

Beatrix Ostrick

Eine kondensierte  
 $^{83\text{m}}\text{Kr}$ -Kalibrationsquelle  
für das KATRIN-Experiment

- 2008 -



Experimentelle Physik

Dissertationsthema  
Eine kondensierte  $^{83\text{m}}\text{Kr}$ -Kalibrationsquelle  
für das KATRIN-Experiment

Inaugural-Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften im Fachbereich Physik  
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster

vorgelegt von  
Beatrix Ostrick  
aus Mainz

- 2008 -

---

Dekan: Prof. Dr. J. P. Wessels

Erster Gutachter: Prof. Dr. Chr. Weinheimer

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. J. P. Wessels

Tag der mündlichen Prüfung: 9.2.2009.....

Tag der Promotion: 9.2.2009.....

# Zusammenfassung

Die Masse der Neutrinos spielt eine wichtige Rolle in Kosmologie, Teilchen- und Astrophysik. Obwohl Oszillationen zeigten, dass Neutrinos eine Ruhemasse haben, konnte sie bislang nur bis auf eine Obergrenze von  $2 \text{ eV}/c^2$  [PDG] im Laborexperiment direkt ermittelt werden. Das Ziel des **K**Arlsruhe **T**Ritium Neutrino Experiments ist die Bestimmung der Neutrinomasse anhand des  $\beta$ -Spektrums einer gasförmigen  $T_2$ -Quelle mit einer Sensitivität von  $0,2 \text{ eV}/c^2$  (90% C.L.) bei einer effektiven Messzeit von 3 Jahren. Dazu wird ein elektrostatischer Energiefilter mit hoher Luminosität durch magnetische Führung und hoher Auflösung aufgrund magnetischer Impulskollimation (MAC-E-Filter) eingesetzt. Die genaue elektrische Potentialdifferenz zwischen Quell- und Analyseort und deren Stabilität ist eine maßgebliche Komponente der systematischen Unsicherheit, da eine unbekannte Fluktuation  $\sigma$  zu einer Verschiebung der Messgröße des Neutrinomassenquadrates  $\Delta m_\nu^2 c^4 = -2\sigma^2$  führt. Für die Vermessung des Endpunktbereichs des  $T_2$ - $\beta$ -Spektrum ist ein Potentialberg von  $\Phi = -18,6 \text{ keV}$  nötig. Die zugrundeliegende Spannung muss damit auf 3 ppm frei von Instabilitäten sein, um die Sensitivität des KATRIN-Experiments nicht zu gefährden.

Ergänzend zu einem Präzisionsspannungsteiler [Thu08] wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Kalibrationsquelle aus kondensiertem  $^{83m}\text{Kr}$  aufgebaut und getestet. Die Energie der K-32-Konversionselektronen ist durch die Kernübergangsenergie und die Bindungsenergie der Elektronen der K-Schale festgelegt, und von Natur stabil. Alternativ zu Tritiummessungen im Hauptstrahlengang des KATRIN-Experiments und permanent synchron in einem weiteren MAC-E-Filter (Monitorspektrometer) kann diese Elektronenlinie als Anzeige für die Stabilität der HV-Messung und Spektrometerbedingungen dienen.

$^{83m}\text{Kr}$  ist ein kurzlebige Gas mit einer Halbwertszeit  $T_{1/2} = 1,83 \text{ h}$ . Um damit eine Langzeitüberwachung zu ermöglichen, wurde das Gas auf ein Graphitplättchen (HOPG) aufkondensiert. Durch die Präsenz des Substrats wird die messbare Linienposition der Konversionselektronen verändert. Einerseits geht die Austrittsarbeit des Substrats ein, andererseits ordnen sich die Ladungen im Substrat durch die Ladung des Endzustands des Konversionsprozesses um (Spiegelladung). Dies führt zu einer zusätzlichen Bindungsenergie des  $^{83m}\text{Kr}^+$ , welche auf die kinetische Energie der emittierten Elektronen übertragen wird. Sowohl die Austrittsarbeit als auch die Bindungsenergie des Endzustands werden durch die Gegenwart von Restgas verändert, welches damit die Hauptursache von Instabilitäten sind.

Ziel dieser Arbeit war es, eine Filmpräparationsmethode zu definieren, die eine reproduzierbare Energie der Konversionselektronen zur Folge hat. Dazu wurden drei Methoden getestet: Reinigen des Substrats mit a) einem Widerstandsheizger, mit b) Laserablation und c) Präparieren einer je frischen Unterlage aus stabilem Krypton. Ohne Ablation ist eine zunehmende Verschmutzung des Substrats aufgetreten, welche die Linienposition verschoben hat. Mit Ablation wurden 19 Filme über die Dauer eines Monats präpariert, welche eine Stabilität von 1 ppm zeigten. Damit und mit der Auswahl der saubersten Filme mit Heizger gereinigten Substrat konnte eine Drift des Spannungsteilerwertes von  $0,61(9) \text{ ppm/Monat}$  nachgewiesen werden.

Das Spektrum der hinreichend starken Konversionslinien von  $^{83m}\text{Kr}$  wurde gemessen. Damit konnten die Übergangsenergien des zweistufigen Relaxationsprozesses von  $^{83m}\text{Kr}$  bestimmt werden:  $E_{\gamma,32} = 32151,74(35) \text{ eV}$  und  $E_{\gamma,9} = 9404,71(35) \text{ eV}$ . Dabei zeigte sich, dass die Bindungsenergie der  $L_I$ -Schale nicht mit den aktuellsten Literaturwerten übereinstimmt [Dra04]. Weiter konnten die Verhältnisse der Konversionskoeffizienten abgeschätzt werden.



# Abstract

The mass of neutrinos is playing an important role in cosmology, particle and astrophysics. Nevertheless the neutrino mass was yet only directly determined to an upper limit of  $2 \text{ eV}/c^2$  [PDG] in a laboratory experiment.

The aim of the **K**Arlsruhe **T**Ritium Neutrino experiment is the determination of the neutrino mass by use of the  $\beta$ -spectrum of a gaseous  $T_2$ -source with a sensitivity of  $0,2 \text{ eV}/c^2$  (90% C.L.) with an effective measuring time of 3 years. For that purpose an electrostatic energy filter with high luminosity due to magnetic guidance and high resolution by magnetic momentum collimation (MAC-E-Filter) is used. The exact electric potential difference between source and analysing plane and its stability is a crucial component of the systematic uncertainty, as any unknown fluctuation  $\sigma$  leads to a shift of the square of the neutrino mass  $\Delta m_\nu^2 c^4 = -2\sigma^2$ . For the measurement of the endpoint region of the  $T_2$ - $\beta$ -spectrum a potential well of  $\Phi=18,6 \text{ keV}$  is needed. The underlying voltage has to be free of instabilities on 3 ppm not to harm the KATRIN sensitivity.

Complemental to a precision voltage divider [Thu08], a calibration source of condensed  $^{83m}\text{Kr}$  was built and tested within the frame of this thesis. The energy of the K-32-conversion electrons is fixed due to the energy of the nuclear transition and the binding energy of the K-shell electrons and for that reason it is provided with a natural stability. Alternatively to tritium measurements in the main beamline of the KATRIN experiment and permanently and synchronously at a another MAC-E-Filter (Monitor Spectrometer) this stable electron line can be used as an indicator of the stability of the HV-measurement and spectrometer conditions.

$^{83m}\text{Kr}$  is a short living gas with a halfife of  $T_{1/2}=1,83 \text{ h}$ . To allow a long term monitoring the gas was condensed onto a graphite plate (HOPG). Due to the presence of the substrate the measured line position of the conversion electrons is changed. On the one hand side the work function of the substrate enters, on the other hand side the charge distribution in the substrate reorders itself under the influence of the final state of the conversion process (mirror charge). This leads to an additional binding energy of the  $^{83m}\text{Kr}^+$ , which is transferred to the kinetic energy of the emitted electron. Both the work function and the binding energy of the final state is modified by the presence of residual gas, which is thereby the main cause of instabilities.

The aim of this doctoral thesis was to define a film preparation method which leads to a reproducible energy of the conversion electrons. Therefore three methods were tested: cleaning of the substrate with a) a resister by heating, b) by laser ablation and c) preparing a fresh preplating made of stable krypton. Without ablation an ongoing pollution of the substrate appeared which shifted the line position. With ablation 19 films were prepared over the period of one month which showed a stability of 1 ppm. Thereby together with the selection of the cleanest films whose substrate was cleaned by heating, a longterm drift of the voltage divider of  $0,61(9) \text{ ppm/month}$  could be re-proved.

Furthermore the spectrum of the other conversion electron lines of  $^{83m}\text{Kr}$  was measured. So the transition energies of the two-step relaxation process of  $^{83m}\text{Kr}$  could be determined:  $E_{\gamma,32}=32151,74(35) \text{ eV}$  and  $E_{\gamma,9}=9404,71(35) \text{ eV}$ . Thereby it appeared, that the binding energy of the  $L_I$ -shell is not in concordance with the most recent publication [Dra04]. Further ratios of the conversion coefficients were estimated.





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Massive Neutrinos im Standardmodell . . . . .	3
1.2	Neutrinos in der Kosmologie . . . . .	9
1.3	Direkte Neutrinomassenbestimmung . . . . .	16
<b>2</b>	<b>Das KATRIN-Experiment</b>	<b>21</b>
2.1	Der $\beta$ -Zerfall und die Neutrinomasse . . . . .	21
2.2	Der KATRIN-Aufbau . . . . .	27
2.2.1	Fensterlose gasförmige Tritiumquelle - WGTS . . . . .	27
2.2.2	Pump- und Transportstrecke . . . . .	30
2.2.3	Elektromagnetische Führung und der Energiefilter . . . . .	31
2.2.3.1	MAC-E-Filter . . . . .	31
2.2.3.2	Die KATRIN-Spektrometer . . . . .	35
2.2.4	Detektor . . . . .	37
2.2.5	Monitorspektrometer . . . . .	38
<b>3</b>	<b>Systematische Unsicherheit und Stabilitätsüberwachung</b>	<b>41</b>
3.1	Statistische und systematische Unsicherheiten . . . . .	41
3.1.1	HV-Stabilitätsanforderungen . . . . .	48
3.1.2	HV-Stabilitätskontrolle . . . . .	50
3.1.2.1	Messung der Hochspannung mit einer Präzision von 1 ppm . . . . .	51
3.1.2.2	Kalibrationsquellen und ihre Einsatzorte . . . . .	53

<b>4</b>	<b>Die Energie der Konversionselektronen</b>	<b>59</b>
4.1	Konversionselektronen freier Atome . . . . .	59
4.2	Konversionselektronen gebundener Atome . . . . .	61
4.2.1	Kontaktpotentiale . . . . .	61
4.2.2	Spiegelladung-Relaxationsshift . . . . .	67
4.2.3	Bindungsenergien von $^{83\text{m}}\text{Kr}$ an HOPG . . . . .	68
4.3	Auffrierbedingung . . . . .	71
<b>5</b>	<b>Experimenteller Aufbau einer Quelle aus kondensiertem Krypton</b>	<b>75</b>
5.1	Aufbau . . . . .	75
5.2	Gaseinlasssystem . . . . .	76
5.3	Kryosystem . . . . .	79
5.3.1	Kältemaschine . . . . .	80
5.3.2	Thermische Ankopplung . . . . .	80
5.3.3	Gasdüse . . . . .	83
5.4	Mechanik . . . . .	85
5.5	Optik . . . . .	87
5.5.1	Ellipsometrie . . . . .	87
5.5.2	Ablation . . . . .	94
<b>6</b>	<b>Messungen am Mainzer Neutrinomassenspektrometer</b>	<b>99</b>
6.1	Experimenteller Aufbau in Mainz . . . . .	100
6.2	Durchführung der Messungen . . . . .	102
6.2.1	Messablauf . . . . .	102
6.2.2	Datenauswertung . . . . .	103
6.2.3	Rohdatenbearbeitung . . . . .	105
6.3	Filmpräparationsmethoden . . . . .	113
6.3.1	Kontinuierliches Auffrieren nach einer Substratreinigung mit Ablation . . . . .	113
6.3.1.1	Halbwertszeit . . . . .	113
6.3.1.2	Stabilität der Elektronenenergie bei einer Woche kon- tinuierlichem Auffrieren - 2007 . . . . .	116
6.3.1.3	Linienbreiten und -positionskorrelation . . . . .	119

---

6.3.1.4	Gaussverbreiterung der Linie . . . . .	121
6.3.2	Überblick über die Filme mit Ablationsreinigung des Substrats - 2007 . . . . .	124
6.3.2.1	Stabilität Linie nach Substratreinigung mit Ablation	125
6.3.2.2	Einfluss des Ablationsprozesses auf die Linienposition	127
6.3.2.3	Einfluss der Laserleistung bei der Ablation . . . . .	128
6.3.2.4	Absenkung der Energiemesswerte durch Instabilitäten der Hochspannung . . . . .	133
6.3.2.5	Fazit zu den Filmen mit Ablationsreinigung . . . . .	138
6.3.3	Reinigung mit Substratheizer . . . . .	141
6.3.3.1	Desorptionsverhalten von $^{83m}\text{Kr}$ auf HOPG unter den Messbedingungen . . . . .	141
6.3.3.2	Beschreibung einer "Standardreinigung" mit dem Sub- stratheizer . . . . .	142
6.3.3.3	Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers . . . . .	143
6.3.4	Filme auf einer Kryptonunterlage - Preplating . . . . .	163
6.3.4.1	Stabilität der Linie bei $^{83m}\text{Kr}$ -Filmen auf eine Kryp- tonunterlage . . . . .	164
6.3.4.2	Druckabhängigkeit der Preplatingfilme . . . . .	169
6.3.4.3	Abhängigkeit der Linienposition von der Dicke des Preplatings . . . . .	171
6.4	Spektrometerabhängigkeiten . . . . .	176
6.4.1	Dejustage . . . . .	177
6.4.1.1	Kriterien zur Positionsbestimmung aus den Daten .	177
6.4.2	Erdfeldkompensation . . . . .	186
6.4.2.1	Zusammenfassung zu den beschriebenen Spektrome- terabhängigkeiten . . . . .	188
6.4.3	Austrittsarbeit der Filterelektroden . . . . .	189
6.4.4	Anwendung der Kriterien auf die Messdaten von 2007 . . . . .	191
6.4.4.1	Ablationsfilme . . . . .	191
6.4.4.2	Heizergereinigte Filme . . . . .	193
6.4.4.3	Preplating . . . . .	195
6.5	Stabilität im Langzeitverhalten . . . . .	196

---

6.5.1	Ablation . . . . .	200
6.5.2	Heizergereinigte Filme . . . . .	201
6.5.3	Preplating Filme . . . . .	203
6.5.4	Bestimmung der zeitlichen Drift des Teilerwertes . . . . .	204
<b>7</b>	<b>Das Konversionselektronenspektrum von <math>^{83m}\text{Kr}</math></b>	<b>205</b>
7.1	Der 9.4 keV-Übergang . . . . .	208
7.1.1	Das Spektrum der Konversionselektronen des 9 keV-Übergangs	208
7.1.2	Bestimmung 9.4 keV Übergangsenergie . . . . .	211
7.2	Der 32 keV-Übergang . . . . .	214
7.2.1	Das Spektrum der Konversionselektronen des 32 keV-Übergangs	214
7.2.2	Bestimmung der 32 keV-Übergangsenergie . . . . .	217
7.2.3	Die Differenz der Übergangsenergien . . . . .	218
7.3	Breiten der Konversionselektronenlinien . . . . .	219
7.4	Relative Intensitäten Konversionselektronenlinien . . . . .	220
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>223</b>
<b>9</b>	<b>Anhang</b>	<b>231</b>
9.1	Voltmeterkalibration . . . . .	231
9.2	Tabelle der Positionen der einzelnen Messphasen . . . . .	233
9.3	Bindungsenergie für Krypton . . . . .	234
9.4	Potentialdurchgriff und Rückstoßterme . . . . .	235
9.5	HOPG-Eigenschaften . . . . .	235
9.6	Kondensationsbindungen . . . . .	236

# Kapitel 1

## Einleitung

Von keiner Sache der Welt weiß man, dass sie winziger wäre, als es das Neutrino ist. Aber dennoch - der Rückschluss, folglich sei das Neutrino irrelevant, ist schlichtweg falsch. Gerade ihre Eigenschaften an der Schwelle zur Nichtigkeit, weisen den Neutrinos eine ausgeprägte Schlüsselrolle zu einer Vielzahl von Fragestellungen zu.

Neutrinophysik greift in diesem Sinne weit aus: hin zu größten Distanzen und längsten Zeitspannen bis zu den frühesten Momenten des Universums, Prozessen mit größten Energien in der Astrophysik und Szenarios mit schwersten Massen. Die schiere Anzahl der vorhandenen Neutrinos, deren zarte Kontakteigenschaften und nicht zuletzt die besondere Aufmerksamkeit, die überhaupt zu ihrer Entdeckung und Erkundung führte, machen sie zu besonderen Elementarteilchen.



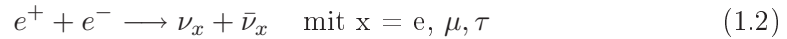
**Abbildung 1.1:** Abbildung der Supernova 1987A im Tarantula Nebel (photografiert von D.F.Malin, Anglo-Australian Telescope Board, 1987)

Das besondere Verhältnis von Wechselwirkungsarmut zu Information lässt sich sehr gut anhand der Sternexplosion SN1987 illustrieren ([Sch97]). Knapp 163000 Lichtjahre entfernt in der Magellanschen Wolke explodiert vor  $1,6 \cdot 10^5$  Jahren ein Stern (Sandulaek SK-69° 202, s. Abb. 1.1). Etwa  $10^{59}$  MeV Energie wird frei gesetzt. Der Stern leuchtet für mehrere Monate hell auf, bevor er zum Neutronenstern erlischt oder unter Hinzunahme von Materie der Umgebung eventuell weiter zum Schwarzen

Loch kollabiert. In dem Moment, wo der Gravitationsdruck beim Kollaps so stark wird, dass die Elektronen zusammengedrückt werden und dabei deren Fermi-Energie so weit ansteigt, dass die Reaktion

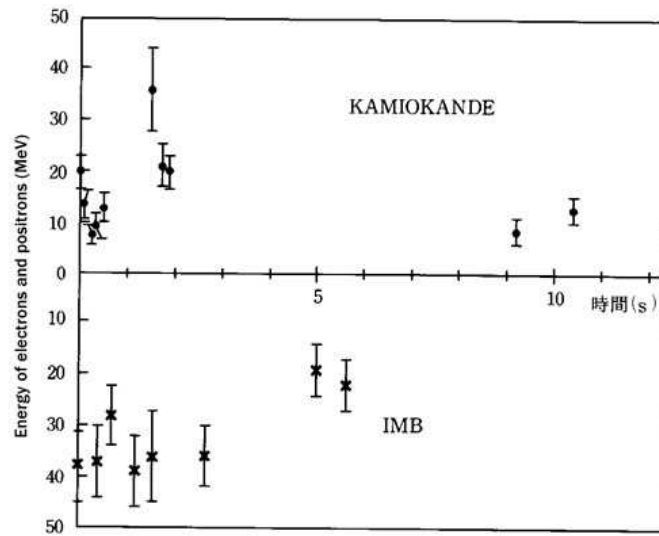


möglich wird, wird die Elektronenanzahl schlagartig gesenkt, und Neutrinos brechen aus dem Stern hervor. Etwas später kommt es zur Neutrinoerzeugung aus Elektron-Positronstößen (90%)



beim Abkühlungsprozess. Nur 0.005 % der Energie werden auf elektromagnetische Strahlung übertragen, gerade mal 1 % auf die Bewegung der Sterntrümmer, der Hauptanteil aber verteilt sich auf die entstehenden Neutrinos.

Von  $10^{16}$  ausgesendeten Neutrinos wurden andererseits gerade mal 19 Ereignisse in den großen Wasser-Čerenkov-Detektoren Kamiokande in Japan und IMB [Boe92] (s. Abb. 1.2) nachgewiesen.



**Abbildung 1.2: Gemessene Neutrinoereignisse der SN1987.** Dargestellt sind die 8 Ereignisse von IMB und 11 Ereignisse von Kamiokande. [Tots91]

Aber sie erreichten die Erde etwa 3 Stunden eher als das Licht, was an der kurzen freien Weglänge der Photonen in der dichten Sternmaterie liegt<sup>1</sup>, und nach 10-20 s war das Signal bereits erloschen.

Aus diesem Hauch von Nichts ließ sich einerseits die gesamte abgestrahlte Energie, d.h. die Bindungsenergie des Neutronensterns sowie dessen Core-Radius und seine

<sup>1</sup>Dies erklärt auch die die lange Leuchtdauer im optischen Bereich.

Masse abschätzen, andererseits konnten zahlreiche Aussagen über das Neutrino gewonnen werden [Sch97]: Obergrenze der Masse, Untergrenze für die Lebensdauer, Obergrenzen für Ladung und magnetisches Moment, schwache Hinweise auf Oszillationen und eine Abschätzung der Anzahl möglicher Neutrinoarten. Die Beobachtungen der SN1987 führten zur Nobelpreisverleihung an M. Koshiba im Jahr 2002. Zu all diesen Abschätzungen und Berechnungen war es aber nötig, auf das Neutrino überhaupt aufmerksam geworden zu sein und seine Wechselwirkungseigenschaften zu verstehen. Ohne ausreichende theoretische und laborexperimentelle Arbeit wäre keine dieser Zahlen glaubwürdig.

## 1.1 Massive Neutrinos im Standardmodell

Neutrinos sind eingegliedert in die Leptonenfamilien des Standard Modells der Elementarteilchen, d.h. sie nehmen nicht teil an der starken Wechselwirkung. Ihnen konnte keine elektrische Ladung nachgewiesen werden. Im Standardmodell der Elementarteilchen gruppiert sich zu jedem geladenen linkshändigen Lepton ein ungeladenes masseloses Neutrino:

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ e \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} \nu_\mu \\ \mu \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} \nu_\tau \\ \tau \end{pmatrix}$$

Wie alle Elementarteilchen haben Neutrinos keine entdeckten Anregungszustände und keine messbare räumliche Ausdehnung.

In der relativistischen Feldtheorie werden Spin 1/2-Teilchen (Fermionen) zunächst durch vierkomponentige Dirac-Spinoren beschrieben [Bjo], die der Dirac-Gleichung gehorchen. Die vier Komponenten tragen den vier Zustandsmöglichkeiten eines Dirac-Fermions Rechnung: Teilchen mit Spin up/down und Antiteilchen mit Spin up/down. Da jeder Neutrino flavour bislang nur in zwei Zuständen mit der Helizität<sup>2</sup>  $H=-1$  ( $\sim$ Neutrino) bzw.  $+1$  ( $\sim$ Antineutrino) aufgetreten ist und masselos behandelt wurde, war es unter diesen Voraussetzungen möglich im rechnerischen Formalismus auf die überzähligen Freiheitsgrade zu verzichten und ihn auf eine zweikomponentige Theorie herunterzubrechen (Weyl-Formalismus). Für masselose Teilchen sind die unterschiedlichen Helizitäten nicht durch eine Lorentztransformation ineinander überführbar, so dass links- und rechtshändige Zustände voneinander entkoppeln. Die Helizitätszustände masseloser Fermionen sind Eigenzustände zum Chiralitätsoperator  $\gamma^5$ . Beim Neutrinospinor kann man sich dann also auf Zustände einer Chiralität einschränken, so dass ein  $\nu$  immer linkshändig und ein  $\bar{\nu}$  immer rechtshändig auftritt.

In der Frage nach der Masse des Neutrinos kam es durch den Nachweis von Flavouroszillationen zu einem entscheidenden Umbruch. Um den Charakter von Neutrinos zu beschreiben, nutzt man folgendes Szenario [Sch85]: Es gibt eine Art Neutrino, die dadurch festgelegt ist, aus welcher Reaktion sie hervorgeht. Dies definiert den "schwachen Eigenzustand" des Elektrons, d.h. seinen Flavour  $|\nu_\alpha\rangle$  ( $\alpha = e, \mu, \tau$ ). Dieser

<sup>2</sup>Der Begriff Helizität beschreibt die Richtung des Spins bezüglich der Flugrichtung.

Flavoureigenzustand ist aber nicht gleichzeitig ein Eigenzustand des Massenoperators  $M$ . Beide Zustandsbeschreibungen, der Flavoureigenzustand  $|\nu_\alpha\rangle$  und der Masseneigenzustand  $|\nu_i\rangle$  ( $i=1,2,3$ ), sind über eine unitäre Transformation  $U$  miteinander verbunden,

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i} |\nu_i\rangle \quad \text{und} \quad (1.3)$$

$$|\nu_i\rangle = \sum_\alpha U_{i\alpha}^\dagger |\nu_\alpha\rangle = \sum_\alpha U_{\alpha i}^* |\nu_\alpha\rangle, \quad UU^\dagger = \mathbf{1} \quad (1.4)$$

welche im minimalen Fall von drei Masseneigenzuständen und drei Flavoureigenzuständen als  $3 \times 3$  Matrix durch 3 Mischungswinkel und eine Phase beschrieben wird.

Der Massenoperator hängt nicht explizit von der Zeit ab. Die Eigenzustände zum Massenoperator sind also stationäre Zustände. Diese zeigen im Schrödinger Formalismus folgende zeitliche Entwicklung:

$$|\nu_i(t)\rangle = e^{-iE_i t} |\nu_i\rangle \quad (1.5)$$

mit

$$E_i = \sqrt{p_i^2 + m_i^2} \approx p + \frac{m_i^2}{2p} \approx E + \frac{m_i^2}{2E}, \quad \text{wenn } p \gg m_i, E \approx p \quad (1.6)$$

Die relativen Phasen der einzelnen Eigenzustände der zeitlichen Entwicklung hängen also vom Unterschied der Masseneigenzustände ab.

$$|\nu(t)\rangle = \sum_i U_{\alpha i} e^{iE_i t} |\nu_i\rangle = \sum_{i,\beta} U_{\alpha i} U_{\beta i}^* e^{-iE_i t} |\nu_\beta\rangle \quad (1.7)$$

Welcher Flavourzustand nach Durchlaufen einer Strecke  $L$  vorliegt, wird durch die Übergangswahrscheinlichkeit  $P(\alpha \rightarrow \beta; t) = |\langle \nu_\beta | \nu(t) \rangle|^2$  bestimmt:

$$P(\alpha \rightarrow \beta; t) = \left| \sum_i U_{\alpha i} U_{\beta i}^* e^{-iE_i t} \right|^2 \quad (1.8)$$

$$= \sum_i |U_{\alpha i} U_{\beta i}^*|^2 + 2\text{Re} \sum_{j>i} U_{\alpha i} U_{\alpha j}^* U_{\beta i}^* U_{\beta j} e^{-i(E_i - E_j)t} \quad (1.9)$$

mit

$$(E_i - E_j)t \approx \frac{\Delta m_{ij}^2 L}{2E} \quad (1.10)$$

Wenn man sich zur Veranschaulichung des Sachverhalts auf einen "Zwei-Flavour-Formalismus" beschränkt mit zwei Neutrinoarten, einem Mischungswinkel und keiner komplexen Phase,

$$\begin{pmatrix} \nu_\alpha \\ \nu_\beta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.11)$$



dann ergibt sich

$$P(\nu_\alpha \longrightarrow \nu_\beta) = \sin^2 2\theta \left( \frac{\Delta m^2 L}{4 E} \right) \quad (1.12)$$

als Wahrscheinlichkeit für den Übergang von einem Flavourzustand in den anderen. Der Mischungswinkel  $\theta$  und die Massendifferenz  $\Delta m^2$  dürfen nicht verschwinden, damit Neutrinooszillationen möglich sind. Der Mischungswinkel definiert die Amplitude, die Massendifferenz zusammen mit der Energie und Distanz die Phase.

Wenn Neutrinos Materie variabler Elektronendichte durchqueren, kann zusätzlich zu den Oszillationen im Vakuum eine materiebedingte resonante Verstärkung der Oszillationswahrscheinlichkeit hinzukommen (MSW- Effekt) [Sch97].

Gestützt wird die Theorie der Neutrino-Oszillationen durch eine Reihe von Messungen

- der atmosphärischen Neutrinos mit Superkamiokande [Ash04]

$$1,9 \cdot 10^{-3} eV^2 < \Delta m_{atm}^2 < 3,0 \cdot 10^{-3} eV^2 \quad (1.13)$$

$$\sin^2 2\Theta_{atm} > 0,9(90\% C.L.) \quad (1.14)$$

in Konsistenz mit den Daten, die mit Beschleunigerneutrinos genommen wurden (K2K [Ahn03]), wobei das Vorzeichen der Differenz hier noch unbekannt ist.

- bei solaren Neutrinos mit SNO [Abh08], welche den solaren Neutrinofluss

$$\Phi_{\nu_s B}^{SNO} = (5,54_{-0,31}^{+0,33} (stat.)_{-0,34}^{+0,36} (syst.)) \times 10^6 \frac{1}{cm^2 s} \quad (1.15)$$

in Übereinstimmung mit dem SSM (Solaren-Standard-Modell) bestimmen konnten. In Kombination mit den Daten, die mit Reaktorneutrinos (KAMLAND [Ara04]) gewonnen wurden, ergeben sich für die Massendifferenz und den Mischungswinkel:

$$\Delta m_{solar}^2 = 7,59_{-0,21}^{+0,19} \times 10^{-5} eV^2 \quad (1.16)$$

$$\Theta_{solar} = 34,4_{-1,2}^{+1,3^\circ} \quad (1.17)$$

In diesem Fall ist das Vorzeichen der Massendifferenz aus Messungen des MSW-Effekts bekannt, sodass gilt

$$m_2 > m_1 \quad (1.18)$$

Aus den Neutrinooszillation folgt also, dass mindestens drei Neutrinomasseneigenzustände existieren müssen, von denen mindestens 2 eine Masse  $m \neq 0$  haben. Bekannt sind die Massendifferenzen ( $\Delta m_{12}^2, \Delta m_{23}^2$ ) und die Mischungswinkel ( $\Theta_{12}, \Theta_{23}$ ). Der verbleibende Mischungswinkel ist bislang nur auf eine Obergrenze hin bekannt:  $\sin^2(2\Theta_{13}) < 0,2$  (90 % C.L.) [Apo03]. Mit dem Folgeexperiment Double-Chooz [Ard06] wird eine Sensitivität von  $\sin^2 \Theta_{13} < 0,03$  erwartet.

Seit durch die Oszillationsexperimente nun also belegt ist, dass es zumindest zwei Masseneigenzustände mit einer endlichen Ruhemasse  $m \neq 0$  existieren, ist die Vereinfachung zu Weylspinoren ausgeschlossen. Die Existenz einer Neutrinomasse führt darüberhinaus dazu, dass die Helizität nun vom Bezugssystem abhängt. Um nicht-verschwindende Dirac-Massenterme zu erhalten, werden rechtshändige Neutrinos, bzw. linkshändige Antineutrinos sogar nötig.

Auf diese Weise eingebettet in den Rahmen des Standardmodells der Elementarteilchen nehmen die Neutrinos eine Sonderrolle ein. Mit ihren besonderen Eigenschaften von elektromagnetischer und starker Ladungsfreiheit und Masse, rütteln sie an der klaren Trennung zwischen Teilchen und Antiteilchen. Die Frage ist noch nicht abschliessend geklärt, ob das Neutrino gleich seinem Antiteilchen ist (Majorananeutrino), was ermöglichen würde, dass Rechtshändigkeit und Linkshändigkeit zwei Zustandsformen eines einzigen Teilchens wären oder ob Neutrino und Antineutrino unterschiedliche Teilchen (Diracneutrinos) sind, die nur in jeweils einer Form der Händigkeit aktiv auftreten? Es könnte also ein einziges Neutrino geben, das in rechtshändigem oder linkshändigem Zustand vorkommen kann.

Wäre ein Neutrino tatsächlich ein Majoranazustand, wäre ein Ansatz zum Verständnis der großen Massendiskrepanz zwischen den Neutrinos<sup>3</sup> und den restlichen Elementarteilchen über den Seesaw-Mechanismus Typ I gegeben. Diracmassenterme treten im Standardmodell nach der Form

$$H_\Psi = m_\psi(\bar{\Psi}\Psi) = m_\psi(\bar{\Psi}_L + \bar{\Psi}_R)(\Psi_L + \Psi_R) \quad (1.19)$$

$$= m_\psi\bar{\Psi}_L\Psi_R + h.k. \quad (1.20)$$

auf.

Im Falle von Majorananeutrinos, die zwischen Teilchen und Antiteilchen nicht unterscheiden, bestehen beide chiralen Zustände aus einer Überlagerung von Zustand und ladungskonjugiertem Zustand [Ber06]:

$$\Psi_{M,L} = \Psi_L + \Psi_L^C \quad (1.21)$$

$$\Psi_{M,R} = \Psi_R + \Psi_R^C \quad (1.22)$$

Damit gibt es weitere mögliche Massenterme der Form

$$H_{\Psi,M} = m_{\Psi,M}\bar{\Psi}\Psi^C + h.k. \quad (1.23)$$

Ein  $\Psi^C$  vernichtet ein Antiteilchen und erzeugt ein Teilchen, ein  $\bar{\Psi}$  vernichtet ein Antiteilchen und erzeugt ein Teilchen. Es werden also Übergänge des Types  $l \rightarrow \bar{l}$  bzw.  $\bar{l} \rightarrow l$  erzeugt [Sch97]. Während für geladene Diraceteilchen dieser Übergang von Teilchen zu Antiteilchen und vice versa mit einer Verletzung der Ladung gleichkäme und damit verboten ist, ist für ladungslose Neutrinos ein solcher Übergang

---

<sup>3</sup>unter der Voraussetzung, dass die Differenzen der Massen im Verhältnis zur absoluten Masse groß sind

möglich. Die dabei auftretenden zusätzlichen Massenterme lassen sich kompakt in der Matrixschreibweise angeben:

$$(\overline{\Psi}_L, \overline{\Psi}_L^C) \begin{pmatrix} m_{M,L} & m_D \\ m_D & m_{M,R} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi_R^C \\ \Psi_R \end{pmatrix} \quad (1.24)$$

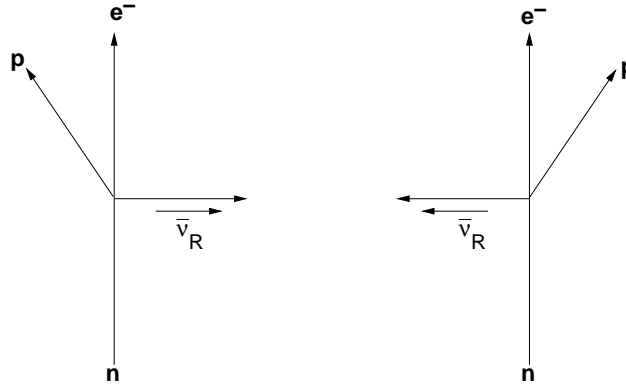
Die Diagonalisierung dieser Massenmatrix ergibt zwei Eigenzustände

$$m_1 = \frac{m_D^2}{m_{M,R}} \quad (1.25)$$

$$m_2 = m_{M,R} \left( 1 + \frac{m_D^2}{m_{M,R}^2} \right) \approx m_{M,R} \quad (1.26)$$

wobei  $m_2 = m_{M,R}$  ein schwerer Eigenzustand in der Größenordnung von  $m_{M,R} = 10^{15}$  eV sein kann und  $m_1$  ein leichter Eigenzustand ist, dessen Masse gerade um das Verhältnis von  $m_D$  zum schweren Eigenzustand  $m_2$  unterdrückt ist. Die Festlegung der absoluten Skala der Neutrinomasse und die Ausrichtung der Hierarchie kann dann dazu führen, die enthaltene Diracmasse  $m_D$  zu identifizieren.

Die einzige bislang bekannte Möglichkeit, die Majorana-Natur des Neutrinos experimentell nachzuweisen, ist der Nachweis eines neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls. Dabei zerfallen zwei gebundene Neutronen gleichzeitig, während die zunächst erwartete Emission von zwei identischen Neutrinos ausbleibt. Damit Kerne einen doppelten



**Abbildung 1.3: Eine schematische Darstellung des neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls** ist hier aufgetragen. Zwei gebundene Neutronen führen gleichzeitig einen schwachen Zerfall aus. Es werden je zwei Protonen und zwei Elektronen freigesetzt. Das am einen Vertex entstehende  $\bar{\nu}_R$  muss am zweiten Vertex als  $\nu_L$  zerstört werden, wenn ein neutrinoloser doppelter  $\beta$ -Zerfall möglich sein soll.

$\beta$ -Zerfall machen, muss er zunächst einmal energetisch erlaubt sein:

$$m(Z, A) > m(Z + 2, A) \quad (1.27)$$

Des weiteren muss der einfache  $\beta$ -Zerfall verboten sein:

$$m(Z, A) < m(Z + 1, A) \quad (1.28)$$

Diese Konfiguration kann bei gerade-gerade Kernen aufgrund der Paarenergie auftreten. Doppelter  $\beta$ -Zerfall kann damit bei  $0^+ \rightarrow 0^+$  Übergängen auftreten.

Wenn die Beschreibung der schwachen Wechselwirkung im Standardmodell stimmt, dann muss an beiden Vertices (s. Abb. 1.3) von der Erzeugung eines rechtshändigen Antineutrinos bzw. der Vernichtung eines linkshändigen Neutrinos ausgegangen werden. Wenn es bei Neutrinos keine Unterscheidungsmöglichkeit zwischen Teilchen und Antiteilchen gibt, ist es folglich auch möglich, dass am einen Vertex ein Antineutrino erzeugt wird, welches am zweiten Vertex vernichtet wird und so Netto kein Neutrino emittiert wird. Die Helizitätsbilanz kommt für die Reaktion allerdings noch erschwerend hinzu. Ein originär rechtshändiges Teilchen muss als linkshändiges Teilchen vernichtet werden. Ein solches Umklappen der Helizität ist für massive Teilchen zwar möglich, aber gerade mit der Leichtigkeit der Masse unterdrückt. Die Halbwertszeit  $T_{1/2}$  eines neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls lässt sich angeben zu [Zub06]:

$$T_{1/2}^{-1} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \left( \frac{\langle m_{ee} \rangle}{m_e} \right)^2 \quad (1.29)$$

mit

$G^{0\nu}$ : Phasenraumintegral des Zerfalls,

$|M^{0\nu}|$ : Matrixelement des Kernübergangs und

der Neutrinomasse  $\langle m_{ee} \rangle$ :

$$\langle m_{ee} \rangle = \left| \sum_i |U_{ei}|^2 e^{2i\alpha_i} m_i \right| \quad (1.30)$$

mit

$m_i$ : Masseneigenwerte der Neutrinos,

U: unitäre Transformationsmatrix zwischen Flavoureigenzuständen und Masseneigenzuständen,

$\alpha_i$ : mögliche CP-verletzende Phasen.

Das bislang empfindlichste Experiment zum Nachweis des neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls stellt das Heidelberg-Moskau-Experiment dar [Kla01]. Es besteht aus 11 kg hochreinem angereichertem  $^{76}\text{Ge}$ , welches gleichzeitig sowohl als Quelle als auch als Detektor fungiert. Mit diesem Aufbau wurde von 1990-2003 im Gran Sasso gemessen. Es ergab sich mit  $4,2 \sigma$  für die Evidenz des  $0\nu\beta\beta$ -Prozesses ein Wert von [Kla04]:

$$T_{1/2} = (0,69 - 4,18) \cdot 10^{25} \text{y} \quad (1.31)$$

und damit eine Bestimmung der Neutrinomasse von

$$\langle m_{ee} \rangle = 0,44_{-0,2}^{+0,14} \text{ eV}/c^2 \quad (1.32)$$

Diese Werte wurden nur von einem Teil der ursprünglichen Kollaboration veröffentlicht [Kla04] und werden überdies kontrovers diskutiert. Eine Bestätigung oder Widerlegung des Ergebnisses auf experimenteller Basis blieb bislang leider aus. Dies ist insbesondere verwunderlich, da die Sensitivität des Experiments proportional zu  $\sqrt{t}$  ansteigt und die Aussagekraft der Messung also durch eine Ausdehnung der Messzeit erhöht werden hätte können<sup>4</sup>. Erst mit einer neuen im Aufbau befindlichen Generation von Experimenten zum neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfall (GERDA, Cuore, Nemo, Exo, Majorana, Sno+, ...) kann es zu einer Klärung der Teilchen-Antiteilchen-Natur der Neutrinos kommen.

## 1.2 Neutrinos in der Kosmologie

Im kosmologischen Standardmodell ( $\Lambda$ CDM) wird nach der ersten Friedmann-Gleichung

$$\frac{kc^2}{H^2 R^2} = \sum_i \Omega_i - 1 \quad (1.33)$$

mit:

H: Hubbleparameter= $70 \pm 10$  km/s/Mpc

k: Krümmung des Raumes

R: Expansionsfaktor des Universums

die Metrik des Raumes in Beziehung zu der vorhandenen Energiedichte  $\Omega$  gesetzt. Die Energiedichte  $\Omega$  wird im Verhältnis zur kritischen Energiedichte  $\varrho_c = 5,1 \text{ GeV}/\text{m}^3$  angegeben<sup>5</sup> und setzt sich heute im wesentlichen aus zwei Beiträgen zusammen:

$$\Omega = \Omega_\Lambda + \Omega_M \quad (1.34)$$

mit:

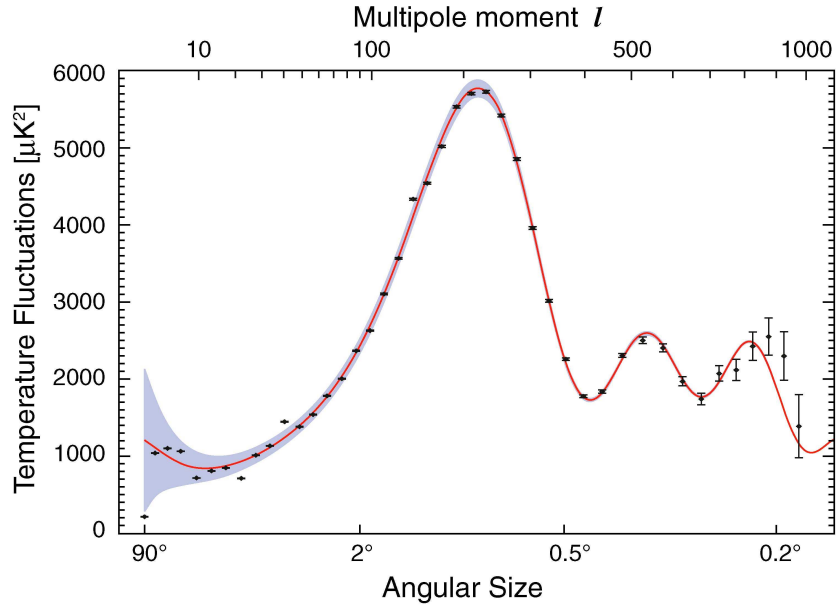
$\Omega_\Lambda$ : Vakuumenergiedichte und

$\Omega_M$ : Materieenergiedichte

Hervorstechend in ihrer Aussagekraft zur Bestimmung dieser Größen sind die Charakteristika der Mikrowellenhintergrundstrahlung primordialer kosmischer Photonen. Es handelt sich um ein fast richtungsunabhängiges Planckspektrum eines Schwarzkörperstrahlers bei 2,725 K (s. auch [Cob]).

<sup>4</sup>Dies gilt natürlich nur dann, wenn die Linie, die als  $0\nu\beta\beta$  Evidenz identifiziert wurde, kein Untergrundsignal darstellt, welches gleichermaßen mit der Zeit ansteigen würde.

<sup>5</sup>Die kritische Dichte  $\varrho_c$  ist die Dichte, bei der das Universum mit  $\Omega=1$  und  $k=0$  flach ist.



**Abbildung 1.4: Anisotropien der kosmischen Hintergrundstrahlung [Dun08]** wurden mit dem WMAP-Satelliten aufgenommen. Hier dargestellt ist das Leistungsspektrum der Hintergrundstrahlung in einer Multipolentwicklung. Unter Winkel von etwa  $1^\circ$  zeigt sich der erste Peak, der aus Oszillationen des Baryon-Photon-Fluids herrührt. Seine genaue Position bestimmt die gesamte Energiedichte im Universum und damit seine flache Geometrie. Seine Höhe definiert den Materieanteil und aus dem Verhältnis des zweiten Peaks zum ersten lässt sich der Anteil der Baryonen an der Materiedichte ablesen.

Anhand von Anisotropien im Bereich von  $10 \mu\text{K}$  (s. Abb.1.4, [Dun08]) ist eine präzise Bestimmung nahezu aller kosmologischen Parameter möglich. Die Zusammensetzung der Energiedichten heute ergeben sich zu

$$\Omega_\Lambda = 0,742 \pm 0,030$$

$$\Omega_M = 0,256 \pm 0,030$$

wobei

$$\Omega_M = \Omega_{CDM} + \Omega_B + \Omega_\nu \quad (1.35)$$

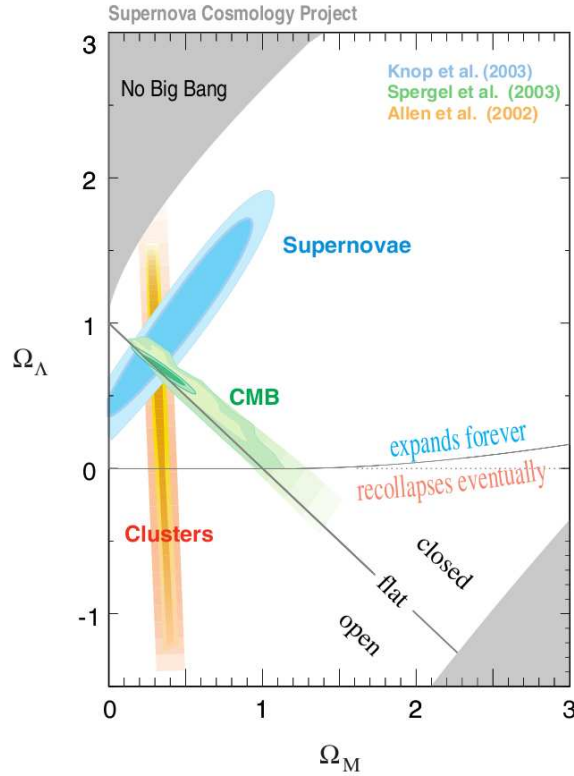
mit

$\Omega_{DM}$ : Dichte dunkle Materie

$\Omega_B$ : Dichte der Baryonen

$\Omega_\nu$ : Dichte massiver Neutrinos

Sowohl  $\Omega_\Lambda$  als auch der Großteil der Materieenergiedichte  $\Omega_M$  können bislang nicht identifiziert werden. Ihre Existenz und ihr Ausmaß wird aber ebenfalls von einer Reihe weiterer astrophysikalischer Messdaten gefordert, deren Übereinstimmungen überwältigend ist (s. Abb. 1.5). Die Ergebnisse aus der Messung der kosmologischen Hintergrundstrahlung (CMB) decken sich mit Messungen des Deceleration-Parameters mit Messungen der Luminosität und Rotverschiebung der Supernovas



**Abbildung 1.5:** Im kosmologischen Konkordanzmodell [Cos] wird die Übereinstimmung mehrerer astrophysikalischer Messverfahren zugrunde gelegt. Aufgetragen ist das Verhältnis von dunkler Energie zur Materie im Universum. Weiterhin eingetragen ist die Grenze für die verschiedene Geometrieoptionen. Nach aktueller Sachlage ist die Geometrie flach, d.h.  $\Omega=1,02\pm 0,02$  und der Einfluss der dunklen Energie so stark, dass das Universum positiv beschleunigt expandiert.

SN Ia, Messungen von Galaxiencluster, Gravitationslinsen sowie den Messungen zur Häufigkeit der leichten Elemente He, Li und D.

Die einzigen bislang identifizierbaren Komponenten der Energiedichte  $\Omega$  sind der baryonische Anteil  $\Omega_B (= (0,02273\pm 0,00062) / h^2)^6$  und der Beitrag massiver Neutrinos: Bei etwa 1 s (1 MeV) fand die Abkopplung der Neutrinos von den übrigen Teilchen statt. Ab diesem Zeitpunkt ist die Expansionsrate des Universums, beschrieben durch den Hubble-Parameter, größer als die Wahrscheinlichkeit für eine Neutrino-reaktion mit den verbleibenden Partnern und die Reaktion

$$e^+ + e^- \leftrightarrow \nu + \bar{\nu} \quad (1.36)$$

<sup>6</sup>h ist der Hubbleparameter in Einheiten von  $100 \text{ km s}^{-1} \text{ Mpc}^{-1}$ . Damit ist  $h^2 \approx 0,5$ .

ist nicht länger im Gleichgewicht. Die Neutrinos bildeten von da ab ein weitestgehend unabhängiges<sup>7</sup> relativistisches Gas, was sich im folgenden zusammen mit dem Universum analog zur kosmischen Photonenhintergrundstrahlung ausdehnte und abkühlte. Seine heutige Temperatur wird auf  $^3\sqrt{\frac{4}{11}} T_\gamma = 1,95\text{K}$  geschätzt [Rin05] und ihre Häufigkeit mit  $113/\text{cm}^3$  pro Flavour erwartet. Die direkte Messung des kosmologischen Neutrino hintergrundes ist aufgrund des geringen Wirkungsquerschnittes bislang nicht möglich. Ihr Dichtebeitrag lässt sich aber abschätzen zu [Les06]

$$\Omega_\nu = \frac{\rho_\nu}{\rho_c} = \frac{\sum m_{\nu_i}}{93,14 h^2 \text{ eV}} \quad (1.37)$$

Unter der Annahme degenerierter Neutrinomassen mit je  $m_\nu < 2,3 \text{ eV}$  [Kra03] bedeutet das eine Obergrenze von 14% und mit einer Untergrenze von  $\sum m_\nu = 50 \text{ meV}$  aus den Oszillationsexperimenten (vgl. mit Glg. (1.14)) bedeutet das eine Untergrenze von 0,1%<sup>8</sup>. Die Identität der dunklen Materie bleibt im Kern also ungeklärt. Trotz ihrer großen Anzahl sind die Neutrinos zu leicht um die gesamte nichtbaryonischen Materie zu bilden.

Die Anzahl von leichten, stabilen und neutralen Teilchen bei  $z = 1000\text{-}3000$ , wie Photonen und Neutrinos, beeinflussen zunächst einmal das Leistungsspektrum der kosmischen Hintergrundstrahlung. Die Stärke der Modifikation der Leistungsspektren skaliert mit der Anzahl und der Masse der relativistischen Teilchen.

Im CMB-Spektrum der Temperaturanisotropien verschiebt die Anzahl der Neutrinos die Peakpositionen (s. Abb. 1.4). Die Position des ersten Peaks testet die Krümmung des Universums, bzw. nach der ersten Friedmann-Gleichung (1.33) den Gesamtgehalt des Universums an Energie, in dem sie das Verhältnis aus Teilchenhorizont zu Distanz zur Zeit der Entkopplung bestimmt, aus welcher sich der heutige Sichtwinkel  $\Theta_{\text{heute}}$  der größtmöglichen Fluktuationen zur Zeit der Entkopplung ergibt [Gru05]:

$$\Delta\Theta_{\text{heute}} = \frac{\text{Teilchenhorizont}}{\text{Distanz}}_{\text{dec}} \approx \frac{3t_{\text{dec}} - t_{\text{dec}}^{2/3} t_{\text{mr}}^{1/3}}{3t_0} (1+z) \approx 1,4^\circ \quad (1.38)$$

mit

$t_{\text{dec}}$ : Zeitpunkt der Abkopplung des Mikrowellenhintergrundes,

$t_{\text{mr}}$ : Zeitpunkt der Materie-Strahlungs-Gleichheit,

$z$ : Rotverschiebung

Dieser Winkel hängt vom Zeitpunkt der Materie-Strahlungs-Gleichheit  $t_{\text{mr}}$  über den Teilchenhorizont ab. Das größte Volumen, das zum Zeitpunkt der Entstehung des kosmischen Mikrowellenhintergrundes mit den relativistischen Teilchen in Wechselwirkung gestanden hat, der Teilchenhorizont, hängt nämlich von dem Expansions-

<sup>7</sup>Über den  $\beta$ -Zerfall stehen die  $\nu_e$  noch in Kontakt mit den Hadronen, bis die Neutronen zu Deuterium gebunden werden.

<sup>8</sup>Ausgehend von den Ergebnissen des Heidelberg-Moskau-Experiments mit  $0,2 \text{ eV} < m_\nu < 0,6 \text{ eV}$ , ergibt sich ein Anteil von 1,3%-3,8%.



verhalten des Universums ab

$$d_H(t) = R(t) \int_0^t \frac{dt'}{R(t')} \quad (1.39)$$

mit

$d_H(t)$ : Teilchenhorizont und

$R(t)$ : Größe des Universums.

Denn das Expansionsverhalten des Universums ändert sich in Abhängigkeit von der Zusammensetzung seiner Energiedichte:

- In einem flachen strahlungsdominierten Universum gilt:

$$R_{rad} \sim \sqrt{t} \quad (1.40)$$

- In einem flachen materiedominierten Universum gilt:

$$R_M \sim t^{2/3} \quad (1.41)$$

Der Zeitpunkt der Strahlungs-Masse-Gleichheit wird mit der absoluten Massenskala der Neutrinos variiert, da relativistische Neutrinos dem Strahlungsanteil anstelle dem Massenanteil zugeschrieben werden müssen [Bas04]<sup>9</sup>:

$$1 + z_{eq.} = \frac{\varrho_{CDM} + \varrho_B}{\varrho_\gamma + \varrho_\nu} \quad (1.42)$$

$$z_{eq.} = 3100_{-400}^{+600} \text{ [Bow02]} \quad (1.43)$$

Die Ruhemasse der Neutrinos entscheidet über den Zeitpunkt, ab dem die Neutrinos nicht mehr strahlungsartig sind und zur kalten Materie gezählt werden müssen [Bas04].

$$z_{m_\nu} \approx \frac{200 \cdot m_\nu}{0,1eV} \quad (1.44)$$

Die Höhe der Peaks in Abb. 1.4 werden ebenfalls durch die Präsenz der Neutrinos modifiziert. Da die Neutrinos mit ihrer Ruhemasse einen Beitrag zur Materieenergiedichte liefern, ändert eine zunehmende Anzahl an Neutrinoarten die Bilanz der Energiebeiträge. Der Anteil von  $\Omega_M$  an der Gesamtenergiedichte lässt sich aus der Amplitude des ersten Peaks in Abb. 1.4 ablesen.

