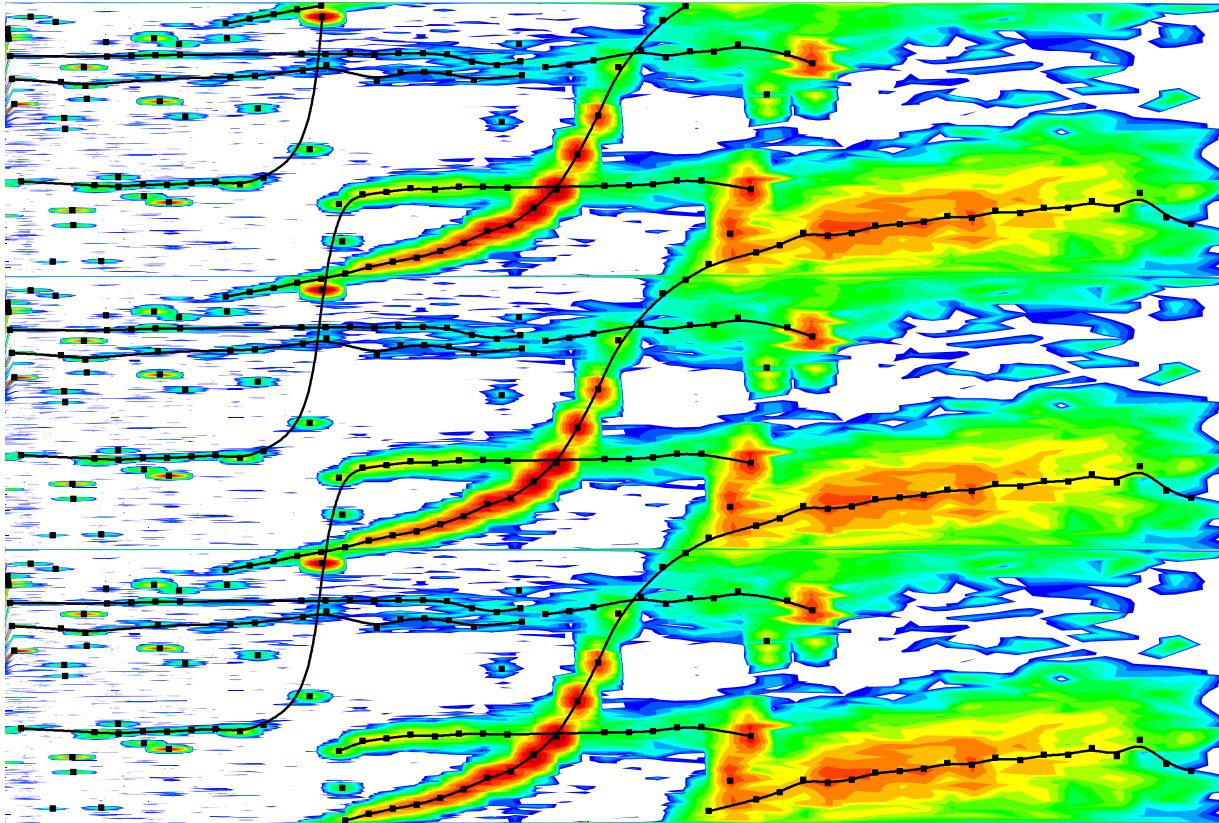




# Resonanzionisation und Rydbergspektroskopie an Dysprosium



Master of Education im Fach Physik

Patrick Dyrauf

Matrikelnummer: 2671413

Institut für Physik

Johannes Gutenberg-Universität Mainz

05.08.2015

Erstkorrektor: Prof. Dr. Klaus Wendt

Zweitkorrektor: Prof. Dr. Patrick Windpassinger



# Inhaltsverzeichnis

<b>I. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>II. Physikalische Grundlagen</b>	<b>5</b>
1. Grundlagen der Atomphysik . . . . .	7
1.1. Quantenmechanische Beschreibung des Wasserstoffatoms . . . . .	7
1.2. Rydbergatome . . . . .	9
1.2.1. Entwicklung des Quantendefektes im ungestörten Fall . . . . .	11
1.2.2. Entwicklung des Quantendefektes im gestörten Fall . . . . .	13
1.3. Resonanzionisation . . . . .	18
1.3.1. Nichtresonante Photoionisation . . . . .	19
1.3.2. Resonante Ionisation durch autoionisierende Zustände . . . . .	19
1.4. Atome und elektromagnetische Strahlung . . . . .	20
1.4.1. Übergangswahrscheinlichkeiten, Einsteinkoeffizienten und Auswahlregeln . . . . .	20
1.4.2. Natürliche Linienbreite . . . . .	22
1.4.3. Doppler-Verbreiterung . . . . .	22
2. Theoretische Grundlagen des Lasers . . . . .	23
<b>III. Experimenteller Aufbau</b>	<b>25</b>
3. Lasersystem . . . . .	27
4. Mainz Atomic Beam Unit . . . . .	30
5. Charakterisierung des Versuchsaufbaus . . . . .	32
5.1. Vorstellung und Vergleich der Anregungsschemata . . . . .	34
5.2. Massenspektrum von Dysprosium . . . . .	35
5.3. Leistungskontrolle und Sättigungsverhalten . . . . .	36



5.4.	Strahlprofil und Kontrolle der räumlichen Überlagerung . . . . .	38
5.5.	Zeitliche und spektrale Überlagerung der Laser . . . . .	40
<b>IV. Messungen und Auswertung</b>		<b>45</b>
6.	Spektren des zweiten Anregungsschrittes . . . . .	47
6.1.	Vom Spektrum zum $\delta$ - $n^*$ Plot . . . . .	51
6.2.	$\delta$ - $n^*$ Konturplot nach Rothe und Friedrich . . . . .	54
6.2.1.	Serien mit Konvergenz zum ersten Ionisationspotential .	56
6.2.2.	Serien mit Konvergenz zum ersten angeregten Zustand des Ions . . . . .	60
7.	Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials . . . . .	64
7.1.	Analyse der s-Serie (Serie 2) . . . . .	66
7.1.1.	Analyse nach Fano . . . . .	68
7.1.2.	Analyse nach Friedrich . . . . .	71
7.1.3.	Analyse ohne Störterme . . . . .	74
7.2.	Analyse der d-Serie (Serie 3) . . . . .	76
7.3.	Grenzen der Analyse am Beispiel von Serie 1 . . . . .	82
7.4.	Vergleich mit früheren Messungen . . . . .	87
8.	Bestimmung des Ionisationspotentials . . . . .	90
<b>V. Fazit und Ausblick</b>		<b>93</b>
<b>VI. Bibliographie</b>		<b>97</b>
<b>VII. Anhang</b>		<b>103</b>
9.	Tabellen . . . . .	105
9.1.	Tabellen von Schema A . . . . .	107
9.2.	Tabellen von Schema B . . . . .	109
9.3.	Tabellen von Schema C . . . . .	111
10.	Abbildungen . . . . .	114

# Kapitel I

## Einleitung



Das erste Ionisationspotential entspricht der Ionisierungsenergie des äußersten Valenzelektrons eines Atoms (oder Moleküls) und ist eine wichtige elementspezifische Größe des Periodensystems [1]. Eine der wissenschaftlichen Zielsetzungen der Arbeitsgruppe LARISSA ist die möglichst exakte Bestimmung dieser Größe für schwer zugängliche Elemente des Periodensystems. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit dem Element Dysprosium, welches zur Gruppe der Lanthanoide gehört. Gerade für die Gruppe der Lanthanoide sind im Bereich hochliegender atomarer Resonanzen in der Nähe des ersten Ionisationspotentials die optischen Anregungsspektren, aus denen u.a. atomphysikalisch relevante Größen gewonnen werden können, noch gar nicht, bzw. nur in Ansätzen erforscht. Primär ist dies durch deren komplexe, atomare Struktur begründet, welche sowohl die Messungen als auch insbesondere deren Auswertung und Interpretation erschwert.

Der Arbeitsgruppenname LARISSA ist ein Akronym für „Laser Resonance Ionization for Spectroscopy in Selective Applications“. Entsprechend wurde im Zuge dieser Arbeit das Verfahren der mehrstufigen Resonanzionisations-Massenspektrometrie zur elementselektiven Ionisation von Dysprosium genutzt und damit umfangreiches atomphysikalisches Datenmaterial generiert. Dies kann u.a. dazu verwendet werden, um ein tieferes Verständnis des besonders reichen Niveauschemas von Dysprosium und insbesondere zum Verlauf und Verhalten von Rydbergserien zu erlangen. Ein zentraler Bestandteil dieser Arbeit ist die Identifikation der Strukturen und die Zuordnung dieser Serien im Spektrum sowie deren Analyse. Dadurch wird es möglich den physikalisch wichtigen Wert des ersten Ionisationspotentials sehr exakt zu bestimmen. Zusätzlich sind solche atomphysikalische Daten wichtig für die Optimierung der resonanten Ionisationsprozesse und deren Effizienz.

Im Experiment wird ein hoch-repetierendes Titan-Saphir-Lasersystem an der Atomstrahlapparatur MABU verwendet, die ein kompaktes Quadrupol-Massenspektrometer zur Isotopenselektion enthält. Sowohl das Lasersystem als auch die Atomstrahlapparatur wurden beide in dieser Arbeitsgruppe in Mainz konstruiert und gebaut sowie stetig weiterentwickelt [2, 3, 4, 5]. Ein spezieller, weit abstimmbarer Gitter-Lasertyp mit reduzierter Linienbreite, der erst kürzlich neu charakterisiert und weiterentwickelt wurde [6], wird eingesetzt, um die Signifikanz früherer an Dysprosium erzielter Daten von 2009/2010 [7] zu erhöhen und einen möglichst großen Energiebereich unter-, wie auch oberhalb des ersten Ionisationspotentials abzudecken.

Im Auswertungskapitel dieser Arbeit werden unter anderem geeignete theoretische Ansätze vorgestellt und verglichen, die es ermöglichen, die komplexen Spektren der Lanthanoide zu behandeln. Dabei werden auch die Grenzen dieser Methoden aufgezeigt sowie auf mögliche Hindernisse hingewiesen, die beim Gebrauch dieser Methoden auftreten können.

# Kapitel II

## Physikalische Grundlagen



# 1. Grundlagen der Atomphysik

In diesem Kapitel werden Grundlagen der Atomphysik dargelegt, die essentiell für die nachfolgenden Teile der Arbeit sind. Hierbei wird bewusst versucht sich kurz zu fassen und lediglich die wichtigsten Punkte hervorzuheben. Für eine umfassende Beschreibung der Sachverhalte wird daher auf geeignete Literatur mit dem kanonischen Titel Atomphysik verwiesen [8, 9, 10].

## 1.1. Quantenmechanische Beschreibung des Wasserstoffatoms

Mit den Methoden der nichtrelativistischen Quantenmechanik kann das System des Wasserstoffatoms beschrieben werden. Dieses System besteht aus einem Elektron, welches sich im elektrischen Feld eines Protons befindet. Das zugehörige Potential ist ein Coulomb-Potential der Form

$$V_C(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}. \quad (1)$$

Zur Beschreibung wird die stationäre oder auch zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung

$$H\Psi(\vec{x}) = E\Psi(\vec{x}) \quad (2)$$

herangezogen, welche es zu lösen gilt, um Vorhersagen über stabile Lösungen machen zu können. Da das Coulomb-Potential nur vom Abstand zum Zentrum abhängt, spricht man in diesem Falle von einem Zentralpotential und es bietet sich eine Beschreibung in Schwerpunktskoordinaten mit Hilfe der reduzierten Masse

$$m_r = \frac{m_e m_p}{m_e + m_p} \quad (3)$$

an. Hierdurch ergibt sich der Vorteil, dass der Ursprung des Koordinatensystems in den Schwerpunkt des Systems verschoben wird. Des Weiteren ist das Coulomb-Potential radialsymmetrisch, sodass ein Ansatz in Kugelkoordinaten  $(r, \phi, \theta)$  anstelle von kartesischen Koordinaten  $(x_1, x_2, x_3)$  sinnvoll erscheint. Somit transformiert sich Gleichung (2) zu

$$\Delta\Psi(r, \phi, \theta) + \frac{2m_r}{\hbar^2} (E - V_C(r)) \Psi(r, \phi, \theta) = 0, \quad (4)$$



wobei diesmal der Hamilton Operator eingesetzt wurde. Durch Darstellung des Laplace Operators in Kugelkoordinaten lässt sich Gleichung (4) wie folgt darstellen:

$$\left[ \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial t} \left( r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin(\theta)^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{2m_r}{\hbar^2} (E - V_C(r)) \right] \Psi(r, \phi, \theta) = 0 \quad (5)$$

An dieser Stelle bietet sich ein Separationsansatz an, welcher eine praktische Zerlegung der Wellenfunktion  $\Psi$  bietet:

$$\Psi(r, \phi, \theta) = R(r)Y(\phi, \theta) \quad (6)$$

Es sei angemerkt, dass dies immer dann möglich ist, wenn das zugehörige Potential, wie in diesem Fall lediglich von  $r$  abhängt, was insbesondere beim Coulomb-Potential der Fall ist. Ersetzt man die Wellenfunktion  $\Psi$  in Gleichung (5) durch das Produkt in Gleichung (6) und multipliziert das Ergebnis mit  $\frac{r^2}{R(r)Y(\phi, \theta)}$ , so ergibt sich durch Umstellen der Terme eine Gleichung, deren linker Teil lediglich von  $r$  abhängig ist und der andere lediglich von  $\phi$  und  $\theta$ . Da beide Teile jedoch stets für alle Werte dieser drei Variablen erfüllt sein müssen, ist es erforderlich, dass beide Seiten der Gleichung dieselbe Konstante  $k$  ergeben, sodass die ursprüngliche Differentialgleichung in zwei einfachere separiert werden kann.

$$\frac{1}{R(r)} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{dR(r)}{dr} \right) + \frac{2m_r r^2}{\hbar^2} (E - V_C(r)) = k \quad (7)$$

$$\frac{1}{Y(\phi, \theta)} \left[ \frac{1}{\sin(\theta)} \frac{\partial}{\partial \theta} \left( \sin(\theta) \frac{\partial Y(\phi, \theta)}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2(\theta)} \frac{\partial^2 Y(\phi, \theta)}{\partial \phi^2} \right] = k \quad (8)$$

Da im Rahmen dieser Arbeit insbesondere die Energieniveaus von Bedeutung sind, ist, hierzu, lediglich Gleichung (7), welche nur von  $r$  abhängig ist, interessant. Um eine Behandlung dieser Gleichung in Analogie zum eindimensionalen Fall der Schrödinger-Gleichung zu ermöglichen, wird die Substitution  $R(r) = \frac{u(r)}{r}$  durchgeführt. Zusammen mit der Identität

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (ru'(r) - u(r)) = \frac{d^2 u(r)}{dr^2} \quad (9)$$

und mit Einsetzen des Coulomb-Potentials transformiert sich Gleichung (7) zu

$$\frac{d^2 u(r)}{dr^2} + \frac{2m_r}{\hbar^2} \left( E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{l(l+1)\hbar^2}{2m_r r^2} \right) u(r) = 0, \quad (10)$$

wobei  $k = l(l + 1)$  verwendet wird. Die zu dieser Gleichung zugehörigen Energie-Eigenwerte  $E_n$  haben die bekannte Form

$$E_n = -\frac{m_r e^4}{8\epsilon_0^2 h^2} \frac{1}{n^2} = -R/n^2, \quad (11)$$

mit  $R = \frac{R_\infty}{hc}$  der Rydbergenergie für das Wasserstoffatom.

Diese Beschreibung der Energie-Eigenwerte erweist sich im Hinblick auf die dazugehörige Herleitung als verblüffend einfach: Die Lagen der Energieniveaus sind alleine von der Hauptquantenzahl  $n$  abhängig und somit trivial berechenbar. Im Experiment werden allerdings die Energien von Zuständen aufgezeichnet, welche sich aus kombinierten Werten des ersten und zweiten Anregungsschrittes der beiden verwendeten Laser ergeben. Hierbei bietet es sich an den die Energie des Grundzustandes als Null zu definieren. Dazu wird die Energie der Kontinuumschwelle  $E_{IP}$  zu dem Coulomb-Potential aus Gleichung (1) hinzugefügt. Hierdurch ergeben sich nach identischer Argumentation folgende Energie-Eigenwerte

$$E_n = E_{IP} - \frac{R}{n^2}. \quad (12)$$

Bei der Beschreibung komplexerer atomarer Spektren als Wasserstoff verkompliziert sich die theoretische Beschreibung des Systems und die Bestimmung der Lagen der Energieniveaus. Die Lösung eines solchen N-Teilchenproblems ist dementsprechend lediglich näherungsweise, bzw. mit numerischen Methoden machbar und auch in diesem Rahmen noch derart aufwändig, dass bisher nur Berechnungen im Bereich tiefliegender Zustände möglich sind. Für hoch angeregte Zustände ist diese Problematik bis heute in vielen Bereichen noch nicht lösbar [9, S. 117]. Auch MCDF Methoden erreichen lediglich bei günstigen Bedingungen in schweren Elementen Genauigkeiten von einigen  $100 \text{ cm}^{-1}$  [11, 12]. Hier können die sogenannten Rydbergatome zumindest teilweise Abhilfe schaffen.

## 1.2. Rydbergatome

Befindet sich nur eines der Elektronen eines Atoms in einem hoch angeregten Zustand, so bewegt sich dieses auf einem Orbital, welches weit entfernt von denen der übrigen  $Z - 1$  Elektronen ist. Somit befindet sich dieses Elektron zumindest näherungsweise in

einem elektrischen Feldverlauf, der von einem Atomrumpf aus  $Z$  Protonen und  $Z - 1$  Elektronen erzeugt wird, also insgesamt eine Ladung von  $1 \times e$  aufweist. Dadurch ist es möglich, diese Fälle ähnlich zum hoch angeregten Wasserstoffatom zu beschreiben, solange das äußere Elektron weit genug vom Atomrumpf entfernt ist. Sie werden Rydbergatome genannt.

Rydbergatome haben sehr spezielle Eigenschaften. Eine der für diese Arbeit besonders praktischen Merkmale ist, dass diese Atome äußerst leicht zu ionisieren sind. Bereits schwache elektrische Felder, bzw. die thermische Energie des heißen Atomofens sind dazu bereits ausreichend. Zusätzlich sind diese Atome gegenüber radiativem Zerfall ziemlich langlebig, sodass deren Lebensdauer teilweise um Faktoren von  $10^8$  höher ist als die anderweitig z.B. mit Mehrelektronenanregung angeregten Zustände. Daher eignen sie sich gut, um über Ionisation detektiert zu werden. Die Folge von angeregten Zuständen dieser Art steigender Hauptquantenzahlen werden Rydbergserien genannt. Die Abstände der dabei benachbarten Energielagen einer Serie verringern sich etwa proportional zu  $n^{-3}$  [10, S. 122-124].

	Abhängigkeit von $n$	Na(10d)
Bindungsenergie	$n^{-2}$	0,14 eV
Übergangsenergie	$n^{-3}$	0,023 eV $\hat{=}$ 186 $\text{cm}^{-1}$
Orbitalradius	$n^2$	147 $a_0$
Lebensdauer	$n^3$	1,0 $\mu\text{s}$
Feinstrukturabstand	$n^{-3}$	0,003 $\text{cm}^{-1}$

Tabelle 1.: Eigenschaften von Rydbergatomen und deren Zusammenhänge mit der Hauptquantenzahl  $n$ . Die dritte Spalte zeigt Beispielwerte für Na(10d) [13].

Die Energieniveaus einer Serie konvergieren mit steigender Hauptquantenzahl zur Kontinuumsschwelle des Elementes. Somit ist es möglich, Zustände im Spektrum Serien zuzuordnen und diese Serien ins Unendliche d.h. bis  $n \rightarrow \infty$  fortzusetzen, um damit das Ionisationspotential für verschiedene Elemente zu bestimmen.

Die theoretische Beschreibung kann im Falle eines Rydbergatoms analog zu der in Kapitel 1 geführt werden. Hierbei wird angenommen, dass das Potential  $V(r)$ , wie beschrieben, in einem gewissen Abstand vom Rumpf einem Coulomb-Potential entspricht:

$$V(r) = V_C(r) + V_k(r), \text{ mit } \lim_{r \rightarrow \infty} r^2 V_k(r) = 0 \quad (13)$$

Um die Energie-Eigenwerte für solch ein Potential zu erhalten, muss lediglich die Hauptquantenzahl  $n$  durch die effektive Hauptquantenzahl

$$n^* = n - \delta(n) \quad (14)$$

ersetzt werden. Den Korrekturterm  $\delta(n)$  in Gleichung (14) nennt man Quantendefekt. Dieser ist bei großen Hauptquantenzahlen i.A. lediglich schwach von der Energie abhängig [9, S. 118]. Durch diese Korrektur erweitert sich Gleichung (12) zur sogenannten Rydberg-Formel

$$E_n = E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n^*)^2} = E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta(n))^2}, \quad (15)$$

wobei hierbei anstelle von  $R$  für Wasserstoff nun die massenreduzierte Rydbergkonstante  $R_\mu$  verwendet werden muss.

$$R_\mu = \frac{M}{m + M} \cdot R_\infty \quad (16)$$

mit der Rydbergkonstanten  $R_\infty = 109737,31568539(55) \text{ cm}^{-1}$ , sowie der Elektronenmasse  $m$  und Kernmasse  $M$ .

Der theoretisch korrekte Ansatz zur Beschreibung des Quantendefektes  $\delta(n)$  wäre eine exakte Definition des Korrekturterms „durch die asymptotischen Anpassung der regulären Lösung der radialen Schrödigergleichung an eine Linearkombination von Whittakerfunktionen“. In dieser Arbeit wird sich aber auf den in Friedrich ausgeführten in der Praxis eher üblichen Weg einer Approximation der Quantendefekte durch ein Polynom in der Energie  $E - E_{IP}$  beschränkt [9, S. 121].

### 1.2.1. Entwicklung des Quantendefektes im ungestörten Fall

Selbst wenn eine ungestörte Rydbergserie vorliegt, so reicht es oft nicht aus, anstelle von  $\delta(n)$  einen konstanten Quantendefekt  $\delta_0$  anzunehmen. Es gibt vielerlei Effekte, die ganz entscheidende Auswirkungen auf den Quantendefekt haben können. Zwei davon sollen in diesem Kapitel kurz vorgestellt werden.

Besonders wichtig sind Abschirmungseffekte des Coulombfeldes des Kerns durch die restlichen Elektronen [14, S. 4421]. Dass die Rydberg-Formel bei niedrigen Hauptquantenzahlen nicht mehr zutrifft, wurde bereits 1903 von Walter Ritz erkannt und im Rahmen seiner Dissertation wurden zwei Ansätze für den Quantendefekt vorgeschlagen [15,

S. 290]. Diese Gleichung wird daher auch Rydberg-Ritz-Formel genannt.

$$\delta(n) = \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta(n))^2} + \frac{\delta_2}{(n - \delta(n))^4} + \dots = \sum_{i=0}^{\infty} \frac{\delta_i}{(n - \delta(n))^{2^i}} \quad (17)$$

Hierbei wurde der Quantendefekt nicht mehr als konstant angesehen, sondern nach der Hauptquantenzahl  $n$  entwickelt. Aus Gründen der Einfachheit ist es oftmals üblich in der Entwicklung  $\delta(n) = \delta_0$  konstant zu wählen:

$$\delta(n) \approx \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^4} + \dots = \sum_{i=0}^{\infty} \frac{\delta_i}{(n - \delta_0)^{2^i}} \quad (18)$$

Dieses Vorgehen wird unter anderem von Drake und Swainson diskutiert [16, S. 5448]. Die Konsequenz solch einer Näherung ist in erster Linie, dass die aus dem Fit gewonnenen Parameter, ihren ursprünglichen theoretischen Bezug verlieren. Des Weiteren wird die Genauigkeit dieser Entwicklung durch diese Näherung limitiert [16, S. 5448]. Andererseits bestätigen die Autoren, dass die Näherung beim Fitten experimenteller Daten zu angemessenen Ergebnissen führt, was auch an der erfolgreichen Anwendung in zahlreichen Literaturstellen ersichtlich wird [7, 14, 17, 18, 19]. Entsprechend sind die theoretischen Parameter für Dysprosium aufgrund dessen komplexer Atomstruktur zumindest in näherer Zukunft wahrscheinlich eher nicht berechenbar.

In der angegebenen Literatur fällt auf, dass in der Praxis maximal Korrekturterme 2. Ordnung verwendet werden. Schmidt *et al.* beschreiben in ihrer Arbeit, dass die Hinzunahme höherer Terme die Koeffizienten bis zur zweiten Ordnung kaum verändern und zudem zu große Unsicherheiten aufweisen, weshalb es sinnvoller ist diese wegzulassen [17, S. 1643]. Um Verwirrung zu vermeiden sei noch angemerkt, dass bei Schmidt die erste Ordnung der zweiten Ordnung in dieser Arbeit entspricht. Lorenzen und Niemax verwenden in ihren Analysen von Rydbergserien höhere Ordnungen von Korrekturtermen. Zu diesen Arbeiten ist aber anzumerken, dass die Fehler dieser Terme bei höheren Ordnungen bis zu 2 Größenordnungen über dem eigentlichen Wert liegen können [20, S. 250].

Aus den vorgennannten Gründen wird in dieser Arbeit die Funktion

$$\delta(n) \approx \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} \quad (19)$$

verwendet. Es sei nochmals angemerkt, dass die Effekte eher bei niedrigen  $n$  eine Rolle spielen und vor allem der Parameter  $\delta_1$  besonders für die Wahl des Startpunktes der Serie von entscheidender Bedeutung ist. Um im Falle einer ungestörten Rydbergserie das Ionisationspotential zu bestimmen, wird Gleichung (19) in die Rydberg-Formel (15) eingesetzt, sodass man für die Energie der Zustände als Funktion der Hauptquantenzahlen erhält:

$$E_n = E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta(n))^2} \approx E_{IP} - \frac{R_\mu}{\left(n - \delta_0 - \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2}\right)^2} \quad (20)$$

Eine weitere Korrekturmöglichkeit berücksichtigt die sogenannte Stark-Verschiebung. Diese beschreibt Störungen der Rydbergatome aufgrund von elektrostatischen Feldern in der Messapparatur. Da die bei diesen Messungen verwendete Apparatur der MABU mit Feldstärken arbeitet, die nur maximal wenigen Volt pro Zentimeter entsprechen, wurde dieser Effekt in dieser Auswertung vernachlässigt und kein Korrekturterm für die Stark-Verschiebung verwendet. Für ein anwendungsbezogenes Beispiel wird auf die Arbeit von Schmidt, Bushaw und Wendt bezüglich Samarium verwiesen [17].

### 1.2.2. Entwicklung des Quantendefektes im gestörten Fall

Wie bereits erwähnt, sind aufgrund der komplexen Atomstruktur von Dysprosium die Mehrzahl der sichtbaren Rydbergserien gestört. Daher werden hier zusätzliche Korrekturfaktoren für den Quantendefekt benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei mögliche Beschreibungsansätze angewendet und miteinander verglichen.

#### **Methode 1:**

Im Anhang seiner Veröffentlichung führt Fano [21, S. 1876] aus, dass seine Resultate direkt auf die Beschreibung von Rydbergserien angewendet werden können. Hierbei wird die Interaktion mit einem einzelnen diskreten Zustand der Energie  $E_I$  und Kopplungsstärke  $|V(E)|^2$  durch folgende Substitution gewährleistet:

$$\delta(n) \rightarrow \delta(n) - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\pi |V(E)|^2}{E - E_I - F(E)} \right) \quad (21)$$

Zur weiteren Vereinfachung wird die Breite des Störers  $\Gamma(E)$ , anstelle der Kopplungsstärke verwendet [9, S. 35].

$$\Gamma(E) = 2\pi|V(E)|^2 \quad (22)$$

Des Weiteren wird diese Breite  $\Gamma(E) = \Gamma$  als konstant angenommen. Dies hat laut Fano zur Folge, dass der zusätzliche Term  $F(E)$  verschwindet [21, S. 1867].

$$\delta(n) \rightarrow \delta(n) - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma}{2 \cdot (E - E_I)} \right) \quad (23)$$

Zur Berechnung von  $E$  wird in diesem Fall eine Näherung nullter Ordnung von  $\delta(n)$  verwendet:

$$\delta(n) \rightarrow \delta(n) - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma}{2 \cdot \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n-\delta_0)^2} - E_I \right)} \right) \quad (24)$$

Formuliert man diese Substitution als Bestimmungsgleichung für den Quantendefekt  $\delta(n)$  und fügt die Korrektur der Abschirmungseffekte aus Gleichung (19) ein, so kann man eine gestörte Rydbergserie in einem  $\delta(n) - n$  Graphen durch eine Funktion der Gestalt

$$\delta(n) \approx \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma}{2 \cdot \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n-\delta_0)^2} - E_I \right)} \right) \quad (25)$$

beschreiben. Der Vorteil an dieser Darstellung ist, dass man überprüfen kann, wie gut diese Funktion die Messpunkte der Rydbergserie wirklich approximiert. Allerdings eignet sich diese Art der Darstellung nicht für eine Extraktion eines Wertes für das Ionisationspotential. Dies liegt daran, dass dieser zuvor bereits in die Datenpunkte beim Umrechnen der Energiewerte eingeflossen ist. Kleine Änderungen im Wert des Potentials ändern zwar wenig am Wert für  $n^*$  und reichen somit keinesfalls, um die Punkte um ein ganzes  $n$  zu verschieben, jedoch sind diese Änderungen in  $\delta(n)$  deutlich sichtbar. Aufgrund dessen wird zur Bestimmung von Werten für das Ionisationspotential eine Darstellung gewählt, in der die Energie  $E$  gegen die Hauptquantenzahl  $n$  aufgetragen wird. Damit die in Gl. (25) vorgestellte Fitfunktion in solch einer Darstellung angewendet werden kann, muss diese lediglich noch in die Rydberg Formel (siehe Gl. (15) ) eingesetzt werden:

$$E_n \approx E_{IP} - R_\mu \cdot \left[ n - \left( \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma}{2 \cdot \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n-\delta_0)^2} - E_I \right)} \right) \right) \right]^{-2} \quad (26)$$

Bei diesem Vorgehen verändert die Anwesenheit eines Störers die Quantendefekte nur lokal, wobei weit unter- und oberhalb des Störers sich diese und die Hauptquantenzahlen nicht ändern. Würde man den kleinen Bereich um den Störer weglassen, so verhielte sich solch eine Serie also „ganz normal“.

### Methode 2:

Friedrich führt aus [9, S. 145], dass sich ein Störer innerhalb einer Rydbergserie dadurch äußert, dass die Quantendefekte in der Nähe eines Störers zunehmen. Folglich liegen die effektiven Hauptquantenzahlen  $n^*$  in der Nähe des Störers dichter beieinander. Dies geschieht in solchem Maße, dass sich die Quantendefekte weit vor und nach dem Störer um genau 1 unterscheiden. Die oberhalb des Störers entstehende Verschiebung der Quantendefekte um 1 ändert hierbei nicht die Energien der Zustände, sondern laut Friedrich nur deren Nummerierung. Diese Konsequenz ist ganz einfach anhand der Beziehung  $n^* = n - \delta(n)$  nachzuvollziehen. Wird der Quantendefekt  $\delta(n)$  um 1 erhöht, ohne dass sich die Energie, welche in direkter Beziehung zur effektiven Hauptquantenzahl  $n^*$  über Gl. (15) steht, verändern soll, so muss auch die Hauptquantenzahl  $n$  um 1 erhöht werden. Somit kann man sich dies so vorstellen, als würde der Störer einen Platz in der Folge von Rydbergzuständen einnehmen, und dazu alle folgenden Zustände um eine Hauptquantenzahl weiter nach hinten schieben. Die später in Kapitel 6.2 verwendeten Darstellungen sind auch nach diesem Prinzip entstanden.

Will man nun eine Serie, die in dieser Interpretation dargestellt ist, analysieren, so muss man die Verschiebung der Quantendefekte um 1 berücksichtigen. Hierdurch ändert sich im Bereich unter dem Störer  $E < E_I$  nichts und die Funktion die diesen beschreibt bleibt die gleiche. Im Bereich oberhalb des Störers  $E \geq E_I$  erhöhen sich die Quantendefekte um genau 1.

$E < E_I$ :

$$\delta(n) \rightarrow \delta(n) - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma}{2 \cdot (E - E_I)} \right) \quad (27)$$

$E \geq E_I$ :

$$\delta(n) \rightarrow \delta(n) - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma}{2 \cdot (E - E_I)} \right) + 1 \quad (28)$$



Zu weiteren Vereinfachung benutzt man das Additionstheorem des Tangens um damit die Identität

$$\arctan(x) + \arctan\left(\frac{1}{x}\right) = \operatorname{sgn}(x) \frac{\pi}{2} \quad (29)$$

herzuleiten, wobei  $\operatorname{sgn}(x)$  die Signum Funktion bezeichnet, welche einem Argument sein Vorzeichen zuordnet:

$$\operatorname{sgn}(x) := \begin{cases} 1 & \text{falls } x > 0 \\ 0 & \text{falls } x = 0 \\ -1 & \text{falls } x < 0 \end{cases} \quad (30)$$

Zunächst wird diese Identität umgeformt, indem nach  $\arctan(x)$  aufgelöst und durch  $-\pi$  geteilt wird.

$$-\frac{1}{\pi} \arctan(x) = \frac{1}{\pi} \arctan\left(\frac{1}{x}\right) - \operatorname{sgn}(x) \frac{1}{2} \quad (31)$$

Setzt man nun  $x = \frac{\Gamma}{2(E-E_I)}$  und definiert  $\Gamma$ , welche ja die Breite des Störers ist als positiv, so ist  $x$  genau dann negativ, wenn  $E < E_I$  und entsprechend positiv, wenn  $E > E_I$ .

Durch Einsetzen von Gleichung (31) in die Substitutionen (27) und (28) lassen sich diese sehr elegant als eine einzige Substitution darstellen:

$$\delta(n) \rightarrow \delta(n) + \frac{1}{\pi} \arctan\left(2 \cdot \frac{E - E_I}{\Gamma}\right) + 0,5 \quad (32)$$

Wiederum kann diese in die Rydberg Formel (15) eingesetzt werden. Die zusätzlichen Terme für die Berücksichtigung der Abschirmungseffekte (vgl. Gl. (19) ) werden wie zuvor übernommen und zur Bestimmung von  $E$  wird auch hier wieder eine Näherung nullter Ordnung verwendet:

$$E_n \approx E_{IP} - R_\mu \left[ n - \left( \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{1}{\pi} \arctan\left(2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_I}{\Gamma}\right) + 0,5 \right) \right]^{-2} \quad (33)$$

Entsprechend lautet die Gleichung für eine Anpassung in einer  $\delta(n) - n$  Darstellung:

$$\delta(n) \approx \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{1}{\pi} \arctan\left(2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_I}{\Gamma}\right) + 0,5 \quad (34)$$

Abschließend soll ein kurzer Vergleich der beiden Methoden durchgeführt werden. Abbildung 1 zeigt beide Methoden angewendet auf den gleichen Datensatz im direkten Vergleich. Hierbei wurde die Darstellung in einem  $\delta(n) - n$  Graphen gewählt, da dadurch der Verlauf der Quantendefekte besser sichtbar wird. Wie zu erkennen ist, sind die beiden Methoden unterhalb der Position des Störers bei  $n = 29$  absolut identisch. Oberhalb des Störers sind die Hauptquantenzahlen und Quantendefekte in der Formulierung nach Friedrich um genau 1 erhöht.

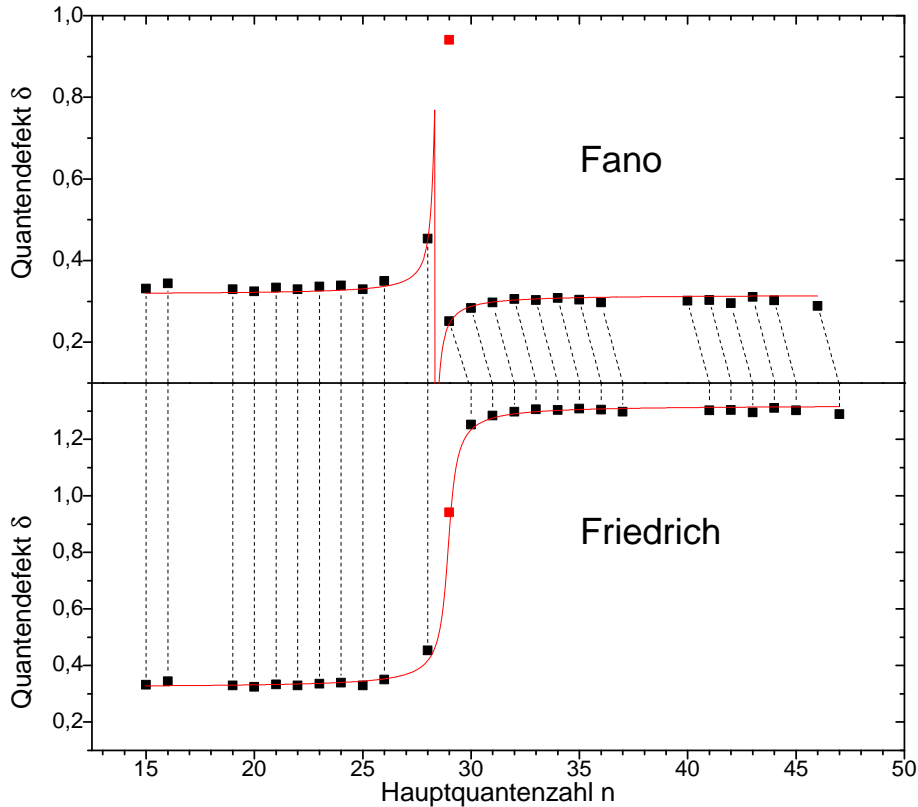


Abbildung 1.: Im obigen Teilgraph sind die Quantendefekte gegen die Hauptquantenzahlen in der theoretischen Beschreibung nach Fano aufgetragen. Der gleiche Datensatz wurde im unteren Teilgraph in der theoretischen Beschreibung nach Friedrich dargestellt. Der rot markierte Datenpunkt ist der Störer. Die jeweiligen Datenpunkte wurden mit den entsprechenden Fitfunktionen nach Gleichungen (25), bzw. Gleichung (34) angepasst, deren Verlauf durch die roten Kurven symbolisiert wird.

Wie zu erkennen ist, liegt der Störer in der Formulierung nach Fano weit von den übrigen Punkten der Serie entfernt, während dieser bei Friedrichs Ansatz seinen Platz innerhalb der Serie erhält. Für eine ausführliche theoretische Herleitung dieser Sachverhalte sei

an dieser Stelle nochmals auf das Lehrbuch von Friedrich, sowie die Arbeiten von Fano verwiesen [9, 21]. Des Weiteren sei angemerkt, dass das hier verwendete theoretische Modell von Fano in der mittlerweile gebräuchlichen Beschreibung im Rahmen der QDT von Seaton seine Gültigkeit behält [9, 22].

### 1.3. Resonanzionisation

Die Methode der Resonanzionisation bietet die Möglichkeit durch stufenweise Anregung erlaubter Dipolübergänge Atome elementselektiv anzuregen und zu ionisieren. Die Elementselektivität wird dadurch erreicht, dass jedes Element ein einzigartiges Termschema an möglichen Energiezuständen aufweist. Werden für die Anregung Laser verwendet, die schmalbandig genug sind und wird die in Kapitel 1.4.3 vorgestellte Dopplerverbreiterung vermieden, so ist sogar unter Ausnutzung von Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur der optischen Übergänge eine Isotopenselektion möglich.

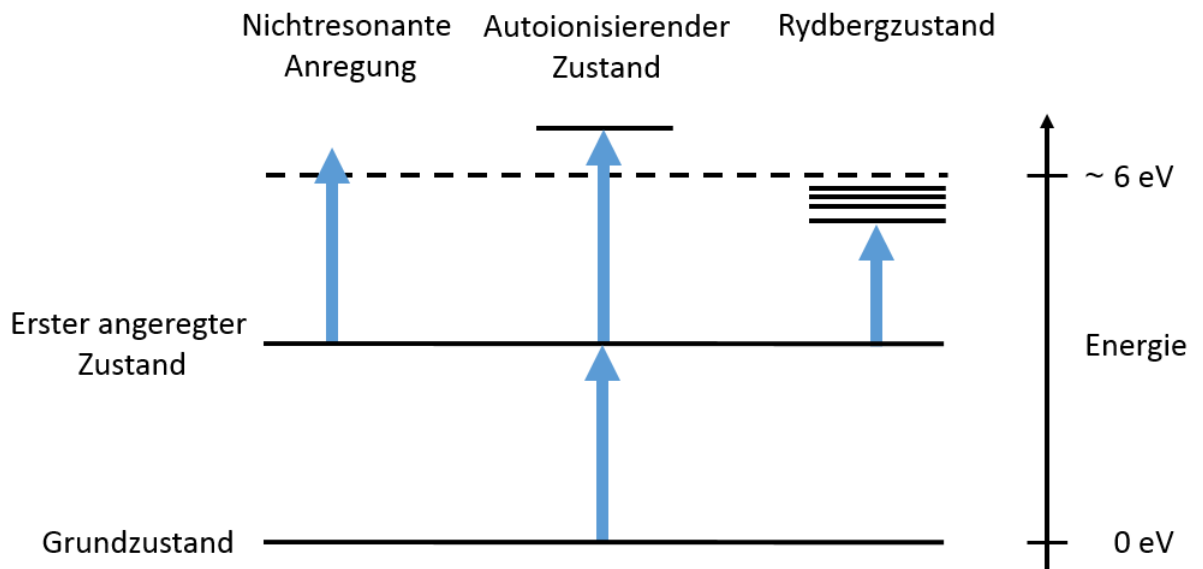


Abbildung 2.: Typisches zweistufiges Anregungsschema der Resonanzionisation. Das Atom wird zunächst mit einem Laser im ersten Anregungsschritt angeregt. Nachfolgend wird das Atom mit einem zweiten Laser ionisiert. Dargestellt sind drei mögliche Ionisationskanäle: nichtresonante Photoionisation, resonante Ionisation über einen autoionisierenden Zustand und Anregung in einen Rydbergzustand mit nachfolgender Ionisation durch ein elektrisches Feld  $\vec{E}$ , Stoßprozessen oder Schwarzkörperstrahlung.

