys.* **76**, 124 (1925).
- [14] K. W. Meissner, W. Graffunder. Über die Messung der Lebensdauer angeregter Zustände. *Ann. d. Phys.* **84**, 124 (1928).
- [15] O. Stern, M. Volmer. Über die Abklingungszeit der Fluoreszenz. *Phys. Zeitschrift* **20**, 183 (1919).

- [16] R. Ladenburg. Die quantentheoretische Deutung der Zahl der Dispersionselektronen. *Z. Phys. A* **4**, 451 (1921).
- [17] R. Ladenburg, F. Reiche. Absorption, Zerstreuung und Dispersion in der Bohrschen Atomtheorie. *Naturwissenschaften* **11**, 584 (1923).
- [18] W. Schütz. Über die natürliche Breite der Neonlinien im sichtbaren Spektrum. *Ann. d. Phys.* **410**, 705 (1933).
- [19] J. J. Sakurai. *Advanced Quantum Mechanics* (Addison-Wesley Publishing Company, Inc, 1967).
- [20] J. R. Crespo López-Urrutia, P. Beiersdorfer, D. W. Savin, K. Widmann. Direct Observation of the Spontaneous Emission of the Hyperfine Transition $F = 4$ to $F = 3$ in Ground State Hydrogenlike $^{165}\text{Ho}^{66+}$ in an Electron Beam Ion Trap. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 826 (1996).
- [21] V. M. Shabaev. Two-time Green's function method in quantum electrodynamics of high-Z few-electron atoms. *Phys. Rep.* **356**, 119 (2002).
- [22] I. Draganić, *et al.*. High Precision Wavelength Measurements of QED-Sensitive Forbidden Transitions in Highly Charged Argon Ions. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 183001 (2003).
- [23] V. Kaufman, J. Sugar. Forbidden Lines in ns^2np^k Ground Configurations and $nsnp$ Excited Configurations of Beryllium through Molybdenum Atoms and Ions. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **15**, 321 (1986).
- [24] L. M. Hobbs. *ApJ* **284**, L47 (1984).
- [25] G. Wallerstein, E. W. Brugel. Observations of forbidden Fe VII and forbidden Fe X lines in the symbiotic star HM SGE during the interval of 1983-1985. *Astron. Astrophys.* **197**, 182 (1988).
- [26] D. E. Osterbrock. The spectrum of III ZW 77 - an unusual, high-ionization Seyfert 1 galaxy. *ApJ* **246**, 696 (1981).
- [27] B. E. Woodgate, H. Stockman, J. R. P. Angel, R. P. Kirshner. Detection of the [Fe XIV] Coronal Line at 5303 Å in the Cygnus Loop. *Astrophys. J.* **188**, L79 (1974).
- [28] J. P. Lynch, M. Kafatos. Forbidden lines of $np(q)$ ions. II - Line intensities **76**, 1169 (1991).
- [29] R. Marrus, *et al.*. Lifetime of the 2^3S_1 state of heliumlike xenon (Xe^{52+}). *Phys. Rev. A* **39**, 3725 (1989).
- [30] A. Simionovici, *et al.*. Cascade-free Doppler-tuned precision measurement of the lifetime of the 2^3S_1 state in He-like niobium ($^{93}\text{Nb}^{39+}$). *Phys. Rev. A* **49**, 3553 (1994).
- [31] S. Cheng, *et al.*. $M1$ decay of the 2^3S_1 state in heliumlike krypton. *Phys. Rev. A* **49**, 2347 (1994).

- [32] R. W. Dunford, *et al.*. Lifetime of the 2^3S_1 state of heliumlike $^{79}\text{Br}^{33+}$. *Phys. Rev. A* **41**, 4109 (1990).
- [33] G. Hubricht, E. Träbert. The $\text{Ar}^{16+} 2^3S_1$ lifetime from a measurement on recoil ions. *Z. Phys. D* **7**, 243 (1987).
- [34] J. R. Crespo López-Urrutia, P. Beiersdorfer, K. Widmann. Lifetime of the $1s2s^3S_1$ metastable level in He-like S^{14+} measured with an electron beam ion trap. *Phys. Rev. A* **74**, 012507 (2006).