---

<sup>9</sup>Mit  $z_{eq.}$  wird die Rotverschiebung bezeichnet, die dem Zeitpunkt der Materie-Strahlungsgleichheit  $t_{mr}$  entspricht

Darüberhinaus zeigen kosmische Hintergrundneutrinos Veränderungen des CMB-Spektrums bei kleinen Skalen im Bereich der Silkdämpfung, die dadurch entsteht, dass relativistische Teilchen aus dichten Regionen herausdiffundieren können. Leichte Teilchen haben mit einer großen Jeanslänge die Möglichkeit Dichteanisotropien schneller zu durchqueren, als diese unter der Gravitationswirkung kollabieren können. Dies führt zur Verhinderung des Kollapses und damit zu einer Unterdrückung der Strukturbildung auf Skalen kleiner als der Jeanslänge. Entsprechend ihrer Masse kann auch den Neutrinos eine Jeanslänge zugeordnet werden.

$$\lambda_J = \sqrt{\frac{5\pi kT}{3G\rho m}} \quad (1.45)$$

mit

k: Boltzmannkonstante,

T: Temperatur,

$\rho$ : Dichte der Materieansammlung,

G: Gravitationskonstante und

m: Masse

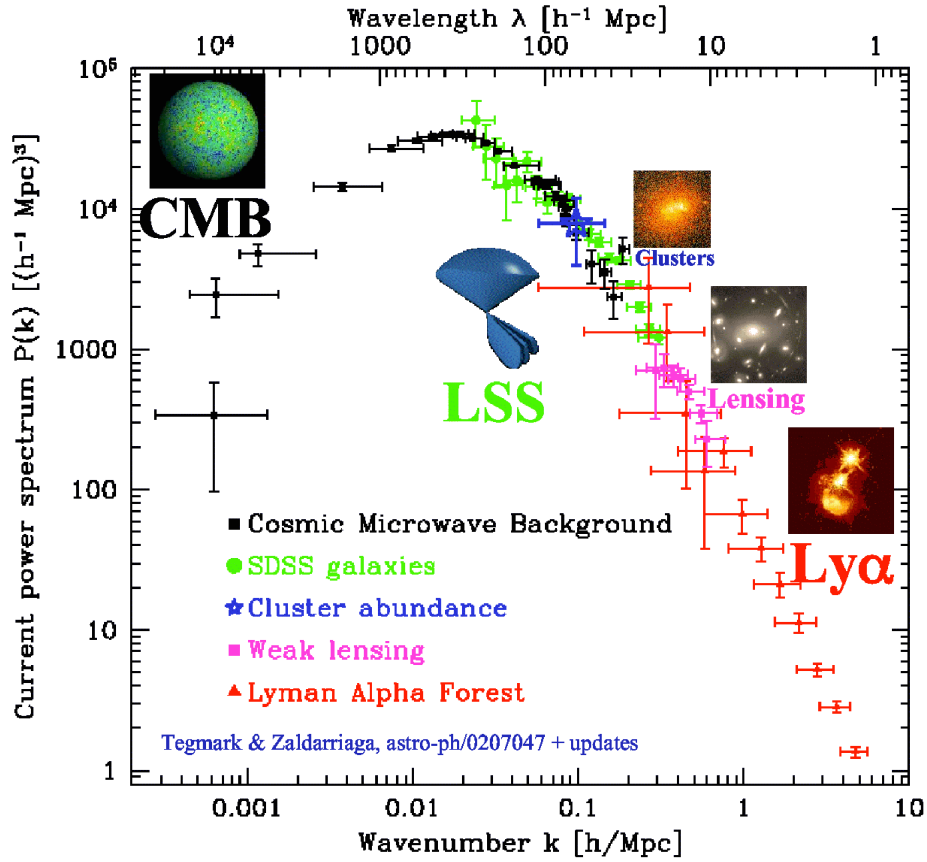
Zur Zeit der strahlungsdominierten Epoche betrug der Anteil der Neutrinos an der Gesamtenergie noch 40%, zur Zeit der Entkopplung des Mikrowellenhintergrundes immerhin noch 11% [Bas04]. Zur Zeit der Entkopplung des Mikrowellenhintergrundes sind die Neutrinos noch stark relativistisch. Folglich ist ihr gravitativer Einfluss im CMB-Spektrum zu erkennen.

Aus den WMAP-Daten alleine kann damit zusammenfassend die Anzahl der leichten relativistischen Teilchen bei  $z=1100$  mit  $>2,3$  (90%CL) [Dun08]<sup>10</sup> und die Masse der Neutrinos mit  $\sum_i m_{\nu_i} = 1,3eV$  (90%CL) angegeben werden. Damit kann eine weitere kosmische Hintergrundstrahlung, die mit den Neutrinos identifiziert werden kann, als nachgewiesen betrachtet werden.

Über die Modifikationen des kosmischen Photonenspektrums hinaus führt die Existenz massiver Neutrinos zur Veränderung der Strukturbildung der Materie im Universum. Neutrinos unterdrücken die Dichtefluktuationen auf Skalen, die kleiner als ihr Wechselwirkungshorizont zu dem Zeitpunkt sind, an dem sie nicht-relativistisch werden [Les06]. Die Entwicklung der Materiestruktur wird den mit Galaxiensurveys (2dF, SDSS), Gravitationslinseneffekten, Galaxienclustern und dem Lyman- $\alpha$ -Forest gemessen (s. Abb. 1.6). Massive Neutrinos führen auch hier zu einer Reduktion von Strukturen auf kleinen Skalen.

---

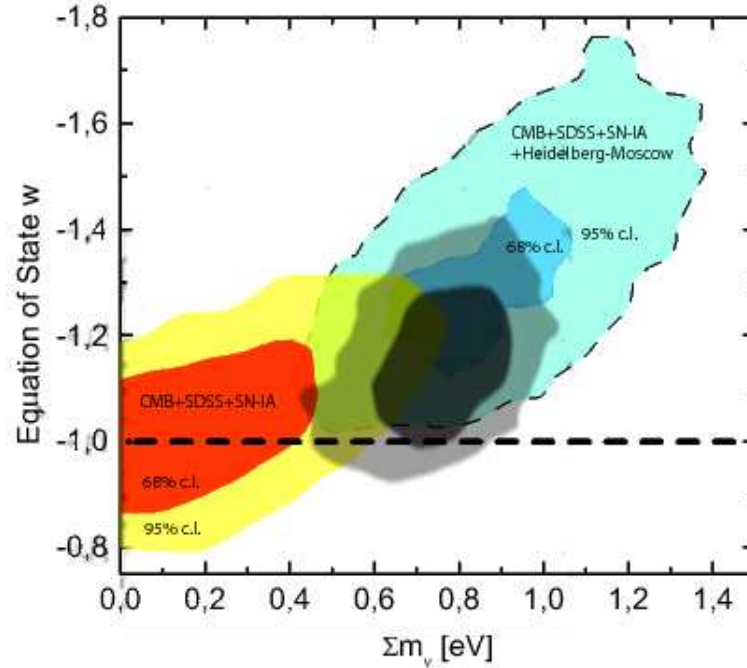
<sup>10</sup>LEP-Messungen zur Breite der Z-Zerfalls bestimmen die Anzahl der aktiven Neutrino flavours auf  $2,984 \pm 0,008$  (PDG) in Übereinstimmung zu Annahmen innerhalb des Standardmodells.



**Abbildung 1.6:** Das Leistungsspektrum der Materieverteilung wird hier aus mehreren Messgrößen zusammengesetzt. Eine Abhängigkeit  $\sim 1/\lambda^2$  wird erwartet. Zusätzliches Fehlen von Materieansammlungen auf kleinen Skalen wird als Maß für den Anteil  $\Omega_\nu$  an  $\Omega_M$  angesehen.

In der Kombination beider Leistungsspektren, dem der kosmischen Hintergrundstrahlung und dem der Materieverteilung, lassen sich engere Grenzen für die Summe der Neutrinomasse erstellen. Die Ergebnisse variieren mit den verwendeten Messdaten und Annahmen. Viele der Größen zeigen eine starke Korrelation zueinander.

Von besonderer Bedeutung ist die Antikorrelation der Summe der Neutrinomassen und der Zustandsgleichung der dunklen Energie mit dem Parameter  $\omega$  (s. Abb. 1.7). Mit einer unabhängigen Bestimmung der Neutrinomasse in Laborexperimenten lässt sich damit umgekehrt der Charakter der dunklen Energie einschränken. Würde das Laborexperiment KATRIN beispielsweise eine Neutrinomasse oberhalb von 0,2 eV finden, so wäre das ein Zeichen dafür, dass die dunkle Energie nicht mit einer zeitlich und räumlich konstanten Dichteverteilung unabhängig von der Ausbreitung des Universums beschrieben werden kann. Ein konstanter  $\lambda_{\text{Einstein}}$ -Term entspräche zum Vergleich einem  $\omega=-1$ .



**Abbildung 1.7:** Der Zusammenhang zwischen dunkler Energie und Neutrinomasse [Ser07] [Han07] im Vergleich von Laborexperimenten zu kosmologischen Daten wird in dieser Darstellung veranschaulicht. Es werden die Daten des Heidelberg-Moskau-Experiments in blau und eine hypothetische Neutrinomasse, eingetragen in grau, die mit dem KATRIN-Experiment bestimmt werden könnte, von  $m_\nu=0,28$  eV, bzw. eine  $m_{\beta\beta}=0,18$  eV wie sie mit GERDA bestimmt werden könnte, unter der Voraussetzung, dass Neutrinos Majoranateilchen sind.

### 1.3 Direkte Neutrinomassenbestimmung anhand der Kinematik schwacher Zerfälle

Neben den Zugängen zur Neutrinomasse über kosmologische Beobachtungen oder dem neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfall bietet die Kinematik schwacher Zerfälle die direkteste und eine weitestgehend modellunabhängige Methode zur Bestimmung der Neutrinomasse. Dazu muss das  $\beta$ -Spektrum im hochenergetischen Endpunktsbereich präzise gemessen werden (s. Kap. 1) [Fer34].

Die Messung des Endpunktsbereichs eines Spektrums steht immer in direkter Konkurrenz mit der Untergrundzählrate. Die relative Aktivität über dem Untergrund im relevanten Endpunktsbereich muss deshalb möglichst groß sein. Dies geschieht durch die Wahl eines  $\beta$ -Strahlers mit möglichst niedrigem Endpunkt. Zwei Elemente werden untersucht: Tritium und Rhenium.

$^{187}\text{Re}$  ist der  $\beta$ -Strahler mit dem niedrigsten Endpunkt ( $E_0 = 2,47$  keV). Dabei weist er eine lange Halbwertszeit von  $4,35 \cdot 10^{10}$  Jahren auf.  $^{187}\text{Re}$  kann damit in einem Aufbau eingesetzt werden, in dem Quelle und Detektor identisch sind, indem  $^{187}\text{Re}$

beinhaltende Kristalle auf 85mK gekühlt werden und die gesamte fehlende Energie, die durch das Neutrino fortgetragen wird, kalorimetrisch bestimmt wird [Mar]. Auf diese Weise wird nicht aufgelöst, in welcher Weise die Energie auf die  $\beta$ -Teilchen und den Tochterzustand des Kerns verteilt ist. In erster Näherung ist diese Messung damit unabhängig von der Endzustandsverteilung der Tochterzustände. Das bisher erreichte Ergebnis des Vorläuferexperiments MIBETA und MANU liegt bei  $m(\nu_e) \leq 15 \text{ eV } 90 \text{ \%CL}$  [Mar]. Das angestrebte Sensitivitätslimit von MARE-I, der Zusammenführung beider Experimente, liegt bei  $2 \text{ eV}/c^2$ , skaliert aber überdem mit der Anzahl der eingesetzten Kalorimeterkristalle. Damit ist es möglich, eine weitaus höhere Sensitivität zu erreichen, wenn hinreichend viele Kristalle mit gleichen Eigenschaften, insbesondere der gleichen Energieauflösung hergestellt werden können.

Tritium- $\beta$ -Spektren wurden seit den 1940er Jahren mit einer Vielzahl von Experimenten vermessen. Die sensitivsten Messungen der Neutrinomasse wurden mit elektromagnetischen Spektrometern des MAC-E-Filter-Typus (s. Kap. 1) erreicht [Ott08].

Die Messgröße ist eine inkohärente Summe:

$$m_{\nu_e}^2 = \sum |U_{ei}|^2 \cdot m_{\nu_i}^2 \quad (1.46)$$

Sie hebt sich ab, von dem Massenbegriff, der anhand von neutrinolosem doppeltem  $\beta$ -Zerfall zugänglich ist, da dort eine kohärente Summe gebildet werden muss, bei der Phasenfaktoren zu gegenseitigen Auslöschungen führen können (s. Glg. (1.30)). Während die Neutrinomasse  $m_{\nu_e}$ , die aus der Kinematik schwacher Zerfälle ermittelt werden könnte, eine eindeutige Aussage über die Summe der Masseneigenwerte  $\sum_i m_i$  machen kann<sup>11</sup>, bleibt die Information über die Neutrinomasse  $m_{ee}$  auf die enthaltenen CP-verletzenden Phasen unbestimmt (s. Abb. 1.8).

Der erreichte Wert liegt bei [PDG]

$$m_{\nu_e} < 2 \text{ eV } (95\%C.L.) \quad (1.47)$$

Er fußt auf den Ergebnissen zweier Experimente: Der Messung einer schockkondensierten T<sub>2</sub>-Quelle in Mainz und einer gasförmigen T<sub>2</sub>-Quelle in Troitsk:

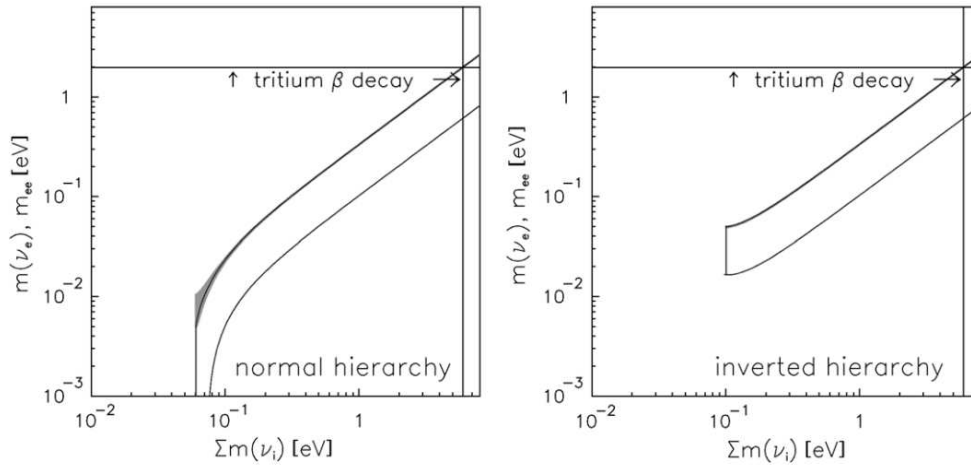
$$\text{Mainz: } m_{\nu_e}^2 = -0,6 \pm 2,2 \pm 2,1 \text{ eV}^2/c^4 \quad m_{\nu_e} \leq 2,3 \text{ eV}/c^2 \quad [\text{Kra05}] \quad (1.48)$$

$$\text{Troitsk: } m_{\nu_e}^2 = -2,3 \pm 2,5 \pm 2,0 \text{ eV}^2/c^4 \quad m_{\nu_e} \leq 2,1 \text{ eV}/c^2 \quad [\text{Lob04}] \quad (1.49)$$

Das Ergebnis des Troitsk-Experiments ist nicht direkt mit dem Ergebnis aus Mainz zu vergleichen, da zur Auswertung der Daten aus Troitsk eine stufenförmige Anomalie<sup>12</sup> in der Nähe des Endpunktes des  $\beta$ -Spektrums in die Analyse mit eingeflossen ist. Ohne die Berücksichtigung dieser Anomalie liegen die Werte für  $m_{\nu_e}^2$  nicht im physikalisch erlaubten Bereich.

<sup>11</sup>und damit der kosmologisch relevanten Größe

<sup>12</sup>Wenn ein Zählratenüberschuss unterhalb des Endpunktes vorliegt, so führt dies zu einer Stufe im integralen Spektrum.



**Abbildung 1.8: Die Neutrinomassenbegriffe im Zusammenhang mit  $0\nu\beta\beta$ - und  $\beta$ -Zerfalls-Experimenten [Ott08]** unterscheiden sich grundsätzlich voneinander. Die Observable des neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls (hier mit  $m_{ee}$  bezeichnet) und die direkte Neutrinomassenbestimmung mittels der Kinematik des einfachen  $\beta$ -Zerfalls sind hier gegen die kosmologisch relevante Größe der Summe über die Masseneigenzustände  $\sum_i m(\nu_i)$  aufgetragen. Während sich die Observable des neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls  $m_{ee}$  als Band abzeichnet, erscheint Masse  $m(\nu_e)$  der direkten Massenbestimmung als Linie. Dies ist jeweils für die normale Massenhierarchie (links) und die invertierte Massenhierarchie (rechts) aufgetragen. Die Breite der Observablen  $m(\nu_e)$  ergibt sich aus den noch bestehenden Unsicherheiten der Mischungswinkel, die Breite der Observablen  $m_{ee}$  zusätzlich aus den nicht bekannten Majoranaphasen.

Das KATRIN-Experiment ist ein Aufbau, der die Neutrinomasse aus dem Tritium- $\beta$ -Spektrum mithilfe eines MAC-E-Filters und einer gasförmigen molekularen Tritiumquelle bestimmen soll. Bei drei Jahren effektiver Messzeit wird das KATRIN-Experiment eine Neutrinomasse von  $0,35 \text{ eV}/c^2$  ( $0,3 \text{ eV}/c^2$ ) mit  $5 \sigma$  ( $3\sigma$ ) nachweisen können. Im Falle, dass keine Neutrinomasse entdeckt werden sollte, erlaubt die avisierte Sensitivität des Experiments eine Bestimmung einer Obergrenze von  $m_\nu < 0,2 \text{ eV}/c^2$  (90 % C.L.) [Ang04].

Wenn das KATRIN-Experiment zu einer Bestimmung der Neutrinomasse oberhalb von  $0,2 \text{ eV}/c^2$  käme, dann würde das

- hierarchische Neutrinomassen weitestgehend ausschließen, und damit den zuvor beschriebenen Seesaw Mechanismus Typ I zugunsten eines Seesaw Mechanismus Typ II disfavorisieren,
- Entartungen zwischen verschiedenen kosmologischen Parametern aufbrechen, so dass beispielsweise der Ansatz einer Beschreibung der dunklen Energie daraus hervorgehen könnte.
- zu einer Bestätigung des Ergebnis des neutrinolosen doppelten  $\beta$ -Zerfalls führen und damit der Majorananatur des Neutrinos Vorschub leisten.

## Gliederung der Arbeit

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt gegliedert:

- Im anschließenden Kapitel wird die Bestimmung der Neutrinomasse aus dem  $T_2$ - $\beta$ -Spektrum erläutert und der Aufbau des KATRIN-Experiments beschrieben.
- Im dritten Kapitel werden die statistischen und systematischen Unsicherheiten des KATRIN-Experiments besprochen. Wobei insbesondere auf den Einfluss eines stabilen elektrischen Retardierungspotentials eingegangen wird. Die Aufgaben und Möglichkeiten von Kalibrationsquellen in diesem Zusammenhang werden dargelegt.
- Das vierte Kapitel behandelt die kinetische Energie von kondensierten Konversionselektronen. Gründe für Langzeitstabilität und mögliche Ursachen für Stabilitätseinbrüche werden angegeben.
- Das fünfte Kapitel beschreibt den experimentellen Aufbau der hier getesteten Quelle aus kondensiertem  $^{83m}\text{Kr}$  im Detail.
- Im Zentrum des sechsten Kapitels stehen die Messdaten, die mit der kondensierten Kryptonquelle am ehemaligen Mainzer-Neutrinomassenspektrometer hinsichtlich der Stabilität der K-32-Konversionselektronenenergie genommen wurden. Die unterschiedlichen Filmpräparationsmethoden werden beschrieben. Einflüsse auf die Stabilität von seiten der Quelle aber auch von seiten der Hochspannung und des Spektrometers werden diskutiert.
- Das siebte Kapitel behandelt das Spektrum der  $^{83m}\text{Kr}$ -Konversionselektronenquelle im Bereich von 7 keV-32keV. Die Verhältnisse der Konversionskoeffizienten und die jeweiligen Bindungsenergien werden untersucht. Die Kernübergangsenergien werden daraus berechnet.
- Im abschließenden achten Kapitel wird eine Zusammenfassung der Arbeit und ein Ausblick auf zukünftige Stabilitätsüberwachung mit der Konversionselektronenquelle gegeben.
- Im Anhang finden sich tabellierte Werte zu Bindungsenergien und Kondensationsbindungsenergien. Daneben wird das Substrat HOPG weitergehend charakterisiert und Angaben zur Voltmeterkalibration des eingesetzten Präzisionsdigitalvoltmeters gemacht.





## Kapitel 2

# Das KATRIN-Experiment

Das Karlsruhe Tritium Neutrino Experiment (KATRIN) ist ein im Aufbau befindliches Laborexperiment zur Bestimmung der Elektronen-neutrino-masse. Der Aufbau ist ausgelegt, eine Sensitivität von  $200 \text{ meV}/c^2$  zu erreichen.

KATRIN besteht aus einer fensterlosen Tritiumgasquelle, einer Transport- und Pumpstrecke, einem zweifachen Elektronenenergiefilter und einem Detektor. In einem dritten Energiefilter gleichen Typs wird die Spannungsüberwachung an einen nuklearen Standard angekoppelt, um so die Stabilität der Filterspannung zu überwachen.

### 2.1 Der $\beta$ -Zerfall und die Neutrinomasse

Die Kinematik schwacher Zerfälle bietet den direktesten Zugang zur Neutrinomasse. Die Argumentationskette zur Bestimmung der Neutrinomasse kommt ohne weitergehende Forderungen an die Eigenschaften des Neutrinos aus.

Beim  $\beta$ -Zerfall eines nackten Kerns der Kernladungszahl  $Z$  und Massenzahl  $A$  verteilt sich die freiwerdende Energie auf die Ruhemassen und kinetischen Energien des entstehenden Tochterkerns, des Elektrons und des Neutrinos:

$$(Z, A) \longrightarrow (Z + 1, A) + e^- + \bar{\nu}_e \quad (2.1)$$

Die allgemeine Form eines  $\beta$ -Spektrums lässt sich mit Fermis Goldener Regel ableiten:

$$\frac{d\dot{N}}{dE} = \frac{2\pi}{\hbar} |M|^2 \rho(E, m_{\bar{\nu}_e}) \quad (2.2)$$

Die Rate der Elektronen  $\dot{N}$ , die im Energieintervall von  $E$  bis  $E + dE$  emittiert werden können, ist einerseits proportional zum Kernmatrixelement  $|M|^2$ , welches

die genaue Dynamik des Zerfalls beschreibt, andererseits zu der Phasenraumdichte  $\rho$ , die Elektronen und Neutrinos als Fermionen, die dem Pauliprinzip unterliegen, nicht überschreiten können.

Die Phasenraumdichte  $\rho$  hängt neben der Energie der Elektronen zusätzlich von der Neutrino Ruhemasse  $m_{\bar{\nu}_e}$  ab.

$$\rho(E, m_{\bar{\nu}_e}) = F(Z+1, E) \cdot p \cdot (E + m_e c^2) \cdot (E_0 - E) \sqrt{(E_0 - E)^2 - m_{\bar{\nu}_e}^2 c^4} \cdot \Theta(E_0 - E - m_{\bar{\nu}_e} c^2) \quad (2.3)$$

Dabei ist

- F(Z+1,E): Fermifunktion,
- p: Impuls des Elektrons,
- $m_e c^2, m_{\bar{\nu}_e} c^2$ : Ruheenergie des Elektrons bzw. des Elektronantineutrinos,
- Z+1: Ladung des Tochterkerns,
- E: kinetische Energie des Elektrons und
- $E_0$ : Endpunkt des  $\beta$ -Spektrums, welcher sich nur um die Rückstoßenergie des Kerns vom Q-Wert des Übergangs unterscheidet.

Das emittierte Elektron wechselwirkt elektrostatisch mit dem entstehenden Tochterkern. Diese Einwirkung ist damit abhängig von der Protonenanzahl des Tochterkerns ( $Z=1$ ) und führt zu einer Korrektur in Form der Fermifunktion. Sie ist dem leptonischen Anteil des Übergangsmatrixelements beigelegt.

Beim Zerfall des Neutrons in ein Proton, Elektron und Antineutrino ist die Änderung des Gesamtspins  $\Delta J=0,1$ . Die Parität des Nukleons ist erhalten. Die Spins der Leptonen können nun entweder zu  $S=1$  oder zu  $S=0$  koppeln. Dadurch ist der  $\beta$ -Zerfall im allgemeinen Fall eine Superposition eines Fermi- und Gamow-Teller-Übergangs. Das Kernmatrixelement  $|M|^2$  setzt sich dabei folglich aus beiden Matrixelementen<sup>1</sup> mit ihren jeweiligen Kopplungskonstanten zusammen, deren Werte aus dem Zerfall des freien Neutrons abgeleitet werden können. Bei übererlaubten Übergängen, d.h. Übergängen in einem Isospinmultiplett, sind die Kernmatrixelemente unabhängig von der Elektronenenergie E.

Tritium als  $\beta$ -Strahler eignet sich aufgrund seiner Eigenschaften besonders gut zur Vermessung eines  $\beta$ -Spektrums zur Bestimmung der Neutrinomasse:

---

<sup>1</sup>Wenn Spin J und Parität des zerfallenden Neutrons sich nicht ändert, also  $\Delta J = 0$  gilt, und die Spins der Leptonen zu  $S = 0$  koppeln ( $L=0$  vorausgesetzt), nennt man den Übergang einen 'Fermi-Übergang'. Koppelt der Spin der Leptonen aber zu  $S = 1$ , ist also ihr Gesamtdrehimpuls auch =1 (wegen  $L=0$ ), dann nennt man den Übergang einen 'Gamow-Teller (GT) Übergang', unter der Bedingung, dass das Nukleon die gleiche Parität behält.

Tritium hat mit 18575 eV einen niedrigen Endpunkt für einen  $\beta$ -Strahler. Daraus resultiert eine verstärkte relative Zählrate im Endpunktsbereich. Da beim Tritiumzerfall Mutter- und Tochterkern einander Spiegelkerne sind, der Übergang also in einem Isospinmultiplett stattfindet, handelt es sich um einen übererlaubten Übergang. Das führt zu einer geringen Maximalenergie und doch recht kurzen Halbwertszeit von 12,3 a. Dadurch ergibt sich eine relativ hohe Zählrate im Verhältnis zur eingesetzten Tritiummenge. Dies ist wichtig, um die Streuwahrscheinlichkeit in der Quelle gering zu halten. Streuungen führen zu Energieverlusten oder Rückstreuungseffekten und beeinträchtigen so das gemessene  $\beta$ -Spektrum.

Da Tritium ( $1p,2n$ ) eine sehr einfache Form der Anbindung eines Neutrons darstellt, ergeben sich gleich mehrere positive Effekte für das  $\beta$ -Spektrum. Zum einen ergeben sich mit  $Z=1$  geringste Energieverluste durch Streuung. Des Weiteren resultiert aus der Kombination von  $Z=2$  des Tochterkerns  ${}^3\text{He}$  und dem Endpunkt von 18575 eV eine annähernd konstante Fermifunktion von 1,1875. Drittens hat das Tritiummolekül und der Tochterzustand eine berechenbare Elektronenhülle. Damit sind die möglichen angeregten elektronischen Zustände und die jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeiten theoretisch zugänglich.

Ihr Betrag wurde für den Fall von  $T_2$  in [Rob88] angegeben mit:

$$|M|^2 = |M_F|^2 + \left(\frac{g_A}{g_V}\right)^2 |M_{GT}|^2 \quad (2.4)$$

$$g_V = g_F \cdot \cos \Theta_C \quad (2.5)$$

$$|M|^2 \approx 5,55 \quad (2.6)$$

mit

$|M_F|^2$ : Fermiübergangsmatrixelement,

$|M_{GT}|^2$ : Gamow-Tellerübergangsmatrixelement,

$g_V$ : vektorielle Kopplungsstärke,

$g_A$ : axiale Kopplungsstärke,

$g_F$ : schwache Kopplungsstärke und

$\Theta_C$ : Cabibbowinkel.

Um zu berücksichtigen, dass beim schwachen Zerfall eines freien Neutrons ein down-quark als schwacher Eigenzustand  $d'$  in ein up-quark übergeht, werden Übergänge von  $d' \leftrightarrow u$  mit der Wahrscheinlichkeit  $|V_{du}|^2$ , also dem entsprechenden Eintrag in der CKM-Mischungsmatrix der Quarks, erwartet, wobei  $\Theta_C$  der Cabibbo-Mischungswinkel ist.

$$P_{d \rightarrow u} \propto |V_{du}|^2 \approx \cos^2 \Theta_C \approx 0,96 \quad (2.7)$$

Zur Beschreibung werden Rechnungen mit der "sudden approximation" herbeigezogen. Ausgangspunkt ist hier die Annahme, dass die Emission des Elektrons schnell im

Vergleich zu den Relaxationsbewegungen der Hüllenelektronen ist. Die Wellenfunktion  $\varphi_i$  der Hülle vor dem Zerfall bleibt also solange gewahrt, dass sich die möglichen Energieniveaus der Endzustände dem gegenüberstellen lassen. Aus dem Überlapp zwischen  $\varphi_i$  zu  $\varphi_f$  lässt sich die Wahrscheinlichkeit für den Übergang  $P_{i_k \rightarrow f_n}$  angeben:

$$P_{i_k \rightarrow f_n} = |\langle \varphi_{f_n} | \varphi_{i_k} \rangle|^2 \quad (2.8)$$

Jeder mögliche Endzustand des Tochtermoleküls und jeder mögliche Anfangszustand des zerfallenden Tritiums führt zu einem leicht anderen  $\beta$ -Spektrum. All diese Spektren müssen mit ihren jeweiligen Wahrscheinlichkeiten  $P_{i_k \rightarrow f_n}$  gewichtet überlagert werden, um die Messdaten zu beschreiben.

Das veränderte Spektrum ergibt sich dann mit den Anregungsenergien der Elektronenhülle nach dem Zerfall  $V_n$  und der Variation der Anfangszustände  $V_k$  zu:

$$\frac{d\dot{N}}{dE} = \text{const} \cdot |M|^2 F(Z+1, E) p(E + m_e c^2) \cdot \quad (2.9)$$

$$\sum_{n,k} P_{i_k \rightarrow f_n} \varepsilon_{k,n} \sqrt{\varepsilon_{n,k}^2 - m_{\nu_e}^2} c^4 \Theta(\varepsilon_{n,k} - m_{\nu_e} c^2) \quad (2.10)$$

$$\varepsilon_{n,k} = E_0 - E + (V_k - V_n) \quad (2.11)$$

$$(2.12)$$

Die Rotations- und Vibrationsanregungen des Endzustands des Tochtermoleküls<sup>2</sup> aufgrund des Elektronrückstoßes versetzen den Endpunkt um 1,7 eV und verbreitern ihn auf 0,36 eV. Weitere Verschmierungen werden durch Dopplerverschiebungen aufgrund der thermischen Bewegung der Kerne möglich.

Im Moment des Zerfalls liegt das Neutrino als schwacher Eigenzustand im Elektronflavour vor. Eine Bestimmung der Neutrinomasse anhand der Impulsverteilung der emittierten Elektronen bedeutet eine Projektion des Neutrinozustandes auf die Masse. Die Masse des Neutrinos als Flavoureigenzustand ist damit eine Überlagerung der drei möglichen Masseneigenzustände des Neutrinos mit den jeweiligen Wichtungen der Neutrinomischungsmatrix (s. Gleichung (1.4)). Die mögliche kinetische Maximalenergie der entstehenden Elektronen reduziert sich durch die Masseneigenwerte des entstehenden Neutrinos. Damit ergibt sich das resultierende  $\beta$ -Spektrum in diesem Sinne als eine Summe über die drei Spektren entsprechend der drei Masseneigenwerte.

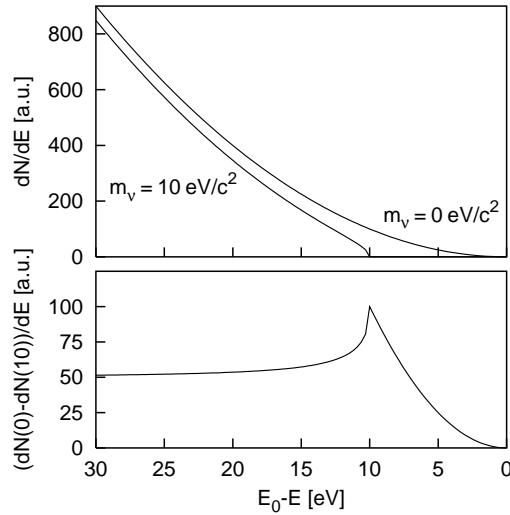
Wenn Neutrinos mit nur dem leichtesten Masseeigenzustand und keiner weiteren kinetischen Energie geboren werden könnten, dann sind diese energetisch nicht in der Lage in der Folge zu oszillieren. Bei geringerer kinetischer Energie der Elektronen also steigender Energie der Neutrinos, wird das Oszillieren energetisch wieder möglich. Am obersten Ende des Elektronenspektrums ist aber anzunehmen, dass die einzelnen Neutrinomasseneigenzustände ausfrieren. Leider kann die Frage, ob es solche niederenergetische Neutrinos geben kann, die nicht oszillieren können, d.h. die

<sup>2</sup>Elektronische Anregungen können bei geeigneter Wahl des Auswertefensters vernachlässigt werden. Gleiches gilt für die Variation der Anfangszustände (s. Abschnitt zur Tritiumquelle).

nur die Energie der Ruhemasse  $m_i$  haben, mit KATRIN nicht geklärt werden. Die Auflösung des KATRIN-Experiments reicht nicht aus, um die denkbaren Stufen der einzelnen Masseneigenzustände der Neutrinos zu erkennen. Es wird eine gewichtete quadratische Neutrinomasse angesetzt:

$$m_{\bar{\nu}_e}^2 := \sum_{i=1}^3 |U_{ei}|^2 m_{\bar{\nu}_i}^2 \quad (2.13)$$

In Abb. 2.1 ist der Endpunktsbereich des  $\beta$ -Zerfalls eines Tritiummoleküls  $T_2$  bei 18,575 keV zur Vereinfachung ohne Rotations- und Vibrationsanregungen dargestellt. Für  $m_{\bar{\nu}_e} c^2 = 0$  eV fällt das Spektrum quadratisch zum Endpunkt hin ab (s. Glg. (2.3)). Eine von Null verschiedene Masse (hier fiktiv mit 10 eV/ $c^2$  gerechnet) führt zu einer charakteristischen Krümmung und schließlich zu einem Verschwinden der Zählrate bereits bei  $E_0 - E = m_{\bar{\nu}_e} c^2$ . Auch wenn die Neutrinomasse das Spektrum in jedem Energiebereich beeinflusst, ist ihre Signatur, d.h. ihr relativer Anteil an der Form des Spektrums im Endpunktsbereich des  $\beta$ -Spektrums am ausgeprägtesten.



**Abbildung 2.1:** Dargestellt ist die Signatur der Neutrinomasse. Knapp unterhalb des Endpunkts des Spektrums befindet sich die höchste Sensitivität auf die Neutrinomasse.

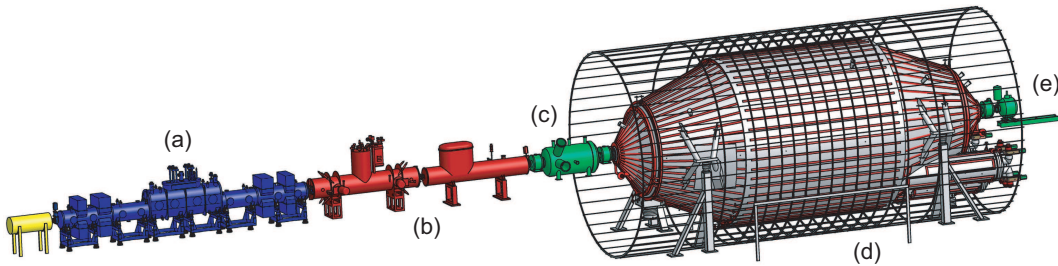
Bei der Betrachtung der experimentellen Signatur der Neutrinomasse kann der Untergrund bei der Vermessung des Spektrums nicht weiter vernachlässigt werden. Die Signatur wird bei hohen Elektronenenergien durch den Untergrund des Spektrometers überragt und bei niedrigeren Energien durch die ansteigende Zählrate des  $\beta$ -Spektrums. Das Optimum ist erreicht [Ott06], wenn die gesamte Zählrate gerade das dreifache der Untergrundzählrate beträgt.

Bei der Annahme von  $10^{-2} \text{s}^{-1}$  Untergrundereignissen bei einer Quellstärke von  $10^{11}$  Bq bedeutet dies, dass die Sensitivität etwa 3 eV unterhalb des kinematischen Endpunkts maximal wird. Die Zählrate ist im sensitiven Endpunktsbereich aber beispielsweise im letzten eV unterhalb des Endpunktes auf  $2 \cdot 10^{-13}$  der Gesamtzählrate

abgefallen. Es ist also ein Energiespektrometer erforderlich, das ein extremes Signal zu Untergrundverhältnis von eben dieser Größenordnung  $10^{-13}$  bieten kann.

## 2.2 Der KATRIN-Aufbau

Ein ideales Spektrometer zur Bestimmung der Neutrinomasse durch die Kinematik des  $\beta$ -Zerfalls würde alle signaltragenden Elektronen verlust- und störungsfrei durch einen Energiefilter auf den Detektor führen und die Untergründereignisse separieren. Mit nur  $\sim 10^{-2}$  Signalelektronen pro Sekunde bei einer Gesamtzählrate von  $\sim 10^{11}$  Ereignissen/s aus den Tritiumzerfällen selbst, die hier als Untergründereignisse gewertet werden müssen, ist ein Spektrometer mit hoher Luminosität und immenser Untergrundunterdrückung nötig. Da die Neutrinomasse aus der genauen Form des Spektrums im besonders sensitiven Endpunktsbereich ermittelt wird, ist eine hohe Auflösung für Elektronen mit 18,6 keV sowie ein ausgeprägte Stabilität des Filters nötig. Ein kurzer Überblick über den Aufbau des KATRIN Experiments wird in Abb. 2.2 gegeben.



**Abbildung 2.2:** Ein Überblick über das KATRIN-Experiment ist hier skizziert. Die Quellsektion ist mit blau markiert (a). Linkerhand in gelb ist die Kalibrations- und Monitorsektion angedeutet. Rechterhand schließt sich die Transport- und Pumpstrecke ((b),rot) an, die zu dem Spektrometerdublett ((c),(d)) führt. Am rechten Ende in grün (e) ist das Detektorsystem dargestellt.

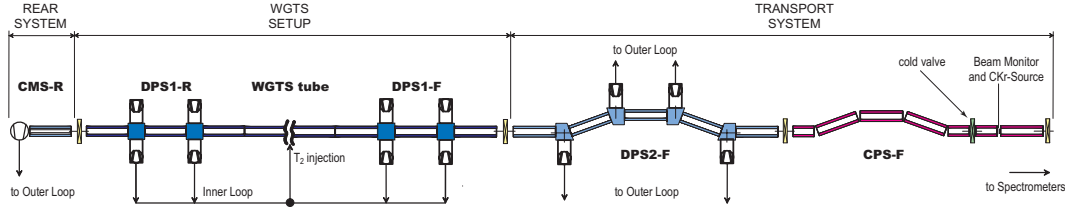
### 2.2.1 Fensterlose gasförmige Tritiumquelle - WGTS

Bei KATRIN wird im Standardmodus eine fensterlose gasförmige Quelle aus molekularem Tritium verwendet ('WGTS': Windowless Gaseous Tritium Source, s. Abb. 2.3). Eine Quelle solchen Typs wurde in Los Alamos [Rob91] entwickelt und später ebenfalls im Neutrinomassenspektrometer in Troitsk eingesetzt.

Die KATRIN-Quelle befindet sich in einem 10 m langen Rohr (Durchmesser  $d=90\text{mm}$ ). Ein magnetisches axiales Führungsfeld von  $B_S=3,6\text{ T}$  leitet die dort entstehenden Elektronen innerhalb eines konstanten Flussschlauchs von  $191\text{ T}\cdot\text{cm}^2$  in Richtung Spektrometer und Detektor.

Das Tritiumgas wird auf 27 K bei mindestens  $\pm 30\text{ mK}$  Stabilität gekühlt. Es wird mit einer Isotopenreinheit von 95 % über eine Kapillare in das Quellrohr eingelassen. Die Reinheit wird mit Laser-Raman-Spektroskopie überwacht [Le07].

Die Signallrate  $S$  wird bestimmt durch die effektive Quellsäulendichte ( $\rho_{eff}$ ), welche neben der Isotopenreinheit durch inelastische Streuung limitiert ist. Abhängig von den maximalen Startwinkeln, mit denen die Elektronen noch durch das Spektrometer



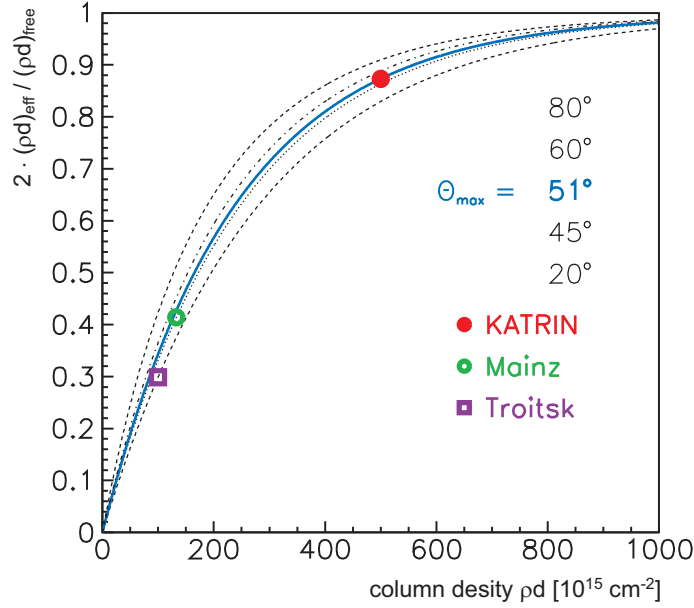
**Abbildung 2.3:** Schematisch dargestellt ist die fensterlose gasförmige Tritiumquelle mit ihren differentiellen Pumpstrecken DPS1-R und DPS1-F umrandet vom Kalibrations- und Monitorsystem einschließlich der Rückwand (rear system) und dem Transportsystem mit der weiteren differentiellen Pumpstrecke DPS2-F und der Kryopumpsektion CPS-F.

transmittiert werden, lässt sich eine Wahrscheinlichkeit  $P(\varrho, d, \Theta_{max})$  dafür angeben, dass ein Elektron die Quelle ohne Streuprozess durchqueren kann. Eine mittlere freie Säulendichte lässt sich aus dem Kehrwert des totalen inelastischen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{inel}$  für Elektronen bei 18,6 keV berechnen. Bei Säulendichten von  $d \rightarrow \infty$  steigt die effektiv nutzbare Säulendichte asymptotisch nur bis zu einem Maximalwert an. Das Maximum liegt gerade bei der Hälfte der mittleren freien Weglänge (s. auch [Ang04]). In Abb. 2.4 ist der gewählte Arbeitspunkt des KATRIN-Experiments eingetragen. Er liegt bei etwa 90% der halben mittleren freien Säulendichte und belüftet sich auf  $\varrho d = 5 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-2}$  und entspricht einer Injektionsrate von  $5 \cdot 10^{19}$  Molekülen/s. Die Teilchenzahldichte reduziert sich bis zum ersten Pumpstutzen um einen Faktor 20. Bei einer Diffusionszeit von etwa 1 s ergibt sich eine Zerfallswahrscheinlichkeit von  $3,6 \cdot 10^{-9}$  Zerfälle pro Sekunde für ein Molekül in der WGTS und  $1,8 \cdot 10^{11}$  Zerfällen pro Sekunde im relevanten Flusschlauch.

Die WGTS liefert mit der Stabilität der Quellsäulendichte einen relevanten Beitrag zur systematischen Unsicherheit von KATRIN. Die Säulendichte variiert mit dem Einlassdruck und der Temperatur des Tritiumgases. Für die Sensitivitätsanforderungen von KATRIN wird eine Stabilität von  $\frac{\Delta\varrho}{\varrho} = 0,1 \%$  gefordert.

Einen weiteren möglichen Beitrag zur systematischen Unsicherheit bildet die Größe der Raumladung, die von den primären und sekundären Ladungen aufgebaut wird, die aus Zerfall und Streuungen resultieren. Neben dem direkten Tochtermolekül  $({}^3\text{HeT})^+$  können ausgehend von diesem noch  ${}^3\text{He}^+$ ,  $\text{T}^+$ ,  $\text{T}_3^+$  und  $\text{T}_2^+$  und Elektronen entstehen. Aus Stößen von Elektronen mit  $\text{T}_2$  entstehen außerdem  $\text{T}^-$ -Ionen. Die Hauptbestandteile sind nach Überlegungen zu energieabhängigen Wirkungsquerschnitten und Dichten  $\text{T}_3^+$ -Ionen, Elektronen und  $\text{T}^-$ -Ionen. Pro primäres  $\beta$ -Teilchen werden  $\approx 13$  Ionen-Elektronenpaare unter Vernachlässigung von Ionisationsprozessen zweiter Ordnung erwartet [Nas05]. Ausgehend von den  $1,8 \cdot 10^{11}$  Zerfällen/s entstehen im gesamten Quellvolumen dann etwa  $10^8$  Ionen/( $\text{cm}^3\text{s}$ ). Diese Ladungen können außer sich gegenseitig zu neutralisieren auch die Quelle per Diffusion verlassen: entweder axial entlang des Magnetfelds bis zum Ende der WGTS oder radial, allerdings um einen Faktor  $10^4$  unterdrückt, durch die magnetische Speicherung. Die Raumladung wird so zunächst nicht hinreichend abgetragen.





**Abbildung 2.4:** Die effektive Quellsäulendichte kann aufgrund von Streuungen maximal die Hälfte der mittleren freien Säulendichte erreichen. Für KATRIN wird bei Maximalstartwinkeln von  $51^\circ$  etwa 90% des Maximalwerts erreicht, was zu einer Säulendichte von  $\varrho d = 5 \cdot 10^{17}$  Moleküle/cm<sup>2</sup> führt. Zum Vergleich sind die Arbeitspunkte von den Vorgängerexperimenten aus Mainz und Troitsk eingetragen.

Mit einer analytischen Abschätzung mittels:

$$\Phi(r) = \Phi(0) - \frac{\varrho}{4\epsilon_0} r^2 \quad (2.14)$$

ergibt sich ein Potential von 40 V [Glu]<sup>3</sup>. Unter dem Einfluss ihres eigenen Feldes würden die Ladungen verstärkt radial diffundieren, was die mögliche Höhe des Potentials reduziert. In dem generierten Feld können außerdem Elektronen gespeichert werden, die sich akkumulieren und das Raumladungspotential abbauen. Überschüssige Elektronen verlassen das System dank der hohen axialen Leitfähigkeit über die Rückwand. Die Ergänzung von Ionen beiderlei Ladung, die auf die Gastemperatur von 30 K thermalisiert sind, reduziert die Raumladung weiter auf -5meV. Die Raumladungen selbst sollten damit also keinen relevanten Einfluss auf das Startpotential der Tritiumzerfälle haben [Nas05]. Durch die hohe axiale Leitfähigkeit der WGTS wird das Potential der Quelle vom Potential der Rückwand bestimmt.

Unabhängig davon sind Plasmainstabilitäten vielerlei Art möglich, werden aber im Bereich der thermalisierten Elektronentemperaturen erwartet, also mit auf einer Potentialvariation von 3 meV abgeschätzt [Nas05].

Linkerhand in Abb. 2.3 schließt sich das Kalibrations- und Monitorsystem (CMS-R) mit der potentialdefinierenden beweglichen Rückwand an. Austrittsarbeitsveränderungen aufgrund von Oberflächeneffekten auf der Rückwand wirken sich direkt als

<sup>3</sup>Genauere numerische Untersuchungen ergeben 66V

Potentialinstabilitäten oder -verschiebungen des Quellpotentials aus. Diese müssen mit einer Genauigkeit von  $< 60$  meV bekannt sein<sup>4</sup>. Um diesen Effekt zu minimieren werden Goldoberflächen mit  $T > 150$  K diskutiert. Alternativ wäre eine kontinuierliche Kontrolle der Austrittsarbeit der Rückwand denkbar.

Während der Messperioden zur Bestimmung des  $\beta$ -Spektrums wird die Quelle auf 30 K stabilisiert. Zu Kalibrationszwecken ist aber auch ein Betriebsmodus bei 150 K geplant, bei dem dem Tritiumgas  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas zugemischt wird<sup>5</sup>. Durch eine Vermessung der  $L_3$ - $^{83m}\text{Kr}$ -Konversionselektronenlinie 30,5 keV mit einer Breite von  $\Gamma=1,19$  eV müssten Potentialverschmierungen innerhalb der WGTS anhand von Positionsverschiebungen und Linienverbreiterungen trotz der zusätzlichen Gaußverschmierung wegen der erhöhten Temperatur erkennbar sein.

Rechterhand der WGTS in Abb. 2.3 schließt sich die Pump- und Transportstrecke beginnend mit einer differentiellen Pumpstrecke (DPS) an. Der Ionenanteil in der WGTS wird mit zwei FT-ICR-Fallen (Fourier Transform Ion Cyclotron Resonance) untersucht, die am Ein- und am Ausgang der DPS-2F platziert werden. Ionen, die in der WGTS entstanden sind, und diese zwar mit dem Gasfluss in Richtung Pump- und Transportstrecke verlassen können, können aber aufgrund des Gasstromes aus der WGTS heraus nach einer möglichen Reflektion nicht wieder in der WGTS eintreten. Mit den FT-ICR-Fallen kann man die Menge an  $(T_{2n+1}^+)$ -Ionen dann in der DPS bestimmen und aktiv mit zusätzlichen Dipolen reduzieren. ICR-Fallen funktionieren nach dem Prinzip von Penningfallen. Ionen werden radial durch das Quellmagnetfeld gespeichert und axial mit elektrostatischen zylindrischen Retardierungselektroden. Die so gefangenen Ionenwolken werden zu Schwingungen angeregt und die resultierende Bewegung mit segmentierten Elektroden kapazitativ aufgenommen. Nach einer Fourier-Transformation zeigen sich isotopspezifische Peaks im Frequenzbild. Ein systematisches Herausdriften spezieller Isotope über die  $E \times B$ -Drift ist mit diesen Fallen ebenfalls möglich [Ubi07].

## 2.2.2 Pump- und Transportstrecke

Um die Untergrundzählrate bei der Messung des  $\beta$ -Spektrums hinreichend klein zu halten, ist es erforderlich, sicher zu verhindern, dass Tritium in die Spektrometer gelangt. Um den tritiuminduzierten Teil des Untergrunds auf unter  $10^{-3}$  Ereignisse/s zu halten, darf nicht mehr als eine Flussrate von  $10^{-14}$  mbar l/s Tritium ins Hauptspektrometer gelangen. 2 mbar l/s Tritiumfluss treten aus der WGTS in das Transportsystem. Die Reduktion um den Faktor  $10^{14}$  wird über 2 Stufen erreicht: differentielle Pumpstrecken (DPS I und II) zu beiden Seiten der Quelle und eine Kryoadsorptionspumpstrecke (CPS) auf dem Weg zu den Spektrometern.

Die DPS-Sektionen reduzieren den Fluss insgesamt um einen Faktor  $10^7$  durch 6 Pumpports an der DPS1-F und 4 Pumpports an der DPS2-F mit je 2000 l/s Pumpleistung. Der zu tilgende Restfluss nach der DPS von  $0,4 \cdot 10^{-7}$  mbar l/s wird auf

<sup>4</sup>Eine Begründung dieses Wertes findet sich in Kapitel 3.

<sup>5</sup>Auch  $\text{D}_2$   $^{83m}\text{Kr}$ -Mischungen werden geplant

vergoldetem Edelstahl<sup>6</sup> mit einer Belegung aus Argon bei 3-4,5 K in der CPS adsorbiert. In 60 Tagen Messzyklus sammeln sich dort maximal  $6 \cdot 10^{18}$  T<sub>2</sub> Moleküle, was weniger als 1 Ci (=37 GBq) ist, an. Wenn mehr als diese Aktivität in der CPS erwartet wird, kann diese über einen Spül- und Heizprozess gereinigt werden (s. TRAP [Eic08]). Innerhalb der CPS ist auch eine Anschlussstelle für eine kondensierte <sup>83m</sup>Kr-Quelle und einen Quellmonitordetektor vorgesehen.

Das Transportsystem besteht aus zueinander gekippten Modulen (s. Abb. 2.3). So soll verhindert werden, dass sich ungeladene Moleküle axial geradlinig zu den Spektrometern hinbewegen können. Im geknickten System sind mehrere Wandkontakte nötig, um diese Transportsektion zu überwinden. Jeder Wandkontakt steigert die Wahrscheinlichkeit, dass die Moleküle adsorbiert und damit gespeichert werden.

Auch das Vorspektrometer spielt eine Rolle als Teil des Vakuumsystems. Mit seinem großen gut gepumpten Volumen kann es Tritium daran hindern, das empfindliche Hauptspektrometer zu erreichen. Es hat eine Länge von 3,38 m und einen Durchmesser von 1,7 m bei einer Eintrittsöffnung von DN 200CF.

Die Zerfallselektronen werden mit einem Feld von 3,6 T aus der Quelle heraustransportiert. Es sinkt nicht unter 0,3 T an den Pumpports. Das maximale Feld in der Transportstrecke ist 5,6 T. Kriterien für die Feldstärken sind Bewahrung der Adiabasie der Bewegung und damit Sicherstellung der Transmissionswahrscheinlichkeit, Minimierung der Energieverluste durch Synchrotronstrahlung und die Kompression des Flussschlauchs an geometrischen Engpässen.

## 2.2.3 Elektromagnetische Führung und der Energiefilter

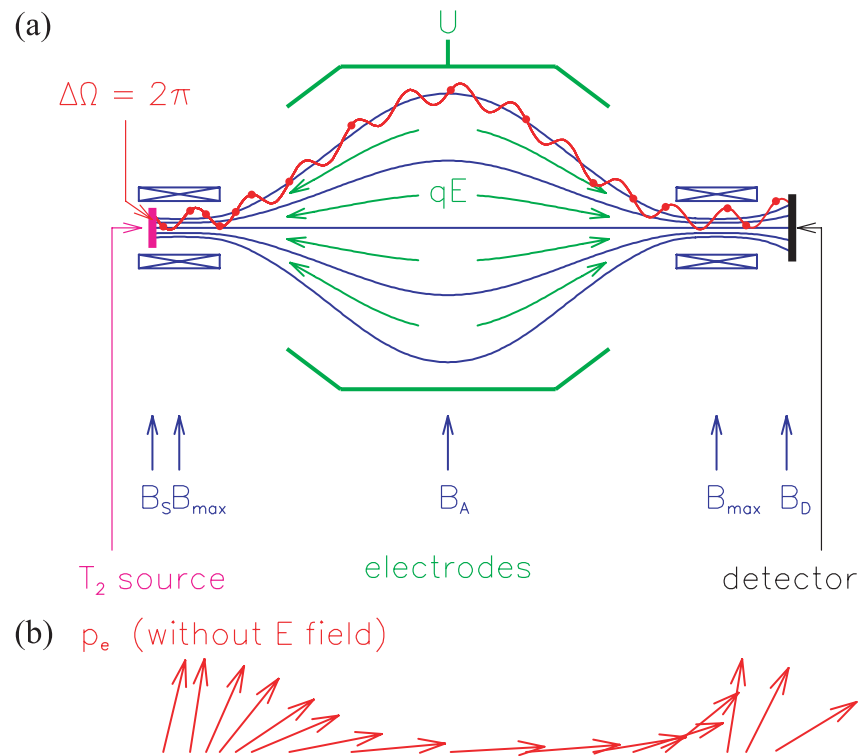
### 2.2.3.1 MAC-E-Filter

In der einfachsten Konfiguration eines MAC-E-Filters ('Magnetic Adiabatic Collimation with Electrostatic Filter', [Pic92a]) werden zwischen Quelle und Detektor zwei Magnetspulen soweit auseinandergezogen, dass ihr Magnetfeld auf der Spiegelachse auf einen Bruchteil seines Maximalwerts absinkt. Im Gegenzug baut man ein elektrostatisches Retardierungspotential  $eU_0$  mit einer zylindersymmetrischen Elektrode auf, sodass das Maximum des Potentialberges für die zu spektroskopierenden Teilchen<sup>7</sup> mit dem Minimum des Magnetfelds (s. Abb. 2.5) zusammenfällt. Diese Fläche wird im folgenden Analysierebene genannt.