Im Falle des experimentellen Aufbaus dieser Arbeit wurde die Elementselektivität kombiniert mit der Massenselektion in einem Quadrupol-Massenfilter. Somit wird eine Isotopenselektion möglich gemacht, obwohl die Linienbreite der gepulsten Laser 3-8 GHz betrug. Die Effizienz dieser Form der Anregung ist stark abhängig von der Wahl des Anregungsschemas, i.A. speziell des finalen Ionisationsschrittes und der zur Verfügung stehenden Laserleistung. Deren Einfluss ist insbesondere im letzten Anregungsschritt groß. Ein typisches zweistufiges Anregungsschema ist in Abbildung 2 zu sehen, wobei drei unterschiedliche Möglichkeiten das Atom zu ionisieren eingetragen sind. Diese Prozesse werden nachfolgend einzeln diskutiert [8].

### 1.3.1. Nichtresonante Photoionisation

Damit das Atom bei dieser Art der Ionisation ionisiert werden kann, muss die Energie  $E = h\nu$  des absorbierten Photons größer sein als die Bindungsenergie des Elektrons im aktuell vorliegenden Anregungszustand. Da das Elektron nach der Ionisation nicht mehr gebunden ist, also ein kontinuierliches Energiespektrum besitzt, kann folglich auch jede beliebige Energie  $E_{kin} = h\nu - E_B$  übertragen werden und es gelten keine weiteren Auswahlregeln. Daher wird dieser Prozess nicht resonante Ionisation genannt.

### 1.3.2. Resonante Ionisation durch autoionisierende Zustände

Bei diesem Prozess werden zwei oder mehr Elektronen eines Atoms angeregt. Die gesamte Anregungsenergie eines solchen Atoms ist dann die Energie der Einzelanregungen der beteiligten Elektronen, sowie deren Wechselwirkungsenergie. Für eine Konstellation ist es möglich, dass über die Coulombwechselwirkung die Anregungsenergie der Elektronen komplett auf ein einziges Elektron übertragen wird, sodass dieses weiter angeregt wird und die übrigen zurück in den Grundzustand fallen. Im Bereich der gebundenen Zustände unterhalb des Ionisationspotentials ist solch ein Prozess allerdings sehr unwahrscheinlich, da hierzu aufgrund der Energieerhaltung ein angeregter Zustand mit der passenden Energie existieren muss. Dies ist der Grund dafür, dass dieser Prozess i.A. nur zur Anregung auf Energien oberhalb des Ionisationspotentials stattfindet und Autoionisation genannt wird.

## 1.4. Atome und elektromagnetische Strahlung

Betrachtet man ein Atom, welches sich in einem Zustand  $E_i$  befindet, so kann dieses im Allgemeinen durch Absorption eines geeigneten Photons der Energie  $h\nu$  in den Zustand  $E_k$  wechseln. Laut Energieerhaltung muss dabei

$$E_k - E_i = h\nu \quad (35)$$

erfüllt sein. Betrachtet man jedoch die Spektren solcher Prozesse, wie z.B. die im Rahmen dieser Arbeit aufgezeichneten in Abbildung 15, so fällt auf, dass zwei Punkte den Erwartungen solch einer Beschreibung nicht gerecht werden. Die Linien der Resonanzen sind diskrete Spektrallinien, die aber einer Verteilung um einen gewissen Mittelwert unterliegen. Des Weiteren sind die Intensitäten der auftretenden Resonanzen nicht alle gleich stark, was sich dadurch erklären lässt, dass die unterschiedlichen Übergänge verschiedene Wahrscheinlichkeiten besitzen [8, S. 219]. In den nachfolgenden Teilen sollen diese beiden Phänomene genauer beleuchtet werden.

### 1.4.1. Übergangswahrscheinlichkeiten, Einsteinkoeffizienten und Auswahlregeln

Zunächst ist es sinnvoll die Prozesse der Absorption und Emission in drei Kategorien zu klassifizieren:

- **stimulierte Emission**

In diesem Fall befindet sich ein Atom in einem Strahlungsfeld in einem angeregten Zustand  $E_k$  und wechselt aufgrund des Einflusses des Strahlungsfeldes in einen tieferliegenden Zustand  $E_i$ , wobei hierbei ein Photon mit der laut Gleichung (35) passenden Energie emittiert wird. Die Wahrscheinlichkeit für solch einen Prozess lässt sich mit  $W_{ki} = B_{ki} \cdot w_\nu(\nu)$  angeben, wobei  $w_\nu(\nu) = n(\nu) \cdot h \cdot \nu$  die spektrale Energiedichte des Strahlungsfeldes beschreibt mit der Photonenzahl  $n(\nu)$ .

- **spontane Emission**

Im Gegensatz zum obigen Fall wechselt hierbei das angeregte Atom vom Ausgangszustand  $E_k$  ohne den Einfluss eines Strahlungsfeldes in einen tieferliegenden Zustand  $E_i$ . Die Wahrscheinlichkeit hierfür wird mit  $W_{ki} = A_{ki}$  angegeben.

- **Absorption**

Bei diesem Prozess befindet sich das Atom in einem Zustand  $E_i$  in einem Strahlungsfeld. Durch Absorption eines Photons des Strahlungsfeldes wechselt das Atom

in den angeregten Zustand  $E_k$ . Die Wahrscheinlichkeit hierfür berechnet sich durch  $W_{ik} = B_{ik} \cdot w_\nu(\nu)$ .

Die in allen drei Fällen zur Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten auftretenden Koeffizienten  $A_{ki}$ ,  $B_{ik}$  und  $B_{ki}$  werden Einsteinkoeffizienten genannt. Unter der Annahme gleicher Absorptions- und Emissionsraten, welche die Verwendung der Boltzmann-Verteilung im thermischen Gleichgewicht rechtfertigen, sowie der Planck-Formel zur Beschreibung des Strahlungsfeldes und der quantenmechanischen Beschreibung eines Hertzchen Dipoles durch den Erwartungswert des Übergangsdipolmomentes  $M_{ki}$  ist es möglich die Einsteinkoeffizienten zu berechnen. Für eine ausführliche Herleitung wird z.B. auf [8, S. 220] verwiesen.

$$A_{ki} = \frac{2 e^2 w_{ki}^3}{3 \epsilon_0 c^3 h} \cdot |M_{ki}|^2 = \frac{2 e^2 w_{ki}^3}{3 \epsilon_0 c^3 h} \cdot \left| \int \psi_k^* r \psi_i d\tau \right|^2 \quad (36)$$

$$B_{ki} = \frac{c^3}{8\pi h \nu^3} A_{ki} \quad (37)$$

$$B_{ik} = \frac{g_k}{g_i} B_{ki} \quad (38)$$

Hierbei bezeichnet  $g = 2J + 1$  die Zahl der energetisch entarteten Unterniveaus des jeweiligen Zustandes und  $w_{ki}$  die abgestrahlte Frequenz.

Damit ein Übergang möglich ist, muss nun einerseits der Energieerhaltungssatz gewährleistet sein und die entsprechenden Einsteinkoeffizienten einen von Null verschiedenen Wert annehmen. Dazu lassen sich bestimmte sogenannte Auswahlregeln aus dem Erwartungswert des Übergangsdipolmomentes  $M_{ki}$  herleiten, welche in Tabelle 2 kurz zusammengefasst werden.

Auswahlregel	Anmerkung
$\Delta l = \pm 1$	für Eielektronensysteme
$\Delta L = \pm 1$	für Mehrelektronensysteme (L-S-Kopplung)
$\Delta M = 0, \pm 1$	0 bei linear polarisiertem Licht
$\Delta S = 0$	wobei es bei schweren Atomen Ausnahmen gibt
$\Delta J = 0, \pm 1$	mit $J = 0 \rightarrow J = 0$ verboten

Tabelle 2.: Übersicht der Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge nach [8, S. 228].

### 1.4.2. Natürliche Linienbreite

Diese Form der Verbreiterung von Spektrallinien wurde so genannt, da sie ohne äußere Einflüsse allein durch die Abstrahldauer des Atoms hervorgerufen wird [8, S. 233]. Um die natürliche Linienbreite herzuleiten, wird sich i.A. der Heisenbergschen Unschärferelation oder dem Modell des gedämpften harmonischen Oszillators bedient. Hierbei spielt die Lebensdauer eines Atomzustandes  $\tau_i = \frac{1}{A_i}$  mit  $A_i$  dem Einsteinkoeffizienten der spontanen Emission in den Grundzustand eine zentrale Rolle. Diese führt im ersten Ansatz zu einer Energieunschärfe  $\Delta E = \frac{\hbar}{\tau_i}$ , bzw. beschreibt im Modell des Oszillators die Dämpfung  $\gamma = \frac{1}{\tau}$ . Das Linienprofil der Spektrallinien lässt sich somit durch ein Lorentzprofil der Form

$$I(w) = I_0 \frac{\gamma}{2\pi \left[ (w - w_0)^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2 \right]} \quad (39)$$

beschreiben, wobei  $I_0$  die maximale Intensität beschreibt und  $w_0$  die Mitte der Verteilung. Die natürliche Linienbreite wird als die volle Halbwertsbreite dieser Verteilung definiert und entspricht  $\gamma = \frac{1}{\tau}$ . Tragen zu einem Übergang zwei angeregte Zustände  $E_i$  und  $E_k$  bei, so addieren sich die Unschärfen beider Niveaus

$$\Delta E_{ik} = \Delta E_i + \Delta E_k = \frac{\hbar}{\tau_i} + \frac{\hbar}{\tau_k} = \frac{\hbar}{\tau_{ik}}. \quad (40)$$

### 1.4.3. Doppler-Verbreiterung

Für einen ruhenden Beobachter verändert sich aufgrund des Doppler-Effektes sowohl die absorbierte als auch emittierte Frequenz eines bewegten Atoms. Beide Frequenzen verschieben sich um den Betrag  $k \cdot v$ , wobei  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  und  $v$  die Geschwindigkeit des Atoms ist. Nimmt man an, dass sich die Atome im thermischen Gleichgewicht befinden und somit deren Geschwindigkeiten nach Maxwell verteilt sind, so ergibt sich die Intensitätsverteilung

$$I(w) = I_0 \cdot e^{-\left( c \frac{w - w_0}{w_0 \cdot v_W} \right)^2}. \quad (41)$$

Hierbei ist  $v_W = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}$  die aus der Maxwellverteilung wahrscheinlichste Geschwindigkeit und  $k_B$  die Boltzmannkonstante. Dieses Intensitätsprofil stellt sich als Gaußprofil heraus. Auch hier wird wieder die volle Halbwertsbreite  $2\sqrt{\ln(2)} \frac{w_0 v_W}{c}$  als Dopplerbreite bezeichnet. Unter typischen experimentellen Bedingungen überdeckt die Dopplerbreite völlig die natürliche Linienbreite [8, S. 236], sodass anstatt eines Voigt-Profiles in guter Näherung ein Gaußprofil zur Auswertung der Spektren verwendet werden kann.

## 2. Theoretische Grundlagen des Lasers

Für den Einsatz in der Spektroskopie sowie in vielen weiteren Bereichen der Wissenschaft und Technik sind Laser mittlerweile unabdingbar. Seit der Realisierung des ersten Lasers 1960 durch Maiman wurden zahlreiche verschiedene Varianten entwickelt, die allesamt elektromagnetische Strahlung produzieren, welche die für das jeweilige Anwendungsgebiet erforderliche Eigenschaften aufweisen. Gerade im Bereich der Spektroskopie werden kohärente Lichtquellen benötigt, die hohe Leistungsdichten und eine geringe Strahlaufweitung, aufweisen, sowie monochromatisch sind.

Wie das Akronym Laser schon andeutet, ist der Begriff Verstärkung durch stimulierte Emission zentraler Bestandteil der Funktionsweise eines Lasers. Das Prinzip ist dabei recht einfach: Befinden sich in einem Medium mehr Atome in einem energetisch höheren als im niedrigeren Zustand, so wird ein durch dieses Medium geführtes Strahlungsfeld stärker durch die stimulierte Emission verstärkt als es von der Absorption geschwächt wird. Um diesen Zustand, der Besetzungsinversion genannt wird, zu erzeugen und aufrecht zu erhalten, wird eine Energiepumpe benötigt. Ein Medium in dem eine Besetzungsinversion vorliegt, wird aktives Medium genannt. Als dritte und letzte Komponente fehlt noch ein optischer Resonator, welcher dafür sorgt, dass die Strahlung das aktive Medium mehrfach durchläuft, bzw. darin oszilliert, um eine größere Verstärkung durch induzierte Emission zu erreichen.

Die sogenannte Schwellenwertbedingung

$$\Delta N = N_i \frac{g_k}{g_i} - N_k \geq \Delta N_{Schw} = \frac{\gamma(\nu)}{2\sigma(\nu)L} \quad (42)$$

beschreibt, wie groß die Energiezufuhr der Pumpe sein muss, damit bei jedem Umlauf im Resonator eine Verstärkung durch stimulierte Emission stattfindet, die die Verluste übersteigt. Diese Verluste werden durch Absorption, durch reale Spiegel des Laserresonators, die nicht 100% reflektieren, Beugungsverluste und Inhomogenitäten im Lasermedium hervorgerufen und sind im Faktor  $\gamma(\nu)$  zusammengefasst.  $L$  beschreibt die Weglänge durch das aktive Medium,  $\sigma(\nu)$  den Absorptionsquerschnitt,  $N_i$  und  $N_k$  die Besetzungsdichten der an der Absorption beteiligten Niveaus, sowie  $g_i$  und  $g_k$  deren statistische Gewichte. Anhand dieser Schwellengleichung erkennt man, dass es sich neben der Minimierung der Verluste  $\gamma(\nu)$  lohnt, geeignete Übergänge im Medium zu wählen deren Absorptionsquerschnitt  $\sigma(\nu)$  möglichst groß ist, sowie die Durchlaufstrecke  $L$  durch das



Medium zu maximieren.

Gleichung (42) kann über das Beersche Absorptionsgesetz mit dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\nu) = \left( N_k - \frac{g_k}{g_i} N_i \right) \sigma(\nu)$  hergeleitet werden. Für den Fall einer Inversion im aktiven Medium, also für  $N_i > \frac{g_i}{g_k} N_k$  wird  $\alpha(\nu)$  negativ und es findet pro Resonatorumlauf eine Verstärkung von  $e^{-(2\alpha(\nu)L + \gamma(\nu))}$  statt.

Damit sich in einem Resonator eine stehende Welle ausbilden kann, muss hierzu die Gleichung

$$d = n \frac{\lambda}{2} \tag{43}$$

erfüllt sein, wobei  $d$  die Länge des Resonators bezeichnet und  $n$  eine beliebige, natürliche Zahl darstellt.

# Kapitel III

## Experimenteller Aufbau



In diesem Kapitel wird zunächst das Lasersystem, sowie der gesamte Versuchsaufbau vorgestellt und einige Punkte hervorgehoben, welche entscheidend für die Messungen und für die weitere Auswertung sind.

### 3. Lasersystem

Da in der Spektroskopie in der Regel die verschiedensten Elemente und Moleküle untersucht werden, sind hierfür Laser von Vorteil, die einen großen Bereich an einstellbaren Wellenlängen abdecken. Das in Mainz konstruierte und weiterentwickelte Titan:Saphir-Lasersystem erfüllt diese Anforderungen. Wie anhand Abbildung 4 zu erkennen ist können durch Wahl unterschiedlicher Resonatorspiegel Wellenlängen im Bereich von 690 - 960 nm erzeugt werden. Dieses breite Spektrum an möglichen Wellenlängen wird durch die Verwendung eines mit Titan dotierten Korundkristalls ( $Al_2O_3$ ) als Lasermedium erreicht. Durch die  $Ti^{3+}$  Ionen entsteht eine vibronische Verbreiterung der Zustände, welche bei Raumtemperatur zu Bändern entartet sind. Wie Mattolat erläutert, wird hierbei die Besetzungsinversion über ein 4-Schrittschema (siehe Abbildung 3) realisiert, wobei der Pumplaser die Elektronen zunächst in das obere Band des  $^2E$  Zustandes anregt, von dem aus sie zunächst strahlungsfrei relaxieren, bevor der eigentliche Laserübergang stattfindet [23, S. 31-32]. Als Energiepumpe wird ein konventioneller Nd:YAG-Laser verwendet,

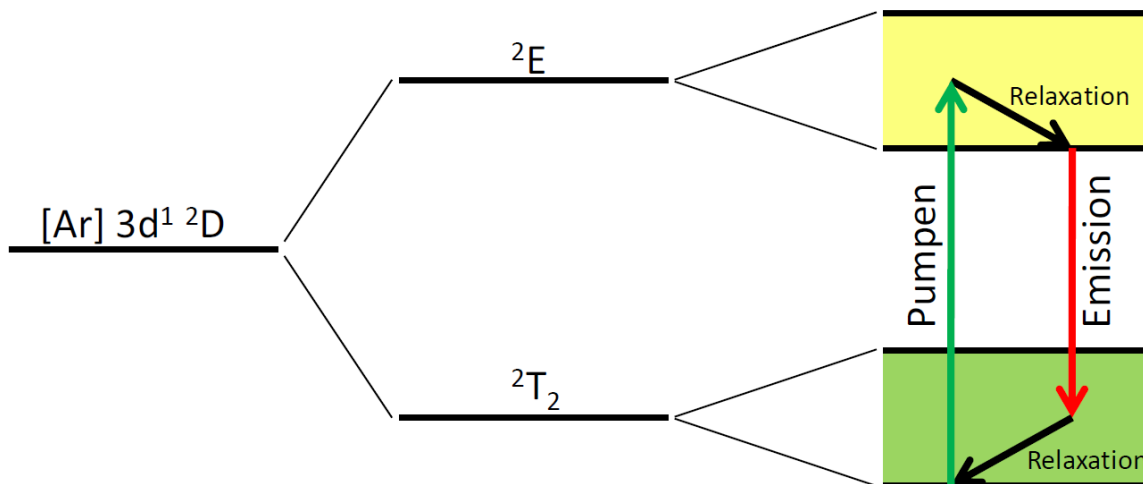


Abbildung 3.: Bandstruktur des Ti:Sa-Kristalls nach Mattolat [23, S. 32].

dessen fundamentale Wellenlänge von 1064 nm zum Pumpen frequenzverdoppelt wird. Die Ti:Sa-Laser werden üblicherweise gepulst mit der vom Pumplaser vorgegebenen Repetitionsrate von 10 kHz betrieben. Der Resonator wurde in einer charakteristischen

Z-Form konstruiert, in dessen Mitte sich der Kristall befindet und bietet in den beiden äußeren Armen zusätzlichen Platz für weitere optische Elemente, die z.B. der Frequenzselektion oder Synchronisation dienen. Wie anhand Abbildung 4 zu erkennen ist, ist eine

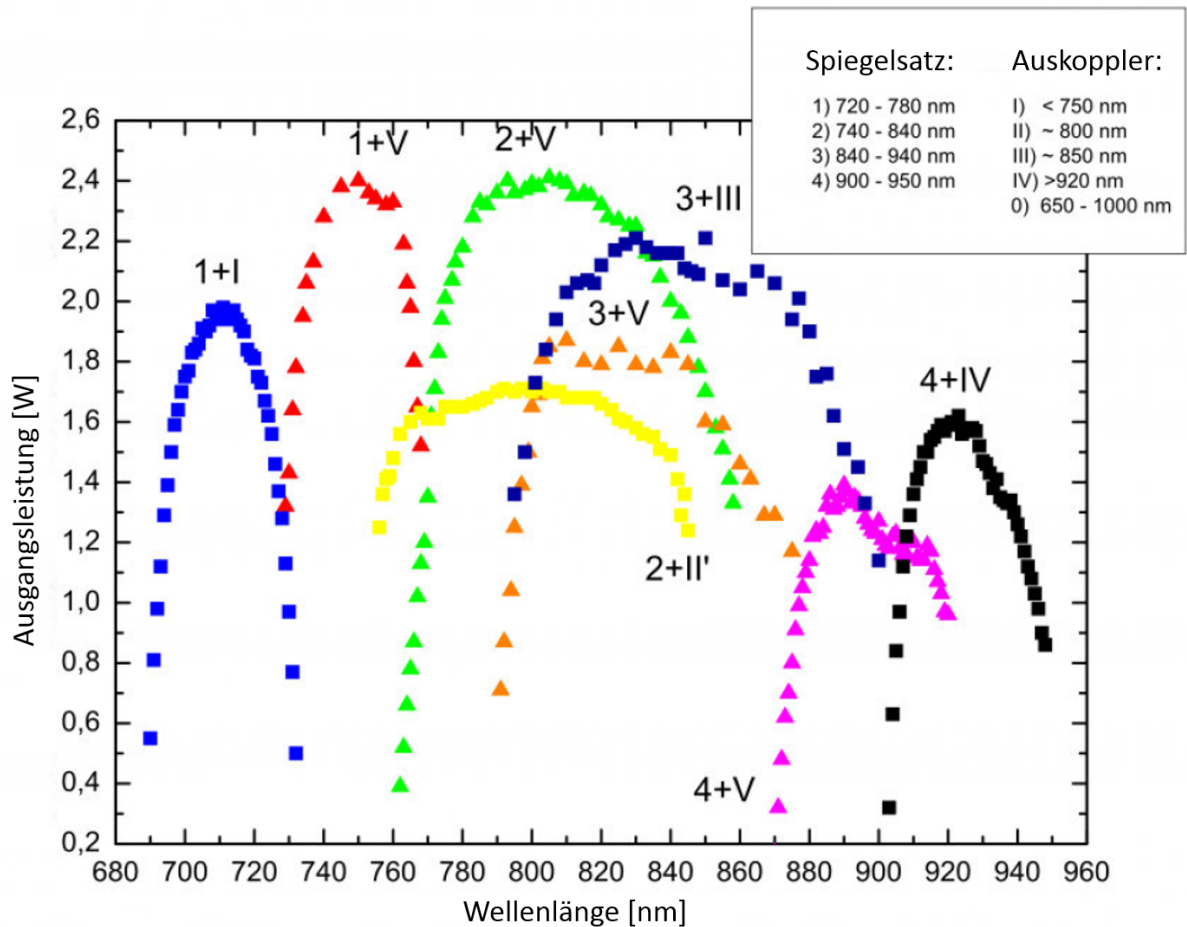


Abbildung 4.: Abstimmbereiche des Mainzer Ti:Sa-Lasersystems unter Verwendung verschiedener Spiegelsätze (arabische Ziffer) und Auskoppelspiegel (römische Ziffer). Die Einzelkurven sind bei unterschiedlichen Pumpleistungen aufgenommen und daher nicht in der absoluten Ausgangsleistung vergleichbar.

grobe Frequenzselektion bereits durch die Wahl unterschiedlicher Spiegelsätze möglich, da diese nur bestimmte Wellenlängen gut reflektieren. Für die Zwecke der Spektroskopie benötigt man jedoch in vielen Fällen schmalbandige Laser, deren Wellenlängen exakt einstellbar sein müssen. Hierfür werden weitere frequenzselektive Elemente benötigt:

- **Lyofilter:**

Ein Lyofilter bezeichnet eine Anordnung aus doppelbrechenden Kristallen. Diese

Kristalle drehen die Polarisationsrichtung des durchlaufenden Lichtes abhängig von dessen Wellenlänge sowie der Länge des durchlaufenen Weges im Kristall. Da sich am Lyotfilter selbst und im Resonator Brewster-Flächen befinden, können nur Moden einer bestimmte Polarisationsrichtung im Resonator anschwingen. Somit ist durch Verkippen des Lyotfilters eine grobe Frequenzselektion möglich, da hierdurch die optische Weglänge durch den Kristall variiert werden kann. Verwendet man mehrere solcher Filter unterschiedlicher Dicke hintereinander, so ist es möglich diese Selektion zu verfeinern, wobei die Abstände der Transmissionsmaxima durch den dünnsten Kristall und deren spektrale Breite durch den dicksten festgelegt werden. Hierdurch können Linienbreiten im Bereich von ca. 100 GHz erzielt werden [23, S. 34].

- **Etalon:**

Ein Etalon besteht aus einer planparallelen Glasplatte, welche beidseitig teilweise verspiegelt ist. Der eintretende Lichtstrahl wird hierbei in mehrere Teilwellen aufgespalten, die sich nur verstärken, wenn diese sich beim Austritt phasengleich überlagern.

$$\phi = \frac{4\pi nd}{\lambda} \quad (44)$$

Da die Phasenverschiebung  $\phi$  von der Wellenlänge, dem Brechungsindex des Etalons und dessen Dicke abhängig ist, kann somit eine Frequenzselektion durch Verkippen des Etalons stattfinden.

In der Regel werden Etalon und Lyotfilter gemeinsam verwendet, wodurch typische Linienbreiten von wenigen GHz erreicht werden [23, S. 35-36].

- **Gitter:** Bei dieser Methode wird der Endspiegel des Resonators durch ein Reflexionsgitter ausgetauscht. Dieses wird so justiert, dass das erste Interferenzmaximum in den Resonator zurück reflektiert wird. Da die Wellenlänge, die in diesem Maximum liegt, abhängig vom Winkel des Gitters ist, kann durch Drehen des Gitters der Laser modensprungfrei durchgestimmt werden. Dadurch eignet sich dieser Aufbau besonders zum Aufnehmen von Spektren über einen großen Spektralbereich. Für eine ausführliche Beschreibung des in dieser Arbeit verwendeten Gitter-Lasers wird die Arbeit von Pascal Naubereit empfohlen [6].

## 4. Mainz Atomic Beam Unit

Die in dieser Arbeit ausgewerteten Daten wurden an der Mainz-Atomic-Beam-Unit (MABU) gewonnen. Diese wurde bereits 2010 von Johannes Roßnagel, aufbauend auf einem Prototyp von Sebastian Reader in der verwendeten Form entwickelt [18] [2]. Letzte Verbesserungen, sowie eine Charakterisierung der Apparatur wurden von Micheal Franzmann im Laufe des Jahres 2012 durchgeführt [24]. Die MABU besitzt eine Atomstrahlquelle und einen Quadrupol-Massenfilter, der zur Massenselektion dient. Charakteristisch für die Apparatur sind die vergleichsweise niedrigen Spannung der Ionenoptik, die allesamt unterhalb des kV Bereiches liegen. Insbesondere die Extraktionsspannung beträgt lediglich einige V/cm. Dies ist gerade hinsichtlich Rydbergspektroskopie praktisch, da somit keine nennenswerte Stark Verschiebung auftritt. Die Ionisation der Rydbergatome ist aber nach wie vor durch z.B. Stöße oder Photonen der Schwarzkörperstrahlung problemlos möglich.

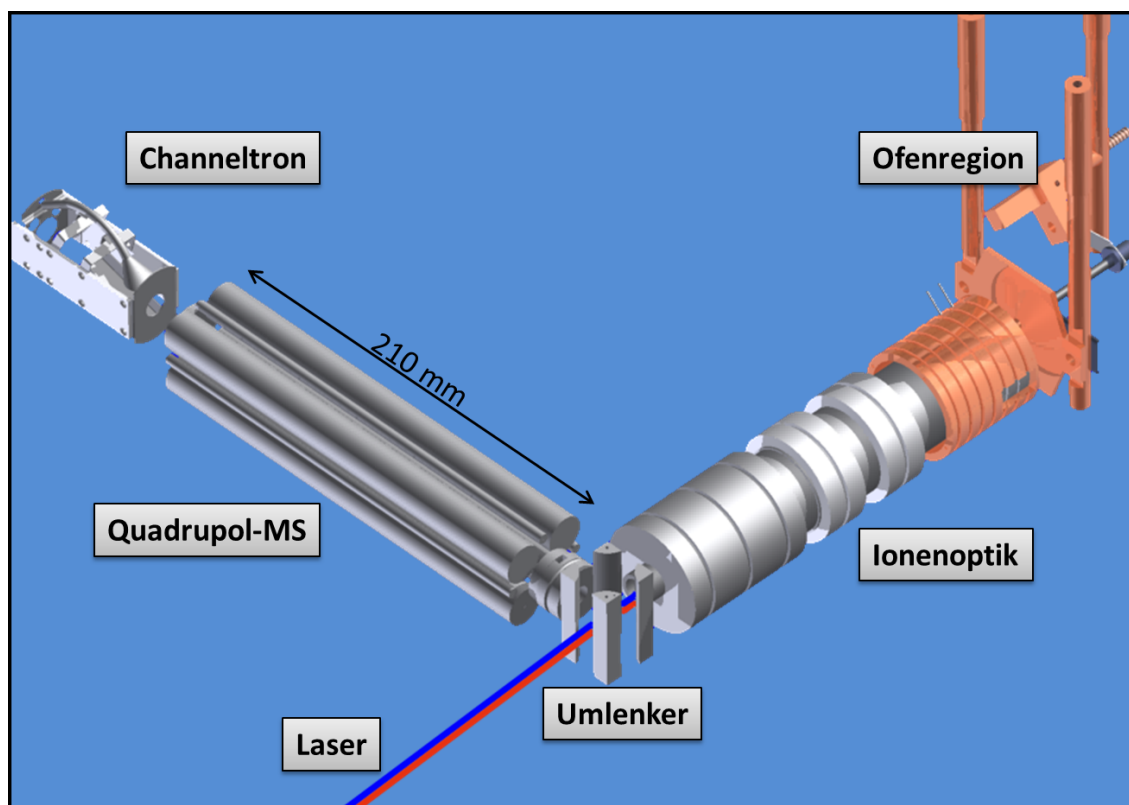


Abbildung 5.: Schematische Darstellung der wichtigsten Komponenten der MABU nach Franzmann [24]. Hitzeschilde und die umliegende Vakuumkammer wurde nicht dargestellt. Die Einstrahlrichtung der eingezeichneten Laser ist im Bezug zur Ionenflugbahn antikollinear.

In diesem Kapitel werden nur kurz die einzelnen Komponenten der MABU vorgestellt, für eine ausführliche Darlegung der Sachverhalte wird auf die angegebenen Arbeiten verwiesen. Abbildung 5 zeigt eine schematische Darstellung der fünf wichtigsten Komponenten der MABU, welche im folgenden kurz beschrieben werden sollen.

- **Ofenregion**

Die eigentliche Ofenregion besteht aus einem Graphitrohr von 2,2 mm Innendurchmesser, welches durch eine angelegte Spannung geheizt wird. Dieses wird im folgenden als Ofenrohr bezeichnet werden. Das Ofenrohr wird an einer Halterung aus Tantal befestigt, welche an Kupferstangen aufgehängt ist. Diese außerhalb der Apparatur wassergekühlten Kupferstangen dienen sowohl der Stromzufuhr als auch der Kühlung der Hitzeschilde.

In das Ofenrohr wird die Probe, welche in der Regel als flüssige Nitratlösung vorliegt und in Oxidform auf einem geeigneten Reduktionsmaterial aufgedampft ist, eingeführt. Für den Fall von Dysprosium wurde sich hierbei für Titanfolie als Reduktionsmaterial entschieden.

Mit Hilfe der Temperaturkalibrierung von Franzmann [24] wird ersichtlich, dass 70 A für Titan der Schwellwert für den zulässigen Heizstrom ist, mit dem ein Schmelzen des Titans vermieden werden kann. Da der Schmelzpunkt von Dysprosium ca. bei 1400°C liegt, ist aber schon viel früher mit ausreichend Signal zu rechnen, sodass diese Einschränkung keine Limitierung darstellt. Für die Messungen wurde ein Heizstrom von 60 A verwendet. Aus den dazu gemessenen 4,1 V und der Kalibrierungskurve von Franzmann lässt sich schließen, dass ein schlechter Kontakt zwischen Ofenrohr und Halterung vorliegt. Dies ist aber laut Franzmann nicht bedenklich, da damals keinerlei Abhängigkeit der Effizienz der Apparatur vom Kontakt festgestellt wurde [24].

- **Ionenoptik**

Die Ionenoptik der MABU besteht aus mehreren Linsen, welche unterschiedlich kombiniert werden, um im Grunde zwei Hauptaufgaben zu erfüllen. Die erste Aufgabe ist die Extraktion der erzeugten Ionen aus der Ofenregion und deren Formung zu einem Strahl. Die zweite Aufgabe ist die Fokussierung dieses Strahles in das



Quadrupolmassenspektrometer.

- **Quadrupol-Umlenker**

Dieser Umlenker sorgt für eine  $90^\circ$  Ablenkung der Ionen in den Massenseparationsbereich und realisiert damit die Trennung der Ionen von ungeladenen Teilchen. Dadurch wird der Detektor geschützt, sowie der Untergrund reduziert. Zusätzlich ist es somit leichter möglich, die Laserstrahlen direkt in die Ofenregion zu fokussieren.

- **Quadrupol-Massenfilter**

Der Quadrupol-Massenfilter besteht prinzipiell aus vier hyperbolischen Elektroden. Da die Erzeugung solcher Formen allerdings aufwändig und teuer ist, wird oft, wie auch in diesem Fall, auf zylinderförmige Elektroden zurückgegriffen und mit zusätzlichen Elektroden das Feld des idealen Quadrupols approximiert. An diese Stäbe wird eine Wechselspannung  $W$  und eine Gleichspannung  $G$  angelegt, wobei die Potentiale der jeweils gegenüberliegenden Stäbe identisch sind. Auf eine ausführliche Herleitung der Bewegung eines Ions im Feld dieses Quadrupols, welches durch Lösung der Mathieschen Gleichungen geschieht, wird hier verzichtet und an dieser Stelle auf die sehr detaillierte Beschreibung von Klaus Blaum verwiesen [25, S. 13-20]. Durch Lösung dieser Gleichungen erhält man für jedes Ion stabile Bereiche, in denen das Ion auf einer schwingenden Bahn durch den Quadrupol geleitet wird. In instabilen Bereichen schwingt das Ion so stark, dass es den Quadrupol nicht passieren kann und an einen seiner Stäbe stößt. Diese stabilen Bereiche werden Stabilitätsdreiecke genannt. Variiert man nun die Spannung  $W$  und  $G$  in einem konstanten Verhältnis, so erhält man eine sogenannte Arbeitsgerade, welche die jeweils ersten Stabilitätsdreiecke verschiedener Massen passiert, sodass es möglich ist, mit der Variation des konstanten Verhältnis von  $W$  und  $G$  einzustellen, welche Ionen vom Quadrupol durchgelassen werden und welche nicht.

## 5. Charakterisierung des Versuchsaufbaus

In der nachfolgenden Abbildung 6 ist der Aufbau der Laser, die bei den Experimenten verwendet wurden, zu sehen. Es wurden, wie zu erkennen ist, drei Ti:Sa Laser aufgebaut, von denen aber immer nur zwei gleichzeitig betrieben wurden. Für die entscheidenden Messungen der Arbeit wurden nur zwei Laser, nämlich die Laser 1 und 3 verwendet. Laser 1 und 2 unterscheiden sich nicht voneinander. Laser 3 ist ein spezieller Gitter-Laser,

welcher über den gesamten Wellenlängenbereich von 690 - 960 nm durchstimmbare und damit für die anschließende spektroskopische Arbeit von großer Wichtigkeit ist. Beide Laser wurden mit ca. 15 W Pumpleistung betrieben und erreichten in der fundamentalen Wellenlänge eine Ausgangsleistung im Bereich von 1 - 2 W. Um mit zwei Lasern das Ionisationspotential zu erreichen, müssen beide Schritte frequenzverdoppelt werden, wofür nichtlineare Effekte in optischen Kristallen ausgenutzt wurden. Im frequenzverdoppelten Wellenlängenbereich wurden Leistungen von 30 - 120 mW erzielt.

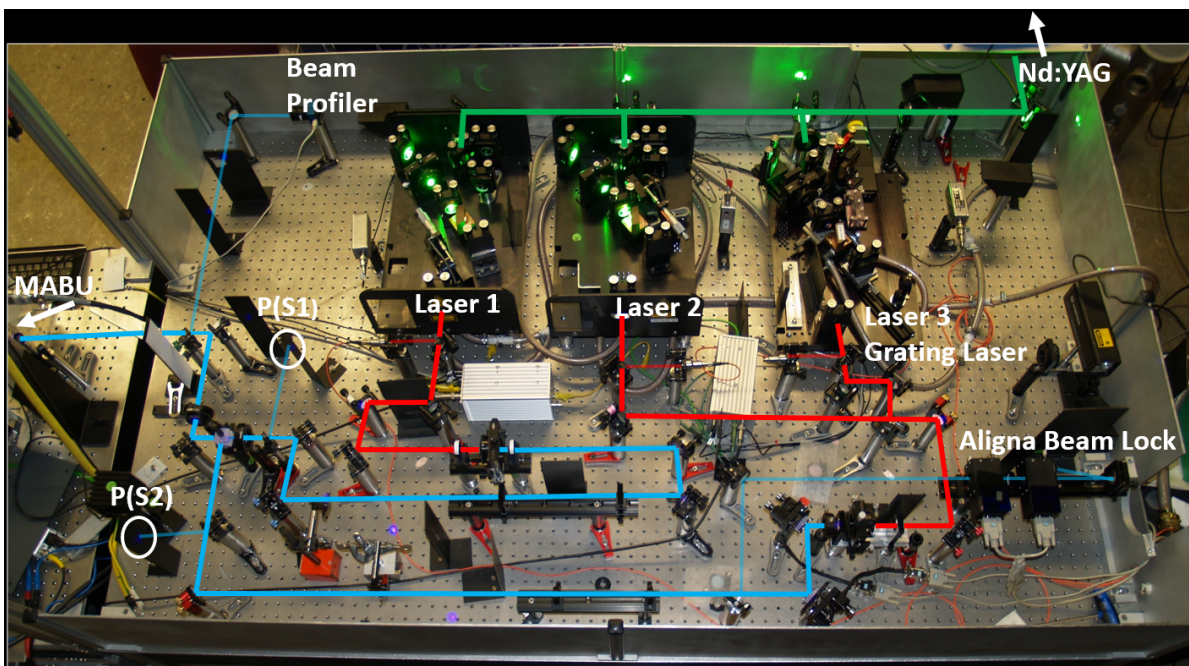


Abbildung 6.: Photo des gesamten Lasersystems, das für die Messungen verwendet wurde. Nachträglich eingezeichnet sind die Strahlwege des Pumplasers (grün), der fundamentalen Ti:Sa-Laser (rot), sowie der frequenzverdoppelten Ti:Sa-Laser (blau).

Die Laserstrahlen der beiden verwendeten Laser wurden nach dem Verdopplungsprozess mit je einem Teleskop pro Laser in die Ofenregion der MABU fokussiert. Die Überlagerung der beiden Strahlen wurde mit einem polarisierenden Strahlteilerwürfel realisiert. Unmittelbar nach dem Austritt des Laserstrahles aus dem jeweiligen Laser wurde ein kleiner Teil des Strahles ausgekoppelt und mit einer Faser zum Wavemeter und einer Diode, welche an ein Oszilloskop angeschlossen ist, geleitet. Mit der Anzeige des Wavemeters ist es möglich jeden beliebigen Wert innerhalb des möglichen Bereiches über die

frequenzselektiven Elemente der Ti:Sa-Laser manuell einzustellen. Durch das Oszilloskop kann die zeitliche Überlagerung der beiden Laser sichergestellt werden.

## 5.1. Vorstellung und Vergleich der Anregungsschemata

Für die spektroskopischen Untersuchungen an Dysprosium wurden zunächst drei verschiedene zweistufige Anregungsschemata ausgewählt, welche in Abbildung 7 zu sehen sind. Es wurden dabei diejenigen Übergänge aus der NIST Datenbank [26] gewählt, von denen eine hohe Übergangsrates aufgrund hoher A-Faktoren zu erwarten ist, sofern diese innerhalb des von den zur Verfügung stehenden Lasern erreichbaren Wellenlängenbereiches (vgl. Abbildung 4) von ca. 690 - 960 nm, bzw. 345 - 480 nm im Verdoppelten liegen. Für den zweiten Schritt wurde zu jedem Schema keine exakte Wellenlänge, sondern der Wellenlängenbereich angegeben, der bei den Messungen abgedeckt wurde.

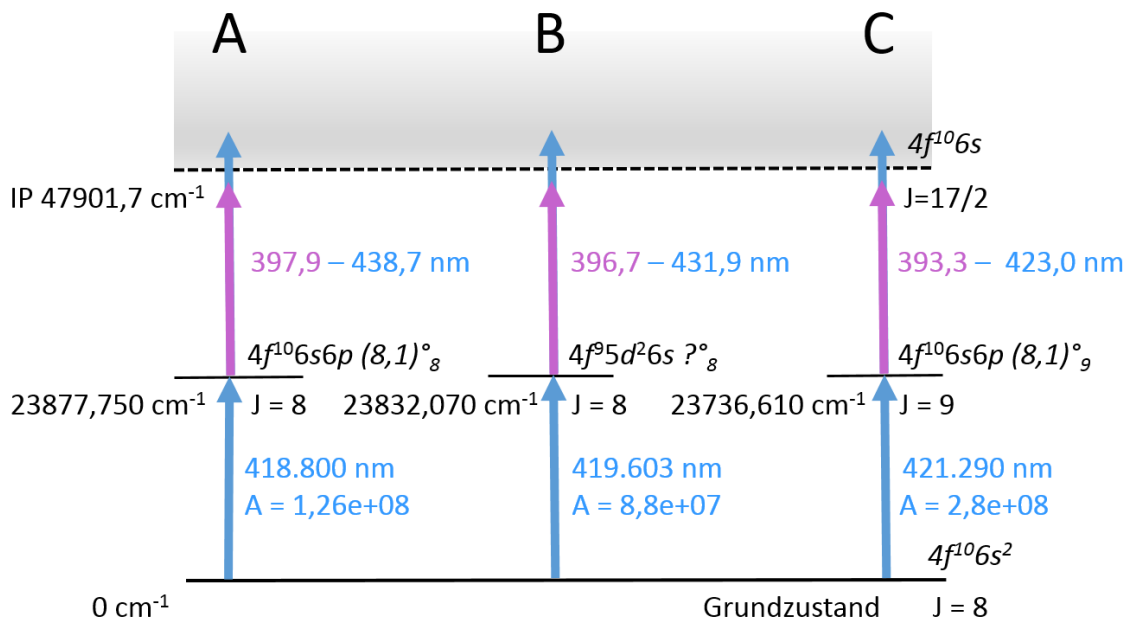


Abbildung 7.: Die in dieser Arbeit verwendeten Anregungsschemata A, B und C. Zu jedem ersten Anregungsschritt ist jeweils die Energie, die Konfiguration, sowie der Gesamtdrehimpuls  $J$  angegeben. Die Pfeile des ersten Anregungsschrittes sind mit der entsprechenden Wellenlänge, sowie dem A-Faktor des Überganges beschriftet [26]. Die Pfeile des zweiten Anregungsschrittes sind mit dem Wellenlängenbereich beschriftet, der gescannt wurde.