- [35] G. S. Stefanelli, P. Beiersdorfer, V. Decaux, K. Widmann. Measurement of the radiative lifetime of the $1s2s^3S_1$ level in heliumlike magnesium. *Phys. Rev. A* **52**, 3651 (1995).
- [36] E. Träbert, *et al.*. Improved electron-beam ion-trap lifetime measurement of the $\text{Ne}^{8+} 1s2s^3S_1$ level. *Phys. Rev. A* **60**, 2034 (1999).
- [37] P. A. Neill, *et al.*. Improved Electron-Beam Ion-Trap Lifetime Measurement of the $1s2s^3S_1$ Level in N^{5+} and F^{7+} . *Physica Scripta* **62**, 141 (2000).
- [38] J. R. Crespo López-Urrutia, P. Beiersdorfer, D. W. Savin, K. Widmann. Precision measurement of the lifetime of the $1s2s^3S_1$ metastable level in heliumlike O^{6+} . *Phys. Rev. A* **58**, 238 (1998).
- [39] P. A. Neill, *et al.*. Improved Electron-Beam Ion-Trap Lifetime Measurement of the $1s2s^3S_1$ Level in N^{5+} and F^{7+} . *Physica Scripta* **62**, 141 (2000).
- [40] H. T. Schmid, *et al.*. High-Precision Measurement of the Magnetic-Dipole Decay Rate of Metastable Heliumlike Carbon Ions in a Storage Ring. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1616 (1994).
- [41] H. T. Schmidt. Ph.D. thesis. Aarhus (1994).
- [42] G. W. F. Drake. Theory of Relativistic Magnetic Dipole Transitions: Lifetime of the Metastable 2^3S State of the Heliumlike Ions. *Phys. Rev. A* **3**, 908 (1971).
- [43] R. D. Knight, M. H. Prior. Radiative lifetime of metastable 2^3S_1Li^+ . *Phys. Rev. A* **21**, 179 (1980).
- [44] G. Möller, E. Träbert, P. H. Heckmann, P. H. Mokler, A. E. Livingston. Quest for experimental M1 and E1-intercombination transition probabilities in few-electron Xe ions. *Z. Phys. D* **18**, 223 (1991).
- [45] E. Träbert, *et al.*. Lifetimes of $n = 2$ levels in foil-excited Kr^{32+} and Kr^{33+} ions. *Phys. Lett. A* **202**, 91 (1995).
- [46] R. Hutton, *et al.*. Intercombination Transitions in Beryllium-like and Boron-like Iron. *Physica Scripta* **55**, 431 (1997).

- [47] E. Träbert, E. Knystautas, G. Saathoff, A. Wolf. EUV intercombination transition rates in Be-like nitrogen and oxygen ions measured at a heavy-ion storage ring. *J. Phys. B* **38**, 2395 (2005).
- [48] E. Träbert, E. Knystautas, G. Saathoff, A. Wolf. EUV intercombination transition rates in Be-like nitrogen and oxygen ions measured at a heavy-ion storage ring. *J. Phys. B* **38**, 2395 (2005).
- [49] J. Doerfert, E. Träbert, A. Wolf, D. Schwalm, O. Uwira. Precision Measurement of the Electric Dipole Intercombination Rate in C^{2+} . *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4358 (1997).
- [50] E. Träbert, A. Wolf, J. Linkemann, X. Tordoir. Measurement of the B^+ and Al^+ intercombination and Sc^{12+} forbidden transition rates at a heavy-ion storage ring. *J. Phys. B* **32**, 537 (1999).
- [51] E. Träbert. Atomic Lifetime Measurements with Ion Traps of Many Sizes. *Physica Scripta* **61**, 257 (2000).
- [52] P. Beiersdorfer, E. Träbert, E. H. Pinnington. Experimental Transition Rate of the Green Coronal Line of Fe xiv. *Astrophys. J.* **587**, 836 (2003).
- [53] E. Träbert, P. Beiersdorfer, G. Gwinner, E. H. Pinnington, A. Wolf. M1 transition rate in Cl^{12+} from an electron-beam ion trap and heavy-ion storage ring. *Phys. Rev. A* **66**, 052507 (2002).