Die Elektronen, die im starken Quellmagnetfeld starten, werden aufgrund der Lorentzkraft auf Zyklotronbahnen entlang der Magnetfeldlinien geführt und so in das Spektrometer geleitet. Bei ausreichender Longitudinalenergie gelangen sie dann zum Detektor. Entlang dieses Weges steigt das Magnetfeld bis hin zur Mitte des ersten Magneten zunächst an. Mit zunehmender Magnetfeldstärke verringert sich der Gyrationradius und die Schrittweite während einer Umdrehung eines geführten

<sup>6</sup>Die Goldbeschichtung verhindert das Eindiffundieren von Tritium in die Oberfläche.

<sup>7</sup>Ein MAC-E-Filter funktioniert im Prinzip je nach Vorzeichen der angelegten Spannung mit positiven und negativen Ladungen. Hier wird im Hinblick auf KATRIN im folgenden nur noch von Elektronen gesprochen werden. Andere geladene Teilchen sind impliziert.



**Abbildung 2.5: Das Prinzip des MAC-E-Filters** wird an dieser Skizze veranschaulicht. Zwei Solenoide bauen ein in homogenes zylindersymmetrisches Magnetfeld auf. Quelle und Detektor werden leicht außerhalb des Magnetfeldmaximums platziert. Elektronen, die die Quelle unter beliebigen Startwinkeln verlassen, werden aufgrund der Lorentzkraft zu Spiralbewegungen um die Magnetfeldlinien gezwungen und so zum Detektor geführt. Während das Magnetfeld von  $B_{max}$  hin zu  $B_A$  abnimmt und damit der Elektronenimpuls in Vorwärtsrichtung kollimiert wird, wird von Zylinderelektroden ein elektrostatischer Potentialberg aufgebaut, den nur die schnellsten Elektronen passieren können. So funktioniert ein MAC-E-Filter als energetischer Hochpassfilter.

Elektrons. Das Verhältnis aus Schrittweite und Magnetfeldänderung ist im gesamten MAC-E-Filter so klein, dass die Bewegung adiabatisch abläuft. Unter dieser Voraussetzung ist das magnetische Bahnmoment  $\mu$  der Elektronen dann eine Erhaltungsgröße. In nicht relativistischer Näherung, die bei Tritium- $\beta$ -Spektroskopie gemacht werden darf, gilt:

$$\mu = \frac{E_{\perp}}{B} = const \quad (2.15)$$

mit

$E_{\perp}$ : Energie der Transversalenergie

$B$ : lokales Magnetfeld

Im ansteigenden Magnetfeld werden dann bereits die Elektronen mit den steilsten Startwinkeln nach dem Prinzip einer magnetischen Flasche zurückgespiegelt, sodass

sich ein maximaler Startwinkel  $\Theta_{max}$  ergibt, über den hinaus die Elektronen nicht mehr transmittiert werden können<sup>8</sup>. Für die bei KATRIN gewählten Magnetfelder gilt dann:

$$\Theta_{max} = \arcsin \left( \sqrt{\frac{B_S}{B_{max}}} \right) = 50,77^\circ \quad (2.16)$$

$B_S = 3,6$  T: Magnetfeld an der Quelle

$B_{max} = 6$  T: maximales Magnetfeld

Der akzeptierte Raumwinkel des MAC-E-Filters ergibt sich damit zu:

$$\frac{\Delta\Omega}{4\pi} = \frac{1 - \cos \Theta_{max}}{2} \quad (2.17)$$

Im Anschluss fällt das Magnetfeld bis zur Spiegelebene zwischen beiden Magneten ab. Damit wird der Gyrationradius größer. Die kinetische Energie wird mit der Gradientenkraft

$$\vec{F}_\nabla = \vec{\nabla}(\vec{\mu} \cdot \vec{B}) \quad (2.18)$$

von der Bewegung transversal zum magnetischen Führungsfeld in Longitudinalenergie überführt. Dies ist gleichbedeutend mit einer Kollimation des Elektronenimpulses und seiner Parallelisierung mit dem magnetischen Führungsfeld sowie im Idealfall mit dem elektrischen Feld. Da die Adiabasie bei schwächer werdendem Magnetfeld abnimmt, wenn die Elektronen nicht gleichzeitig an Longitudinalgeschwindigkeit verlieren, muss der Anstieg des elektrostatischen Retardierungspotentials wohl dosiert werden, damit es nicht einerseits durch zu zeitigen Anstieg zu einer verfrühten Umkehr oder andererseits durch verspäteten Anstieg zu nichtadiabatischer Bewegung und damit zu Transmissionsverlusten kommt.

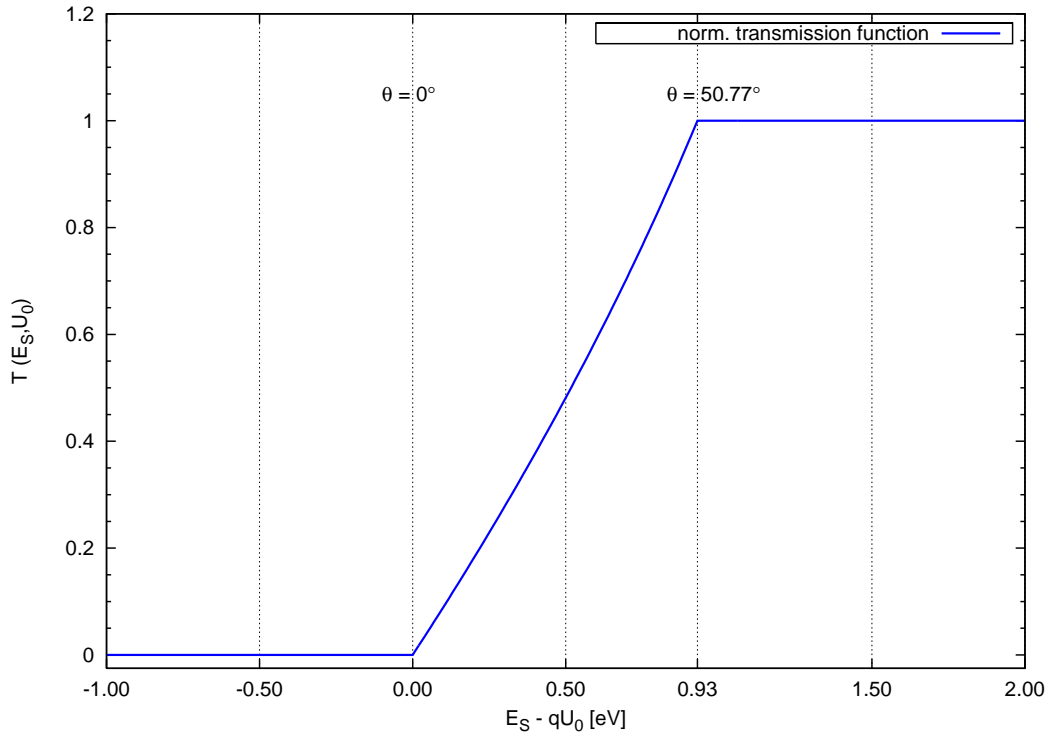
In der Analysierebene hat die Kollimation des Elektronenimpulses ihr Maximum. Die verbleibende Winkelverteilung und damit die Abweichung von der Richtung des elektrostatischen Felds definiert die Auflösung des Spektrometers:

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{B_{min}}{B_{max}} \quad (2.19)$$

Im Anschluss werden die Elektronen mit ausreichender Longitudinalenergie in der Analysierebene dann von der Analysierebene weiter zum Detektor hin beschleunigt und dort nachgewiesen. Ein MAC-E-Filter wirkt also wie ein elektrostatischer integrierender Energie-Hochpassfilter. Ein Spektrum wird aufgenommen, indem man die angelegte Retardierungsspannung  $U$  zwischen Quell- und Elektrodenpotential variiert.

---

<sup>8</sup>Das maximale Magnetfeld des gesamten Spektrometers kann auch an anderer Stelle des Weges der Elektronen eingestellt werden. Bei KATRIN wird dies aus Untergründerwägungen der Magnet am Ausgang des Hauptspektrometers sein.



**Abbildung 2.6:** Die Transmissionsfunktion für eine isotrop abstrahlende Quelle wird an dieser Skizze veranschaulicht. Exemplarisch werden hier die Einstellung für KATRIN gewählt.

Die normierte analytische Transmissionsfunktion  $T$  eines MAC-E-Filters für eine isotrop emittierende Quelle ergibt sich zu:

$$T(E_S, U_0) = \begin{cases} 0 & \text{für } E_S < qU_0 \\ \frac{1 - \sqrt{1 - \frac{(E_S - qU_0) \frac{B_S}{B_A}}{E_S}}}{1 - \sqrt{1 - \frac{B_S}{B_A}}} & \text{für } qU_0 \leq E_S \leq qU_0 \frac{B_{max}}{B_{max} - B_A} \\ 1 & \text{für } E_S > qU_0 \frac{B_{max}}{B_{max} - B_A} \end{cases} \quad (2.20)$$

mit

$E_S$ : Startenergie der Elektronen und  
 $U_0$ : Retardierungsspannung.

Der Verlauf der Transmissionsfunktion für eine isotrop emittierende monoenergetische Quelle ohne Energieverluste wird in Abb. 2.6 dargestellt. Elektronen mit sehr steilen Startwinkeln brauchen eine Überschussenergie  $E_S - qU_0$  entsprechend der gewählten Auflösung, um den Energiefilter passieren zu können.

Das Untergrundsignal im MAC-E-Filter steigt mit der Nähe des Flusschlauchs zur Filterelektrode an. Durch ionisierende Strahlung (Höhenstrahlung, radioaktive Strahlung) werden Elektronen aus der Filterelektrode oder der Tankwand herausge-

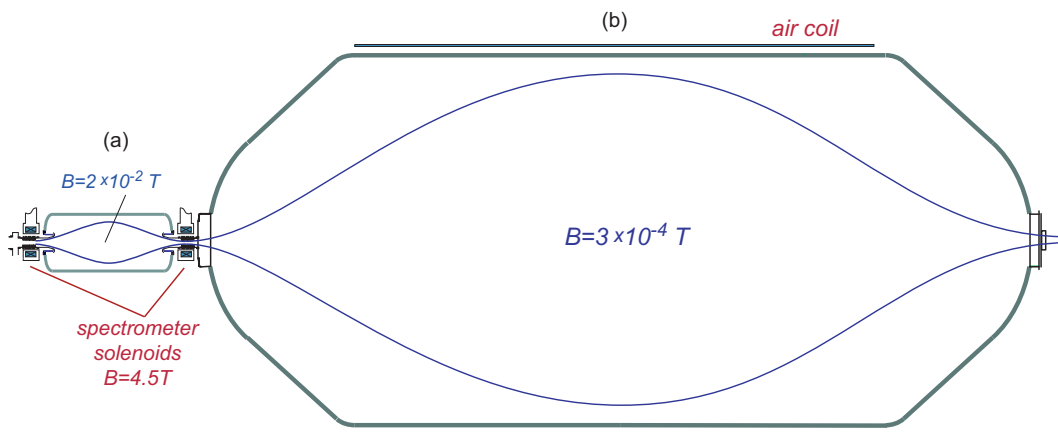
löst. Die Energie dieser Elektronen ist meist kleiner als 150 eV relativ zum Emissionsort. Zur Minimierung des Untergrunds im MAC-E-Filter hat es sich als wirkungsvoll erwiesen, die Filterelektrode möglichst massearm zu wählen [Fla04] [Ost02]. Elektronen, die aus dem Filterelektrodenmaterial herausgelöst werden und nicht adiabatisch oder an nicht zylindersymmetrischen Orten des Spektrometers in den sensitiven Flussschlauch diffundieren können, der auf den Detektor abgebildet wird, werden mit der Filterspannung beschleunigt. Sie sind nur wenige eV von den Signalelektronen verschoben. Das rührt von der Potentialdifferenz zwischen Auslöseort in der Elektrode zu dem effektiven abgesenkten Potential auf dem jeweiligen Nachweisradius. Dieser Unterschied ist allerdings zu klein, um von einem Elektronendetektor für keV-Elektronen aufgelöst zu werden.

Unabhängig von diesem materialinduziertem Untergrund spannt ein MAC-E-Filter immer elektrostatische oder elektromagnetische Fallen auf (s. [Ess04] u. [Val09]). Gespeicherte Ladungen in diesen Fallen führen durch ionisierende Streuungen mit dem verbleibenden Restgas zu erhöhtem Untergrund. Das Design eines MAC-E-Filters muss die Anzahl und Tiefe dieser Fallen minimieren.

Ein MAC-E-Filter kann neben dem integrierenden Modus auch in einem Modus, der die Flugzeit der Testladungen berücksichtigt, als differentiellles Spektrometer arbeiten. Dieses Verfahren ist in [Bon99] beschrieben.

### 2.2.3.2 Die KATRIN-Spektrometer

Das KATRIN-Spektrometer besteht aus zwei aufeinanderfolgenden MAC-E-Filtern (s. Abb. 2.7). Während der erste, das Vorspektrometer, die Aufgabe eines Vorfilters übernimmt, wird mit dem zweiten, dem eigentlichen Hauptspektrometer, das  $\beta$ -Spektrum gemessen.



**Abbildung 2.7:** Vor- und Hauptspektrometer des KATRIN-Aufbaus werden von den Elektronen nacheinander passiert. Das kleinere Vorspektrometer dient zur groben Vorfilterung des Endpunktsbereichs des Tritium- $\beta$ -Spektrums, während das großdimensionierte Hauptspektrometer zur exakten Analyse der Spektrums herangezogen wird.

**Vorspektrometer** Mit dem Vorspektrometer soll das zu vermessende Spektrum auf seine letzten 300 eV beschränkt werden. Der Fluss der Elektronen ins Hauptspektrometer soll damit von  $10^{10}$  Elektronen/s auf etwa  $10^4$  Elektronen/s reduziert werden<sup>9</sup>. Elektronen unterhalb dieser Schwelle sind nicht relevant für die Bestimmung der Neutrinomasse und bieten die Gefahr von einer Vermehrung der Untergrundzählrate im Hauptspektrometer. Primäre Untergrundelektronen des Vorspektrometers mit der Energie des Retardierungspotential werden vom Hauptspektrometer herausgefiltert.

Zusätzlich zu den intrinsischen Fallen im MAC-E-Filter bedingt die Konstellation Vor- und Hauptspektrometer weitere Fallen zwischen den Spektrometern [Ess04] [Val09]. Lokale Penningfallen für Elektronen und die Möglichkeit zur Ionenspeicherung in Abhängigkeit vom speziellen elektromagnetischen Design des Vorspektrometers bergen die Möglichkeit zu erhöhtem Untergrund. Die genaue Charakteristik der Untergrundelektronen im Verhältnis zum Unterdrückungsfaktor durch die Vorfilterung gibt das Maß der Effizienz des Vorspektrometers an.

Das KATRIN-Vorspektrometer hat bei einer Länge von 3,38 m einen relativ großen Durchmesser von  $\emptyset=1,7$ m. Seine Dimensionen sind vergleichbar mit den Vorgängerexperimenten in Mainz und Troitsk. Es hat mit einem Magnetfeld von 4,5 T in den Solenoiden, das auf  $\sim 20$  mT in der Analysierebene herabsinkt, nach Glg. (2.19) eine Auflösung von mindestens  $\Delta E=83$  eV für 18,6 keV Elektronen. Es wurde ein Druck von  $p=10^{-11}$  mbar erreicht.

Trotz grundlegender Differenzen zum Hauptspektrometer, wie der Möglichkeit der Ionenspeicherung und die geringe Auflösung, stellt das Vorspektrometer ein Modell des Hauptspektrometers dar.

**Hauptspektrometer** Das Hauptspektrometer analysiert das  $\beta$ -Spektrum mit einer Auflösung von  $\Delta E/E = 0,93$  eV für 18,6 keV Elektronen. Am detektorseitigen Ausgang des Hauptspektrometers befindet sich der Ort mit dem stärksten Magnetfeld von 6T. Der quellseitige Magnet ist gleichzeitig der detektorseitige Magnet des Vorspektrometers. Das Magnetfeld im Hauptspektrometer ist damit asymmetrisch. Sinnvoll ist diese Verlegung des maximalen Magnetfelds auf die Detektorseite, damit magnetisch gespeicherte Elektronen ihre Falle vorzugsweise auf der Quellseite verlassen und so nicht direkt zum Untergrund beitragen. Für die korrekten Transmissionseigenschaften des Spektrometers ist es deshalb nötig, das Magnetfeld gegen diese Asymmetrie in der Analysierebene mit zusätzlichen Luftspulen zu korrigieren. Die Einflüsse des Erdmagnetfelds in der Analysierebene müssen ebenfalls mit speziellen Luftspulen kompensiert werden.

Das Hauptspektrometer hat ein Volumen von  $1258$  m<sup>3</sup>, eine Oberfläche von  $605$  m<sup>2</sup> und ein Gewicht von  $192$  t (Edelstahl 1.4429). Seine Länge beträgt  $23,3$  m und sein Durchmesser  $d \approx 10$  m.

Die Größe des Hauptspektrometers erklärt sich aus den Anforderungen an Auflösung,

---

<sup>9</sup>Von den  $1,8 \cdot 10^{11}$  Zerfällen in der WGTS hat nur Hälfte einen Impuls in Richtung des vorderen Halbraums.



Luminosität und Adiabasie. Die Luminosität von KATRIN ist ein Produkt aus Quellfläche  $S$  und Spektrometerakzeptanz inklusive der Detektoreffizienz  $\varepsilon$ :

$$L = S \cdot \frac{\Delta\Omega}{4\pi} \cdot \varepsilon \quad (2.21)$$

Nicht zu vernachlässigen sind neben den physikalischen Erwägungen zum Experiment auch die Transportmöglichkeiten eines solch großen Edelstahltanks vom Hersteller in Deggendorf zur Experimentierhalle in Karlsruhe. Für KATRIN bedeutete die Passage der Schleuse Jochenstein auf der Donau letztlich die Begrenzung des Durchmessers auf  $d=9,8$  m (Innendurchmesser) bei einer Wandstärke von 32 mm.

Bei KATRIN beträgt  $L=20$  cm<sup>2</sup>. Der Flussschlauch, der durch Quelldurchmesser und Quellmagnetfeld definiert ist zu  $191$  T·cm<sup>2</sup>, spannt sich in der Analysierebene bei der durch die Auflösung geforderten Magnetfeldreduktion von 6T auf 0,3 mT zu einem Durchmesser von 9 m auf. Transmission, Adiabasie und Anforderungen an die Feldhomogenitäten relativ zu der Größe der Ortsauflösung des Detektors definieren die Länge [Val04].

Zur Untergrundreduzierung wird der Restgasdruck in diesem riesigen Volumen minimal gehalten. Es wurde vor dem Einbau der inneren Drahtelektroden ein Druck von  $p=3 \cdot 10^{-11}$  mbar nach dem ersten Ausheizprozess erreicht. Die Ausgasrate der Spektrometerwände belief sich auf nur  $1 \cdot 10^{-12} \frac{\text{mbar}\cdot\text{l}}{\text{s}\cdot\text{cm}^2}$ .

Das Spektrometer wird zur Untergrundreduzierung mit einer doppelten Lage elektrisch getrennter Drähte ausgekleidet. Auf diese Weise wird die Elektrodenmasse reduziert, aus der Untergrundelektronen ausgelöst werden können, welche ungehindert in den Flussschlauch der Signalelektronen gelangen könnten. Gleichzeitig können Elektronen, die aus dem Vollmaterial der Spektrometertanks auf 18,6 kV austreten, mittels eines repulsiven Potentials elektrostatisch abgeschirmt werden.

Erste Spannungstests des Spektrometerkorpus auf 45 kV wurden erfolgreich durchgeführt.

Das Spektrometer trägt mit seinen verbleibenden Feldinhomogenitäten und Transmissionsverlusten über die Fläche eines Detektorsegments (s. folgenden Abschnitt) zu den systematischen Unsicherheiten bei, deren Einfluss durch eine exakte Vermessung mittels einer isotrop emittierenden Kalibrationsquelle oder Elektronen-Kanone geklärt werden kann.

## 2.2.4 Detektor

Der Detektor wird in einem Feld von 3-5 T eines separaten Detektormagneten platziert. Der Flussschlauch hat hier einen Durchmesser von 9 cm. Eine 12-fache radiale Segmentierung und eine azimutale Aufteilung in 30°-Schritten der Detektorfläche ist vorgesehen. Es ergibt sich damit eine Aufteilung in insgesamt 148 Detektorsegmente. Ein solcher als PIN-Diode aufgebauter Multipixel Si-Halbleiterdetektor befindet sich im Bau. Mit der Ortsauflösung ist es möglich die radiale Verteilung der Zählrate zu beobachten und damit Rückschlüsse auf die Quellsäulendichte zu ziehen,

Feldinhomogenitäten im Spektrometer zu bestimmen und zu kompensieren, sowie die Radialsymmetrie des Aufbaus zu überwachen. Überprüfungen der azimuthalen Abbildungseigenschaften sind so ebenfalls möglich. Eventuelle Untergrundursachen lassen sich lokalisieren.

Der Detektor soll Elektronen in einem Energiebereich von 10 keV - 32 keV nachweisen können und eine Energieauflösung von  $\Delta E < 1$  keV (FWHM) aufweisen. Er muss Ereignisraten von von  $10^{-3} \frac{1}{s}$  bei der Messung im Endpunktsbereich des Tritium- $\beta$ -Spektrums bis zu stärkeren Zählraten von Elektronenkanonen und Kalibrationsquellen mit bis zu  $10^5 s^{-1}$  nachweisen können.

Sein Untergrundsignal soll im Auswertefenster deutlich unter dem des Spektrometers liegen. Dazu wird der Detektor einerseits passiv mit Cu und Pb abgeschirmt, sowie andererseits mit einem aktiven  $\mu$ -Vetoschild aus Plastikszintillatoren umgeben.

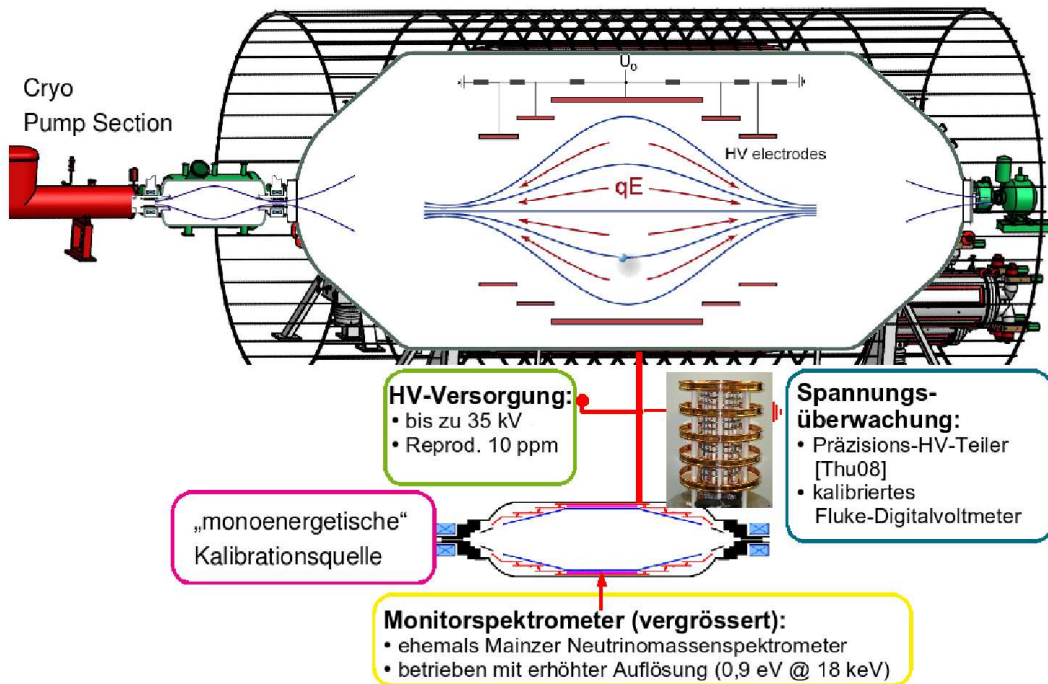
Eine weitere Untergrundreduktion lässt sich dadurch erreichen, dass die Elektronen in einem Feld von 6 T auf 30kV nachbeschleunigt werden. Damit verringert sich der maximale Einfallswinkel von  $45^\circ$  und die Rückstreuwahrscheinlichkeit von  $P=0,33$  für 20 keV Elektronen. Außerdem halbiert sich der Durchmesser der Flussschlauchs. Mit der Anzahl der ausgeleuchteten Pixel halbiert sich auch deren aufsummierter Untergrundbeitrag. Zusätzlich ermöglicht die Energieverschiebung der Signalelektronen eine Separation von  $\beta$ - und  $\gamma$ -Untergrund aus der Detektorumgebung.

### 2.2.5 Monitorspektrometer

Als Präzisionsmessung des Endpunktsbereichs des Tritium- $\beta$ -Spektrums ist das KATRIN-Experiment in besonderem Maße auf eine genaue Kontrolle und Überwachung der systematischen Unsicherheiten angewiesen (s. a. Kap. 3). Ein wichtiger Parameter dabei ist die Stabilität der Retardierungsspannung. Zur Überwachung der Spannungsstabilität zwischen Quellpotential und Retardierungspotential kommt ein weiteres Spektrometer unabhängig von der Hauptstrahlführung in WGTS, Vor- und Hauptspektrometer zum Einsatz. Die gleiche Spannung, die an die Retardierungselektrode des Hauptspektrometers angelegt wird, wird zusätzlich an die Retardierungselektrode dieses weiteren Monitorspektrometers angelegt, welches kontinuierlich eine stabile "monoenergetische" Kalibrationslinie eines driftlosen nuklearen Standards vermisst (s. Abb. 2.8).

Die Spannungskontrolle dieser Art bleibt auf die Überwachung der Potentialdifferenzen der Fermi-niveaus von Quellen und Retardierungselektroden beschränkt. Sie stellt damit eine Kontrolle der rein elektronischen Spannungsmessung dar. Relative Veränderungen der elektronischen Struktur der beteiligten Oberflächen und Potentialveränderung an Kontaktstellen sind so nicht überprüfbar. Die KATRIN-Spannungskontrolle bleibt deshalb nicht auf die Monitorbeamline beschränkt, auch am Hauptspektrometer wird eine Kalibrationsquelle zur Kontrolle eingesetzt.

**Monitorspektrometer:** Das Monitorspektrometer ist ebenfalls ein MAC-E-Filter wie Vor- und Hauptspektrometer. Es ist aus zwei supraleitenden Solenoiden, ei-



**Abbildung 2.8:** Eine schematische Darstellung der Spannungsüberwachung mit dem Monitorspektrometer wird hier gegeben. Eine gemeinsame Hochspannungsversorgung wird mit der Filterelektrode des Hauptspektrometers und der Filterelektrode des Monitorspektrometers verbunden. Ein Präzisionsspannungsteiler [Thu08] zusammen mit einem kommerziellen Digitalvoltmeter liest die jeweils gesetzte Spannung aus. Während am Hauptspektrometer das Tritium- $\beta$ -Spektrum gemessen wird, wird gleichzeitig am Monitorspektrometer eine stabile monoenergetische Elektronenlinie einer Kalibrationsquelle aufgenommen.

ner massearmen Retardierungselektrode aus Edelstahldrähten und zusätzlichen Magnetspulen zur Optimierung des Feldes in der Analysierebene aufgebaut.

Dieses Spektrometer wurde vor einer Reihe von Umbauten ehemals als Mainzer Neutrinomassenspektrometer beschrieben in [Kra05] verwendet. Veränderungen diesbezüglich sind:

- 27 Elektrodensystem  $\rightarrow$  Einelektrodensystem mit zusätzlicher Schirmelektrode aus Drähten [Fla04] [Ost02]
- vier Solenoide  $\rightarrow$  Reduktion auf zwei Solenoide
- Präzisionsspannungsteiler ( $< 1\text{ppm}$ ) und HV-Versorgung (10ppm)
- 4,8 eV Auflösung (bei 18 keV)  $\rightarrow$  0,9 eV Auflösung (bei 18 keV)

Das Spektrometer wurde dabei einerseits auf eine Minimalausstattung reduziert, andererseits wurde die angestrebte Hauptspektrometerkonfiguration mit einer einzelnen Drahtelektrode antizipiert. Die Auflösung des Monitorspektrometers musste

dazu verfeinert werden. Es ist prinzipiell möglich die Spannungsüberwachung am Monitorspektrometer bei anderer Auflösung als der des Hauptspektrometers zu betreiben. Neben der Auflösung der Hauptspektrometers von 0,9 eV wurden deshalb auch Auflösungen von 0,68 eV, 1,35 eV und 2 eV jeweils bei 18 keV getestet (s.a. [Thu08] und in dieser Arbeit Kapitel 6). Auflösungen mit  $\frac{\Delta E}{E} > 0,9$  eV reduzieren aufgrund des kleineren Radius des Flussschlauchs in der Analysierebene Breite und Positionsstreumöglichkeiten einer Kalibrationsquellenlinie (s. Kap. 6, Abschnitt 6.4.1) und sind deshalb für Kalibrationszwecke zu bevorzugen.

**HV und Präzisionsspannungsteiler:** Das Konzept für HV-Versorgung und Spannungsteiler geht zurück auf [Thu08]. Es werden zur Spannungsversorgung kommerzielle Präzisionsnetzteile mit Reproduzierbarkeiten von 10 ppm eingesetzt. Da die erreichbare Genauigkeit mit diesen Geräten sowohl zur Spannungsversorgung als auch zur Spannungsauslese hinter den KATRIN-Anforderungen zurückbleibt, wurde ein Präzisionsspannungsteiler in Zusammenarbeit mit der PTB-Braunschweig gebaut und getestet. Dieser weist eine Messungenauigkeit von  $< 1$  ppm und ein monatliches Driftverhalten von 0,6 ppm im ersten Jahr auf. Die Spannung wird über einen 10 V- bzw. 20 V-Abgriff mit einem Präzisionsvoltmeter ausgelesen. Die niedrige Auslesespannung ist anfällig gegen kleinere Spannungsschwankungen, bietet aber die höchste Genauigkeit kommerzieller Voltmeter. Das Voltmeter selbst weist eine Temperaturabhängigkeit und ein zeitliches Driftverhalten auf, weshalb es in regelmäßigen Abständen mit einer 10 V-Referenzquelle vor Ort kalibriert wird.

**Kalibrationsquellen:** Verbleibende Driften der HV-Messung sind über die gesamte geplante Messzeit von KATRIN mit 3 Jahren effektiver Messzeit in je 2-monatigen Tritiummessperioden zu groß. Der resultierende systematische Fehler würde die angestrebte Sensitivität von KATRIN gefährden. Driftfreies Verhalten ist hingegen bei nuklearen oder atomaren Übergängen gegeben. Für den Einsatz am Monitorspektrometer wurden und werden verschiedene Quelltypen auf ihre Einsatzfähigkeit geprüft:

1. AmCo-Quelle
2. Rb-Festkörperquelle
3. Quelle aus kondensiertem  $^{83m}\text{Kr}$

Bei ersterer Quelle wird die Ankopplung an einen natürlichen Standard dadurch erreicht, dass wohldefinierte  $\gamma$ -Strahlung aus  $^{241}\text{Am}$  mit  $E_\gamma = 26344,6(2)$  eV Hüllenelektronen aus einer dünnen Co-Oberflächenschicht als Photoelektronen mit  $E_{e^-} = 18636,6(2)$  eV [Kas08] auslösen. Die entstehenden Photoelektronen konnten aber nur mit einer Ereignisrate von 2 Ereignissen/s, die keinen Energieverlust in der Co-Schicht erlitten, bei einem zweifach höheren Untergrund bedingt durch primäre  $\gamma$ 's aus  $^{241}\text{Am}$  nachgewiesen werden. Die letzteren beiden Quellen basieren auf Konversionselektronen und werden im Kapitel 4 genauer beschrieben.

## Kapitel 3

# Systematische Unsicherheit und Stabilitätsüberwachung des Retardierungspotentials

### 3.1 Statistische und systematische Unsicherheiten

Damit die KATRIN-Sensitivität in den Sub-eV-Bereich bis auf  $m_\nu < 0,2$  eV heruntersinken kann, müssen alle Beiträge zur statistischen und systematischen Unsicherheit der Neutrinomasse zusammen unterhalb dieses Wertes bleiben [Ang04].

Die statistische Unsicherheit der Neutrinomassenbestimmung verringert sich mit der Breite des Auswertintervalls um den Endpunkt des Spektrums (s. Abb. 3.1) [Ang04]. Wesentliche Parameter sind die Quellstärke und der Untergrundbeitrag. Berücksichtigt werden muss aber darüberhinaus die Charakteristik der Sensitivität eines  $\beta$ -Spektrums auf die Neutrinomasse, sodass der Energiebereich mit der höchsten Sensitivität auf die Neutrinomasse lange genug gemessen wird.

Die Sensitivität ist in der Nähe des Endpunktes  $E_0$  dominiert von dem Signal zu Untergrundverhältnis und bei niedrigerer Filterspannung von der annähernden Parabelform des Endes des  $\beta$ -Spektrums. Für eine idealisierte Transmissionsfunktion<sup>1</sup> gilt [Ott08]:

$$r(\varepsilon) = s + b \quad (3.1)$$

$$\approx A \left( \varepsilon^3 - \frac{3}{2} \varepsilon \sum |U_{ei}|^2 m_i^2 \right) + b \quad (3.2)$$

mit

s: integrale Signalrate,

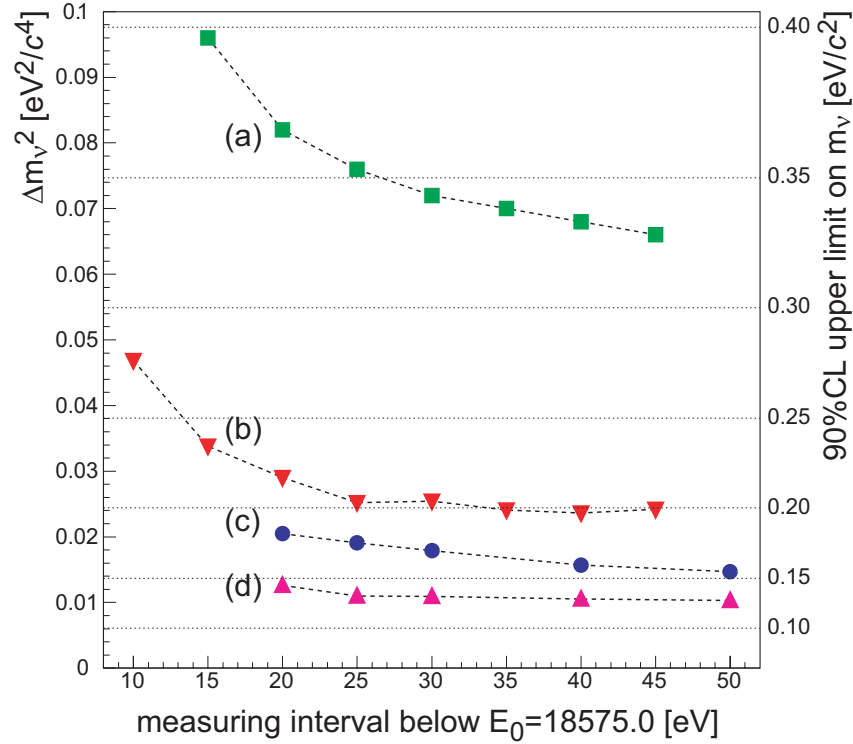
b: Untergrund

$\varepsilon$ :  $E_0 - E$  und

A: effektive Amplitude.

---

<sup>1</sup>d.h.  $\Theta$ -Sprungfunktion

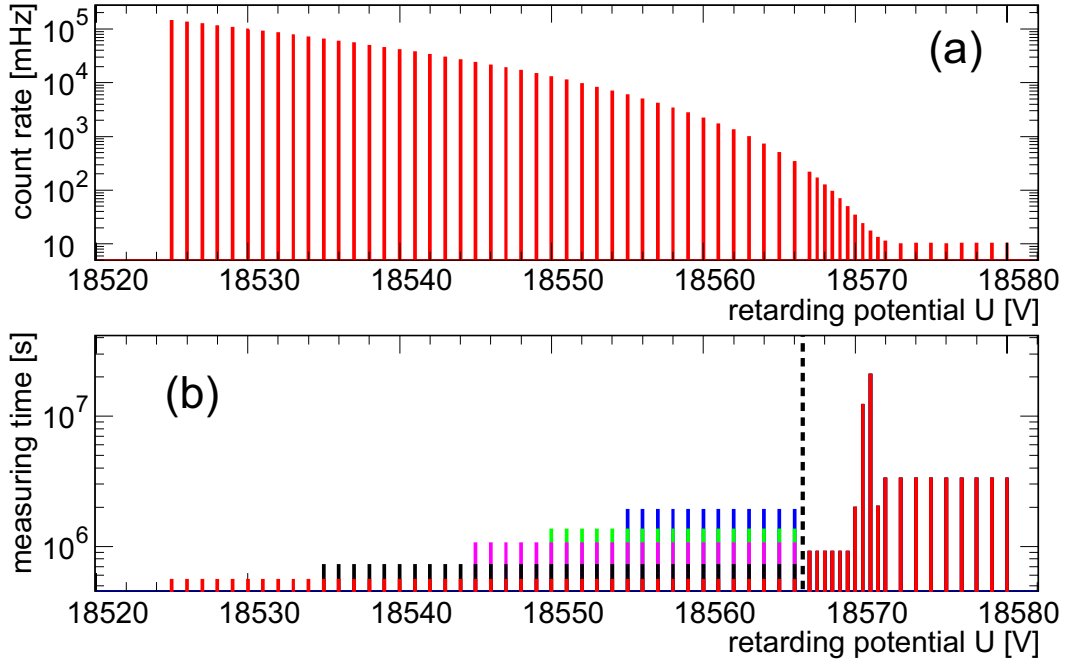


**Abbildung 3.1:** Der statistische Fehler bei KATRIN [Ang04] wird stark beeinflusst von der Luminosität, dem Untergrundsignal und dem gewählten Energieauswertefenster. Hier aufgetragen ist der Verlauf des statistischen Fehlers. Kurve (a) zeigt ein erstes Design mit geringerem Quell- und Spektrometerdurchmesser [Osi01], (b) beinhaltet die aktuellen Quell- und Spektrometerdimensionen. Diese Steigerung der Luminosität durch eine größere Tritiumreinheit und zusätzlich einer Vergrößerung des Quellvolumens führte zu einer starken Verbesserung der Sensitivität auf die Neutrinomasse. Bei Kurve (c) tritt eine Optimierung der Messpunktverteilung hinzu. Kurve (d) veranschaulicht den Einfluss der Untergungszählrate auf die Sensitivität der Neutrinomasse. Während für die Kurven (a) - (c)  $0,01 \text{ s}^{-1}$  angesetzt wurden, wurde er für Kurve (d) auf ein Zehntel dessen reduziert.

Damit ist auch klar, dass bei gegebenem Untergrund und effektiver Amplitude eine Filterspannung  $\varepsilon_{opt}$  existiert, bei der die Sensitivität optimal ist:

$$s(\varepsilon_{opt}) = 2b \quad (3.3)$$

Durch eine Anpassung der Messpunktverteilung lässt sich eine Optimierung der Statistik erreichen (s. Abb. 3.2). Bevorzugt muss dabei der Bereich mit der größten Signatur vermessen werden. Zusätzlich wird auch der Bereich oberhalb von  $E_0$  gemessen. Dort erlischt das Signal des  $\beta$ -Spektrums und das Untergrundsignal bleibt zurück, sodass der Untergrund getrennt vermessen werden kann.



**Abbildung 3.2:** Die Optimierung der Messpunktverteilung [Ang04] ist hier dargestellt. (a) zeigt die Zählratenverteilung des Tritium- $\beta$ -Spektrums unter der Annahme eines konstanten Untergrunds von  $b=10$  mHz. Abbildung (b) stellt die optimierte Messpunktverteilung für unterschiedliche Auswertefenster dar. Die roten Markierungen entsprechen einem Auswertefenster von 50 eV unter dem Endpunkt, die blauen nur einem unteren Intervallteil von 20 eV. Es werden jeweils 3 Jahre effektive Messzeit zugrunde gelegt. Kurz unterhalb des Endpunkts ( $E > 18566$  eV, gestrichelte Linie) spielt die Wahl der unteren Intervallgrenze keine Rolle für die Messpunktverteilung. Es gelten für alle die roten Markierungen. Die Optimierung ermöglicht eine Steigerung der statistischen Sensitivität auf die Neutrinomasse, setzt aber voraus, dass die experimentellen Parameter insbesondere die Untergrundcharakteristik den Erwartungen entsprechen.

Bei einem Energieintervall von  $[E_0 - 30eV, E_0 + 5eV]$  und einer Messdauer von 3 Jahren wird dann folgender statistischer Fehler erwartet [Ang04]:

$$\Delta m_{stat}^2 = 0,018 eV^2/c^4 \quad (3.4)$$

Die Gesamtunsicherheit steigt hingegen aufgrund des systematischen Fehlers mit größerer unterer Messintervallgrenze steil an [Ang04]. Hervorstechend sind die Rotations- und Vibrationsanregungen sowie die ersten elektronischen Anregungszustände des  $(^3\text{HeT})^+$  - Tochtermoleküls bei 27 eV unterhalb des kinematischen Endpunktes und zusätzlich überlagerten Spektren der Variation der Tritiumanfangszustände.

Eine Reihe von Quellen der systematischen Unsicherheit wurden identifiziert und abgeschätzt (s. [Ang04]), sodass für die gesamte systematische Unsicherheit von KATRIN

$$\Delta m_{syst}^2 \leq 0,017 eV^2/c^4 \quad (3.5)$$

erwartet werden kann. Die in Glg. (3.5) angegebene Unsicherheit setzt sich aus mehreren Beiträgen unterschiedlicher Ursachen zusammen. Zum jetzigen Zeitpunkt sind zwar Abschätzungen (s. folgende Tab. 3.1 entnommen aus [Ang04] Kap. 11, Tab. 6, S.217) aber noch keine endgültigen Angaben zur Verteilung der systematischen Unsicherheit auf die einzelnen Ursachen möglich. Als Arbeitshypothese wird die systematische Unsicherheit in fünf je gleich starke Unsicherheitsbeiträge aufgeteilt. Jede einzelne Ursache darf dann beitragen mit:

$$\Delta m_{syst,einzel}^2 \leq 0,0075 eV^2/c^4 \quad (3.6)$$

Die Hauptursachen der Unsicherheiten lassen sich aufteilen in einen quellabhängigen Teil und einen, der von den Energiefiltereigenschaften des Spektrometers abhängt (s. Tab. 3.1).

#### 1. Quellabhängige systematische Unsicherheiten

- (a) Der größte Beitrag zur systematischen Unsicherheit kommt von den verbleibenden Unsicherheiten bezüglich der Quellsäulendichte  $\rho_d$  ( $\Delta m_{syst}^2 < 0,0067 eV^2/c^4$ ). Sie hängt von mehreren miteinander korrelierten Parametern ab: der Temperatur bzw. der Dichteverteilung im Quellrohr, der Aktivität, der ein- und ausströmende Gasmenge sowie der Tritiumreinheit. Die Stabilität der Quellsäulendichte wird deshalb mittels einer Reihe von Messmethoden überwacht. Aktivitätsmessungen des Tritiumspektrums lassen sich 500 V unterhalb von  $E_0$  durchführen. Dort ist die Zählrate auf 100 kHz angestiegen und ermöglicht eine Aktivitätsbestimmung mit einer Genauigkeit von  $10^{-3}$  innerhalb von 10 s [Ang04]. Zusätzlich überprüft ein Quellmonitordetektor innerhalb der CPS die Quellsäulendichte am Rand des Flussschlauchs. Auch im Kalibrations- und Monitorsystem ist ein weiterer Kontrollmechanismus der Quellzählrate vorgesehen. Weiterhin wird die Isotopenzusammensetzung im Tritiumgas mit Laser-Raman-Spektroskopie kontrolliert [Le07]. Es werden auch regelmäßige Energieverlustmessungen mit einer Elektronenkanone aus der rückseitigen Kalibrations- und Monitorsektion durchgeführt.
- (b) Beim Tritiumzerfall entstehen Endzustände, die zu Rotationen und Vibrationen angeregt sind. Diese Anregungen haben eine mittlere Energie von 1,7 eV und eine theoretische Breite von  $\Gamma=0,36$  eV. Weicht die Breite der Endzustandsverteilung in KATRIN um 1% von der erwarteten Breite ab, so führt das zu einer systematischen Verschiebung von  $\Delta m_{syst}^2 \approx 0,006 eV^2/c^4$ .
- (c)  $\beta$ -Elektronen, die mit dem Tritiumgas elastisch streuen, verlieren im Mittel eine kinetische Energie von 16 meV pro Stoß an ihre Stoßpartner. Es sind maximale Energien von 6,8 eV in Abhängigkeit vom Streuwinkel möglich. Diese kollisionsabhängige Verschmierung des Spektrums führt zu einem Beitrag zum systematischen Fehler von  $\Delta m_{syst}^2 < 0,005 eV^2/c^4$



<b>1. Quellbedingt</b>		
Ursache der syst. Verschiebung	avisierte Genauigkeit	resultierende syst. Unsicherheit $\sigma_{syst}(m_{\nu_e}^2)[10^{-3}eV^2]$
(a) Überwachung der Säulendichte:		
Isotopenreinheit	$< 2 \cdot 10^{-3}$	$< 6,7$
Temperaturstab.	$< 2 \cdot 10^{-3}$	
Stab. der Aktivität	$< 2 \cdot 10^{-3}$	
Stab. der T <sub>2</sub> -Injektion	$< 2 \cdot 10^{-3}$	
Stab. der T <sub>2</sub> -Extraktion	$< 0,06$	
(b) Beschreibung der Breite der Endzustandsverteilung	$< 1 \%$	$< 6$
(c) elast. Streuung (e <sup>-</sup> - T <sub>2</sub> )		$< 5$
(d) Entfaltung der Energieverlustfunktion		$< 6$
(e) el. Potentialvariation in der WGTS	$< 10 \text{ meV}$	$< 0,2$
(f) T <sup>-</sup> -Konzentration: $\frac{n(T^-)}{n(T_2)}$	$< 2 \cdot 10^{-8}$	$< 0,1$
<b>2. Spektrometerbedingt</b>		
Ursache der syst. Verschiebung	avisierte Genauigkeit	resultierende syst. Unsicherheit $\sigma_{syst}(m_{\nu_e}^2)[10^{-3}eV^2]$
(a) HV-Variationen	$\frac{\Delta HV}{HV} < 3 \text{ ppm}$	$< 7,5$
(b) mag. Feldvariation (WGTS)	$\frac{\Delta B_S}{B_S} < 2 \cdot 10^{-3}$	$< 2$
(c) Steigung in der Untergrundrate	$< 0,5 \frac{mHz}{keV}$	$< 1,2$
Summe der identifizierten syst. Unsicherheiten	$\sigma_{syst,tot} = \sqrt{\sum \sigma_{syst}^2} \approx 0,01eV^2$	

**Tabelle 3.1: Tabelle der systematischen Unsicherheiten von KATRIN [Ang04]**  
Diskussion s. Fließtext

- (d) Die Transmissionsfunktion ist in Glg. (2.6) für eine energieverlustfreie isotrop emittierende Quelle angegeben. Im Falle von Energieverlusten durch Streuprozesse muss die Energieverlustfunktion aus analytisch berechenbarer Transmissionsfunktion und gewonnenen Messdaten entfaltet werden. Grundlage zur Entfaltung der Ansprechfunktion bieten einerseits Modellrechnungen andererseits Messungen mit einer Elektronenkanone oder Kalibrationsquelle. Unsicherheiten diesbezüglich können mithilfe der Entfaltung auf  $\Delta m_{\text{sys}}^2 < 0,006 \text{ eV}^2/c^4$  limitiert werden [Wol08].
- (e) Fluktuationen von Raumladungen und Plasmaeffekte sowie unterschiedliche Austrittsarbeiten innerhalb der WGTS führen zu einer Verschmierung des Spektrums und damit zu einer systematischen Verschiebung. Im [Ang04] wurde diese Fluktuation mit lediglich 10 mV abgeschätzt. Solch kleine Fluktuationen führen zu einer systematischen Unsicherheit von  $\Delta m_{\text{sys}}^2 < 0,0002 \text{ eV}^2/c^4$
- (f) Neben dem direkten Tochtermolekül ( ${}^3\text{HeT}$ )<sup>+</sup> können ausgehend von diesem neben Elektronen eine Reihe von Ionen entstehen:  ${}^3\text{He}^+$ ,  $\text{T}^+$ ,  $\text{T}_3^+$  und  $\text{T}_2^+$ . In Stoßprozessen von Elektronen mit  $\text{T}_2$  werden zusätzlich  $\text{T}^-$ -Ionen gebildet. Von all diesen führen aber nur die Zerfälle von  $\text{T}^-$  zu einer systematischen Verschiebung der Neutrinomasse, da nur hier der Endpunkt so nah am Endpunkt des  $\text{T}_2$ -Spektrumsendpunkts liegt, dass Überlagerungen des primären Spektrums durch kein geeignet kleines Energiemessfenster minimiert bzw. ausgeschlossen werden können. Bei einer Konzentration von  $\frac{n(\text{T}^-)}{n(\text{T}_2)} < 2 \cdot 10^{-8}$ , die sich aus Entstehungsrate und Speicherzeit errechnet, ergibt sich eine systematische Verschiebung von  $\Delta m_{\text{sys}}^2 < 0,0001 \text{ eV}^2/c^4$  [Ang04].

## 2. Spektrometerbedingte systematische Unsicherheiten

- (a) Fluktuationen von Quell- und Retardierungspotential gehen direkt über Gleichung (3.8) in eine fälschliche Verschiebung des Neutrinomassenquadrats über. Die Forderung von  $\Delta m_{\text{sys}}^2 < 0,0075 \text{ eV}^2/c^4$  bedeutet eine Genauigkeit der Spannungskontrolle auf 3,3 ppm bei 18,6 keV. Diese Kontrolle findet einmal als elektronische Präzisionsmessung per Spannungsteiler und Voltmeter statt. Zusätzlich wird diese Spannungsmessung mittels eines nuklearen bzw. atomaren Übergangs überprüft. Diese Ankopplung an einen natürlichen Standard erfolgt durch eine monoenergetische Konversionselektronenquelle. Die Entwicklung einer solchen Quelle mit einer Langzeitstabilität von einigen Jahren ist Thema dieser Dissertation und wird in den folgenden Kapiteln behandelt.
- (b) Abweichung von den theoretischen simulierten elektrostatischen und magnetischen Feldern sind möglich und lassen sich weitestgehend mit der Ortsauflösung des Detektors ausgleichen. Dazu müssen die Abweichungen aber sehr genau bekannt sein. Durch eine Kalibrationsquelle oder Elektronenkanone [Val09] in der CPS bzw. WGTS kann der Potentialdurchgriff, die Radialsymmetrie des Spektrometers und verbleibende Transmissionsverluste durch nichtadiabatische Bewegung im Hauptspektrometer ver-

messen werden. So können spektrometerbedingte Einflüsse auf die Transmissionsfunktion von den quellabhängigen separiert werden. Das tatsächlich anliegende Potential am Tritiumzerfallsort und an der Analysestelle im minimalen Magnetfeld, hängt neben dem angelegten elektrostatischen Potential von den Austrittsarbeiten der umgebenden Elektroden in der Analysierebene des Spektrometers ab. Diese Potentialschwankungen, die über die elektronisch messbaren hinausgehen, lassen sich nur mit Kalibrationsquellen in der CPS und WGTS bzw. durch die Kontrolle des Endpunkts  $E_0$  beobachten.

- (c) Das Untergrundverhalten eines Tritium- $\beta$ -Spektrums im MAC-E-Filter wird zunächst als konstante, d.h. energieunabhängige Zählrate  $b$  angenommen, welche als freier Parameter an die Daten angepasst wird. Wenn das Untergrundverhalten entgegen der Erwartung eine lineare Energieabhängigkeit zeigen sollte, so kann dadurch die Bestimmung der Neutrinomasse beeinflusst werden. Ein solches Untergrundverhalten würde sich oberhalb des Spektrumendpunktes weiter fortsetzen. Damit ist es dort möglich, eine eventuelle Steigung im Untergrund zu vermessen. Eine lineare Komponente im Untergrund wurde mit weniger als 0,5 mHz/keV abgeschätzt und trägt so mit  $\Delta m_{\text{sys}}^2 < 0,0012 \text{ eV}^2/c^4$  [Ang04] zur systematischen Unsicherheit bei.

Darüberhinaus wird die Energie der Zerfallselektronen über den Dopplereffekt verändert. Es kommt zu einer Energieverschiebung in Abhängigkeit von der Bewegung der zerfallenden  $T_2$ -Moleküle. Für Tritiummoleküle bei 27 K werden hierbei nur Energieverschiebungen von 2-3 meV erwartet [Ang04].

Desweiteren muss die Synchrotronstrahlung berücksichtigt werden, die ein Zerfallselektron auf seinem Weg zwischen Detektor und Analysierebene abstrahlt. In den hohen magnetischen Feldern, wie sie in der Quelle und dem Transportsystem vorkommen, führen die Elektronen in Abhängigkeit von ihrer Transversalenergie schnelle Gyrationen aus, die zur Abstrahlung von Energie führen. In nicht-relativistischer Näherung gilt [Ang04]:

$$\Delta E = 0,4E_{\perp}B^2t \quad (3.7)$$

mit

$E_{\perp}$ : kinetische Energie transversal zu den magnetischen Feldlinien,

B: magnetische Feldstärke in Tesla und

t: Zeit in s.

Limitiert wird die maximal abgestrahlte Leistung durch den maximal transmittierten Startwinkel von  $51^\circ$ . Die meiste Energie von bis zu 130 meV wird im vorderen Bereich des Transportsystems abgestrahlt, während innerhalb der WGTS nur ein Energieverlust von 12 meV abgeschätzt wurde [Ang04]. Diese Energieveränderungen sind zwar recht groß, lassen sich aber aufgrund ihrer gut bekannten Eingabeparameter (Magnetfeld, Geometrie,  $T_2$ -Gasdichte in der WGTS) simulieren.

### 3.1.1 HV-Stabilitätsanforderungen

Unerkannte Gauß'sche Fluktuationen in der Retardierungsspannung mit der Breite  $\sigma$  bewirken über die Beziehung [Rob88]

$$\Delta m_\nu^2 = -2\sigma^2 \quad (3.8)$$

eine unerkannte systematische Verschiebung der Messgröße des Neutrinomassenquadrates und müssen daher entweder vermieden oder zumindest identifiziert werden.

Für die Spannungsüberwachung bedeutet die Forderung  $\Delta m_{syst}^2 < 0,0075 \text{ eV}^2/c^4$  nach Gleichung (3.8) eine Limitierung von unbekanntem Fluktuationen auf 61 mV bei 18 kV. Wünschenswert wäre eine solche Spannungsüberwachung von 3,3 ppm in der Tat über die gesamte auf drei Jahre angesetzte effektive Messzeit. Gelänge dies, wäre eine beliebige Aufsummierung der Daten zur Bestimmung des Neutrinomassenquadrates nicht durch die Spannungskontrolle limitiert. Einzelne Aufnahmen des  $\beta$ -Spektrums könnten nach Fragen zur Systematik beliebig selektiert und analysiert werden, um ihren experimentellen Einfluss auf die Neutrinomassenbestimmung zu quantifizieren.