## 5.2. Massenspektrum von Dysprosium

Abbildung 8 zeigt das in dieser Arbeit aufgezeichnete Massenspektrum. Es sind alle sieben stabilen Isotope zu sehen. Die Isotopenverhältnisse wurden durch eine Gaußanpassung der Massenpeaks bestimmt. Wie zu erkennen ist stimmen die Ergebnisse nur im Falle von  $^{161}\text{Dy}$  und  $^{163}\text{Dy}$  im Rahmen der Fehler überein.

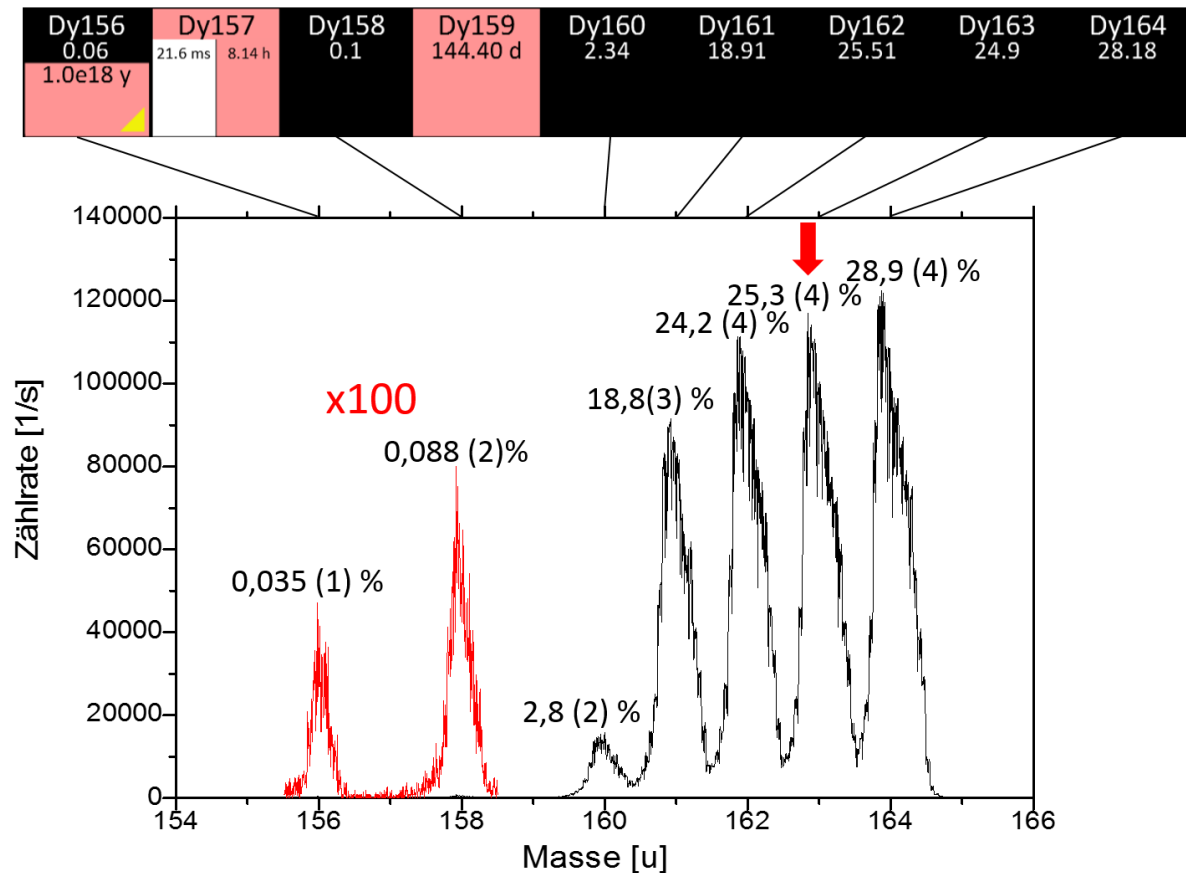


Abbildung 8.: Mit dem Quadrupolmassenfilter der MABU aufgenommenes Massenspektrum. Die Peaks der Isotope  $^{156}\text{Dy}$  und  $^{158}\text{Dy}$  sind zur besseren Sichtbarkeit um einen Faktor 100 überhöht dargestellt. Der rote Pfeil markiert das Isotop  $^{163}\text{Dy}$  an dem weitere Messungen durchgeführt werden.

Wie man im Massenspektrum erkennt, weisen die drei Isotope 162, 163 und 164 etwa die gleiche Häufigkeit auf, weshalb mit der Wahl eines dieser drei als Messisotop mit ausreichend Signal gerechnet werden kann. Da bereits 2009/2010 von Tina Gottwald [7] Messungen an  $^{163}\text{Dy}$  durchgeführt wurden, wurde sich zu Gunsten der Vergleichbarkeit der Messergebnisse auch für die Messungen dieser Arbeit für dieses Isotop entschieden.

Die deutliche, asymmetrische Form der Massenpeaks ist typisch für Quadrupolmassenfilter und spiegelt deren Transmissionsfunktion wider [24].

### 5.3. Leistungskontrolle und Sättigungsverhalten

Da sich die Leistung des Gitter-Lasers während des Durchstimmens deutlich ändert, wurde ein kleiner Teil des Laserlichtes (etwa 15% der Gesamtleistung) zur Überwachung und als Indikator der Gesamtleistung ausgekoppelt. Die Regulierung der Leistung geschah manuell durch einen variablen Abschwächungsfilter. Über ein Strahlprofilmessgerät wurde überprüft, dass sich durch das Filterrad nur die Intensität des Strahlflecks ändert und Strahlform und -position unverändert bleiben.

Für den Laser des ersten Anregungsschrittes wurde ebenfalls ein Teil des Strahls ausgekoppelt, um eine Leistungsmessung während der Messung zu ermöglichen. Da allerdings mit dem Powermeter nur ein Laser überwacht werden kann, wurde die Leistung dieses Lasers während den Messungen als konstant angenommen, da dieser Laser nicht verstimmt wurde. Zusätzlich konnten etwaige Leistungsschwankungen auch am Oszilloskop beobachtet und falls notwendig korrigiert werden, sodass hier eine Leistungsaufnahme über ein zusätzliches Powermeter nicht zwingend notwendig war. Des Weiteren war Schritt 1 in allen Schemata bei sehr geringen Leistungen bereits gesättigt, wie im nachfolgenden Teil dieses Kapitels diskutiert wird, sodass kleinere Schwankungen, die am Oszilloskop nicht zu erkennen sind, keine nennenswerte Auswirkungen auf die Signalausbeute haben.

Durch die simultane Messung von Laserleistung und Ionensignal konnten Sättigungskurven mit etwa 800 Messpunkten in einer Zeit von lediglich 1-2 Minuten aufgenommen werden. Um gute Statistik zu erzielen, wurden die Datenpunkte in Intervallen von 0,2 mW gebinnt. In den Abbildungen (9 und 10, bzw. 48 bis 51 im Anhang) sind die durch diese Methode erhaltenen Kurven für den ersten Anregungsschritt, sowie für den Übergang in einen starken autoionisierenden Zustand für den zweiten Schritt dargestellt. Exemplarisch werden in diesem Kapitel nur die Kurven für Schema C gezeigt, die restlichen befinden sich im Anhang. Abbildung 9 zeigt, dass dieser Übergang nicht gesättigt werden konnte. Die Messpunkte weisen über den gesamten verfügbaren Bereich an Laserleistung von 0 - 120 mW einen linearen Verlauf auf.

Um die Werte der Sättigungsleistung für Schritt 1 zu bestimmen, wurde eine Kurven-

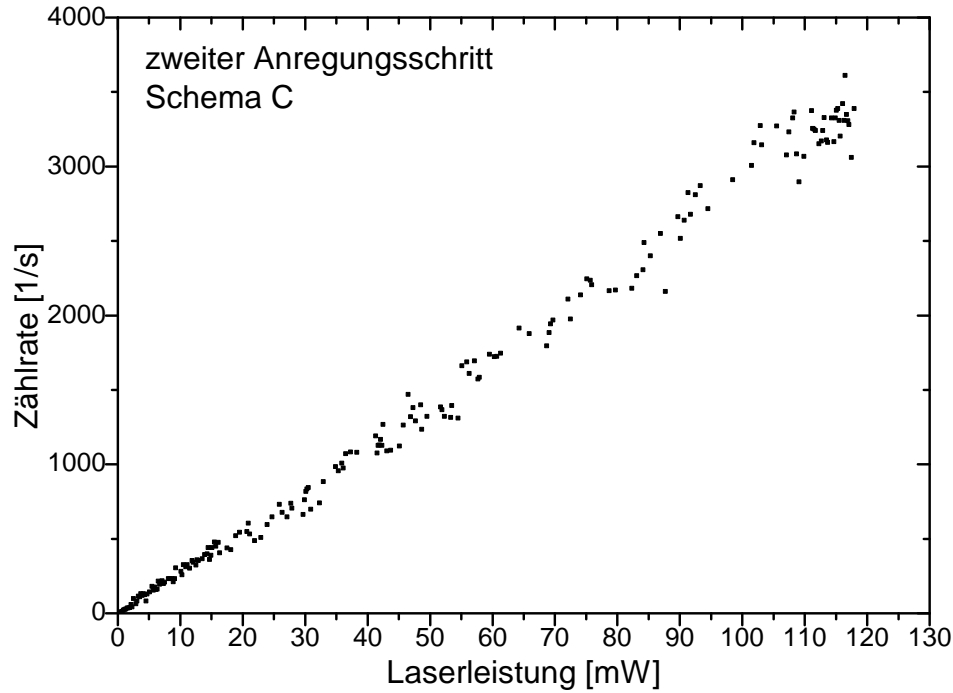


Abbildung 9.: Sättigungsverhalten für die Anregung eines starken autoionisierenden Zustandes bei  $48343,96 \text{ cm}^{-1}$  in Schema C. Dieser Übergang lässt sich mit der verfügbaren Leistung nicht sättigen.

anpassung mit einer Funktion der Form

$$y = y_0 + A \cdot \frac{P}{P + P_{sat}} + B \cdot P \quad (45)$$

durchgeführt, wobei  $y_0$  den Untergrund ohne Lasereinwirkung beschreibt.  $A$  und  $B$  sind hier freie Fitparameter und  $P_{sat}$  bezeichnet die Sättigungsleistung. Der zusätzliche Summand  $B \cdot P$  berücksichtigt Einflüsse der nicht resonanten Ionisation, deren Beiträge besonders in den Sättigungskurven des ersten Schrittes der Schemata A und B zu erkennen sind. Hierbei ist der Einfluss in Schema A am stärksten, was sich auch in dem Fitparameter  $B$  widerspiegelt. Die Resultate für die Fitparameter des ersten Anregungsschrittes aller Schemata sind zur besseren Übersicht in Tabelle 3 zusammengefasst. Anhand der Parameter in der Tabelle ist zu erkennen, dass die jeweiligen ersten Schritte in allen drei Schemata eine Sättigung bei bereits 3-4 mW erreichen.

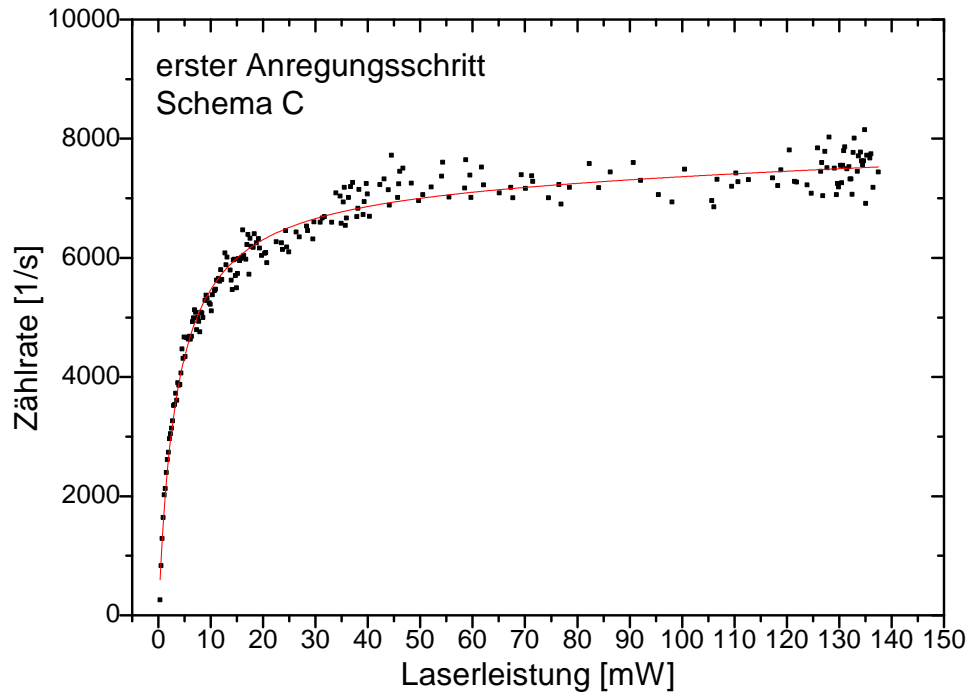


Abbildung 10.: Sättigungsverhalten für Schema C des ersten Anregungsschrittes, der zweite Anregungsschritt wurde auf maximaler Leistung betrieben.

Schema	$P_{sat}$ [mW]	$\Delta P_{sat}$ [mW]	$B$ [1/J]	$\Delta B$ [1/J]
A	3,1	0,2	15,5	1,3
B	2,9	0,15	7,7	0,7
C	3,5	0,1	2,6	0,7

Tabelle 3.: Gesammelte Fitparameter der mit Gleichung (45) gefitteten Kurven des Sättigungsverhaltens von Schritt 1 für alle Schemata.

#### 5.4. Strahlprofil und Kontrolle der räumlichen Überlagerung

Zur Kontrolle der räumlichen Überlagerung sowie des Strahlprofils und des Fokus der beiden Laser wurde ein geringer Teil des Laserlichts unmittelbar vor dem Eintritt in die Messapparatur ausgekoppelt und in einen Beam Profiler geleitet. Hierbei wurde darauf geachtet, dass der Weg vom Auskoppler zur Lage der Probe im Ofenrohr dem Weg vom

Auskoppler zum Beam Profiler entspricht. Dies hat den Vorteil, dass die Fokussierung des Strahls in der Quellenregion derjenigen auf dem Beam Profiler entspricht, wodurch diese Größe während der Messung ständig überwacht werden kann. Auch die räumliche Überlagerung der beiden Laserstrahlen lässt sich mit diesem Aufbau leicht überprüfen, indem die beiden gut sichtbaren Strahlflecke auf dem Profiler zur Deckung gebracht werden (siehe Abb. 11).

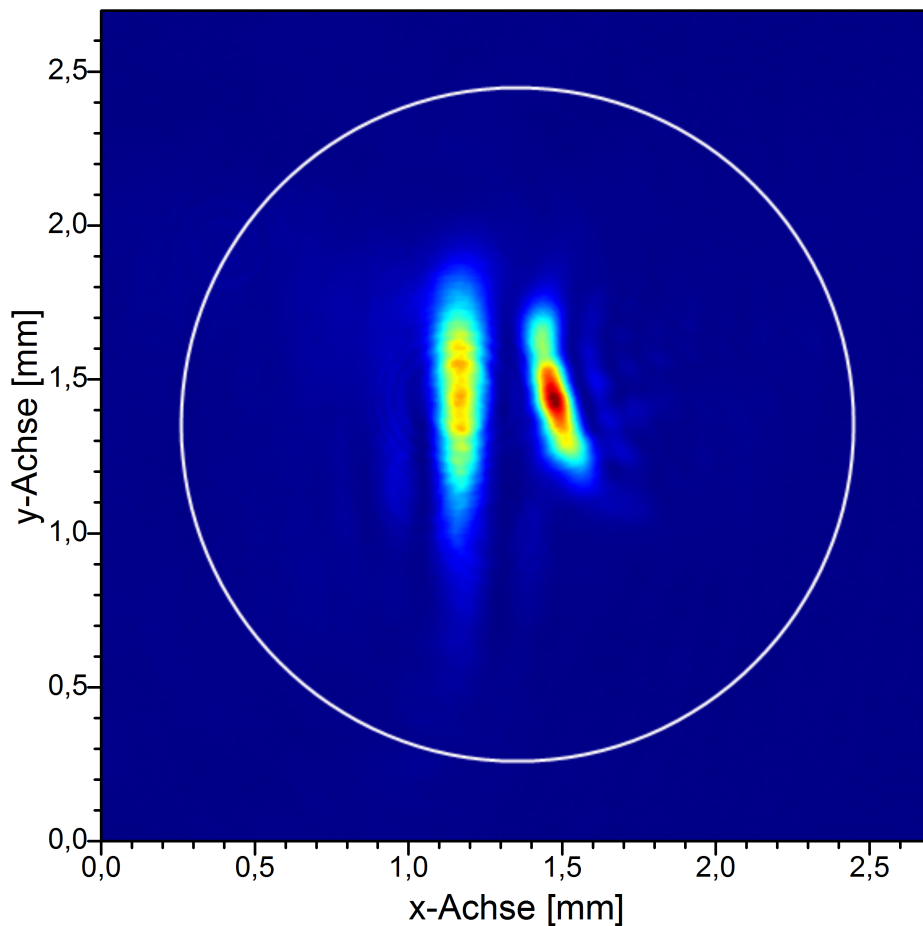


Abbildung 11.: Strahlprofil des ersten Anregungsschrittes (rechts), sowie des zweiten Anregungsschrittes (links). Der weiße Kreis symbolisiert den Durchmesser des Ofenrohres von 2,2 mm.

Betrachten wir das Strahlprofil der beiden Laser, so erkennt man, dass diese eher ellip-tisch und keineswegs kreisrund sind. Dies lässt sich durch den Astigmatismus erklären, der durch den Verdopplungsprozess entsteht und nicht ausgeglichen werden konnte. Laut Herstellerangaben verfügt der hier verwendete Beam Profiler CMOS-1202 von CINOGY



Technologies über  $1280 \times 1024$  Pixel, wobei die Pixelgröße  $5,3 \times 5,3 \mu\text{m}^2$  entspricht.

Wie anhand von Abbildung 11 zu erkennen, ist sind beide Strahlflecke deutlich kleiner als das Ofenrohr, welches einen Durchmesser von 2,2 mm besitzt. Hierbei wurde der Fokus so eingestellt, dass maximales Signal erreicht wurde. Dass die Strahlflecke dabei deutlich kleiner als der Durchmesser des Ofenrohres sind, ist etwas verwunderlich und wurde aber in Anbetracht der begrenzten Zeit nicht weiter untersucht. Zur Optimierung der Ionisationseffizienz sind entsprechende Studien im Rahmen der Diplomarbeit Studer vorgesehen.

## 5.5. Zeitliche und spektrale Überlagerung der Laser

Zur Kontrolle der zeitlichen Überlagerung und spektralen Abstimmung wird üblicherweise ein geringer Teil des Laserlichtes mit Hilfe eines Strahlteilers zu einem Wavemeter und einer schnellen Photodiode ausgekoppelt. Hierbei wurden während der Messung die Messwerte des Wavemeters für beide Laser aufgezeichnet sowie auftretende Abweichungen direkt während der Messungen korrigiert. In der Regel läuft das Lasersystem aber hinreichend stabil, sodass Korrekturen während der Messung äußerst selten nötig waren. Trägt man die Messwerte der Wellenlänge des ersten Anregungsschrittes gegen die Messzeit auf (siehe Abbildungen 12, 13, 52, 53, 54, 55, 56, 57), so lässt sich erkennen, dass diese statistisch um den eingestellten Wert schwanken. Diese Schwankungen werden hauptsächlich durch den zeitlichen Drift der Laser, der z.B. durch thermische Schwankungen entstehen kann oder Ungenauigkeiten des Wavemeters verursacht. Die scharfen „Peakähnlichen“ Strukturen wurden vermutlich beim Nachjustieren der Laser erzeugt. In der Regel weiß man nicht immer unmittelbar in welche Richtung das Ethalon zu drehen ist, um die Wellenlänge in die gewünschte Richtung zu regeln, sodass es möglich ist, dass man kurzzeitig in die falsche Richtung regelt. Die Messdaten wurden zusätzlich in einem Histogramm dargestellt und ein Gaußfit verwendet. Die blaue horizontale Linie ist hier der Literaturwert des ersten Anregungsschrittes des jeweiligen Schemas. Die grüne Linie symbolisiert den Erwartungswert der Gaußkurve aus der zugehörigen Kurvenanpassung.

Um später die Gesamtenergie der gemessenen Zustände zu berechnen, wurde hierbei der jeweilige Literaturwert des Überganges der für den ersten Anregungsschritt verwendet wurde zum Energiewert des Gitter-Lasers hinzuaddiert. Daher ist es wichtig zu analysieren wie stark der eingestellte Wert von dem verwendeten Literaturwert abweicht, um daraus Fehler für den ersten Anregungsschritt festlegen zu können. Es wird im folgenden

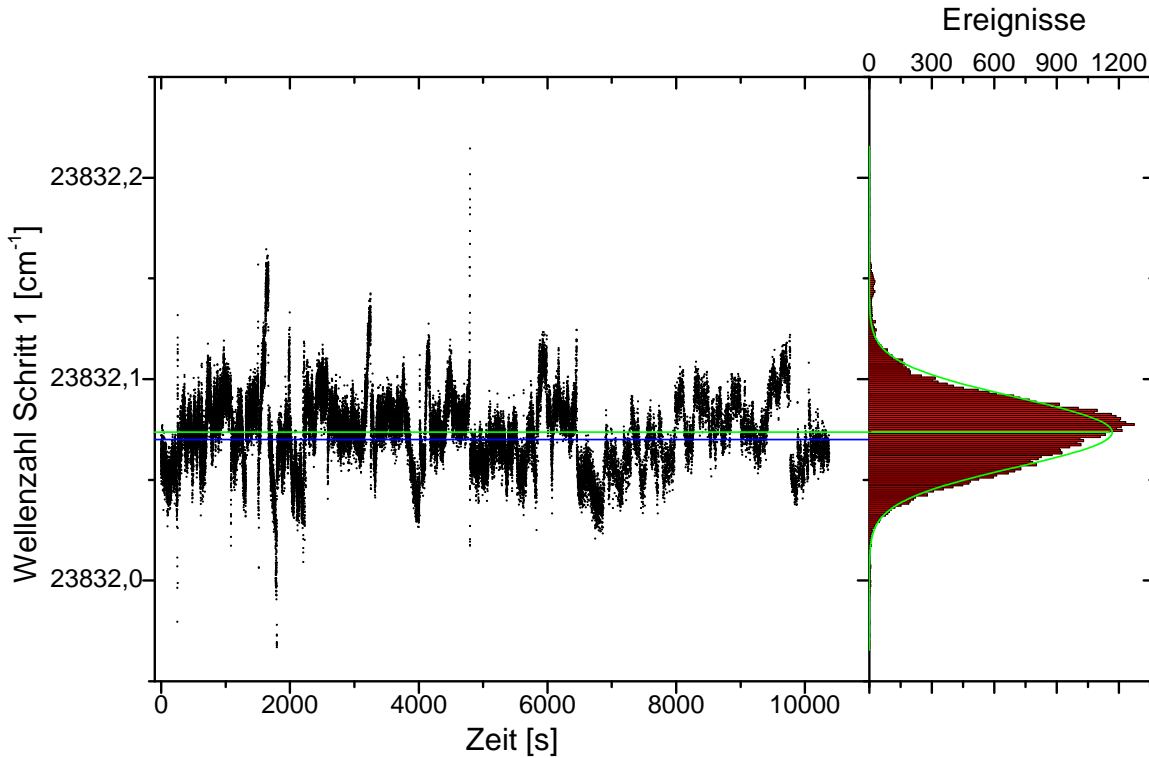


Abbildung 12.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes der Abwärtsmessung aus Schema B aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie entspricht dem Literaturwert [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich mit angepasster Gaußkurve. Die grüne horizontale Linie stellt das Zentrum dieser Gaußkurve dar.

angenommen, dass sich die einzelnen Messwerte im Laufe der Messung statistisch um den eingestellten Wert gaußverteilen. Hierbei weicht in allen Schemata der eingestellte Mittelwert vom Literaturwert um maximal  $0,01 \text{ cm}^{-1}$  ab. Die Werte der Aufwärtsmessung liegen dabei immer unterhalb und die Werte der Abwärtsmessung oberhalb des jeweiligen Literaturwertes. Dies liegt innerhalb der Größenordnung des Fehlers des Literaturwertes von  $0,003 - 0,012 \text{ cm}^{-1}$  von Nave und Griesmann [27].

Die Messungen wurden in jedem Schema zweimal durchgeführt, einmal mit ansteigender Wellenzahl des zweiten Anregungsschrittes und einmal mit entsprechend absteigender. Infolgedessen wird der jeweils größere der  $3\sigma$ -Bereiche der Gaußanpassung aus denen der Mittelwert resultiert hinzuaddiert. Dies resultiert in einer Abweichung von  $0,06 \text{ cm}^{-1}$  für

alle Schemata. Die für den ersten Anregungsschritt gemessene volle Halbwertsbreite beträgt im Vergleich dazu für Schema A  $0,34 \text{ cm}^{-1}$ , für Schema B  $0,37 \text{ cm}^{-1}$  und für Schema C  $0,35 \text{ cm}^{-1}$ . Somit ist im Bereich der festgestellten Schwankung lediglich mit einem sehr geringen Signalverlust zu rechnen.

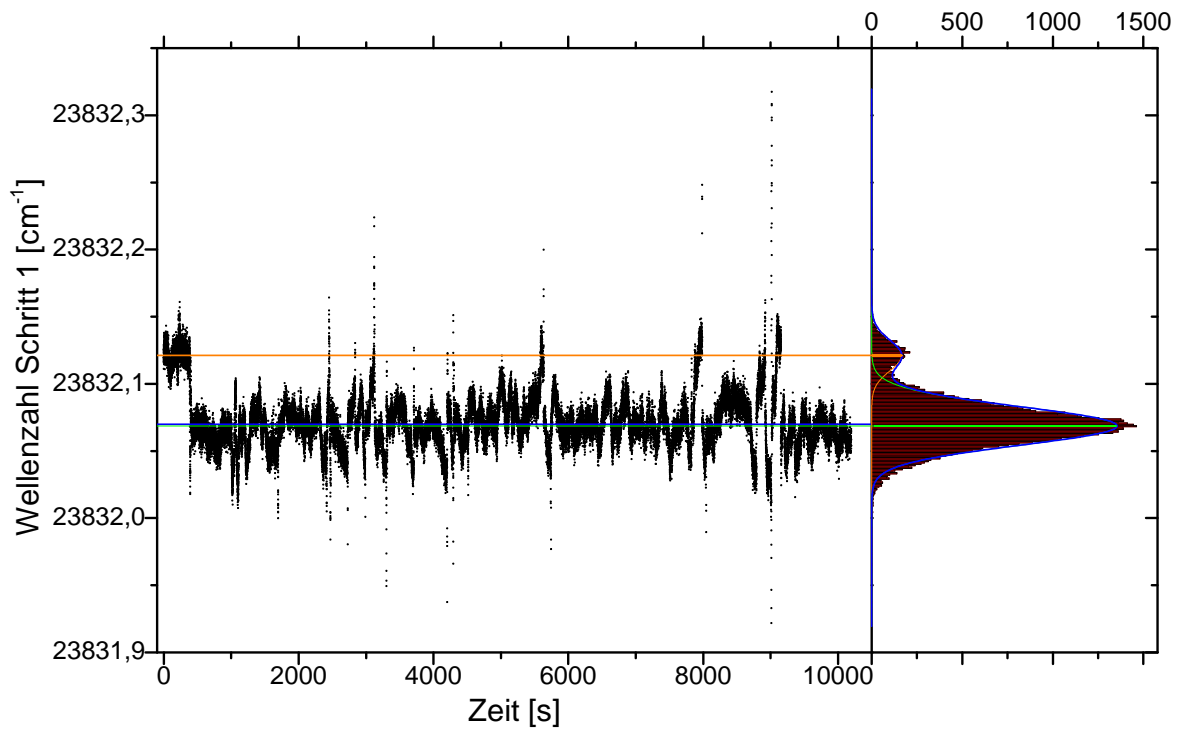


Abbildung 13.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes aus der Aufwärtsmessung aus Schema B aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie symbolisiert den Literaturwert des ersten Anregungsschrittes [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich angepasst mit einer Überlagerung zweier Gaußkurven. Die grüne und orangene horizontalen Linien stellen die Zentren dieser Gaußkurven dar.

Die einzigen Ausnahmen bilden die Aufwärtsmessung in Schema B (Abb. 13), sowie eine der Messungen in Schema C (Abb. 55). Im Falle von Schema B ist eine systematische Abweichung zu Beginn der Messung zu erkennen, welche in einem Doppelpeak resultiert. Dieser Bereich umfasst etwa die ersten 6 Minuten der Messung, in welcher allerdings lediglich nur 3 Resonanzpeaks identifiziert wurden. Diese weisen im Vergleich zu den

## 5. Charakterisierung des Versuchsaufbaus

nachfolgenden Peaks, bei denen der Laser korrekt spektral überlagert war eine etwa um den Faktor 5 verringerte Intensität auf. Dieser kleine Bereich der Messung wird daher für die Auswertung nicht berücksichtigt. Dies hat aus zweierlei Gründen keinen wesentlichen Einfluss auf die folgende Auswertung der Rydbergkonvergenzen. Es handelt sich zwar um einen signifikanten Bereich von ca.  $60 \text{ cm}^{-1}$ , jedoch ist dies der in dieser Messung am weitesten vom Ionisationspotential entfernte, sodass es hier sehr schwierig ist Serien zuzuordnen, aufgrund der hohen Dichte von Resonanzen. Des Weiteren ist die Beziehung zwischen Energie und zugehöriger effektiver Hauptquantenzahl invers quadratisch, sodass in diesem niedrigen Energiebereich höchstens 1 Rydbergzustand erwartet wird.

In Falle von Schema C (siehe Abbildung 55) ist die Abweichung nicht bedenklich, da diese immer noch innerhalb der Halbwertsbreite des ersten Anregungsschrittes liegt und somit lediglich mit Signalverlust zu rechnen ist.

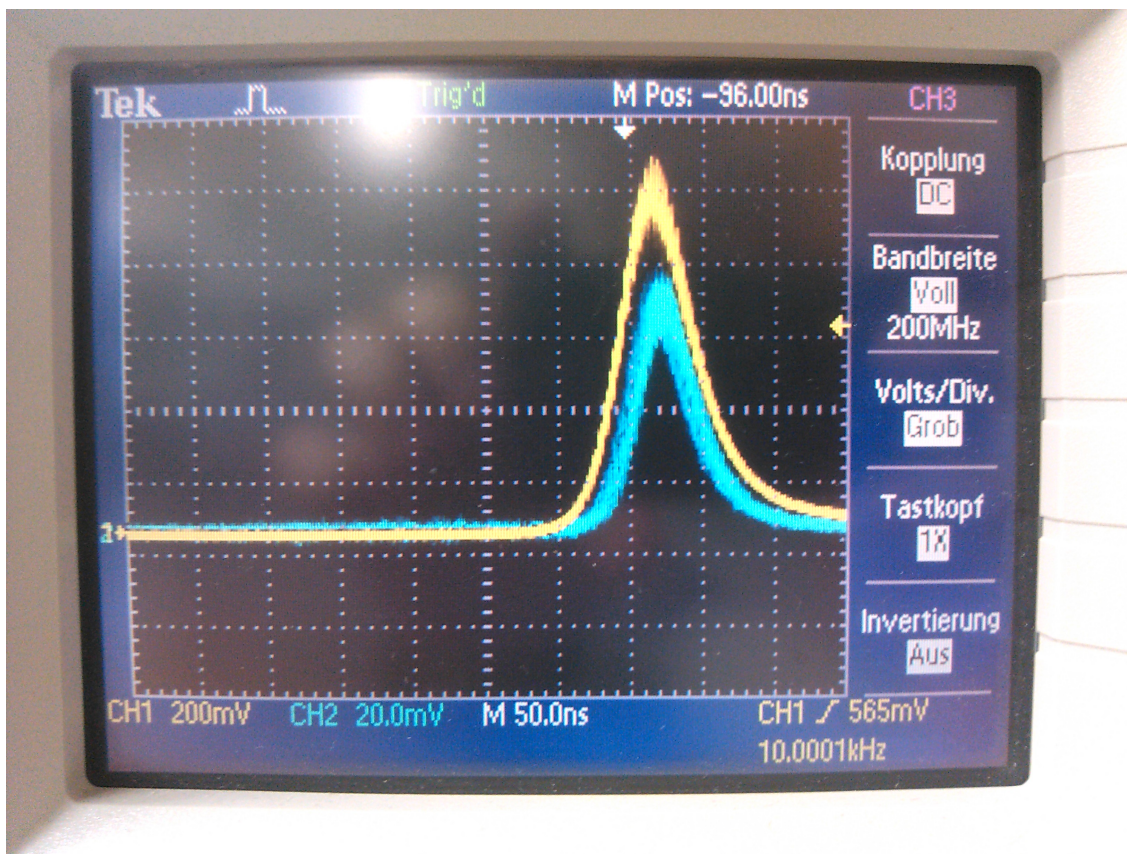


Abbildung 14.: Signal der schnellen Photodioden der beiden Laserpulse des ersten und zweiten Anregungsschrittes aufgetragen gegen die Zeit. Beide Pulse sind zeitlich gut überlagert.

Die zeitliche Synchronisation der beiden Laserpulse wurde über eine Photodiode pro Laser, welche an ein Oszilloskop angeschlossen ist, sichergestellt. Die beiden Laser waren dabei bereits passiv gut überlagert, sodass auf den Einbau einer Pockels-Zelle verzichtet wurde. Eventuelle Korrekturen wurden durch leichtes Verstimmen des Resonators des Lasers für Schritt 1, bzw. durch Umverteilen der Pumpleistung zwischen Laser 1 und 2 durchgeführt. Obwohl der Gitter-Laser des zweiten Schrittes beim Durchstimmen über den vorgegebenen Spektralbereich seine Leistung und auch sein Timing variiert, konnten beide Laser ohne Probleme mit diesen Methoden während aller Messungen zeitlich überlagert werden.

# Kapitel IV

## Messungen und Auswertung



## 6. Spektren des zweiten Anregungsschrittes

In diesem Kapitel werden die aufgezeichneten spektroskopischen Daten vorgestellt, sowie deren Auswertung beschrieben und die daraus gewonnenen Erkenntnisse diskutiert. Als ersten allgemeinen Punkt gilt anzumerken, dass alle Fitparameter, welche sich auf Gaußfits beziehen mit einer Fitfunktion der Form

$$y = y_0 + \frac{A}{w \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}}} \cdot e^{-2\left(\frac{x-x_c}{w}\right)^2} \quad (46)$$

sofern nichts anderes vermerkt wurde, generiert wurden. Mit dem Gitter-Laser als zweiten Anregungsschritt ist es möglich große Bereiche ober- und unterhalb des Ionisationspotentials zu scannen. Die spektrale Breite der in dieser Arbeit vermessenen Bereiche, beträgt je nach Schema zwischen  $1500 \text{ cm}^{-1}$  und  $2500 \text{ cm}^{-1}$ . Es wurden hierbei für jedes Schema zwei Messungen durchgeführt, nämlich eine Aufwärts- und eine Abwärtsmessung. Dies hat zumindest zwei Vorteile. Zum einen sind zwei Messungen hilfreich, da hiermit zufällig eintretende Ereignisse oder Fehler, die beim Messen passiert sind, wie z.B. Einflüsse der beständig abnehmenden Probenmenge analysiert werden können. Zum anderen besteht bei der Datenaufnahme eine geringe Verzögerung, welche die wahre Energielage der Peaks charakteristisch für jede Scanrichtung verschiebt. Durch Datenaufnahme in zwei Richtungen kann dieser Versatz herausgerechnet werden. Hierzu wurden die ermittelten Peaks in den Spektren mit Gaußkurven gefittet und die Lagen der Zentren gemittelt. Für die Schemata A und B wurden alle Messungen am gleichen Tag (10.02.2015 bzw. 12.02.2015) durchgeführt, für Schema C wurde am ersten Tag (05.02.2015) zunächst ein Bereich unterhalb des Ionisationspotentials gescannt und am darauffolgenden (06.02.2015) ein Bereich darüber.

In den Abb. 15, 16 sind die Spektren dargestellt, wobei die Zählrate gegen die Gesamtwellenzahl aufgetragen ist. Die vertikalen, roten Linien geben die Lage der bisher bekannten Werte für das Ionisationspotential und den ersten angeregten Zustand des Ions wieder. Bereits in dieser Darstellung sind in allen drei Schemata sowohl oberhalb als auch unterhalb des Ionisationspotentials zu den jeweiligen Potentialen konvergierende Serien zu erkennen. Des Weiteren kann man im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials bei etwa  $47830 - 47850 \text{ cm}^{-1}$  in allen Spektren einen Einbruch erkennen, in dem die Signalstärke stark reduziert ist. Dieser Lücke folgt eine breite Resonanz, auf der die Peaks der Rydbergserien liegen. Diese Resonanz ist insbesondere in Schema B gut sichtbar. Nach dieser Resonanz liegen die Peaks so dicht beieinander, dass deren auslaufende Flanken immer mehr überlappen.



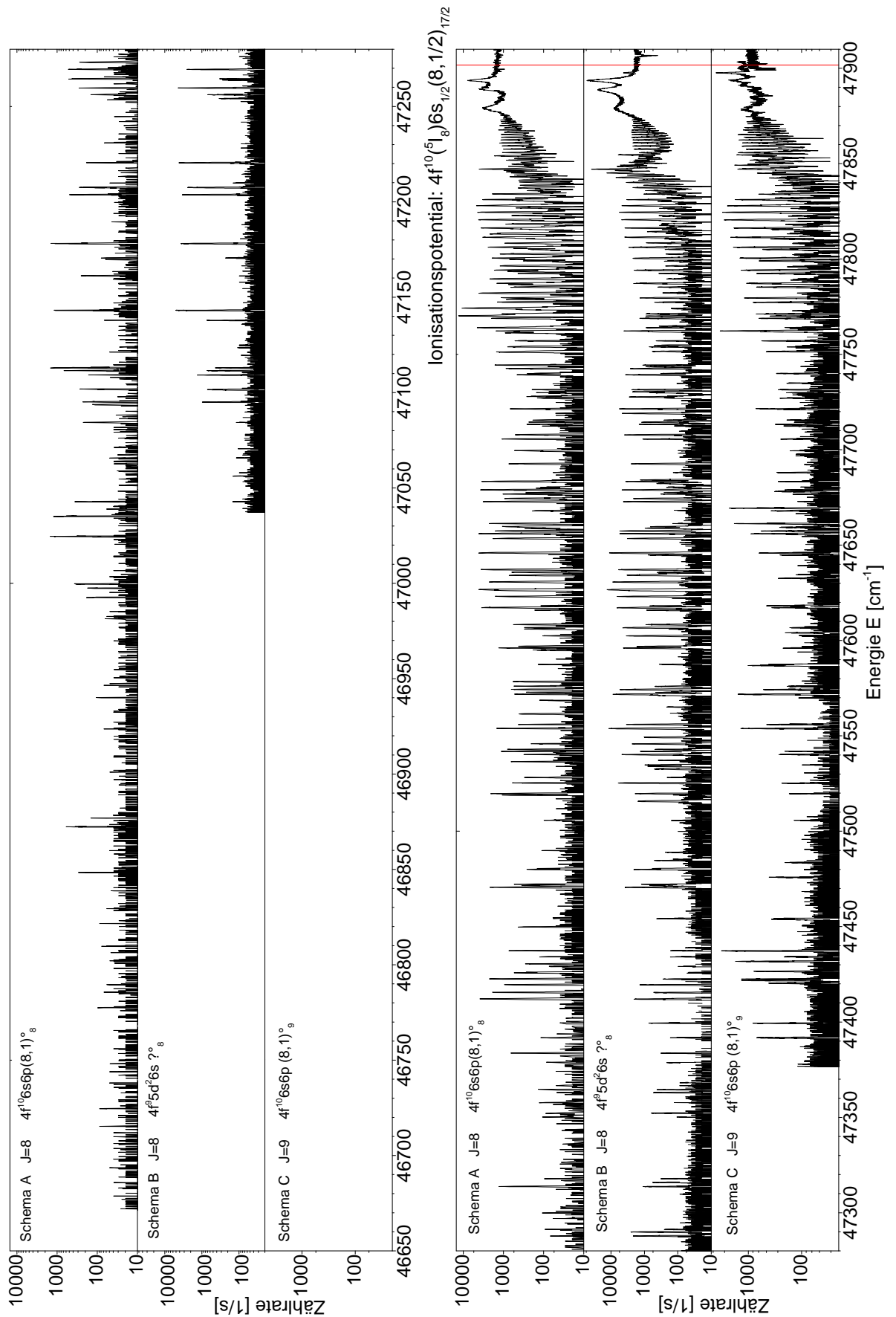


Abbildung 15.: Spektren des zweiten Anregungsschrittes für den Bereich unterhalb des Ionisationspotentials der Schemata A, B und C. Die oberen drei Graphen zeigen den gescannten Bereich zwischen 46650 und 47280 cm<sup>-1</sup>, während die drei darunter die Fortsetzung von 47280 bis 47910 cm<sup>-1</sup> abbilden. Die rot eingezeichnete vertikale Linie symbolisiert den Wert des ersten Ionisationspotentials bei 47901,7 cm<sup>-1</sup>.