- [54] A. Lapierre, *et al.*. Relativistic Electron Correlation, Quantum Electrodynamics, and the Lifetime of the $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ Level in Boronlike Argon. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 183001 (2005).
- [55] D. P. Moehs, D. A. Church. Measured lifetimes of metastable levels of Mn X, Mn XI, Mn XII, and Mn XIII ions. *Phys. Rev. A* **59**, 1884 (1999).
- [56] I. Klaft, *et al.*. Precision Laser Spectroscopy of the Ground State Hyperfine Splitting of the Hydrogenlike $^{209}Bi^{82+}$. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2425 (1994).
- [57] P. Seelig, *et al.*. Ground State Hyperfine Splitting of Hydrogenlike $^{207}Pb^{81+}$ by Laser Excitation of a Bunched Ion Beam in the GSI Experimental Storage Ring. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4824 (1998).
- [58] P. Beiersdorfer, A. L. Osterheld, V. Decaux, K. Widmann. Observation of Lifetime-Limited X-Ray Linewidths in Cold Highly Charged Ions. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5353 (1996).
- [59] D. L. Moehring, *et al.*. Precision lifetime measurements of a single trapped ion with ultrafast laser pulses. *Phys. Rev. A* **73**, 023413 (2006).
- [60] M. Niering, *et al.*. Measurement of the Hydrogen $1S-2S$ Transition Frequency by Phase Coherent Comparison. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 5496 (2000).

- [61] E. Träbert, *et al.*. Experimental M1 Transition Rates of Coronal Lines from Ar X, Ar XIV, and Ar XV. *Astrophys. J.* **541**, 506 (2000).
- [62] E. Rutherford. The scattering of alpha and beta particles by matter and the structure of the atom. *Philosophical Magazine* **21** (1911).
- [63] N. Bohr. On the constitution of Atoms and Molecules. *Philosophical Magazine* **26**, 1 (1913).
- [64] N. Bohr. The spectra of helium and hydrogen. *Nature* **92**, 231 (1914).
- [65] A. Sommerfeld, A. Unsöld. Über das Spektrum des Wasserstoffes. *Zeitschrift f. Physik* **36**, 259 (1926).
- [66] E. Schrödinger. An undulatory theory of the mechanics of atoms and molecules. *Phys. Rev.* **28**, 1049 (1926).
- [67] P. A. M. Dirac. The quantum theory of the electron. *Proc. R. Soc. A* **117**, 610 (1928).
- [68] W. E. Lamb, R. C. Retherford. Fine Structure of the Hydrogen Atom by a Microwave Method. *Physical Review* **72**, 241 (1947).
- [69] M. Fischer, *et al.*. New Limits on the Drift of Fundamental Constants from Laboratory Measurements. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 230802 (2004).
- [70] C. Itzykson, J.-B. Zuber. *Quantum Field Theory* (McGraw-Hill Book Company, 1987).
- [71] L. L. Foldy. The Electromagnetic Properties of Dirac Particles. *Phys. Rev* **87**, 688 (1952).
- [72] B. H. Bransden, C. J. Joachain. *Quantum Mechanics* (Prentice Hall, Harlow, 2000). second edn.
- [73] P. A. M. Dirac. A Theory of Electrons and Positrons. *Proc. Roy. Soc.* **A126**, 360 (1930).
- [74] C. D. Anderson. The Positive Electron. *Phys. Rev. Lett.* **43**, 491 (1933).
- [75] I. Lindgren. QED Effects in Strong Nuclear Fields. *Physics Scripta* **T80**, 133 (1999).
- [76] H. A. Bethe. The Electromagnetic Shift of Energy Levels **72**, 339 (1947).
- [77] E. A. Uehling. Polarization Effects in the Positron Theory. *Phys. Rev.* **48**, 55 (1935).
- [78] E. H. Wichmann, N. M. Kroll. Vacuum Polarization in a Strong Coulomb Field. *Phys. Rev.* **101**, 843 (1956).
- [79] I. P. Grant, D. Mayers, N. Pyper. Studies in multiconfiguration Dirac-Fock theory I. The low-lying spectrum of Hf III. *J. Phys. B* **9**, 2777 (1976).