Im Idealfall, wenn die einzelnen Beiträge zur systematischen Unsicherheit nicht größer als die Erwartungen (s. Tabelle 3.1) ausfallen, reicht eine Stabilität über einen einzelnen Tritiummessblock von zwei Monaten aus, um erste Aussagen zur Neutrinomasse zu machen. In dieser Zeit werden genügend Daten gesammelt, um die Parameter  $E_0$ ,  $m_\nu^2$ , Untergrundbeitrag und Signalstärke aus den Daten erfolgreich zu gewinnen. Außer der Information von  $m_\nu^2$  enthalten die Daten mit der Bestimmung des Endpunkts  $E_0$  mit einer erwarteten Genauigkeit von 17 meV ( $\cong 0,9$  ppm bei 18,6 keV) nach einer Messperiode eine intrinsische Kontrolle der Spannungsstabilität. Die angestrebte Sensitivität auf die Neutrinomasse wird dann letztlich über Mittelung der Einzelergebnisse der 2-monatigen Messblöcke nach 3 Jahren Messzeit erreicht.

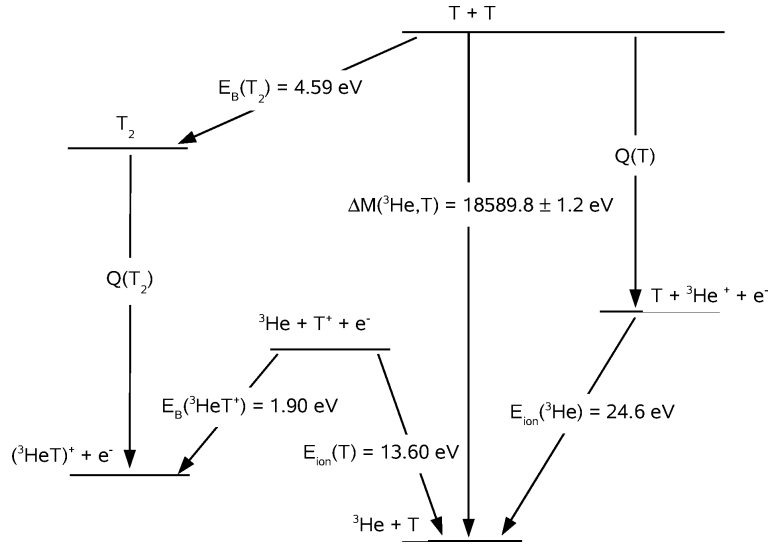
Neben Langzeitdriften tragen auch hochfrequente Fluktuationen zu Störungen des  $\beta$ -Spektrums bei. Restwelligkeiten der Hochspannungsversorgung oder eingekoppeltes Rauschen werden von der Kapazität des Spannungsteilers gedämpft, innerhalb der Integrationszeit (2s) der Digitalvoltmeters gemittelt und bleiben so unentdeckbar für die Spannungskontrollen mit dem Spannungsteilerkomplex allein. Die HF-Anteile der Hochspannung sind über weitere kapazitative Teiler zusätzlich messbar.

In [Thu08] wurde zusätzlich der Beitrag von möglichen Schwankungen in den Spannungsfuktuationen ( $\Delta\sigma$ ) abgeleitet:

$$\Delta m^2 = 4\sigma\Delta\sigma + \Delta\sigma^2 \quad (3.9)$$

Tritt eine "monoenergetische" Kalibrationsquelle zur Stabilitätskontrolle hinzu, so bewirkt das hochfrequente Rauschen eine Störung in der Breite der Linie und wird damit im Prinzip nachweisbar. Der spannungsabhängige Gaußanteil der Linienbreite sollte damit ebenfalls unter  $\sigma=60$  meV liegen und seine Schwankungen  $\Delta\sigma=20$  meV nicht überschreiten, da sich hierdurch bereits ein Beitrag zur Systematik nach Glg.

(3.9) von  $0,004 \text{ eV}^2/c^4$  ergibt. Eine eindeutige Zuordnung der Schwankungsursache zur Spannung oder zu Quelleigenschaften ist mit einer einzelnen Quelle und einem einzelnen Teiler praktisch nicht möglich. Daneben müsste sich hochfrequentes Rauschen als Ungenauigkeit des Endpunkts  $E_0$  äußern. Amplitude und Frequenzen dieser Schwankungen am Hauptspektrometer sind noch nicht bekannt. Messungen am Vorspektrometer zur Abschätzung sind geplant.

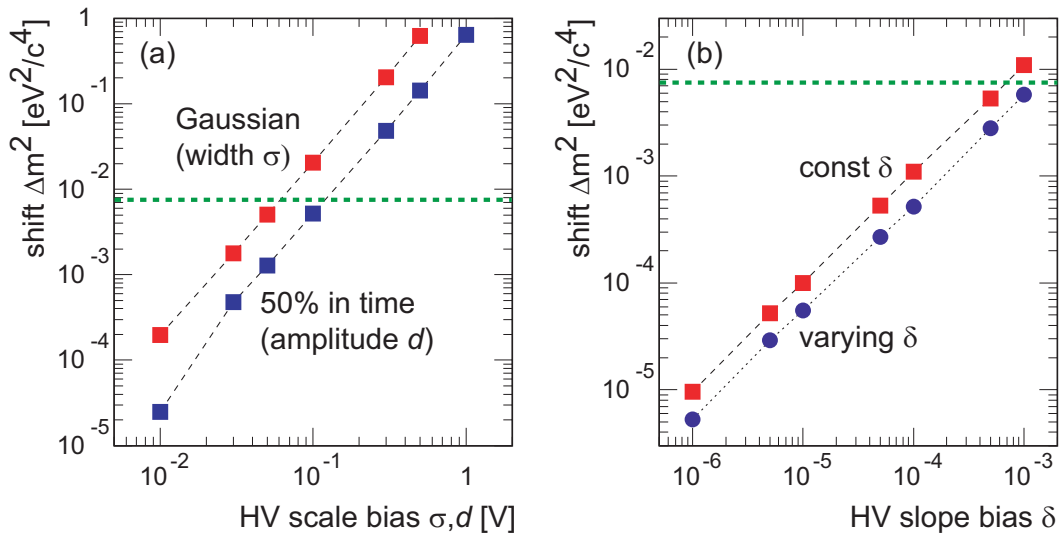


**Abbildung 3.3: Zusammenhang von Q-Wert und der Massendifferenz  $\Delta(T^3He)$**  [Ott08] ist über einfache Korrekturwerte gegeben. Kennt man die molekulare Bindungsenergie von Tritium  $E_B(T_2)$ , die die Bindungsenergie von  ${}^3He$  am  $T^+$  und die Ionisierungsenergie von atomarem Tritium  $E_{Ion}(T)$ , so lässt sich der Q-Wert für den Zerfall von molekularem Tritium aus der Massendifferenz von  ${}^3He$  und Tritium ableiten.

Spannungsinstabilitäten können auf zweierlei Weise auftreten: 1) Unsicherheit des Absolutwerts oder 2) Unsicherheit der relativen Stabilität um einen unbekanntem Absolutwert. Da bei der Bestimmung des Neutrinomassenquadrates der Endpunkt als freier Fitparameter eingeht und die Information in der Steigung und nicht in der absoluten Skala liegt, ist die exakte Kenntnis der absoluten Skala von geringer Relevanz [Kas04]. Eine exakte Kenntnis des Absolutwertes birgt aber die Möglichkeit einer Gegenkontrolle der Summe der systematischen Fehler. Wenn der Wert für  $E_0$  mit KATRIN exakt bekannt würde, ließe er sich mit Ergebnissen zur Massendifferenz von atomarem Tritium zu  ${}^3He$ , die mit Penningfallenpräzisionsexperimenten gewonnen werden können, vergleichen (s. Abb. 3.3). Der Wert für die Massendifferenz  $\Delta M(T^3He)$  liegt aktuell bei  $18,5898(12) \text{ keV}$  [Na06]. Er erlaubt also bislang nur eine grobe Kontrolle des zu erwartenden Endpunkts. Messungen zur Steigerung der Genauigkeit für die Massendifferenz um mindestens eine Größenordnung befinden sich am MPI in Heidelberg in der Gruppe von K. Blaum in Planung und Aufbau [Bla04], [Bla06].

Die Stabilität der Hochspannung kann wiederum auf zweierlei Arten beeinträchtigt sein: 1) kurzzeitige Fluktuationen um einen an sich stabilen Wert oder 2) als zeit-

liche Drift des Werts im größeren Zeitfenster. Systematische Verschiebungen des Neutrinomassenquadrates aufgrund solcher HV-Unsicherheiten wurde für KATRIN anhand von Simulationen genau untersucht [Ang04], [Kas04]. Es wurden zwei Instabilitätscharakteristika angenommen: Zum einen eine gaussförmige Schwankung mit der Breite  $\sigma$ , zum anderen eine unerkannte Verschiebung für 50 % der Zeit. Beides ist dargestellt in Abb. 3.4 (a). Man erkennt, dass bei einer tolerierbaren Verschiebung von  $\Delta m_{\nu_e}^2 < 0,0075 \text{ eV}^2$  eine maximale Gaußverbreiterung mit  $\sigma < 60 \text{ meV}$  akzeptabel ist. Im Falle einer energieabhängigen Verzerrung der Spannungsskala über das Energieauswertefenster in Form einer konstanten Steigung mit und ohne Gauß'scher Verschmierung, ergibt sich eine Anforderung von  $10^{-3}$  relative Genauigkeit, d.h bei einem Auswertefenster von 40 eV ist eine Genauigkeit von 40 meV erforderlich.



**Abbildung 3.4:** Die Abschätzung des Beitrags zur systematischen Unsicherheit aufgrund von Spannungsabweichungen [Ang04], [Kas04] wird an dieser Skizze veranschaulicht. In (a) wird einerseits eine Gauß'sche Variation des der Energieskala (rot) und andererseits eine unbemerkte Verschiebung der Skala für 50 % der Zeit angenommen und der jeweilige Beitrag zur systematischen Unsicherheit angegeben. Die gestrichelte Linie gibt das avisierte Limit für die systematische Unsicherheit von  $\Delta m_{\nu_e}^2 = 0,0075 \text{ eV}^2$  an. In (b) wird eine Abweichung von der korrekten Linearität in Form einer zusätzlichen Steigung  $\delta$  der Kalibration der Spannungsmessung im Auswertintervall angenommen. Zum einen wird eine konstante zusätzliche Steigung (rot) zum anderen eine Gauß'sche Fluktuation der Steigung (blau) angenommen.

### 3.1.2 HV-Stabilitätskontrolle

Die HV-Stabilitätskontrolle des KATRIN-Experiments fußt auf ein Zusammenspiel präziser elektronischer Spannungsmessung und Kalibrationsquellen mit natürlichen Standard an unterschiedlichen Einsatzorten.

### 3.1.2.1 Messung der Hochspannung mit einer Präzision von 1 ppm

Präzisionsmessungen im ppm-Bereich sind für Spannungen im 10 V-20 V-Bereich mit kommerziellen Geräten möglich. Bei KATRIN kommen ein Fluke 8508A- und HP/Agilent 4358A-Voltmeter zum Einsatz. Um das verbleibende zeitliche Driftverhalten und die Temperaturabhängigkeit der Voltmeter zu kompensieren, werden diese in regelmäßigen Abständen mit einer 10 V-Referenzquelle Fluke 732A kalibriert<sup>2</sup>.

Für KATRIN wurde ein Präzisionsspannungsteiler für bis zu 35 kV in Zusammenarbeit mit der PTB Braunschweig gebaut und getestet [Thu08]. Dieser und ein zweiter im Aufbau befindlicher nahezu baugleicher Spannungsteiler für bis zu 65 kV werden zur elektronischen Spannungsüberwachung des KATRIN-Experiments eingesetzt werden. Die Präzisionsanforderungen sind nach Glg. (3.6) definiert. Eine detaillierte Beschreibung wird in [Thu08] gegeben, hier sollen nur die Eckpunkte zusammengefasst werden (s. Abb. 3.5).

Der Spannungsteiler besteht aus einer primären Teilerkette unter Stickstoffatmosphäre mit 100 Präzisionswiderständen von je 1,84 M $\Omega$ . Die einzelnen Widerstände wurden nach ihrer Temperaturabhängigkeit selektiert und Widerstände mit entgegengesetztem Temperaturkoeffizienten gepaart. Bei der Auswahl der Widerstände waren Aufwärm- und Alterungsverhalten maßgeblich.

Eine sekundäre Teilerkette nivelliert den Potentialabfall entlang eines Widerstands. Fünf Kupferelektroden sind über Hochspannungswiderstände miteinander verbunden und teilen die Primärkette so in vier Etagen auf. Eine tertiäre kapazitative Teilerkette regelt Ein- und Ausschaltvorgänge.

Der Messabgriff des Teilers ist so dimensioniert, dass Spannungen von 35 kV in den 10 V-Bereich eines kommerziellen Präzisionsvoltmeters heruntergeteilt werden.

Das Innere des Spannungsteilers ist mit einer Temperaturstabilisierung auf 0,1 K versehen.

Der Spannungsteiler wurde auf seine Spannungs- und Temperaturabhängigkeit hin untersucht. Sein Driftverhalten im ersten Jahr wurde an der PTB bestimmt. Die insbesondere für die Messungen mit den kondensierten Kryptonquelle relevanten Eckdaten sollen nun noch einmal zusammengefasst werden. Umfassende Informationen finden sich in [Thu08].

Es ergibt sich zwischen dem 18.10 und 16.11.2006 ein Maßstabsfaktor von

$$M = 1972,48016(61) : 1 \quad (3.10)$$

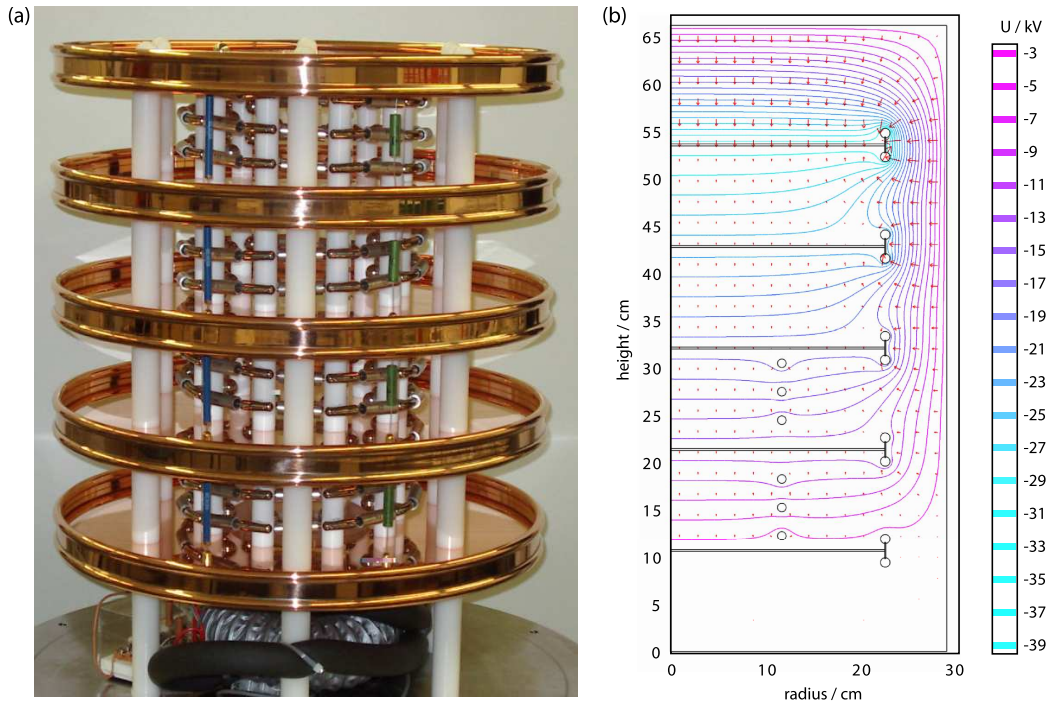
und eine relative Standardabweichung und damit eine Reproduzierbarkeit von

$$\sigma(M) = 0,31 \text{ ppm} \quad (3.11)$$

innerhalb der 27 tägigen Messphase.

---

<sup>2</sup>Die KATRIN Referenzquelle A wurde im November 2005 bei der PTB Braunschweig am Josephson-Normal auf  $U_{10V}^{ref} = 9,999979(10)V$  kalibriert. Im Jahr 2006 wurde sie erneut kalibriert auf 10,00001678(59). Diese Werte gehen in die Berechnungen der Spannungskorrekturen ein.



**Abbildung 3.5: Eine Abbildung des Präzisionsspannungsteilers [Thu08] wird hier gezeigt. Zu sehen sind in (a) die vier Ebenen aus Kupferelektroden. Innen befindet sich die Kette der Präzisionswiderstände. Diese Widerstandskette ist der primäre Teiler. Der sekundäre ohmsche Teiler wird aus Hochspannungswiderständen (blau) gebildet, die die Kupferelektroden miteinander verbinden. Die Hochspannungskondensatoren (grün) sind ebenfalls mit den Kupferelektroden verbunden und stellen den kapazitiven Teiler dar. In (b) sind simulierte Äquipotentiallinien um das Elektrodensystem gezeigt. Die oberste Kupferelektrode ist hier auf -40 kV. Jede weitere Elektrode ist um 10 kV positiver abgestuft. Die Ausbildung eines gleichmäßigen elektrischen Feldes wird in den unteren beiden Ebenen nur marginal durch Widerstandshalterungen gestört.**

Der Maßstabsfaktor unterliegt sowohl einer zeitlichen Drift von

$$\frac{1}{M} \frac{\partial M}{\partial t} = 0,604 \text{ ppm/Monat.} \quad (3.12)$$

als auch einer Spannungsabhängigkeit

$$\frac{1}{M} \frac{\partial M}{\partial U} = 0,032(6) \text{ ppm/keV} \quad (3.13)$$

ausgehend von 20 kV als Referenzwert und für einen Spannungsbereich von -8 kV bis -32kV.

Die Temperaturabhängigkeit ist auf

$$\frac{1}{M} \frac{\partial M}{\partial T} = -0,081(6) \text{ ppm/K} \quad (3.14)$$



begrenzt und die Temperatur zusätzlich auf 0,1 K stabilisiert.

Diese Eckdaten erfüllen bis auf die zeitliche Drift die KATRIN-Anforderungen.

### 3.1.2.2 Kalibrationsquellen und ihre Einsatzorte

Langzeitdriftverhalten und mögliche Irregularitäten im kürzeren Zeitfenster sind bei elektronischen Bauteilen nicht grundsätzlich auszuschließen. Die Langzeitdrift des Spannungsteilers wurde in [Thu08] auf 0,6 ppm/Monat (s. auch Glg. (3.12)) bestimmt. Diese Drift ist zu groß über die Gesamtmesszeit von KATRIN. Um sie nachträglich korrigieren zu können, sind weitere redundante Messungen der Drift nötig. Die KATRIN-Spannungskontrolle wird sich deshalb nicht allein auf die elektronische Kontrolle der Retardierungsspannung beschränken, sondern sie wird durch die Verwendung von Kalibrationsquellen und einen zweiten Spannungsteiler ergänzt.

Letztlich muss die Potentialdifferenz zwischen dem Tritiumzerfallsort zum Zeitpunkt des Zerfalls in der WGTS zum Passageort und -zeitpunkt über die Analysierebene eingrenzbar bleiben auf die geforderten 3,3 ppm bzw. 60 meV. Überprüfbar wird dies nicht mit einer einzelnen Messung, sondern nur mit einer Reihe von Messungen mit unterschiedlichen Kalibrationsquellen an mehreren Einsatzorten innerhalb des KATRIN-Experiments.

#### 1. $^{83m}\text{Kr}$ -Gas als Beimischung in der WGTS

Die Potentialvariation in der Quelle ließe sich am besten mit einer omnipräsenten aber nicht interagierenden Beimischung zum gasförmigen Tritium erreichen. Hierfür kommt also im wesentlichen ein inertes Gas in Frage, dessen Wechselwirkung auf zusätzliche Streuungen weitestgehend reduziert bleibt. Hierzu kann beigemischt  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas in der WGTS bei allerdings erhöhter Betriebstemperatur verwendet werden. Messungen mit einer solchen Kalibrationsquelle im Hauptstrahlengang bedeutet eine so erhebliche Störung des Tritiummessbetriebs, sodass eine permanente synchrone Überwachung hier nicht möglich ist, und so eine exakte Überprüfung der Potentialbedingung in der WGTS also auf Messpausen beschränkt bleibt<sup>3</sup>.

#### 2. Kalibrationsquelle in der CPS

Mit einer monoenergetischen Quelle mit einer Energie im Endpunktsbereich des Tritium- $\beta$ -Spektrums und mit bekannter Winkelverteilung außerhalb der WGTS, lässt sich die Transmissionsfunktion des Hauptspektrometers inklusive ihrer Ortsabhängigkeit vermessen. Dies kann mit einer Konversionselektronenquelle mit Elektronen im 20 keV-Bereich, aber auch mit niederenergetischen Photoelektronen, die aus metallischem Material auf erhöhtem Potential ausgelöst werden [Val09], geschehen. Eine Konversionselektronenquelle mit natürlich

---

<sup>3</sup>Nur die Variation des Spektrumendpunkts kann über mögliche Fluktuationen in Hauptstrahlengang während der Tritiummessungen Aufschluss geben.

stabilen Elektronenenergien von  $\approx 20$  keV ist aber gleichzeitig sensitiv auf die Stabilität der Hochspannung und der Oberflächeneigenschaften des Quellsubstrats und der Filterelektroden.

Eine radioaktive Quelle in der Hauptstrahlführung des KATRIN-Experiments muss allerdings kurze Halbwertszeiten aufweisen, um eine Langzeitkontamination des Hauptspektrometers sicher ausschließen zu können. Diese Bedingung ist nur mit einer kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle erfüllt, deren Prototyp in dieser Dissertation aufgebaut und getestet wurde. Die Anforderungen an die Stabilität ist hierbei auf die Zeit zum Ausleuchten aller Detektorpixel gegeben, und skaliert deshalb bei kleiner Quelle mit deren Anzahl und deren noch messbaren Ereignisraten von bis zu  $10^5 \text{ s}^{-1}$ .

### 3. Kalibrationsquelle in HV-Monitorspektrometer

Die angelegte Spannung lässt sich synchron mit Kalibrationsquellen überprüfen, indem man außerhalb der Hauptstrahlführung in einem zweiten Spektrometer eine Kalibrationsquelle vermisst. Irregularitäten der elektronischen Spannungsmessung fallen hier als Verschiebungen und Verschmierungen der Linienposition heraus. Eine Kalibrationsquelle im Monitorspektrometer muss energetisch stabil sein. Ihre Halbwertszeit darf im Gegensatz zum Einsatzort am Hauptspektrometer lang sein, da geringe Kontaminationen des Monitorspektrometers akzeptabel sind. Als Kalibrationsquelle besteht hier wieder die Möglichkeit eine kondensierte  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle einzusetzen. Daneben ist aber auch die Verwendung einer Quelle aus dem Rb-Mutterisotop auf Raumtemperatur mit seiner längeren Halbwertszeit ( $T_{1/2}=86\text{d}$ ) einsetzbar.

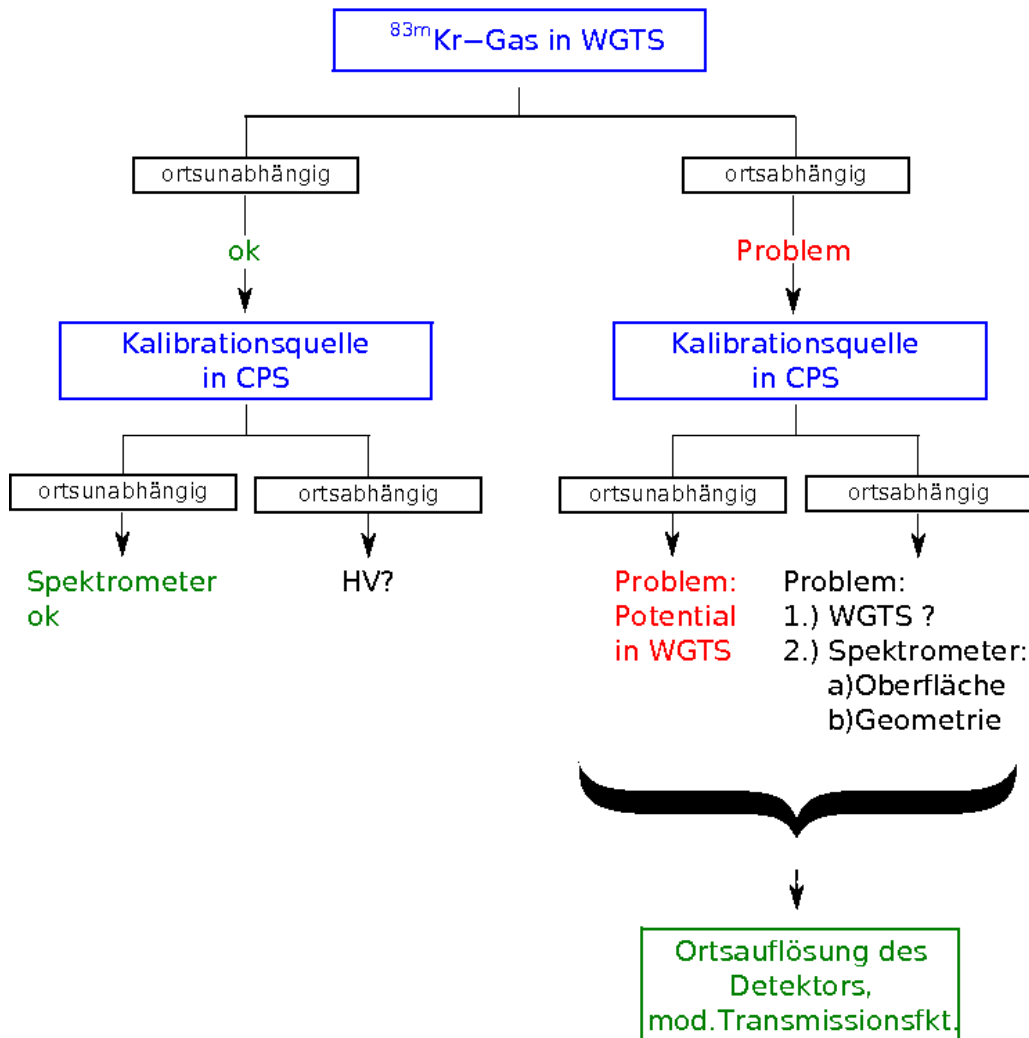
Die Wirkungsweise der verschiedenen Kalibrationsquellen soll jetzt im folgenden erläutert werden.

- **Räumliche Stabilität im Spektrometer**

Zur Kontrolle von ortsabhängigen Abweichungen des Potentials (s. Abb. 3.6) kann eine Kombination aus  $^{83m}\text{Kr}$ -Gasquelle in der WGTS und einer beweglichen Kalibrationsquelle in der CPS oder Elektronenkanone dienen. Die  $^{83m}\text{Kr}$ -Gasquelle ist sensitiv auf räumliche Abweichungen des Quellpotentials und gleichzeitig auf räumliche Abweichungen im Hauptspektrometer. Eine Kalibrationsquelle in der CPS ist nur auf die Abweichungen am Hauptspektrometer empfindlich. Ist diese Quelle justierbar, so entfällt jede weitere Abhängigkeit von den lokalen Quelleigenschaften. Sowohl Abweichungen in der WGTS als auch im Hauptspektrometer können mittels der Ortsauflösung des Detektors und einer entsprechenden Modifikation der Transmissionsfunktion anhand der Daten von den Kalibrationsquellen korrigiert werden. Diese Kontrolle ist nur in Tritiummessphasen möglich. Einblicke während der Tritiummessphasen beschränken sich auf die Beobachtung des Endpunkts des Tritium- $\beta$ -Spektrums.

- **Zeitliche Stabilität zwischen den Tritiummessphasen**

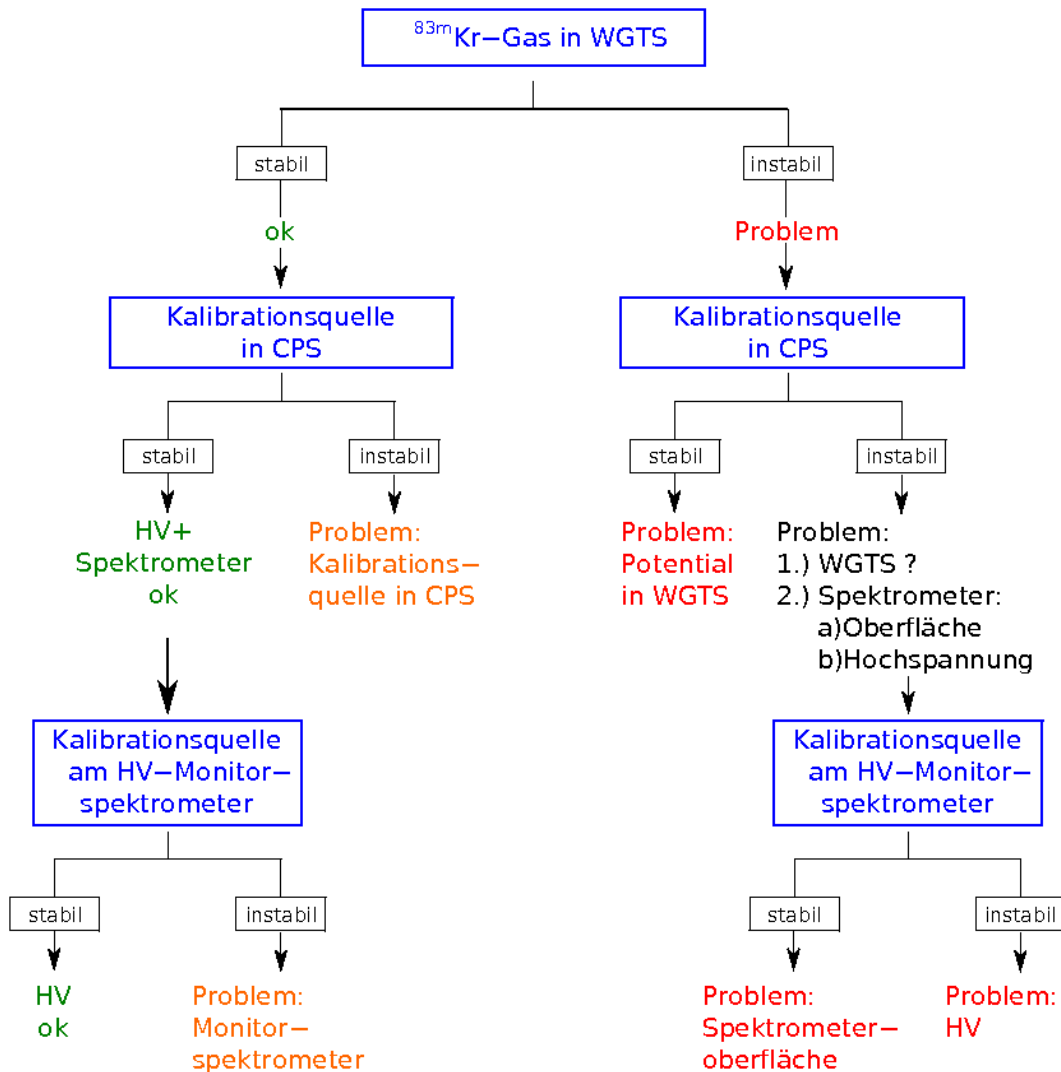
Zur Kontrolle von zeitlichen Driften zwischen den Tritiummessphasen müssen alle Kalibrationsquellen frei von Instabilitäten sein. Zwischen den Messphasen



**Abbildung 3.6:** Ein Flussdiagramm zur Kontrolle der räumlichen Stabilität bzw. der Transmissionsfunktion des KATRIN-Aufbaus wird hier dargestellt. Der rechte Arm gilt in dem Fall, wenn das Tritiumsignal frei von Rauschen ist. Im linken Arm wird eine Instabilität der Tritiumdaten angenommen. Mittels der Kalibrationsquellen, können dann die ortsabhängigen Potentialverhältnisse bestimmt werden und die Transmissionsfunktion angepasst werden. Weitere Erläuterung finden sich im Fließtext.

kann  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas dem Tritium in der WGTS beigemischt werden (s. Abb. 3.7). Ist das Konversionselektronensignal stammend aus der WGTS stabil, so wird davon ausgegangen, dass die Tritiummessdaten frei von zusätzlichen Fluktuationen sind. Ist dem nicht so, kann das Problem mit den weiteren Kalibrationsquellen identifiziert werden. Rechter Arm in Abb. 3.7: Wenn das Signal der gasförmigen  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle in der WGTS Instabilitäten zeigt, dann bedeutet das, dass die Tritiummessdaten nicht frei von Fluktuationen sind<sup>4</sup>. Eine Kali-

<sup>4</sup>Es wird in diesem Diagramm, hier davon ausgegangen, dass die Stabilität der Kalibrationsquelle selbst hinreichend gesichert ist.



**Abbildung 3.7:** Ein Flussdiagramm zur Kontrolle der zeitlichen Stabilität des KATRIN-Aufbaus wird hier dargestellt. Der linke Arm gilt in dem Fall, wenn das Tritiumsignal frei von Fluktuationen ist. Dann ergibt sich die Möglichkeit die Kalibrationsquellen auf ihre eigene Stabilität hin gegen zu kontrollieren. Im rechten Arm wird eine Instabilität der Tritiumdaten angenommen. Mittels der Kalibrationsquellen, kann dann nach der Ursache geforscht und diese minimiert werden. Weitere Erläuterung finden sich im Fließtext.

brationsquelle in der CPS dient dann der Identifikation der Ursache der Instabilität. Ist ihr Signal stabil, so ist die Instabilität auf die WGTS zurückgeführt, ist es aber ebenfalls instabil, muss von einem Problem im Hauptspektrometer ausgegangen werden. Entweder hat sich die Oberfläche der Filterelektroden in Reinheit oder Geometrie geändert oder die HV-Messung ist Ursache für die Störung<sup>5</sup>. Eine zusätzliche Störung in der WGTS kann hier nicht ausgeschlossen werden und nur bei stabilem Spektrometer untersucht werden. Mit einer

<sup>5</sup>Vorrauss. ist wieder, dass Kalibrationsquelle selber stabil ist.

Kalibrationsquelle im HV-Monitorspektrometer kann ein Problem am Hauptspektrometer analysiert werden. Zeigt sie ein stabiles Signal, so muss die Ursache an den Filterelektroden im Hauptspektrometer liegen, fluktuiert es aber gleichfalls, deutet dies auf ein Problem in der HV-Auslese hin. Fluktuieren die Linien sowohl am Hauptspektrometer als auch am Monitorspektrometer und das darüberhinaus auf unterschiedliche Weise, so deutet das auf eine Änderung der Austrittsarbeiten der Quellsubstrate oder Filterelektroden.

Linker Arm in Abb. 3.7: Wenn das Signal der gasförmigen  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle in der WGTS stabil ist, kann zusätzlich mit einer Kalibrationsquelle in der CPS gemessen werden. Zeigt diese Instabilitäten, bedeutet dies zunächst kein primäres Problem für die Tritiumdaten, zieht aber die Kalibrationsquelle in Zweifel. Ist die Kalibrationsquelle in der CPS ebenfalls stabil, kann eine weitere Quelle im HV-Monitorspektrometer auf ihre Stabilität überprüft werden. Ist sie stabil, so liegt kein Problem mit der Hochspannung vor, zeigt diese Linie eine Verschiebung so liegt lediglich ein Problem am Monitorspektrometer<sup>6</sup> vor. Damit wird die HV-Kontrolle in Frage gestellt.

- **Permanente HV-Kontrolle am Monitorspektrometer**

Im Gegensatz zu den Unsicherheiten bezüglich der effektiven Potentialverteilung in WGTS und Hauptspektrometer, die im wesentlichen nur in Tritiummesspausen kontrollierbar sind, kann die angelegte Hochspannung nahezu kontinuierlich und damit auch synchron zu den Tritiummessphasen stattfinden. Dazu ist nur in einer Minimalkonfiguration eine Kalibrationsquelle am HV-Monitorspektrometer nötig. Im Fall, dass es keine Fluktuationen und Driften gibt, ist dies ausreichend. Sobald solche aber hinzukommen, kann nur über weitere Gegenkontrollen entschieden werden, wo die Ursache für die Instabilität kommt. Notwendige weitere Redundanzen sind im größeren Zeitfenster der Endpunkt der Tritiumspektrums und die Kalibrationsquellen in der Hauptstrahlführung in WGTS und CPS.

Im Rahmen dieser Arbeit sollte die Aufgabe erfüllt werden, eine langzeitstabile Kalibrationsquelle für den Einsatz in CPS und im HV-Monitorspektrometer zu entwickeln und zu testen. Anforderungen an eine solche Quelle sind:

- $\approx 18$  keV Elektronen mit einer Stabilität von 3 ppm
- kurze Halbwertszeit und Langzeitstabilität

Als nahezu ideale Quelle bietet sich hierfür  $^{83m}\text{Kr}$  an, welches Konversionselektronen emittiert. Die Anregungsenergie des Kryptonkerns, die zur Emission der Konversionselektronen führt, ist eine natürliche zeitlich nicht veränderliche Größe. Wenn auch ihr Absolutwert nur auf 0,5 eV bekannt ist, spielt das für KATRIN keine tragende Rolle, da nicht eine Absolutkalibration, sondern nur eine Präzisionsmessung zur Bestimmung der Neutrinomasse nötig ist.  $^{83m}\text{Kr}$ -K-Konversionselektronen liegen

<sup>6</sup>z.B. eine Verschiebung der Austrittsarbeit der Filterelektroden

mit 17,8 keV etwas unterhalb des Tritiumendpunktes und zeigen eine Breite von 2,7 eV [Cam01]. Sie einen damit die Forderung nach hoher Energie und hoher Stabilität.

$^{83m}\text{Kr}$  hat eine kurze Halbwertszeit von 1,83 h. Damit ist einerseits eine dauerhafte Kontamination der Hauptspektrometers ausgeschlossen, andererseits muss für die geforderte Langzeitstabilität eine Prozedur entwickelt werden, bei der  $^{83m}\text{Kr}$  kontinuierlich nachgespeist und lokal gespeichert wird, ohne die Stabilität der Linie zu beeinträchtigen. Ersteres kann im Falle von  $^{83m}\text{Kr}$  durch die Verwendung des Mutterisotops  $^{83}\text{Rb}$  mit  $T_{1/2}=86,2$  d erfolgen. Die lokale Speicherung wurde in dieser Arbeit durch Kondensation bei Tieftemperatur bewerkstelligt. Kondensiert man das Edelgas auf ein Substrat, so kann es durch diesen Prozess aber zu Destabilisierungen der Konversionselektronenenergie kommen. Oberflächen- und Grenzflächeneigenschaften des Substrats sowie Verunreinigungen durch Adsorption und Chemisorbtion von Restgas treten als weitere Unsicherheiten hinzu.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Aufbau entwickelt, an dem verschiedene  $^{83m}\text{Kr}$ -Filmpräparationen auf HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) auf Stabilität der K-Konversionselektronen hin untersucht werden konnten.

## Kapitel 4

# Die Energie der Konversionselektronen

### 4.1 Konversionselektronen freier Atome

Die Relaxation eines angeregten Kerns kann über Aussendung von  $\gamma$ -Strahlung erfolgen, aber auch über den konkurrierenden Prozess der internen Konversion. Ein angeregter Kern hat dabei die Möglichkeit mit seinen Hüllenelektronen elektromagnetisch wechselzuwirken. Seine Anregungsenergie wird dabei auf ein oder mehrere Hüllenelektronen übertragen, sodass diese den Atomverband verlassen können oder in einen angeregten Zustand übergehen können<sup>1</sup>.

Werden Elektronen aus der Hülle von freien Atomen mit der Konversionsenergie  $E_\gamma$  herausgelöst, bleibt ihnen im einfachsten Fall die Überschussenergie zur kinetischen Bewegung.

$$E_{kin} = E_\gamma - E_B^{vak} \quad (4.1)$$

mit

$E_{kin}$ : kinetische Energie der Konversionselektronen

$E_\gamma$ : Kernanregungsenergie

$E_B^{vak}$ : Bindungsenergie bzgl. des Vakuums

Werden nur einzelne Hüllenelektronen einer Schale herausgelöst, so sind deren Energien quasimonoenergetisch. Die Breite der Linie setzt sich aus den Verbreiterungen aufgrund der unterschiedlichen Lebensdauern der beteiligten Niveaus nach der Heisenberg'schen Unschärferelation zusammen<sup>2</sup>. Werden bei der Elektronenemission zusätzlich Hüllenelektronen aus höheren Schalen angeregt (Shake-Up-Prozess) entstehen energetisch niedrigere aber wieder monoenergetische Elektronen. Begleitende

---

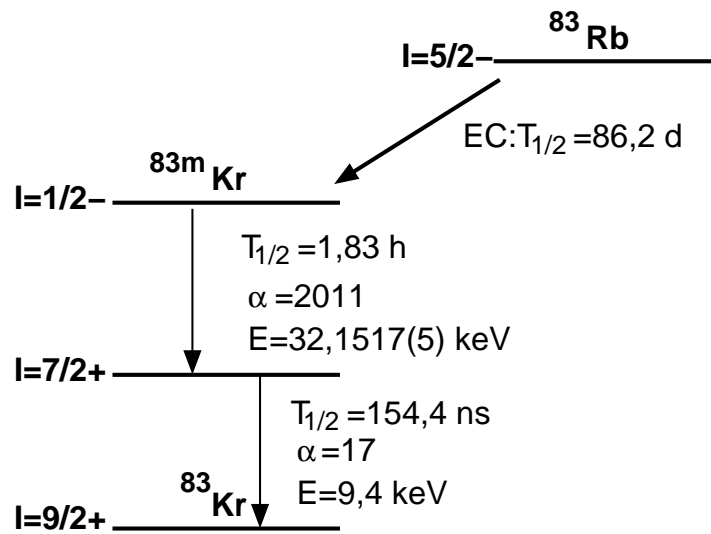
<sup>1</sup>Bei höheren Energien bleiben natürlich noch die Zerfallskanäle der Nukleonemission, Elektron-Positronpaarbildung, oder Mehrfachprozesse höherer Ordnung.

<sup>2</sup>In dem Fall von  $^{83m}\text{Kr}$  bedeutet das eine Linienbreite, gemäß der Lebensdauer der Lochzustände, die kleiner als 150 ns betragen.

Shake-off Elektronen, also Anregungen ins Kontinuum (Ionisation) führen zu einem kontinuierlichen Energiespektrum. Die Bindungsenergie des Valenzelektrons liegt mit K-Loch noch bei 23,6 eV [Car73] und ist damit deutlich getrennt von der Energie bei einfacher Ionisation. Eine systematische Vermessung des  $^{83m}\text{Kr}$ -Spektrums findet sich bei [Pic92b].

Die Relaxation des Lochzustandes kann zu Auger-Elektronen führen, wobei ein Hüllenelektron aus einer äußeren Schale zunächst ein Inner-Schalen-Loch auffüllt und die gewonnene Bindungsenergie einem anderen Hüllenelektron abgibt, welches in der Folge den Atomverband verlässt. Diese Elektronen sind wieder monoenergetisch.

Basis der Berechnungen bildet die "Sudden Approximation" Annahme. Bei dieser Herangehensweise wird der Prozess in zwei Stufen zerlegt: 1. Inner-Schalen-Loch-Bildung, 2. resultierende Anregung oder Ionisation der Hüllenelektronen. Die Konfiguration der Hüllenelektronen hängt unter dieser Annahme also nicht von dem Prozess der Inner-Schalen-Loch-Bildung ab. In [War91] wurde die Gültigkeit der Sudden Approximation, also der Unabhängigkeit des Spektrums von dem Erzeugungsmechanismus der Primärionisation, im Falle von Krypton untersucht und bestätigt: Die Krypton-K-Schalenspektren nach Photoionisation entsprechen denen des Konversionsprozesses.



**Abbildung 4.1:** Das Zerfallsschema von  $^{83m}\text{Kr}$  ist hier dargestellt.  $^{83m}\text{Kr}$  entsteht über Elektroneneinfang des Mutterisotops  $^{83}\text{Rb}$ . Der isomere Zustand zerfällt in einem zweistufigen Prozess. Die Konversionskoeffizienten  $\alpha$  sind im Zerfallsschema angegeben.

Kryptonkonversionselektronen entstehen beim Zerfall von  $^{83m}\text{Kr}$  in den stabilen Grundzustand. Der isomere Zustand des Kryptons entsteht zu 77,6 % über Elektroneneinfang aus dem Isotop  $^{83}_{37}\text{Rb}$ . Die Abbildung 4.1 zeigt das Zerfallsschema. Der isomere Kryptonzustand liegt bei 41,5 keV. Der Zerfall in den Grundzustand findet über ein Zwischenniveau bei 9,4 keV statt. Der erste Übergang von  $I=1/2^-$  nach  $I=7/2^+$  hat eine Zerfallssenergie von 32,1517(5) keV [Ven06] und einen Konversionskoeffizienten von  $\alpha=2011$ [Rös78], der zweite von  $I=7/2^+$  nach  $I=9/2^+$  von 9,4059(8)keV



[Pic92b] und einen Konversionskoeffizienten von  $\alpha=17$  [Rös78]. Die Halbwertszeit des 41,55 keV-Niveaus beträgt 1,83 h, die des 9,4 keV Niveaus nur 154,4 ns [Nuc01].

## 4.2 Konversionselektronen gebundener Atome

$^{83m}\text{Kr}$  ist ein kurzlebige Gas. Um die Energie der entstehenden Konversionselektronen zu vermessen, muss entweder eine aufwändige Gasquelle konzipiert werden oder die Quellatome müssen räumlich fixiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Konzept einer kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle auf die Tauglichkeit für eine Kalibrationsquelle des KATRIN-Experiments untersucht.

Im Experiment kommt es dabei zu Einflüssen auf die gemessene Elektronenenergie. Zum einen muss betrachtet werden, wie die Elektronen, an die angelegte Filterspannung gekoppelt werden, andererseits müssen Änderungen der Bindungszustände zwischen Anfangs- und Endzustand des Konversionsprozesses berücksichtigt werden.

### 4.2.1 Kontaktpotentiale

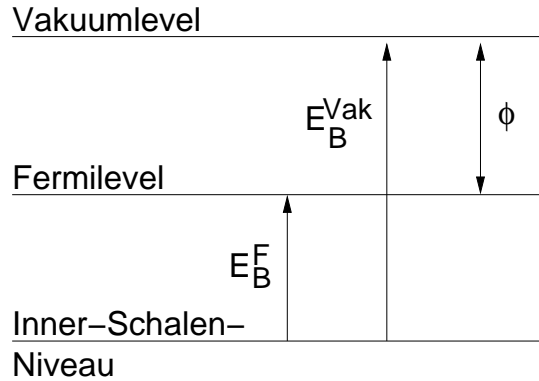
Soll ein Elektron aus dem Innern eines Kristalls herausgelöst werden, muss es zunächst die Bindungsenergie seines Orbitals bis zur Fermikante und zusätzlich die Austrittsarbeit des Materials überwinden, um ins Vakuum zu gelangen (s. Abb. 4.2).

Die zusätzliche Hürde der Austrittsarbeit entsteht dadurch, dass sich durch die abrupte Änderung der Ladungsdichte der Ionenrümpfe an der Oberfläche die Elektronen des Kristalls an diese Ladungsverteilung anpassen. An der Oberfläche eines Materials entsteht so ein resultierender Oberflächendipol. Das elektrostatische Potential für Elektronen weit im Vakuum ist demzufolge größer als tief im Kristall. Die Austrittsarbeit einer Kristalloberfläche ist definiert als die minimale Energie, die benötigt wird, um ein Elektron aus dem Bulk heraus in eine makroskopische Distanz zur Oberfläche zu bringen. Gemessene Austrittsarbeiten aller Elemente liegen bei  $\Phi=3,5 \pm 1,5$  eV [Zan88]<sup>3</sup>.

Als Kontaktpotential wird die Differenz der Austrittsarbeiten zweier Materialien bezeichnet. Sind zwei unterschiedliche Metalle elektrisch leitfähig verbunden, so setzt ein Elektronenfluss hin zu dem Leiter mit der größeren mittleren Austrittsarbeit ein. So werden die Fermilevel beider Materialien ausgeglichen. Trennt man beide Leiter, so entsteht abhängig von dem Kontaktpotential ein elektrisches Feld zwischen beiden Oberflächen, welches die kinetische Energie eines Elektrons auf dem Weg von einer Materialumgebung in die andere beeinflusst. Dieser Material- und Oberflächenabhängige Term muss bei Präzisionsmessung von Elektronen aus einer adsorbierten Konversionselektronenquelle mit einem elektrostatischen Filter berücksichtigt werden.

---

<sup>3</sup>Die Austrittsarbeit  $\Phi$  wird im folgenden nach häufig anzutreffender Konvention in eV angegeben, auch wenn der griechische Buchstabe auf eine Potentialdifferenz schliessen lassen könnte.



**Abbildung 4.2:** Die Austrittsarbeit ist die Differenz der Energieschwelle, die ein Elektron überwinden muss, um den Materialverband zu verlassen, d.h. zu der Energieschwelle, die es vom Fermi-niveau trennt.

Man könnte annehmen, dass die Austrittsarbeit des Quellsubstrats  $\Phi_{sub}$  keinen Einfluss auf die gemessene Elektronenenergie nimmt. Die Austrittsarbeit des Substrats

$$\Phi_{sub} = E_B^{Vak} - E_B^F \quad (4.2)$$

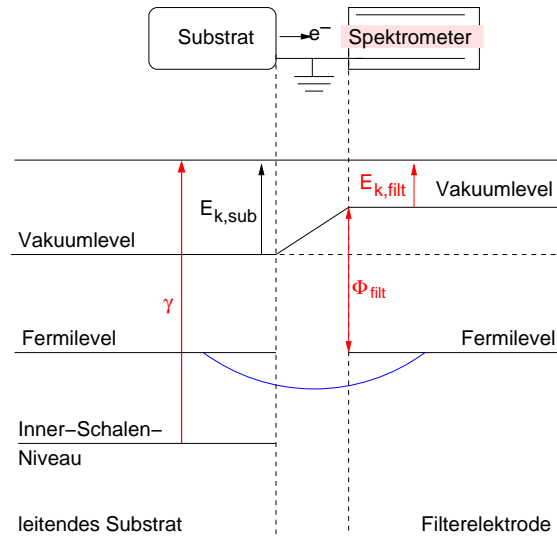
mit

$E_B^{vak}$ : Bindungsenergie bis zum Vakuumniveau und

$E_B^F$ : Bindungsenergie bis zum Fermi-niveau,

selbst lässt sich durch eine elektrostatische Analyse von Elektronen, die durch Ionisation aus dem Substratmaterial entstanden sind, ja auch nicht ermitteln [Ege86]. Wenn die Elektronen aus einem elektrisch mit den Filterelektroden verbundenen Leiter herausgelöst würden, so könnten Fluktuationen der Austrittsarbeit dieses leitenden Substrats die kinetische Energie der Elektronen in der Umgebung der Filterelektroden  $E_{k, filt}$  nicht beeinflussen (s. Abb. 4.3). Wie groß die Energiedifferenz bis zur Materialgrenze, also die kinetische Energie nach Verlassen des Materials  $E_{k, sub}$ , ist spielt keine Rolle, sobald das Elektron das Vakuum erreicht hat. Das Elektron bewegt sich in der Folge im Vakuum von der Quellumgebung in die Spektrometerumgebung mit den Filterelektroden. Die Austrittsarbeit der Filterelektroden  $\Phi_{filt}$  im Spektrometer modifiziert das Retardierungspotential aber direkt, da dort die aktuelle kinetische Energie  $E_{k, filt}$ , also die energetische Differenz zur Materialgrenze, in Richtung des angelegtes elektrischen Retardierungsfeldes die endgültige Messgröße ist. Die kinetische Energie  $E_{k, filt}$  ergibt sich in diesem Fall zu:

$$E_{k, filt} = E_\gamma - E_B^F - \Phi_{filt} \quad (4.3)$$

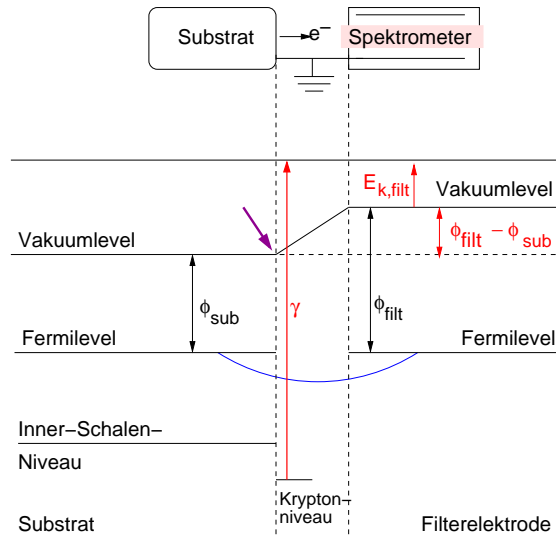


**Abbildung 4.3: Der Einfluss der Austrittsarbeiten bei leitender Quelle** ist hier dargestellt. Die Fermi-niveaus zweier miteinander kontaktierter leitender Materialien, hier von Quelle und Filterelektrode, gleichen sich aneinander an. Im Bild ist in blau diese Kopplung eingezeichnet. Quellhalter und Filterelektrode sind in der schematischen Skizze geerdet. Elektronen, die aus der Hülle der Quelle mit einer Energie  $\gamma$  ausgelöst werden, und haben gemäß Glg. (4.1) eine kinetische Energie im Vakuum außerhalb der Quelle  $E_{k,sub}$ . Vermisst man ihre Energie elektrostatisch mit den Filterelektroden, so spielt aber nur die kinetische Energie über den Filterelektroden  $E_{k,filt}$  eine Rolle. Diese Energie wird bei der Filteranalyse mit dem elektrostatischen Potential zur Auslöschung gebracht, und ist so die Messgröße.

In dieser Arbeit werden aber Elektronen untersucht, die aus einer inneren Schale eines adsorbierten Kryptonatoms herausgelöst werden. Beim Kontakt von isolierendem Edelgas und Graphit kommt es zu keinem ausgleichenden Elektronenfluss, da die Kryptonelektronen nicht frei beweglich sind. Statt einer Nivellierung der Fermi-niveaus kommt es so zu einem Ausgleich der Vakuumniveaus (s. Abb. 4.4). Durch die Ankopplung über das Vakuumniveau ist die Vermessung der kinetischen Energie ionisierter Elektronen aus Edelgasadsorbaten also sehr wohl sensitiv auf die Austrittsarbeit des Substrats<sup>4</sup>. Die Kopplung von Edelgasadsorbaten an das elektrische Potential des Substrats und die Einflüsse der Kopplung auf die Bindungsenergien der Edelgashüllenelektronen wurden insbesondere von Wandelt et al. in 80er Jahren untersucht und die Ergebnisse wurden in [Ege86] zusammengefasst. Dort finden sich eine Reihe von Ergebnissen bezüglich der Austrittsarbeit des Substrats und den Bindungsenergien von Innerschalenniveaus von Edelgasen. Die Untersuchungen wurden mit dem  $5p_{1/2}$  Zustand von Xe auf Pd durchgeführt<sup>5</sup>. In der Summe der jeweiligen Austrittsarbeiten ohne Edelgasbelegung bedingt durch unterschiedliche Kristallorientierungen und den bestimmten Bindungsenergien  $E_B^F$  von kondensiertem Xenon ergibt sich beispielsweise für Pd(111), Pd(100), Pd(110) ein annähernd gleicher Wert

<sup>4</sup>s.a. PAX- photoemission from adsorbed xenon [Küp79]

<sup>5</sup>Es handelt sich hier also um kein wirkliches Innerschalenniveau, was aber dennoch einige Ähnlichkeit mit Innerschalenniveaus aufweist.