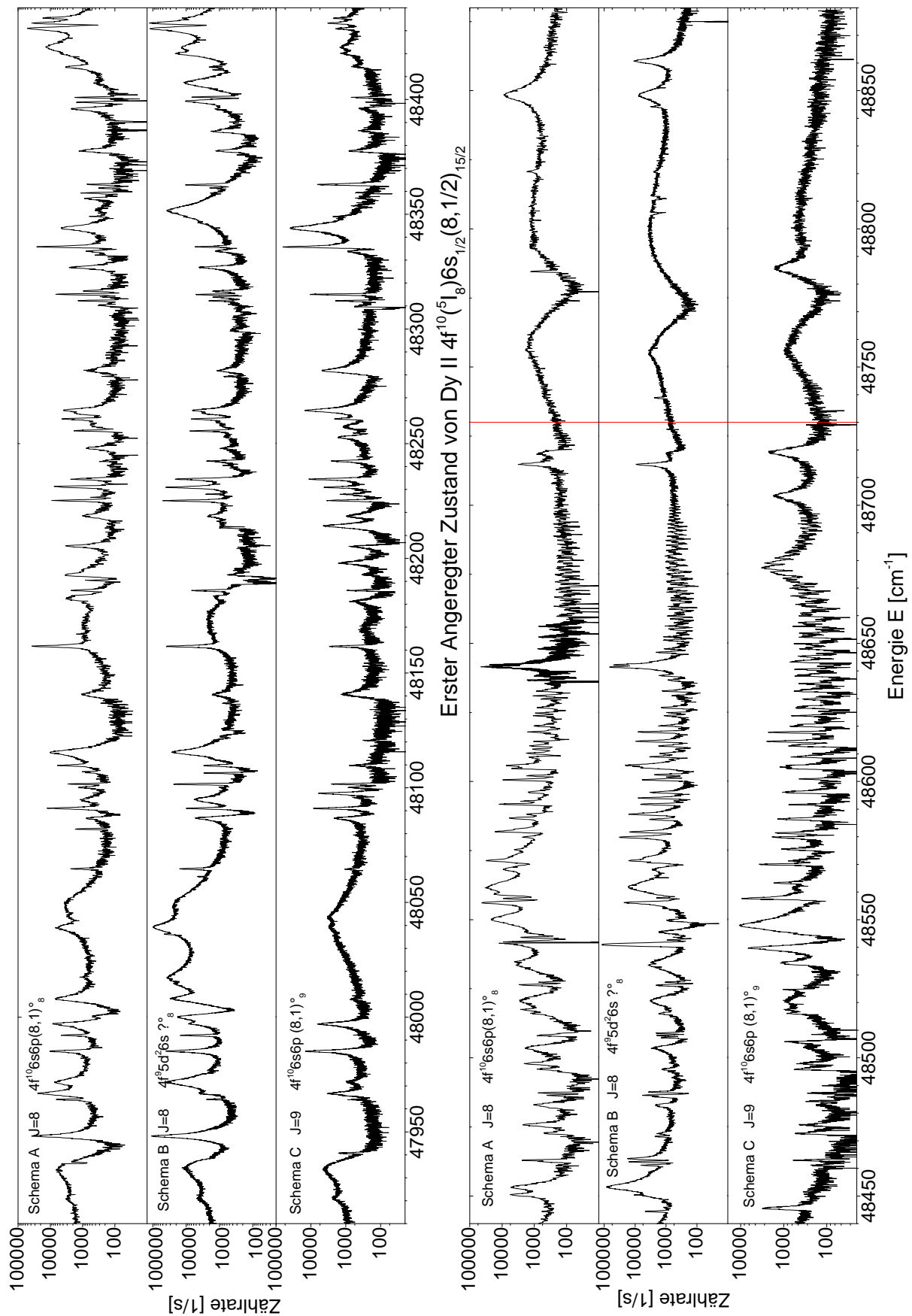


Abbildung 16.: Spektren des zweiten Anregungsschrittes für den Bereich oberhalb des Ionisationspotentials der Schemata A, B und C. Die oberen drei Graphen zeigen den gesamten Bereich zwischen 47910 und 48440 cm<sup>-1</sup>, während die drei darunter die Fortsetzung von 48440 bis 48880 cm<sup>-1</sup> abbilden. Die rot eingezeichnete vertikale Linie symbolisiert den Wert des ersten angeregten Zustandes von Dy II bei 48730,0 cm<sup>-1</sup>.

Dadurch können diese mit der vorhandenen Auflösung nicht mehr getrennt werden und verschwinden scheinbar im „Untergrund“ der nichtresonanten Ionisation in der Nähe des Ionisationspotentials. Der in allen Schemata ähnliche Anstieg dieses „Untergrundes“ der nichtresonanten Ionisations tritt etwa  $60 \text{ cm}^{-1}$  unterhalb des Ionisationspotentials auf. Dies ist zu erwarten, da dieser durch das elektrische Feld der Apparatur bedingt wird, welches für alle Schemata gleich ist. In allen Schemata sind im Bereich von  $47875$  bis  $47895 \text{ cm}^{-1}$  drei charakteristische Peaks zu erkennen. Obwohl alle drei Zustände unterhalb des Ionisationspotentials liegen sind diese aufgrund deren Breite wahrscheinlich autoionisierende Resonanzen.

Der Bereich oberhalb des Ionisationspotentials (siehe Abb. 16) wird offensichtlich von vielen besonders breiten Resonanzen geprägt. In Schema C erkennt man im Bereich von  $48660 - 48690 \text{ cm}^{-1}$ , dass die Peaks einer autoionisierenden Rydbergserie auf einer dieser breiten Resonanzen liegen. Diese Resonanz hat vermutlich einen Gesamtdrehimpuls  $J$  von 10, da sie nicht in den Schemata A und B vorkommt. In den Schemata A und B liegen die Peaks der Rydbergserien, die zum ersten angeregten Zustand des Ions konvergieren, im Bereich von  $48635 - 48645 \text{ cm}^{-1}$  auf einer weniger breiten, dafür aber sehr starken Resonanz. Diese hat vermutlich einen Gesamtdrehimpuls  $J$  von 7, da sie im Spektrum von Schema C nicht zu erkennen ist. Inwieweit die aus den Zuständen resultierenden Rydbergserien durch solche starken Resonanzen gestört werden, lässt sich an dieser Stelle noch nicht sagen und bedarf einer tieferen Analyse (siehe Kapitel 6.2).

In beiden Fällen wird zusätzlich ersichtlich, dass sich eine konkrete Zuordnung der Peaks zu Serien in solch einer Darstellung als schwierig erweist, weshalb in den folgenden Kapiteln Methoden vorgestellt werden, die es möglich machen, die einzelnen Peaks den verschiedenen auftretenden Serien zuzuweisen. Hierfür ist es zunächst notwendig die exakten Lagen der Peaks zu bestimmen. Für die folgende Auswertung wurden daher zunächst alle sichtbaren Peaks durch Gaußfits gefittet. Alle drei Schemata zusammengekommen sind dies etwa 1900 Peaks, an denen solch eine Kurvenanpassung durchgeführt wurde. An dieser Stelle sei angemerkt, dass die autoionisierenden Zustände ein Fanoprofil aufzeigen und es daher im Prinzip inkorrekt ist, deren Lage mit einem Gaußprofil zu bestimmen. Anhand einer Auswahl von Peaks wurde dieser Unterschied zwischen den beiden Profilen getestet. Da die Zentrumslagen beider Ansätze im Rahmen der Fehler übereinstimmen, wurden auch die Zentren dieser Peaks der autoionisierenden Zustände mit Gaußprofilen bestimmt.

### 6.1. Vom Spektrum zum $\delta$ - $n^*$ Plot

Da das Ionisationspotential von Dysprosium bereits mehrmals vermessen wurde (vgl. [7], [28]), kann es als Ausgangspunkt für die weitere Auswertung verwendet werden. Dazu wird die Rydberg-Formel (15) nach der effektiven Hauptquantenzahl  $n^*$  umgestellt:

$$n^* = \sqrt{\frac{R_\mu}{E_{IP} - E_n}} \quad (47)$$

Hierbei wird der Wert von  $47901,7(6) \text{ cm}^{-1}$  von Zhou [28] benutzt und für  $E_{IP}$  eingesetzt.

Dies kann gleichermaßen für den Bereich zwischen dem Ionisationspotential und dem ersten angeregten Zustand des Ions durchgeführt werden. Hier wurde dann für  $E_{IP}$  in der Formel (47) der Wert  $48730,0(6) \text{ cm}^{-1}$  des ersten angeregten Zustandes von Dy II verwendet [27].

Wird nun in einem modifizierten Spektrum die Zählrate nicht gegen die Wellenzahl, sondern gegen die entsprechend für jeden Messpunkt berechnete effektive Hauptquantenzahl  $n^*$  aufgetragen, so vereinfacht sich die Zuweisung der Peaks zu den jeweiligen Serien, da diese nun im Idealfall äquidistante Abstände haben. Dies liegt daran, dass jedem Peak einer Serie eine Hauptquantenzahl zugeordnet werden kann. Des Weiteren kann im ungestörten Fall der Quantendefekt als nahezu konstant angesehen werden und ist insbesondere bei hohen Hauptquantenzahlen nur sehr schwach von der Energie abhängig.

In Abbildung 17 ist dieses Prozedere für den Bereich unterhalb des Ionisationspotentials und in Abbildung 18 im Bereich unterhalb des ersten angeregten Zustands des Ions durchgeführt worden. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass die effektive Hauptquantenzahl  $n^*$  reziprok proportional zur Wurzel der Energie  $E_{IP} - E_n$  ist. Dadurch werden durch das obige Verfahren Peaks, die weit vom Ionisationspotential entfernt liegen schmal dargestellt und dementsprechend immer breiter, je näher diese am Ionisationspotential liegen. Dieses Verhalten wird insbesondere in Abbildung 17 deutlich. Im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials (Abb. 17) ist deutlich zu erkennen, dass es für  $n^* \leq 30$  schwierig wird Peaks aufgrund des „nadelwaldähnlichen“ Auftretens von nicht explizit einer Rydbergserie zuzuordnenden Peaks zu identifizieren. Zusätzlich ist ersichtlich, dass ab einem  $n^*$  von etwa 61 keine Peakstruktur mehr erkennbar ist, sodass die nachfolgende Rydberganalyse an diesem Punkt abgebrochen werden muss.

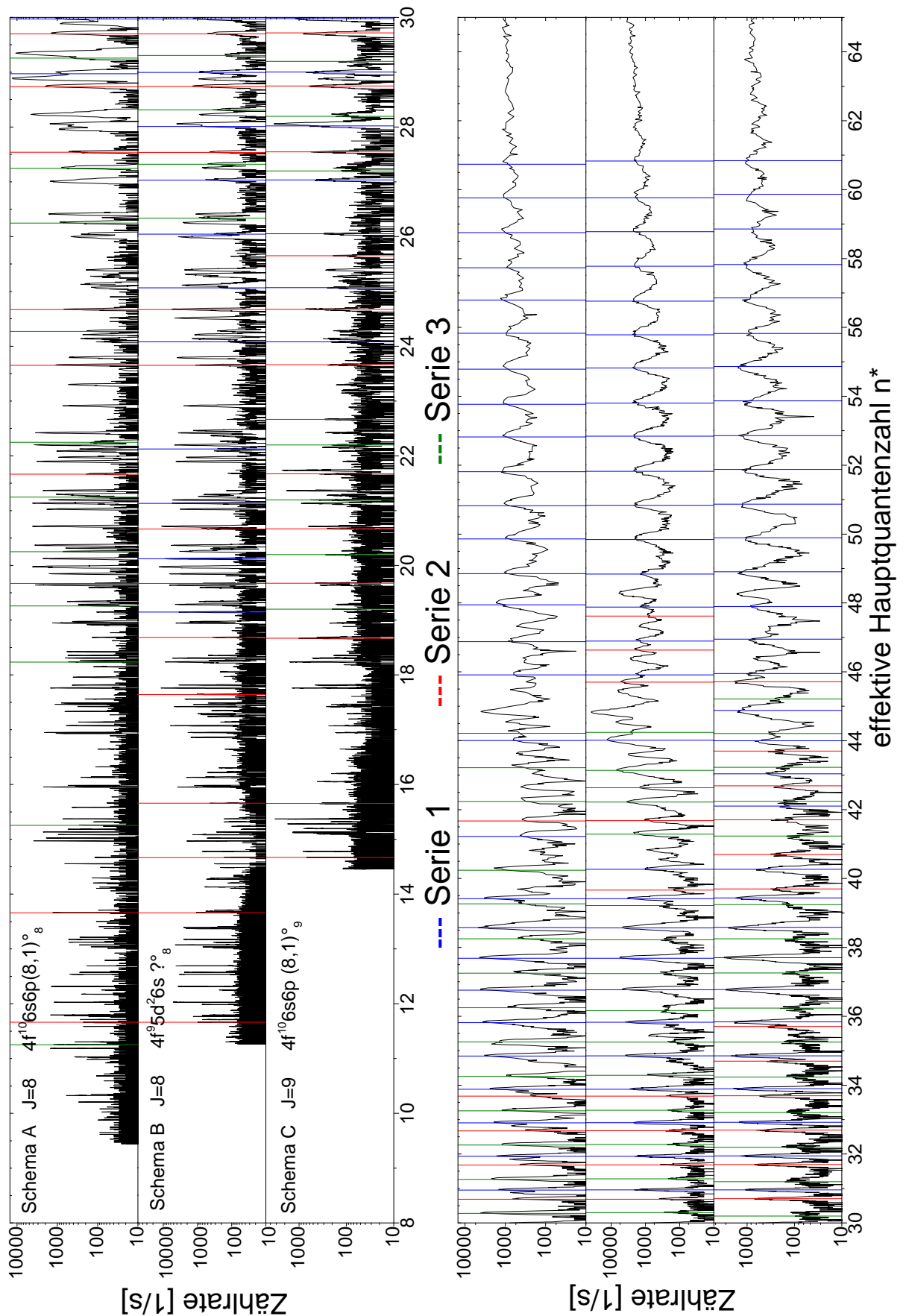


Abbildung 17.: Spektrum des zweiten Anregungsschrittes, Zählrate gegen effektive Hauptquantenzahl im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials. Die oberen drei Graphen zeigen das Spektrum der drei Schemata im Bereich von  $n^* = 8$  bis  $n^* = 30$ , die unteren die Fortsetzung ab  $n^* = 30$ . Die vertikal eingezeichneten Linien kennzeichnen die Peaks welche einer Serie zugeordnet wurden.

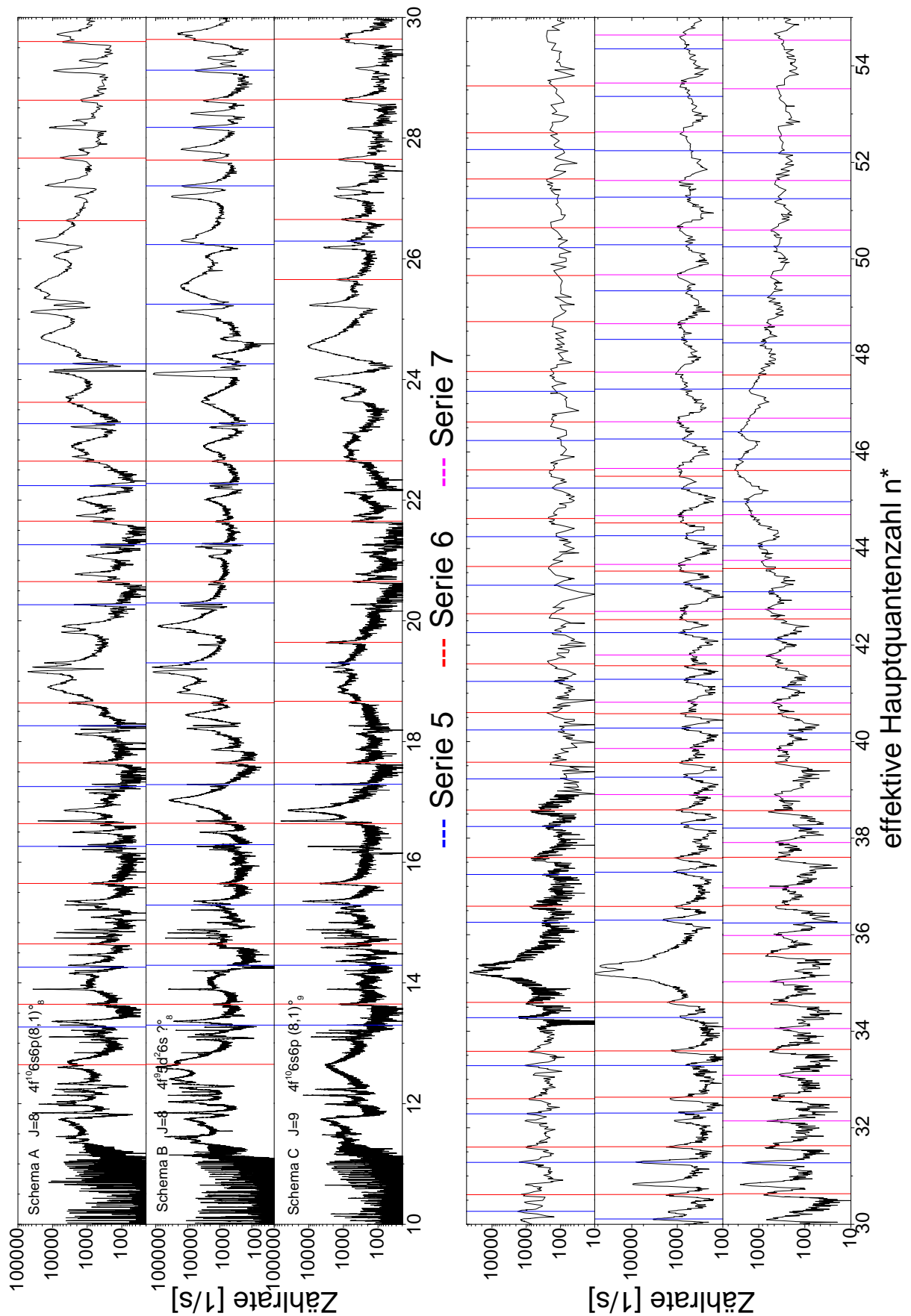


Abbildung 18.: Spektrum des zweiten Anregungsschrittes, Zählrate gegen effektive Hauptquantenzahl im Bereich unterhalb des ersten angeregten Zustandes des Ions. Die oberen drei Graphen zeigen das Spektrum der drei Schemata im Bereich von  $n^* = 10$  bis  $n^* = 30$ , die unteren die Fortsetzung ab  $n^* = 30$ . Die vertikal eingezeichneten Linien kennzeichnen die Peaks welche einer Serie zugeordnet wurden.

Im Bereich unterhalb des ersten angeregten Zustands des Ions (Abb. 18) tritt die Limitierung bereits früher auf, da die hier wohlaufgelösten Peaks, ab einem  $n^*$  von 40 beginnen zusammenzulaufen. Dadurch entstehen breite Peaks, mit einer unaufgelösten Substruktur. Beim Versuch diese zu analysieren ergibt sich allerdings ein hoher Fehler für die mögliche Lage der Peakzentren, was für das Vorhaben einer Bestimmung des Ionisationspotentials nicht dienlich ist.

Zusammengefasst lässt sich aussagen, dass auch in dieser Darstellung eine Zuordnung von Zuständen zu konkreten Serien nicht einfach möglich ist. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass aufgrund der komplexen Atomstruktur die Serien womöglich nicht ungestört sind und damit der Quantendefekt nicht zwangsläufig konstant bleibt. Ob eine Serie gestört ist oder nicht, ist in dieser Darstellung schwer zu erkennen, denn ein vermeintlicher Störer muss nicht zwangsläufig angeregt werden und tritt somit ggf. nicht im Spektrum auf. Die starken Resonanzen im Falle von (Abb. 18) sind hierbei eine Ausnahme.

Trotzdem wurde in Abbildung 17 und Abbildung 18 bereits die erst später festgelegte Zuweisung der Peakpositionen zu Serien eingetragen. Dies wurde zum einen durchgeführt um auf die Position im Spektrum zurückgreifen zu können und hierdurch Erklärungsansätze zu suchen, falls unerwartetes Verhalten der Serie festgestellt wurde. Zum anderen ist diese Darstellung geeignet, um die Unterschiede und Gemeinsamkeiten der Serien verschiedener Spektren gezielt vergleichen zu können. Dass in vielen Fällen die vertikalen Linien die Peaks im Spektrum nicht exakt treffen, lässt sich wie folgt erklären. Die vertikalen Linien beschreiben die Lage der gemittelten Zentren der an den Peaks durchgeführten Gaußfits aus Auf- und Abwärtsmessungen. Da hier nur Auf- oder Abwärtsmessung dargestellt wurden, ist ein gewisser Versatz prinzipiell zu erwarten. Wie zu erkennen ist, wurde in Abbildung 18 auch über den Bereich von  $n^* = 40$  hinaus versucht Peakpositionen zuzuweisen, obwohl hier die Peaks eine schwer erkennbare Substruktur aufweisen. Inwieweit dies sinnvoll ist, wird im zweiten Teil von Kapitel 6.2 diskutiert.

## 6.2. $\delta$ - $n^*$ Konturplot nach Rothe und Friedrich

Eine weitere Möglichkeit Rydbergserien im Spektrum zu lokalisieren, ist ein Konturplot nach Rothe [29]. Hierbei wird, analog wie im vorherigen Kapitel, zunächst für das gesamte Spektrum die effektive Hauptquantenzahl und diesmal zusätzlich der Quantendefekt berechnet. Danach wird der Quantendefekt in Abhängigkeit zur effektiven Hauptquantenzahl aufgetragen und die zugehörigen Zählraten in einer Farbcodierung visualisiert.

Um diese Visualisierung übersichtlicher zu gestalten, wurde zusätzlich der Untergrund abgezogen. Solche  $\delta(n)-n^*$ -Graphen sind in der Literatur ebenfalls zu finden, allerdings sind diese derart lediglich für diskrete Punkte gefitteter Peakpositionen und nicht für die gesamte Kontur dargestellt. In den Abbildungen 19, 20 und 21 wurde beides kombiniert und die Peakpositionen für den Bereich unterhalb des Ionisationspotentials zusätzlich in den vollständigen  $\delta(n) - n^*$  Konturplot eingetragen. Die Punkte, welche vermutlich zur gleichen Serie gehören, wurden mit Splines verbunden, damit man dem Verlauf der einzelnen Serien besser folgen kann. Mögliche ungestörte Rydbergserien würden sich in solch einer Darstellung durch näherungsweise horizontale Linien bemerkbar machen, wenn man wieder annimmt, dass der Quantendefekt innerhalb einer Serie annähernd konstant bleibt.

Friedrich schreibt in seinem Buch „Theoretische Atomphysik“ [9], dass sich ein Störer innerhalb einer Serie durch einen deutlichen Anstieg des Quantendefektes bemerkbar macht. Hierbei erhöht sich der Quantendefekt einer Serie innerhalb eines gewissen, von der Breite des Störers abhängigen Abstands vor und nach dem Störer um genau den Wert +1. Daher wurde in den Konturplots der gleiche Datensatz dreimal übereinander aufgetragen. Einmal gegen das normale  $\delta(n) = n - n^*$  sowie gegen  $\delta(n) + 1$  und  $\delta(n) + 2$ . Dadurch ist es möglich den Verlauf der verschiedenen Serien auch über den Einfluss eines bzw. zweier Störer hinweg zu verfolgen. Gestörte Serien haben in dieser Darstellung einen stufenförmigen Verlauf und sollten weit vor bzw. nach dem Störer näherungsweise wieder horizontal verlaufen. Zusätzlich dazu wurden mögliche Anfangszustände einer Serie, die sogenannten Bandenköpfe der Literatur [26] entnommen und am linken Rand eingetragen. Konfigurationen und Energielagen dieser Zustände wurden im Anhang in den Tabellen 10 und 11 aufgelistet. Die Farbcodierung dieser Einträge entspricht deren Konfiguration. Während die untere x-Achse die effektive Hauptquantenzahl anzeigt, wurde die oberen mit den zugehörigen Werten in Wellenzahlen versehen. Hierbei sei angemerkt, dass die Wellenzahlen in diesem Fall nicht linear sondern reziprok wurzelförmig ansteigen.



### 6.2.1. Serien mit Konvergenz zum ersten Ionisationspotential

Um eine gewisse Übersicht zu bewahren wird zunächst exemplarisch der Graph von Schema C (Abbildung 19) diskutiert. In dieser Abbildung sind insgesamt drei Serien zu erkennen. Serie 1 ist diejenige mit den höchsten Peaks im Spektrum. Sie durchläuft im Bereich von  $n = 35$  bis  $n = 45$  einen starken Anstieg und weist auch in großer Entfernung zum Störer keine wirklich horizontalen Bereiche auf. Diese Serie ist gegenüber den anderen beiden sehr stark, sodass Peaks von Serie 2 und 3 darin bei Termkreuzung untergehen, was insbesondere bei hohen  $n$  der Fall ist. Der weitere Verlauf dieser Serie bei niedrigen  $n$  ist schwer abzuschätzen, da unklar ist, ob diese vielleicht durch weitere Störer beeinflusst wird.

Serie 2 wird zwar gestört, jedoch koppelt der Störer bei  $n = 29$  nur vergleichsweise schwach mit der Serie, sodass sich vor und nach diesem der erwartete horizontale Verlauf einstellt. Die eher schwache Kopplung kann man daran erkennen, dass die Breite der Einflussnahme im Vergleich zu der in Serie 1 beobachteten signifikant geringer ausfällt und die Kopplungsstärke linear mit dieser Breite zusammenhängt [9]. Wie man anhand der Zählratenskala erkennt sind die Peakhöhen von Serie 2 im Vergleich zu denen von Serie 1 deutlich geringer. Serie 3 ist die einzige ungestörte Serie, die einen durchgehend horizontalen Verlauf aufweist, wenngleich diese scheinbar im Bereich kleiner Hauptquantenzahlen aufgespalten wird. Im Bereich größerer Hauptquantenzahlen laufen die beiden sichtbaren Teile von Serie 3 zusammen und verschmelzen zu einer gemeinsamen Serie. Dieses Verhalten lässt sich gut mit den Beobachtungen von Hostetter an Holmium vergleichen [19]. Dieser argumentiert damit, dass dies eventuell Feinstrukturaufspaltungen sind, welche nur bei niedrigen Hauptquantenzahlen aufgelöst werden können.

Anhand der Zählratenskala der Abbildungen 19 ist zu erkennen, dass die verschiedenen Serien sich mitunter sehr unterschiedlich beeinflussen können. Dort werden besonders hohe Zählraten an dem Kreuzungspunkt von Serie 1 und 2 sichtbar. Bei dem Kreuzungspunkt von Serie 1 und Serie 3 liegt jedoch eine stark verringerte Zählrate vor. Insbesondere diese Verringerung der Zählrate ist auch innerhalb des Spektrums als Lücke im Bereich von  $n^* = 41$  in den besonders starken Peaks von Serie 1 zu erkennen und wurde bereits in [7] diskutiert.

Betrachtet man nun zusätzlich Abbildung 20 für Schema A, so sind hier einige Gemeinsamkeiten im Vergleich zu Schema C auszumachen. In Abbildung 20 sind ebenfalls

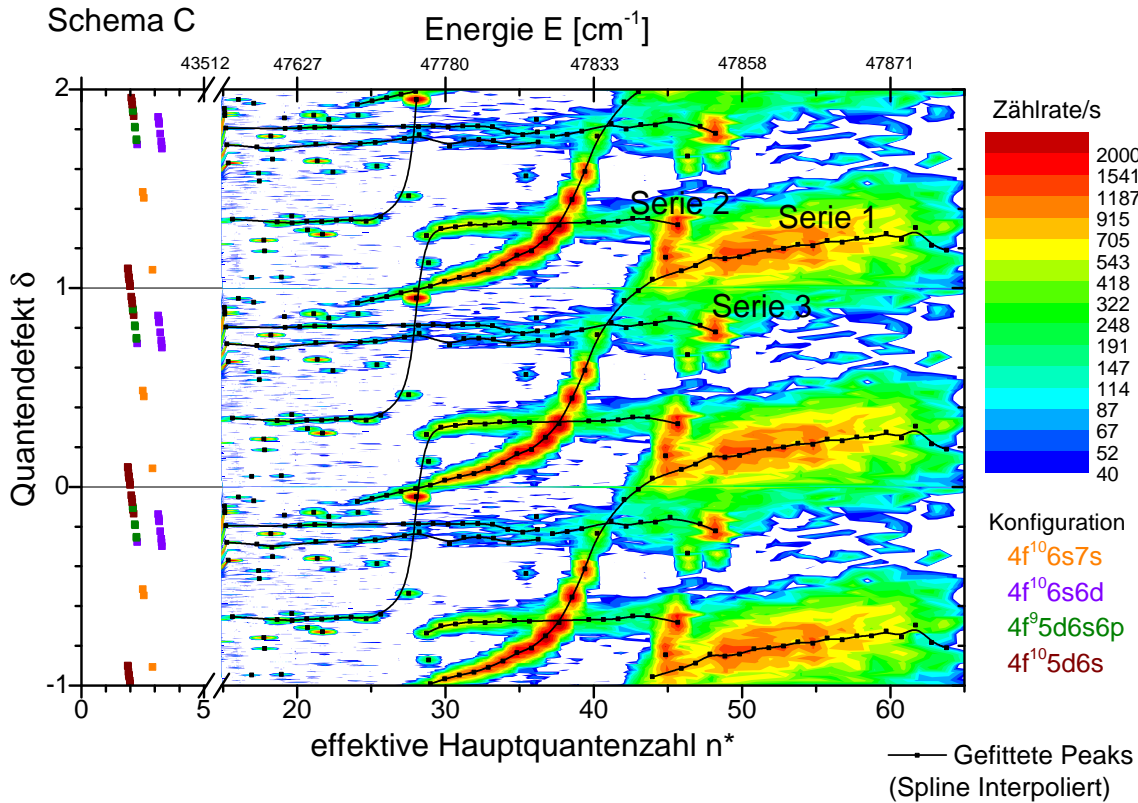


Abbildung 19.: Konturplot für Schema C. Zu sehen ist das Spektrum im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials in einer  $\delta(n)$ - $n^*$ -Darstellung, wobei die Zählrate als Farbcodierung dargestellt wurde. Es sind zusätzlich die gefitteten Peakpositionen eingetragen und serienweise durch Splines verbunden. Zu sehen sind die Rydbergserien 1-3. Mögliche Bandenköpfe befinden sich am linken Rand der Graphik. Weitere Erläuterungen siehe Text.

die in Schema C sichtbaren Serien 1, 2 und 3 sichtbar. Diese zeigen hier ein ähnliches Verhalten, wobei im Falle von Serie 3 in Schema A keine Aufspaltung sichtbar wird. Ansonsten sind sich in Bezug auf Intensität, Lage, Wechselwirkung und Verlauf die Serien 1 bis 3 ziemlich ähnlich. Der einzige Unterschied ist, dass in Schema A eine zusätzliche vierte Serie auftaucht, deren Verlauf dem von Serie 1 ähnelt, deren Intensität jedoch deutlich geringer ist. Serie 4 bewirkt an den Kreuzungspunkten mit den Serie 1 und 2 eine Erhöhung der Zählraten. Die Drehimpulswerte der ersten Anregungsschritte betragen  $J = 8$  für Schema A bzw.  $J = 9$  für Schema C.

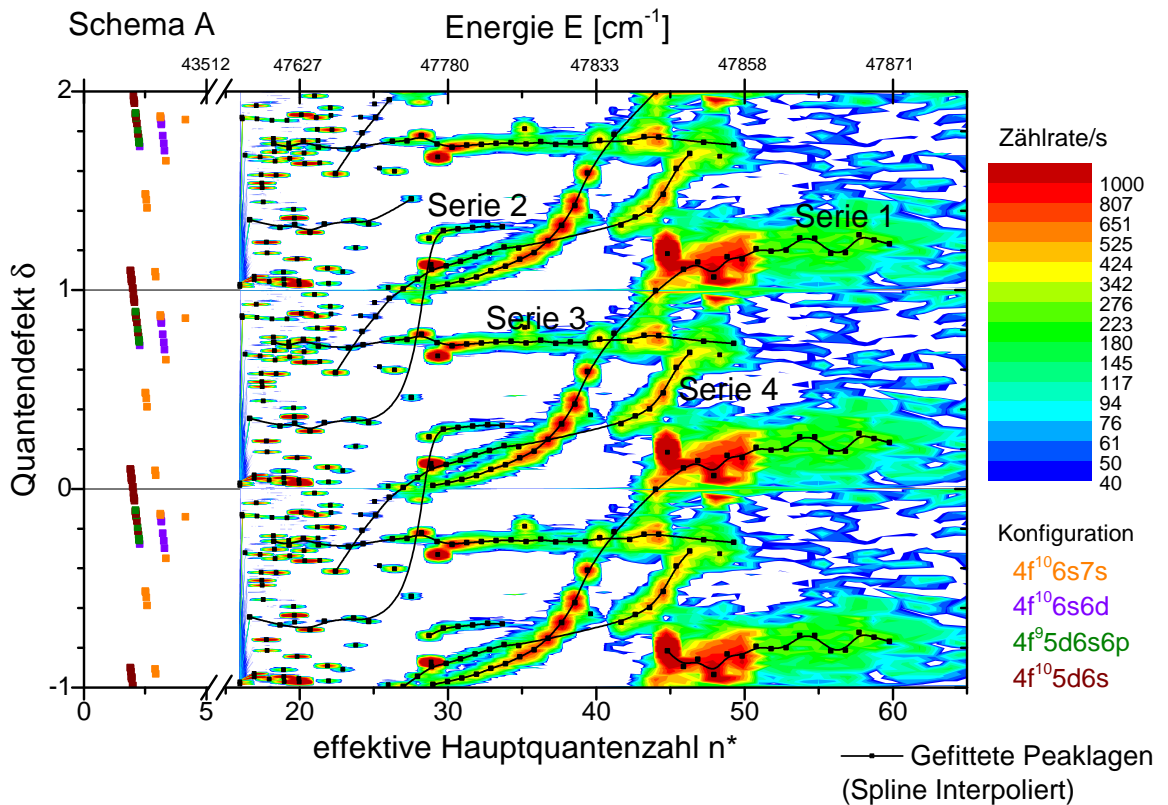


Abbildung 20.: Konturplot für Schema A. Zu sehen ist das Spektrum im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials in einer  $\delta(n)-n^*$ -Darstellung, wobei die Zählrate als Farbcodierung dargestellt wurde. Es sind zusätzlich die gefitteten Peakpositionen eingetragen und serienweise durch Splines verbunden. Zu sehen sind die Rydbergserien 1-4. Die möglichen Bandenköpfe befinden sich am linken Rand der Graphik. Weitere Erläuterungen siehe Text.

Aufgrund der Auswahlregeln ist nur eine Änderung  $\Delta J = 0, \pm 1$  erlaubt. Daher müssen diejenigen Serien, welche in beiden Schemata zu sehen sind ebenfalls ein  $J$  von 8 oder 9 aufweisen. Dies gilt folglich für die Serien 1, 2 und 3. Die, in den Schemata A zusätzliche, vierte Serie ist in Schema C nicht zu sehen. Daher muss diese ein  $J$  von 7 haben.

Im Bereich von  $n^* = 45$  bis  $n^* = 50$  treten in Schema A im Kontrast zu Schema C besonders hohe Zählraten im Bereich von Serie 1 auf. Wie Abbildung 21 zeigt ist dieser Effekt in Schema B um  $n^* = 45$  noch stärker, sodass in diesem Fall ein vertikaler Bereich in dem die Zählrate besonders hoch ist den Konturplot durchzieht. Dies lässt sich in Zusammenhang mit dem zugehörigen Spektrum in den Abbildungen 15

und 17 insofern verstehen, dass an dieser Stelle die Peaks der Rydbergserien auf einer Resonanz liegen. Wie in Abbildung 15 zu sehen ist liegt diese bei  $47840 \text{ cm}^{-1}$  und ist insbesondere in Schema B sehr stark, während man in Schema C keinen nennenswerten Abweichung vom Anstieg aufgrund des externen Feldes ausmachen kann.

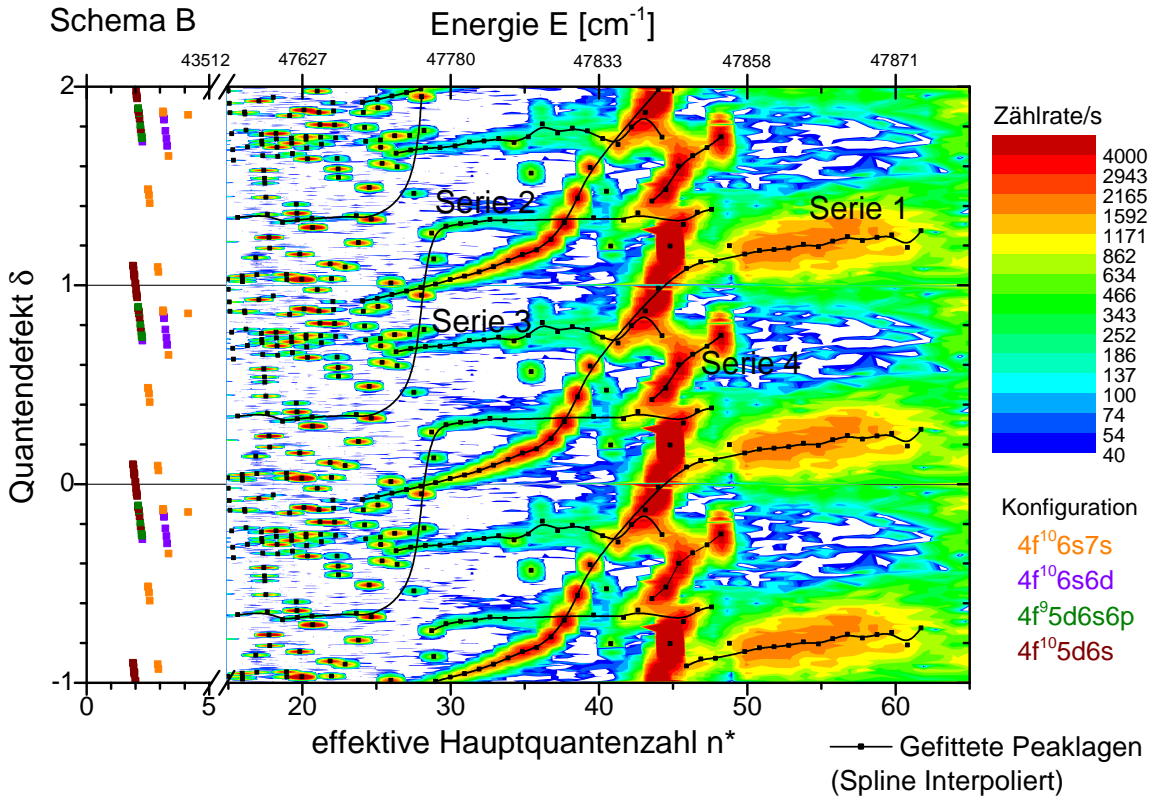


Abbildung 21.: Konturplot für Schema B. Zu sehen ist das Spektrum im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials in einer  $\delta(n)-n^*$ -Darstellung, wobei die Zählrate als Farbcodierung dargestellt wurde. Es sind zusätzlich die gefitteten Peakpositionen eingetragen und serienweise durch Splines verbunden. Zu sehen sind die Rydbergserien 1-4. Die möglichen Bandenköpfe befinden sich am linken Rand der Graphik.

Der Graph von Schema B (Abbildung 19) ist in den restlichen Punkten sehr analog zu demjenigen von Schema A und wird infolgedessen hier nicht weiter diskutiert, da hieraus keine neuen Erkenntnisse erzielt werden können. Aufgrund der guten Übereinstimmung scheint es so, dass die beobachtbaren Rydbergserien und deren Eigenschaften in diesem Fall von dem Gesamtdrehimpuls  $J$  des ersten Anregungsschrittes dominiert werden, während die Konfiguration selbst eine eher untergeordnete Rolle zu spielen scheint.

### 6.2.2. Serien mit Konvergenz zum ersten angeregten Zustand des Ions

Beim Bereich über dem Ionisationspotential kann man die gleichen Grafiken erzeugen, um Serien zu betrachten, welche zum ersten angeregten Zustand des Ions konvergieren. Allerdings erhält man in diesen Darstellungen vertikale Linien. Vermutlich werden diese durch die bereits erwähnten, besonders breiten autoionisierenden Resonanzen erzeugt, welche im Bereich oberhalb des Ionisationspotentials bereits in Abbildung 17 aufgefallen sind. Auch durch das Abziehen des Untergrunds konnte deren Einfluss nicht vollständig kompensiert werden. Im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials verhielten sich die verschiedenen Rydbergserien in allen Schemata ähnlich. Betrachtet man nun jedoch den Bereich über dem Ionisationspotential, so fallen hier deutliche Unterschiede auf.