- [80] C. F. Fischer, H. P. Saha. Multiconfiguration Hartree-Fock results with Breit-Pauli corrections for forbidden transitions in the $2p^4$ configuration. *Phys. Rev. A* **28**, 3169 (1983).

-
- [81] W. R. Johnson, J. Saphirstein. Computation of Second-Order Many-Body Corrections in Relativistic Atomic Systems. *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1126 (1986).
- [82] P. J. Mohr. Quantum electrodynamics of high-Z few-electron atoms. *Phys. Rev. A* **32**, 1949 (1985).
- [83] H. A. Bethe, E. E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Systems* (Springer, Berlin, 1957).
- [84] G. E. Brown, D. E. Ravenhall. On the interaction of two electrons. *Proc. Roy. Soc. (London)* **A208**, 552 (1951).
- [85] H. F. Beyer, V. P. Shevelko. *Atomic Physics with Heavy Ions* (Springer (Berlin), 1999).
- [86] D. R. Hartree. Approximate wave functions and atomic field for mercury. *Phys. Rev.* **46**, 738 (1934).
- [87] J. C. Slater. The theory of complex spectra. *Phys. Rev.* **34**, 1293 (1929).
- [88] J. P. Desclaux. A multiconfiguration relativistic Dirac-Fock program. *Comput. Phys. Commun.* **21**, 207 (1975).
- [89] I. P. Grant, B. McKenzie, P. Norrington, D. Mayers, N. Pyper. An atomic multiconfigurational Dirac-Fock package. *Comput. Phys. Commun.* **21**, 207 (1980).
- [90] A. N. Artemyev, V. M. Shabaev, V. A. Yerokhin, G. Plunien, G. Soff. QED calculation of the $n = 1$ and $n = 2$ energy levels in He-like ions. *Phys. Rev. A* **71**, 062104 (2005).
- [91] I. I. Tupitsyn, *et al.*. Magnetic-dipole transition probabilities in B-like and Be-like ions. *Phys. Rev. A* **72**, 062503 (2005).
- [92] A. Messiah. *Quantum Mechanics Vol. II* (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1973).
- [93] I. I. Sobelman. *Atomic Spectra and Radiative Transitions* (Springer, New York, 1979).
- [94] E. U. Condon, G. H. Shortley. *The Theory of Atomic Spectra* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1964).
- [95] P. Kusch, H. M. Foley. The Magnetic Moment of the Electron. *Phys. Rev.* **74** (1948).
- [96] J. Schwinger. On Quantum-Electrodynamics and the Magnetic Moment of the Electron. *Phys. Rev.* **73**, 416 (1948).
- [97] R. S. Van Dyck Jr., P. B. Schwingberg, H. G. Dehmelt. New High-Precision Comparison of Electron and Positron g Factors. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 26 (1987).
- [98] V. W. Hughes, T. Kinoshita. Anomalous g values of the electron and muon. *Rev. Mod. Phys.* **71**, S133 (1999).

- [99] L. Kay. A Van de Graaff Beam as a Source of Atomic Emission Spectra. *Phys. Lett.* **5**, 36 (1963).
- [100] S. Bashkin. Optical spectroscopy with Van De Graaff accelerators. *Nucl. Instr. Methods* **28**, 88 (1964).
- [101] H. G. Berry, M. Hass. Beam-Foil Spectroscopy. *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* **32**, 1 (1982).
- [102] E. Träbert. Lifetime Measurements of Highly Charged Ions. *Physica Scripta* **T100**, 88 (2002).
- [103] H. Poth. Electron cooling: Theory, experiment, application. *Phys. Rep.* **196**, 135 (1990).
- [104] V. V. Parkhomchuk, A. N. Skrinsky. Electron cooling: physics and prospective applications. *Rep. Prog. Phys.* **54**, 919 (1991).
- [105] T. Andersen. Lifetimes of Negative Ions determined in a Storage Ring. *Phys. Scr.* **T59**, 230 (1995).
- [106] K. H. Kingdon. A Method for the Neutralization of Electron Space Charge by Positive Ionization at Very Low Gas Pressures. *Phys. Rev.* **21**, 408 (1923).