**Abbildung 4.4: Der Einfluss der Austrittsarbeit bei isolierendem Adsorbat** ist hier dargestellt. Im Bild sind Quellhalter und Filterelektrode wieder miteinander leitend verbunden. Dadurch werden wieder die Fermi-niveaus von Quellunterlage und Filterelektrode angeglichen (blau). Das aufkondensierte  $^{83m}\text{Kr}$  koppelt als Isolator an das Vakuumniveau der Quellunterlage (magenta). Der Referenzwert für die  $^{83m}\text{Kr}$ -Linien ist damit abhängig von der Austrittsarbeit der Quellunterlage  $\Phi_{sub}$ . Die kinetische Energie der Elektronen im Vakuum bezüglich des gemeinsamen Fermi-niveaus von Quellhalter und Filterelektrode variiert mit der Austrittsarbeit des Quellhalters. Die Elektronen werden im Vakuum über den elektrostatische Potentialberg im Spektrometer geführt. Wie auch in Abb. 4.3 wird die Elektronenenergie analysiert, indem die kinetische Energie über den Filterelektroden  $E_{k, filt}$  mit dem angelegten Potential ausgelöscht wird. Die Messung ist wieder sensitiv auf die Austrittsarbeit der Filterelektroden  $\Phi_{filt}$ . Beide Austrittsarbeiten, die des Quellhalters  $\Phi_{sub}$  und die der Filterelektroden  $\Phi_{filt}$  müssen also berücksichtigt werden.

von  $12,35(12)$  eV [Ege86]. Die Austrittsarbeiten der reinen Oberfläche unterscheiden sich dagegen um bis zu  $0,75$  eV voneinander. Damit zeigen sich die Bindungsenergien bis zum Vakuumniveau  $E_B^{vac}$  eines Edelgases weitestgehend unbeeinträchtigt von den unterschiedlichen Bindungsplätzen. Die zitierten Angaben haben allerdings nur eine Genauigkeit von  $120$  meV. Für KATRIN bereits empfindliche Verschiebungen, die hier noch im Fehler verschwinden, sind also dennoch möglich.

Verschiebungen der Bindungsenergien von Innerschalen-Edelgasniveau zum Fermi-niveau des Substrats lassen sich also auf Veränderungen der Austrittsarbeit zurückführen. Eine Verkleinerung der Bindungsenergie eines Innerschalen-Elektrons relativ zum Fermi-niveau des Spektrometers, also eine Vergrößerung der Austrittsarbeit des Substrats, kommt einer Vergrößerung der kinetischen Energie von Konversionselektronen im Spektrometer gleich.

Könnte man neben der Stabilität der Konversionselektronen von  $^{83m}\text{Kr}$  parallel die Stabilität von Elektronen aus dem Substratmaterial nachweisen, ließe sich der Einfluss der Austrittsarbeit des Substrats identifizieren. Die Bindungsenergien von  $1s$  Orbital von Graphit liegen bei  $284,7$  eV und haben eine Breite von  $0,75$  eV [Got84], und wären also nur mit Röntgenstrahlen anregbar. Für den Nachweis der Elektronen

wäre eine Nachbeschleunigung am Detektor nötig.

Die kinetische Energie der Elektronen aus Glg. (4.1) wird also durch folgenden Term vom Spektrometeraufbau unter Vernachlässigung jeder Distanzabhängigkeit modifiziert:

$$\Delta E_{kin} = -(\Phi_{filt} - \Phi_{sub}) \quad (4.4)$$

Die Filterelektroden bestehen aus Edelstahl. Ihre Austrittsarbeit wird mit Messungen von [Pic92b] abgeschätzt. Hier wurde HOPG (Highly Oriented Pyrolythic Graphite) als Substrat verwendet. Austrittsarbeiten für HOPG variieren in der Literatur [Pel] stark: 4,5 eV [Wil], 4,65 eV [Sch00], 4,8 eV [Shi00], 4,4 eV [Ago]. Es wird der Mittelwert hieraus verwendet.

Für die Austrittsarbeiten gilt:

$$\Phi_{HOPG} = (4,57 \pm 0,16)eV \quad (4.5)$$

$$\Phi_{Edelstahl} = (4,4 \pm 0,2)eV [Pic92b] \quad (4.6)$$

Die Differenz der Austrittsarbeiten ergibt sich damit zu  $-0,17(26)$  eV.

Durch die Abhängigkeit der kinetischen Energie der Konversionselektronen im Spektrometer von der Oberflächenbeschaffenheit des Substrats, müssen sowohl die Oberflächenorientierung, -planarität und Belegung mit Koadsorbaten berücksichtigt werden. Die Austrittsarbeit wird bei einer Festkörperoberfläche i.a. theoretisch in einen Oberflächen- und einen Bulkterm aufgeteilt.

$$\Phi = D - \mu \quad (4.7)$$

Wobei  $\mu$  das chemische Potential darstellt und D den entgegenwirkenden Beitrag einer Oberflächendipolschicht. Diese lässt sich mit dem Jellium-Modell dadurch beschreiben, dass sich frei bewegliche Elektronen so gruppieren, dass sie die abrupte Ladungskante der feststehenden Ionenrümpfe an der Oberfläche ausgleichen und in Form von Friedel-Oszillationen über die Ionenkante hinausragen [Zan88]. Während der Bulkterm weitestgehend als konstant angenommen werden kann, ist der Oberflächenterm D anfällig für Veränderungen. Bei nicht planaren Oberflächen, d.h. bei monoatomaren Stufen ergibt sich wieder unter der Annahme, dass sich die Elektronenwellenfunktionen bis ins Vakuum hin ausdehnen, ein zusätzlicher dem Oberflächenterm D entgegengesetzter Dipolterm. Bei HOPG führt dieser bei 2-atomigen Stufen zu einer Verringerung der Austrittsarbeit von etwa 20 meV [Som99].

Unterschiedliche Kristallorientierungen führen zu unterschiedlichen Austrittsarbeiten des unbelegten Substrats und auch zu unterschiedlichen Austrittsarbeitsveränderungen durch Oberflächenbelegungen [Ish91]. Mit der Verwendung von HOPG wird diese mögliche Variation der Linienposition weitestgehend eingeschränkt (s.a. im Abschnitt 4.2.3).

Adsorbiert oder chemisorbiert nun ein Gas auf der HOPG-Oberfläche, treten neue Ladungen hinzu, die Einfluss auf die Dipolstruktur der Oberfläche nehmen. Diese Dipolveränderung kann die Nettoaustrittsarbeit erhöhen oder erniedrigen, indem sie die Oberflächenelektronen des Substrats von den Ionenrümpfen weg oder auf sie zu bewegen. Ausschlaggebend sind letztlich die Polarisierbarkeiten von Kondensat und Substrat.

Die Austrittsarbeit des Substrats kann sowohl durch Adsorption von Krypton auf HOPG verändert werden als auch durch die Adsorption und Chemisorption von Restgas. Die Austrittsarbeiten von Metallen ändern sich um bis zu 360 meV durch die Adsorption einer vollen Monolage Krypton [Ish91]. Die Austrittsarbeitveränderungen betragen grob etwa 60 % derer durch die Belegung von Xenon <sup>6</sup>. Eine Monolage Xe auf Graphit ruft im Gegensatz zur Adsorption auf Metallen nur eine Austrittsarbeitvergrößerung von 100 meV hervor, für Krypton können also im Analogieschluss bis zu

$$\Delta\Phi_{Kr} \approx 60\text{meV} \quad (4.8)$$

erwartet werden<sup>7</sup>. Für die Konversionselektronen bedeutet das also eine Steigerung der kinetischen Energie im Spektrometer, wenn eine Monolage mit Krypton aufgefüllt wird.

Aussagen über die Veränderung der Austrittsarbeit durch die Belegung von Restgas sind schwieriger zu treffen. Krypton auf HOPG könnte sich analog zu Xe auf Ni(110) verhalten. Die Austrittsarbeit von Ni(110) wird durch die Belegung einer Monolage Xenon um 0,75 eV verkleinert. Treten zusätzlich Lagen von H<sub>2</sub>O und N<sub>2</sub> als Zwischenlagen auf, verringert sich die Austrittsarbeit weiter auf 1,1 eV [Ish91]. H<sub>2</sub>O und N<sub>2</sub> führen also zu einer Verringerung der Austrittsarbeit um 0,35 eV [Ish91], was einer Verringerung der kinetischen Energie der Konversionselektronen im Spektrometer gleichkommt.

In der Literatur finden sich einige Aussagen zu Reaktionen auf verschiedene Kodaorbate. Die wichtigsten sollen hier kurz zusammengefasst werden:

- Während Photoelektronenspektroskopie an Graphit mit oder ohne atomarem H eine Austrittsarbeit von 4,5 eV, also keine Modifikation ergaben, kam es bei der Behandlung mit H<sub>2</sub>-Plasma zu einer Erniedrigung der Austrittsarbeit um 400 meV [Ruf04]. Die H<sub>2</sub>-Moleküle chemisorbierten mit den sp<sup>2</sup>-gebundenen C-Atomen. Dies führte zu einer Rehybridisierung. Berechnungen ergaben eine Verringerung der Austrittsarbeit zwischen 0,927 eV - 1,038 eV je nach Bindungsplatz [Zha07]<sup>8</sup>. Eine Belegung mit H würde also eine Erniedrigung der K-Elektronen hervorrufen.

<sup>6</sup>was auch dem Verhältnis (63 % der Polarisierbarkeiten von Krypton ( $2,5 \cdot 10^{-3} \text{nm}^3$ ) und Xenon ( $4 \cdot 10^{-3} \text{nm}^3$ )) entspricht [Ish91].

<sup>7</sup>Das Maximum der Veränderung der Austrittsarbeit fällt nicht generell mit der Vollbelegung einer Monolage zusammen. Der Einfluss mehrerer Adsorbat induzierter Dipole kann zu einer gegenseitigen Auslöschung führen

<sup>8</sup>Eine Verwendung einer auf HOPG kondensierten <sup>83m</sup>Kr-Quelle innerhalb der WGTS ist damit ausgeschlossen.

- O hat einen sehr geringen Stickingkoeffizienten auf Graphit. Es würde aber wie auch bei C zu einer Erhöhung der Austrittsarbeit führen [Ben71]. O<sub>2</sub> physisorbiert auf HOPG. Mehrere Monolagen (ML) sind unter 30 K möglich [Ul02]. C, O und CO-Belegungen würden in Analogie zu Xe auf Pd zu Austrittsarbeitsvergrößerung führen. [Ish91]
- C<sub>x</sub>-H<sub>y</sub>- Verbindungen führten bei Xe auf Pd zu einer Austrittsarbeitsverringern. [Ish91]

Koadsorbate mit ihren Ad- und Desorbzeiten sind eine zentrale Ursache für Elektronenenergieinstabilitäten, welche nur durch sehr gute Vakuumbedingungen und Reinigungsmechanismen bekämpft werden können.

## 4.2.2 Spiegelladung-Relaxationsshift

Beim Prozess der Elektronenkonversion geht ein neutraler Anfangszustand in einen geladenen Endzustand über. Die Änderung der Bindungsenergien zwischen Anfangs- und Endzustand hat wesentlichen Anteil an der Veränderung der Konversionselektronenenergien aus gasförmigen Atomen relativ zu denen aus kondensierten Atomen.

$$E_{kin,gas} - E_{kin,kond} = \Delta E_{ini} - \Delta E_{fin} \quad (4.9)$$

Die Veränderungen  $\Delta E_{ini}$  und  $\Delta E_{fin}$  sind nicht nur relativ zwischen Adsorbat und Gas zu sehen, sondern auch relativ zueinander. Beim ungeladenen Anfangszustand tritt im Vergleich zum Gas beispielsweise die Bindungsenergie der Adsorption in Form von Van-der-Waals-Kräften hinzu. Der Endzustand ist aber auch weiterhin an das Substrat gebunden, sodass sich diesbezüglich kein weiterer Nettoenergieterm ergibt. Dies geschieht nur dann, wenn sich die Bindungsenergie durch den Konversionsprozess ändert. Die Bindungen an das Substrat werden im nächsten Abschnitt noch genauer erläutert. Bei Krypton ähnlich wie bei Xenon ist zu erwarten, dass die Innerschalenniveaus bei Physisorption außerhalb der Dipolschicht liegen. Für diese Schalen ist kein Ladungsaustausch zu erwarten.

Der Anfangszustandsbeitrag, d.h. in diesem Fall die mögliche Änderung der Bindungsenergie vor und nach der Elektronemission wird im folgenden also abgeschätzt mit (s. Abschnitt 4.2.3):

$$\Delta E_{ini} \leq 30meV \quad (4.10)$$

Die effektive Ladung des Endzustands (Lochzustand) wird durch einen weiteren Bindungsterm berücksichtigt. Im klassischen Bild baut eine Ladung gegenüber einer leitenden Oberfläche per Influenz oder Polarisation eine Spiegelladung auf [Zan88]:

$$V(z) = - \left( \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} \right) \frac{e^2}{4z} \quad (4.11)$$

mit

$z$ : Abstand zur Spiegelfläche und

$\varepsilon$ : Dielektrizitätskonstante.

Wenn der Endzustand stärker als der Anfangszustand gebunden ist, so muss diese Bindungsenergie, die nur beim Adsorbat und nicht beim Gas auftritt, den emittierten Konversionselektronen mitgegeben werden, d.h. also die resultierenden Konversionselektronen nehmen an Energie zu.

Für die Größe der zu erwartenden Verschiebung spielt neben der Polarisierbarkeit der Abstand zum Substrat eine wesentliche Rolle. Mit größerem Abstand müsste nicht nur die Verschiebung selbst kleiner werden, sondern zusätzlich die Sensitivität auf die Abstände vom Substrat reduziert werden. Allein aus Erwägungen zur Spiegelladung würde man also für eine möglichst stabile Linienposition die Adsorbat-Substrat-Distanz groß halten, z.B. durch eine Zwischenschicht mit geringer Polarisierbarkeit.

Die Spiegelladung kann generell nicht nur gegenüber dem Substrat ausgebildet werden, sondern auch zu Atommachbarn in der gleichen Ebene oder darüber.

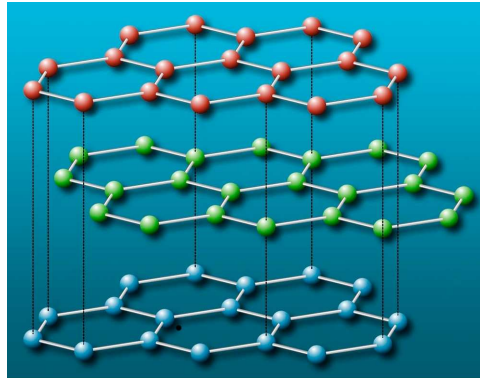
Ändert sich die Valenzschale durch den Zerfall und damit die chemischen Eigenschaften des Atoms, kann es sein, dass die Relaxationsenergie der Austrittsarbeit und Spiegelladungsenergie sich dem nun ähnelnden Element angleichen.

### 4.2.3 Bindungsenergien von $^{83m}\text{Kr}$ an HOPG

Graphit besteht aus übereinandergelagerten Schichten aus Sechsecken, die nur durch schwache van-der-Waals Kräfte gebunden sind. Durch die schwache Bindung zwischen den Schichten ist Graphit entlang der Ebenen leicht spaltbar. In der Ebene kommt es zu drei stark lokalisierten Bindungen durch die  $sp^2$ -Hybridisierung. Das vierte Valenzelektron befindet sich in delokalisierten Molekülorbitalen, die als  $p_z$ -Orbitale senkrecht aus der Ebene herausragen. Innerhalb der Ebene ist der Bindungsabstand gegenüber der C-C Einfachbindung um 10 % verkürzt auf 1,4 Å. Die Gitterkonstante innerhalb einer Ebene beträgt 2,46 Å. Die Schichtstruktur des Graphits ist in Abb. 4.5 dargestellt. Die einzelnen Schichten haben einen Abstand von 3,354 Å [Kur99].

Vor dem Einbau in die Vakuumapparatur werden die obersten Lagen des HOPG mithilfe eines Klebstreifens abgetrennt. Das Resultat ist danach eine Oberfläche mit 0,2-0,3 nm großen atomaren Stufen neben Stufen von mehreren Dutzenden Atomlagen.





**Abbildung 4.5: Kristallstruktur von Graphit** ist aus Schichten aus Sechsecken aufgebaut, die einen Abstand von  $3,35 \text{ \AA}$  zueinander haben. Zwei nächste Nachbaratome haben einen Abstand von  $1,42 \text{ \AA}$ .

Wenn ein neutrales Edelgasatom auf einem HOPG kondensiert geht es keine chemischen Bindungen ein, sondern bildet nur Van-der-Waals-Bindungen aus. Die Ladungen von Kondensat und Substrat formen sich unter Fluktuationen zu Dipolen. Diese Dipole werden von ihrer Bildladung angezogen. Bei sehr kleinen Abständen kommt es zur Abstoßung von Adsorbat und Substrat aufgrund der Überlagerung der Elektronwellenfunktionen. Formal lässt sich die Adsorptionsbindung also mit einem Lennard-Jones-Potential beschreiben.

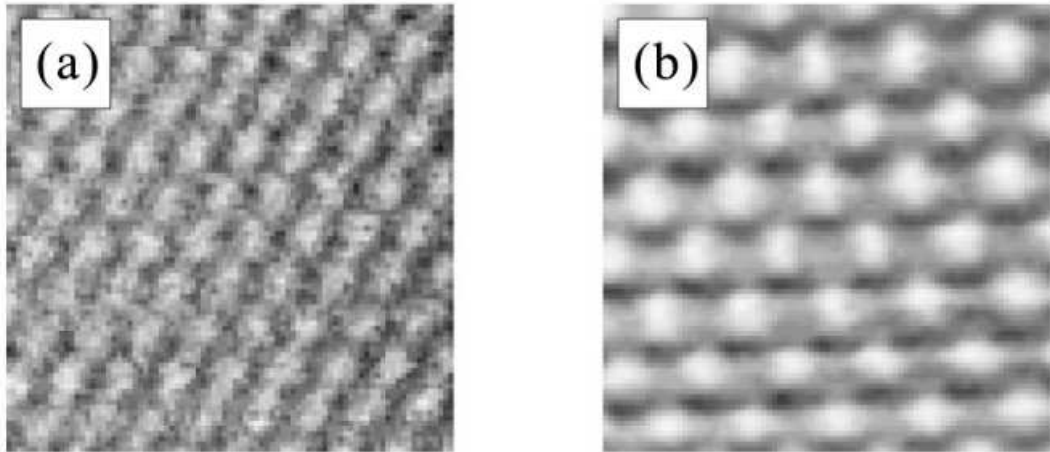
Eine alternative theoretische Herangehensweise bietet der Dichtefunktionalformalismus. Hierbei wird das System mittels einer Dichteverteilung  $n(r)$  der Elektronen beschrieben. Als weiteren Schritt wird die Lokale-Dichte-Approximation hinzugekommen, bei der infinitesimale inhomogene Dichteverteilungen mit infinitesimalen homogenen Dichteverteilungen gleichgesetzt werden.

Für das Jellium Modell werden nun die diskreten Ionenrümpfe durch eine gleichförmige positive Ladung mit der Dichte des räumlichen gemittelten Ionenladungsdichte ersetzt.

Die räumliche Verteilung der Adsorption von Krypton auf Graphit konnte experimentell bestimmt werden [Bru07]: Krypton bildet auf der Basalebene von Graphit eine  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$   $30^\circ$ -Struktur. Dies ist bei geringer Bedeckung eine kommensurable Belegung des Graphits. Bei stärkerer Belegung kommt es zum Übergang zu einer inkommensurablen Bedeckung und die Abstände der Kryptonatome nähern sich ihren Bulkabständen [Gur88]. Zunächst können sich die Kryptonatome in kommensurablen Domänen mit abgrenzenden inkommensurablen Wänden gruppieren, die Anzahl der Wände nimmt dann mit dem Druck bzw. der Bedeckung zu [Zan88].

Krypton bevorzugt bei der Adsorption auf Graphit die Talmulden vor den "top"-Positionen, d.h. es kondensiert bevorzugt über dem Zentrum des Carbonhexagons [Bru07]. Edelgase bevorzugen auf Graphit Positionen mit vielen Nachbarionen [Die04]. Die Distanz zur Graphitoberfläche wird mit  $3,35 \text{ \AA}$  angegeben, wobei die LDA-Funktionalberechnungen die Experimente bestätigen [Bru07]. Energetisch liegt der Unterschied zwischen Top- und Talmuldenposition bei  $8 \text{ meV}$ . Diffusion entlang der Oberfläche und damit Übergänge von kommensurabler Phase nach in-

kommensurabler Phase ist also auch bei niedrigen Temperaturen leicht möglich. Eine Verschiebung der Linienposition um 8 meV wäre nicht kritisch für KATRIN. Die Bindungsenergien bei Adsorption über dem Wabenzentrum des Graphits ergeben 160 meV [Che03]. Da die Kryptonatome vor und nach dem Zerfall am Substrat gebunden bleiben, kann diese Energie die Konversionselektronenenergie nicht verändern.



**Abbildung 4.6: STM-Aufnahmen** von a) HOPG und b) Krypton auf HOPG mit hoher Dichte in inkommensurabler Phase [Mat02].

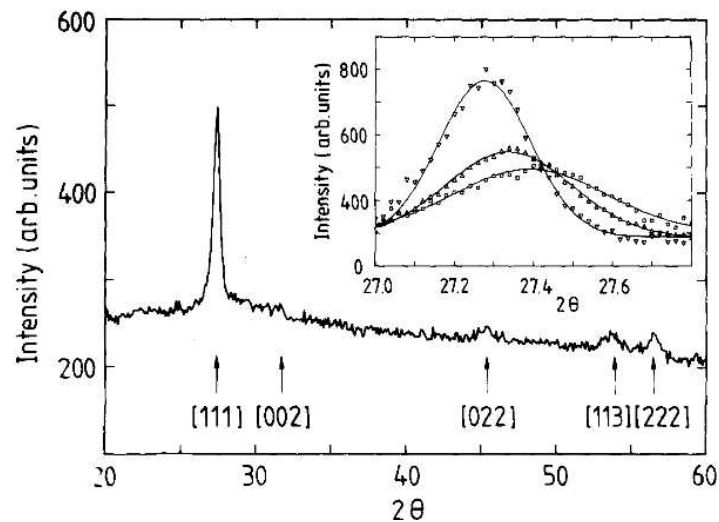
Welche Bindungsplätze im Falle von Defektstellen die einfallenden Kryptonatome einnehmen, kann man aus den Erkenntnissen zum Auffrierverhalten von Xenon auf Pd(810) ableiten [Zan88]. Pd(810) zeichnet sich dadurch aus, dass seine Oberfläche eine terrassenförmige Struktur aufweist. Es bieten sich für das Kondensat also sowohl Bindungsplätze am Fuß der Stufe als auch auf den Plateaus an. Die Adsorption von Monolagen von Xenon auf Pd(810) funktioniert in zwei getrennten Schritten. Zunächst werden die Plätze am Fuß der Stufen besetzt. An diesen Orten wird das Kondensat gleich auf zwei Seiten von der Oberfläche angezogen. Eine höhere Bindungsenergie liegt vor. Bei geringen Xe-Gasdrücken ( $\approx 1^{-10}$  Torr) werden auch nur diese Stellen besetzt. Bei höheren Drücken werden dann die Plateauplätze besetzt. Wenn die Stufenfußpunkte besetzt werden, ändert sich die Austrittsarbeit doppelt so stark, als wenn die Plateauplätze besetzt werden. Das bedeutet, dass an den hohen Koordinationsstellen stärkere Dipolmomente durch die Adsorption induziert werden. Im Laufe der Zeit müsste die Veränderung der Austrittsarbeiten kleiner werden, wenn nämlich die Nischenplätze besetzt sind und nur die Plateaus besetzt werden. Dies gilt aber nur bei Filmen, in denen sich die Edelgasatome gut genug bewegen können. Wenn also die Kryptonatome zunächst die Fußpunkte von Stufen besiedeln und dann anschließend die Plateauplätze, würde sich die Energie der Konversionselektronen im Laufe der Zeit um min. 20 meV verschieben. Werden alle Plätze gleichermaßen besiedelt, käme es zu einer konstanten Verbreiterung von min. 20 meV, da die Austrittsarbeiten in Substratnischen um 20 meV verringert ist [Som99]<sup>9</sup>.

<sup>9</sup>Über Austrittsarbeitveränderungen bei Belegung eines Nischenplatzes von HOPG durch

### 4.3 Auffrierbedingung

Die Auffrierbedingungen können die Morphologie der entstehenden Kryptonfilme beeinflussen. Da Krypton nicht nur in Form einer Submonolage  $^{83m}\text{Kr}$  zum Einsatz kommt, sondern auch dickere Filme als Unterlage zur Verringerung der Spiegelladung präpariert wurden, ist es wichtig zu wissen, wie man die Struktur dieses Substratkomplexes aus Graphit und Krypton beeinflussen kann.

Einkomponentige Edelgassysteme kristallisieren in einer fcc- oder hcp-Struktur oder Mischungen aus beiden [Mur80]. Bei Kristallisation aus der Gasphase wird das fcc-Gitter bevorzugt [Cur65]. Tempern kann zu einem Übergang in die hcp-Phase führen [Mey64].



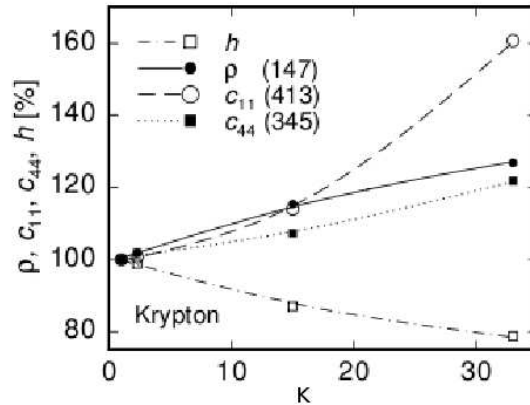
**Abbildung 4.7:** Der Einfluss von Tempern auf die Filmstruktur wird hier mittels Röntgenbeugungsanalyse beobachtet. Die (111)-Reflektion zeigt eine deutliche Reaktion auf die Temperaturerhöhung. Quadrate entsprechen der Kondensationstemperatur von ca. 5K, Dreiecke dem ersten Annealingschritt von 30 K und die umgedrehten Dreiecke einer Annealingtemperatur von 50 K. Der dargestellte Peak verschmälert sich mit steigender Temperatur und sein Maximum verschiebt sich hin zu kleineren Winkeln. Dies wird als ein Anwachsen der Kristallite und Ansteigen der Gitterkonstanten gedeutet [Men91].

Bei der abschreckenden Kondensation eines Films aus der Gasphase auf ein Substrat findet sich das System nicht im thermodynamischen Gleichgewichtszustand. Durch eine hinreichend geringe Substrattemperatur wird der Sättigungsdampfdruck  $p_0$  soweit herabgesetzt, dass die Gasphase in übersättigter Form vorliegt. So wird ein Filmwachstum außerhalb eines Gleichgewichtszustandes erzwungen. Die Mobilität der Atome ist bei diesen tiefen Temperaturen stark eingeschränkt, so dass der Ungleichgewichtszustand nur verzögert relaxieren kann. Abschreckend kondensierte dicke Edelgasfilme ( $\approx 5\text{K}$ ) auf einem Schwingquartz zeigten eine polykristalline

---

Krypton konnten keine Daten gefunden werden.

fcc-Struktur [Men91] mit geringerem Gitterabstand als Bulkmaterial. Substrattemperaturerhöhungen führen zu Umstrukturierungen des Edelgasfilms (s. Abb. 4.7). Bei 30 K ist der Relaxationsprozess zwar möglich aber noch stark unterdrückt. In [Mei01] zeigten sich Reaktionen eines dicken Kryptonfilms auf Temperprozesse. Die Dichte des Films nimmt bei Annealing auf 33 K zu, erreicht aber noch nicht die Gleichgewichtswerte (s. Abb. 4.8).



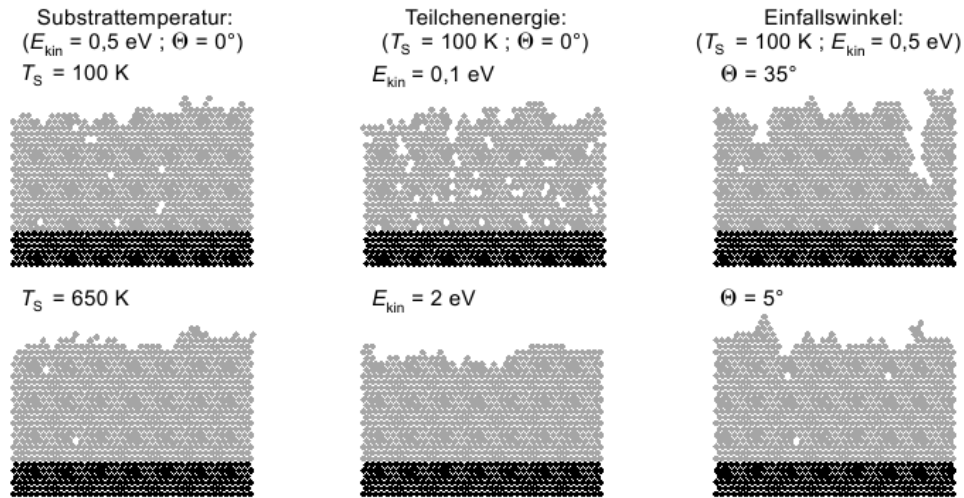
**Abbildung 4.8: Tempern von Kryptonfilmen** führt zu Veränderungen der Dichte des Films. Aufgetragen sind die Filmdicke  $h$ , Dichte  $\rho$ , und elastische Konstanten  $c_{11}$  und  $c_{44}$ . Bei Temperaturen bis 30 K sinkt die Filmdicke, obwohl keine Desorption stattfand. Die Dichte steigt an. Es zeigte sich in [Mei01] bei Temperschritten von dicken Kryptonfilmen bei 21K und bei 33 K, dass zwar einige Umstrukturierung hin zum Gleichgewichtszustand stattfanden, die Bulk-Werte (in Klammern angegeben) aber noch nicht erreicht sind.

Die Mikrostruktur des abschreckend kondensierten Films hängt aber nicht nur von der Substrattemperatur ab. Auch andere Präparationsparameter wie Sauberkeit der Oberfläche, kinetische Energie der einfallenden Teilchen, Einfallswinkel und Rate der kondensierenden Teilchen bestimmen die Filmstruktur (s. Abb. 4.9, [Hei02]).

Die kompaktesten Filme mit der geringsten Oberfläche müssten nach [Zho97] bei geringem Einfallswinkel kondensieren. Steilere Einfallswinkel führen zu grösserer Oberflächenrauigkeit.

Je kleiner die kinetische Energie der einfallenden Teilchen ist, desto größer ihre Wechselwirkung mit bereits kondensierten Teilchen. Die Wechselwirkung lenkt die Trajektorien so um, dass mehr Fehlstellen entstehen.

Da die Kryptonatome einen bedeckenden Gleichgewichtszustand anstreben, scheint es ratsam, die Temperatur der Kondensation möglichst hoch zu halten, um die Kryptonatome möglichst bald im Gleichgewichtszustand zu kondensieren. Die Temperatur muss aber klein genug gewählt werden, um die Desorption hinreichend gering zu halten. Die Mengen an  $^{83m}\text{Kr}$ , die bei der hier vorgestellten kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle verwendet wurden, sind so klein, dass es keine Übersättigung der Gasphase bei erhöhten Temperaturen geben kann. Die Alternative wäre die Quelle so kalt



**Abbildung 4.9: Einfluss der Bedingungen der Filmpräparation auf die Filmstruktur.** aus [Hei02]

zu halten, dass der schockkondensierte Zustand nicht relaxieren kann. Sehr tiefe Temperaturen fördern aber die Kondensation von Restgas insbesondere von  $\text{H}_2$  und führen damit verstärkt zu Verunreinigungen.

Zwar bedingt eine niedrige Gastemperatur der Kryptonatome Fehlstellen im Gitter, andererseits wird die Gastemperatur über die Temperatur der zuführenden Kapillare geregelt (s. Kap. 5). Die Kapillare wirkt andererseits als Kühlfalle bei hinreichend niedriger Temperatur. Die Temperatur der Kapillare wurde deshalb so eingestellt, dass die Kapillare als Kühlfalle z.B. für  $\text{H}_2\text{O}$  funktionieren kann, die Kryptonatome aber gerade noch nicht auf den Kapillarwänden ausfrieren.

Der Einfallswinkel wird dadurch limitiert, dass das Kapillarende auf kleinem Raum nicht zwischen Quellaktivität und Detektor gebracht werden darf (s. Abschnitt zum experimentellen Aufbau). Ein zu großer Abstand von Kapillarende zum Substrat hätte den Raumwinkel zur Bedeckung des Substrats zudem deutlich reduziert. Als Kompromiss wurde ein Winkel von etwa  $45^\circ$  eingestellt.

Die Kryptonfilme, die für diese Arbeit präpariert wurden, wurden bei 13-30 K und Restgasdrücken von  $10^{-8}$  mbar bis  $10^{-10}$  mbar aufgefroren. Die verwendete Menge an  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas war limitiert durch die benutzten Aktivitäten sowie das Emanationsverhalten des Rubidiums. Nur Submonolagen an  $^{83m}\text{Kr}$  konnten aufgefroren werden<sup>10</sup>. Temperaturen höher als 28 K konnten nicht eingesetzt werden, da hier die Desorption die Zählrate zu stark reduziert hätte (s. Abb. 6.24). Man muss also davon ausgehen, dass die dünnen Submonolagen- $^{83m}\text{Kr}$ -Filme in Analogie zu dicken Filmen keine vollständige Relaxation in den Gleichgewichtszustand bei diesen Temperaturen erfahren haben.

Die dickeren Kryptonfilme, die als Unterlage für  $^{83m}\text{Kr}$ -Filme präpariert wurden,

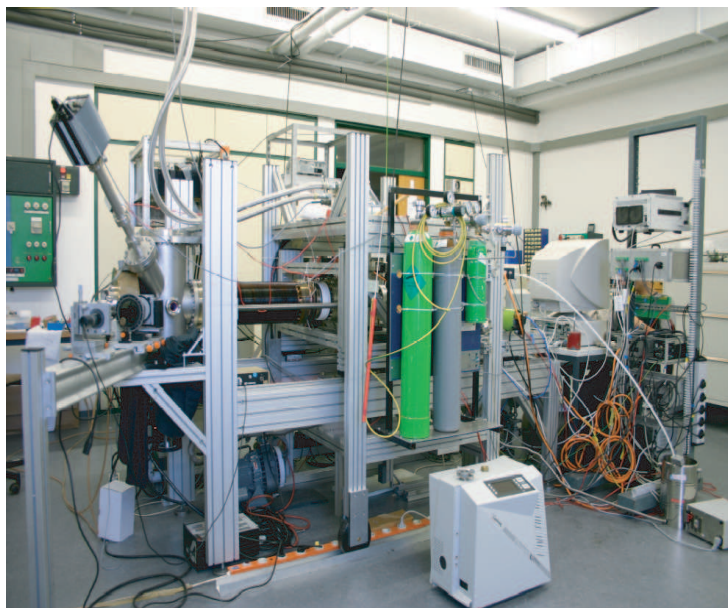
<sup>10</sup>Krypton hat eine hcp-Monolagendichte von  $7,2 \cdot 10^{14}$  Atome/cm<sup>2</sup> [Ish91]

hatten also auch eine polykristalline Form, deren Dichte mit stärkerer Übersättigung der Gasphase und höheren Substrattemperaturen noch gesteigert werden könnte.

## Kapitel 5

# Experimenteller Aufbau einer Quelle aus kondensiertem Krypton

### 5.1 Aufbau



**Abbildung 5.1:** Der Gesamtaufbau der kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle wird hier im Labor in Münster gezeigt. Zu sehen ist links ein Teil des Ellipsometrie-Aufbaus mit Präparationskammer, daran anschließend der Transportbalg und Isolator. Hinter den Gasflaschen mit He, Kr und Ne befindet sich der Kaltkopf. An der rechten Seite verdeckt ein Teil der Datenaufnahme und Systemkontrolle das dahinterliegende Gaseinlasssystem.

Der Aufbau der kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle (s. Abb. 5.1) gliedert sich in drei Abschnitte: das Gaseinlasssystem, das Kryosystem mit Substrat und der Optikaufbau

zur Analyse mit Ellipsometrie und zur Substratreinigung durch Ablation. Die gesamte Vakuumapparatur ist aus UHV-kompatiblen Teilen aufgebaut. Es handelt sich nicht um einen ausnahmslos einheitlichen Aufbau für alle hier präsentierten Messungen. Mehrere Komponenten wurden im Laufe der Messungen umgebaut:

- Das Gaseinlasssystem wurde zweifach modifiziert während dieser Messungen.
- Die thermische Ankopplung der Kapillare zur Kryptonzufuhr am Strahlungsschild wurde ebenfalls umgebaut.
- Die Geometrie des Kapillarendes wurde vereinfacht.
- Der optische Zugang zum Substrat wurde vergrößert.

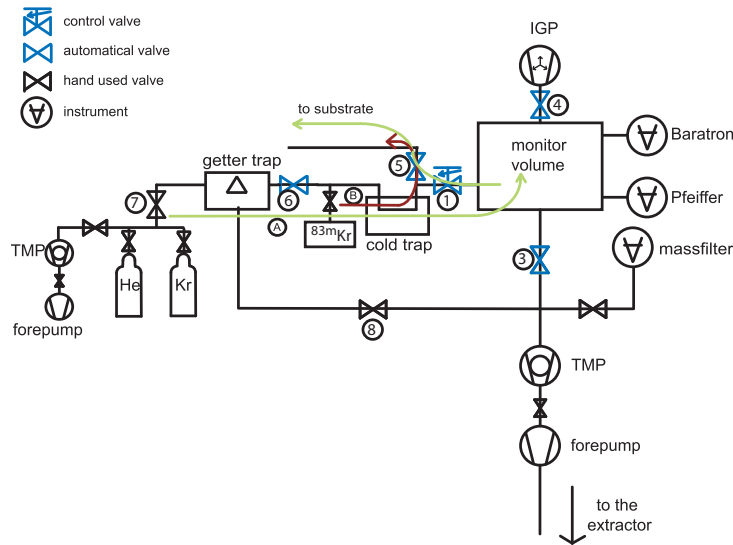
## 5.2 Gaseinlasssystem

Zum Bereitstellen, Kontrollieren und Dosieren sauberer Gase, d.h. von  $^{83m}\text{Kr}$ , aber auch nicht radioaktivem Krypton und Helium, wurde ein Gaseinlasssystem (s. Abb. 5.2) entwickelt [Pra05]. Es schließt ein Reservoir an Rubidium hergestellt am Bonner Zyklotron [Ras08] ein, aus dem das  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas entsteht. Das entstehende  $^{83m}\text{Kr}$  wird über eine gekühlte Kapillare (80-120 K) zum Substrat gelassen. Durch den Einsatz von UHV-kompatiblen Komponenten und Pumpen wird eine zusätzliche Verunreinigung durch die Umgebung minimiert.

Das Gaseinlasssystem (s. Abb. 5.2) beinhaltet ein Monitorvolumen zur Überwachung der Reinheit der eingesetzten Gase. An dieses Monitorvolumen schließt sich ein etwa dreimal größeres Volumen mit SAES-Gettermaterial an. An beiden Volumina sind Druckmessröhren angebracht: eine Pfeiffer Fullrange Messröhre PKR 251 (von  $10^{-2}$  bis  $5 \cdot 10^{-9}$  mbar) und ein Leybold Baratronmessgerät für den Druckbereich  $10^{-2}$  mbar  $> p > 10$  mbar. Das Gaseinlasssystem wird mit einer Turbopumpe mit 70 l/s Pumpleistung vorgepumpt und dann mit einer Ionengetterpumpe weiter evakuiert. Zusätzlich pumpt eingebrachtes SAES-Gettermaterial durchgängig mit. Drücke von  $p=10^{-9}$  mbar entsprechend des Anzeigenlimits der Druckmessröhre wurden erreicht. In [Pra05] wurde mit einem Massenfilter zunächst überprüft, dass keine Diffusion von Brom, Rubidium oder Rubidiumbromid stattfindet und damit die Reinheit des  $^{83m}\text{Kr}$ -Gases belegt.

Daneben kann in dem Monitorvolumen Helium als Spülgas gespeichert und mit  $^{83m}\text{Kr}$  vermischt werden. Das Spülgas sollte eingesetzt werden, um die Transportgeschwindigkeit der geringen Mengen  $^{83m}\text{Kr}$  vom Rubidiumbehälter zum Substrat zu erhöhen. Ohne Spülgas können sich die Kryptonatome nur in molekularem Fluss zum Substrat bewegen. Außerdem müsste sich mit dem Spülgas der Einfallswinkel auf das Substrat und damit die Filmmorphologie leicht beeinflussen lassen. Helium bietet die Möglichkeit in die Präparation des Films einzugreifen ohne weitere Spuren zu hinterlassen, da es selbst bei 15-30 K nicht aufkondensieren kann. Spülen mit Helium erhöhte aber weder die Zählrate merklich, noch waren signifikante Auswirkungen auf





**Abbildung 5.2:** Das Gaseinlasssystem I [Pra05], [Hil07] wie es in den Messblöcken 2006 eingesetzt wurde, zeigt einen Anschluss für  $^{83m}\text{Kr}$ , ein Monitorvolumen zur Analyse und Speicherung der Gase sowie die Anschlüsse für Helium, Krypton und Argon oder Neon. Zur Analyse der Gase wurde ein Massenfilter und zwei Druckmessröhren eingesetzt, wovon eine ein Baratron ist und damit gasartunabhängig funktioniert.

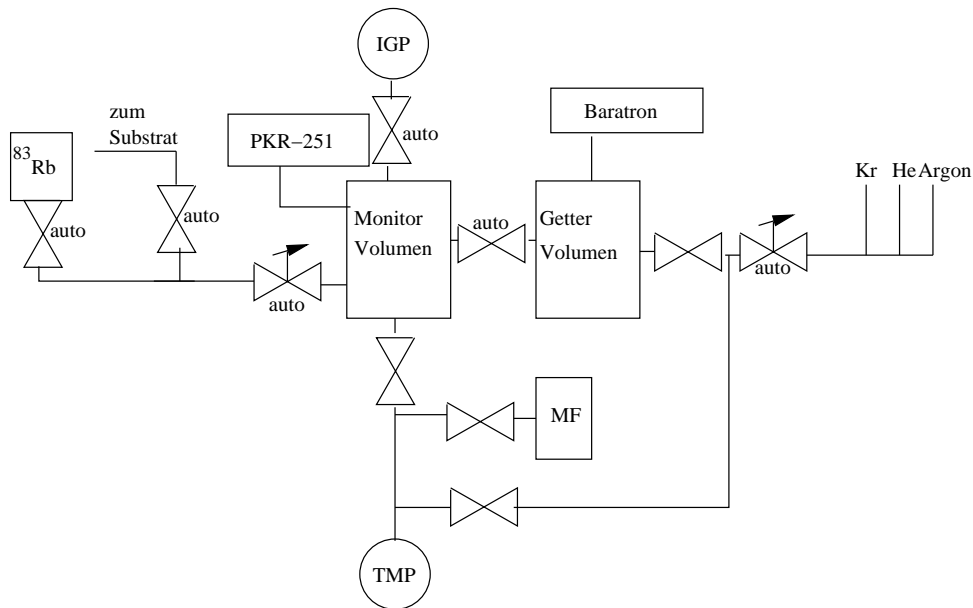
die Linienposition zu bemerken, sodass auf diese Option nach dem Umbau verzichtet wurde.

Um Filme mit einer Unterlage aus stabilem Krypton zu kondensieren, ist es weiterhin nötig, dass im Gaseinlasssystem geringe Mengen an stabilem Krypton mit einem Druck von  $\approx 1$  mbar im Monitorvolumen gespeichert und wohldosiert abgegeben werden können. Im Monitorvolumen kann stabiles Krypton gespeichert werden. Über ein Labview-gesteuertes Dosierventil kann die Menge an weitergeleitetem Krypton geregelt werden. Es wurde dabei mit geringen Ventilöffnungseinstellungen und langen Öffnungszeiten relativ zur Regelzeit des Ventils gearbeitet.

Über dasselbe Ventil kann der  $^{83}\text{Rb}$ -Behälter mit dem Kryosystem verbunden werden. Mit  $^{83m}\text{Kr}$  wurde auf zweierlei Arten gearbeitet. Zunächst wurde  $^{83m}\text{Kr}$  im Rb-Behälter gesammelt und nach ca. 3 h für kurze Zeit zum Substrat weitergeleitet. Später wurde im wesentlichen mit kontinuierlich offenem Ventil gearbeitet, sodass das Kryptonansammeln direkt auf dem Substrat beim Kondensationsprozess stattfand. Damit konnte die effektive Halbwertszeit der Quelle an die des Mutterisotops Rb angeglichen werden (s. Kapitel 6).

Den größten Teil der Wegstrecke wird das Gas in einer Edelmetallkapillare (Innendurchmesser  $\varnothing=3\text{mm}$ ) auf ca. 100 K geführt. An dieser Kühlfalle friert Restgas  $\text{H}_2\text{O}$  sicher aus. Die Kapillare ist über Edelmetallstege an das Strahlungsschild, d.h. die ersten Stufe des Kaltkopfes, angekoppelt. Eine parallel geführte Koaxialheizung dient zur genaueren Temperaturregelung. Die Kapillare ist damit Teil des

Gasreinigungskonzepts.

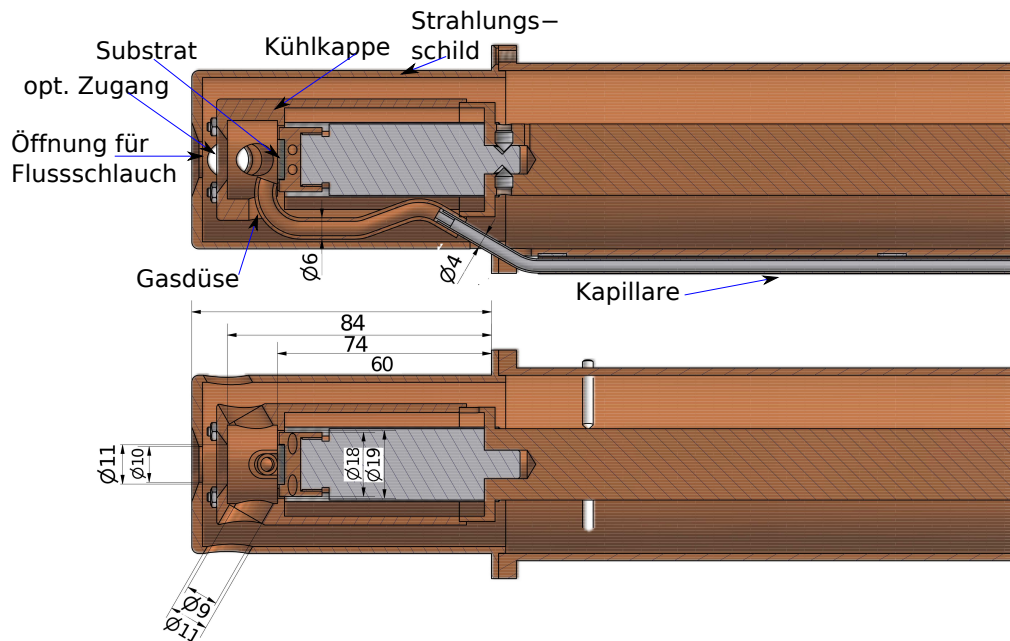


**Abbildung 5.3: Das Gaseinlasssystem II** wie es in den Messblöcken 2007 eingesetzt wurde, basiert im wesentlichen auf dem Gaseinlasssystem zuvor. Hier ist es zusätzlich möglich den Bereich der Gaszufuhr vor den Gasflaschen zu pumpen ohne das Gettervolumen mit zu pumpen. Das automatische Ventil zwischen Monitorvolumen und Turbopumpe wurde durch ein manuell betriebenes Ventil ersetzt. Dadurch ist es möglich das Monitorvolumen freizupumpen ohne die Turbopumpe ausschalten zu müssen.

Vor den Messungen 2007 wurde das Gaseinlasssystem modifiziert (s. Abb. 5.3), um besser pumpen und schneller Filme präparieren zu können. Die Pumpleistung an den Gasflaschen wurde erhöht, in dem CF-16 Wellbälge die Kapillare (Durchmesser  $d=6\text{mm}$ ) zwischen den Gasflaschen und dem Gettervolumen ersetzt. Es ist im modifizierten Gaseinlasssystem ferner möglich, diesen Bereich zu pumpen, ohne das Gettervolumen mitpumpen zu müssen, wie es zuvor nötig war. Außerdem ist es möglich, stabiles Krypton in das Monitorvolumen zu befüllen, während  $^{83m}\text{Kr}$  weiterhin zum Substrat geleitet werden kann, was die Messeffizienz steigern konnte.

### 5.3 Kryosystem

Das Kryosystem beinhaltet den sensiblen Substratbereich (s. Abb. 5.4). Hier wird das  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas auf das HOPG-Substrat aufgefroren. Es herrschen höchste Anforderungen an das Vakuumsystem. Das Substrat wird auf einer Temperatur zwischen 20 K und 30 K gehalten. Um die Adsorption von Restgas zu minimieren, ist es mit einer Kupferkappe umgeben, welche selbst eine etwas niedrigere Temperatur von 15 K - 20 K hat. Das Substrat und seine Kühlkappe werden mit der zweiten Stufe des Kaltkopfs gekühlt. Beide sind umgeben von dem Strahlungsschild auf etwa 60 K, welches mit der ersten Stufe des Kaltkopfs gekühlt wird. Für den optischen Zugang für Ellipsometrie und Ablation sind Löcher in die Kappen gebohrt. Ebenso sind Löcher an der Stirnseite angebracht, wodurch die Elektronen entlang des Flusschlauchs zum Spektrometer geführt werden.



**Abbildung 5.4:** Das HOPG-Substrat bildet das Herzstück des Aufbaus. Hier ist ein Schnittbild durch den Substratbereich dargestellt. Es ist umgeben von einer Kühlkappe aus Kupfer und einem Strahlungsschild ebenfalls aus Kupfer. Über ein Edelstahlstück mit geringerer thermischer Leitfähigkeit als Kupfer wird das Substrat thermisch leicht isoliert gegenüber dem Strahlungsschild. Das  $^{83m}\text{Kr}$ -Gas wird über die Kapillare zugeführt. Im letzten Messblock 2007 bestand die Gasdüse, wie hier eingezeichnet, aus einem gebogenen Kapillarendstück.

### 5.3.1 Kältemaschine

Zur Erzeugung der tiefen Temperaturen wird eine zweistufige Gifford-McMahon-Kältemaschine (RDK 408D) der Firma Sumitomo eingesetzt. Die erste Stufe hat eine Kühlleistung von 34 W bei 40 K und wird hier zur Kühlung des Schildes gegen die Raumtemperaturstrahlung eingesetzt. Die zweite Stufe hat eine Kühlleistung von 1 W bei 4 K, womit der Substratbereich gekühlt wird. Sie besteht aus einem Zylinder mit zwei Volumina, getrennt durch einen Kolben, einem Regenerator mit großer Wärmekapazität und großer Wärmeaustauschfläche sowie einem räumlich getrennten Kompressor, dessen Hoch- und Niederdruckseite über zwei Ventile ans System gekoppelt sind.

Das Gifford-McMahon-Kühlverfahren zeichnet sich dadurch aus, dass außer einem langsam beweglichen Verdrängerkolben keine beweglichen Teile bei tiefen Temperaturen eingesetzt werden. Der Verdrängerkolben bewegt sich in einer Frequenz von 1 Hz, wobei bei jedem Stoß die Kaltkopffläche einen Amplitudenhub von ca. 50  $\mu\text{m}$  erfährt. Dadurch, dass Kompressor und Kaltkopf räumlich voneinander getrennt sind, werden weitere Vibrationen abgefangen.

Als Kältemittel agiert Helium in einem geschlossenen Kreislauf, so dass keine wesentlichen Kältemittelverluste auftreten und kaum Helium nachgefüllt werden muss.

Durch die zweistufige Maschine stehen zwei Kühlflächen zur Verfügung, wovon die wärmere zur Kühlung eines Strahlungsschildes eingesetzt wird.

### 5.3.2 Thermische Ankopplung

Zur Kondensation von  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  werden nur Temperaturen von 25 K - 30 K benötigt, welche deutlich über den erreichbaren 3,5 K - 4 K des Kaltkopfes liegen. Das Substrat soll aus vakuumtechnischen Gründen von einer Kühlfalle auf möglichst niedrigerer Temperatur umgeben sein, deshalb muss ein möglichst guter Wärmetransport zwischen Substratbereich und Kaltkopf gewährleistet werden. Zusätzliche Wärmeeinträge durch Halterung und elektrische Zuführungen wurden reduziert. Das Substrat muss von einer Analyse- und Reinigungsposition, die einen optischen Zugang erfordert, in die Messposition innerhalb der Bohrung des Supraleiters gebracht werden. Aus diesen Gründen muss das Substrat und seine umgebende Kühlfalle über eine Strecke von etwa 1 m gekühlt werden.

Die anfallende Wärmelast setzt sich neben dem beabsichtigten Wärmeeintrag über eine Substratheizung im wesentlichen aus der Wärmestrahlung der umgebenden Apparatur und der Wärmeleitung über Halterung und elektrischen Mess- und Heizleitungen zusammen.

Nach dem Stefan-Boltzmann-Gesetz [Hae81]

$$\dot{Q}_R = f e_k A_k \sigma (T_w^4 - T_k^4) \quad (5.1)$$

mit

$\dot{Q}_R$ : absorbierte Strahlungsleistung der Behälterwand,

$e_k$ : Emissivität der Kryofläche,

$A_k$ : Kryofläche,

$\sigma$ : Stefan-Boltzmann-Konstante =  $5,67 \cdot 10^{-8} \frac{W}{m^2 \cdot K^4}$ ,

$T_w$ : Temperatur der Behälterwand,

$T_k$ : Temperatur der Kryofläche und

f: Geometrie und Emissivitätsabhängigkeit:

$$f = [1 + A_k e_k (e_w^{-1} - 1) / A_w]^{-1} \quad (5.2)$$

mit

$e_w$ : Emissivität der Behälterwand und

$A_w$ : Fläche der Behälterwand

berechnet sich der Leistungseintrag aufgrund von Wärmestrahlung unter der Bedingung  $A_w \gg A_k$  und einer Emissivität von  $e_k = 0,5$  zu  $230 \text{ W m}^2$ . Für mechanisch poliertes Kupfer bei 4 K [Hae81] beträgt  $\varepsilon = 0,015$ , schwarz oxidiertes Kupfer zeigt bei Raumtemperatur eine um einen Faktor 26 erhöhte Emissivität als poliertes Kupfer bei Raumtemperatur. Die Emissivität wird hier mit  $\varepsilon = 0,5$  abgeschätzt. Auf einen Stab mit Länge  $l = 1,2 \text{ m}$  und mit einem Durchmesser  $\varnothing = 2 \text{ cm}$  beträgt die einfallende Wärmestrahlung also  $P = 17 \text{ W}$ . Dieser Wärmeeintrag der umgebenden Apparatur auf Raumtemperatur wird mit einem Strahlungsschild größtenteils abgefangen, welches bei 60 K nur noch 0,2 % dieser Wärmeleistung, d.h. 34 mW, auf die Substrathalterstange abgeben kann.