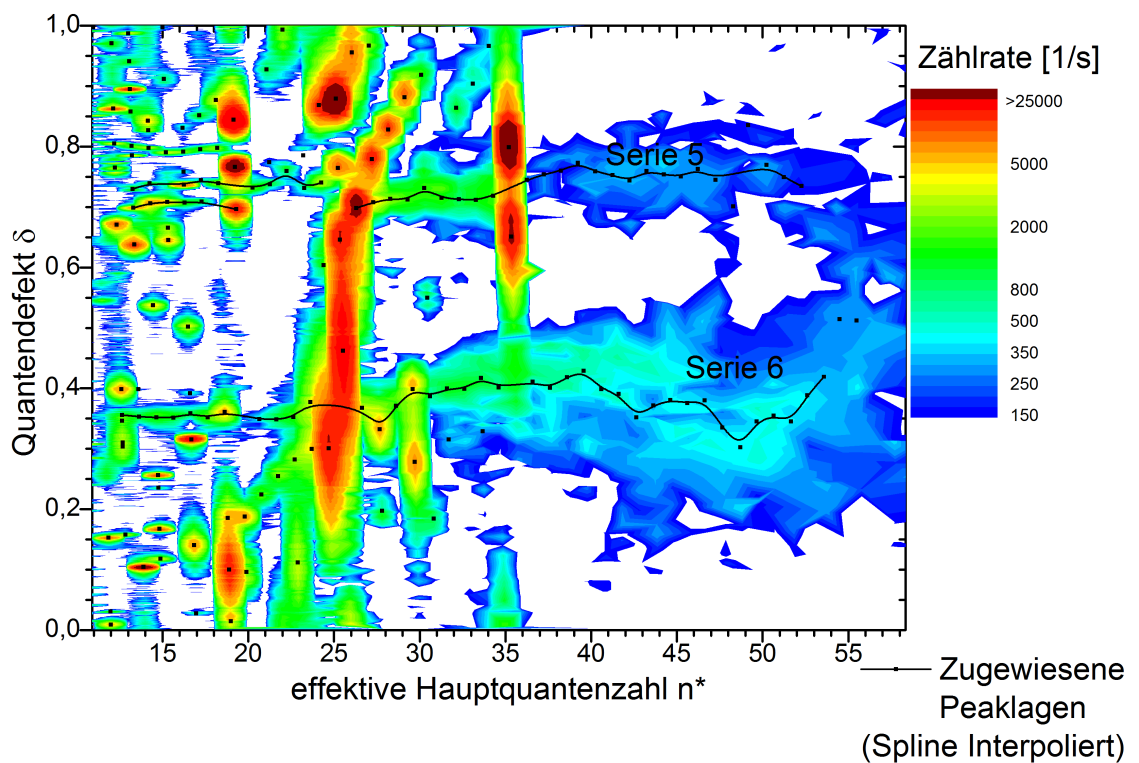


Abbildung 22.: Konturplot für Schema A. Zu sehen ist das Spektrum im Bereich oberhalb des ersten Ionisationspotentials in einer  $\delta(n)-n^*$ -Darstellung, wobei die Zählrate als Farbcodierung dargestellt wurde. Es sind zusätzlich die gefitteten Peakpositionen eingetragen und serienweise durch Splines verbunden. Zu sehen sind die Rydbergserien 5 und 6.

In Schema A (vgl. Abb. 22) sind hier deutlich 2 Serien, Serie 5 und Serie 6 zu erkennen, welche einen horizontalen Verlauf aufweisen. Im Bereich niedriger Hauptquantenzahlen scheint Serie 5 in mehrere Serien aufzuspalten. Ab einer effektiven Hauptquantenzahl von  $n^* = 25$  lassen sich diese nicht mehr trennen und es entsteht eine Serie, die einen leichten Versatz der Quantendefekte bei  $n^* = 35$  aufweist. Dies könnte daran liegen, dass die, bei großen Hauptquantenzahlen unaufgelöste Substruktur der Peaks, den Fit in diesen Bereichen leicht verschiebt.

In Schema B (vgl. Abb. 23) wird Serie 5 durch einen Störer, der um  $n^* = 28$  liegt, beeinflusst. Im Bereich niedriger Hauptquantenzahlen ist hier eine Aufspaltung in mindestens drei Serien sichtbar. Bei Serie 6 ist in diesem Schema ebenfalls eine Aufspaltung unterhalb von  $n^* = 22$  sichtbar. Im Bereich von  $n^* = 37$  bis  $n^* = 46$  erkennt man eine zusätzliche Serie 7, die sich an Serie 6 anschmiegt. Oberhalb dieses Bereiches dominiert diese dann zur Serie 6, sodass hier keine Zustände mehr Serie 6 zugeordnet werden können.

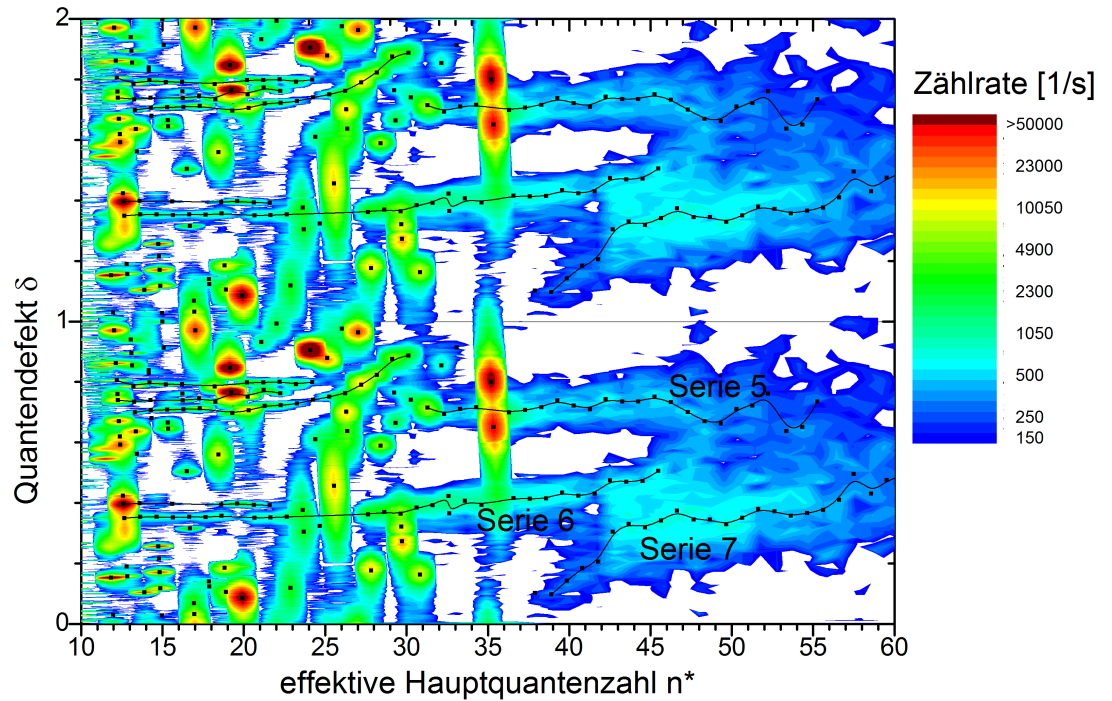


Abbildung 23.: Konturplot für Schema B. Zu sehen ist das Spektrum im Bereich oberhalb des ersten Ionisationspotentials in einer  $\delta(n)-n^*$ -Darstellung, wobei die Zählrate als Farbcodierung dargestellt wurde. Es sind zusätzlich die gefitteten Peakpositionen eingetragen und serienweise durch Splines verbunden. Zu sehen sind die Rydbergserien 5, 6 und 7.

In Schema C (vgl. Abb. 24) spaltet sich Serie 5 ebenfalls in mehrere Serien auf. Diese wird in diesem Schema im Bereich von  $n^* = 40$  bis  $n^* = 50$  gestört. Vermutlich ist dafür die starke Resonanz verantwortlich, die lediglich in diesem Schema bei  $48678 \text{ cm}^{-1}$  vorkommt. Unterhalb von  $n^* = 40$  gestaltet sich eine Zuordnung von weiteren Zuständen zur Serie 5 als schwierig, da hier sehr wenige Datenpunkte vorhanden sind. Die



zusätzliche Serie 7, welche in Schema B Serie 6 überlagert, ist hier ebenfalls zu erkennen. Zu hohen Hauptquantenzahlen hin dominiert auch in diesem Schema diese Serie 7.

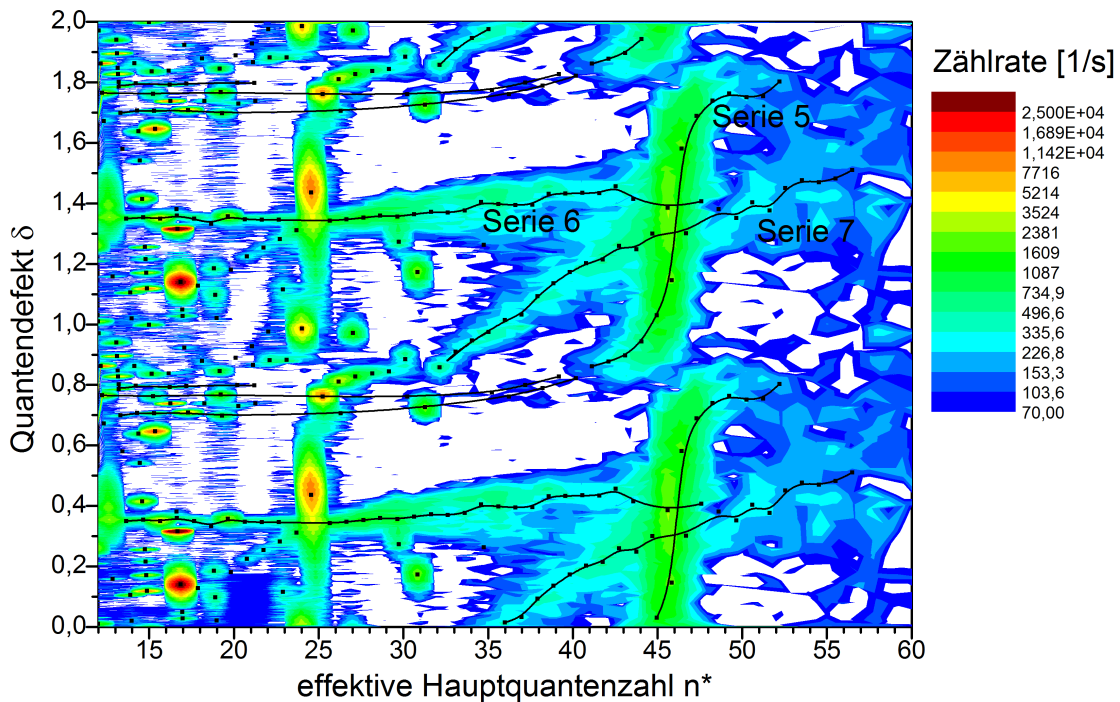


Abbildung 24.: Konturplot für Schema C. Zu sehen ist das Spektrum im Bereich oberhalb des ersten Ionisationspotentials in einer  $\delta(n)$ - $n^*$ -Darstellung, wobei die Zählrate als Farbcodierung dargestellt wurde. Es sind zusätzlich die gefitteten Peakpositionen eingetragen und serienweise durch Splines verbunden. Zu sehen sind die Rydbergserien 5, 6 und 7.

In allen Schemata ist im Bereich höherer Hauptquantenzahlen ein deutliches Schwanken der Quantendefekte und somit eine Abweichung vom erwarteten, horizontalen Verlauf zu verzeichnen. Wie schon erwähnt, liegt dies offensichtlich daran, dass hier die den verschiedenen Serien zugeordneten Zustände im Spektrum nicht mehr richtig voneinander getrennt werden können (siehe Abb. 18). Folglich bleibt in diesen Fällen allerhöchstens der Bereich des Spektrums unterhalb eines  $n^*$  von 40 nutzbar.

Wie anhand der Konturplots ersichtlich wurde, zeigen die Serien, die zum ersten angeregten Zustand des Ions konvergieren im Bereich niedriger Hauptquantenzahlen eine Feinstrukturaufspaltung. Hinzu kommt die Tatsache, dass das Spektrum im gesamten



Bereich von besonders breiten Resonanzen überlagert ist, welche die Rydbergserien stören.

Alle diese Punkte erschweren es signifikant dem Verlauf einer Rydbergserie zu folgen, bzw. die richtigen Zustände den mögliche Serien korrekt zuzuordnen. Alles in allem lässt sich schließen, dass aufgrund dieser Schwierigkeiten die Serien 5, 6 und 7 mit Konvergenz zum ersten angeregten Zustand des Ions sich nicht für eine exakte Bestimmung des Ionisationspotentials eignen. Daher wird mit diesen Serien keine weitere Analyse durchgeführt und es soll sich stattdessen auf die Serien im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials konzentriert werden.

## 7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

Mit Hilfe der theoretischen Voraussagen von U. Fano, deren Ergebnisse in Abbildung 25 zu sehen sind, ist es möglich alleine aus dem Nachkommaanteil des Quantendefektes der Serie sowie der Ordnungszahl des betrachteten Elements, direkt den Absolutwert des Quantendefektes zu ermitteln. Zusätzlich ist es möglich eine Aussage zu treffen, ob eine s-, p-, d- oder f- Serie vorliegt. Für Dysprosium mit einer Ordnungszahl von 66 lässt sich aus Abbildung 25 ablesen, dass für eine d-Serie ein Quantendefekt von ca. 2,8 erwartet wird, während für eine s-Serie ein Quantendefekt von ca. 4,3 vorhergesagt wird [30, S. 61]. Es sei hierbei angemerkt, dass in der Arbeit von Fano der Quantendefekt  $\mu$  genannt wird und die Phasenverschiebung mit dem griechischen Buchstaben  $\delta$  belegt ist!

Für den Fall, dass nur eine von zwei Möglichkeiten auszuschließen ist, kann diese Zuordnung zumindest im Fall der günstig verlaufenden Serien 2 und 3 bereits anhand des aus den Konturplots ablesbaren Wertes für  $\delta(n)$  durchgeführt werden. Somit ist Serie 2 eindeutig eine s-Serie und Serie 3 eine d-Serie. Dies wird durch die später bestimmten, exakten Werte von  $\delta(n)$  wie auch die beobachtete Feinstrukturaufspaltung von Serie 3 nochmals bestätigt.

Da sich die Lanthanoide durch ihre chemisch besonders ähnlichen Eigenschaften auszeichnen, bietet sich hier auch der Vergleich von Dysprosium mit anderen Lanthanoiden an. Vergleicht man hierbei das Verhalten der s- und d- Serie mit Messdaten an Holmium von Hostetter [19], so erkennt man eine verblüffende Ähnlichkeit im Aufspaltungsverhal-

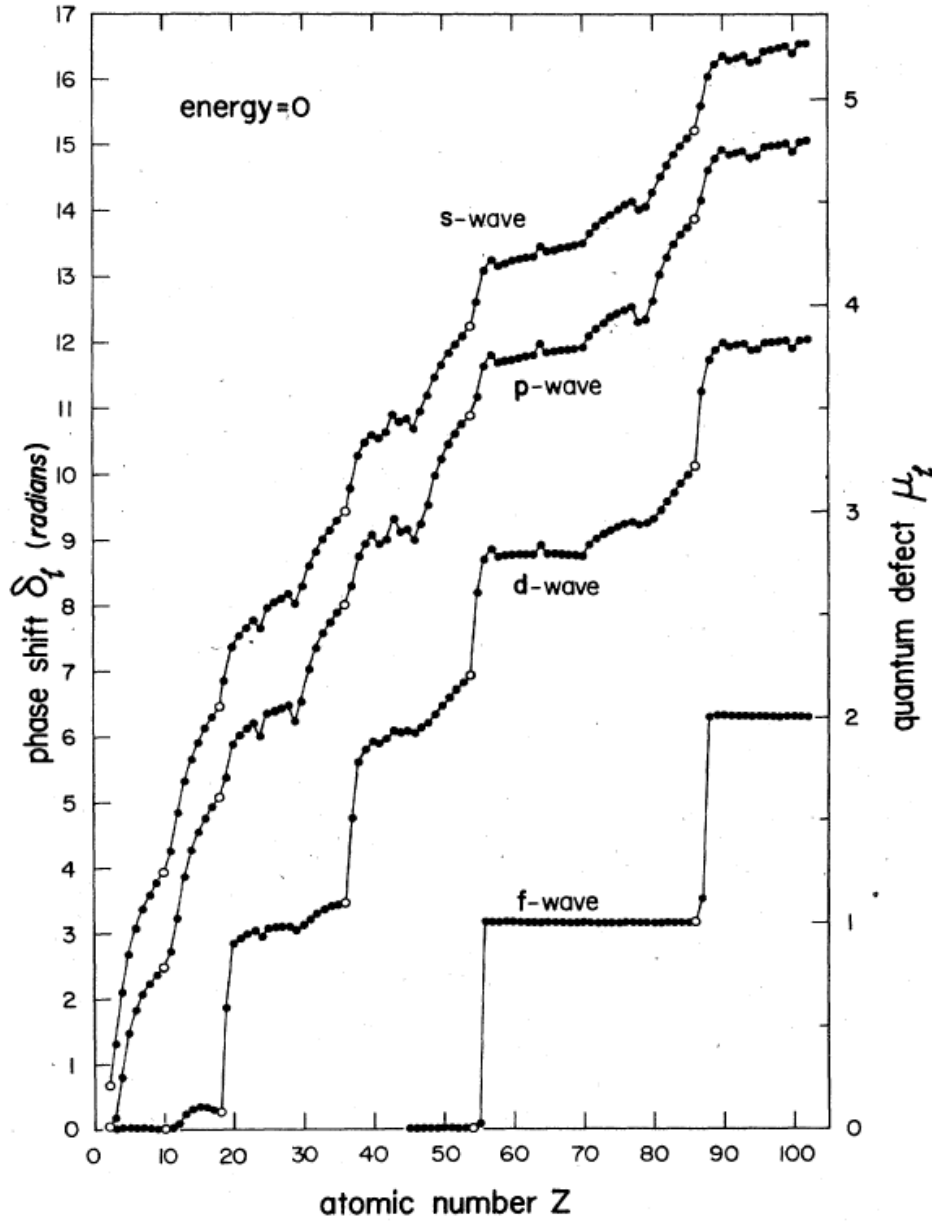


Abbildung 25.: Phasenshift  $\delta_l$  (linke y-Achse) und Quantendefekte  $\mu_l$  (rechte y-Achse) als Funktion der Ordnungszahl  $Z$  und in Abhängigkeit der Bahndrehimpulsquantenzahl  $l$  für sämtliche Atome bei einer Energie von  $E = 0$ . Wobei  $\mu_l = \frac{\delta_l}{\pi}$  gilt [30].

ten der d-Serie sowie die Tatsache, dass auch im Nachbarlement diese ungestört bleibt, während der Verlauf der s-Serie gestört wird. In den nachfolgenden beiden Kapiteln werden die bereits zugewiesenen s- und d-Serien genauer analysiert werden. Anschließend werden die Serien 1 und 4 behandelt.

## 7.1. Analyse der s-Serie (Serie 2)

Die zuvor schon als s-Serie identifizierte Serie 2 zeigt wie erwartet vor und nach dem Störer einen horizontalen Verlauf. Zwischen  $n^* = 34$  und  $n^* = 40$  wird die Serie zusätzlich von Serie 1 gekreuzt, was sich in diesem Fall im Spektrum in einer Überhöhung der Peaks von Serie 1 bemerkbar macht. Die Peaks von Serie 1 sind dabei deutlich höher als die von Serie 2, wie Abbildung 26 zeigt. Energetisch oberhalb dieses Bereichs nehmen die Peaks beider Serien in ihrer Intensität stark ab.

Da, wie schon erwähnt, die s-Serie einen Störer beinhaltet, werden in diesem Kapitel verschiedene Varianten möglicher Fitmethoden getestet und verglichen. Zu jedem Schema wird in diesem Kapitel je einmal eine Analyse in der Darstellung nach Fano und nach Friedrich durchgeführt werden. Zusätzlich werden einmal drei nahe am Störer liegende Datenpunkte beim Fitten ausgelassen und die restliche Serie mit einer Fitfunktion, die keinen Störer berücksichtigt, behandelt, um auch hierdurch einen Vergleich bzgl. der Auswirkung auf die Lage des Ionisationspotentials zu ermöglichen.

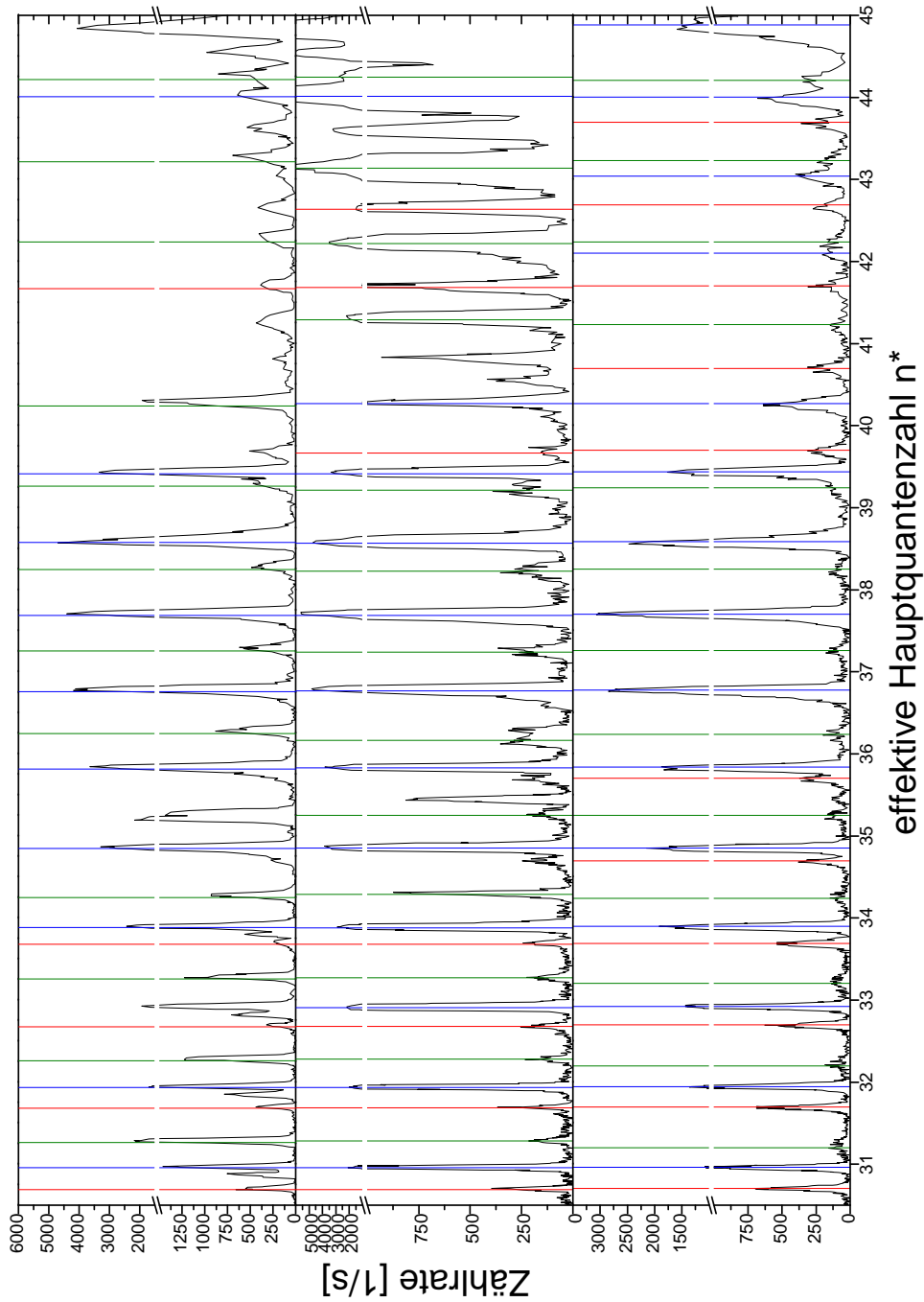


Abbildung 26.: Auschnitt aus dem Spektrum unterhalb des ersten Ionisationspotentials. Der oberste Teilgraph zeigt das Spektrum von Schema A, der mittlere das von Schema B und der unterste das von Schema C. Die vertikalen Linien kennzeichnen die gemittelten Peakpositionen aus Auf- und Abwärtsmessung, weshalb diese nicht immer exakt die Peaks treffen. Die blauen Linien kennzeichnen Peaks der Serie 1, die roten Peaks der Serie 2 und die grünen Peaks der Serie 3.

### 7.1.1. Analyse nach Fano

In den Abbildungen 27, 42 und 45 sind für jedes der betrachteten Schemata A, B und C die Energielagen gegen die Hauptquantenzahl aufgetragen. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass in bisherigen Abbildungen immer gegen die effektive Hauptquantenzahl  $n^*$  aufgetragen wurde. In diesem und den folgenden Kapiteln wird zu einer Auftragung gegen die Hauptquantenzahl  $n$  gewechselt, damit die in den Theoriekapiteln vorgestellten Fitfunktionen angewendet werden können. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird hier exemplarisch in Abbildung 27 das Schema C gezeigt. Die anderen Kurven finden sich im Anhang. Zusätzlich wurden die Daten mit einer Funktion nach Gleichung (26) gefittet. Der in den Abbildungen sichtbare Versatz zwischen  $n = 28$  und  $n = 29$  wird durch den arctan Anteil der Fitfunktion erzeugt und beschreibt somit den Einfluss des Störers. Wie Abbildung 27 aufzeigt passt der Fit sehr gut und die Residuen streuen größtenteils im Bereich von  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  um 0.

Die aus den Fits erhaltenen Parameter sind für alle Schemata in Tabelle 4 zusammengefasst. Der in allen Abbildungen rot eingezeichnete Datenpunkt bei  $n = 29$  könnte der vermeintliche Störer sein, der vom Fit nicht berücksichtigt wurde. In Schema C wurde zusätzlich der Datenpunkt bei  $n = 16$  ausgeschlossen, da dieser wohl doch nicht zur Serie gehört, was an den Residuen deutlich wurde.

	Schema A		Schema B		Schema C	
	Wert	Fehler	Wert	Fehler	Wert	Fehler
$\delta_0$	0,329	0,009	0,330	0,010	0,327	0,005
$\delta_1$	1,1	1	1	1,5	0,95	1
$\Gamma \text{ [cm}^{-1}\text{]}$	2,8	9,4	3	19	3	4
$E_I \text{ [cm}^{-1}\text{]}$	47762	762	47762	1383	47762	309
$E_{IP} \text{ [cm}^{-1}\text{]}$	47901,81	0,07	47901,79	0,10	47901,77	0,03

Tabelle 4.: Zusammenstellung der Parameter, sowie der zugehörigen Fitfehler der an den Energielagen von Serie in Abb. 27, 42 und 45 durchgeführten Kurvenanpassungen nach Gleichung (26) für die Schemata A, B und C.

In allen drei Schemata ist ein ähnliches Verhalten der Residuen auszumachen, welche oberhalb von  $n = 28$  nur minimale Abweichungen von der Fitfunktion zeigen, jedoch unterhalb in deutlichem Maße streuen. Wie an den zugehörigen Fehlern zu erkennen ist, sind die Lagen der Störer  $E_I$ , deren breiten  $\Gamma$  sowie die Korrektur der Abschirmungseffekte  $\delta_1$  in allen drei Schemata mit sehr großen Fehlern belegt. Die Übereinstimmung der Werte untereinander ist dabei exzellent und deutlich genauer als diesen Fehlern entsprechend.

## 7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

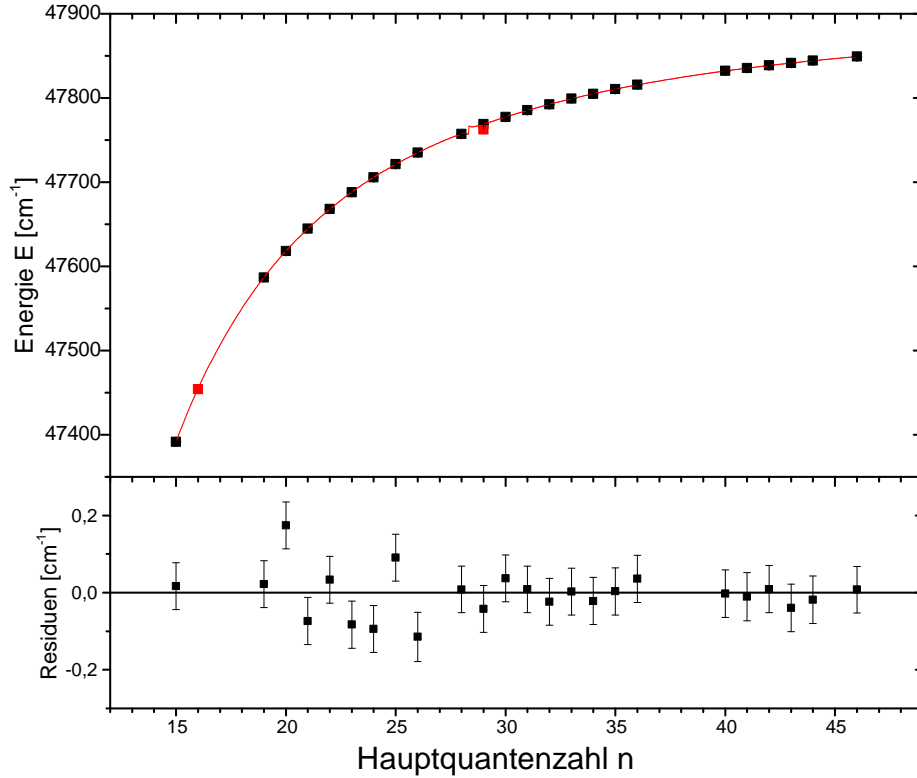


Abbildung 27.: Energielagen der Zustände aus Schema C, die Serie 2 zugeordnet wurden aufgetragen gegen die Hauptquantenzahlen nach Fano. Die Datenpunkte wurden mit einer Funktion nach Gleichung (26) gefittet. Die dazugehörigen Residuen sind im unteren Teilgraphen dargestellt. Die beiden rot markierten Punkte wurden vom Fit ausgeschlossen. Die eingezeichneten Fehler sind die quadratisch aufaddierten Fehler des ersten Anregungsschrittes und des Fehlers der jeweiligen Zentrums Lage aus der Gaußanpassung der Peaks.

Schema C weist die kleinsten Fehler auf und zeigt die besten Residuen. Besonders drastisch erscheint hierbei der Fehler in der Lage des Störers  $\Delta E_I$ . Selbst in Schema C in Abbildung 27, in welchem die Fehler am geringsten sind, würde der Fehlerbalken von  $\pm 309$  Wellenzahlen die gesamte y-Achse der Abbildung von  $47350 - 47900 \text{ cm}^{-1}$  miteinbeziehen. Folglich ist es erstaunlich, dass die Parameter so gut übereinstimmen, obwohl drei Datensätze betrachtet werden, die aus Zuständen resultieren, welche mit drei vollständig unterschiedlichen optischen Anregungsschemata an drei verschiedenen Tagen aufgezeichnet wurden. Insbesondere die drei erhaltenen Werte für das Ionisations-

potential  $E_{IP}$  stimmen im Bereich von  $\pm 0,02 \text{ cm}^{-1}$  überein. Auch die übrigen Parameter sind fast identisch, obwohl hier unterschiedliche Datenpunkte analysiert wurden. Es ist deutlich zu erkennen, dass alle auftretenden Abweichungen vollkommen im Rahmen der angegebenen Fitfehler liegen.

Der in allen Schemata in Tabelle 4 zu sehende positive  $\delta_1$  Parameter ist in Übereinstimmung mit den qualitativen Aussagen von Kessler *et al.* nach denen im Falle einer s-Serie die Quantendefekte mit steigendem  $n$  sinken [14].

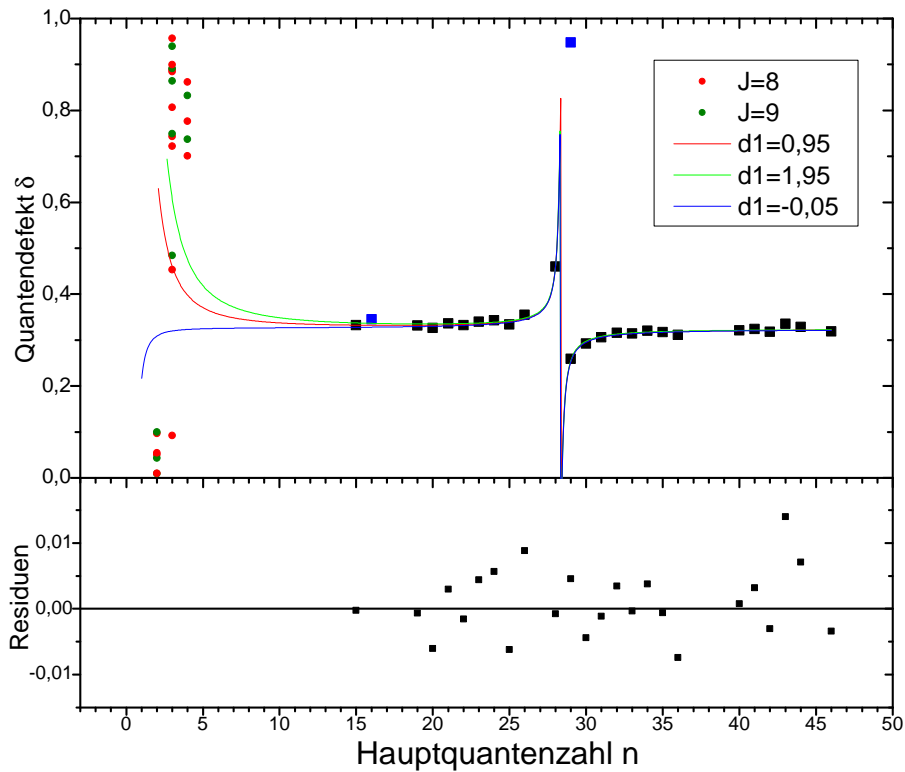


Abbildung 28.: Quantendefekte von Serie 2 aus Schema C gegen die zugehörigen Hauptquantenzahlen, sowie die Positionen möglicher Bandenköpfe mit  $J = 7$  und  $J = 9$  aufgetragen. Mit den Parametern aus Abbildung 27 wurde anhand von Gleichung (25) die rote Kurve erstellt, während die blaue und grüne Kurve den Fehlerbereich des Parameters  $\delta_1$  markieren. Zwei mögliche Bandenköpfe werden identifiziert. Die im unteren Teilgraphen dargestellten Residuen beziehen sich auf die rote Fitkurve.

Infolgedessen müssen diese zu niedrigen  $n$  ansteigen, was anhand der roten Kurve in Abbildung 28 zu sehen ist. Allerdings ist es aufgrund des enormen Fehlers von 100 %, den der Fit diesem Parameter zuschreibt, nicht möglich eine zuverlässige Position eines Bandenkopfes zu bestimmen. In Abbildung 28 sind die Quantendefekte der Serie 2 aus Schema C gegen die zugehörigen Hauptquantenzahlen aufgetragen. Zusätzlich sind am linken Rand die Positionen möglicher Bandenköpfe wie sie in der Literatur [26] zu finden sind dargestellt. Die Farbcodierung dieser beschreibt in diesem Fall deren Gesamtdrehimpuls  $J$ . Da Serie 2 in allen drei Schemata sichtbar ist, können Bandenköpfe mit  $J = 7$  und  $J = 10$  zuvor ausgeschlossen werden. An den Datenpunkten der Rydbergserie wurde eine Kurvenanpassung mit einer Fitfunktion nach Gleichung (25) durchgeführt. Hierbei wurden die Parameter auf die Werte aus Tabelle 4 festgesetzt. Die blau markierten Datenpunkte wurden vom Fit nicht berücksichtigt. Die daraus entstandene Kurve wurde in rot dargestellt und zu den niedrigen Hauptquantenzahlen der Bandenköpfe hin extrapoliert. Aufgrund des großen Fehlers des hierfür ausschlaggebenden Parameters  $\delta_1 = 0,95 \pm 1$  wurden zwei weitere Kurven mit  $\delta_1 = 0,05$  und  $\delta_1 = 1,95$  erstellt, die den Fehlerbereich dieses Parameters darstellen. Genauer als auf diesen Bereich zwischen der blauen und grünen Kurve ist eine Bestimmung möglicher Bandenköpfe mit einem Fehler dieser Größe nicht möglich. Tabelle 5 zeigt die Spezifikationen der Zustände der Punkte, welche in diesem Bereich liegen. Wie man anhand der Abbildung sieht, ist es leider aufgrund des Fehlers des  $\delta_1$  Parameters an dieser Stelle nicht möglich zu sagen, welcher der zwei möglichen Bandenköpfe der richtige sein könnte. Somit kann auch keine weitere Aussage darüber getroffen werden, ob die Serie ein  $J$  von 8 oder 9 hat.

Energie [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n^*$	$\delta$	$n$	Konfiguration	$J$
30560,56	2,51	0,49	2	$4f^{10}(^5I_8)6s7s(^3S_1)$	9
30979,53	2,54	0,46	2	$4f^{10}(^5I_8)6s7s(^3S_1)$	8

Tabelle 5.: Zusammenfassung der möglichen Bandenkopfpositionen auf die sich mit Hilfe von Abbildung 28 eingeschränkt werden konnte.

### 7.1.2. Analyse nach Friedrich

Hier soll nun die gleiche Serie gemäß des Ansatzes nach Friedrich, analysiert werden. In der in Abbildung 29 exemplarisch für Schema C gezeigten Darstellungen, Energie gegen Hauptquantenzahl, ändert sich gegenüber der Darstellung nach Fano lediglich, dass im Bereich oberhalb des vermeintlichen Störers alle Hauptquantenzahlen um 1 erhöht sind.



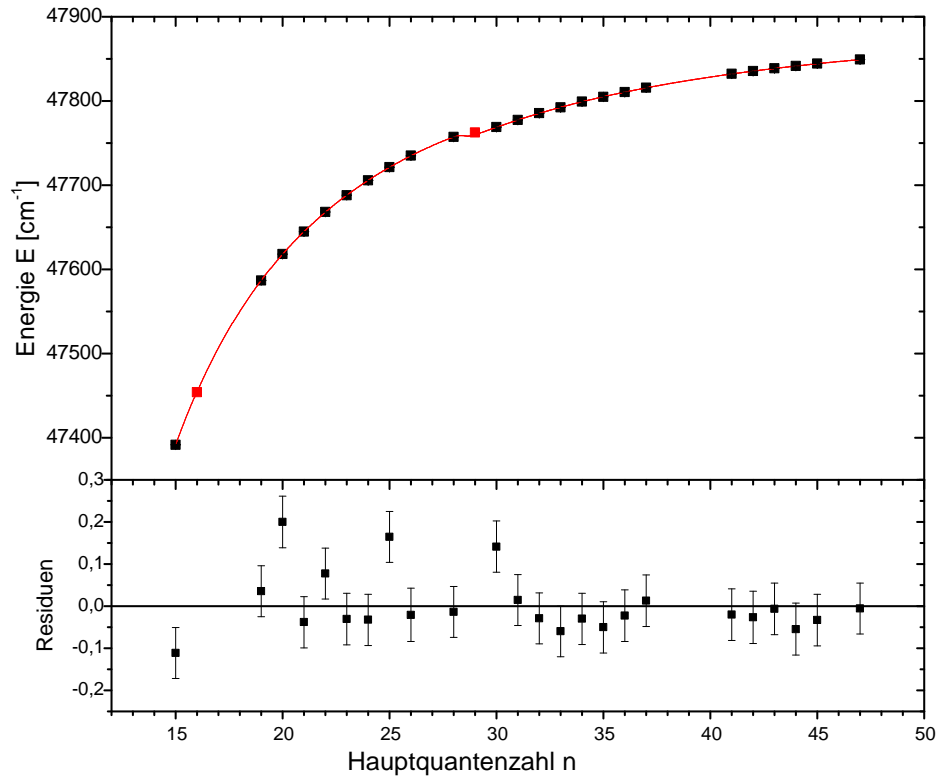


Abbildung 29.: Im oberen Teilgraphen sind die Energielagen der Zustände aus Schema C, die Serie 2 zugeordnet wurden gegen die entsprechenden Hauptquantenzahlen nach Friedrich aufgetragen. Die beiden rot markierten Punkte wurden vom Fit ausgeschlossen. Der rot markierte Punkt bei  $n = 29$  ist der vermeintliche Störer. Im unteren Teilgraphen sind die Residuen aufgetragen, die aus einer Kurvenanpassung nach Gleichung (33) entstehen. In diesem Fall wurde  $\delta_1 = 0$  gesetzt. Die eingezeichneten Fehler sind die quadratisch aufaddierten Fehler des ersten Anregungsschrittes und des Fehlers der jeweiligen Zentrumslage aus der Gaußanpassung der Peaks.

Tabelle 6 fasst die Fitparameter der an Zuständen von Serie 2 durchgeführten Kurvenanpassungen für alle Schemata beider theoretischer Ansätze zusammen. Anhand dieser Tabelle wird ersichtlich, dass die erhaltenen Werte durch die beiden Verfahren gut miteinander übereinstimmen. Vergleicht man die Ergebnisse für das Ionisationspotential, so lässt sich erkennen, dass diese innerhalb des gleichen Schemas um nicht mehr als  $\pm 0,02 \text{ cm}^{-1}$  voneinander abweichen. Vergleicht man die in Tabelle 6 zusammengestellten Ergebnisse zwischen Friedrich und Fanos Methode, so erscheinen beide Verfahren bis

7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

		Schema A		Schema B		Schema C	
		Wert	Fehler	Wert	Fehler	Wert	Fehler
<b>Fano</b>	$\delta_0$	0,329	0,009	0,33	0,01	0,327	0,005
	$\delta_1$	1,1	1	1	1,5	0,95	1
	$\Gamma$ [cm <sup>-1</sup> ]	2,8	9,4	3	19	3	4
	$E_I$ [cm <sup>-1</sup> ]	47762	762	47762	1383	47762	309
	$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]	47901,81	0,07	47901,79	0,10	47901,77	0,03
<b>Friedrich</b>	$\delta_0$	0,328	0,008	0,331	0,008	0,329	0,001
	$\delta_1$	1,2	1	0,8	1,1	0	-
	$\Gamma$ [cm <sup>-1</sup> ]	4,4	0,7	4,6	1,2	4,6	0,3
	$E_I$ [cm <sup>-1</sup> ]	47764	6	47764	9	47764	2
	$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]	47901,81	0,19	47901,78	0,19	47901,78	0,05

Tabelle 6.: Zusammenstellung der Parameter, sowie der zugehörigen Fitfehler der an den Energielagen von Serie 2 durchgeführten Kurvenanpassungen nach Fano und Friedrich für die Schemata A, B und C.

auf die Lage und Breite des Störers, nahezu identische Ergebnisse zu liefern. Dass sich die Lage und Breite des Störers in diesem Fall verändern, ist hierbei nicht verwunderlich, denn schließlich wird in dieser Darstellung eine Lücke für den Störer gelassen, sodass an der möglichen Position des Störers die Punkte der Serie um eine Hauptquantenzahl auseinander geschoben werden. Entscheidende Unterschiede zwischen den beiden Verfahren fallen auf, wenn man die zu den Werten zugehörigen Fehler vergleicht. Der Fehler für  $\delta_1$  ist nach wie vor mit 100 % enorm groß, sodass auch mit diesem Ansatz keine exaktere Festlegung eines Bandenkopfes als im vorherigen Kapitel möglich ist. Daher wird dies auch nicht nochmals durchgeführt, da hier keine Verbesserung zu erwarten ist.