- [107] F. M. Penning. *Physica (Utrecht)* **3**, 873 (1936).
- [108] W. Paul, H. Steinwedel. A new Mass Spectrometer without a Magnetic Field. *Z. Naturforschung* **8a**, 448 (1953).
- [109] D. P. Moehs, D. A. Church, R. A. Phaneuf. Kingdon trap apparatus and technique for precise measurement of the lifetimes of metastable levels of ions. *Rev. Sci. Instr.* **69**, 1991 (1998).
- [110] P. Briand, R. Geller, B. Jacquot, C. Jacquot. Nouvelle Source D'ions Multicharges a Hautes Performances. *Nucl. Inst. & Meth* **131**, 407 (1975).
- [111] R. Geller. *Electron Cyclotron Resonance Ion Sources and ECR Plasmas* (Institute of Physics Publishing, Bristol, 1996).
- [112] D. P. Moehs, D. A. Church. Measured Level Lifetimes for the Coronal Transitions of Fe X and Fe XIV. *Astrophys. J.* **516**, L111 (1999).
- [113] S. J. Smith, A. Chutjian, J. A. Lozano. Measurement of metastable lifetimes for transitions in Fe^{9+} , Fe^{10+} , and Fe^{13+} . *Phys. Rev. A* **72**, 062504 (2005).
- [114] J. Lidberg, *et al.*. A technique for lifetime measurements of long-lived atomic states utilising laser excitation of stored ion beams. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **152**, 157 (1999).
- [115] D. V. O'Connor, D. Phillips. *Time-Correlated Single Photon Counting* (Academic Press, London, 1984).

-
- [116] S. Mennervik. Experimental Lifetime Studies of Metastable Levels. *Physica Scripta* **T105**, 67 (2003).
- [117] S. Mannervik. Studies of Metastable Levels in Singly Charged Ions by Laser Techniques in an Ion Storage Ring. *Physica Scripta* **T100**, 81 (2002).
- [118] S. Mannervik, *et al.*. Lifetime Measurement of the Metastable $4d^2D_{3/2}$ Level in Sr^+ by Optical Pumping of a Stored Ion Beam. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 698 (1999).
- [119] V. Letchumanan, M. A. Wilson, P. Gill, A. G. Sinclair. Lifetime measurement of the metastable $4d^2D_{5/2}$ state in $^{88}\text{Sr}^+$ using a single trapped ion. *Phys. Rev. A* **72**, 012509 (2005).
- [120] H. Dehmelt. *IEEE Trans. Instr. Meas.* **31**, 83 (1982).
- [121] J. D. Gillapsy. Highly Charged Ions. *J. Phys. B* **34** (2001).
- [122] R. H. Plumlee. Space Charge Neutralization in the Ionizing Beam of a Mass Spectrometer. *Rev. Sci. Instrum.* **28**, 830 (1957).
- [123] V. I. Donets, V. A. Alpert. Ultrahigh Vacuum Electron Beam Source of Highly Charged Stripped Ions. *Proceedings of the First International Conference on Ion Sources, Saclay, France* (1969).
- [124] R. E. Levine, J. Henderson, D. A. Knapp, M. B. Schneider. The electron beam ion trap: a new instrument for atomic physics measurements. *Physics Scripta* **T22**, 157 (1988).
- [125] S. R. Marrs, D. Knapp. Production and Trapping of Hydrogenlike and Bare Uranium Ions in an Electron Beam Ion Trap. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 4082 (1994).
- [126] J. R. Crespo López-Urrutia, A. Dorn, R. Moshhammer, J. Ullrich. The Freiburg Electron Beam Ion Trap/Source Project FreEBIT. *Phys. Scr.* **T 80**, 502 (1999).
- [127] G. Sikler, *et al.*. A high-current EBIT for charge-breeding of radionuclides for the TITAN spectrometer. *Eur. Phys. J. A* **25**, 63 (2005).
- [128] J. R. Pierce. *Theory and Design of Electron Beams* (D. Van Nostrand Company, New York, 1954).
- [129] V. Mironov, *et al.*. Test of a Laser Ion Source at the Heidelberg Electron Beam Ion Trap. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **205** (2003).