Die Wärmelast durch die Halterung erfolgt über Wärmeleitung:

$$\dot{Q}_L = \frac{A}{L} \int_{T_2}^{T_1} \lambda dT \quad (5.3)$$

mit

$\dot{Q}_L$ : Wärmeeintrag durch Wärmeleitung,

A: Querschnittsfläche des Leiters,

L: Länge des Leiters und

$\lambda$ : Wärmeleitfähigkeit<sup>1</sup>.

Die innere kalte Stange, an die der Substrathalter und die umgebende Kühlfalle angeschlossen sind, liegt auf 6 angespitzten Edelstahlschrauben (M3), die mit dem Strahlungsschild verbunden sind. Der Abstand zwischen der inneren kalten Stange und dem Strahlungsschildrohr ist 5 mm. Das Wärmeleitungsintegral für Edelstahl

<sup>1</sup>Werte für das Integral wurden aus [Hae81] entnommen

von 60 K auf 4 K liegt bei  $0,198 \frac{kW}{m}$ . Damit ergeben sich maximal 1,7 W Konduktionsheizleistung.

Weitere Wärmeeinträge erfolgen durch die elektrischen Zuleitungen für Heizer und Temperatursensoren. Zur kalten Stufe führen 8 Leitungen für Sensoren und 4 Leitungen für einen Heizer, der im Falle eines Defekts des Substrat-Temperatursensors diesen ersetzen kann. Die Kabel bestehen aus Cu-Innenleitern. Bei einem Durchmesser von 0,3 mm und einer Länge von ca. 1 m werden nach Gleichung (5.3) und mit einem Wärmeleitungsintegral von  $58,7 \text{ kW/m}$  für Kupfer zwischen 60 K und 4 K  $\dot{Q}_{L,kabel}=200 \text{ mW}$  Wärmeeintrag erwartet. Die Anzahl der Leitungen ( $N=12$ ) ließe sich bei Bedarf durch eine sinnvolle Mehrfachnutzung der Zuleitungen noch reduzieren.

Das Substrat wird mittels eines Widerstandsheizers bei Temperaturen zwischen 25 K - 30 K gehalten und soll von einer Kühlfalle auf höchstens 15 K umgeben sein. Dazu wird der Substrathalter thermisch bewusst schlecht über ein Edelstahlstück mit einem Durchmesser von 19 mm und einer freien Länge von 4,3 cm angekoppelt. Ein solches Edelstahlstück kann eine Wärmeleistung von 257 mW zwischen 30 K und 15 K ableiten. Diese nötige elektrisch zuführbare Heizleistung wird ergänzt durch die 130 mW, die über die 8 elektrischen Zuführungen<sup>2</sup> hinzukommen. Zusätzliche Raumstrahlung wird hier vernachlässigt. Zum Abdampfen von Krypton von der Substratfläche sind Temperaturen von ca. 60 K nötig. Hierzu wird die Heizleistung von etwa 1,24 W abzüglich des Wärmeeintrags der Zuleitungen benötigt.

Diese Heizleistungen sind gut erreichbar mit dem Substrateizer. Es handelt sich hierbei um TVO-Widerstände. Diese Widerstände (JINR, Dubna) bestehen aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Sie haben einen Messbereich von 3,5 K bis Raumtemperatur. Die Abkürzung TVO bedeutet übersetzt aus dem Russischen: "thermischer Widerstand, wasserbeständig, druckfest". Die Sensoren wurden jeweils mittels thermisch leitenden UHV-Kleber eingeklebt.

Die gaszuführende Kapillare wurde mechanisch über Edelstahlstege an das Strahlungsschild angeschweisst, sodass hier Temperaturen bis in den Raumtemperaturbereich hinein hin möglich waren. I. a. reicht aber eine Temperatur um die 120 K, um den Zufluss an  $^{83m}\text{Kr}$  nicht zusätzlich zu reduzieren [Hil07].

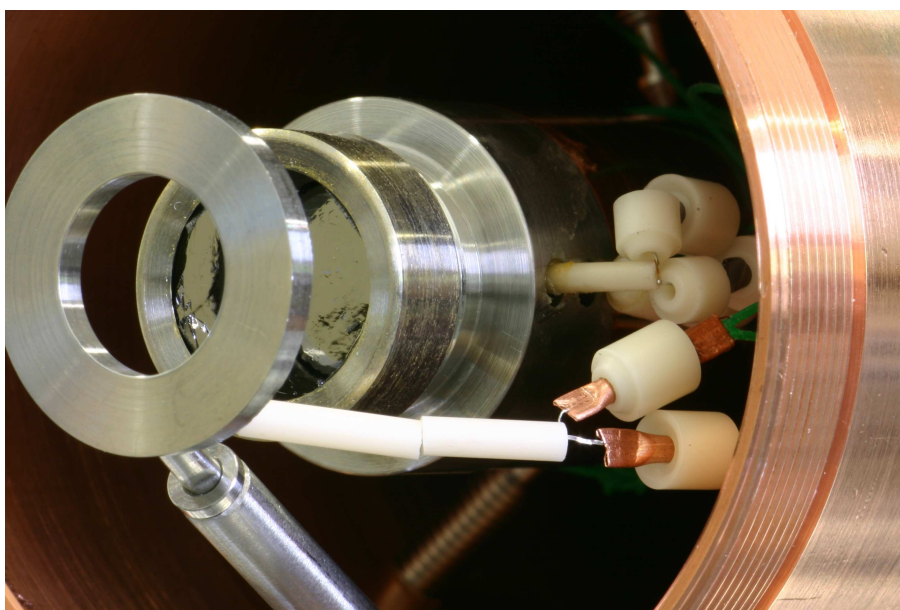
---

<sup>2</sup>4 der 12 elektrischen Zuleitungen führen nur umgebenden Kühlfalle.

### 5.3.3 Gasdüse

Die Geometrie von Gasdüse, Substrat und umgebender Kühlfalle soll vielen, teils widersprüchlichen Anforderungen gerecht werden. Ihre Verwirklichung muss immer einen Kompromiss darstellen.

Einerseits soll Restgas vom Substrat abgeschirmt werden. In diesem Fall würde man das Substrat mit einer Kappe auf weniger als  $T=15$  K umgeben, um auch  $H_2$  dort auszufrieren und vom Substrat fern zu halten. Gleichzeitig muss aber  $^{83m}Kr$  über eine 1 m lange Kapillare sicher zugeführt werden. Hierzu würde man wiederum, das Substrat mit einer hinreichend warmen und kleinen Haube umgeben, um das Ausfrieren von  $^{83m}Kr$  auf die Substratfläche zu beschränken. Die  $^{83m}Kr$ -Atome sol-



**Abbildung 5.5: Die Gasdüse und Substrat 2006** besteht aus einer ringförmigen Düse, die das Substrat umgibt. Auf der im Bild abgewendeten Seite ist eine kleine Nut in den Ring eingebracht, durch die das Gas austreten kann.

len die Substratfläche möglichst gleichmäßig bedecken. Die Substratumgebung soll aber kein  $^{83m}Kr$  festhalten. Um dieser Anforderung nachzukommen, würde man das Ende der Kapillare möglichst nah an das Substrat heranbringen. Die entstehenden Konversionselektronen müssen entlang des magnetischen Flusschlauchs ins Spektrometer geführt werden. Das Kapillarende darf also diesen Flusschlauch nicht abdecken. Um bei größerer Distanz zum Substrat den  $^{83m}Kr$ -Gaskegel möglichst wenig divergent zu halten, ist es sinnvoll das Kapillarende als langen Kamin zu formen. Letzteres ist wiederum limitiert durch den Innendurchmesser ( $d=66$  mm) des Rohres im Magneten des MAC-E-Filters an der Messposition.

Es wurden zwei verschiedene Gasdüsen eingesetzt. Während der Messungen 2006 wurde eine ringförmige Düse mit einer schmalen Nut in das Ende der Edelstahlkapillare gesteckt (s. Abb. 5.5). Durch die Ringform sollte das Gas um das Substrat

herumgeführt werden. Die Abdeckung des Ringes sollte als Praller die Einfallswinkel auf das Substrat formen.



**Abbildung 5.6:** Für die Gasdüse und Substrat 2007 wurde die Öffnung der Düse vergrößert und auf die Ringform verzichtet. Diese Maßnahmen wurden getroffen, um Zählratenverluste zu vermeiden.

In den Messungen 2007 wurde diese Gasdüse entfernt und ein Kapillarende aus einem kurzen Kupferröhrchen gebogen. Es wurde kein Praller eingebaut, um den Zählratenverlust zu minimieren (s. Abb. 5.6).

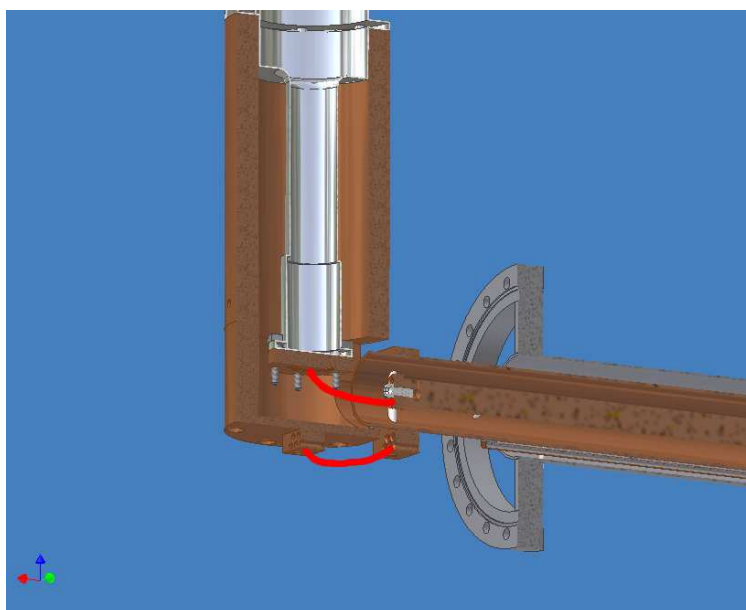
Im Anschluss zu den hier vorgestellten Messungen wurde die Geometrie der Gasdüse und der umgebenden kalten Cu-Hauben weiter modifiziert, um die Zählratenausbeute zu erhöhen [Smo08].



## 5.4 Mechanik

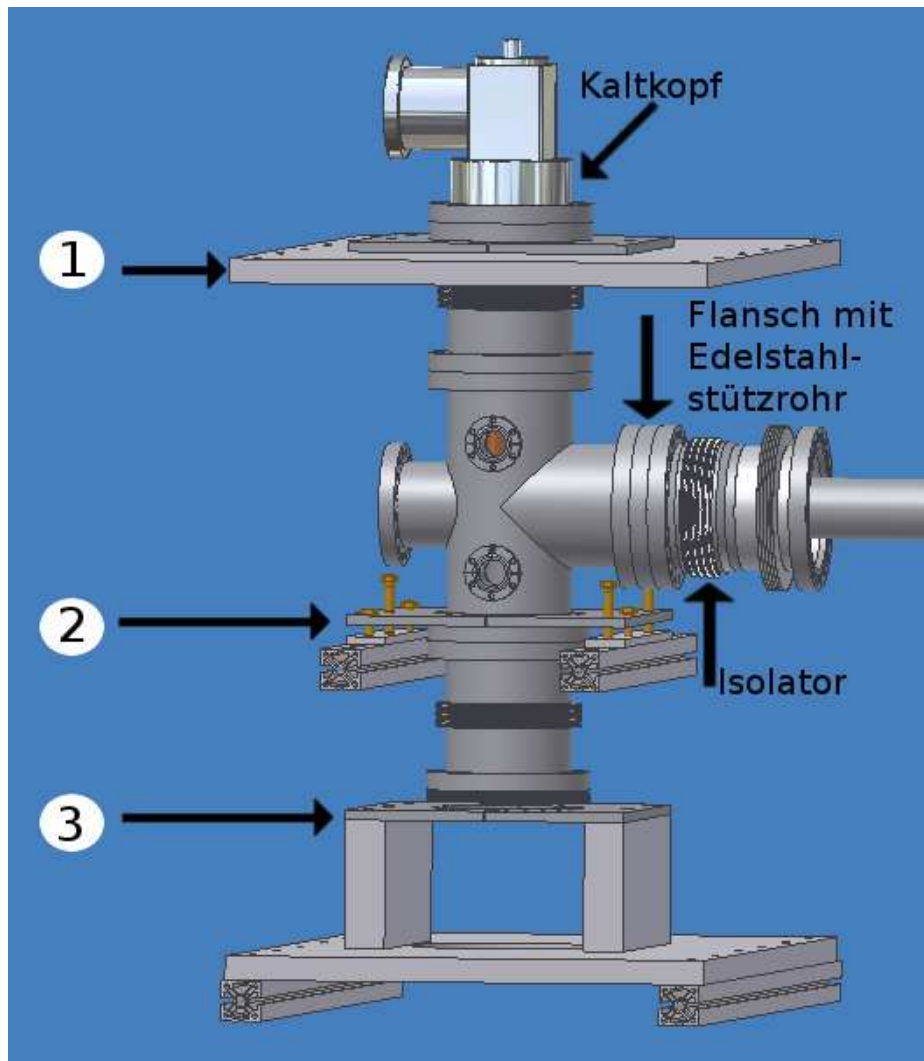
Der Aufbau wurde so konstruiert, dass das Substrat einen Hub von ca. 74 cm überwinden kann, da es in der hinteren Position ellipsometrisch analysiert und mit dem Ablationslaser gereinigt werden und in einer vorderen Position im Spektrometer platziert werden kann. Eine sensible Justage am Analyse- und Messort ist in diesen Stadium des Quellaufbaus noch nicht vorgesehen. Bei solch langen Fahrwegen bleiben Bodenunebenheiten und Dejustagen nicht ohne Auswirkungen.

Besondere Rücksicht wurde auf die mechanischen Stöße des Kaltkopfs genommen. Um die Stöße des Verdrängerkolbens, die mit einer Frequenz von  $\approx 1$  Hz auftreten und einen Hub von  $50 \mu\text{m}$  am Ende des Kaltkopfs hervorrufen, nicht auf das Substrat über den Verlängerungsarm zu übertragen, wurde das Substrat und die Verlängerungsstangen auf ein Edelstahlstützrohr mit separatem Gestell abgelegt. Die Vakuumkammer, die das Stützrohr mit Substrat trug, wurde über einem Membranbalg mit der Kammer verbunden, an der der Kaltkopf montiert war (s. Abb. 5.8). Im Innern wurden Verlängerungsrohr und Substrat mit flexiblen Kupferlitzen zum Kaltkopf hin thermisch angekoppelt (s. Abb. 5.7 und Abb. 5.9).



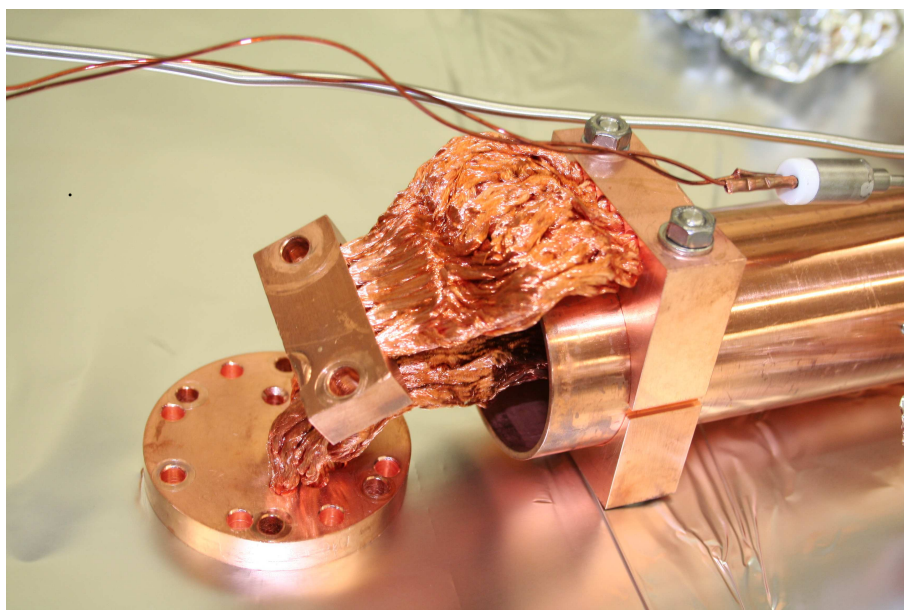
**Abbildung 5.7: Zur Vibrationsdämpfung der Tieftemperaturkomponenten** wurde die substrattragende kalte Kupferstange über ein dickes Band aus flexibler Kupferlitze mit der zweiten Stufe des Kaltkopfs verbunden. Ebenso wurde der Wärmekontakt für das Strahlungsschildrohr an die erste Stufe des Kaltkopfs hergestellt. Beides ist in rot einskizziert. Eine Abbildung der Bänder findet sich in Abb. 5.9.

Es wurde außerdem berücksichtigt, dass das kondensierte  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  mit dem Substrat auf bis zu 1 kV Potential gelegt werden kann, um die K-Konversionselektronenenergien der Tritiumendpunktenergie anzupassen. Dazu wurden der Kaltkopf mit dem Substrat und das Gaseinlasssystem elektrisch isoliert aufgehängt. In [Smo08] wurde das



**Abbildung 5.8:** Die Vibrationsdämpfung der Vakuumapparatur geschieht mithilfe von Membranbälgen. Auf der mittleren Platte (2) ist ein Kreuzstück montiert, an dem fest das Edelstahlstützrohr befestigt ist, das das Strahlungsschildrohr und das substratragenden Kupferverlängerungsrohr trägt. Mit der Justage dieser Platte kann das Substrat bewegt werden. Der Kaltkopf ist an Platte (1) angeschraubt. Zwischen Kaltkopf und Kreuzstück befindet sich ein Membranbalg zur Stoßdämpfung. Auf der gegenüberliegenden Seite des Kreuzstücks ist wieder ein Membranbalg angebracht, dessen Abschlussflansch mit Platte (3) verbunden ist. Platte (1) und Platte (3) teilen sich ein gemeinsames Gestell. Dieses Gestell vibriert mit der Frequenz des Kaltkopfkolbens. Platte (2) mit der Verbindung zum Substrat wird über ein separates Gestell auf dem Laborboden abgestützt.

System schließlich zu ersten Tests auf Hochspannung gebracht.



**Abbildung 5.9:** Zur vibrationsarmen Wärmekopplung wurde eine breite flexible Kupferlitze eingesetzt.

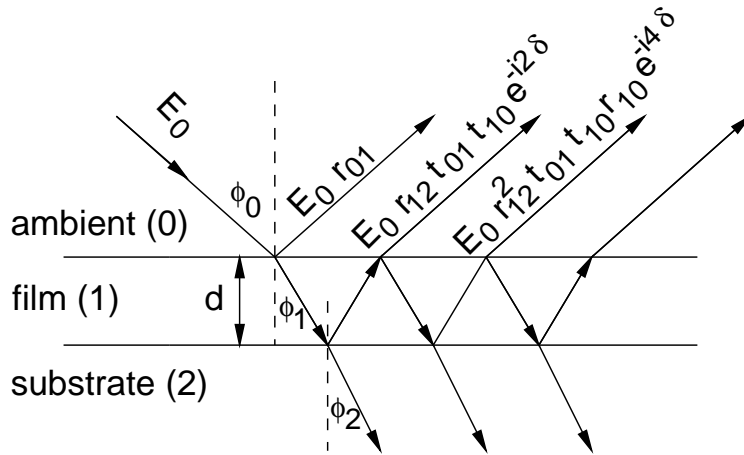
## 5.5 Optik

Der Aufbau der kondensierten Kryptonquelle beinhaltet optische Komponenten. Mittels Ellipsometrie wird der Zustand von Substrat und Adsorbat optisch überwacht. Ablation dient als einer der Reinigungsmechanismen für das Substrat. Beide Lasersysteme sollen im folgenden beschrieben werden.

### 5.5.1 Ellipsometrie

Ellipsometrie ist ein optisches Verfahren zur Analyse der Belegung einer Oberfläche [Azz77]. Es lässt sich damit einerseits die Dicke kondensierter Filme messen, andererseits auch die Reinheit eines unbelegten Substrats überprüfen. Messgröße der Ellipsometrie, die Rückschlüsse auf eine mittlere Belegungsdicke zulässt, ist die Änderung der Polarisation bei Reflexion.

Fällt ein Lichtstrahl auf eine Grenzfläche zweier Medien, so wirkt die Reflexion unterschiedlich auf die senkrecht (s) und parallel (p) zur Einfallsebene polarisierten Teile des Strahls: Ein linear polarisierter Strahl ist i. a. im Anschluss elliptisch polarisiert, ein elliptisch polarisierter Strahl lässt sich unter dem entsprechenden Winkel linear polarisieren ("Brewsterwinkel"). Das Verhalten von p- und s-Wellen wird mit den Fresnelschen Formeln beschrieben. Tritt ein weiteres Medium in Form von einem Belag der Oberfläche hinzu (s. Abb. 5.10), müssen mögliche Reflexionen zwischen Grenzflächen und Phasenversätze der so entstehenden Teilstrahlen durch den jeweiligen Gangunterschied in der Deckschicht berücksichtigt werden. Der reflektierte



**Abbildung 5.10: Ein dreischichtiges System**, zusammengesetzt aus Vakuum, Film und Substrat, wird der Ellipsometrie als Modell zugrunde gelegt. Die jeweiligen Oberflächen werden als glatt angesehen. Ein einfallender Lichtstrahl wird an der Grenzfläche zwischen Film und Vakuum zu einem Anteil von  $r_{01}$  reflektiert und teils in das Filmmedium gebrochen ( $t_{01}$ ). Trifft er dann auf die Grenzfläche zwischen Film und Substrat, wird wieder ein Teil mit  $r_{12}$  reflektiert und  $t_{12}$  transmittiert. Der reflektierte Strahl wird nun an der Grenzfläche Film/Vakuum den Film verlassen oder wieder zurück in Richtung Substrat reflektiert und so über weitere Reflexionen und Transmissionen eine Vielzahl an austretenden Teilstrahlen erzeugen. Jeder dieser Teilstrahlen zeigt einen charakteristischen Gangunterschied im Polarisationszustand  $s=n\delta$ . Dieser Gangunterschied ergibt sich aus der Weglänge im Filmmedium und damit aus der Dicke des Films. Gemessen wird die Polarisation der Summe über alle entstehenden Teilstrahlen. Die Interferenz aus allen Teilstrahlen beinhaltet so die Information über die Dicke des Films.

Strahl ist dann eine Vielfachinterferenz aus der Summe der einzelnen reflektierten Teilstrahlen.

Zur Untersuchung der Polarisationsänderung betrachtet man nun die Reflexionskoeffizienten  $R_p$  des p-polarisierten Lichts und  $R_s$  des s-polarisierten Lichts:

$$R_i = r_{01,i} + \frac{t_{01,i} t_{10,i} r_{12,i} e^{-i2\delta}}{1 - r_{10,i} r_{12,i} e^{-i2\delta}} \quad (5.4)$$

mit

$i=s,p$ ,

$\delta$ : Gangunterschied,

$r_{xy}$ : Reflexionskoeffizienten nach Fresnel und

$t_{xy}$ : Transmissionskoeffizienten nach Fresnel

Mit den Beziehungen

$$r_{10} = -r_{01} \quad (5.5)$$

$$t_{10}t_{01} = 1 - r_{01}^2 \quad (5.6)$$

wird dies vereinfacht zu:

$$R_i = \frac{r_{01,i} + r_{12,i}e^{-i2\delta}}{1 + r_{01,i}r_{12,i}e^{-i2\delta}} \quad (5.7)$$

$$\delta = 2\pi \frac{d}{\lambda} \sqrt{N_1^2 - N_0^2 \sin^2 \Phi_0} \quad (5.8)$$

mit:

$\lambda$ : Wellenlänge des Lichts,

$N_0, N_1$ : Brechungsindices von Film (1) und Umgebung (0),

$\Phi_0$ : Einfallswinkel und

$d$ : Dicke des Films

Die Brechungsindices berücksichtigen i.a. Absorption und Polarisation und sind damit komplexe Größen:

$$N_{1,0} = n_{1,0} + ik_{1,0} \quad (5.9)$$

Das Verhältnis beider Reflexionskoeffizienten ergibt sich zu [Azz77]:

$$\varrho = \frac{R_p}{R_s} = \frac{r_{01p} + r_{12p}e^{-i2\delta}}{1 + r_{01p}r_{12p}e^{-i2\delta}} \cdot \frac{1 + r_{01s}r_{12s}e^{-i2\delta}}{r_{01s} + r_{12s}e^{-i2\delta}} \quad (5.10)$$

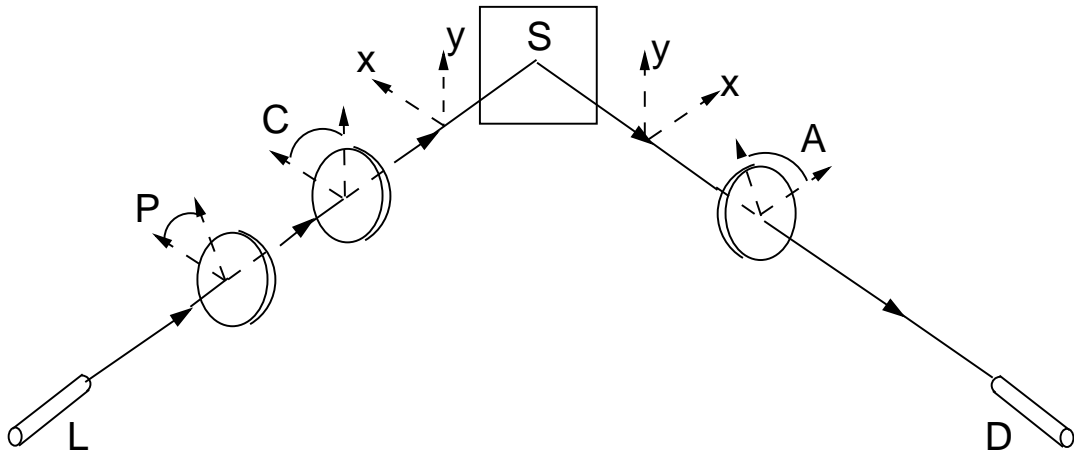
Dieses Verhältnis lässt sich als komplexe Zahl parametrisieren:

$$\varrho = \frac{R_p}{R_s} = \tan \Psi e^{i\Delta} \quad (5.11)$$

Zur Vermessung dieser Zahl wurde hier ein Aufbau zur Nullellipsometrie in der PCSA-Anordnung eingesetzt (s. Abb. 5.11). Das Prinzip des Aufbaus beruht darauf, dass Polarisator und Compensator ( $\lambda/4$ -Plättchen) so eingestellt werden können, dass das Licht bei der Reflexion an der Probe linear polarisiert wird und mit dem Analysator ausgelöscht werden kann. Genauer wurde hier ein Verfahren gewählt, bei dem die schnelle Achse des Compensators (C) auf einen Winkel von  $\pm\pi/4$  zur Einfallsebene festgelegt wird. Polarisator (P)- und Analysatorstellung (A) beschreiben dann die Größe  $\varrho$  vollständig:

$$\varrho = \mp \tan A e^{\mp i2(P-\pi/4)} \quad (5.12)$$

$$C = \pm \frac{\pi}{4} \quad (5.13)$$



**Abbildung 5.11: Der Ellipsometeraufbau** wie er hier verwendet wurde wird als Nullellipsometer bezeichnet. Er besteht aus einer Lichtquelle L, einem Compensator C ( $= \lambda / 4$  Plättchen), einem Polarisator P, einem Analysator A und einem Detektor D. Der Polarisator wird bei fixiertem Compensator so variiert, dass der Lichtstrahl durch die Vielfachinterferenz an Film-Substratkomplex (S) linear polarisiert wird. Dieser linear polarisierte Strahl kann dann mit dem Polarisator zur Auslöschung gebracht werden.

Je zwei Werte Paare (P,A) können die Lichtintensität zur Auslöschung bringen. Jede Stellung von P und A gilt außerdem natürlich modulo  $\pi$ .

$$(P', A') = (P + \frac{1}{2}\pi, \pi - A) \quad (5.14)$$

Man kann diese doppelte Messbarkeit der Größe  $\varrho$  im Prinzip zu einer Zweizonenmittelung nutzen [Azz77]. Im hiesigen Aufbau ist das aber mit großen mechanischen Fahrstrecken der Polarisationsfilter verbunden, welche dann aufgrund einer fehleranfälligen Mechanik zusätzliche erhebliche Unsicherheiten bringen.

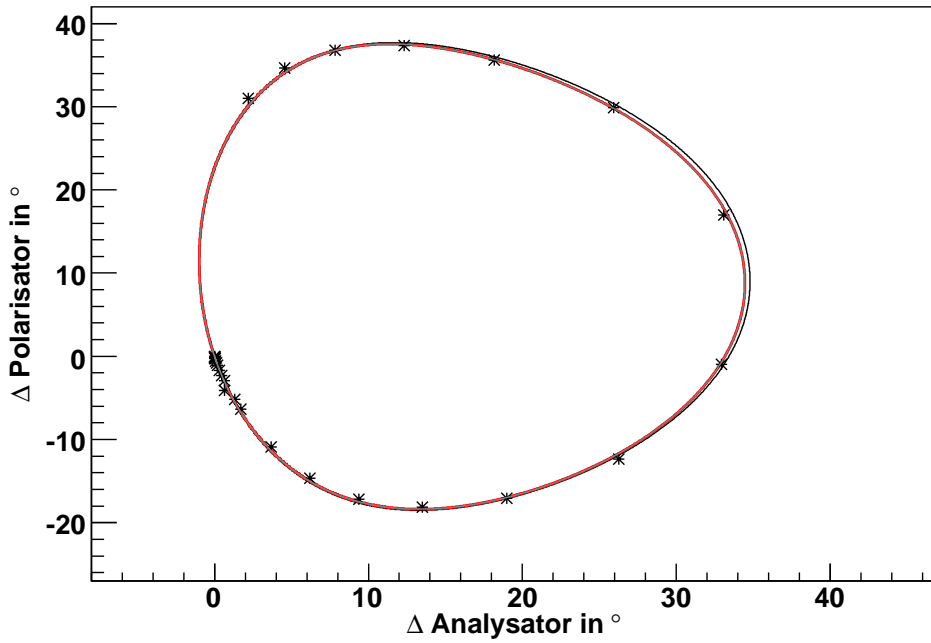
Die Messunsicherheit eines Ellipsometriewinkels ist

$$\Delta P = 0,04^\circ, \quad (5.15)$$

im Falle, dass die Quelle nicht bewegt wurde. Da bei der Ellipsometrie die Differenz zweier Winkel betrachtet wird, erhöht sich der Fehler auf  $0,06^\circ$  pro Winkeländerung. Eine Messung im Submonolagenbereich ( $<0,131^\circ$ ) ist zwar grob möglich, bleibt aber bei weitem hinter der geringen  $^{83m}\text{Kr}$ -Einsatzmenge zurück. Wenn die Quelle aber zwischenzeitlich bei der Ablation (s. Abschn. 5.5.2) oder den  $^{83m}\text{Kr}$ -Konversionselektronenmessungen verfahren wurde, reduziert sich die Genauigkeit auf

$$\Delta P = 0,1^\circ. \quad (5.16)$$

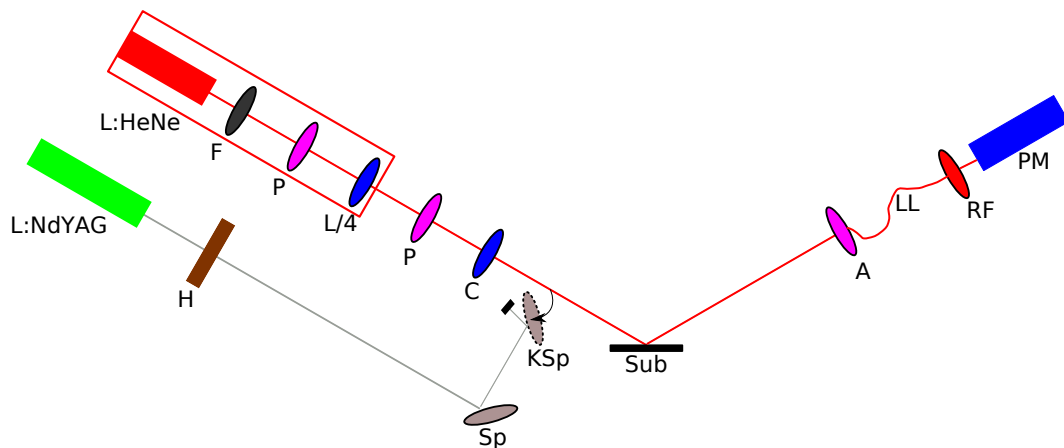
Wurde nicht notiert, ob die Ellipsometrieposition in Vorwärts- oder in Rückwärtsrichtung angesteuert wurde, reduziert sich die Genauigkeit um einen weiteren Faktor 2.



**Abbildung 5.12:** Eine Referenzellipse mit  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  wurde aufgenommen. Aufgetragen sind die Veränderungen des Polarisator- und des Analysatorwinkels bezüglich des Startwertes durch sukzessives Auffrieren von Krypton im Grundzustand. Die Kreuze markieren die Messwerte. Die schwarze Linie markiert die Eingabewerte der letzten Iteration, die rote Linie das Fitergebnis (s. Fließtext).

Es kann sukzessive Gas auf dem Substrat aufkondensiert werden und zu jeder Schichtdickenänderung je mindestens ein Wertepaar (A,P) bestimmt werden. Aus dem Verlauf der Paarung lassen sich die Größen der Brechungsindices  $N_0$ ,  $N_1$  und  $N_2$ , die Wellenlänge des einfallenden Lichts, der Einfallswinkel und die Schichtdicke ableiten. Diese Schichtdickenbestimmung wurde zur Vermessung der Dicke von Preplatingfilmen genutzt.

Der Ellipsometrieaufbau ist schematisch in Abb. 5.13 dargestellt. Eine Photographie des optischen Eingangsbereichs ist in Abb. 5.14 zusehen. Das Licht eines He-Ne-Lasers wird zunächst mit einem Neutraldichtefilter abgeschwächt. Dann wird der Lichtstrahl durch einen Polarisationsfilter und ein  $\lambda/4$ -Plättchen gelenkt. Diese sind so eingestellt, dass die Winkelabhängigkeit der Polarisation des Strahls minimiert wird. Es folgt der Polarisator, welcher, über einen Schrittmotor betrieben, Schritte von  $0,02^\circ$  fahren kann, und der Compensator dessen schnelle Achse fest um  $\pi/4$  von der Einfallsebene verdreht ist. Ein Klappspiegel, der den Ablationslaserstrahl einkoppeln kann, ist aus dem Lichtweg geklappt. Ein teildurchlässiger Spiegel hätte



**Abbildung 5.13: Der Ellipsometrieaufbau**, wie er in diesen Messungen eingesetzt wurde, ist hier schematisch aufgezeichnet. Die Lichtquelle wird aus einem He-Ne-Lasers (L:HeNe), einem Neutraldichtefilter (F), einem Polarisationsfilter (P) und einem  $\lambda/4$ -Plättchen (L/4) gebildet. Anschließend folgen Polarisator und Compensator der Ellipsometrie. Ein Klappspiegel, der zur Einkopplung des Ablationslaserlichts benötigt wird, ist aus dem Lichtweg geklappt. Durch ein bedampftes Vakuumfenster (hier nicht eingezeichnet) wird der Strahl auf das Substrat (Sub) gelenkt. Nach der Reflexion tritt der Strahl wieder durch ein bedampftes Fenster aus der Vakuumapparatur aus. Er wird schließlich durch den Analysator (A) zur Intensitätsmeseinheit geführt. Diese besteht aus einem Lichtleiter (LL), einem Rotfilter (RF) und einem Photomultiplier (PM). Der Ablationslaser (L:NdYAG) ist während dieser Zeit ausgeschaltet. Wäre er dennoch an, so würde sein Lichtstrahl über zwei dielektrische Spiegel (Sp, und KSp) auf eine definierte Fläche geleitet, die durch die Laserleistung nicht zerstört werden kann und die weitere Reflexion ausschließt.

durch doppelbrechende Eigenschaften, das Ellipsometriesignal verfremden können. Fenster der Vakuumapparatur wurden bedampft, so wurde im Bereich von 632 nm des He-Ne-Laserlichts die Abhängigkeit der Reflexion- und Transmission von der Polarisation des Lichtstrahl weiter reduziert. Nach der Reflexion am Substrat unter einem Einfallswinkel von  $\approx 60^\circ$  tritt der Strahl durch ein wiederum bedampftes Vakuumfenster aus der UHV-Kammer aus. Mit dem anschließenden Analysator wird die Intensität minimiert. Gemessen wird die Intensität schließlich mit einem Photomultiplier.

Zu jeder Messphase wurden Referenzdaten für die Ellipsometrie mit nicht radioaktivem Krypton erstellt (s. Abb. 5.12). Zur Ermittlung der Parameter wurde ein iteratives Verfahren gewählt. Erst werden die Messpunkte nächstgelegenen Punkten auf einer theoretischen Kurve aus Startwerten zugeordnet, und so die erste Abschätzung der Dicken ermittelt. Dann wird die theoretische Kurve an die Messwerte angepasst und wieder die zugehörigen Dicken ermittelt. Dieser Prozess wird iterativ wiederholt, bis keine wesentliche Verbesserung des  $\chi^2$ -Wertes mehr auftritt. Es ergaben sich beispielsweise für die zweite Hälfte der Messphase 2006 bei einen



nichtreduzierten  $\chi^2= 273$  und 29 (A,P)-Paaren folgende Werte<sup>3</sup>:

$$\Phi_0 = 60,12^\circ \pm 0,02^\circ \quad (5.17)$$

$$Re(N1) = 1,2707 \pm 0,0003 \quad (5.18)$$

$$Im(N1) = 0,0370 \pm 0,0004 \quad (5.19)$$

$$Re(N2) = 2,647 \pm 0,004 \quad (5.20)$$

$$Im(N2) = -0,938 \pm 0,003 \quad (5.21)$$

Ausgehend von den (A,P)-Paaren ergeben sich beim Fit Unsicherheiten aller Parameter. Bei der Bestimmung der Dicke gehen all diese Unsicherheiten mit ein, da bei veränderten Parametern eine andere Dicke resultiert. Eine Abschätzung des Einflusses der Unsicherheiten der einzelnen Parameter auf die Unsicherheit in der Dicke wird dadurch errechnet, indem ein Parameter im Rahmen seiner Unsicherheit variiert wird und alle anderen konstant gehalten werden. Die jeweilige Veränderung der Dicke wird als Unsicherheit der Dicke bezüglich des variierten Parameters angegeben. Der Einfluss der Parameter ist selbst zusätzlich abhängig von der Dicke. Unterhalb von 1000 Å ergeben sich folgende Obergrenzen für die Einzelfehler aus den Unsicherheiten der Parameter:

$$\Delta d_{\Delta\Phi} < \pm 0,7 \text{ \AA} \quad (5.22)$$

$$\Delta d_{\Delta N_1} < \pm 4,8 \text{ \AA} \quad (5.23)$$

$$\Delta d_{\Delta N_2} < \pm 1 \text{ \AA} \quad (5.24)$$

$$\Delta d_{\Delta P} < \pm 1,8 \text{ \AA} \quad (5.25)$$

Bei kleinen Dicken bis etwa 320 Å dominiert der Fehler von  $\Delta d_{\Delta P}=1,5$  Å, dann steigt die Unsicherheit in Abhängigkeit von der Unsicherheit von  $N_1$  stark an. Bei großen Dicken von etwa 2000 Å überwiegt dieser Einfluss von  $\Delta d_{\Delta N_1}=9,5$  Å schliesslich gänzlich.

Der Gesamtfehler für Dicken bis etwa 1000 Å ergibt sich aus quadratischer Addition zu:

$$\Delta d_{tot} < 5,7 \text{ \AA} \quad (5.26)$$

Ellipsometriemessung sind in ihrer räumlichen Ausdehnung auf die Größe des Laserspots beschränkt. Die erhaltene Größe ist immer nur ein Mittelwert über die abgetastete Fläche.

Im Submonolagenbereich ist das beschriebene Modell begrenzt gültig. Bei sehr dünnen Schichten ist der Polarisator weit sensitiver als der Analysator, sodass auf die Variation des Analysators verzichtet werden kann. Nach [Dig77] ergibt sich unter Annahme eines mikroskopischen Modells für eine  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  Monolage Krypton auf

<sup>3</sup>Die Differenz des  $\chi^2$  zum letzten Iterationsschritt betrug 5.

Graphit mit dem Brechungsindex  $n_c = 2,73 - i 1,4$  bei  $\lambda = 6328 \text{ \AA}$  und einem Einfallswinkel von  $60^\circ$  eine Veränderung von  $\Delta$  um  $0,262^\circ$ , d.h. eine Veränderung von  $P$  um  $0,131^\circ$  (s. auch [Vol89]).

Jede Belegung des Substrats auch durch Restgas oder Zerstörung durch Ablation führt bei hinreichender Größe zu einer Veränderung des Paares (A,P). Dadurch wird eine Kontrolle der Reinheit des Substrats möglich. Eine Bedeckung mit einer Monolage Deuterium zum Vergleich bedeutet eine Veränderung von  $0,07^\circ$  ([Prz95]). Erst ab einer Bedeckung von 1,2 ML wird die Ellipsometrie sensitiv auf Restgas. Veränderungen der Linienposition von adsorbierten  $^{83m}\text{Kr}$  werden aber bereits bei Submonolagen von Wasserstoff erwartet. Linienpositionsveränderungen sind also möglich, ohne dass eine Änderung der Ellipsometriedaten aufgenommen werden. Im Falle einer fortlaufenden Verschmutzung kann die Restgasadsorption anhand von Ellipsometriedaten aber aufgedeckt werden.

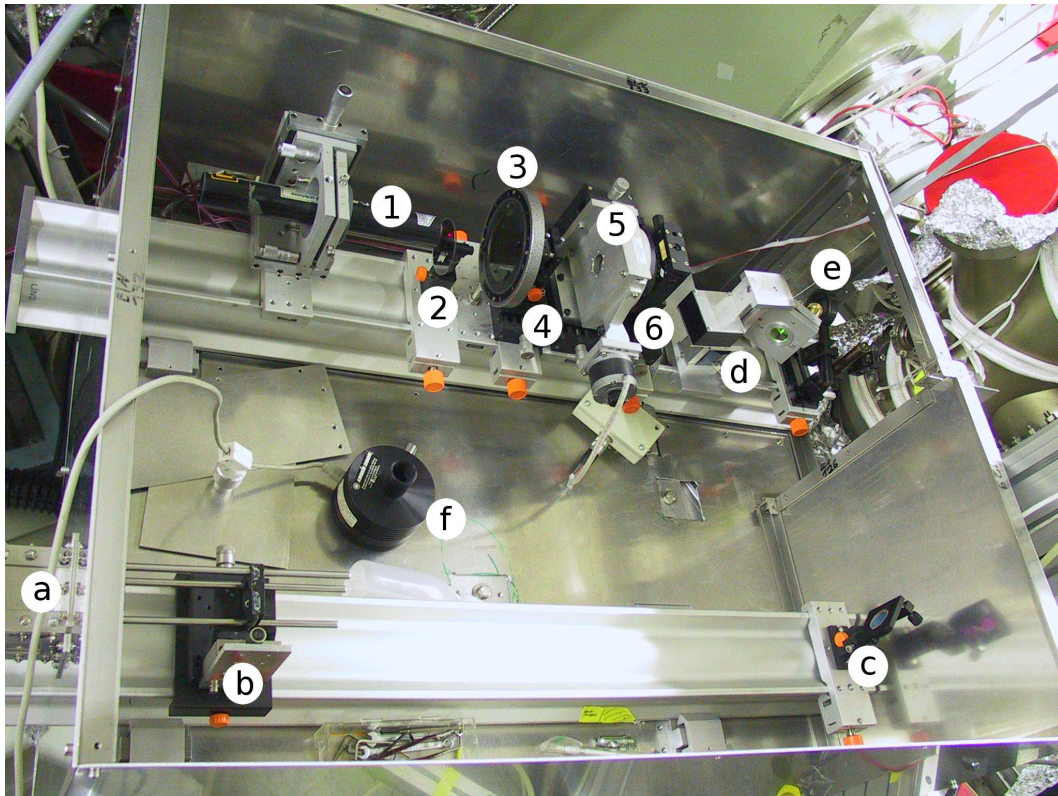
### 5.5.2 Ablation

Zur Reinigung des Substrats von Restgas und Krypton wurde ein Ablationslaser eingesetzt. Diese Reinigungsmethode ergänzt die andere Reinigungsmethode durch einen Widerstandsheizler, der den gesamten Substratbereich heizen kann. Der Vorteil der Ablationsreinigung insbesondere im Zusammenhang mit HOPG liegt darin, dass nur die Oberfläche kurzzeitig geheizt und gereinigt wird, die vom Laserstrahl unmittelbar getroffen wird. Damit sind auf kleinstem Raum hohe Temperaturen möglich. Das Substrat kann so gereinigt werden, ohne Restgas aus den umgebenden Oberflächen zu lösen oder auch ohne den Kleber, mit dem das Substrat an seinem Halter befestigt ist, zu belasten. Bei Ablationsreinigungen besteht allerdings die Gefahr, dass das Substrat zerstört werden kann, weshalb die minimal notwendige Intensität eingesetzt werden sollte.

Zur Ablation wurde ein gepulster frequenzverdoppelter NdYAG mit einer maximalen Pulsleistung von 2J in 4,5 ns eingesetzt. Das Strahlprofil wurde mit einem Linsennaray im Abstand von 8 cm zur Laseraustrittöffnung homogenisiert. Im Abstand von ca. 1,2 m wurde der Strahl nach zweimaligem Umlenken durch dielektrische Hochleistungsspiegel durch eine Apertur mit einem Durchmesser von ca.  $d = 1 \text{ cm}$  gelenkt und mit einem bolometrischen Powermeter vermessen, bevor der Strahl dann auf das Substrat weitergeleitet wurde, welches in einem Abstand von etwa 20 cm stand. Die gemessenen, zeitlich gemittelten Leistungen<sup>4</sup> betragen zwischen 100 mW und 300 mW/cm<sup>2</sup>. Am Substrat kam nach weiterer Divergenz höchstens die Hälfte des Lichtspots an, der Rest wurde vom Strahlungsschild ausgeblendet. 100 mW/cm<sup>2</sup> entsprechen bei einer Repetitionsrate von 10 Hz jeweils 10 mJ im Puls der Länge 5 ns, d.h. einer Leistung von 2 MW/cm<sup>2</sup> im Puls. Ab dieser Leistungsschwelle war eine Reaktion des Ellipsometriesignals zu beobachten. Mikroskopaufnahmen nach der Messreihe haben keine Zerstörungsanzeichen des Graphits gezeigt. Auch [Vol89] wiesen auf eine Zerstörschwelle über 25 mJ/1mm in 3 ns bei ZYA-Graphit hin, so

---

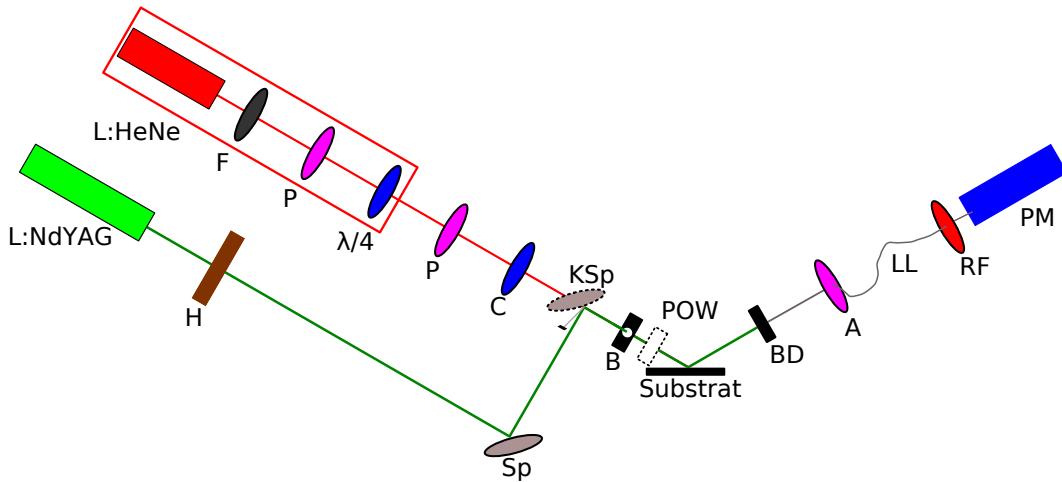
<sup>4</sup>Zu Testzwecken wurden bis zu 700 mW auf das Substrat weitergelenkt. Es wurden mit dem Mikroskop keine groben Schäden entdeckt.



**Abbildung 5.14: Der Optikaufbau** auf Seiten des einfallenden Lichts ist hier photographiert. Auf der oberen Schiene sieht man die Komponenten der Ellipsometrie: 1) He-Ne-Laser, 2) Neutraldichtfilter, 3) Polarisator, 4)  $\lambda/4$ -Plättchen, 5) Polarisator und 6) Compensator. Der Ablationslaser (a) befindet sich auf der unteren Schiene. 8 cm vor ihm ist der Homogenisierer (b) in die Mikrobankkomponenten eingebaut. Am Ende der Schiene wird der Strahl über einen dielektrischen Hochleistungsspiegel (c) in Richtung der Ellipsometrieschiene gelenkt. Auf dieser steht ein Klappspiegel (d), der entweder den Ablationsstrahl zum Substrat hin einkoppeln kann, oder den Lichtweg für die Ellipsometrie freihalten kann. Zwischen Klappspiegel und Fenster der Vakuumapparatur ist eine Blende (e) eingebracht, die die Reflexionen der Spiegelränder ausblendet. Hinter der Appertur befindet sich eine Halterung, in die der bolometrische Leistungsmesser (f) vor jedem Ablationsvorgang eingesteckt wurde, um die aktuelle Laserleistung zu bestimmen und im Bedarfsfall zu regulieren.

dass eine Zerstörung nicht zu erwarten war.

Die Leistung wurde über die Abstände von Homogenisierer, Laser und Substrat geregelt, indem die Divergenz des Strahls ab dem Homogenisierer genutzt wurde. Die laserinterne Möglichkeit der Leistungsreduzierung durch die Variation der Q-Switch-Flash-Lamp-Delay-Zeit wurde nach Möglichkeit umgangen. Die QS-FL-Delay-Zeit wurde auf  $295 \mu\text{s}$  belassen, was der maximalen Laserleistung entspricht. So sollten die Schwankungen der Leistung der einzelnen Pulse insbesondere hin zu höheren Leistungen limitiert werden, um eine Zerstörung der Graphitoberfläche zu verhin-



**Abbildung 5.15: Der Ablationsaufbau**, wie er in diesen Messungen eingesetzt wurde, ist hier schematisch aufgezeichnet. Der Ablationslaserstrahl wird in einem Abstand von 8 cm zur Lichtaustrittsöffnung des Lasergehäuses durch einen Homogenisierer gelenkt. Dann wird der Strahl mittels eines dielektrischen Spiegels (Sp) und einem Klappspiegel (KSp) eingekoppelt. Vor jeder Ablation wurde die Laserleistung nach der Passage einer Blende (B) mit einem Leistungsmessgerät (POW) gemessen. Das Leistungsmessgerät wurde dann aus dem Strahlengang entfernt und das Ablationslicht zum Substrat gelassen. Der Analysator (A) und der Photomultiplier (PM) wurden durch eine doppelte Abdeckung vor am Substrat reflektierten Licht geschützt. Die Komponenten der Ellipsometrie entsprechen denen aus Abb. 5.13.

dern.

Durch Beschuss mit gepulstem intensivem Laserlicht können Adsorbate thermisch vom Substrat abgelöst werden<sup>5</sup>. Der Vorteil dieser Reinigungsmethode gerade auf einem nicht isotrop wärmeleitendem Substrat liegt darin, dass nur die Oberfläche des Substrats geheizt werden kann, ohne weitere Adsorbate aus umliegenden Oberflächen zu lösen, wie es beispielsweise durch Heizen des gesamten Substrathalters geschieht. Es können sehr hohe Temperaturen erreicht werden. Die Gefahr der Zerstörung des Substrats ist gegeben.

Über einen Klappspiegel lässt sich der Ablationslaserstrahl in das System inkoppeln (s. Abb. 5.15). Der Homogenisierer ebnet die Gauß'förmige Intensitätsverteilung des Laserstrahl mithilfe einer Vielzahl von Mikrolinsen. Der Lichtstrahl wird dadurch zunächst gebündelt. Im Fokus dieses Strahls kann es zu Zerstörungen kommen. Der anschließende Einkoppelspiegel darf also erst hinter diesem Fokus eingebracht werden. Außerdem wird der Strahl durch den Homogenisierer bei größerer Distanz divergent und bestimmt damit die Pulsleistung am Substrat.

Zur Justage wird der He-Ne-Laserstrahl als Hilfsmittel genutzt. Dessen Intensität kann hinreichend gedrosselt werden, damit die Position des Laserspots auf dem Sub-

<sup>5</sup>Bei größerer Laserfluenz tritt eine Vielzahl von Phänomenen hinzu: Neutrale und schwach geladene Gase können erzeugt werden bis hin zu heißen Plasmen. Ebenso können Schmelzprozesse sowie Druck und Schockwellen erzeugt werden [Mau04].

strat mit dem Auge überprüft werden kann. Der eingekoppelte Ablationslaserstrahl wird zunächst mit dem He-Ne-Laserstrahl der Ellipsometrie mithilfe eines weiteren Spiegels zur Verlängerung des Lichtweges hinreichend überlagert. Dieser weitere Spiegel ersetzt in Abb. 5.15 die Blende und das Leistungsmessgerät. Zusätzlich wird überprüft, ob am Ausgangsfenster noch reflektiertes Licht des Ablationslasers austritt. Dann kann davon ausgegangen werden, dass der Ablationsstrahl, das Substrat sicher trifft.

Da pyrolythisches Graphit kein isotropes Wärmeleitungsverhalten zeigt, ist die Ausbreitung der erzeugten Wärme stark richtungsabhängig. Die Heizzone bleibt auf eine kleine Eindringtiefe entlang der Flächennormalen beschränkt. An der Stelle des Substrattemperatursensors war ein Temperaturanstieg von  $< 1$  K zu beobachten, wohingegen bei belegtem Substrat die Druckanzeige der Extraktorröhre mit Ausschlägen von etwa  $1 \cdot 10^{-9}$  mbar bei einem Basisdruck von  $2-3 \cdot 10^{-10}$  mbar reagierte.

Es wurden Messungen gemacht, bei denen das Substrat vollständig ausgeleuchtet werden konnte und solche mit einem auf etwa 2-3 mm Durchmesser reduzierten optischen Zugang<sup>6</sup>. Es zeigte sich in beiden Fällen eine sofortige Erhöhung der Linienlage nach erster Anwendung der Ablation. Die Wärmeausbreitung entlang der Oberfläche muss also hier dazu geführt haben, dass die gesamte relevante Substratoberfläche hinreichend aufgeheizt wurde.