Beachtlich ist jedoch, dass der Fehler für die Breite des Störers  $\Delta\Gamma$  je nach Schema um einen Faktor 13 - 15 geringer ist als in der Darstellung nach Fano. Zudem ist der Fehler für die Lage des Störers  $\Delta E_I$  in dieser Darstellung im Vergleich zu Fano in Schema A ca. um einen Faktor 120, in den Schemata B und C um ca. einen Faktor 150 kleiner. Somit ist dem Verfahren von Friedrich der Vorzug zu geben, insbesondere da sich die Fehler für den Wert des Ionisationspotentials lediglich um etwa einen Faktor zwei vergrößern. Des Weiteren lässt sich in dieser Darstellung, die schon in den Kapiteln 6.2 verwendet wurde, der Verlauf der Rydbergserien besser nachvollziehen.

### 7.1.3. Analyse ohne Störterme

Um zu verstehen, inwiefern sich das Hinzunehmen zusätzlicher Terme zur Behandlung von Störern auswirkt, und um den Vergleich mit ungestörten Serien zu erleichtern, wurden jeweils drei Punkte um den vermeintlichen Störer ausgelassen, um die Funktion von Gleichung (20) für den Fit der Daten verwenden zu können. Insofern ist es möglich mit der Kenntnis der etwaigen Lage des Störers auch gestörte Serien, analog zu einem ungestörten Fall zu behandeln. Der Verlust von Datenpunkten ist in diesem Fall wohl eher unkritisch, da zwar drei Datenpunkte entnommen werden, dafür aber auch zwei Fitparameter weniger in Gleichung (20) vorkommen.

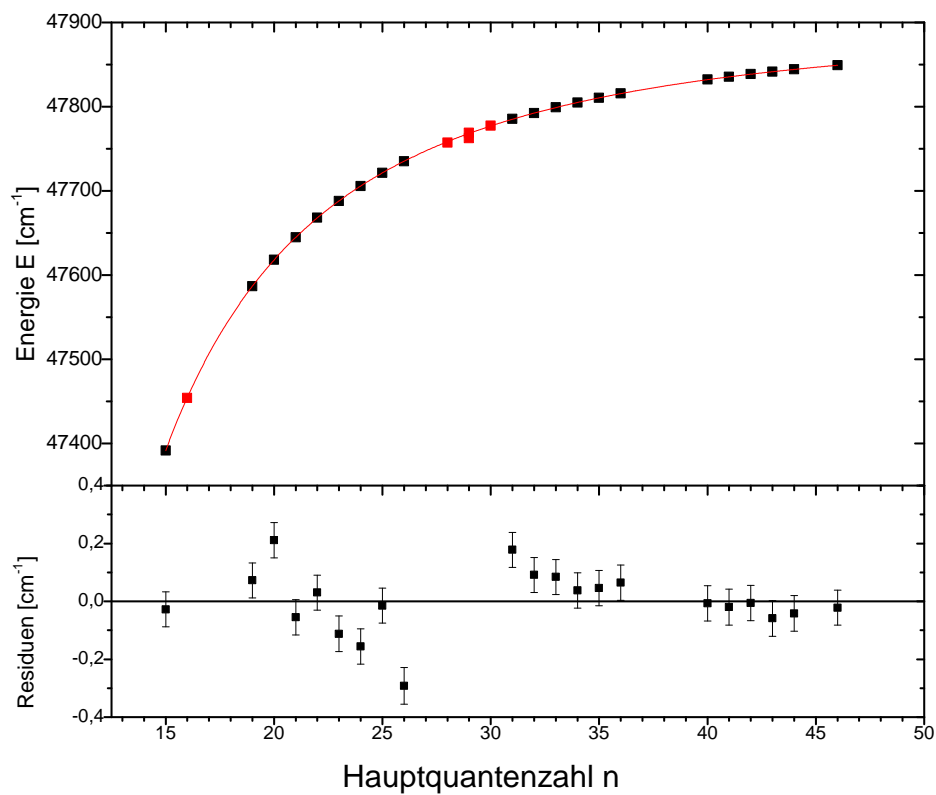


Abbildung 30.: Dargestellt sind die Energielagen der Zustände aus Schema C, die Serie 2 zugeordnet wurden und gegen die Hauptquantenzahlen nach Fano aufgetragen sind. Es wurden drei Datenpunkte im Bereich des Störers, sowie dieser selbst vom Fit ausgenommen, diese liegen im Bereich von  $n = 28$  bis  $n = 30$  und sind rot gekennzeichnet. Die Residuen sind das Ergebnis einer Kurvenanpassung durch Gleichung (20).

7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

		Schema A		Schema B		Schema C		
		Wert	Fehler	Wert	Fehler	Wert	Fehler	
	Fano	$\delta_0$	0,329	0,009	0,33	0,01	0,327	0,005
		$\delta_1$	1,1	1	1	1,5	0,95	1
		$\Gamma$ [cm <sup>-1</sup> ]	2,8	9,4	3	19	3	4
		$E_I$ [cm <sup>-1</sup> ]	47762	762	47762	1383	47762	309
		$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]	47901,81	0,07	47901,79	0,10	47901,77	0,03
	Friedrich	$\delta_0$	0,328	0,008	0,331	0,008	0,329	0,001
		$\delta_1$	1,2	1	0,8	1,1	0	-
		$\Gamma$ [cm <sup>-1</sup> ]	4,4	0,7	4,6	1,2	4,6	0,3
		$E_I$ [cm <sup>-1</sup> ]	47764	6	47764	9	47764	2
		$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]	47901,81	0,19	47901,78	0,19	47901,78	0,05
kein Störterm	$\delta_0$	0,343	0,006	0,338	0,008	0,341	0,006	
	$\delta_1$	-0,7	0,9	-0,006	1,1	-1,7	1,4	
	$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]	47901,94	0,08	47901,83	0,11	47901,84	0,05	

Tabelle 7.: Zusammenfassung aller Fitergebnisse für Serie 2 aller Schemata.

Durch Betrachtung der Residuen wird zum einen ersichtlich, dass nun deutlich weniger Punkte im Rahmen ihrer Fehler mit Null übereinstimmen, als in den Methoden von Fano und Friedrich. Des Weiteren zeigen die Residuen eine deutliche systematische Abweichung vor und nach der Position des Störers bei  $n = 29$ , was schlussfolgern lässt, dass dessen Auswirkung doch weiter eingreift als angenommen.

Betrachtet man die Werte für das Ionisationspotential und Quantendefekte in der alle Methoden umfassenden Tabelle 7 so wird ersichtlich, dass bei allen Schemata die erhaltenen Werte systematisch höher liegen. Insbesondere in Schema C in dem die Fehler am kleinsten sind, ist diese Methode nicht im Rahmen der Fehler mit denen von Fano und Friedrich vereinbar. Zudem ist der Parameter  $\delta_1$  in allen Fällen negativ und nicht wie erwartet positiv. Der Fehler für diesen Parameter liegt wie bei allen Verfahren in der Größenordnung des Wertes selbst oder sogar deutlich darüber. Setzt man diesen Parameter allerdings auf die Werte aus den Anpassungen nach Fano oder Friedrich fest, so liefern auch die Anpassungen ohne Störer ähnliche Ergebnisse für das Ionisationspotential wie bei Fano und Friedrich.

Als Fazit lässt sich konstatieren, dass die Behandlung ohne Störer auch unter Wegnahme der nahe am Störer liegenden Punkte sowohl anhand der Residuen als auch anhand der ermittelten Resultate deutlich schlechtere Ergebnisse liefert. Bei der Methode von Fano hingegen waren die Fehler für Lage und Breite des Störers extrem groß, sodass die Methode von Friedrich in diesem Fall den anderen beiden klar überlegen erscheint.

## 7.2. Analyse der d-Serie (Serie 3)

Serie 3 ist im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials die einzige Serie, die durch keinen Störer beeinflusst wird. Aufgrund dessen gestaltet sich hier die Analyse bezüglich der Wahl der Fitfunktion als besonders einfach, da lediglich der Term zur Berücksichtigung der Abschirmungseffekte in der Fitfunktion berücksichtigt werden muss. Daher kann hier zum Fitten Gleichung (20) verwendet werden. Jedoch weist diese Serie eine andere Art von Besonderheit auf, welche diskutiert werden sollte.

Wie in Abbildung 19 im Falle von Schema C zu erkennen ist, besteht Serie 3 aus mindestens 2 verschiedenen Rydbergserien, welche etwa bei einer Hauptquantenzahl von  $n=35$  zu einer verschmelzen. Vergleicht man dies mit den Serien, die von Hostetter an Holmium analysiert wurden, so ist dort ebenfalls eine d Serie sichtbar, welche aufgrund der Feinstruktur mehrfach aufspaltet [19]. Diese Begründung kann analog an der d-Serie des Holmium Anwendung finden. Das Zusammenlaufen der in diesem Falle sichtbaren Serien wird dadurch hervorgerufen, dass mit den verwendeten Lasern aufgrund deren Linienbreite die mit  $n^*$  abnehmende Feinstrukturaufspaltung ab einer bestimmten Hauptquantenzahl nicht mehr aufgelöst werden kann. Ein ähnliches Verhalten wurde bereits bei den Serien der autoionisierenden Resonanzen beobachtet.

Eine weitere Erklärung für den deutlichen Versatz in den Residuen zwischen  $n = 35$  und  $n = 40$  in Schema C ist die Tatsache, dass die dafür verantwortlichen Peaks alle in dem energetischen Bereich liegen, in dem Serie 1 sehr stark ist und sich bis zum Kreuzungspunkt bei  $n = 40$  annähert und Serie 2 abgeschwächt wird. Die Peaks der Serie 3 sind in diesem Bereich in Schema C sehr klein und daher besonders schwer zu fitten (siehe Abbildung 26), sodass hier der angegebene Fehler der Fitroutine für die Lage des Peakzentrums diesen Fehler mit Sicherheit unterschätzt.

In den Abbildungen 31 und 32 wurden die Peakpositionen der zur d-Serie zugeordneten Zustände von Schema A und C dargestellt und mit Hilfe von Formel (20) gefittet. In Abbildung 31 ist hierbei eine Systematik in den Residuen zu erkennen, denn im Bereich von  $n = 28$  bis  $n = 34$  liegen diese alle unter Null, während sie im Bereich von  $n = 35$  bis  $n = 40$  allesamt über Null liegen. Dieser Versatz wird durch einen der am Anfang des Kapitels erläuterten Effekte hervorgerufen und kann von den vorgestellten Fitfunktionen nicht berücksichtigt werden. Hierbei ist anzumerken, dass die Fitfunktion diese Schwankungen der Residuen durch den Parameter  $\delta_1$  im Falle von Schema C auszugleichen versucht. Dieser Parameter ist aber dafür gedacht Abschirmungseffekte des Kerns bei niedrigen Hauptquantenzahlen zu korrigieren.

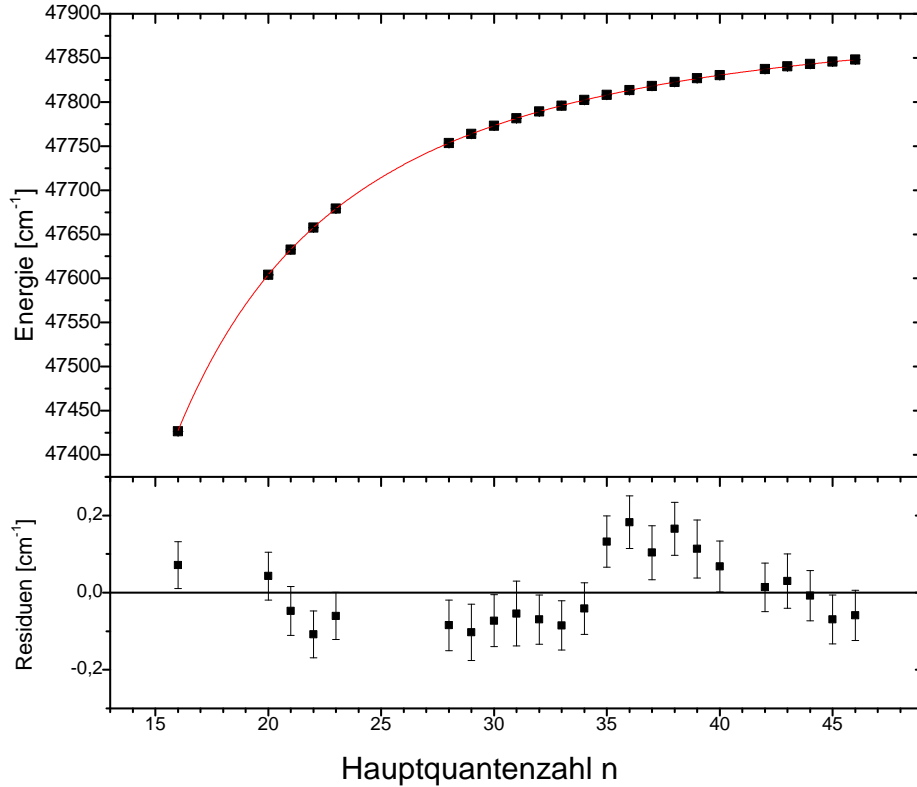


Abbildung 31.: Energielagen der Zustände die Serie 3 in Schema C zugeordnet wurden aufgetragen gegen die Hauptquantenzahl nach Fano. Die Residuen resultieren aus einer Kurvenanpassung nach Gleichung (20) mit  $\delta_1 = 0$ . Die Fehler, die vom Fit berücksichtigt wurden, setzen sich zusammen aus dem Fehler des ersten Anregungsschrittes, sowie dem jeweiligen Fehler für die Lage des Zentrums aus der Gaußanpassung.

Daher ist es sinnvoll in diesem Fall keine Korrekturterme zweiter Ordnung zu verwenden und es wurde  $\delta_1 = 0$  gesetzt. Mit dieser Einschränkung sind die aus den Fits dieser beiden Serie enthaltenen Werte für das Ionisationspotential in guter Übereinstimmung im Rahmen der Fehler, wie Tabelle 8 zeigt. Zu den aus dem vorigen Kapitel erhaltenen Werte mit der Methode von Friedrich von  $47901,81 \text{ cm}^{-1}$  im Falle von Schema A und  $47901,78 \text{ cm}^{-1}$  im Falle von Schema C zeigen diese beiden Werte lediglich eine Abweichung von  $0,03 \text{ cm}^{-1}$ , die selbst im Rahmen der sehr kleinen Fitfehler liegen die durch die Kurvenanpassung der d-Serie entstehen. Wie zu erkennen ist, weisen die Serien aus Schema A und C einen deutlich unterschiedlichen  $\delta_0$  Parameter auf, der im Rahmen der Fehler aus Tabelle 8 nicht übereinstimmt. Grund hierfür ist vermutlich der bereits erwähnte Sprung in den Quantendefekten der Serie aus Schema C im Bereich um  $n = 35$ .

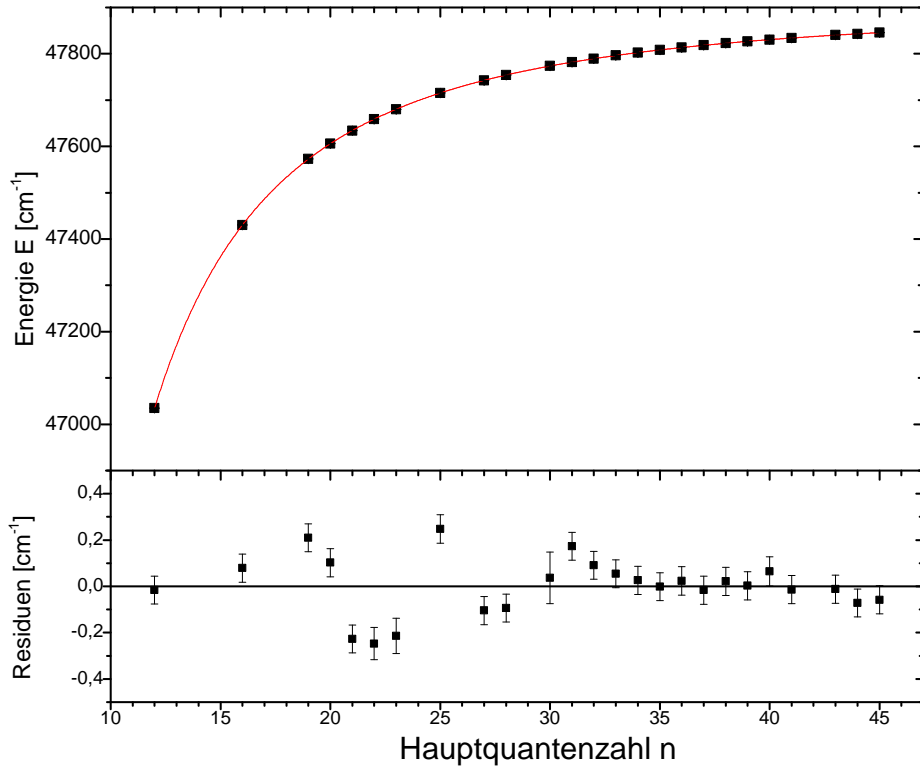


Abbildung 32.: Energielagen der Zustände die Serie 3 in Schema A zugeordnet wurden aufgetragen gegen die Hauptquantenzahl nach Fano. Die Residuen resultieren aus einer Kurvenanpassung nach Gleichung (20). Die Fehler die, vom Fit berücksichtigt wurden, setzen sich zusammen aus dem Fehler des ersten Anregungsschrittes, sowie dem jeweiligen Fehler für die Lage des Zentrums aus der Gaußanpassung.

Schema	$\delta_1$	$\delta_0$	$\Delta\delta_0$	$\delta_1$	$\Delta\delta_1$	$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]	$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]
A	freies $\delta_1$	0,739	0,004	1,1	0,5	47901,78	0,04
A	festes $\delta_1$	0,747	0,001	0	-	47901,85	0,03
C	freies $\delta_1$	0,816	0,005	-2,5	1,2	47901,85	0,03
C	festes $\delta_1$	0,805	0,001	0	-	47901,80	0,03
B	freies $\delta_1$	0,82	0,08	-113	50	47901,70	0,2
B	festes $\delta_1$	0,63	0,01	0	-	47901,25	0,08

Tabelle 8.: Zusammenfassung der Fitparameter und deren Fehler aus den Kurvenanpassungen von der Zustände von Serie 3 aller Schemata. Die Schemata sind je zweimal aufgeführt. Einmal wurde der  $\delta_1$  Parameter auf den Wert 0 festgesetzt und einmal frei gelassen.

## 7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

Die Messdaten von Serie 3 in Schema B wurden ebenfalls mit der gleichen Fitfunktion behandelt (siehe Abbildung 33), allerdings ergibt sich hier ein völlig unrealistischer Wert von  $\delta_1 = -113$ . Eine Fortsetzung der Fitfunktion zu möglichen Bandenköpfen zeigt auf, dass dieser drastisch von einer realistischen Beschreibungen abweicht. Dies liegt offensichtlich daran, dass hier mit dem  $\delta_1$  Parameter der Anstieg in den Werten von  $\delta(n)$ , den die Rydbergserie in diesem Schema mit steigender Hauptquantenzahl  $n$  im gesamten Bereich von  $27 \leq n \leq 45$  aufweist (siehe Abb. 34), ausgeglichen wird. Da in diesem Falle Zustände erst ab  $n = 27$  zugeordnet werden konnten, sollte analog zu Schema C der Korrekturterm zweiter Ordnung  $\delta_1$  vernachlässigt werden können. Dadurch erhält man allerdings einen Wert für das Ionisationspotential, der um etwa  $0,6 \text{ cm}^{-1}$  von den Werten von Schema A und C abweicht, wie man in Tabelle 8 sieht.

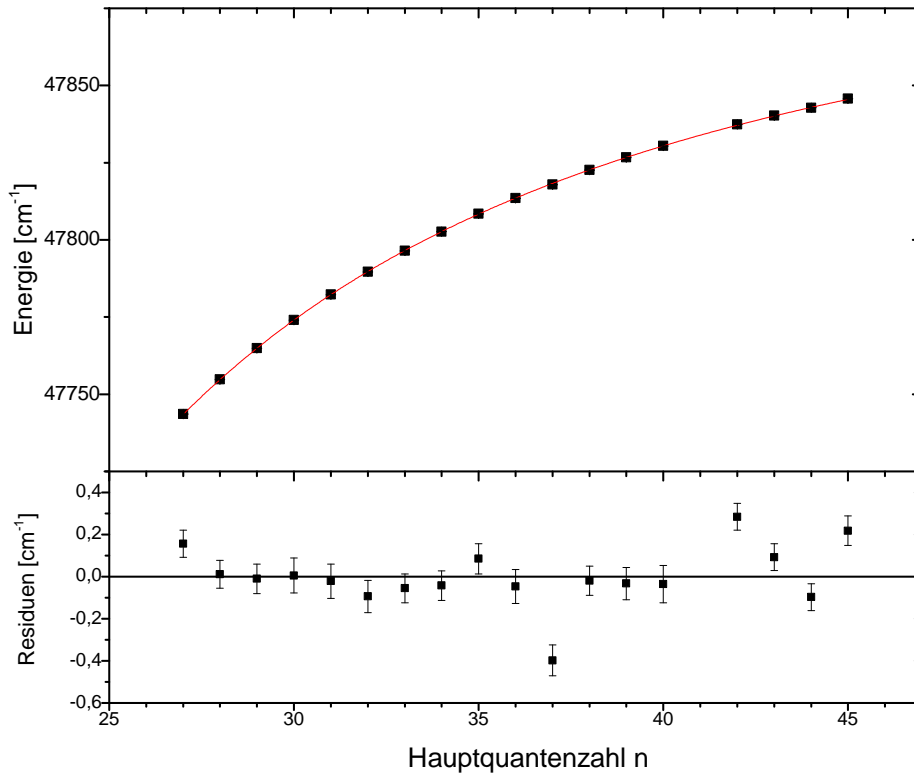


Abbildung 33.: Energielagen der Zustände, die Serie 3 in Schema B zugeordnet wurden, aufgetragen gegen die Hauptquantenzahlen nach Friedrich. Bei dieser Serie konnten keine Punkte unterhalb von  $n = 27$  zugeordnet werden. Die Residuen beziehen sich auf einen Fit mit einer Funktion nach Gleichung (20).



Betrachtet man den Graphen in Abbildung 34, so erkennt man, dass die grün markierten Punkte, welche gerade diejenigen von Serie 3 sind einen leichten Anstieg zu höheren Quantenzahlen aufweisen. Weist eine Rydbergserie solch einen Verlauf auf, so ist es höchst problematisch, wenn bei dieser Datenpunkte fehlen, denn die Fitfunktion wird in diesem Falle den Wert für das Ionisationspotential so lange variieren, bis die Serie einen geradlinigen Verlauf annimmt. Dies funktioniert aber lediglich in einem lokal kleinen Bereich und insbesondere bei hohen Hauptquantenzahlen, denn die Quantendefekte von Zuständen niedriger Hauptquantenzahlen werden von leichten Änderungen des Ionisationspotentials eher gering beeinflusst. Abbildung 35 zeigt, was passiert, wenn man

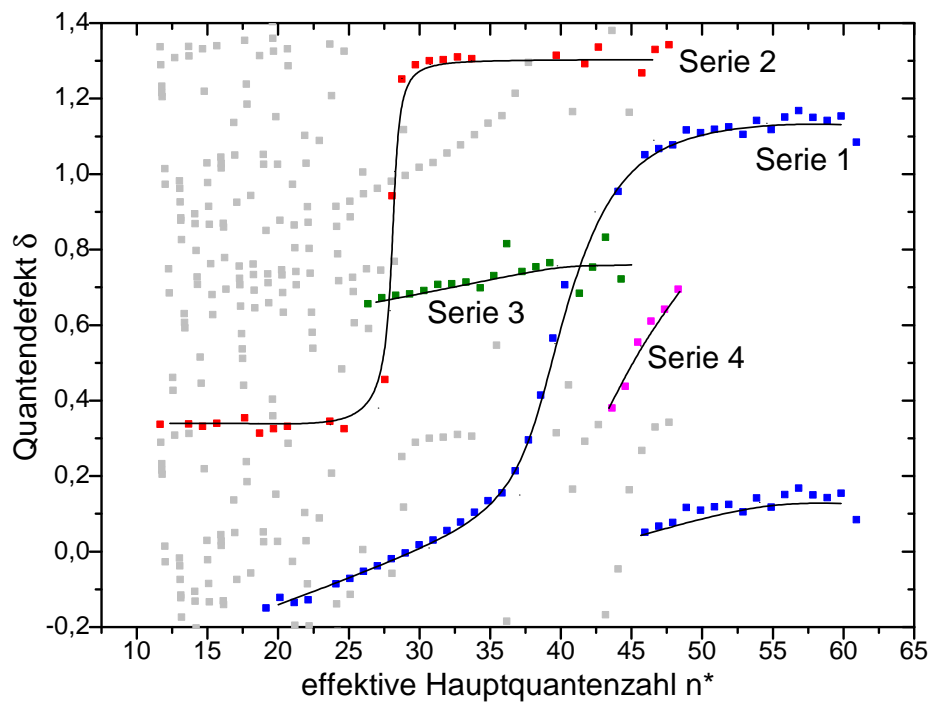


Abbildung 34.: Peakposition der Zustände aus Schema B, die Quantendefekte und Hauptquantenzahlen wurden nach Friedrich mit dem vorläufigen Wert des Ionisationspotentials von Zhou [28] von  $47901,7 \pm 0,6 \text{ cm}^{-1}$  berechnet.

den Wert des Ionisationspotentials von  $E_{IP} = 47901,25 \text{ cm}^{-1}$  aus dem Fit der Serie 3 aus Schema B (siehe Tabelle 8) zur Berechnung von effektiven Hauptquantenzahlen und Quantendefekten verwendet. Wie beschrieben, ändert sich im Bereich der niedrigen Hauptquantenzahlen an der Lage der Punkte im Vergleich zur linken Abbildung relativ

## 7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

wenig. Auffallend ist jedoch, dass nun die komplette Serie 3 einen horizontalen Verlauf aufweist, während die Quantendefekte von Serie 1 und 2 im Bereich höherer Hauptquantenzahlen vergleichsweise stark abfallen und der Erwartung widersprechen.

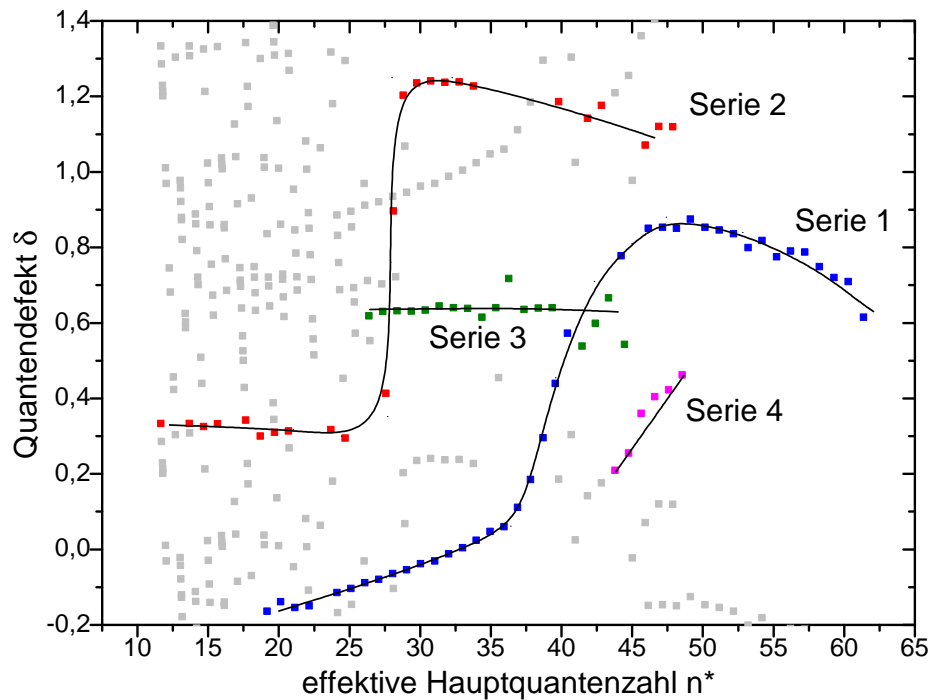


Abbildung 35.: Peakposition der Zustände aus Schema B, die Quantendefekte und Hauptquantenzahlen wurden nach Friedrich mit dem Wert des Ionisationspotentials von  $47901,25 \text{ cm}^{-1}$  berechnet.

Aus diesen Gründen werden für den Fall von Serie 3 die Daten von Schema B nicht mit in die spätere Auswertung einfließen, da diese Serie scheinbar stark gestört ist. Dadurch wird ein Anstieg der Quantendefekte hervorgerufen, den die Fitfunktion nicht berücksichtigen kann. Zudem konnten bei kleineren Hauptquantenzahlen in diesem Fall essentielle Datenpunkte der Serie nicht zugeordnet werden.

### 7.3. Grenzen der Analyse am Beispiel von Serie 1

In diesem Kapitel soll aufgezeigt werden, inwiefern die Möglichkeiten der Analyse von Serien mit den bisher vorgestellten theoretischen Mitteln, limitiert sind. Wenngleich bereits einige Einschränkungen in den letzten beiden Kapiteln aufgezeigt wurden. Hierzu soll speziell Serie 1 als Beispiel dienen, da diese mit Abstand den kompliziertesten Verlauf der vier Serien aufzeigt und gegenüber Serie 4 den Vorteil hat, dass sie in allen Schemata äußerst gut sichtbar ist. Somit wurden für Serie 1 deutlich mehr Datenpunkte als für die übrigen betrachteten Serien aufgenommen. Dass dieser Umstand der Peakzahl sehr entscheidend sein kann, wurde bereits in dem vorigen Kapitel aufgezeigt (vgl. Kapitel 7.2). In diesem Kapitel wurde unter anderem am Beispiel von Schema B aufgezeigt, dass die Versuche unvollständige Rydbergserien zu analysieren zwar prinzipiell funktionieren, jedoch die Genauigkeit des daraus extrahierten Wertes und damit die Aussagekraft für das Ionisationspotential drastisch einschränken. In den Abbildungen der Konturplots (19, 20, 21) war bereits zu sehen, dass die Zustände von Serie 1 ebenfalls gestört werden, wie der typische stufenförmige Verlauf deutlich macht. Allerdings ist hier im Vergleich zu der s-Serie auch weit ober- und unterhalb des Störers kein horizontaler Verlauf sichtbar. Versucht man diese Serie im Falle einer Darstellung von Energie gegen Hauptquantenzahl mit einer Funktion der Form

$$E_n \approx E_{IP} - \frac{R_\mu}{\left( n - \left( \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n-\delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n-\delta_0)^4} + \frac{1}{\pi} \arctan \left( 2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n-\delta_0)^2} - E_I}{\Gamma} \right) + 0,5 \right) \right)^2} \quad (48)$$

bzw. im Falle einer Darstellung von Quantendefekt gegen Hauptquantenzahl mit

$$\delta(n) \approx \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n-\delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n-\delta_0)^4} + \frac{1}{\pi} \arctan \left( 2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n-\delta_0)^2} - E_I}{\Gamma} \right) + 0,5 \quad (49)$$

zu approximieren, so erhält man zwar statistisch geringfügig streuende Residuen und damit eine gute Anpassung des Verlaufes der Serie, wie in Abbildung 36 dargestellt. Die

	$\delta_0$	$\delta_1$	$\delta_2$	$\Gamma$ [cm <sup>-1</sup> ]	$E_I$ [cm <sup>-1</sup> ]	$E_{IP}$ [cm <sup>-1</sup> ]
Wert	0,32	-414	103800	13	47833	47901,70
Fehler	0,03	41	13700	0,5	5	0,03

Tabelle 9.: Parameter der Kurvenanpassung die in Abbildung 36 mit Gleichung (49) an Serie 1 von Schema C durchgeführt wurde.

## 7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

Werte für das Ionisationspotential weichen zu denen der s- und d-Serie auch nur um  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  bis  $0,13 \text{ cm}^{-1}$  je nach Fitmethode (Fano oder Friedrich) und Serie ab.

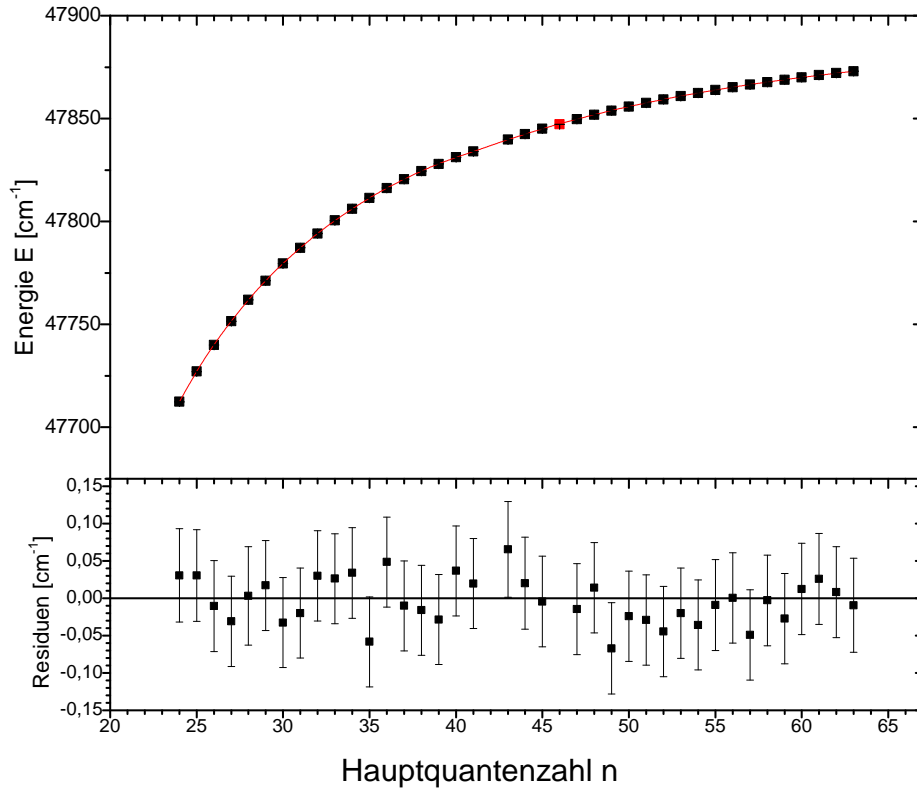


Abbildung 36.: Energielagen der Zustände von Serie 1 aufgetragen gegen Quantendefekte nach Friedrich. Die Residuen beziehen sich auf eine Kurvenanpassung nach Gleichung (48). Der rot markierte Punkt wurde vom Fit nicht berücksichtigt, da dieser wie man in Abbildung 37 sieht deutlich vom Verlauf der Serie Abweicht.

Die Parameter  $\delta_1$  und  $\delta_2$  liegen jedoch sehr weit entfernt von sinnvollen Werten, wie eine Extrapolation der Fitfunktion zu möglichen Bandenköpfen schnell aufzeigt. Wie in Abbildung 37 ersichtlich, müssten diese dann bei  $n=13$  bzw.  $n=15$  liegen, was physikalisch nicht zu erklären wäre. Somit erzielt eine Approximation durch Hinzunahme höherer Ordnungen aus Gl. (18) zwar auf den ersten Blick passende Ergebnisse, ist jedoch bei näherer Betrachtung physikalisch nicht sinnvoll.

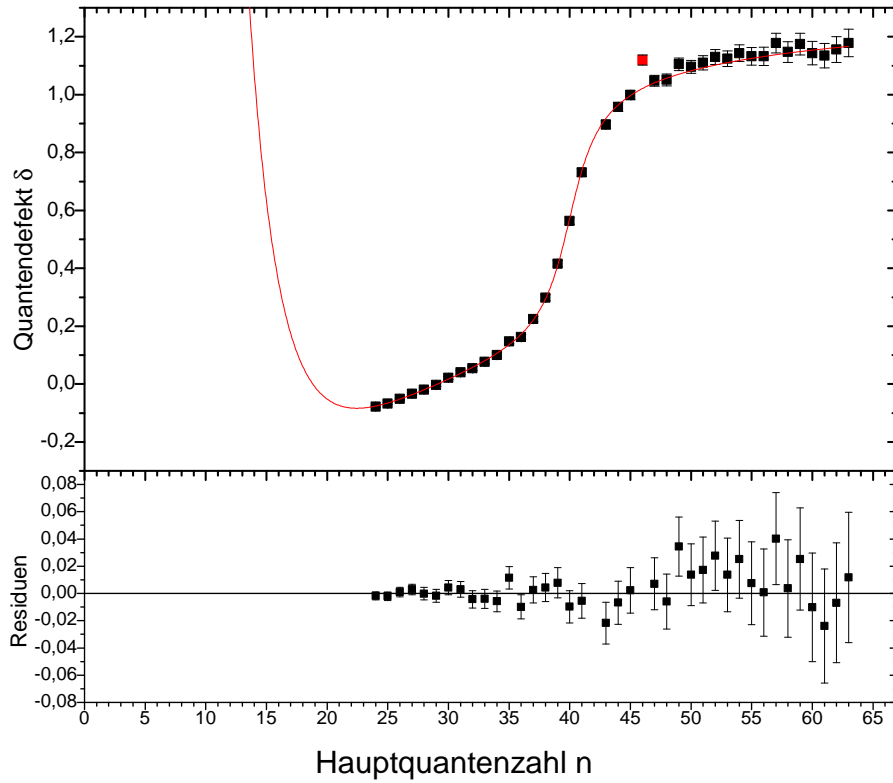


Abbildung 37.: Quantendefekte der Serie 1 zugeordneten Zustände aufgetragen Hauptquantenzahlen. Beide wurden nach Friedrich berechnet. Die Kurvenanpassung wurde mit einer Funktion nach Gl. (49) und den Parameter aus Abbildung 36 durchgeführt.

Eine weitere Möglichkeit wäre die Hinzunahme zusätzlicher Störer, wobei für den Fall von zwei Störern diesmal drei Bereiche definiert werden müssen:

$$E < E_{I_1}$$

$$\begin{aligned} \delta(n) \approx & \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^4} - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma_1}{2 \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_1} \right)} \right) \\ & - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma_2}{2 \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_2} \right)} \right) \end{aligned} \quad (50)$$

$$E_{I_1} < E < E_{I_2}$$

$$\begin{aligned} \delta(n) \approx & \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^4} - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma_1}{2 \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_1} \right)} \right) \\ & - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma_2}{2 \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_2} \right)} \right) + 1 \end{aligned} \quad (51)$$

$$E_{I_2} \leq E$$

$$\begin{aligned} \delta(n) \approx & \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^4} - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma_1}{2 \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_1} \right)} \right) \\ & - \frac{1}{\pi} \arctan \left( \frac{\Gamma_2}{2 \left( E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_2} \right)} \right) + 2 \end{aligned} \quad (52)$$

Diese lassen sich wieder durch Einsetzen von Gleichung (31) mit  $x_i = \left( 2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_i}}{\Gamma_i} \right)$  zusammenfassen zu:

$$\begin{aligned} \delta(n) \approx & \delta_0 + \frac{\delta_1}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^4} + \frac{1}{\pi} \arctan \left( 2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_1}}{\Gamma_1} \right) \\ & + \frac{1}{\pi} \arctan \left( 2 \cdot \frac{E_{IP} - \frac{R_\mu}{(n - \delta_0)^2} - E_{I_2}}{\Gamma_2} \right) + 1 \end{aligned} \quad (53)$$

Dieses Vorhaben ist in dem hier betrachteten Fall jedoch fragwürdig, da es darum geht einen Anstieg der Quantendefekte über eine große Spanne von Hauptquantenzahlen auszugleichen. Hierfür benötigt man einen Störer, der möglichst mit allen Zuständen der Serie koppelt, also vielmehr eine äußerst breite Resonanz auf der die gesamte Serie liegt. Diese liegt in diesem Fall besonders nahe am Ionisationspotential bei  $E_{I_2} = 47884 \text{ cm}^{-1}$  und hat eine Breite von  $\Gamma_2 = 177 \text{ cm}^{-1}$ . Die andere Resonanz bei  $E_{I_1} = 47834 \text{ cm}^{-1}$  mit einer Breite von  $\Gamma_1 = 13 \text{ cm}^{-1}$  sorgt für den starken Anstieg der Quantendefekte im Bereich um  $n = 40$  und ist deutlich schmaler. Wie Abbildung 38 zeigt, erhält man aber ein ähnlich gutes Ergebnis und es wäre gleichzeitig möglich mit Hilfe von  $\delta_1$  sinnvolle Bandenkopfpositionen zu erreichen. Allerdings ist solch eine Resonanz in keinem

Schema auch nur ansatzweise zu erkennen. Natürlich muss ein Störer nicht zwangsläufig mit angeregt werden, sodass diese Option theoretisch möglich wäre. Wenngleich aus beiden Methoden Werte für das Ionisationspotential entnommen werden können, die in guter Übereinstimmung zu den Werten der s- und d-Serien sind, bleiben damit die Hintergründe des Verlaufes von Serie 1 weitgehend ungeklärt. Somit zeigen solche Serien deutlich die Grenze der Analysemöglichkeiten von Serien im Rahmen dieser Arbeit auf. Des Weiteren steht offen, inwieweit eine der beiden beschriebenen Möglichkeiten physikalisch haltbar ist. Als Konsequenz werden Serie 1 und Serie 4 nicht zur Bestimmung eines Wertes für das Ionisationspotentials von Dysprosium genutzt.