- [130] W. Lotz. Electron-Impact Ionisation Cross-Sections and Ionization Rate Coefficients for Atoms and Ions from Hydrogen to Calcium. *Z. Phys.* **216**, 241 (1968).
- [131] Y. F. Lui, K. Yao, R. Hutton, Y. Zou. Numerical simulations using an improved calculational scheme for ion charge state distribution and ion temperature evolution in an EBIT. *J. Phys. B* **38**, 3207 (2005).

- [132] A. J. González Martínez. Quantum interference in the dielectronic recombination of heavy highly charged ions. Ph.D. thesis. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2005).
- [133] Y. S. Kim, R. H. Pratt. Direct radiative recombination of electrons with atomic ions: Cross sections and rate coefficients. *Phys. Rev. A* **27**, 2913 (1983).
- [134] A. Müller, E. Salzborn. Scaling of Cross Sections for Multiple Electron Transfer to Highly Charged Ions Colliding with Atoms and Molecules. *Phys. Lett.* **62A**, 391 (1977).
- [135] A. Müller, C. Achenbach, E. Salzborn. Dependence of the Charge Transfer between Atoms and Highly Charged Ions on the Ionization Potential of Atoms. *Phys. Lett.* **70A**, 410 (1979).
- [136] N. Selberg, C. Biedermann, H. Cederquist. Semiempirical scaling laws for electron capture at low energies. *Phys. Rev. A* **54**, 4127 (1994).
- [137] L. Brillouin. A Theorem of Larmor and Its Importance for Electrons in Magnetic Fields. *Phys. Rev.* **67**, 260 (1945).
- [138] G. Herrmann. Optical Theory of Thermal Velocity Effects in Cylindrical Electron Beams. *J. Appl. Phys.* **29**, 127 (1958).
- [139] H. Kuramoto, T. Kinugawa, H. Watanabe, C. Yamada, S. Ohtani. Thomson scattering system at the Tokyo electron beam ion trap. *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 42 (2002).
- [140] J. D. Gillaspay. *Trapping Highly Charged Ions: Fundamentals and Applications* (Nova Science Publishers, New York, 2001).
- [141] R. Soria Orts. Isotope effect in B-like and Be-like argon ions. Ph.D. thesis. Johann Wolfgang Goethe-Universität. Frankfurt a. Main (2006).
- [142] K. Widmann. High resolution spectroscopic diagnostics of very high-temperature plasmas in the hard x-ray regime. Ph.D. thesis. Technische Universität Graz (1998).
- [143] A. J. González Martínez, *et al.*. Benchmarking high-field few-electron correlation and QED contributions in Hg^{75+} to Hg^{78+} ions. I. Experiment. *Phys. Rev. A* **73**, 052710 (2006).
- [144] F. Currel, ed.. *The Physics of Multiply and Highly Charged Ions*. vol. 1 (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Niederlande, 2003).
- [145] B. M. Penetrante, J. Bardsley, D. DeWitt, M. Clark, D. Schneider. Evolution of ion-charge-state distributions in an electron-beam ion trap. *Phys. Rev. A* **43**, 4861 (1991).
- [146] I. P. Shkarofsky, T. W. Johnston, M. P. Bachynski. *The Particle Kinematics of Plasmas* (Addison-Wesley, Reading, MA, 1966).
- [147] L. Spitzer. *Physics of Fully Ionised Gases* (Interscience, New York, 1956).
- [148] V. Pastukhov. Collisional losses of electrons from an adiabatic trap in a plasma with a positive potential. *Nucl. Fusion* **14**, 3 (1974).

- [149] E. D. Donets, V. P. Ovsyannikov. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **80**, 916 (1981).
- [150] P. Beiersdorfer, L. Schweikhard, J. R. Crespo López-Urrutia, K. Widmann. The magnetic trapping mode of an electron beam ion trap: New opportunities for highly charged ion research. *Rev. Sci. Instrum.* **67**, 3818 (1996).
- [151] P. Beiersdorfer, B. Beck, S. Becker, L. Schweikhard. FTICR analysis of the magnetic trapping mode of the electron beam ion trap. *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes* **157-158**, 149 (1996).