Das Substrat wurde im Standardverfahren mit Ablationsschüssen bei komplettem optischen Zugang zum Substrat über die Dauer von 3 Min. mit  $\approx 10$  mJ/cm<sup>2</sup> pro Puls (5ns) gereinigt. Während der Laserstrahl nicht bewegt wurde, wurde das Substrat vor und zurück bewegt. Das Substrat wurde mehrfach angehalten, sodass die Ränder und die Substratmitte für die Dauer je einer Minute bestrahlt werden konnten. Das Bewegen des Lichtspots über das Substrat hinweg sollte verhindern, dass bestimmte Orte auf dem Substrat immer nur Intensitätsminima der Restwelligkeit des Laserspots sahen. Zur Homogenisierung des ursprünglichen Laserintensitätsprofils wurde ein Mikrolinsenarray eingesetzt. Dieses spaltet den Lichtstrahl in viele Teilstrahlen auf. Im einfachsten Fall und zum Ausleuchten größerer Flächen wird ein nichtabbildender Homogenisierer, der neben dem Linsenarray aus einer bündelnden Einzellinse besteht, verwendet. In der Brennebene der Linse ergibt sich dann ein homogen ausgeleuchtetes Feld. Hier wurde auf die bündelnde Linse verzichtet. Der Lichtstrahl war am Substrat deutlich aufgeweitet und in der Leistung hinreichend reduziert, dass der Strahl nicht zusätzlich gefiltert werden musste, um Zerstörungen am Substrat zu verhindern. Die Dauer bzw. die hohe Anzahl der Ablationsschüsse sollte bewirken, dass sich gelöstes Restgas von anderen Wänden wie dem Strahlungsschild nicht auf das Substrat absetzen.

---

<sup>6</sup>Hierzu ist die Statistik aber gering. Es wurden nur zwei Filme auf diese Weise präpariert.



## Kapitel 6

# Messungen am Mainzer Neutrinomassenspektrometer

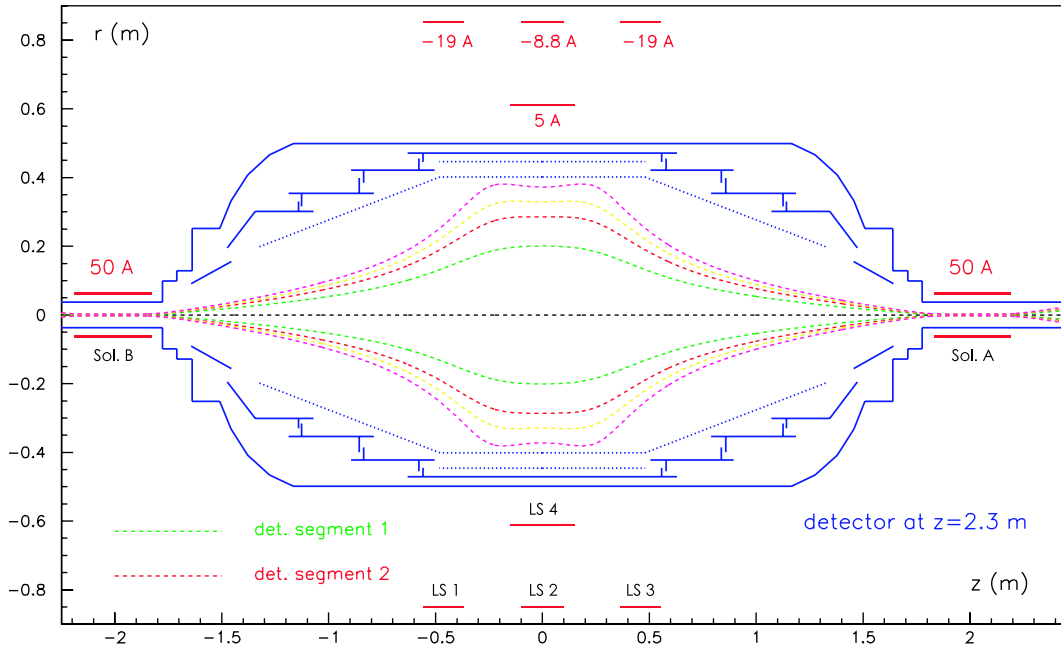
Eine kondensierte  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle kann, wie schon in Kapitel 2 und 3 erwähnt, verschiedene Fragestellungen im Rahmen des KATRIN-Experiments klären helfen.

- 1. Vermessung der Transmissionsfunktion des Hauptspektrometers.**  
Dazu ist eine großflächige oder verfahrbare Quelle mit kurzer Halbwertszeit, starker Zählrate (kHz) und hinreichender Kurzzeitstabilität auf Stunden- bzw. Tagesbasis erwünscht.
- 2. Permanente synchrone Kontrolle der HV-Messung mit dem Präzisionsspannungsteiler und -digitalvoltmeter.**  
Dazu ist ebenfalls eine Quelle mit starker Zählrate und einer Stabilität auf Tagesbasis nötig.
- 3. Langzeitkontrolle der Spannungsteilerdrift von 0,6 ppm/Monat.**  
Bei gleichbleibender Drift kann hier eine lange Zeitachse die Genauigkeit der Stabilitätsüberwachung steigern. Wünschenswert wären zumindest Aussagen zur Drift über die Dauer einer Messperiode von ca. 2 Monaten. Von der Spannungsmessung wird in diesem Zeitfenster eine Verschiebung von 24 meV erwartet. Eine für die Bestimmung der Neutrinomasse kritische Verschiebung von 3 ppm, also 60 meV, werden erst nach 5 Monaten erwartet. Wünschenswert ist es ferner, die Stabilität über die gesamte Messzeit von KATRIN (3 Jahre effektive Messzeit) zu überwachen.

Besondere Schwierigkeiten bei einer Monitorquelle aus  $^{83m}\text{Kr}$  sind einerseits ihre kurze Halbwertszeit von 1,83 h und andererseits die hohen Stabilitätsanforderung von 3 ppm bei 18 keV, d.h. 60 meV, zur Erreichung der angestrebten Sensitivität auf die Neutrinomasse.

## 6.1 Experimenteller Aufbau in Mainz

Die hier vorgestellten Messungen fanden am Mainzer Neutrinomassenspektrometer statt, das in [Kra05] beschrieben ist. Der Spektrometertank hat bei einem Durchmesser von  $d=1$  m eine Länge von 4,02 m (Abstand der Magnetfeldmaxima). Zwischen 2002-4 wurde nach Beendigung der Neutrinomassenmessungen zu Untergrundtestzwecken im Hinblick auf KATRIN die Vielzahl der verwendeten Elektroden durch ein Eielektrodensystem ersetzt und diese Elektrode mit massearmen dünnen Drähten ausgekleidet [Fla04].



**Abbildung 6.1: Die Magnetfeldkonfiguration des Mainzer Neutrinomassenspektrometers** [Thu08] ergab eine Spektrometerauflösung von 0,92 eV für 17,8 keV Elektronen bei einem Magnetfeldverhältnis von 19463:1. In der Analysierebene ergab sich ein Magnetfeld von  $B_{ana}=B_{z=0}=3,09 \cdot 10^{-4}$  T. Das maximale Magnetfeld im Solenoiden B betrug 6,01 T. Die eingezeichneten Flussrohrsegmente entsprechen den vier Detektorsegmenten. Der Detektor befand sich bei  $z=2,3$  m bei einem Magnetfeld von ( $B_D=0,35$  T). Ausgewertet wurde der in grün eingezeichnete Teil des Flussrohrs zur Linienpositionsbestimmung. Zu Analyse Zwecken wurden aber auch die Ereignisse in Detektorsegment 2 und 3 verwendet.

Während für die Neutrinomassenmessungen eine Auflösung von 4,8 eV bei 18 keV eingestellt war, wurde für den Gebrauch als KATRIN-Monitorspektrometer die Auflösung auf 0,9 eV gebracht. Im MAC-E-Filter ist die Auflösung mit Gleichung (2.19) durch das Magnetfeldverhältnis  $\frac{B_{min}}{B_{max}}$  bei gleicher Elektronenenergie gegeben. Die Verfeinerung der Auflösung geschieht nun dadurch, dass die Solenoide einerseits mit 3,3 mal stärkerem Strom betrieben werden, andererseits Korrekturspulen verwendet werden, die die Analysierebene umfassen und deren Feld dem der supraleitenden Solenoiden entgegen gerichtet sind. In Abb. 6.1 ist die magnetische Konfiguration der größtenteils verwendeten Konfiguration dargestellt. Genaue Darstellungen aller ver-



wendeten Magnetfeldkonfigurationen aus Solenoiden und Zusatzspulen finden sich in [Thu08]. Im Jahr 2007 wurde nur mit der dort als Mainz-06-Konfiguration bezeichneten und hier dargestellten Auflösung gearbeitet, mit dem einzigen Unterschied, dass die Quelle aus mechanischen Gründen in einem schwächeren Magnetfeld von 0,77 T anstelle von 4,19 T platziert wurde. Das Abbild der Quelle in der Analysierebene wird dadurch kleiner. Die Detektorposition wurde so gewählt, dass mit der Quelle Detektorsegment 1 und -segment 2 ausgeleuchtet wurden.

Es wurden drei verschiedene Quellfilmpräparationsmethoden ausprobiert:

- Substratreinigung mittels eines Widerstandheizers
- Substratreinigung mittels Ablation
- Filme mit einer Unterlage aus stabilem Krypton

## 6.2 Durchführung der Messungen

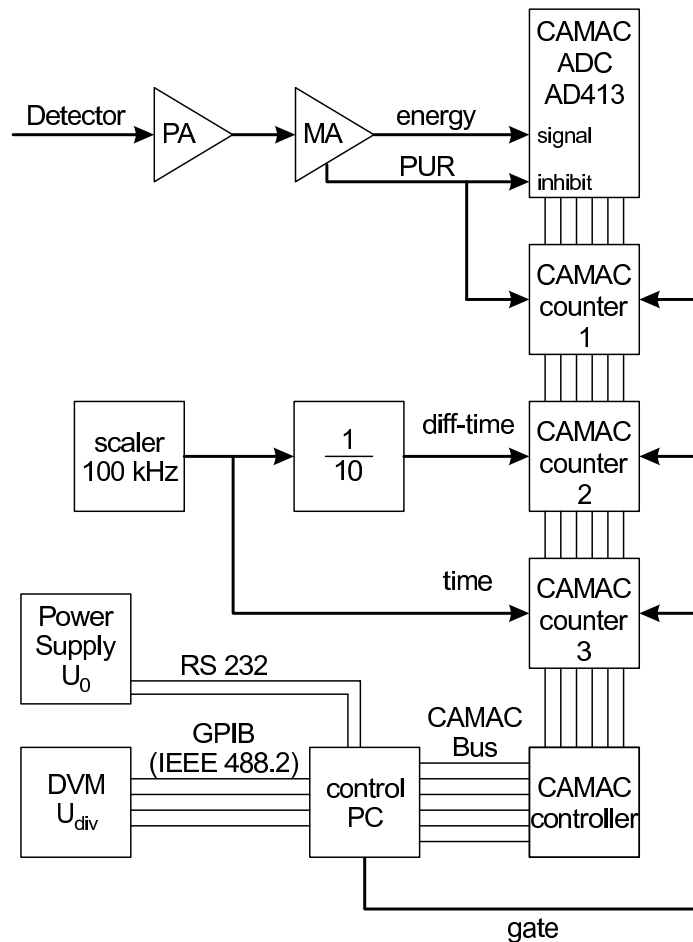
### 6.2.1 Messablauf

Die Spektrometerspannung wurde möglichst frühzeitig in den jeweiligen Messbereich gefahren. Da der Spannungsteiler aber keinen signifikanten Einlaufeffekt zeigte [Thu08], wurden nicht immer die empfohlenen 3 h Einlaufzeit des HV-Netzteils abgewartet.

Jeder Reinigungsprozess wurde mit Ellipsometriemesswerten des zunächst verschmutzten und dann gereinigten Substrats überwacht. Sobald  $^{83m}\text{Kr}$  über die Kapillare zum Substrat eingeleitet wurde, wurde das Substrat aus der Präparationskammer in die Messposition im Spektrometer gebracht und die Messung gestartet. Drücke im Gas-einlasssystem, dem Kryobereich und später auch am Spektrometer wurden kontinuierlich überwacht und mitgeschrieben. Ebenso wurden die Temperaturwerte aller eingesetzten Sensoren im PC über das erweiterte Labview-Programm [Pra05] gespeichert.

Zur Steuerung der Hochspannung und der Koordination der Datenaufnahme wurde das Programm "STEUER" ([Bar91] und [Bar97]) verwendet, welches vor Messbeginn an die neuen HV-Netzteile und das Digitalvoltmeter angepasst wurde. Außerdem wird zur Aufnahme eines  $^{83m}\text{Kr}$ -Spektrums, im Gegensatz zu den Neutrinomassmessungen, nicht mehr die Quellspannung sondern die Retardierungsspannung an den Elektroden variiert. In einer Parameterdatei werden die einzelnen Spannungsstufen mit den jeweiligen Messzeiten eingespeist. Das Steuerprogramm setzt die jeweiligen Spannungswerte und wartet bis eine ausreichende Stabilisierung erreicht ist. Dann wird die Spannung ( $U_{ini}$ ) am Voltmeter ausgelesen. Im Anschluss wird die Zählrate über eine definierte Zeitdauer aufgenommen. Abschließend wird die Spannung am Voltmeter ( $U_{fin}$ ) ein weiteres mal ausgelesen. Diese zweimalige Spannungsauslese ermöglicht es, größere Spannungsschwankungen während der Datenaufnahme zu entdecken. Zur Auswertung wird der Mittelwert aus beiden Messwerten verwendet.

Das Datenaufnahmesystem ist in Abb. 6.2 dargestellt. Von einem ladungsempfindlichen Vorverstärker (PA) werden die Pulse im Detektor verstärkt und anschließend in einem Hauptverstärker (MA) umgeformt und weiter verstärkt. Von dort werden sie zum Analog-Digital-Wandler (ADC) in einem CAMAC-Bussystem weitergegeben. Ereignisse, die mit  $t < 10 \mu\text{s}$  aufeinander folgen, erzeugen im Hauptverstärker ein PUR-Signal ("pile up reject") und verhindern die Aufnahme des Ereignisses, welches vom Hauptverstärker fälschlicherweise nicht zeitlich getrennt sondern als Summensignal ausgegeben werden würde. Die PUR-Ereignisse werden im CAMAC-Zähler Nr. 1 aufgezeichnet. Zur Zeitmessung mit  $10 \mu\text{s}$  Genauigkeit kann ein 100 kHz-Zähler (Scaler) eingesetzt werden, welcher mit dem CAMAC-Zähler Nr. 3 aufgenommen wird. Da die Zählrate bei diesen Messungen unterhalb von 500 Hz blieb, wurde teilweise auf diese sehr genaue Zeitmessung verzichtet und mit der Computeruhr des Steuerrechners ausgewertet. Ein weiterer CAMAC-Zähler zur Messung von Differenzzeiten zwischen zwei Ereignissen (Zähler Nr. 2) wurde hier nicht ausgewertet. Über den Steuerrechner wird zur Aktivierung und Deaktivierung ein "Gate"-Signal



**Abbildung 6.2:** Das Datenaufnahmesystem [Bor00] [Thu08] ist hier schematisch dargestellt. Die Elektronik aus Vor- und Hauptverstärker (PA und MA) ist fünffach identisch aufgebaut, hier aber nur einmal dargestellt. Ausgewertet wurden während dieser Arbeit nur maximal 3 Segmente. Abkürzungen: PA: ladungsempfindlicher Vorverstärker [Sch90], MA: Spektroskopiehauptverstärker (Fa. Silena, Modelle 7612 und 7614), ADC: Vierfach CAMAC-ADC (Fa. EG u. G Ortec, Modell 413), DVM: Präzisionsdigitalvoltmeter (Fa. Fluke, Modell 8508)

an die Zähler gesendet, so dass sie nur innerhalb der Messzeit arbeiten. Der Steuerrechner liest nach jedem Messpunkt die Zähler aus, stellt sie graphisch dar und speichert sie ab.

### 6.2.2 Datenauswertung

Die Energieverteilung der Konversionselektronen wird entweder durch eine reine Lorentzkurve

$$S_l(E, E_0, \Gamma_l) = \frac{1}{\pi} \frac{\frac{1}{2}\Gamma_l}{\frac{1}{4}\Gamma_l^2 + (E - E_0)^2} \quad (6.1)$$

oder, im Falle eines zusätzlichen Gaußanteils,

$$S_g(E, E_0, \Gamma_g) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Gamma_g} \exp^{-\frac{(E-E_0)^2}{2\Gamma_g^2}} \quad (6.2)$$

durch ein Voigtprofil beschrieben:

$$S_v(E, E_0, \Gamma_l, \Gamma_g) = \int S_g(\tau, E_0, \Gamma_g) S_l(E - \tau, E_0, \Gamma_l) d\tau \quad (6.3)$$

Ein MAC-E-Filter hat ein Transmissionsverhalten gemäß Gleichung (2.20) und arbeitet als integrierender Hochpassfilter. Für Konversionselektronen mit einer Energieverteilung einer gewissen Breite bedeutet das, dass der höherenergetische Teil der Elektronen bereits voll transmittiert werden kann, während der niederenergetischere Teil vom Transmissionsverhalten des Spektrometers reduziert wird. Die Rechnerzeit für den Fit reduziert sich deutlich, wenn der voll transmittierte Teil der Elektronen als analytische Formel eingesetzt werden kann. Im Falle einer Voigtkurve wurde nichtsdestotrotz numerisch integriert, im Falle der Lorentzkurve wurde die analytische Form für  $E-E_0 > \Delta E$  eingesetzt:

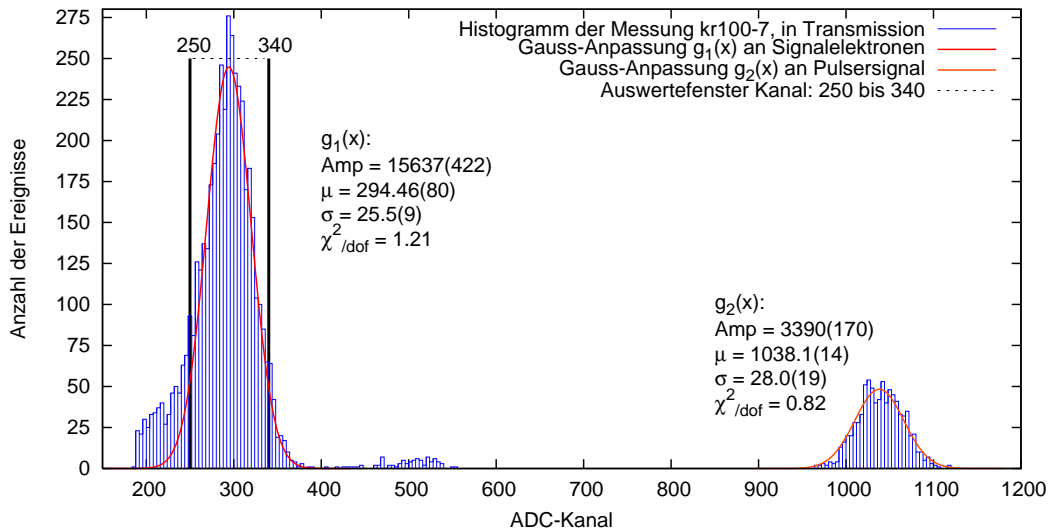
$$\int_E^\infty S_l(E', E_0, \Gamma_l) dE' = \frac{1}{2} - \frac{1}{\pi} \tan^{-1} \left[ \frac{E - E_0}{\frac{1}{2}\Gamma_l} \right] \quad (6.4)$$

Beim Integral über den niederenergetischen Teil der Elektronenlinie muss die Transmissionsfunktion berücksichtigt werden. Dies geschieht in Form einer Faltung der Linienform mit der Transmissionsfunktion (s. Glg. (2.20)). Mit zusätzlicher Berücksichtigung eines konstanten Untergundbeitrages (B) und der Amplitude der Linie (A) ergibt sich folgende Form für die theoretische Form des Spektrums:

$$f(E) = A \cdot S_i(E, E_0, \Gamma_i) \otimes T(E, U_0) + B \quad (6.5)$$

mit  $i \in \{l, v\}$  für Lorentz- oder Voigtverteilungen.

Das elektrische und magnetische Feld im Spektrometer ist in der Analysierebene radial inhomogen. Deshalb wurden beide Feldverläufe numerisch mit dem Programm `elmain.c` und `magmain.c` von F. Glück (beschrieben in [Val04]) berechnet und werden in der Anpassungsroutine berücksichtigt. Um insbesondere dem Potentialdurchgriff in der Analysierebene Rechnung zu tragen, wird die ausgelesene Spannung für jeden Potentialschritt auf den Wert bei  $r=0$  cm normiert und zusätzlich in radialen Schritten von  $\Delta r=1$  cm die Transmissionsfunktion radial gewichtet. Damit ergibt sich eine mittlere Transmission  $\langle T(E, U_0) \rangle$ , die an Stelle der Transmissionsfunktion  $T(E, U_0)$  in Gleichung (6.5) tritt.



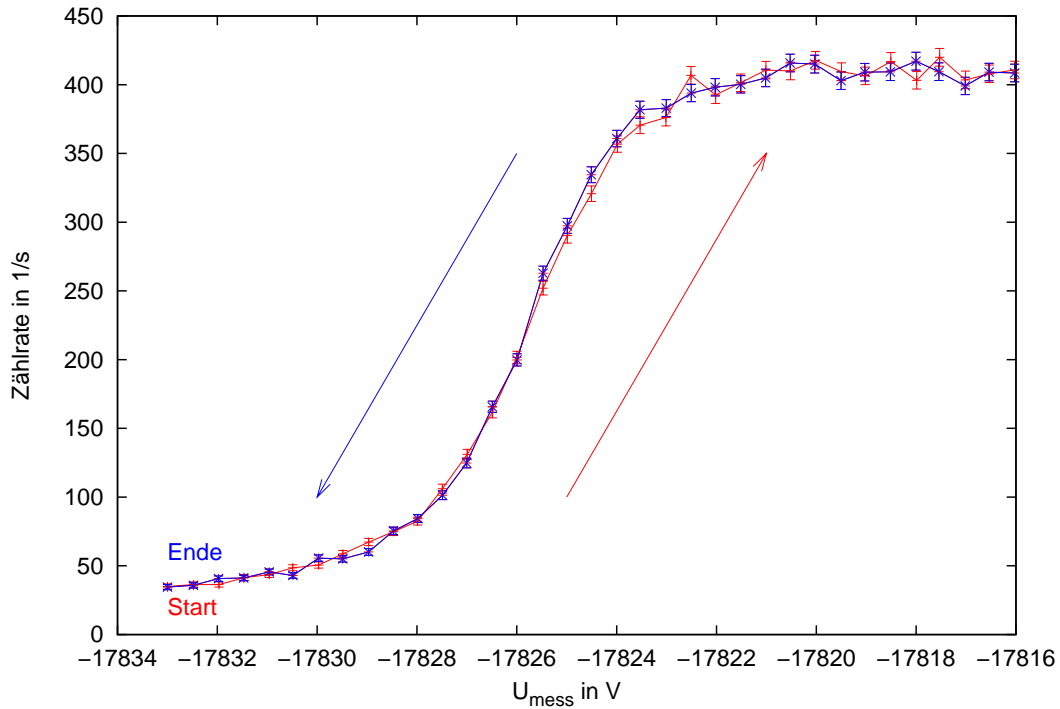
**Abbildung 6.3:** Ein ADC-Rohdatenspektrum [Thu08] ist hier exemplarisch dargestellt. Während der 40 s Messzeit wurde dieses ADC-Spektrum in voller Transmission aufgenommen. Bei Kanal 294 sieht man den Peak der K-Konversionselektronen mit 17,8 keV, um Kanal 1038 befindet sich das Signal des zusätzlich eingekoppelten elektronischen Pulsers. Die Ergebnisse von Gauss-Anpassungen an die Verteilungen sind in der Abbildung mit angegeben. Der K-Konversionselektronenpeak zeigt einen Überschuss an Elektronen auf der niederenergetischen Flanke, welcher der Rückstreuung und den erhöhten Energieverlusten in der Totschicht des Detektors zugeschrieben wird, und bei der Auswertung ausgeklammert wurde. Wenige Ereignisse der höherenergetischen L-, M- und N-Konversionselektronen zeichnen sich um Kanal 500 ab. Das zu erwartende elektronische Rauschen ist bei Kanal 180 abgeschnitten. Zur Auswertung wurden in diesem Fall das Integral der Signalelektronen zwischen Kanal 250 und 340 herangezogen.

### 6.2.3 Rohdatenbearbeitung

Für jeden Spannungswert wird je ein Rohdatenspektrum in jedem Detektorsegment in Form von Energiehistogrammen aufgenommen (s. Abb. 6.3). Zur Bestimmung der Position der Konversionselektronenlinien wurde das innerste Detektorsegment ausgewertet. Wenn die äußeren Detektorsegmente aktiv waren, so konnten sie zur Kontrolle der Justage des Aufbaus verwendet werden. Da die Signallinie eindeutig zuzuordnen war, wurde eine Energieeichung des Detektors nicht durchgeführt. Das Auswertefenster wurde deshalb immer wieder manuell für jede ADC-Messserie angepasst. Ein Pulser wurde während der Messungen mit 20 Hz eingesetzt, mit dem Totzeitkorrekturen oder die Kontrolle über zusätzliches rein elektronisches Rauschen möglich sind.

Innerhalb des Auswertefensters werden alle Ereignisse bei gleichem Spannungswert aufsummiert. Es ergibt sich ein integriertes Spektrum der zu messenden Linie (s. Abb. 6.4). Jede einzelne Messung der Linie besteht aus Folgen von zunächst abfallenden und dann ansteigenden Spannungsbeträgen, sodass das Spektrometer zunächst die Linie sperrt, dann sukzessive transmittiert und wieder sperrt. Zur weiteren Auswertung wird diese doppelte Analyse des Spektrums kom-

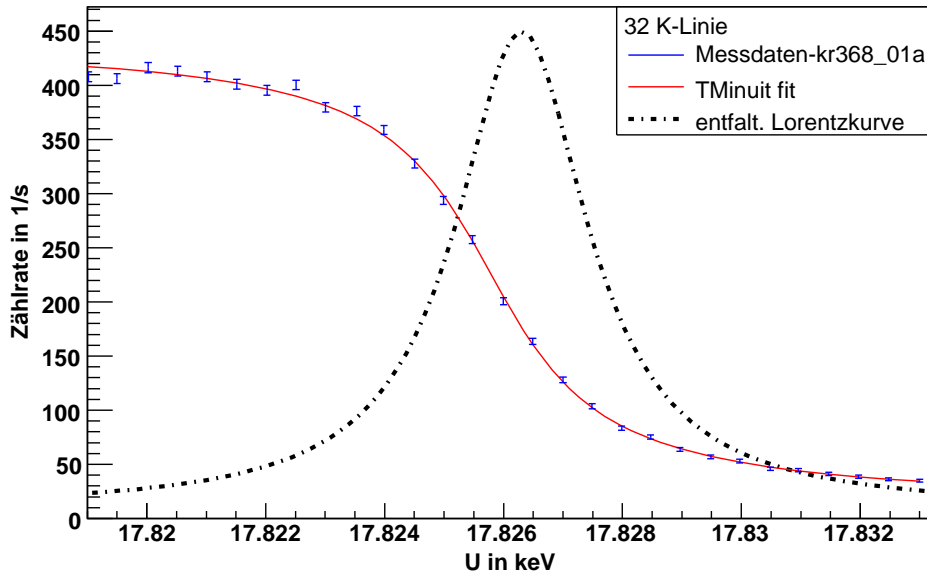
biniert, indem die Mittelwerte über die Spannungsmesswerte für die jeweils gleichen Spannungsschritte und die Zählraten berechnet werden. Dies dient zur Zählratenkorrektur in erster Näherung, da die Filme i.a. keine stabile Amplitude haben: Entweder steigt die Zählrate stark an bis sie ihr Gleichgewicht im Mutter-Tochter-Zerfallsprozess erreicht hat, oder sie klingt langsam mit der Halbwertszeit von  $^{83}\text{Rb}$  oder  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  ab. Ersteres gilt, wenn kontinuierlich  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  nachgeliefert wird, letzteres gilt, wenn die Zufuhr von  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  gestoppt wurde.



**Abbildung 6.4:** Ein integriertes  $^{83\text{m}}\text{Kr}$ -Spektrum ist hier exemplarisch dargestellt. Zu jedem Spannungsschritt werden die Ereignisse im Energieauswertefenster aufsummiert und auf die jeweilige Messzeit normiert. Diese Rate wird dann gegen den mittleren Spannungswert aufgetragen. Eine einzelne Messung beginnt mit einem Spannungswert, bei dem das Spektrometer keine K-Elektronen transmittiert. Sukzessive wird der Spannungswert in 0,5 V Schritten erniedrigt bis das Spektrometer die Linie voll transmittiert (rot). Anschließend wird der Spannungswert wieder in 0,5 V Schritten erhöht bis das Spektrometer die Linie wieder vollkommen sperrt (blau). Diese auf- und abwärts gerichtete Analyse des Spektrums wird zur weiteren Auswertung kombiniert, indem die Mittelwerte für Spannung und Zählrate bestimmt werden.

An diese gemittelten Daten werden dann die theoretischen Kurven, beschrieben in Gleichung (6.5), mit der in Root implementierten Fitroutine TMinuit angepasst. Exemplarisch ist eine solche Anpassung in Abb. 6.5 dargestellt.

Die Spannungsauslese muss einigen Korrekturen unterzogen werden. Gemessen wird die mit dem Spannungsteiler heruntergeteilte Filterspannung im 10-20 V - Bereich des Präzisionsdigitalvoltmeters. Der Maßstabsfaktor  $M$  des Spannungsteilers, die Korrektur des Voltmetermessbereichs  $K$  (s. Anhang) und die Nullpunktverschie-



**Abbildung 6.5:** Ein K-32-Konversionselektronenfit ist hier exemplarisch dargestellt. In blau sind die Zählraten bei den verschiedenen Retardierungsspannungen eingetragen. Die angepasste Kurve einer gefalteten Lorentzkurve ist in rot eingezeichnet. Die gestrichelte Linie ist eine Darstellung der entfaltenen Lorentzkurve.

bung  $U_{offset}$  sowie der Potentialdurchgriff des Spektrometers und Veränderung der Erdfeldkompensationsfelder (s. auch Abschnitt 6.4) müssen berücksichtigt werden. Aus dem gemessenen Spannungswert  $U_{mess}$  ergibt sich der korrigierte Spannungswert ausgehend von [Thu08] nach der Formel:

$$U_{korr} = (U_{mess} - U_{offset}) \cdot K \cdot M \left( 1 + \frac{1}{M} \frac{\partial M}{\partial U} (M \cdot U_{mess} - 20kV) \right) - \frac{1}{q} \partial E_{shift} - \frac{1}{q} \partial E_{Erdf.} \quad (6.6)$$

mit:

K = Korrekturterm aus der Kalibration des Voltmeters  
mit der 10V-Referenzquelle

M = Maßstabsfaktor, in diesem Kapitel verwendet: 1 : 1972,4645

$\frac{U}{M} \frac{\partial M}{\partial U}$  = Spannungsabhängigkeit des Maßstabsfaktors  
 $\approx +0,5$  ppm (L,M,N-Linien des 32 keV Übergangs),  
bzw, -0,3 ppm (9keV-Linien)

$\frac{1}{q} \partial E_{shift}$  = Potentialdurchgang in der Analysierebene auf der Symmetrieachse

$\frac{1}{q} \partial E_{Erdf.}$  = Abschätzung der Änderung des effektiven Potentials  
durch die Erdfeldkorrekturspulen

Die absolute Spannungsabhängigkeit des Maßstabsfaktors  $\frac{\partial M}{\partial U}$ , die in Gleichung (6.6) angegeben ist, wird angegeben ausgehend von einer Referenzspannung von -20 kV. Liegen die Spannungen in diesem Bereich, wie das bei den K-Konversionselektronen der Fall ist, muss dieser Term nicht weiter berücksichtigt werden. Bei Angaben zur relativen und absoluten Position aller anderen Konversionslinien (s. Kapitel 7) darf dieser Term allerdings nicht ignoriert werden.

Die zeitliche Drift des Maßstabsfaktors des Spannungsteilers  $\frac{\partial M}{\partial t}$  nach Glg. (3.12) soll mit den Messungen der  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle kontrolliert werden. Sie wird deshalb in den Angaben zur Stabilität der Linienposition explizit nicht miteingerechnet. Ohne diese Korrektur wird also eine zeitliche Drift hin zu vermeintlich geringeren Elektronenenergien erwartet, die sich auf eben diese zeitliche Drift des Spannungsteilers zurückführen lässt. Bei Angaben zu absoluten Positionen der Linien des Spektrums der Konversionselektronen von  $^{83m}\text{Kr}$  (s. Kapitel 7) wird die zeitliche Drift als lineare Extrapolation der in Glg. (3.12) [Thu08] angegebenen Drift allerdings miteingerechnet.

Beschränkt man sich auf die Kontrolle der Spannungsstabilität der K-Linie reduziert sich Gleichung (6.6) zu

$$U_{\text{korr,red1}} = (U_{\text{mess}} - U_{\text{offset}}) \cdot K \cdot M + \frac{1}{q} \partial E_{\text{shift}} + \frac{1}{q} \partial E_{\text{Erdff.}} \quad (6.7)$$

Verändert man die Erdfeldkompensations-Spulenströme und die Justage der Quelle während der Messungen nicht, so kann auch auf die letzten beiden Terme aus Gleichung (6.7) verzichtet werden.

$$U_{\text{korr,red2}} = (U_{\text{mess}} - U_{\text{offset}}) \cdot K \cdot M \quad (6.8)$$

Der Fehler der Spannungsmessung ergibt sich unter Berücksichtigung aller Korrekturen nach [Thu08] zu:

$$\frac{\Delta U_{\text{korr}}}{U_{\text{korr}}} = \sqrt{\langle \sigma_U \rangle^2 + \langle \sigma_{U_{\text{offset}}} \rangle^2 + (\Delta_{\delta E_{\text{shift}}})^2 + (\Delta_M)^2 + (\Delta_{\partial M / \partial U})^2 + \Delta_{\text{Erdffeld}}^2} \quad (6.9)$$

mit:

$$\begin{aligned} \langle \sigma_U \rangle & : \quad \text{gemittelte Standardabweichung über alle Spannungsmessungen} \\ & = \quad \langle \sigma_{U_{\text{mess}}} \rangle \cdot K \cdot M = 1,2 \text{ ppm} \\ \langle \sigma_{U_{\text{offset}}} \rangle & = \quad 0,6 \text{ ppm} \\ \Delta_{\delta E_{\text{shift}}} \cdot U & \quad \text{mit je 5\% des Potentialdurchhangs} \\ \Delta_M & = \quad 1,8 \text{ ppm} \\ \Delta_{\partial M / \partial U} \cdot U & = \quad 0,006 \cdot \delta U \\ \Delta_{\text{Erdffeld}} & = \quad 2 \text{ ppm} \end{aligned}$$



Um Absolutangaben über die Kernanregungsenergie machen zu können bzw. Vergleiche mit den Konversionselektronenenergien aus gasförmigen  $^{83m}\text{Kr}$  anstellen zu können, muss die Ankopplung der Konversionselektronen an das Spektrometer berücksichtigt werden. Dies bedeutet einerseits die Einbindung die Austrittsarbeiten von Substrat und Filterelektrode (s. Glg. (4.6)) sowie die Bindungsenergien des  $^{83m}\text{Kr}$  ans Substrat ( $\approx$  Spiegelladungsbindung) vor und nach dem Konversionsprozess. Die Messgröße, die kinetische Energie der Elektronen, setzt sich im MAC-E-Filter, zusammenfassend aus Kapitel 4, aus mehreren Termen zusammen:

$$E_{Kin} = E_{\Gamma} + E_{\Gamma,reckst} - E_{b,ads.}^{vak} - E_{e,reckst} - q\Delta U \quad (6.10)$$

$$\Delta U = (\Phi_{filt} - \Phi_{sub}) + qU_{korr} \quad (6.11)$$

Die Energie, die benötigt wird, um ein Elektron aus einer inneren Schale eines adsorbierten Atoms heraus ins Vakuumniveau zu heben, gleicht nur in erster Näherung der, die bei einem freien Gasatom nötig wäre. Der Anfangs- und der Endzustand des Zerfalls liegen durch die Gegenwart des Substrats auf anderen Potentialen als es bei einem freien Atom der Fall ist. Bei elektrisch neutralen Anfangszuständen reduziert sich die Energieverschiebung zwischen freiem Atom und kondensiertem Atom auf die zusätzliche Bindung des geladenen Endzustandes an das Substrat. Dieser Term wird mit dem Modell der Spiegelladung abgeschätzt:

$$E_{b,ads.}^{vak} = E_{b,gas.}^{vak} + \Delta E_{b,ads.}^{vak,i} - \Delta E_{b,ads.}^{vak,f} \quad (6.12)$$

$$\Delta E_{b,ads.}^{vak,i} \approx E_{cond} \quad (6.13)$$

$$\Delta E_{b,ads.}^{vak,f} \approx E_{spiegel} + E_{cond} \quad (6.14)$$

mit:

$$E_{b,ads.}^{vak} = \text{Bindungsenergie bis zu Vakuumniveau des adsorbierten Atoms}$$

$$E_{b,gas.}^{vak} = \text{Bindungsenergie bis zu Vakuumniveau des freien Atoms}$$

$$\Delta E_{b,ads.}^{vak,i} = \text{Änderung der Bindungsenergie des Anfangszustands}$$

durch die Kondensation

$$\Delta E_{b,ads.}^{vak,f} = \text{Änderung der Bindungsenergie des Endzustands}$$

durch die Kondensation

$$E_{spiegel} = \text{Spiegelladungsbindungsenergie}=1,74(23) \text{ eV (s. Abschnitt 6.3.4.3)}$$

$$E_{cond} = \text{Bindungsenergie des kondensierten Zustandes O(100meV) (s. Anh.)}$$

Die dominierenden Unsicherheiten zur Bestimmung eines Absolutwertes sind die Unsicherheiten in der Austrittsarbeitendifferenz von 270 meV und die Unsicherheit in der Größe der Spiegelladung von 230 meV. Gibt man aber nur Unterschiede in den Bindungsenergien an, reduziert sich der Fehler im wesentlichen auf den der Spannung

und der Unsicherheit in der Linie, da die Austrittsarbeit und die Spiegelladung für nahezu alle Schalen annähernd gleich sein sollte. Insbesondere bei der Kontrolle der zeitlichen Stabilität der K-Linie erübrigen sich diese Vergleichswerte.

Zur Überwachung der zeitlichen Drift des Maßstabsfaktors  $M$  können eine Reihe von Positions- und Fehlerangaben gemacht werden, um die Stabilität der Quelle zu charakterisieren. Die im folgenden benutzten Linienpositions- und Fehlerangaben sollen hier zusammengefasst werden.

- $E_{kin,fit}$ ,  $\Delta E_{kin,fit}$  und  $\langle \Delta E_{kin,fit} \rangle$

Jedes Abtasten der Linie führt zu einem integrierten Spektrum wie in Abb. 6.5. Bei der Anpassung der jeweiligen theoretischen Linienform ergibt sich eine Retardierungsspannung  $U_0$ , die der Linienposition entspricht, und eine dazugehörige primäre Unsicherheit  $\Delta U_0$ , die mit einer TMinuit-Fit-Routine erstellt wird. Der erhaltene Spannungswert  $U_0$  wird nach

$$E_{kin,fit} = q \cdot (U_0 - U_{offset}) \cdot M \cdot K \quad (6.15)$$

in eine kinetischen Linienenergie  $E_{kin,fit}$  mit der Unsicherheit

$$\Delta E_{kin,fit} = q \cdot \Delta U_0 \quad (6.16)$$

umgerechnet, wobei für  $M$  ein konstanter Wert von 1972,4645 eingesetzt wurde. Der zeitabhängige  $K$ -Wert wurde mit den 10V-Kalibrationen des Voltmeters erstellt (s. Anhang).

Für mehrere Scans kann man den Mittelwert der einzelnen Unsicherheiten angeben:

$$\langle \Delta E_{kin,fit} \rangle = \frac{\sum_{i=1}^{N_f} \Delta E_{kin,fit,i}}{N_i} \quad (6.17)$$

- $E_{kin,prep}$ ,  $\Delta E_{kin,prep}$ ,  $\sigma_{E_{kin,prep}}$  und  $\bar{\sigma}_{E_{kin,prep}}$

Alle Fitergebnisse zu je einer Filmpräparation, also beispielsweise eines Ablationsvorganges, eines Preplatings oder einer Reinigung des Substrats durch den Widerstandsheizer, können mit ihren Fehlern gewichtet zu ihrem Mittelwert zusammengefasst werden

$$E_{kin,prep} = \langle E_{kin,fit_i} \rangle \quad (6.18)$$

$$= \frac{\sum_i (E_{kin,fit_i} \cdot \omega_{fit,i})}{\Omega_{fit}} \quad (6.19)$$

$$\omega_{fit,i} = \frac{1}{\Delta E_{kin,fit_i}^2} \quad (6.20)$$

$$\Omega_{fit} = \sum_i \omega_{fit,i} \quad (6.21)$$

und haben den Fehler des gewichteten Mittelwerts

$$\Delta E_{kin,prep} = \frac{1}{\sqrt{\Omega_{fit}}} \quad (6.22)$$

Durch das Zusammenfassen mehrerer Aufnahmen wird der statistische Fehler zunehmend reduziert mit

$$\Delta E_{kin,prep} = \frac{\overline{\Delta E_{kin,fit}}}{\sqrt{N_f}} \quad (6.23)$$

reduziert, wobei  $N_f$  die Anzahl der einzelnen Spektromaufnahmen ist.

Die einzelnen  $E_{kin,fit_i}$  können unterschiedlich stark streuen. Um diesem möglichen Beitrag zur Instabilität der Linienposition Rechnung zu tragen, wird die Standardabweichung der Verteilung der  $E_{kin,fit_i}$ :

$$\sigma_{E_{kin,prep}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_f} (E_{kin,fit_i} - \overline{E_{kin,fit}})^2}{N_f}} \quad (6.24)$$

angegeben, wobei hier der ungewichtete Mittelwert  $\overline{E_{kin,fit}}$  eingesetzt wurde.

Will man das Streuverhalten einer ganzen Präparationsmethode charakterisieren kann man auch den Mittelwert der Streuungen  $\sigma_{E_{kin,prep}}$  angeben. Dies ist ein Ausdruck für Instabilitäten die über die statistische Unsicherheit hinausgehen:

$$\overline{\sigma}_{E_{kin,prep}} = \frac{\sum_i \sigma_{E_{kin,prep,i}}}{N} \quad (6.25)$$

- **$E_{kin,meth}$ ,  $\Delta E_{kin,meth}$  und  $\sigma_{E_{kin,meth}}$**

Alle Filmpräparationen, die nach jeweils einer Methode innerhalb einer Messperiode gemacht wurden, also z.B. alle Ablationsfilme aus dem Frühjahr 2007, können wiederum zu ihrem gewichteten Mittelwert

$$E_{kin,meth} = \langle E_{kin,prep_i} \rangle \quad (6.26)$$

$$= \frac{\sum_i (E_{kin,prep_i} \cdot \omega_{prep,i})}{\Omega_{prep}} \quad (6.27)$$

$$\omega_{prep,i} = \frac{1}{\Delta E_{kin,prep_i}^2} \quad (6.28)$$

$$\Omega_{prep} = \sum_i \omega_{prep,i} \quad (6.29)$$

zusammengefasst werden.

Es ergibt sich wieder einerseits der Fehler des gewichteten Mittelwerts,

$$\Delta E_{kin, meth} = \frac{1}{\sqrt{\Omega_{prep}}} \quad (6.30)$$

wobei die Anzahl der Präparationen den statistischen Fehler gemäß  $1/\sqrt{N}$  senkt, und andererseits die Streuung der Verteilung der  $E_{kin, prep_i}$ , welche mit

$$\sigma_{E_{meth}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_p} (E_{kin, prep_i} - \bar{E}_{kin, prep})^2}{N_p}} \quad (6.31)$$

angegeben wird, wobei  $N_p$  die Anzahl der Filmpräparationen mit der jeweiligen Methode innerhalb der Messperiode ist.

Die gemessenen Schwankungen und Unsicherheiten in der Linienposition setzen sich zusammen aus der Präzision der Hochspannungsmessung  $q\Delta U_{korrr}$  (s. 6.9), unidentifizierten Schwankungen  $\Delta E_{kin, stab}$  und der statistischen Unsicherheit  $\Delta E_{kin, stat}$  aus dem TMinuit-Fit:

$$\Delta E_{kin} = \sqrt{(q\Delta U_{korrr})^2 + \Delta E_{kin, stab}^2 + \Delta E_{kin, stat}^2} \quad (6.32)$$

## 6.3 Filmpräparationsmethoden

### 6.3.1 Kontinuierliches Auffrieren nach einer Substratreinigung mit Ablation

#### 6.3.1.1 Halbwertszeit

Die sehr kurze Halbwertszeit von  $^{83m}\text{Kr}$  widerspricht zunächst einer Stabilitätskontrolle der Retardierungsspannung, sei es nun auf der Zeitbasis eines Tritiumruns von 2 Monaten oder der KATRIN-Gesamtlaufzeit von 3 Jahre effektiver Messzeit. Es bieten sich drei Möglichkeiten zur Lösung an:

1. **Verwendung des Rb-Mutterisotops mit einer Halbwertszeit von 86 Tagen** selbst direkt im Strahlengang der Monitorbeamline [Zbo10].  $^{83}\text{Rb}$  wird dazu auf ein Substrat (Al, HOPG) in einer sehr dünnen Schicht aufgedampft oder darin mit geringer Energie implantiert, um Energieverluste durch Streuungen zu minimieren. Vorteile dieses Quelltypus ist der einfache Aufbau bei Raumtemperatur. Es liegt aber eine nicht geringe Schwierigkeit in dem Zurückhalten der entstehenden  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome vor. Die Langzeitstabilität der K-Konversionselektronenenergie wird untersucht [Zbo10].
2. **Aufkondensieren der  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome.** Durch jeden Kondensationsvorgang wird jeweils eine neue Quelle präpariert. Nur wenn eine exakt reproduzierbare Methode der Filmpräparation gefunden wird, so dass sich die Linienpositionen von Filmpräparation zu Filmpräparation nicht mehr als zulässig voneinander unterscheiden und insbesondere keine zeitlichen Driften der Linienpositionen auftreten, kann die Langzeitstabilität der Spannung über die gesamte Messzeit von KATRIN auf diese Weise überprüft werden. Die Halbwertszeit einer Quelle hängt dann von der Halbwertszeit des Mutterisotops  $^{83}\text{Rb}$  ab.
3. **Kontinuierliches Auffrieren der  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome.** Wenn die Zufuhr von  $^{83m}\text{Kr}$  nach der Kondensation einer gewissen Menge nicht gestoppt wird, sondern kontinuierlich weiter aufgefroren wird, bedeutet das ebenfalls ein Ankoppeln an die Halbwertszeit der Mutterisotops  $^{83}\text{Rb}$ . Auf diese Weise ist aufgrund von Restgaseinflüssen aber nicht zu erwarten, dass die Linienposition zeitlich unbegrenzt stabil bleibt. Es ist aber damit möglich das Zeitfenster und damit die statistische Genauigkeit auszuweiten, in dem ohne weitere Intervention durch eine Reingigung kontinuierlich gemessen werden kann. In Abschnitt 6.3.1.2 wird gezeigt, dass mit einer solchen Quelle eine hinreichend stabile Linienposition für die Dauer einer Woche gegeben ist.

Vom 6.4.2007 - 13.4.2007 wurde nach einer einzelnen Quellpräparation mit Ablationsreinigung bei weiterem kontinuierlichen Auffrieren eine Quelle auf ihre Aktivität und Stabilität hin beobachtet. Zu dieser Messung lagen sehr stabile Bedingung für Temperatur und Druck ( $p = 7 \cdot 10^{-10}$  mbar im Kryovolumen außerhalb der Kühlkappen bis  $2 \cdot 10^{-10}$  mbar im Spektrometertank) vor. Anhand der Menge

des aufgefrorenen Restgases innerhalb der Woche Messzeit, welche mittels Ellipsometrie<sup>1</sup> bestimmt wurde, lässt sich nach der Faustformel aus [Wu89]

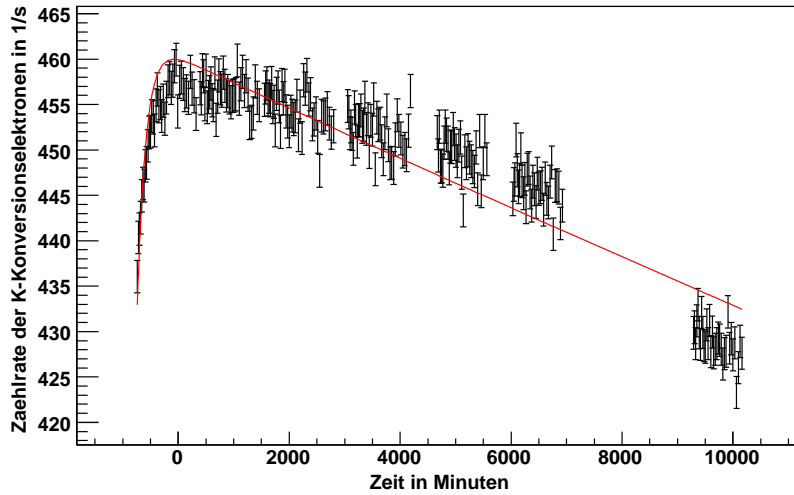
$$p_0 \cdot t_{\text{mono}} = 1\text{s} \cdot 3,6 \cdot 10^{-6} \text{ mbar} = \text{const} \quad (6.33)$$

mit  $t_{\text{mono}}$ : Zeit zur Belegung einer Monolage

der Druck im kalten Substratvolumen abschätzen zu<sup>2</sup>:

$$p_{\text{Substrat}} = p_0 \frac{t_{\text{mono}}}{8,6 \text{ Tage}/2,6} \approx 1 \cdot 10^{-11} \text{ mbar} \quad (6.34)$$

7 1/2 Stunden nach der Präparation begann bei diesem Film das wiederholte Abtasten der Verteilung der K-Konversionselektronen. Die davor vorausgehende Sammelzeit von  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  betrug 25 Minuten. Erst 26 h nach der Filmpräparation hat die Quelle ihre maximale Zählrate erreicht und klingt im Anschluss mit der Halbwertszeit des Rubidiummutterisotops ab (s. Abb. 6.6).



**Abbildung 6.6:** Die Amplitudenentwicklung einer einzigen Quellpräparation wurde über die Dauer einer Woche untersucht. Aufgetragen ist die Amplitude der K-Konversionselektronenlinie gegen die Zeit mit willkürlichem Startzeitpunkt. Die Zählratenentwicklung klingt mit der Halbwertszeit des Mutterisotops Rb ab. Als "rote Linie" ist der Fit nach Formel 6.35 eingezeichnet (s. a. Fließtext). Die Aktivität vom letzten Messblock ist leicht abgesenkt.

Die Zeitentwicklung der Aktivität beim Mutter-Tochter-Zerfall ergibt sich nach folgender Formel, wenn man die Transportzeit von etwa 10 Minuten durch die Kapillare vernachlässigt:

$$A_{Kr}(t) = A_{Kr0} e^{-\lambda_{Kr} t} + R \cdot \frac{\lambda_{Kr}}{\lambda_{Kr} - \lambda_{Rb}} A_{Rb0} (e^{-\lambda_{Rb} t} - e^{-\lambda_{Kr} t}) \quad (6.35)$$

<sup>1</sup> $\Delta P = 0,18(10)^\circ \hat{=} 2,6$  Monolagen Deuterium in 8 Tagen.

<sup>2</sup>Grob vereinfachend wurde hier angenommen, dass das Restgas gleichmäßig auffriert.

mit R: Reduktionsfaktor (s. folgende Auflistung).

Ein Fit ergab eine  $^{83m}\text{Kr}$ -Lebensdauer von 1,88 h und eine Rb-Lebensdauer von 83,8 Tagen. Damit ist die Lebensdauer der kondensierten Kalibrationsquelle in die des Mutterisotops überführt worden<sup>3</sup>. Es ergibt sich eine  $^{83m}\text{Kr}$ -Zählrate von 457 Bq. Um die Effizienz der kondensierten Quelle anzugeben, muss noch der Reduktionsfaktor R angegeben werden:

$$R = \text{BR} \cdot E \cdot \text{Tr} \cdot \text{K(T,p)} \cdot \text{KK} \cdot \frac{\Delta\Omega(\text{B}_{\text{start}})}{4\pi} \cdot D \cdot B \cdot \varepsilon \cdot \Delta\text{ADC} \quad (6.36)$$

mit:

- BR: Verzweungsverhältnis, ca. 75 % der Rubidiumatome erreichen den relevanten  $^{83m}\text{Kr}$ -Zustand
- E:  $^{83m}\text{Kr}$ -Emanation, etwa 20 % des  $^{83m}\text{Kr}$ -Gases verlässt nach [Hil07] das Rb.
- Tr: Verlust auf der Transportstrecke, nur ca. 90 % des Gases zerfallen nicht auf der 10 minütigen Transportstrecke in der Kapillare
- K(T): Kondensationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Substrattemperatur und dem Dampfdruck, 90 % frieren bei 28 K auf
- KK: Konversionskoeffizient für K-Konversion: 25 % von  $^{83m}\text{Kr}$  generiert K-Konversionselektronen
- $\frac{\Delta\Omega}{4\pi}$ : akzeptierter Raumwinkel (s. Glg. (2.17)), 3 % liegt bei  $\text{B}_{\text{start}}=0,7$  T und  $\text{B}_{\text{max}}=6,0$  T an der Quelle vor
- D: Ausleuchtung von Detektorsegment 1: etwa 90-95 % werden mit Detektorsegment 1 gemessen, da 5-10 % bereits mit Segment 2 detektiert werden
- B: Kapillare als Hindernis im Flussschlauch, bis zu 30 % Abdeckung des Quellspots könnte durch die Kapillardüse stattgefunden haben. Dieser Anteil ist eine grobe obere Abschätzung.
- $\varepsilon$ : Detektoreffizienz 90%
- $\Delta$  ADC: Wahl der Auswertekanäle der ADC-Rohdaten, ca. 90%

---

<sup>3</sup>Lässt man den letzten Messblock bei der Analyse weg, verbessert sich das  $\chi^2$  sehr. Die Halbwertszeiten wachsen aber an auf 2,25(6) h für  $^{83m}\text{Kr}$  und 120(1)d für  $^{83}\text{Rb}$ . Eine einfache Erklärung für das verstärkte Absinken der Zählrate könnte ein zwischenzeitliches Schließen des Zufuhrventils sein, welches aber nicht protokolliert wurde. Ein weiterer Unterschied liegt in der unteren Energieschwelle des ADC. Beim letzten Messblock vom 15.4. wurde mehr Rauschen des Detektors mitgeschrieben. Die Pulserereignisse zeigten aber keine Minderung. Eine Schwankung im Emanationsverhalten von  $^{83m}\text{Kr}$  ist nicht auszuschließen.

Ausgehend von einer 12 MBq [Ras] starken Quelle am Tag der Lieferung, dem 20.11.06, bleiben 795 Bq  $^{83m}\text{Kr}$ -Aktivität in der K-Konversionslinie zur Zeit der Messung. Mit 457 Bq tatsächlich gemessener Zählrate liegt also etwa 57 % der möglichen Aktivität vor. Die Unsicherheit dieser Angabe wird dominiert von der Unsicherheit im  $^{83m}\text{Kr}$ -Emanationsverhalten  $\Delta E$ , welches sicher um einen Faktor 2 von Quelle zu Quelle schwankt<sup>4</sup>, und der Abdeckung des Quellspots durch die Kapillare B<sup>5</sup>.