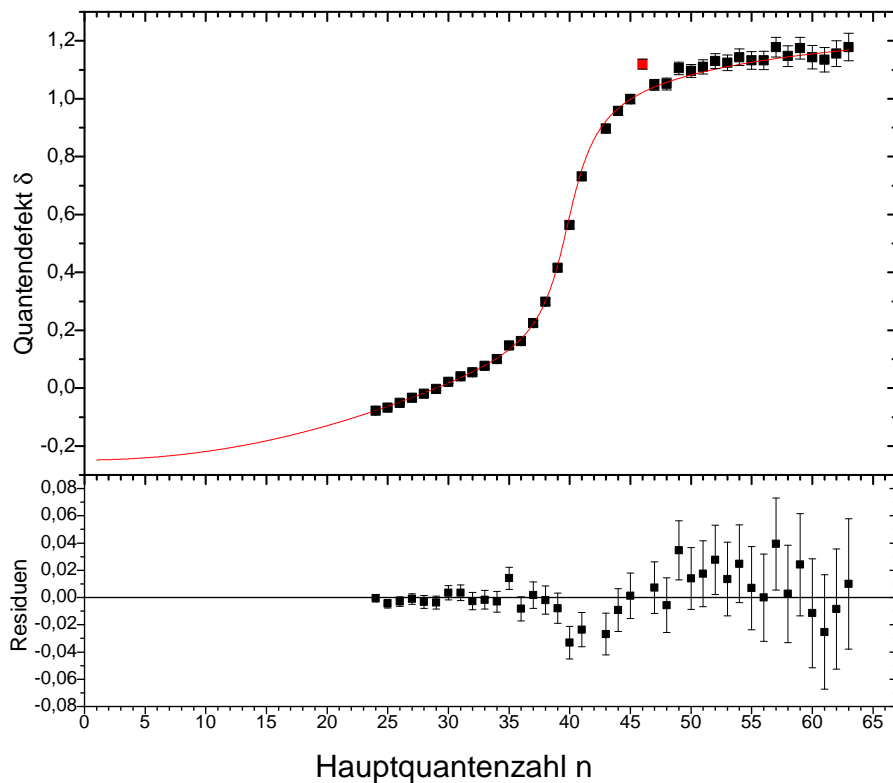


Abbildung 38.: Quantendefekte der Serie 1 zugeordneten Zustände aufgetragen gegen ihre Hauptquantenzahlen. Beides wurde nach Friedrich berechnet. Die Punkte wurden mit Gl. (53) gefittet, mit den zusätzlichen Parametern  $\Gamma_2$  und  $E_{I_2}$ , die Korrekturfaktoren  $\delta_1$  und  $\delta_2$  wurden auf 0 festgesetzt. Der erste Störer liegt bei  $E_{I_1} = 47834 \text{ cm}^{-1}$  und hat eine Breite von  $\Gamma_1 = 13 \text{ cm}^{-1}$ . Der zweite Störer liegt bei  $E_{I_2} = 47884 \text{ cm}^{-1}$  und hat eine Breite von  $\Gamma_2 = 177 \text{ cm}^{-1}$ .

#### 7.4. Vergleich mit früheren Messungen

2009/2010 wurde das Ionisationspotential von Dysprosium bereits von Tina Gottwald im Rahmen ihrer Dissertation bestimmt [7]. Hierzu wurden drei verschiedene Methoden verwendet. Es wurde das Ionisationspotential aus einer konvergierenden Rydbergserie im Bereich von  $n=28$  bis  $n=41$  bestimmt, die mit Hilfe der Methode der gepulsten Feldionisation aufgezeichnet wurde, um störende Valenzzustände zu unterdrücken. Hieraus wurde ein Wert von  $47899 \pm 3 \text{ cm}^{-1}$  erhalten.

Durch die Methode der Isolated Core Excitation wurden autoionisierende Resonanzen betrachtet, die zu einem bekannten Übergang im DyII konvergieren. Hieraus wurde ein Wert von  $47900,4 \pm 1,4 \text{ cm}^{-1}$  aus der Konvergenz der Serie bestimmt.

Zuletzt wurde mit einer Sattelpunktmethode ein Wert von  $47901,8 \pm 0,3 \text{ cm}^{-1}$  erzielt.

Für den Vergleich ist allerdings das erste Verfahren interessant, da es bis auf den Unterschied, dass in dieser Arbeit keine gepulste Feldionisation verwendet wurde, übereinstimmt. Schema C ist hierbei das gleiche Anregungsschema wie in der Arbeit von Tina Gottwald. Auch dort wird bereits argumentiert, dass die betrachtete Rydbergserie gestört sei. Die Kurvenanpassung wurde 2009/2010 mit einer Gleichung (20) entsprechenden Funktion durchgeführt.

Zum Vergleich wurden in Abbildungen 39 die Werte der Energielagen von Serie 1 aus Schema C sowie die der Daten von 2009/2010 verwendet und dazu mit dem aktuellen Wert für das Ionisationspotential von Zhou [28] von  $E_{IP} = 47901,7 \pm 0,6 \text{ cm}^{-1}$  die Hauptquantenzahlen sowie Quantendefekte berechnet. Hierbei erscheint es in der Quantendefekt gegen Hauptquantenzahl Darstellung so, als würden die Messwerte von 2009/2010 mit steigender Hauptquantenzahl immer größere Abweichungen zu den Messwerten dieser Arbeit aufzeigen. Das dem nicht so ist lässt sich einfach in Tabelle 18 im Anhang nachprüfen. Der Grund liegt in der bereits erwähnten reziproken Wurzelabhängigkeit, wodurch bei steigenden Hauptquantenzahlen kleine Schwankungen in der Energie größere Auswirkungen auf die Quantendefekte haben.



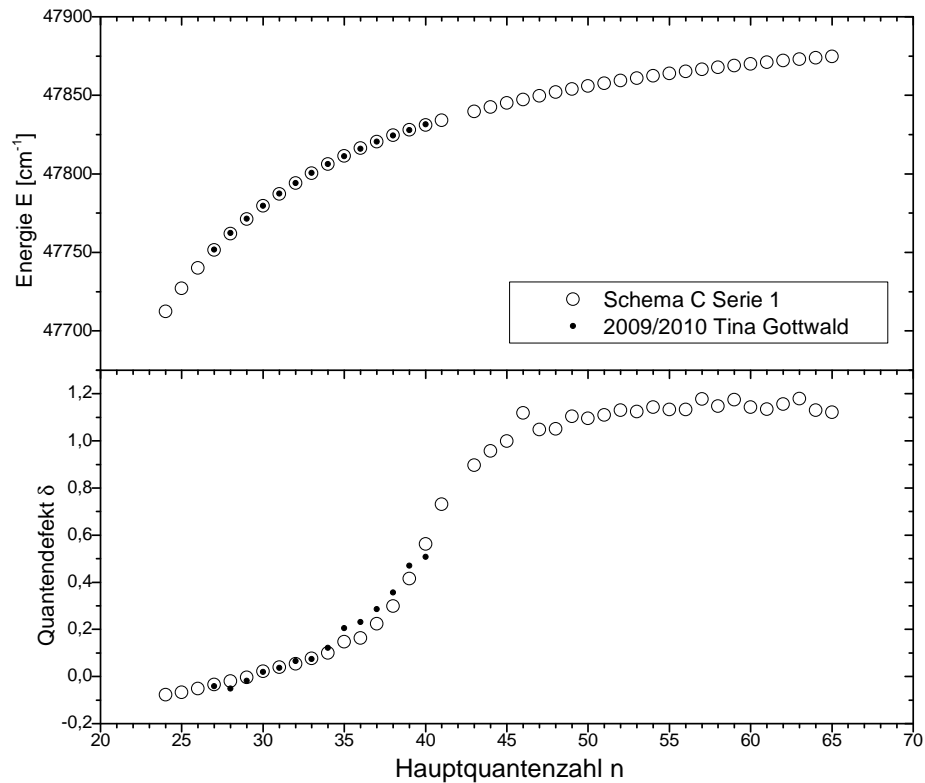


Abbildung 39.: Vergleich der Daten von Serie 1 aus Schema C dieser Arbeit mit den Daten von 2009/2010 [7]. Der obere Teilgraph zeigt die Daten in einer Darstellung Energie gegen Hauptquantenzahl. Im untere Teilgraph sind die gleichen Datensätze als Funktion der Quantendefekte von der Hauptquantenzahl dargestellt. Die Daten von 2009/2010 sind als schwarze Punkte aufgetragen, während die von Serie 1 aus dieser Arbeit als offene Kreise eingezeichnet wurden. Quantendefekte und Hauptquantenzahlen wurden mit einem vorläufigen Wert von Zhou  $E_{IP} = 47901,7 \pm 0,6 \text{ cm}^{-1}$  [28] für beide Datensätze in der Darstellung nach Friedrich berechnet.

In Abbildung 40 wurde das gleiche für das Ionisationspotential von  $47899 \text{ cm}^{-1}$  durchgeführt. In Abbildung 39 ist zu erkennen, dass der damals betrachtete Bereich einen signifikanten Anstieg der Quantendefekte aufweist und offensichtlich einen Teil von Serie 1 darstellt.

Wird hierbei nur ein Ausschnitt einer Rydbergserie betrachtet, so ist es möglich diesen Anstieg durch eine Verschiebung des Ionisationspotentials zu kompensieren, wie schon anhand von Schema B in Kapitel 7.2 demonstriert wurde und dadurch einen annähernd

## 7. Analyse zugewiesener Serien unterhalb des Ionisationspotentials

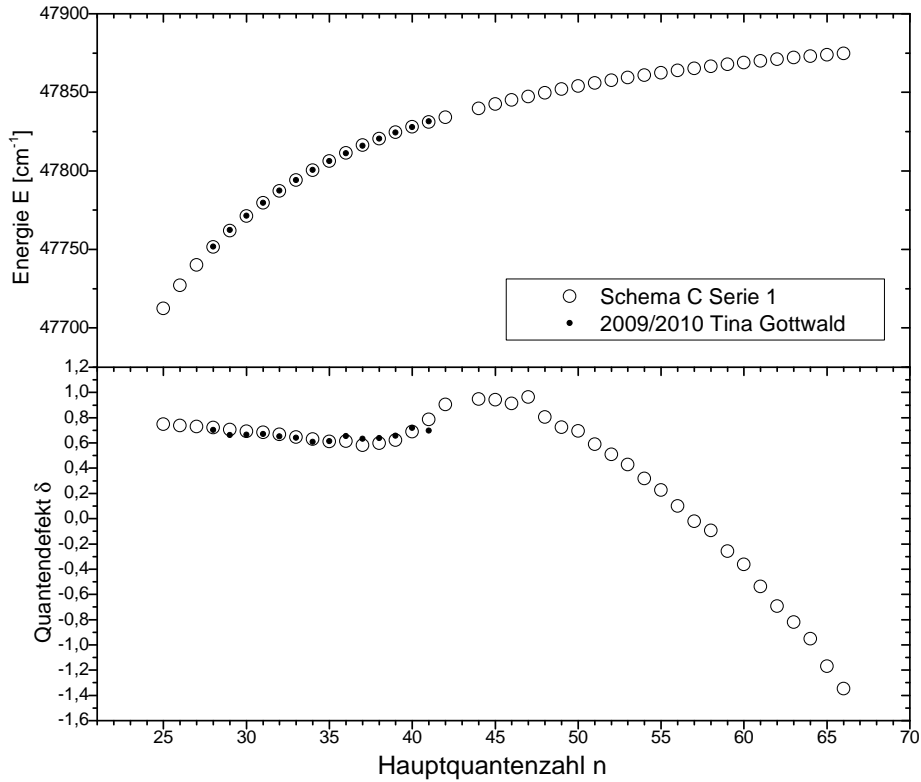


Abbildung 40.: Vergleich der Daten dieser Arbeit, Serie 1 aus Schema C mit den Daten von 2009/2010 [7]. Der obere Teilgraph zeigt die Daten in einer Energie gegen Hauptquantenzahl Darstellung. Im unteren Teilgraph sind die gleichen Datensätze als Funktion der Quantendefekte von der Hauptquantenzahl dargestellt. Die Daten von 2009/2010 sind als schwarze Punkte aufgetragen, während die von Serie 1 aus dieser Arbeit als offene Kreise eingezeichnet wurden. Quantendefekte und Hauptquantenzahlen wurden mit dem 2009/2010 mit dieser Methode erzielten Wert von  $E_{IP} = 47899 \text{ cm}^{-1}$  für beide Datensätze in der Darstellung nach Friedrich berechnet.

konstanten Quantendefekt zu erzeugen wie Abbildung 40 zeigt. Wie hier deutlich zu sehen ist, funktioniert dies allerdings in diesem Fall nur lokal innerhalb eines Bereiches von 10-15 Hauptquantenzahlen. Somit ist erläutert, warum der Wert, der aus dem Verfahren der gepulsten Feldionisation von 2009/2010 stammt um 1,4 bis 2,8  $\text{cm}^{-1}$  von den Werten der beiden anderen betrachteten Verfahren abweicht.

## 8. Bestimmung des Ionisationspotentials

Zur Bestimmung eines Ionisationspotentials für Dysprosium werden die Daten der s- und d-Serie aus den Kapiteln 7.1 und 7.2 zusammengetragen. Zur besseren Übersicht sind diese nochmals in Abbildung 41 dargestellt. In dieser Darstellung ist unter anderem gut zu erkennen, wie überzeugend die Werte aus den verschiedenen Analyseverfahren und Schemata miteinander übereinstimmen.

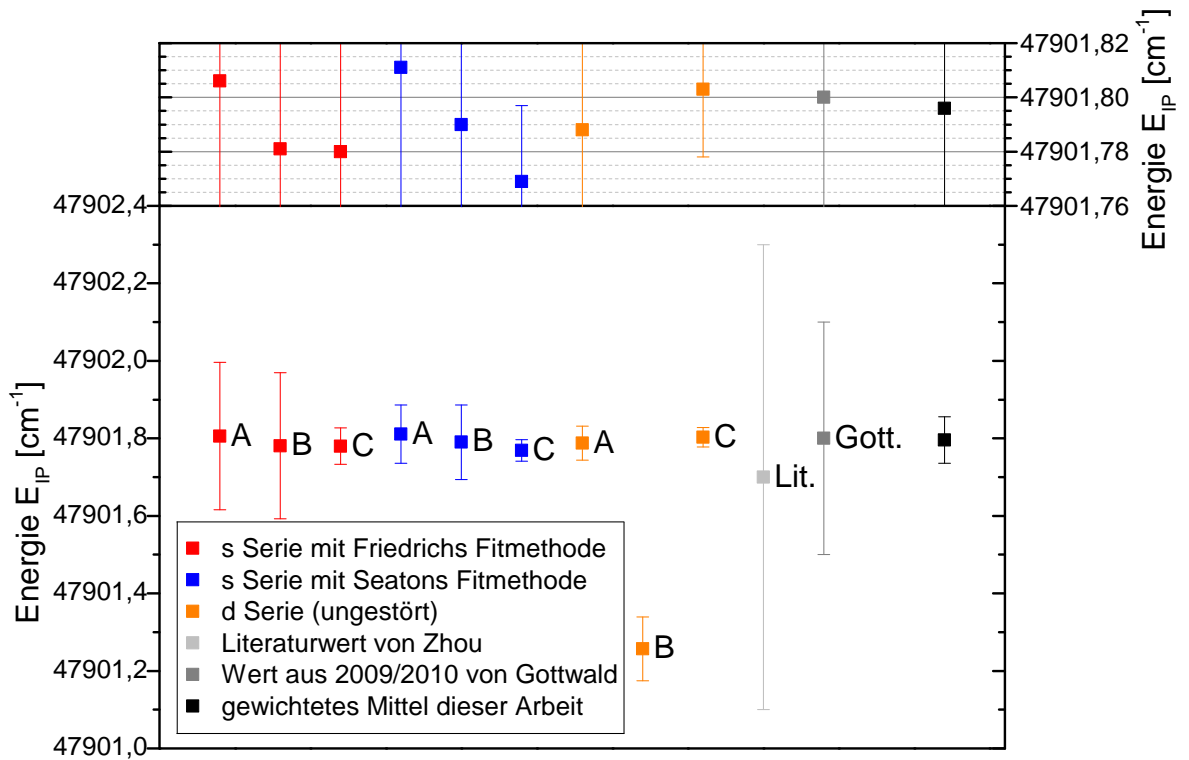


Abbildung 41.: Zusammenstellung der erhaltenen Werte für das erste Ionisationspotential aus der s- und d- Serie der Schemata A, B und C. Es wurden im Falle der s-Serie sowohl die Werte, die mit der Methode nach Friedrich (rot), als auch diejenigen, die mit der Methode nach Fano (blau), erhalten wurden, dargestellt. Der veröffentlichte Literaturwert von Zhou [28] von  $E_{IP} = 47901,7 \pm 0,6 \text{ cm}^{-1}$ , sowie der unveröffentlichte Wert von Gottwald [7] von  $47901,8 \pm 0,3 \text{ cm}^{-1}$  sind ebenfalls eingezeichnet. In oberen Teilgraphen sind nochmals die Werte in einem kleineren Energiebereich dargestellt.

Im Falle der s-Serie werden hierbei lediglich die roten Daten, die mit den theoretischen Modellen von Friedrich gewonnen wurden, berücksichtigt. Die Argumentation hierfür

wurde bereits in Kapitel 7.1 geliefert. Während bei der d-Serie der Wert aus Schema B aufgrund der in Kapitel 7.2 ausführlich genannten Gründe und Ausschlusskriterien nicht miteinbezogen wird. Diese Werte werden nach folgender Formel gewichtet und gemittelt:

$$\bar{E}_{IP} = \frac{\sum \frac{E_{IP_i}}{\Delta E_{IP_i}}}{\sum \frac{1}{\Delta E_{IP_i}}} \quad (54)$$

Hierbei wurden die Werte nach ihrer Streuung gewichtet, sodass sich der Fehler dieses Mittelwertes wie folgt berechnen lässt:

$$\Delta \bar{E}_{IP} = \left( \sum \frac{1}{\Delta E_{IP_i}} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (55)$$

Damit erhält man einen Fehler des Mittelwertes von  $0,02 \text{ cm}^{-1}$ . Anschließend wird für den systematischen Fehler des Wavemeters noch ein Fehler von  $0,04 \text{ cm}^{-1}$  linear zu dem Fehler des Mittelwertes hinzugerechnet.

Aus diesen Rechnungen ergibt sich ein Wert von  $E_{IP} = 47901,80 \pm 0,06 \text{ cm}^{-1}$  für das erste Ionisationspotential von Dysprosium. Dieser neue Wert liegt  $0,1 \text{ cm}^{-1}$  über dem bisherigen Literaturwert von Zhou [28] von  $E_{IP} = 47901,7 \pm 0,6 \text{ cm}^{-1}$  und erzielt eine Verbesserung der Genauigkeit um etwa einen Faktor 10. Zur Publikation dieses Wertes und der detaillierten Auswertung wird aktuell eine Publikation vorbereitet.



# Kapitel V

## Fazit und Ausblick



## Fazit und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine umfassende Analyse des Spektrums von zweistufig resonanten Anregungen im Dysprosium durchgeführt, wobei der Schwerpunkt auf der Analyse der beobachteten Rydbergserien lag. Hierbei wurden für drei Schemata große Bereiche ober- und unterhalb des Ionisationspotentials vermessen und anschließend ausgewertet. Aus diesen Spektren wurden die Energielagen zahlreicher Zustände bestimmt und, soweit möglich, diese zu Rydbergserien zugeordnet.

In der anschließenden Analyse dieser Serien wurde stets versucht ein tieferes Verständnis vom Verlauf und Verhalten der Rydbergserien zu erlangen. In diesem Sinne wurde gezeigt, dass es gerade bei komplexen Spektren, wie sie bei Dysprosium vorkommen, von höchster Relevanz ist, die Serien als Ganzes und im Vergleich zu einander zu analysieren und es äußerst kritisch ist kleinere Ausschnitte von Serien zu betrachten. Es wurde gezeigt, dass bei der Analyse von ungünstig liegenden Teilen von Serien signifikante Verschiebungen der Resultate entstehen können und dass diese lediglich durch Messung größerer Ausschnitte der Serie, bzw. des Spektrums sichtbar werden und vermieden werden können.

Im Falle von gestörten Serien wurden zusätzlich die verschiedenen theoretischen Ansätze von Fano und Friedrich getestet und hinsichtlich ihrer Ergebnisse und Fehler verglichen. Diese lieferten im Rahmen der verfügbaren Messgenauigkeit identische Ergebnisse und differieren primär in den resultierenden Fehlern und nicht in den Werten selbst. Insofern war es unter anderem möglich einen neuen exakten Wert für das Ionisationspotential von  $E_{IP} = 47901,80 \pm 0,06 \text{ cm}^{-1}$  von Dysprosium zu bestimmen, der mit dem deutlich ungenauer bekannten bisherigen Literaturwert [28] in Übereinstimmung ist.

Momentan werden erste Effizienzmessungen an der Versuchsanlage der MABU und RISIKO für Dysprosium von Dominik Studer vorbereitet und durchgeführt. Für diese Zwecke wurden dreistufige Anregungsschemata entwickelt, da diese in der Regel eine bessere Effizienz erzielen können als im zweistufigen Fall. Neben der Bestimmung und des Vergleichs des für die Versuchsanlagen wichtigen Wertes der Effizienz bieten sich hierbei eine Vielzahl spektroskopisch interessanter Fragestellungen an, die untersucht werden könnten. Somit können durch ein dreistufiges Anregungsschema Rydbergserien der jeweils anderen Parität betrachtet werden.



Die Versuchsanordnung RISIKO besitzt im Gegensatz zur MABU ein starkes elektrisches Feld, wodurch auch Rydbergzustände bei deutlich niedrigeren Hauptquantenzahlen sichtbar gemacht werden können. Hierdurch könnte eine bessere Bestimmung der Lage der Bandenköpfe vorgenommen werden, da bei deren Festlegung gerade die tiefliegenden Rydbergzustände eine Rolle spielen. Des Weiteren können anhand des Vergleichs zwischen den Daten von MABU und RISIKO die Einflüsse des elektrischen Feldes und des daraus resultierenden Stark Effektes untersucht werden.

# Kapitel VI

## Bibliographie



# Literaturverzeichnis

- [1] Wendt K., *Ionization potentials of the lanthanides and actinides – towards atomic spectroscopy of super-heavy elements*, Springer, Februar 2014
- [2] Raeder S., *Spurenanalyse von Aktiniden in der Umwelt mittels Resonanzionisations-Massenspektrometrie*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010
- [3] Roßnagel J., *Aufbau einer Atomstrahl-Massenspektrometer-Apparatur zur resonanten Laserionisation*, Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2011
- [4] Horn R., *Aufbau eines Systems gepulster, abstimmbarer Festkörperlaser zum Einsatz in der Resonanzionisations-Massenspektrometrie*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2001
- [5] Geppert C., *Resonanzionisation zum Nachweis und zur Erzeugung radioaktiver Ionenstrahlen: vom hochselektiven  $^{41}\text{Ca}$  Spurennachweis in der Osteoporose Forschung zur selektiven on-line Laser-Ionenquelle*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2005
- [6] Naubereit P., *Weiterentwicklung eines weitabstimmbaren Titan:Saphir-Lasers und sein Einsatz zur Spektroskopie hochliegender Resonanzen in Holmium*, Masterarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2015
- [7] Gottwald T., *Studium hochkomplexer atomarer Spektren mittels Methoden der Laserresonanzionisation*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010
- [8] Demtröder W., *Experimentalphysik 3, Atome, Moleküle und Festkörper*, Springer, Berlin, 3. Auflage, 2005
- [9] Friedrich H., *Theoretische Atomphysik*, Springer, Berlin, 2. Auflage, 1994
- [10] Haken H., Wolf H. C., *Atom- und Quantenphysik: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen*, Springer, Berlin, 6. Auflage, 1996

- [11] Fritzsche S., *Large-Scale Accurate Structure Calculations for Open-Shell Atoms and Ions*, Phys. Scr. **2002**, 37, Dezember 2001
- [12] Fritzsche S., Dong C. Z., Koike F. und Uvarov A., *The Low-Lying Level Structure of Atomic Lawrencium ( $Z = 103$ ): Energies and Absorption Rates*, Eur. Phys. J. D **45**, 107-113, März 2007
- [13] Gallhager T. F., *Rydberg atoms*, Rep. Prog. Phys. **51**, 143, Februar 1988
- [14] Kessler T., Brück K., Baktash C., Beene J. R. , Geppert Ch., Havener C. C. , Krause H. F. , Liu Y. , Schultz D. R. , Stracener D. W. , Vane C. R. and Wendt K., *Three-step resonant photoionization spectroscopy of Ni and Ge: ionization potential and odd-parity Rydberg levels*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **40**, 4413, November 2007
- [15] Ritz W., *Zur Theorie der Serienspektren*, Ann. d. Phys. **317**, 264, Auszug aus der Dissertation, Universität Göttingen, August 1903
- [16] Drake G. W. F. and Swainson R. A., *Quantum defects and the  $1/n$  dependence of Rydberg energies: Second-order polarization effects*, Phys. Rev. A **44**, 5448, November 1991
- [17] Schmitt A., Bushaw B. A. and Wendt K., *Determination of the  $^{154}\text{Sm}$  ionization energy by high-precision laser spectroscopy*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **37**, 1633, April 2004
- [18] Roßnagel J., Raeder S., Hakimi A., Ferrer R., Trautmann N. and Wendt K., *Determination of the first ionization potential of actinium*, Phys. Rev. A **85**, 012525, Januar 2012
- [19] Hostetter J., Pritchard J.D, Lawler J.E and Saffman M., *Measurement of holmium Rydberg series through magneto-optical trap depletion spectroscopy*, Phys. Rev. A, **91**, 012507, Januar 2015
- [20] Lorenzen C. J., Niemax K., *Non-Monotonic Variation of the Quantum Defect in Cs  $nD_j$  Term Series*, Z. Phys. A - Atoms and Nuclei 311, 249-250, Springer, 1983
- [21] Fano U., *Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts*, Phys. Rev. **124**, 1866, Dezember 1961
- [22] Seaton M. J., *Quantum defect theory*, Rep. Prog. Phys. **46**, 167, Februar 1983

- [23] Mattolat C., *Spektroskopische Untersuchungen an Technetium und Silizium – Ein Festkörperlasersystem für die Resonanzionisationsspektroskopie*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010
- [24] Franzmann M., *Resonanzionisations-Massenspektrometrie an Aktiniden mit der Mainzer Atomstrahlquelle MABU*, Diplomarbeit, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013
- [25] Blaum K., *Resonante Laserionisations-Massenspektrometrie an Gadolinium zur Isotopenhäufigkeitsanalyse mit geringsten Mengen*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2000
- [26] Kramida, A., Ralchenko, Yu., Reader, J. and NIST ASD Team (2014). NIST Atomic Spectra Database (version 5.2), [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/asd> [Februar 2015]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, 2015
- [27] Nave G., Griesmann U., *New Energy Levels and Classifications of Spectral Lines from Neutral and Singly-Ionized Dysprosium (Dy I and Dy II)*, Phys. Scr. **62**, 463, May 2000
- [28] Zhou Hai-jun, Xu Xiang-yuan, Huang Wen, Li Liang-quan and Chen Die-yan, *Study of high-lying excited states of rare-earth element Dy by laser resonance ionization spectroscopy*, Acta Phys. Sin. (Overseas Edn) **1**, 19, July 1992
- [29] Rothe S., *An all-solid state laser system for the laser ion source RILIS and in-source laser spectroscopy of astatine at ISOLDE/CERN*, Dissertation, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2012
- [30] Fano U., Theodosiou C.E. and J. L. Dehmer, *Electron-optical properties of atomic fields*, Rev. Mod. Phys. **48**, 49, Januar 1976
- [31] Martin W.C., Zalubas R. and Hagan L., *Atomic Energy Levels – The Rare-Earth Elements*, Natl. Stand. Ref. Data Ser. **60**, 296, April 1978
- [32] Weber k. H. and Sansonetti C. J., *Accurate energies of  $nS$ ,  $nI'$ ,  $nD$ ,  $nF$ , and  $nG$  levels of neutral cesium*, Phys. Rev. A **35**, 4650, Juni 1986
- [33] Worden E. F., Solarz R. W., Paisner J. A., and J. G. Conway, *First ionization potentials of lanthanides by laser spectroscopy*, J. Opt. Soc. Am., Vol. 68, No. 1, Januar 1978



# Kapitel VII

## Anhang





## 9. Tabellen

Konfiguration	Term	$J$	E [cm <sup>-1</sup> ]
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>4</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(4,1)	7	41503,84
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>6</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(6,1)	7	38123,3
4f <sup>10</sup> 6s6d?		8	37820,22
4f <sup>10</sup> 6s6d?		10	37706,12
4f <sup>10</sup> 6s6d?		9	37591,83
4f <sup>10</sup> 6s6d?		8	37339,89
4f <sup>10</sup> 6s6d?		10	37007,58
4f <sup>10</sup> 6s6d?		9	36964,32
4f <sup>10</sup> 6s6d?		8	36954,35
4f <sup>10</sup> 6s6d?		7	36924,54
4f <sup>10</sup> 6s6d?		10	36905,44
4f <sup>10</sup> 6s6d?		8	36760,64
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )6s7s( <sup>1</sup> S <sub>0</sub> )	(7,0)	9	36717,57
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )6s7s( <sup>1</sup> S <sub>0</sub> )	(7,0)	7	36667,78
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(7,1)	7	35135,33
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(7,1)	8	34922,08
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(8,1)	7	31509,12
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(8,1)	8	30979,53
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(8,1)	7	30621,87
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )6s7s( <sup>3</sup> S <sub>1</sub> )	(8,1)	9	30560,56
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>6</sub> )6d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [8]	8	26759,81
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>6</sub> )6d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [7]	7	26435,71
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		7	26425,15
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		8	26349,49
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		9	26244,6
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		7	25879,15
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>6</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)		7	25502,82
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		8	25095,66

Tabelle 10.: Mögliche Bandenkopfpositionen für Dysprosium aus der NIST Datenbank [26].

Konfiguration	Term	$J$	$E$ [cm <sup>-1</sup> ]
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		10	24978,98
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)		7	24430,27
4f <sup>10</sup> 5d6s?		7	23972,34
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)		9	23841,9
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		7	23799,41
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [8]	7	23655,36
4f <sup>10</sup> 5d6s?		8	23388,95
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)		7	23360,66
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)		8	23280,46
4f <sup>9</sup> 5d6s6p?		9	23218,59
4f <sup>9</sup> ( <sup>6</sup> H <sup>o</sup> )5d( <sup>7</sup> H <sub>8</sub> <sup>o</sup> )6s6p( <sup>3</sup> P <sub>0</sub> <sup>o</sup> )	(8,0)?	8	23031,46
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>1</sup> D)	<sup>1</sup> [10]	10	22487,14
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>1</sup> D)	<sup>1</sup> [9]	9	22045,79
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [6]	7	21778,43
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>7</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [7]	8	21603,04
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [8]	7	21074,2
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [10]	9	20209
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [9]	8	20193,6
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [10]	10	19797,96
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [9]	9	19240,82
4f <sup>10</sup> 6s <sup>2</sup>	<sup>3</sup> K2	8	19019,15
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [7]	7	18937,78
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [8]	8	18903,21
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [9]	10	18462,65
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [6]	7	18172,87
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [6]	7	18094,52
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [7]	8	17613,36
4f <sup>10</sup> ( <sup>5</sup> I <sub>8</sub> )5d6s( <sup>3</sup> D)	<sup>3</sup> [8]	9	17514,5

Tabelle 11.: Mögliche Bandenkopfpositionen für Dysprosium aus der NIST Datenbank [26].

## 9.1. Tabellen von Schema A

Energie $E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\Delta E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n_{Friedrich}$	$n_{Fano}$
47838,61	0,06	43	42
47824,51	0,06	39	38
47805,07	0,07	35	34
47799,02	0,06	34	33
47792,48	0,06	33	32
47785,30	0,06	32	31
47777,41	0,06	31	30
47768,92	0,06	30	29
47757,11	0,06	28	28
47721,46	0,06	25	25
47705,61	0,06	24	24
47668,03	0,06	22	22
47618,23	0,06	20	20
47313,78	0,06	14	14
47095,09	0,06	12	12

Tabelle 12.: Rydbergzustände der Serie 2 aus Schema A mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Fano und Friedrich.

Energie $E$ [cm <sup>-1</sup> ]	$\Delta E$ [cm <sup>-1</sup> ]	$n$
47845,71	0,06	45
47843,08	0,06	44
47840,33	0,06	43
47834,07	0,06	41
47830,66	0,07	40
47826,82	0,06	39
47822,76	0,06	38
47818,31	0,06	37
47813,54	0,07	36
47808,29	0,06	35
47802,61	0,06	34
47796,40	0,06	33
47789,58	0,06	32
47782,11	0,06	31
47773,65	0,2	30
47754,02	0,06	28
47742,54	0,06	27
47715,57	0,07	25
47680,09	0,11	23
47658,73	0,09	22
47634,18	0,06	21
47606,01	0,06	20
47572,81	0,06	19
47430,42	0,06	16
47035,13	0,06	12

Tabelle 13.: Rydbergzustände der Serie 3 aus Schema A mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Fano.

## 9.2. Tabellen von Schema B

Energie $E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\Delta E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n_{Friedrich}$	$n_{Fano}$
47853,38	0,06	49	48
47851,32	0,06	48	47
47849,23	0,06	47	46
47841,41	0,06	44	43
47838,62	0,06	43	42
47832,02	0,1	41	40
47805,04	0,08	35	34
47799,01	0,06	34	33
47792,48	0,06	33	32
47785,27	0,06	32	31
47777,38	0,06	31	30
47768,92	0,06	30	29
47757,06	0,06	28	28
47721,46	0,06	25	25
47705,59	0,06	24	24
47644,81	0,06	21	21
47618,21	0,06	20	20
47587,43	0,06	19	19
47549,29	0,06	18	18
47454,23	0,06	16	16
47391,69	0,06	15	15
47313,75	0,06	14	14
47094,99	0,06	12	12

Tabelle 14.: Rydbergzustände der Serie 2 aus Schema B mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Fano und Friedrich.

Energie $E$ [cm <sup>-1</sup> ]	$\Delta E$ [cm <sup>-1</sup> ]	$n$
47845,73	0,06	45
47842,81	0,06	44
47840,21	0,06	43
47837,41	0,06	42
47830,41	0,07	40
47826,68	0,06	39
47822,65	0,06	38
47817,89	0,06	37
47813,48	0,06	36
47808,43	0,06	35
47802,66	0,06	34
47796,46	0,06	33
47789,63	0,06	32
47782,24	0,06	31
47774,03	0,06	30
47764,88	0,06	29
47754,76	0,06	28
47743,58	0,06	27

Tabelle 15.: Rydbergzustände der Serie 3 aus Schema B mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Fano.

## 9.3. Tabellen von Schema C

Energie $E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\Delta E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n_{Friedrich}$	$n_{Fano}$
47849,18	0,06	47	46
47844,23	0,06	45	44
47841,48	0,06	44	43
47838,61	0,06	43	42
47835,44	0,06	42	41
47832,07	0,06	41	40
47815,61	0,06	37	36
47810,54	0,06	36	35
47805,03	0,06	35	34
47799,05	0,06	34	33
47792,46	0,06	33	32
47785,29	0,06	32	31
47777,43	0,06	31	30
47768,92	0,06	30	29
47757,08	0,06	28	28
47734,91	0,06	26	26
47721,40	0,06	25	25
47705,69	0,06	24	24
47688,06	0,06	23	23
47668,03	0,06	22	22
47644,77	0,06	21	21
47618,24	0,06	20	20
47586,89	0,06	19	19
47391,70	0,06	15	15

Tabelle 16.: Rydbergzustände der Serie 2 aus Schema C mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Fano und Friedrich.



Energie $E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\Delta E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n$
47848,02	0,07	46
47845,55	0,06	45
47842,98	0,07	44
47840,2	0,07	43
47837,15	0,06	42
47830,44	0,07	40
47826,69	0,08	39
47822,65	0,07	38
47818,14	0,07	37
47813,39	0,07	36
47808,09	0,07	35
47802,17	0,07	34
47795,85	0,06	33
47788,96	0,06	32
47781,39	0,08	31
47772,98	0,07	30
47763,66	0,07	29
47753,34	0,07	28
47678,98	0,06	23
47657,41	0,06	22
47632,68	0,06	21
47604	0,06	20
47426,58	0,06	16

Tabelle 17.: Rydbergzustände der Serie 3 aus Schema C mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Fano.

Schema C Serie 1 aus dieser Arbeit			Daten von 2009/2010		
Energie $E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\Delta E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n$	Energie $E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\Delta E$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$n$
47712,42	0,06	24			
47727,07	0,06	25			
47740	0,06	26			
47751,54	0,06	27	47751,73	0,1	27
47761,93	0,07	28	47762,35	0,1	28
47771,25	0,06	29	47771,48	0,1	29
47779,6	0,06	30	47779,71	0,1	30
47787,22	0,06	31	47787,34	0,1	31
47794,17	0,06	32	47794,2	0,1	32
47800,46	0,06	33	47800,58	0,1	33
47806,21	0,06	34	47806,19	0,1	34
47811,36	0,06	35	47811,16	0,1	35
47816,26	0,06	36	47816,03	0,1	36
47820,56	0,06	37	47820,39	0,1	37
47824,5	0,06	38	47824,36	0,1	38
47827,99	0,06	39	47827,88	0,1	39
47831,14	0,06	40	47831,44	0,1	40
47834,03	0,06	41			
47839,8	0,06	43			
47842,47	0,06	44			
47845,02	0,06	45			
47847,22	0,06	46			
47849,73	0,06	47			
47851,92	0,06	48			
47853,86	0,06	49			
47855,82	0,06	50			
47857,61	0,06	51			
47859,29	0,06	52			
47860,92	0,06	53			
47862,42	0,06	54			
47863,88	0,06	55			
47865,25	0,06	56			
47866,48	0,06	57			
47867,75	0,06	58			
47868,88	0,06	59			
47870,02	0,06	60			
47871,08	0,06	61			
47872,06	0,06	62			
47872,99	0,06	63			

Tabelle 18.: Rydbergzustände der Serie 1 aus Schema C, sowie den Daten von 2009/2010 [7] mit zugeordneten Hauptquantenzahlen nach Friedrich berechnet mit dem Wert von  $E_{IP} = 47901,7 \pm 0,6 \text{ cm}^{-1}$  von Zhou [28].

## 10. Abbildungen

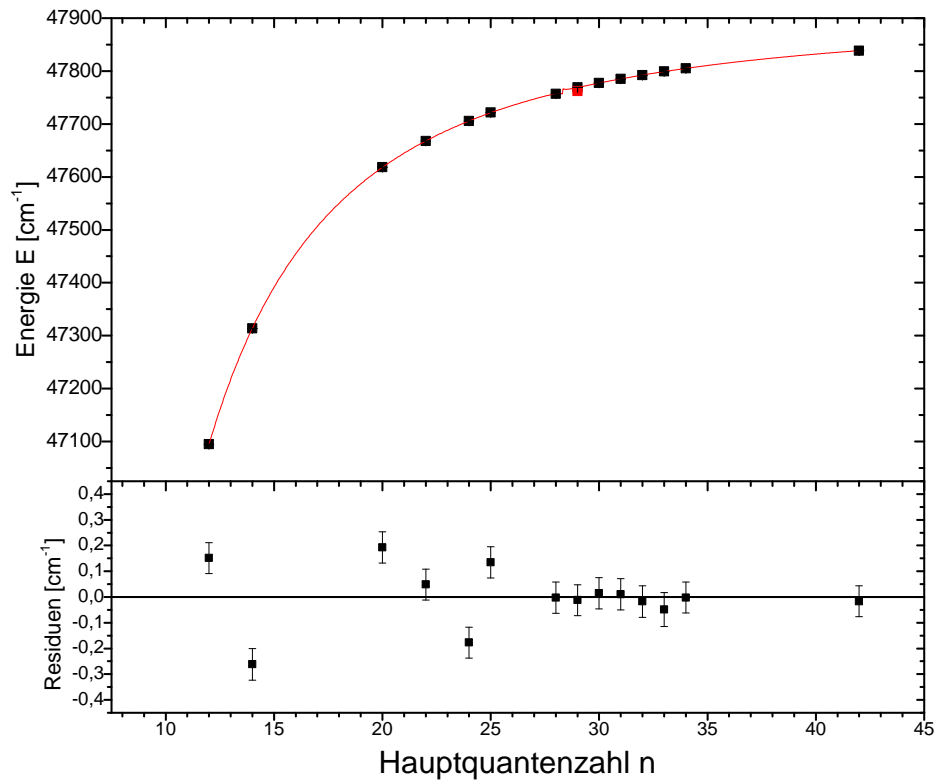


Abbildung 42.: Energielagen der Zustände aus Schema A, die Serie 2 zugeordnet wurden aufgetragen gegen die Hauptquantenzahlen nach Fano. Die Datenpunkte wurden mit einer Funktion nach Gleichung (26) gefittet. Die dazugehörigen Residuen sind im unteren Teilgraphen dargestellt. Die eingezeichneten Fehler sind die quadratisch aufaddierten Fehler des ersten Anregungsschrittes und des Fehlers der jeweiligen Zentrumslage aus der Gaußanpassung der Peaks.