- [152] G. Brenner. Aufbau einer Apparatur zur Laserspektroskopie hochgeladener Ionen in einer EBIT. Master's thesis. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2003).
- [153] K. Koc. Multireference relativistic configuration interaction calculations for $2s^2 2p^2 P_{3/2} - 2P_{1/2}$ M1 and E2 transitions in boron isoelectronic sequence. *J. Phys. B* **36**, L93 (2003).
- [154] A. E. Siegman. *Lasers* (University Science Books, Sausalito, California, 1986).
- [155] *Physics Laboratory, Physical Reference Data, Atomic database of the National Institute of Standard and Technology* (<http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/index.html>).
- [156] F. F. Chen. *Introduction to Plasma Physics and Controlled Fusion* (Plenum Press, New York, 1984).
- [157] M. S. Safronova, W. R. Johnson, U. I. Safronova. Relativistic many-body calculations of energies of $n = 2$ states for boronlike ions. *Phys. Rev. A* **54**, 2850 (1996).
- [158] U. I. Safronova, W. R. Johnson, A. E. Livingston. Relativistic many-body calculations of electric-dipole transitions between $n = 2$ states in B-like ions. *Phys. Rev. A* **60**, 996 (1999).
- [159] M. A. Gearba, R. A. Komara, S. R. Lundeen, C. W. Fehrenbach, B. D. DePaola. Stark-induced x-ray emission from H-like and He-like Rydberg ions. *Phys. Rev. A* **71**, 013424 (2005).
- [160] H. A. Bethe, E. E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms* (Plenum, New York, 1977).
- [161] J. Fajans. Non-neutral plasma equilibria, trapping, separatrices, and separatrix crossing in magnetic mirrors. *Physics of Plasmas* **10**, 1209 (2003).
- [162] P. W. Miloni, J. H. Eberly. *Lasers* (Wiley, New York, 1988).
- [163] B. W. Shore, D. H. Wenzel. *Principles of Atomic Spectra* (John Wiley and Sons, New York, 1968).
- [164] T. V. Back, H. S. Margolis, P. K. Oxleya, J. D. Silver, E. G. Myers. Laser spectroscopy of the $1s^2 2s 2p^3 P_2 - 3P_1$ transition in beryllium-like argon using the Oxford EBIT. *Hyperfine Inter.* **114**, 203 (1998).

- [165] D. P. Moehs, D. A. Church. Magnetic dipole transition rates from measured lifetimes of levels of Be-like and B-like argon ions. *Phys. Rev. A* **58**, 1111 (1998).
- [166] F. G. Serpay, J. D. Gillaspay, E. Träbert. Lifetime measurements in the ground configuration of Ar^{13+} and Kr^{22+} using an electron beam ion trap. *J. Phys. B* **31**, 3345 (1998).
- [167] B. Warner. Transition Probabilities for np and np^5 Configurations. *Z. Astrophys.* **69**, 399 (1968).
- [168] C. F. Fischer. Multiconfiguration Hartree-Fock Breit-Pauli results for $^2P_{1/2}$ - $^2P_{3/2}$ transitions in the boron sequence. *J. Phys. B* **16**, 157 (1983).
- [169] M. E. Galavis, C. Mendoza, C. J. Zeippen. Radiative rates for transitions within the $n = 2$ complex in ions of the boron isoelectronic sequence. *Astron. Astrophys. Suppl. Ser.* **131**, 499 (1998).
- [170] K. T. Cheng, Y. K. Kim, J. P. Desclaux. Electric Dipole, Quadrupole, and Magnetic Dipole Transition Probabilities of Ions Isoelectric to the First-Row Atoms, Li through F. *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **24**, 111 (1979).
- [171] T. R. Verhey, B. P. Das, W. F. Perger. Multiconfiguration Dirac-Fock calculation of the forbidden $^2P_{1/2}$ - $^2P_{3/2}$ ground-state $M1$ transition in the boron isoelectronic sequence. *J. Phys. B* **20**, 3639 (1987).
- [172] E. Charro, S. López-Ferrero, I. Martín. Forbidden emission coefficients for intraconfiguration transitions $^2p_{3/2}$ - $^2p_{1/2}$ along the boron sequence. *J. Phys. B* **34** (2001).