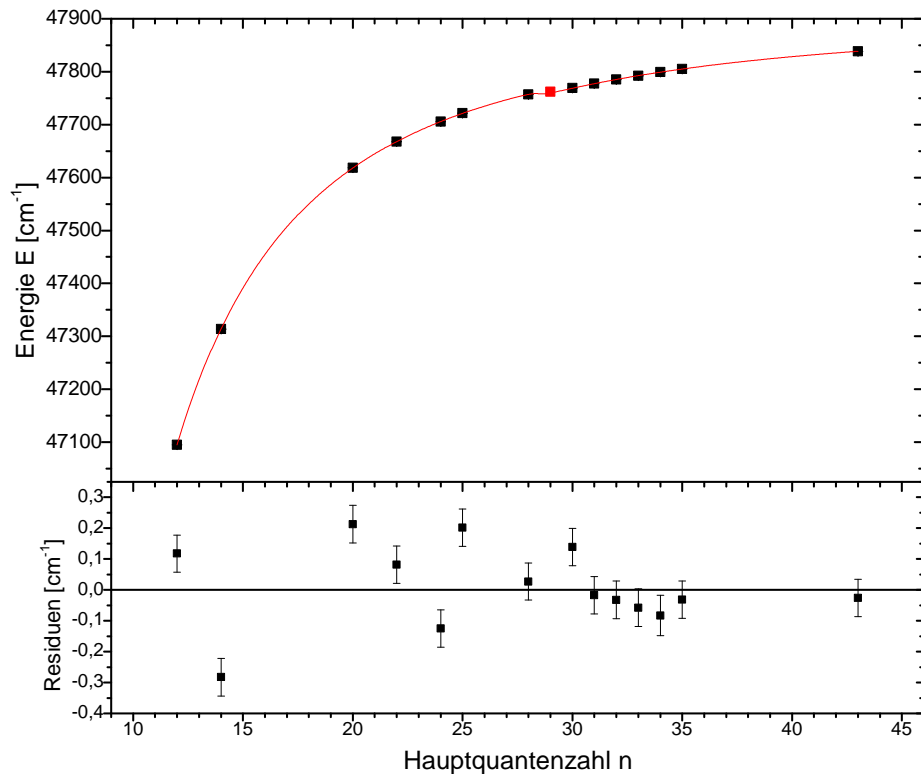


Abbildung 43.: Im oberen Teilgraphen sind die Energielagen der Zustände aus Schema A, die Serie 2 zugeordnet wurden gegen die entsprechenden Hauptquantenzahlen nach Friedrich aufgetragen. Der rot markierte Punkt bei  $n = 29$  ist der vermeintliche Störer. Im unteren Teilgraphen sind die Residuen aufgetragen, die aus einer Kurvenanpassung nach Gleichung (33) entstehen. Die eingezeichneten Fehler sind die quadratisch aufaddierten Fehler des ersten Anregungsschrittes und des Fehlers der jeweiligen Zentrums- lage aus der Gaußanpassung der Peaks.

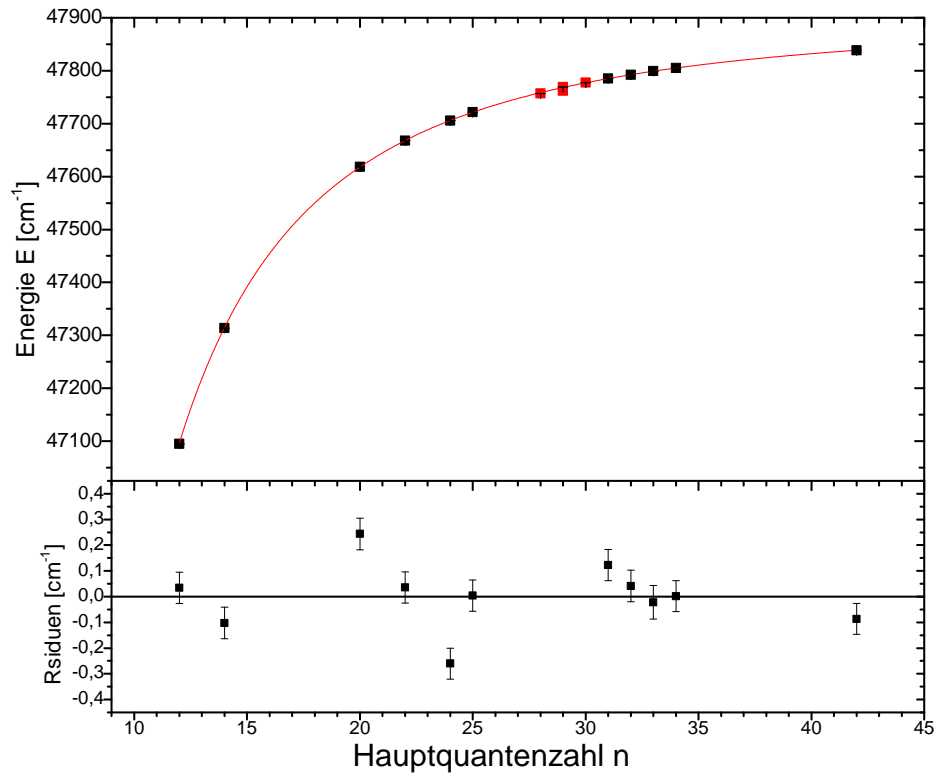


Abbildung 44.: Dargestellt sind die Energielagen der Zustände aus Schema A, die Serie 2 zugeordnet wurden und gegen die Hauptquantenzahlen nach Fano aufgetragen sind. Es wurden drei Datenpunkte im Bereich des Störers, sowie dieser selbst vom Fit ausgenommen, diese liegen im Bereich von  $n = 28$  bis  $n = 30$  und sind rot gekennzeichnet. Die Residuen sind das Ergebnis einer Kurvenanpassung durch Gleichung (20).

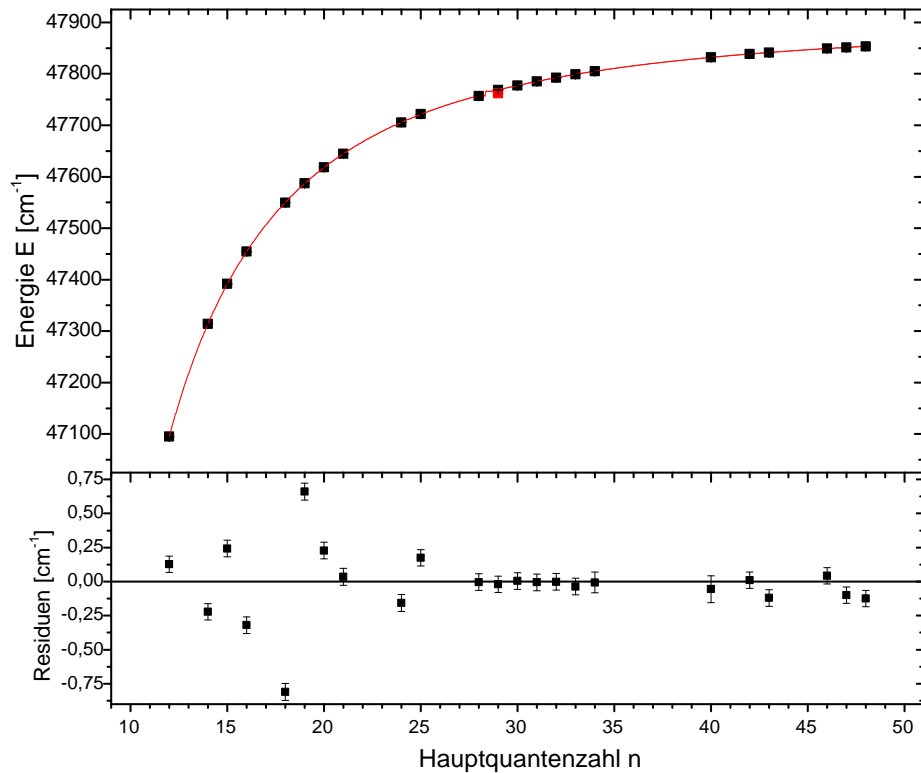


Abbildung 45.: Energielagen der Zustände aus Schema B, die Serie 2 zugeordnet wurden aufgetragen gegen die Hauptquantenzahlen nach Fano. Die Datenpunkte wurden mit einer Funktion nach Gleichung (26) gefittet. Die dazugehörigen Residuen sind im unteren Teilgraphen dargestellt. Die eingezeichneten Fehler sind die quadratisch aufaddierten Fehler des ersten Anregungsschrittes und des Fehlers der jeweiligen Zentrumslage aus der Gaußanpassung der Peaks.

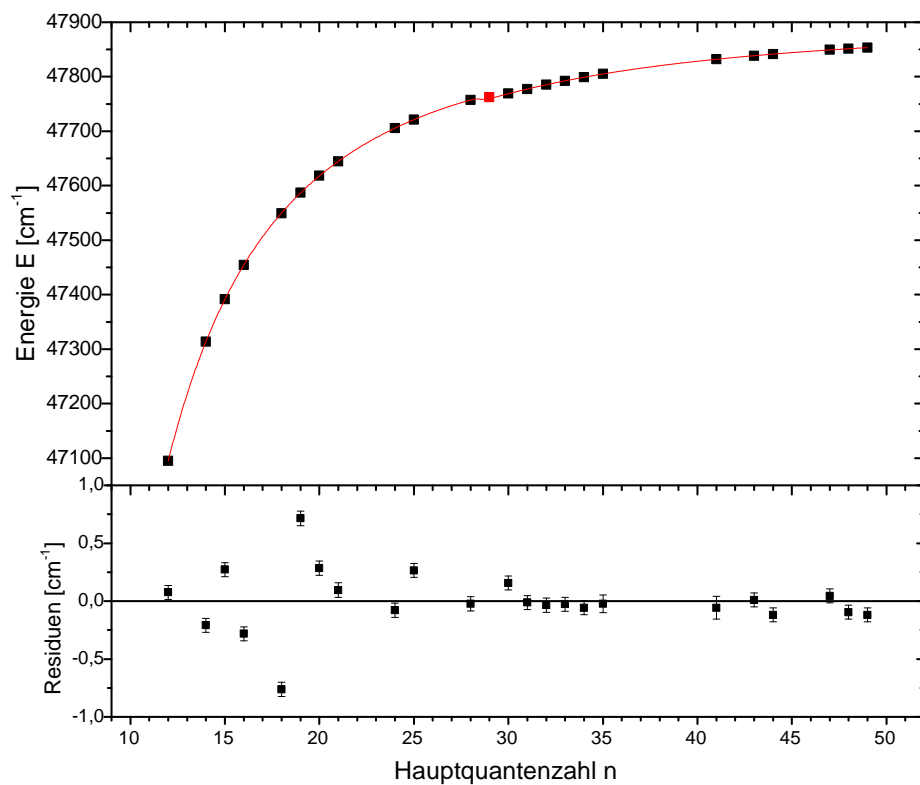


Abbildung 46.: Im oberen Teilgraphen sind die Energielagen der Zustände aus Schema B, die Serie 2 zugeordnet wurden gegen die entsprechenden Hauptquantenzahlen nach Friedrich aufgetragen. Der rot markierte Punkt bei  $n = 29$  ist der vermeintliche Störer. Im unteren Teilgraphen sind die Residuen aufgetragen, die aus einer Kurvenanpassung nach Gleichung (33) entstehen. Die eingezeichneten Fehler sind die quadratisch aufaddierten Fehler des ersten Anregungsschrittes und des Fehlers der jeweiligen Zentrums- lage aus der Gaußanpassung der Peaks.

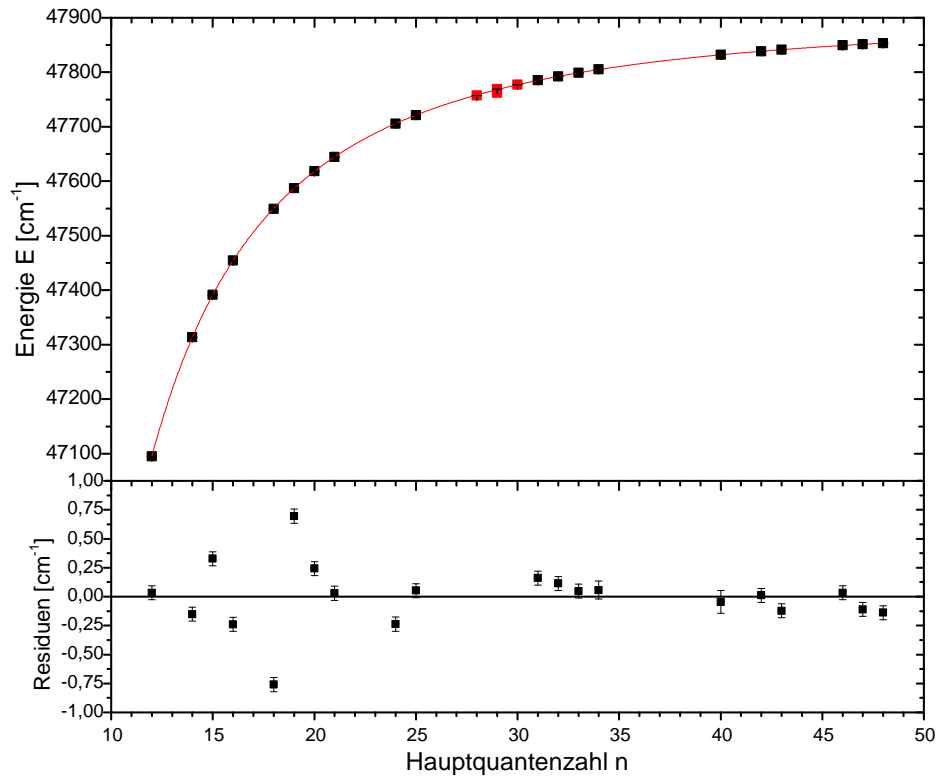


Abbildung 47.: Dargestellt sind die Energielagen der Zustände aus Schema B, die Serie 2 zugeordnet wurden und gegen die Hauptquantenzahlen nach Fano aufgetragen sind. Es wurden drei Datenpunkte im Bereich des Störers, sowie dieser selbst vom Fit ausgenommen, diese liegen im Bereich von  $n = 28$  bis  $n = 30$  und sind rot gekennzeichnet. Die Residuen sind das Ergebnis einer Kurvenanpassung durch Gleichung (20).



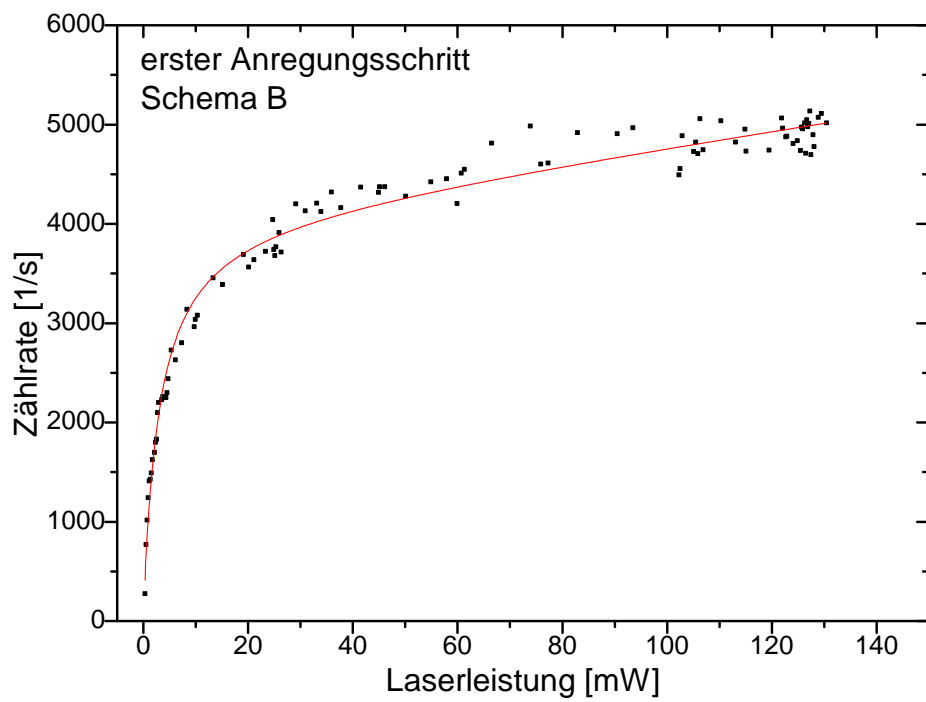


Abbildung 48.: Sättigungsverhalten für Schema B des ersten Anregungsschrittes, der zweite Anregungsschritt wurde auf maximaler Leistung betrieben.

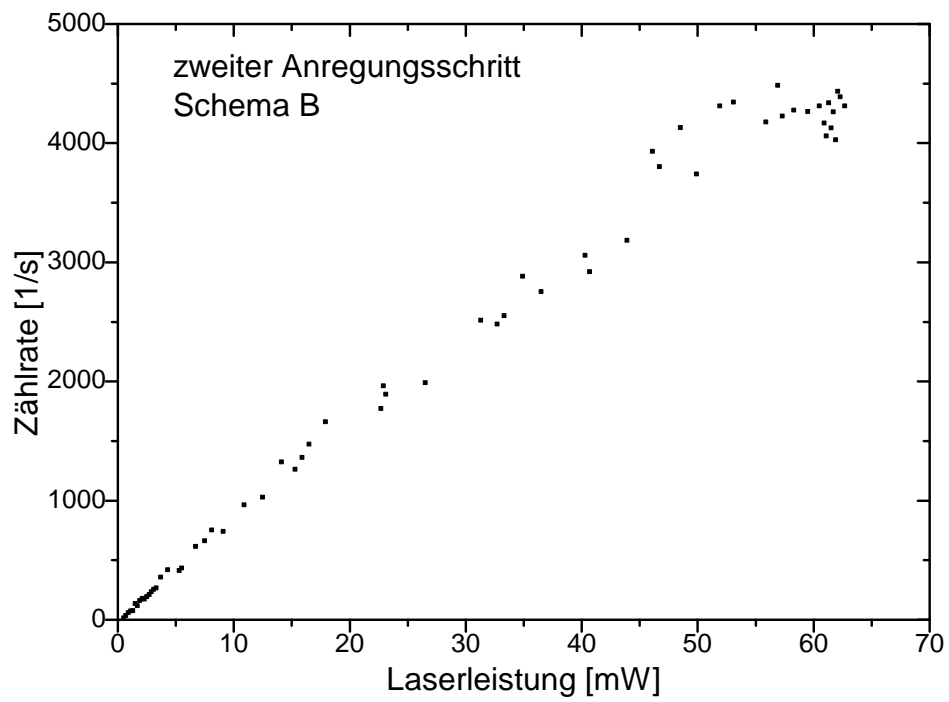


Abbildung 49.: Sättigungsverhalten für die Anregung eines starken autoionisierenden Zustandes bei  $48960,1 \text{ cm}^{-1}$  in Schema B. Dieser Übergang lässt sich mit der verfügbaren Leistung nicht sättigen.

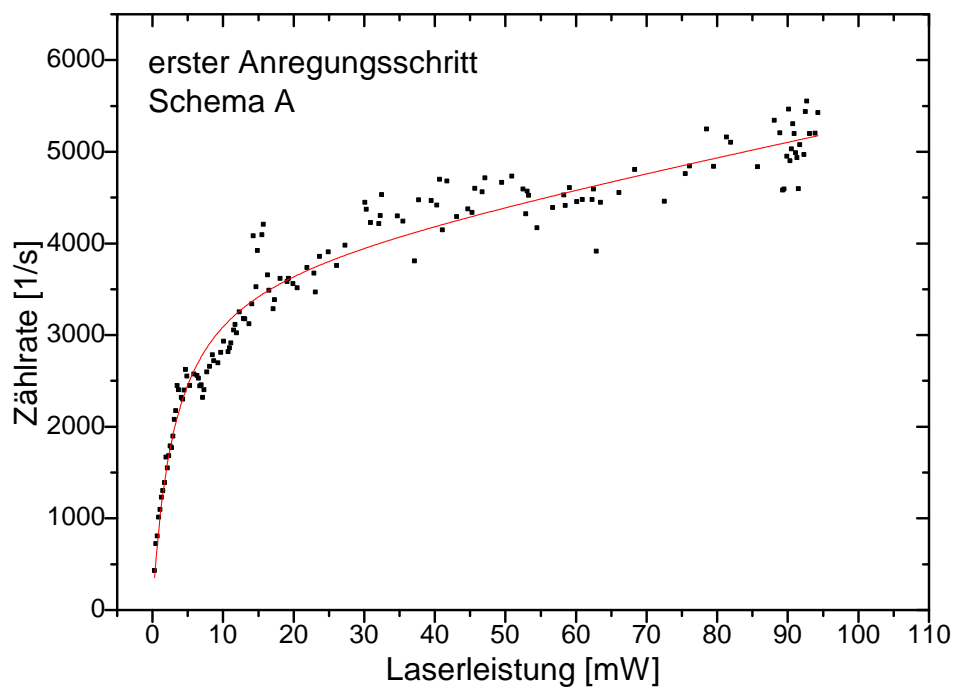


Abbildung 50.: Sättigungsverhalten für Schema A des ersten Anregungsschrittes, der zweite Anregungsschritt wurde auf maximaler Leistung betrieben.

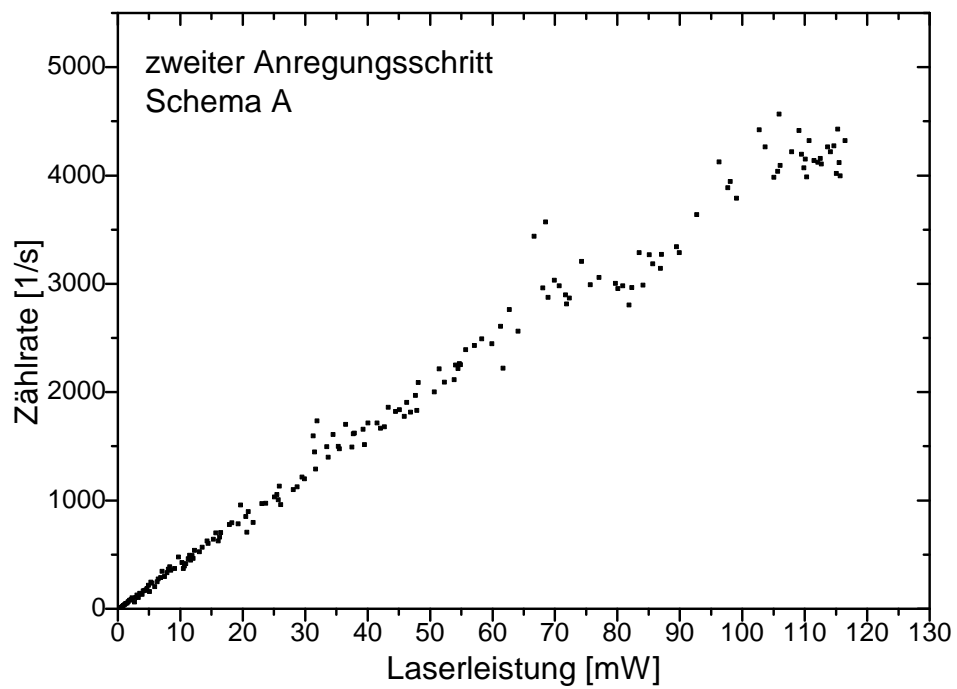


Abbildung 51.: Sättigungsverhalten für die Anregung eines starken autoionisierenden Zustandes bei  $48161,6 \text{ cm}^{-1}$  in Schema A. Dieser Übergang lässt sich mit der verfügbaren Leistung nicht sättigen.

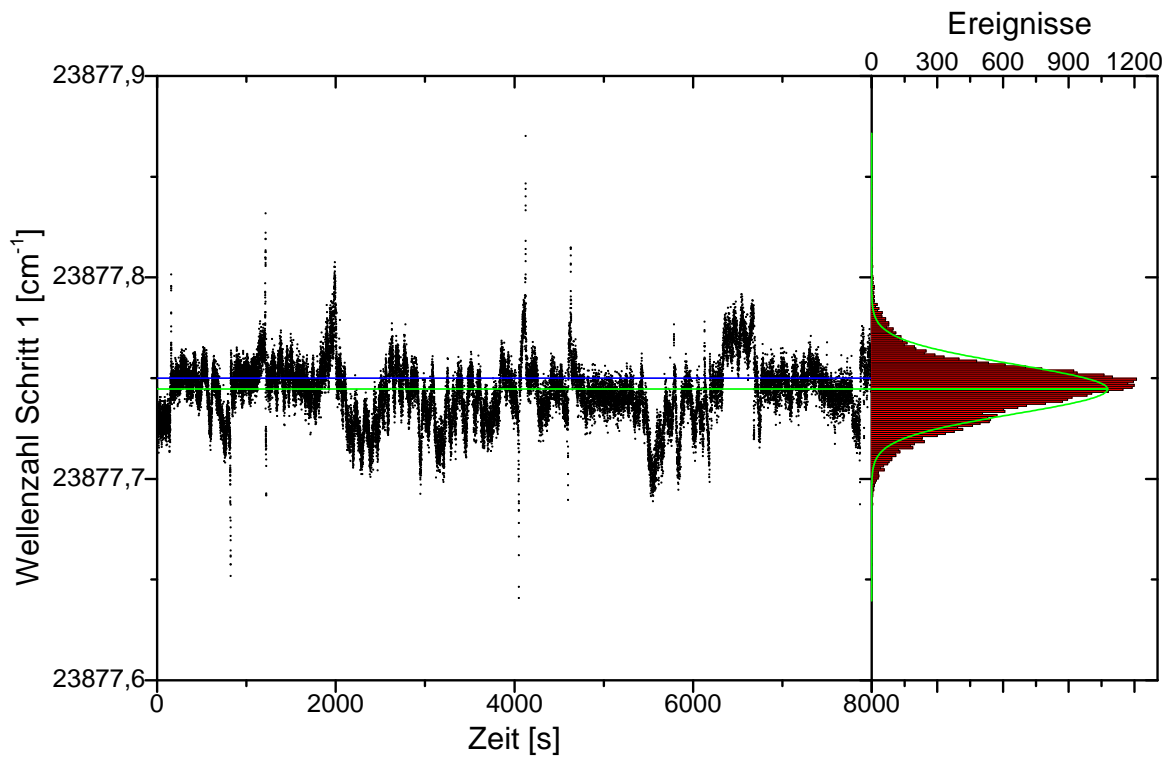


Abbildung 52.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes der Aufwärtsmessung aus Schema A aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie entspricht dem Literaturwert [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich mit angepasster Gaußkurve. Die grüne horizontale Linie stellt das Zentrum dieser Gaußkurve dar.

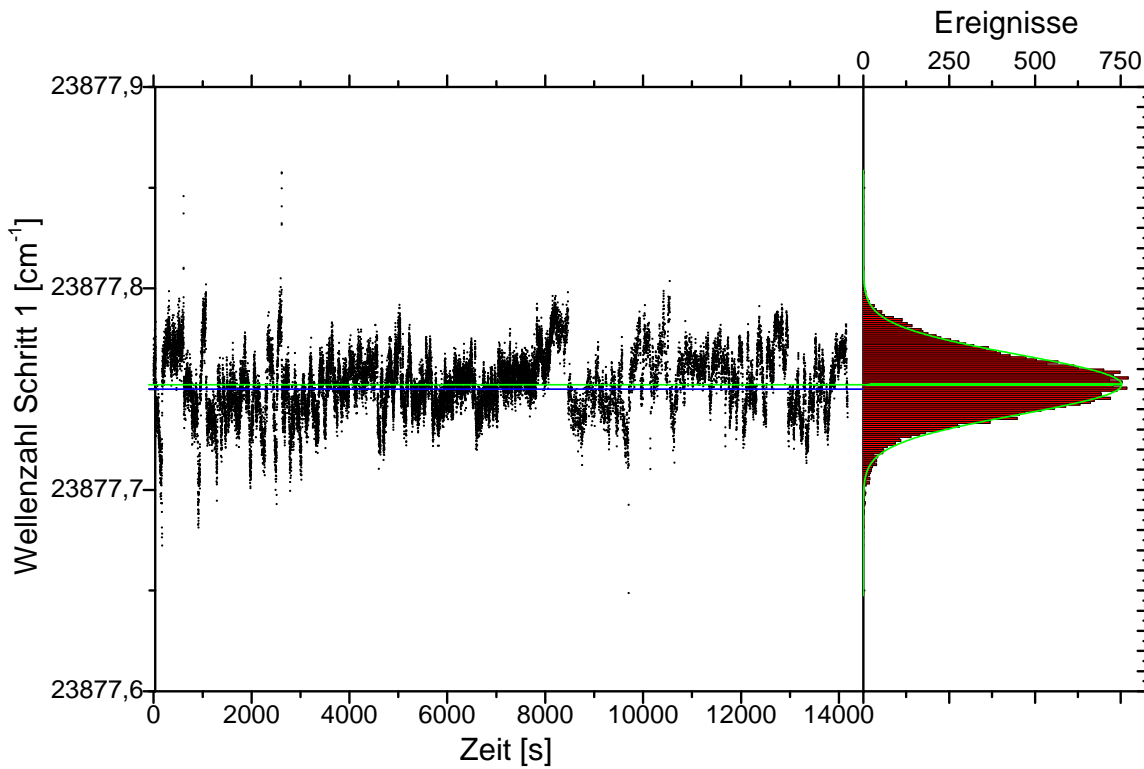


Abbildung 53.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes der Abwärtsmessung aus Schema A aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie entspricht dem Literaturwert [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich mit angepasster Gaußkurve. Die grüne horizontale Linie stellt das Zentrum dieser Gaußkurve dar.

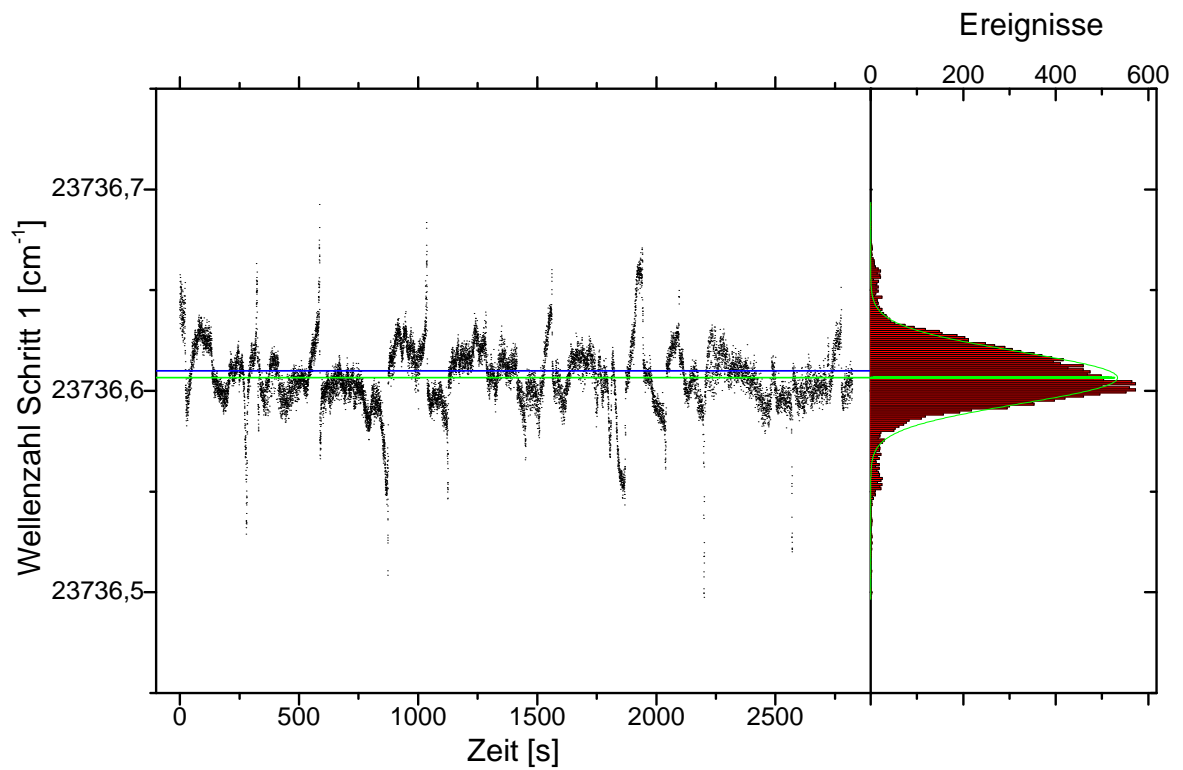


Abbildung 54.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes der Aufwärtsmessung aus Schema C im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie entspricht dem Literaturwert [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich mit angepasster Gaußkurve. Die grüne horizontale Linie stellt das Zentrum dieser Gaußkurve dar.

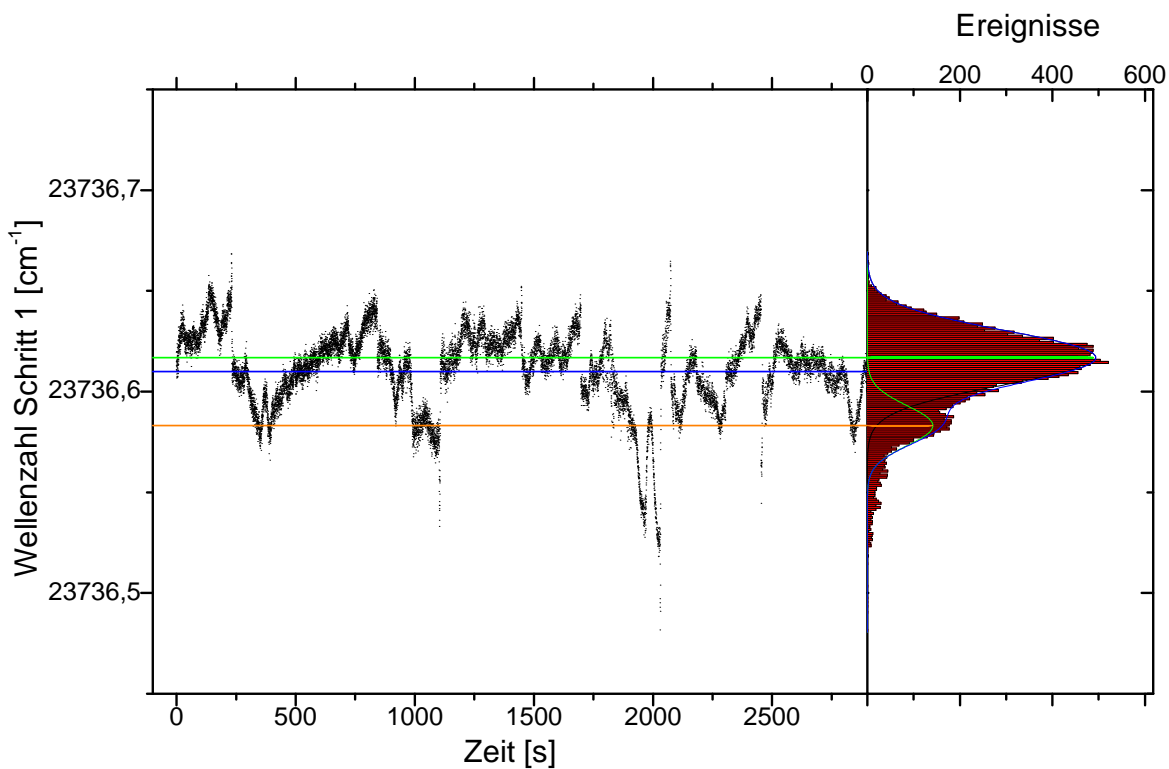


Abbildung 55.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes aus der Abwärtsmessung aus Schema C im Bereich unterhalb des Ionisationspotentials aufgetragen gegen die Messezeit. Die horizontale blaue Linie symbolisiert den Literaturwert des ersten Anregungsschrittes [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich angepasst mit einer Überlagerung zweier Gaußkurven. Die grüne und orangene horizontale Linien stellen die Zentren dieser Gaußkurven dar.



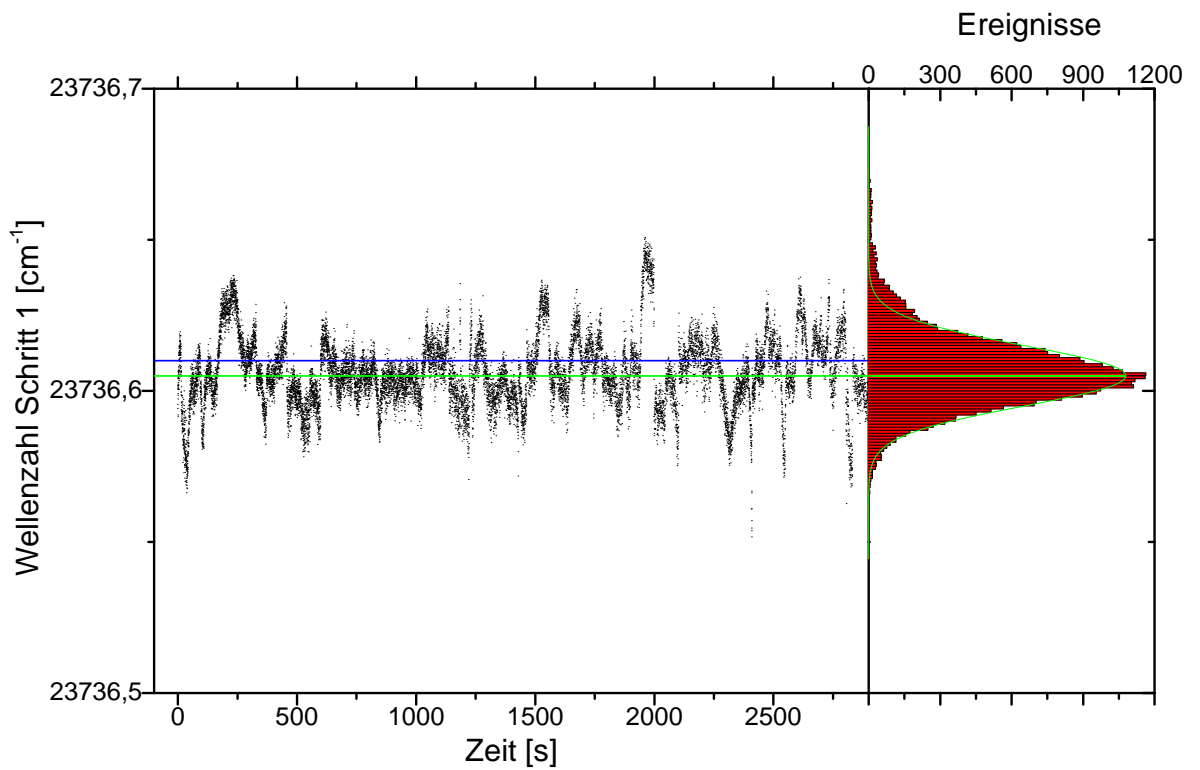


Abbildung 56.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes der Aufwärtsmessung aus Schema C im Bereich oberhalb des Ionisationspotentials aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie entspricht dem Literaturwert [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich mit angepasster Gaußkurve. Die grüne horizontale Linie stellt das Zentrum dieser Gaußkurve dar.

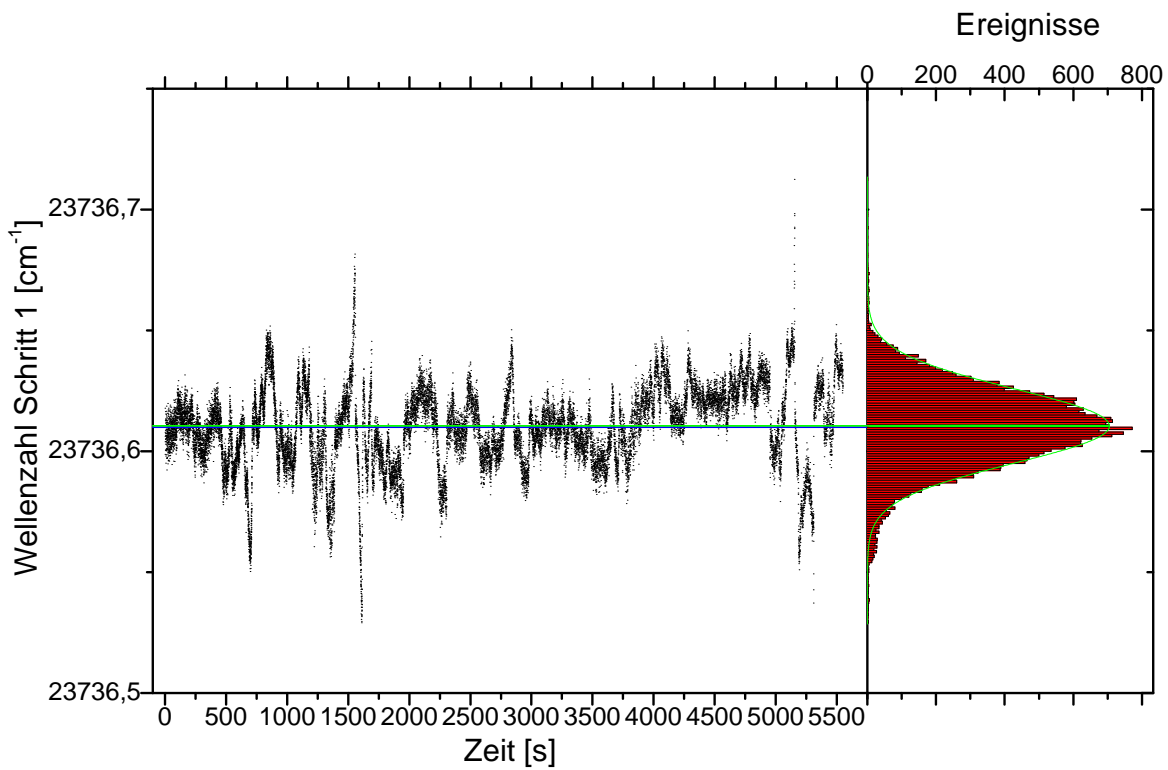


Abbildung 57.: Links: Wellenzahl des frequenzverdoppelten ersten Anregungsschrittes der Abwärtsmessung aus Schema C im Bereich oberhalb des Ionisationspotentials aufgetragen gegen die Messzeit. Die horizontale blaue Linie entspricht dem Literaturwert [26]. Rechts: Histogramm der Anzahl der Messpunkte im jeweiligen Wellenlängenbereich mit angepasster Gaußkurve. Die grüne horizontale Linie stellt das Zentrum dieser Gaußkurve dar.