- [173] A. V. Volotka. High-precision QED calculations of the hyperfine structure in hydrogen and transition rates in multicharged ions. Ph.D. thesis. Technische Universität Dresden (2006).
- [174] T. K. Krueger, S. J. Czyzak. Atomic Wave Functions, Collision Cross Sections, and Transition Probabilities of Fe Ions. *Mem. R. Astron. Soc.* **69**, 179 (1965).
- [175] B. Warner. Abundances of the Elements in the Solar Photosphere. IV. The Iron Group. *Z. Astrophys.* **69**, 399 (1968).
- [176] M. W. Smith, W. L. Wiese. Atomic Transition Probabilities for Forbidden Lines of the Fe Group Elements. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **2**, 85 (1973).
- [177] S. O. Kastner. Forbidden Transition Probabilities for Ground Terms of Ions with p or p^5 configurations. *Sol. Phys.* **46**, 179 (1976).
- [178] M. Kafatos, J. P. Lynch. Forbidden Lines of np^q Ions. I. Detailed Balance and Line Intensity Ratios. *Astrophys. J.* **42**, 611 (1980).
- [179] M. Eidelsberg, F. Crifo-Magnat, C. J. Zeippen. Forbidden Lines in Hot Astronomical Sources. *Astron. Astrophys.* **43**, 455 (1981).

- [180] C. Froese-Fischer, B. Liu. Energy levels, lifetimes, wavelengths, and transition probabilities of Fe XIV. *At. Data Nucl. Data Tables* **34**, 261 (1983).
- [181] K.-N. Huang. Energy-level scheme and transition probabilities of aluminum-like ions. *At. Data Nucl. Data Tables* **34**, 1 (1986).
- [182] E. Biémont, R. D. Cowan, J. E. Hansen. Transition probabilities for forbidden lines in the ground-state configuration of the bromine isoelectronic sequence. *Phys. Scr.* **37**, 850 (1988).
- [183] A. K. Bhatia, S. O. Kastner. Atomic data for a five-configuration model of Fe XIV. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **49** (1993).
- [184] J. R. Fuhr, G. A. Martin, W. L. Wiese. Atomic transition probabilities. Iron through Nickel. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **17**, 1 (1988).
- [185] D. P. Moehs, M. I. Bhatti, D. A. Church. Measurements and calculations of metastable level lifetimes in Fe X, Fe XI, Fe XII, Fe XIII, and Fe XIV. *Phys. Rev. A* **63**, 032515 (2001).
- [186] M. J. Vilkas, Y. Ishikawa. Relativistic multireference many-body perturbation-theory calculations on the multiple openshell states in siliconlike Ar and aluminumlike Fe ions. *Phys. Rev. A* **68**, 012503 (2003).
- [187] I. I. Tupitsyn, A. Volotka. private Kommunikation.
- [188] E. Träbert, *et al.*. M1/E2 transition rates in Fe X through Fe XIII measured at a heavy-ion storage ring. *J. Phys. B* **35**, 671 (2002).
- [189] E. Träbert. On the transition rates of the Fe X and Fe XIV coronal lines. *Astron. Astrophys.* **415**, L39 (2004).
- [190] E. Träbert, G. Saathoff, A. Wolf. M1/E2 decay rates in Co XI, Ni XII and Cu XIII measured at a heavy-ion storage ring. *J. Phys. B.* **37**, 945 (2004).
- [191] A. Lapierre, *et al.*. Lifetime measurement of the Ar XIV $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}^o$ metastable level at the Heidelberg electron-beam ion trap. *Phys. Rev. A* **73**, 052507 (2006).
- [192] G. Brenner, J. R. Crespo López-Urrutia, Z. Harman, P. H. Mokler, J. Ullrich. Lifetime determination of the Fe XIV $3s^2 3p^2 P_{3/2}^o$ metastable Level. *Phys. Rev. A* **75**, 032504 (2007).
- [193] S. W. Epp, *et al.*. Soft x-ray laser spectroscopy on trapped highly charged ions at FLASH. *Phys. Rev. Lett.* (in press) .