### 6.3.1.2 Stabilität der Elektronenenergie bei einer Woche kontinuierlichem Auffrieren - 2007

Die Quelle wurde über den gesamten Zeitraum vom 6.4. - 13.4. mechanisch nicht bewegt, so dass zur relativen Stabilität in diesem Zeitraum kein relativer Justagefehler hinzukommt. Andererseits konnte auf diese Weise auch keine Ellipsometrie-Kontrollmessung während der Linienscans vorgenommen werden. Der Polarisatorwinkel änderte sich von vor der Messung zu nach der Messung um  $0,18(10)^\circ$ , was der Größenordnung einer Kryptonmonolage entsprechen würde. Dieser Zuwachs kann nicht dem  $^{83m}\text{Kr}$  alleine zugeordnet werden, dem bei 9 Tagen Kr-Aktivität von 450 Bq und 3 % akzeptiertem Raumwinkel nur etwa  $6 \cdot 10^{10}$  Atome entsprechen würden. Wenn man annimmt, dass sich die Atome auf einem Radius von 1,5 mm verteilen, handelt es sich also um etwa 1/1000 einer Monolage. Es muss also angenommen werden, dass sich Restgas auf dem Substrat mit 2-3 Monolagen in der Zeit abgesetzt hat.

Die Energie der K-Konversionselektronen beim Fit mit einer Lorentzkurve (s. Gleichung (6.5)) mit freier Linienbreite schwankt um einen Mittelwert von  $E_{kin,prep}=17826,289(3)$  eV (s. Abb. 6.7)<sup>6</sup>. Die Streuung der Einzelmessungen um das Positionsmittel jedes Messblocks ohne Wichtung liegt bei  $\sigma_{E_{kin,prep}}=19$  meV. Jede einzelne Spektromaufnahme dauerte ca. 20 Minuten.

Die Linienfits hatten im gewichteten Mittel eine Breite von  $\Gamma_l=2,692(4)$  eV. Die Verteilung der Linienbreiten hat eine Standardabweichung von 62 meV um den ungewichteten Mittelwert. Die Schwankung der gefitteten Breiten ist damit sehr klein und ohne wesentlichen Einfluss auf die Linienposition.

Fixiert man die Linienbreite auf 2,7 eV, so ist der gewichtete Mittelwert der Position  $E_{kin,prep}=17826,281(1)$  eV<sup>7</sup>. Auch die Mittelungen über Unterblöcke von je 500 Minuten zeigen eine Linienpositionsverteilung mit einer Standardabweichung von 13 meV (s. Abb 6.8). Die Linienpositionen vom ersten Tag der Messung weichen zwar signifikant von denen der nachfolgenden Zeit mit stabilerer Amplitude ab,

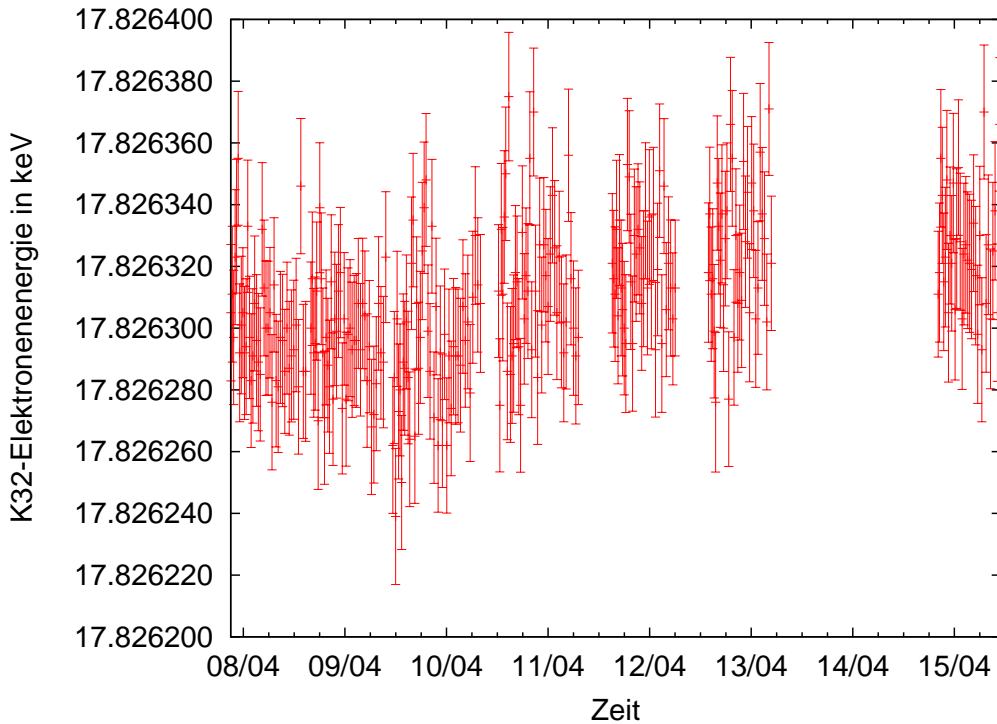
<sup>4</sup>Eine genauere Bestimmung dieser Unsicherheit hiervon wird in [Zbo10] erwartet.

<sup>5</sup>Bei Erhitzen auf etwa  $200^\circ$  zeigte sich nach diesen Messungen, dass die Emanation von  $^{83m}\text{Kr}$  aus dem Rubidiumreservoir um eine knappe Größenordnung gesteigert werden konnte. Damit steigt die Zählrate der K-Konversionselektronen gleichsam um denselben Faktor. Genaue Angaben und die Messergebnisse werden in [Zbo10] diskutiert werden.

<sup>6</sup>Dieser Wert entspricht  $E_{kin,prep}$  nach Gleichung (6.21) und die Angabe der Unsicherheit in Klammern entspricht  $\Delta E_{kin,prep}$  nach Gleichung (6.22). Es wurde nach einem  $\chi^2$ -Test mit 5% Wahrscheinlichkeit bei 24 Freiheitsgraden aus den Primärfits  $E_{kin,fit}$  ausgewählt.

<sup>7</sup>Die Fehlerangabe entspricht  $\Delta E_{kin,prep}$  (s. Glg. (6.22)).





**Abbildung 6.7:** Die Energie der K-Konversionselektronen schwankt um einen Mittelwert von  $E_{kin,prep}=17826,289(3)$  eV bei einem Fit mit frei gelassener Linienbreite der Lorentzkurve. Im nichtgewichteten Mittel variieren die einzelnen Scans um  $\sigma_{E_{kin,prep}}=19$  meV um das Mittel. Hier sind 236 Up/Down-Scans der Linienpositionen dargestellt.

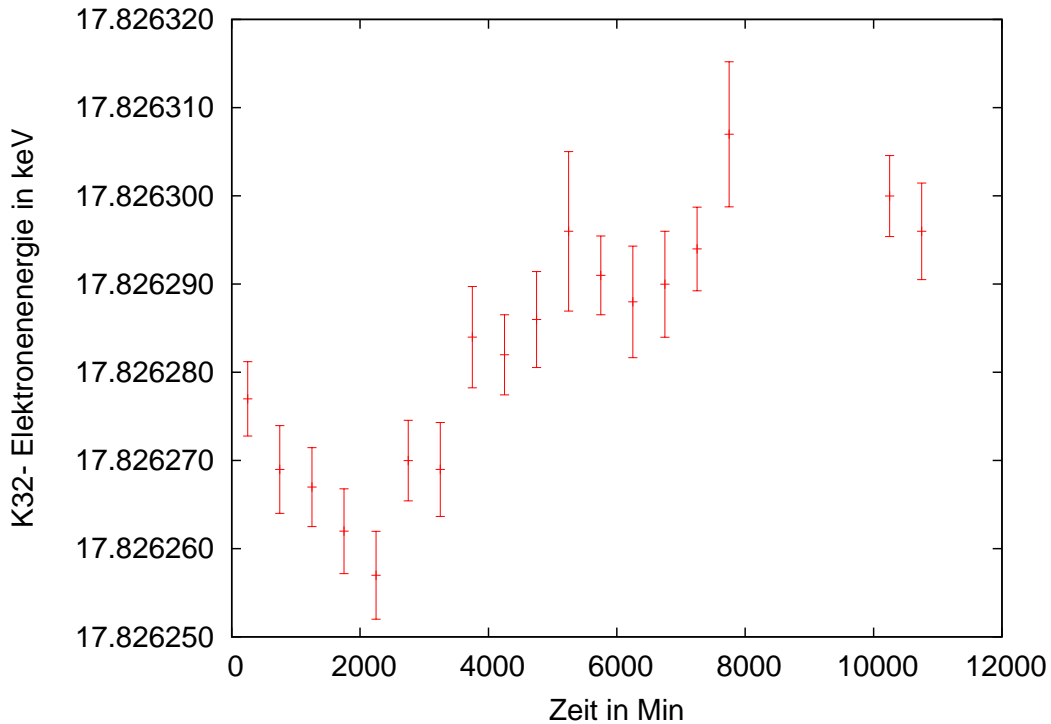
die Schwankung ist für die Stabilitätsanforderungen von KATRIN aber ausreichend klein.

In der zweiten Wochenhälfte (ab der ca. 4000. Minute) ist ein leichtes Ansteigen der Linienposition zu erkennen<sup>8</sup>.

Folgende Veränderungen könnten zu einer Verschiebung der Elektronenenergie führen.

- **Spiegelladungseffekte durch Restgasadsorption** mit dem Substrat könnten die Linienposition erniedrigen. Später aufgefrorenes  $^{83m}\text{Kr}$  würde bei kontinuierlichem Aufdampfen auf einem immer dickeren Preplating aus Restgas auffrieren. Der Abstand zum leitenden Substrat nimmt damit zu und die Spiegelladungsbindung des Endzustands ab. Die Größe der Verschiebung hängt von der Polarisierbarkeit des Restgases ab. Die Verschiebung wäre der Auftreten also entgegengesetzt, solange das Restgas weniger leitend bzw. polarisierbar als das Substrat ist.

<sup>8</sup>Es wurden innerhalb dieser Woche keine weiteren 10V-Kalibrationen des Fluke-Voltmeters vorgenommen.



**Abbildung 6.8:** Die Energie der K32-Elektronen einer einzigen Quellpräparation gebinnt zu 500 Minuten zeigt eine Schwankung zunächst zu niedrigeren, dann zu höheren Energien hin. Das Verhalten ist nicht dominiert von einer Tag-Nachtkorrelation. Bis zur etwa 6000. Minute war Wochenende/Feiertag. Für diese Darstellung wurde die Linienbreite auf 2,7 eV fixiert.

- **Benachbarte Kryptonatome** würden eine Energiesteigerung zur Folge haben, da sie polarisierbares Medium in direktem Kontakt darstellen, und somit der Endzustand aufgrund seiner Ladung stärker gebunden werden kann.
- **Restgaskoadsorbate und deren Veränderung der Austrittsarbeit des HOPG's** könnten die Linienlage unterschiedlich beeinflussen (s. Abschnitt 4.2.1). H und  $C_x-H_x$  als Ko-Adsorbate müssten eine Energieverringerng bedeuten. O und C-Belegungen könnten eine Energiesteigerung bedeuten [Ish91].

Man kann das Verhalten der Linienstabilität dieses einen Films mit ausgedehnter Kondensations- und Messphase über die Dauer einer Woche mit dem Verhalten der übrigen Ablationsfilme vergleichen, um der Frage nachzugehen, ob die lange Kondensationszeit die Linienstabilität beeinträchtigt. Im Falle, dass die Reinigung also mittels Ablation erfolgte, blieb bei allen Filmen die Standardabweichung vom jeweiligen Mittelwert unter  $\sigma_{E_{kin,prep}} < 60$  meV mit einem Mittelwert von  $\bar{\sigma}_{E_{kin,prep}} = 27$  meV und einer Verteilungsbreite von 12 meV (s. a. kleine Kreuze in Abb. 6.12 abzulesen an der rechten Ordinate). Die vorgestellte Messung über die Dauer einer Woche stellt mit 19 meV (freie Breite), 17 meV (feste Breite) also einen Film mit einem Standardstreuverhalten dar.

Die gemessenen Schwankungen liegen innerhalb der KATRIN-Anforderungen. Unter

gegebenen Temperatur- ( $T_{Sub}=29(2)\text{K}$ ) und Druckbedingungen ( $p=2\text{-}7\cdot 10^{-10}$  mbar) ist also eine Woche kontinuierliches Auffrieren von  $^{83m}\text{Kr}$  eine mögliche Präparationsmethode, bei der die Stabilitätsbedingungen für KATRIN erfüllt sind. Ohne weitere Reinigung blieb die Quelle auf dieser Zeitskala stabil. Diese Präparationsmethode ist insbesondere als Methode zur direkten Vermessung der Transmissionsfunktion des Hauptspektrometers anwendbar. Zur Erhöhung der Geschwindigkeit der einzelnen Spektromaufnahmen können sowohl eine optimierte Messpunktwahl und als auch eine Zählratenerhöhung durch eine Steigerung des Krypton-Emanationsverhaltens durch Tempern des Rubidiums, durch Optimierung der Geometrie des Kapillarendes und des Substrats [Smo08] sowie Erhöhung der verwendeten  $^{83}\text{Rb}$ -Aktivität oder des  $^{83m}\text{Kr}$ -Ertrags bei gleicher  $^{83}\text{Rb}$ -Aktivität bei anderem  $^{83}\text{Rb}$ -Produktionsprozess angeführt werden.

### 6.3.1.3 Linienbreiten und -positionskorrelation

Die natürliche Linienbreite der  $32\text{-K}$ -Konversionselektronen geht erst aus der Entfaltung mit der Transmissionsfunktion des MAC-E-Filters hervor. Variationen der gemessenen Linienbreite können deshalb sowohl in der Quelle als auch im Spektrometer begründet sein: Auf der einen Seite könnten mögliche Abweichungen der Linienbreite durch die chemische Umgebung der Quelle hervorgerufen werden, z.B. durch einer zusätzliche Variation der Linienposition, die sich auf die Breite überträgt, auf der anderen Seite könnten Fluktuationen der HV die Breite der Linie beeinflussen. Darüberhinaus kann die relative Justage der Quelle zum Spektrometer ebenfalls die Linienbreite verändern, da die Elektronen die Analysierebene an anderer Stelle passieren.

Betrachtet man die Fitergebnisse von Lorentzbreite und Position, so ist durchaus eine leichte Korrelation zu erkennen (s. Abb. 6.9). Die Ausprägung dieser Korrelation hängt u.a. von der Auflösung des Spektrometers ab, je höher die Auflösung um so stärker die Korrelation. Bei einer Auflösung von  $\frac{\Delta E}{E} \cdot E_{\text{kin}}=0,9$  eV bei  $E_{\text{kin}}=18$  keV ergibt der Fit eine Steigung von

$$\frac{\Delta E}{\Delta \Gamma_l} = 13(4) \text{ meV}/0,1 \text{ eV} \quad (6.37)$$

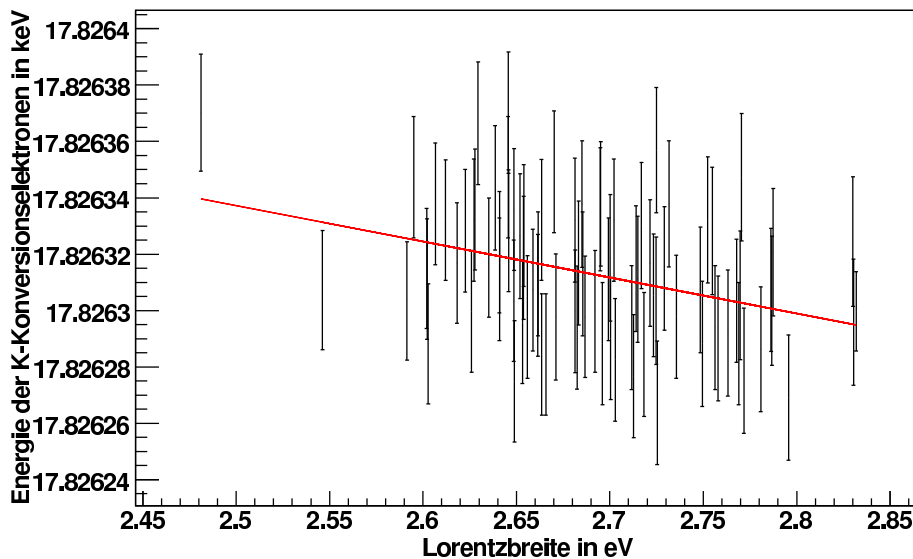
Die Fehler der Linienbreite beim Fixieren der Linienbreite liegen i.a. im Mittel bei 60 meV also deutlich unter 0,1 eV. Mehr als ein Fehler von 13 meV werden also für die Positionsbestimmung nicht erwartet.

Im Falle von Fits mit fixierter Linienbreite auf 2,7 eV [Cam01] ergab sich ein Wert von 17826,281(1) eV unter Berücksichtigung der Voltmeterkalibration. Der Unterschied der Fitposition zwischen dem Fit freier Breite und dem fixierter Breite auf 2,7 eV lag bei 8 meV.

Es ist praktisch nicht zu entscheiden, ob eine Positionsveränderung der Linie auf eine Breitenveränderung der Linie durch Quellveränderungen oder aufgrund von Veränderungen am Spektrometer und seiner HV zurückzuführen ist. Wenn die Linienposition aber stabil bleibt, ist es irrelevant, welche Linienbreite den Fits zugrunde gelegt

werden, solange man diese Breite nicht noch zusätzlich variiert, und so unentdeckte Effekte kompensiert. Daneben darf die Breite natürlich den  $\chi^2$ -Wert der Fits nicht zu stark beeinträchtigen. Zur Kontrolle der Linienpositionsstabilität wurde die Breite im Folgenden auf den Mittelwert der Fits freier Breite fixiert.

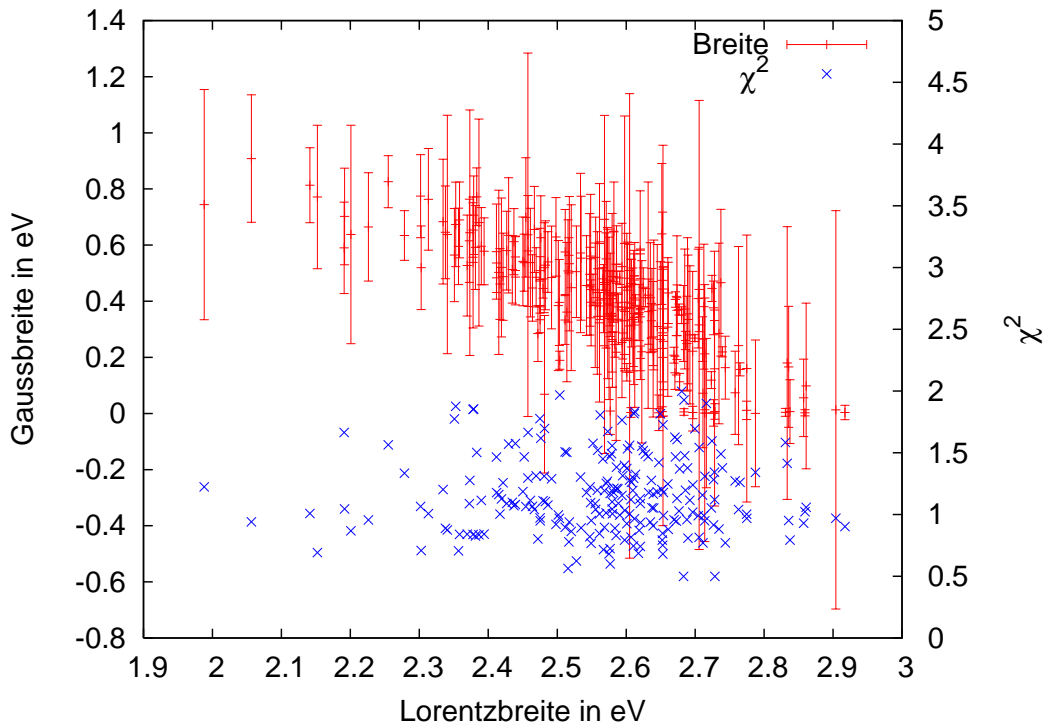
Ob die Stabilität der Linienposition über- oder unterschätzt wird, wenn die Linienbreite fixiert wird, hängt von der Ursache der Breiten- und Positionsvariation ab. Überlagert sich ein weiterer Effekt, wie beispielsweise bei Dejustage der Quelle, welche sowohl die gemessene Breite als auch die Position der K32-Elektronen beeinflusst, und zwar so dass die Energie der Elektronen kleiner wird (weiter außen im Spektrometer geführt) und gleichzeitig die Linie verbreitert wird, dann verringert der Fit mit fester Breite den möglichen Hub der Linienposition. Dies wurde bei Messungen mit absichtlicher Dejustage beobachtet (s. a. Abschnitt zur Dejustage). Wird mit größerer Linienbreite die Linienposition auch größer, müsste der Hub mit festgesetzter Breite größer sein als der mit freier Breite. Das Festsetzen der Breite beim Fit ist also nicht ganz ohne Auswirkung auf die Stabilität der Linienposition. Es handelt sich aber nur um einen Effekt von 13(4) meV bei 0,1 eV Breitenvariation. I.a. liegt die Breitenvariation aber bei 60 meV, ihre Effekte sind also unerheblich für die Spannungskontrolle auf 3 ppm. Für die Aussagen die Stabilität betreffend wurde die Breite im folgenden auf den Mittelwert  $\langle \Gamma_l \rangle = 2,7$  eV fixiert, der sich aus allen Fits mit freier Lorentzbreite von den Ablationsfilmen bei 0,92 eV Auflösung (bei 18 keV) ergab und in Übereinstimmung mit [Cam01] ist.



**Abbildung 6.9:** Die Ergebnisse der Fits zu Position und Breite der Linie sind korreliert. Dargestellt sind hier die Messwerte der zuvor (s. Abb. 6.7) präsentierten Messung, bei der für eine Woche  $^{83m}\text{Kr}$  kontinuierlich aufkondensiert wurde: je größer die Breite um so niedriger die Linienposition. Ein Geradenfit ergab eine Steigung von 13(4) meV/0,1 eV Breitenvariation. Bei einer Unterschätzung der Linienbreite von 0,1 eV kommt es zu einer Überschätzung der Linienposition von 13 meV.

### 6.3.1.4 Gaussverbreiterung der Linie

Um die Einflüsse von gaussförmigen Verschmierungen der Linie zu beobachten, wurde ein Voigtprofil an die Daten gefittet. Der Gaussanteil der Linie ist klar mit dem Lorentzanteil (s. Abb. 6.10) korreliert.

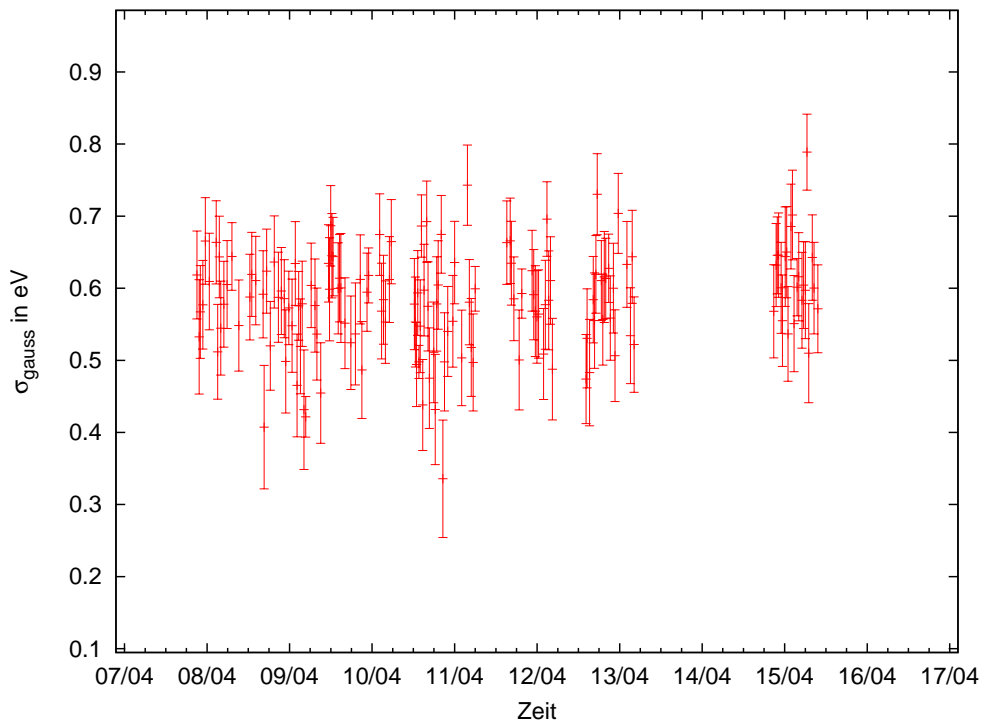


**Abbildung 6.10:** Die Gaussbreite in Abhängigkeit von der Lorentzbreite ist hier aufgetragen (rot). Zusätzlich sind die erhaltenen  $\chi^2$  der Fits auf der zweiten Ordinate aufgetragen (blau).

Hält man den Lorentzanteil der Linie fest auf 2,7 eV (s. Abb. 6.11), kann man nach zeitlichen Entwicklungen des Gaussanteils suchen. Der gaussförmige Anteil der Linienbreite schwankt unter diesen Bedingungen um einen Mittelwert von  $(0,57 \pm 0,17)$  eV.

Gaussverschmierungen der Linie können mehrere Ursachen haben. Von seiten der Quelle sind folgende Gründe denkbar:

- Die  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome lagern sich in unterschiedlichen Abständen zum Substrat an und erfahren so unterschiedliche Spiegelladungen. Würde viel wenig polarisierendes Restgas aufgefroren, so dass die Distanz zur leitenden Unterlage bei kontinuierlicher Kondensation zunimmt, müsste die Schwankung aufgrund der Spiegelladung abnehmen, wie auch die Linienlage in Abhängigkeit von der Polarisierbarkeit des Restgases. Im Laufe der Messung würde man also eine Abnahme des Gaussanteils erwarten.



**Abbildung 6.11:** Die Gaussbreite im Verlauf der Messung, in der eine Woche kontinuierlich  $^{83m}\text{Kr}$  aufkondensiert wurde, zeigt keinen Trend. Die Lorentzbreite wurde festgelegt auf 2,7 eV für die Fits. Man sieht also keine Zunahme an möglichen Koadsorbiermischungen, Spiegelladungstermen und Bindungsplatzwechseln.

- Ionenrümpfe nach dem Zerfall bewegen sich beim Zerfall auf eine andere Bindungsstelle. Die Bindungsenergieunterschiede zwischen den einzelnen Kr-Graphit-Bindungsplätzen bewegt sich unterhalb von 10 meV (s. Kapitel 4). Tritt Restgas mit dazu können sich diese Differenzen natürlich ändern.
- Wenn sich eine Restgasmischung als Koadsorbate zu den  $^{83m}\text{Kr}$ -Atomen hinzugesellt, ändert sich die Austrittsarbeit. Bereiche eingeteilt in reines Kr-Graphit, Kr-Graphit-Restgas, Kr-Restgas könnten drei verschiedene Gaussschwankungscharakteristika aufzeigen. Es könnten sich also drei voneinander abgehobene zeitliche Bereiche ergeben.
- Das Substrat bietet durch seine Reistrauhigkeit per se schon unterschiedliche Austrittsarbeiten an. Dies läuft bei Monolagenstufen auf Schwankungen im 20 meV (s. Abschnitte 4) Bereich hinaus, was wieder um einen Faktor 25 zu klein ist, um den Gaussanteil zu erklären.

Quellunabhängige Schwankungen lassen sich ebenfalls benennen:

- Von Seiten des Spektrometers gehen eventuell annäherungsweise gaussartige Schwankung durch Schwingungen in der HV ein, die von der HV-Messung zeitlich nicht aufgelöst werden. Da nur vor und nach jedem Messpunkt die

Spannung mit dem Spannungsteiler ermittelt wurde. Die Repetitionsrate dieser Messung bleibt auch in Zukunft limitiert auf die Integrationszeit des Voltmeters von 2s. Die eingesetzten HV-Versorgungen haben eine Restwelligkeit von  $20 \text{ mV}_{SS}$  bzw.  $50 \text{ mV}_{SS}$  [Thu08]. Dies stellt keinen erheblichen Anteil der gefundenen Fluktuation dar.

Der Potentialdurchgriff in der Analysierebene von 371 meV wird in der Fitroutine berücksichtigt. Bei unterschiedliche Radien in Schritten von 1 cm werden unterschiedliche Abweichungen vom Potentialwert auf der Symmetrieachse berechnet. Für jeden Radius ergibt sich damit eine leicht andere Transmissionsfunktion. Die integrale Transmissionsfunktion erfährt somit eine Verbreiterung aufgrund des Potentialdurchgriffs. Der Potentialdurchgriff im ersten Detektorsegment beträgt  $< 90 \text{ meV}$ .

- Auch sind Variationen der Magnetfelder der Zusatzspulen und Erdfeldkorrekturspulen sowie der Einfluss benachbarter Labors mit starken Magneten denkbar. Letzteres wurde untersucht und gab im Mainzer Labor keinen Einfluss. Variationen der Erdfeldkorrekturspulen-Ströme werden während einer einzelnen Messung sicher im Rahmen von 1A, d.h  $8 \mu\text{T}$  im relevanten Fluss Schlauchbereich sein. Eine Verschiebung der Linienposition wird aufgrunddessen nicht erwartet.
- Eine weitere Unbekannte ist die Austrittsarbeit der Retardierungselektroden. Die Austrittsarbeit von Edelstahl ist nur auf 200 meV bekannt [Pic90], was aber im wesentlichen auf die undefinierte Oberfläche von Edelstahl, dessen Oberflächenrauigkeit und -belegung zurückführbar ist. Der erwartungsgemäß stabile eingelaufene Zustand des Spektrometervakuums, lässt wenig zeitliche Schwankungen erwarten.

Es ist keine zeitliche Entwicklung der Linienposition innerhalb einer Woche Messzeit nach nur einer einzelnen Ablationspräparation zu beobachten. Unterschiedliche Bindungsenergien ( $< 30 \text{ meV}^9$ ) bleiben hinter möglichen Veränderung aufgrund von Spiegelladungseffekten ( $< 230 \text{ meV}^{10}$ ) zurück, sowie der möglichen Verbreiterung durch den Potentialdurchgang in der Analysierebene ( $\approx 100 \text{ meV}$ )<sup>11</sup>. In der quadratischen Summe ergäben sich Gaussbreiten von maximal 250 meV.

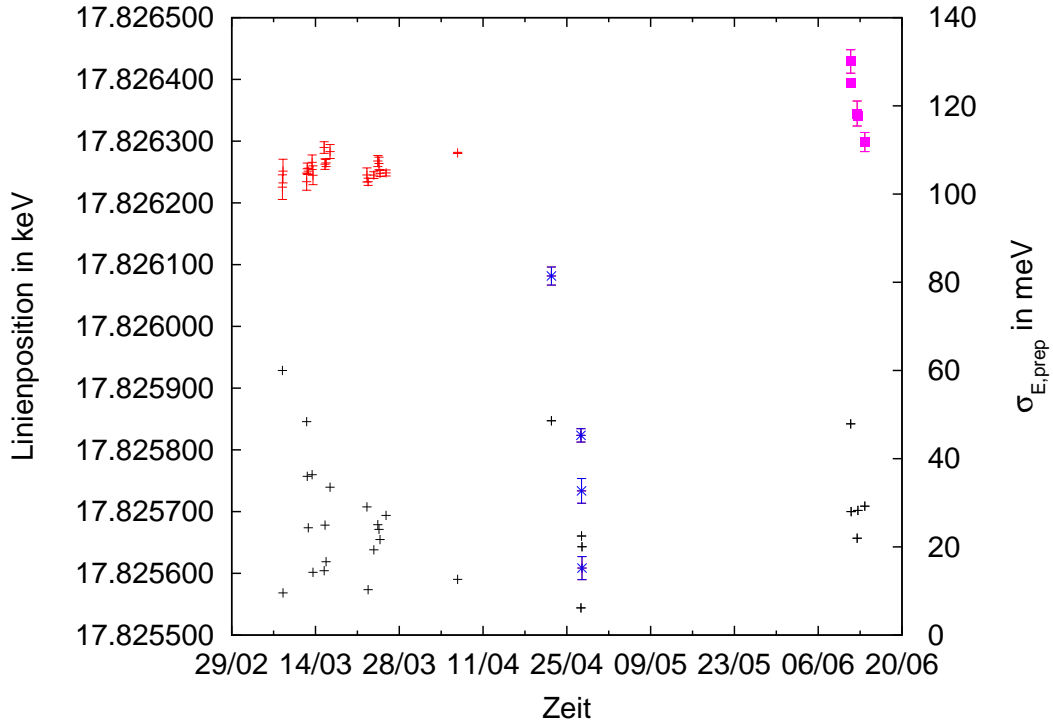
---

<sup>9</sup>Dieser Wert wird aufgrund der verschiedene Bindungsplätze von Krypton auf HOPG angenommen.

<sup>10</sup>s. Abschnitt 6.3.4.3

<sup>11</sup>Dieser Wert ergibt sich aus Berechnungen des elektrostatischen Potentialbergs in der Analysierebene.

### 6.3.2 Überblick über die Filme mit Ablationsreinigung des Substrats - 2007



**Abbildung 6.12:** Die Linienposition nach Ablationsreinigung ist hier aufgetragen als Mittelwerte der einzelnen Filmpräparationen  $E_{kin,prep}$ . Durch die farbliche Markierungen in rot, blau und magenta, wird die Messphase in Untergruppen aufgeteilt. Die Linienpositionen zeigen zunächst ein weitestgehend stabiles Band (rot). Am 21.4 und 25.4 zeigen sich starke Ausreißer (blau), die sich mit der HV in Verbindung bringen lassen (s. weiter unten). Insgesamt zeigt sich ein leichter Trend zu höheren Elektronenenergien. Die letzten Messungen aus dem Juni '07 zeigen ebenfalls erhöhte Instabilitäten (magenta). Bei deren Betrachtung müssen aber sowohl Dejustagefehler (s. weiter unten) und Änderungen der Erdfeldkompensationseinstellungen, als auch erhöhte Schwankungen des Voltmeters, dass ein Reset erfahren musste, berücksichtigt werden. Auf der zweiten Ordinate in schwarz ist die nicht gewichtete mittlere Streuung der einzelnen Scans  $\sigma_{E_{prep}}$  zu diesem Mittelwert aufgetragen, um das Kurzzeitverhalten von Scan zu Scan nach einer Präparation zu illustrieren.

Die  $^{83m}\text{Kr}$ -Filme, für die das Substrat vor Kondensationsbeginn mit Ablationspulsen (s. Abschnitt 5.5.2) gereinigt wurde, zeigten mit  $\sigma_{E_{meth}}=17$  meV ( $\approx 1$  ppm) die größte Stabilität der Linienposition der 32-K-Konversionselektronen und erfüllen damit die Minimalanforderung von einer Stabilität von  $< 3$  ppm zur Erreichung der KATRIN-Sensitivität. Zwar konnte diese Stabilität nicht bei allen gemessenen Filmen mit dieser Präparationsmethode erreicht werden, sie konnte aber über einen zusammenhängenden Messblock von 38 Tage nachgewiesen werden (s. rote Messpunkte in Abb. 6.12). Zur permanenten Überprüfung der Spannungsstabilität am Monitorspektrometer bzw. der zeitlich limitierten Kontrolle der Spannungsstabilität zusammen mit möglichen Austrittsarbeitsveränderungen der Spektrometerelektro-



den am Hauptspektrometer sollten die Filme nach dieser Methode präpariert werden.

Die getesteten Ablationsfilme 2007 zeigten zunächst ein recht stabiles Energieband (rot in Abb. 6.12). Es schließt sich ein Block mit starker Abweichung hin zu niedrigerer Linienposition an (blau in Abb. 6.12). Diese Verschiebungen werden im Unterkapitel HV-Instabilitäten behandelt. Ein letzter Messblock (magenta in Abb. 6.12) schließt die Messungen zur Ablation 2007 ab. Im folgenden sollen nun alle genommenen Daten diskutiert werden. Dabei werden zunächst die Daten des Messblocks mit stabiler Elektronenenergie (rot in Abb. 6.12) charakterisiert und anschließend die Instabilitäten der anderen Messblöcke weitestgehend identifiziert.

### 6.3.2.1 Stabilität Linie nach Substratreinigung mit Ablation

Zur Angabe der Linienposition und Stabilität werden nur die roten Messpunkte aus Abb. 6.12 herangezogen. Es handelt sich hierbei um 609 Scans mit 19 Ablationsprozessen.

Mit einer Genauigkeit von  $\langle E_{kin,fit} \rangle = 25(10)$  meV wird der Wert eines einzelnen Scans angegeben. Dies ist der Fall bei einer Gleichgewichtszählrate von  $450 \text{ s}^{-1}$  und einer Scandauer von etwa 20 Minuten. Die Linien wurden mit 0,5 V Schritten abgetastet und einem Energiefenster von 17819 eV - 17835 eV ausgewertet.

Bei Zusammenfassung zu je einer Filmpräparation schwanken die einzelnen Scans im Mittel mit  $\sigma_{kin,prep} = 27(12)$  meV um den Mittelwert. Dieser Wert ist kaum größer als die statistische Genauigkeit der einzelnen Scans ( $\langle E_{kin,fit} \rangle = 25(10)$  meV). Mögliche Instabilitäten sind hier also von der statistischen Unsicherheit noch verdeckt.

Die erhaltenen Mittelwerte zu je einer Quellpräparation können nun miteinander verglichen werden. Ein gemeinsamer nicht gewichteter Mittelwert aller Ablationsfilme liegt bei  $E_{kin,meth} = 17826,256$  eV. Seine statistische Unsicherheit liegt bei 1 meV. Die einzelnen Quellpräparationen mit  $E_{kin,prep,i}$  stellen eine Verteilung mit einer Breite von  $\sigma_{E_{meth}} = 17$  meV, um diesen gemeinsamen Mittelwert dar.

Die Mittelwerte über die Filme schwanken zueinander weniger als die Einzelmessungen. Würde durch die zeitliche Entwicklung (z.B. Restgasansammlung) oder erneute Präparation keine weitere Störung der Linienlage auftreten, müssten die Differenzen der Mittelwerte bei zunehmender Bündelung gemäß  $1/\sqrt{N}$  geringer werden. Zu je einer Quellpräparation gebündelte Filme lassen sich mit ca. 5 meV Genauigkeit angeben<sup>12</sup>. Die Variation der Linienposition von 17 meV ist dann stärker als nur statistische Fluktuation.

Bildet man den gewichteten Mittelwert aus allen Scans, so erhält man  $E_{kin,meth,gew} = 17826,274$  eV mit einem statistischen Fehler von 1 meV. Die Linienlagen der einzelnen Quellpräparationen variieren dann mit 25 meV um diesen Wert mit einer Standardabweichung von 12 meV. Durch den Messwert der Wochenmessung, der statistisch sehr genau bekannt ist, wird die Gesamtaussage zur Linienposition

<sup>12</sup>Dies ist die statistische Genauigkeit die erreicht werden kann, wenn die Daten über 8 h Messzeit aufsummiert werden. Innerhalb dieses Zeitfensters ergaben Anpassungen einer Konstanten an die Linienpositionen  $\chi^2$  in der Nähe von 1.

aber stark verändert. Um diese Verfälschung zu umgehen, lässt sich der ungewichtete Mittelwert von  $E_{kin, meth, ungew} = 17826,256$  eV angeben.

Wie oben erwähnt, gibt es eine Ursache der Instabilität der Linie auf einem 17 meV - Level. Zusammenfassungen von ca. 15 Scans über 8 h Stunden ergaben akzeptable  $\chi^2$  -Werte für einen Konstanten-Fit und reduzieren den Fitfehler eines Einzelscans (25 meV) auf seinen  $\sqrt{N}$  -Anteil, d.h. auf 5-6 meV. Innerhalb von 8 h ohne weitere Behandlung ist ein Film auf 5-6 meV stabil. Bereits innerhalb einer Quellpräparation treten aber auf längerer Zeitachse als 8 h Schwankungen dieser auf 5 meV statistisch bekannten Linienposition von  $\sigma_{kin, prep} = 14$  meV auf<sup>13</sup>. Da diese Schwankungen im Messverlauf nach einer Ablation auftreten, also nicht nur der Mittelwert der Ablationsfilme zueinander schwankt, kann die Ursache der Schwankung nicht alleine die Ablation sein. Es ist aber im Hinblick auf die verbleibende Abhängigkeit der Linienposition von der Laserleistung bei der Ablation davon auszugehen, dass durch Variation der Laserleistung bzw. des Reinigungszustands des Substrats eine Schwankung in vergleichbarer Größenordnung auftritt (s. folgende Abschnitte). Bei einer Akzeptanzschwelle von 5% für die  $\chi^2$ -Wahrscheinlichkeit und einer ungewichteten Mittelung, d.h. einem Mittelwert von 17826,256 eV ist nur eine zusätzliche Schwankung von 10 meV zur  $\chi^2$ -Minimierung nötig, um die Daten mit einem Konstantenfit verträglich zu machen.

Um zu verhindern, dass die starke Gewichtung der einzelnen statistisch sehr genau bekannten Wochenmessung, die Aussage zur Linienposition nach Ablation über die Maßen definiert, ist die Angabe des ungewichteten Mittelwertes von 17826,256 eV mit der Streuung von 17 meV die verlässlichste Angabe für die Ablationsfilme von 2007<sup>14</sup>.

---

<sup>13</sup>Dieser Wert bezieht sich auf die Streuung der Messwerte, die in Abb. 6.8 aufgetragen sind

<sup>14</sup>Für eine stärkere Betonung der Wochenmessung würde sprechen, dass es sich hierbei um den saubersten Substratzustand der Messreihe handelte. Für einen Langzeitvergleich ist aber ein mäßig gereinigtes Substrat angemessener. Es wurden im ersten Jahr nur wenige Ablationen durchgeführt. Für eine Bestimmung der Spiegelladungskorrektur bzw. den Energiewert des 32 keV Übergangs, könnte man den gewichteten Mittelwert bevorzugen.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
19	609

	$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Ablation
ungew.	17826,256(1) <sup>a</sup> eV	25(10) meV	17 meV	<17 meV
gew.	17826,274(1) eV	25(10) meV	25 meV	<25 meV

<sup>a</sup>Bei einem statistischen Fehler von 25 meV und 609 Messungen ergibt sich ein statistischer Gesamtfehler von 1 meV. Damit könnte man die verbleibende Schwankung der Ablation bzw. dem Vakuum anlasten.

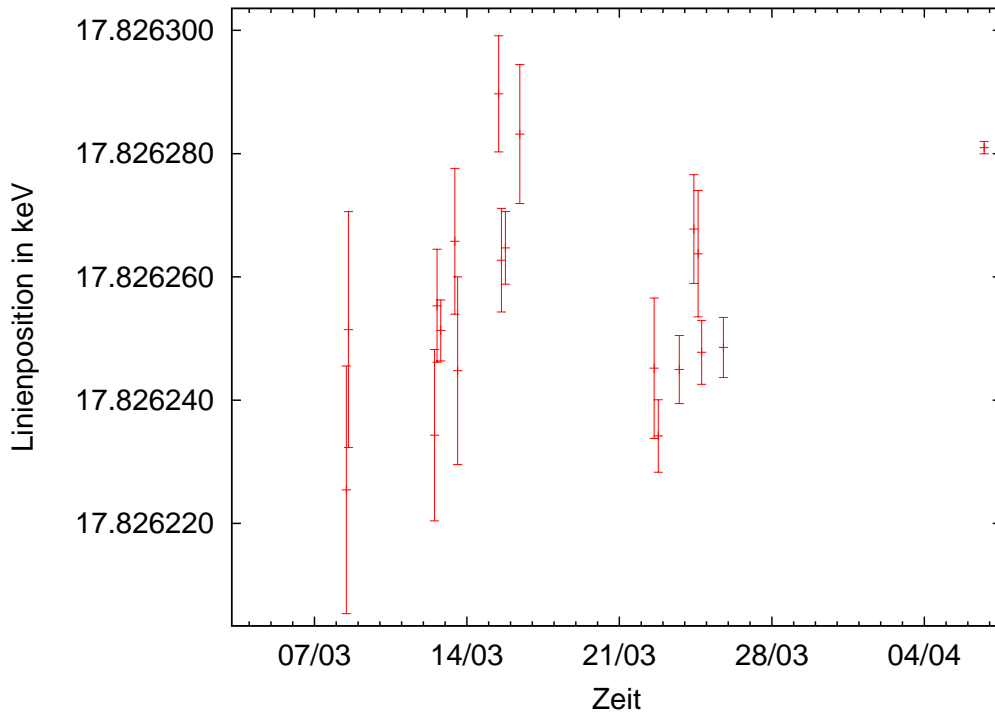
**Tabelle 6.1:** mittlere Linienposition der Filme mit ablationsgereinigtem Substrat

### 6.3.2.2 Einfluss des Ablationsprozesses auf die Linienposition

Bei genauerer Betrachtung fällt im sehr stabilen Anfangsblock (rot in Abb. 6.12) bereits ein temporär leicht ansteigendes Energieverhalten auf, das sich zu dem zeitlich in zwei Blöcke aufspaltet (s. Abb. 6.13). Zwar wurde vor jeder hier aufgetragenen Messung ein Ablationsprozess durchgeführt, aber zwischenzeitlich wurde auch ein Block von Filmen mit nur Heizerreinigungen ohne Ablation präpariert, d.h. ein Erhitzen des gesamten Substratbereichs auf ca. 55 K. Dadurch werden die Messungen zur Ablation in zwei Blöcke aufgespalten. Jeder dieser Blöcke zeigt eine Energiesteigerung mit der Zeit und mit der Anzahl der Ablationsschüsse nach der letzten Heizung.

Es stellt sich die Frage, ob die Ablationsschüsse das Substrat irreversibel modifizieren. Der zweite Block setzt in der Folge wieder bei tieferer Energie an. Die Verschiebung der Energie durch Ablationsschüsse ist also reversibel durch Heizergebrauch und es muss eher von einer zusätzlichen Reinigung durch die Ablation und Verschmutzung durch die Heizung ausgegangen werden, als von einer irreversiblen Zerstörung. Wie auch im Abschnitt 6.3.3.3 gezeigt werden wird, entsprechen höhere Linienpositionen saubereren Substraten.

Die positive Verschiebung zwischen April zu Juni (s. Abb. 6.14) kann nicht durch eine große Anzahl weiterer Ablationsschüsse hervorgerufen sein, da in der Zwischenzeit praktisch keine Ablation stattfand und die angewendeten Laserleistungen im Juni unter 200 mW lagen. Es handelt sich bei der Erhöhung der Linienposition im Juni also nicht um eine Folge der Ablation. Restgaseinflüsse zeigten in vorrauslaufenden Messungen immer eine Linienpositionserniedrigung, sodass die Linienerhöhung nicht mit einer Substratverschmutzung in Verbindung gebracht wird. Eine genaue Ursache der höheren Linienpositionen im Juni kann hier nicht gegeben werden. Dazu war die Messphase zu kurz. Allerdings wird im folgenden auf einige Indizien verwiesen werden.

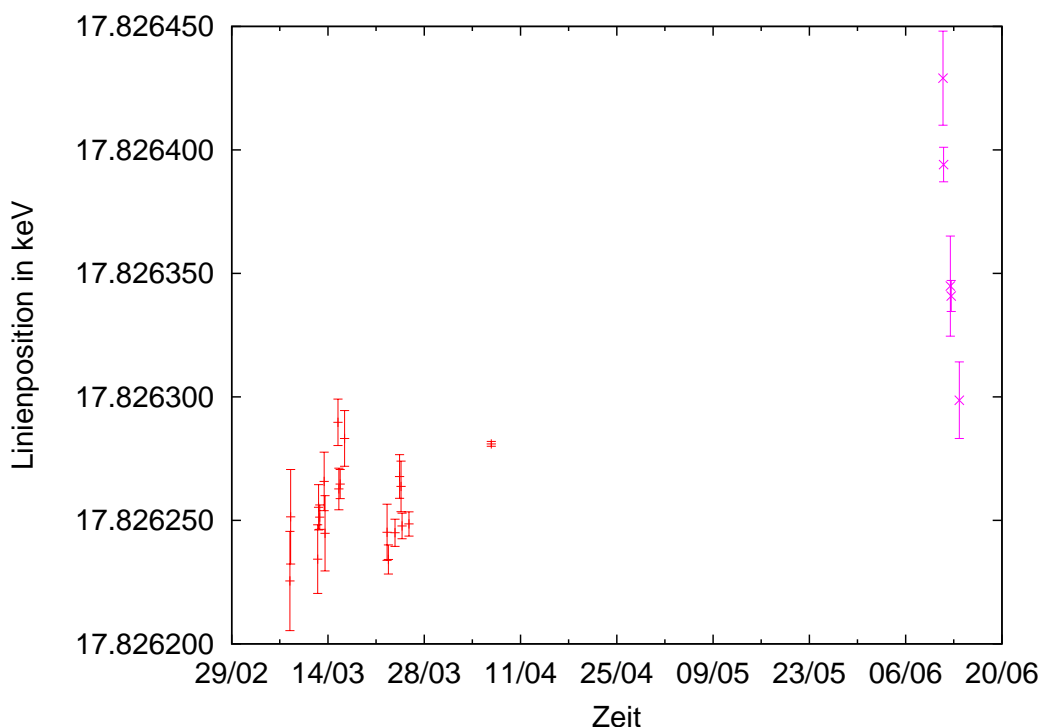


**Abbildung 6.13:** Die Mittelwerte der Linienpositionen verschiedener  $^{83m}\text{Kr}$ -Filme nach Ablation sind hier aufgetragen. Die Präparationen mit Ablation fanden in zwei zeitlichen Blöcken vom 12.3.07-16.3.07 und vom 22.3.07-25.3.07 statt. Beide Blöcke zeigen ein ansteigendes und annähernd saturierendes Verhalten der Linienpositionen. Vor beiden Messblöcken wurden eine Reihe von Heizerreinigungen durchgeführt. In der Zeit vom 25.3.07 bis zum Beginn der Wochenmessung am 7.4.07 wurde der Substratheizer allerdings nur zum Stabilisieren der Substrattemperatur und nicht zum Wegheizen von  $^{83m}\text{Kr}$ , d.h. 55 K benutzt. Der Wert von 17826,281 eV der Wochenmessung passt gut als Saturierungswert in das Gesamtbild.

### 6.3.2.3 Einfluss der Laserleistung bei der Ablation

Es stellt sich natürlich die Frage, ob die verbleibende Verschiebung der Linienposition mit der Laserleistung der Ablation korreliert ist. Es wurden Laserleistungen an der Messposition des Powermeters zwischen 130 und 320 mW verwendet. Unter 100 mW zeigte sich keine Reaktion des Ellipsometriesignals. In der Abbildung 6.15 sieht man eine Abhängigkeit der Linienposition von der Laserleistung, wenn man die fünf höchsten Linienpositionen (magenta in der Abb. 6.15) ausklammert, die allesamt von den letzten beiden Junitagen stammen. Anhand dieser Darstellung empfiehlt es sich entweder eine Mindestleistung von 220 mW für die Laserleistung einzufordern oder zumindest die Leistung auf Schwankungen von etwa 20 mW einzuschränken<sup>15</sup>, um eine weitere Stabilisierung der Linienposition zu erreichen.

<sup>15</sup>Dies bedeutet eine Kontrolle der Leistung vor jeder Anwendung und gegebenenfalls ein Nachjustieren der Leistung



**Abbildung 6.14:** Die Linienpositionen nach Ablationsreinigung im Mittel nach einer Präparation ( $\langle E_{kin,prep,i} \rangle$ ) zeigen im März/April zeigen eine einheitliche Linienposition, 17826,274(1;26) eV im gewichteten Mittel. Im Juni spannt sich ein weiteres Energiefeld auf. Zu berücksichtigen ist, dass für die ersten beiden Messwerte die Voltmeterkalibration falsch sein kann, da das Voltmeter danach in Fehlerbetrieb ging und neu gestartet werden musste. Im Mittel ergibt sich für die Messungen im Juni 17826,362(4;31) eV, bzw. 17826,336(6;26) eV wenn man sich auf die letzten drei Punkte beschränkt. Außerdem könnte noch ein Dejustagefehler bestanden haben.

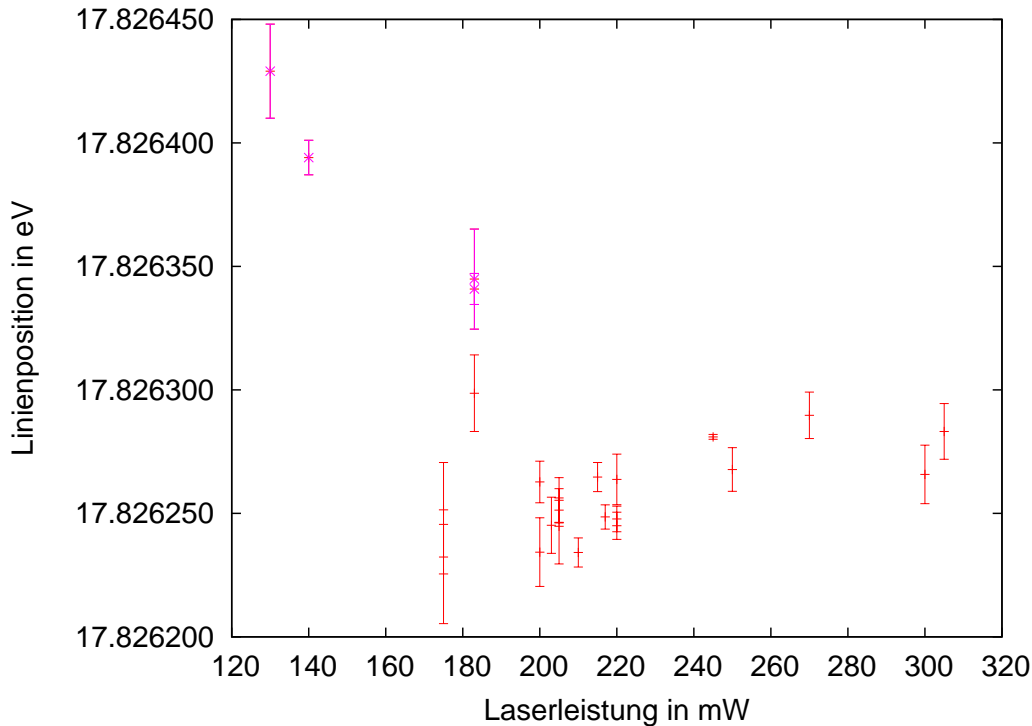
Ein weiteres Maß für die Auswirkung der Ablation auf die Substrateigenschaften ist der Polarisatorwert der Ellipsometriemessungen des frisch ablatierten Substrats. In Abb. 6.16 ist die Abhängigkeit der Polarisatorstellung von der Laserleistung aufgetragen. Auch in den Polarisatorstellungen sieht man ein Schwellenverhalten bei etwa 220 mW.

Die Polarisatorstellung nimmt im Laufe der Zeit ab (s. Abb. 6.17). Das entspricht einem zunehmend sauberer werdenden Substrat<sup>16</sup>. Ein saubereres Substrat ginge unter der Annahme von einem größeren Spiegelladungseffekt ohne Berücksichtigung der Polarisierbarkeit des Restgases einher mit einer Linienpositionserhöhung.

Dieser Trend ist den Messungen mit Heizerreinigung ohne Ablation wie in Abb. 6.32 entgegengesetzt<sup>17</sup>. Dort führte eine Verschmutzung der Substrats, zu einer Erniedri-

<sup>16</sup>Eine Veränderung von  $0,3(1)^\circ$  würden 4(1) ML  $H_2$ , bzw. 15 Å Dicke entsprechen. Veränderungen von 3-4 ML  $H_2$  plan aufgefroren die Kryptonatome um 10 Å vom Substrat entfernen. Die zu erwartende Spiegelladungsveränderung wäre deutlich größer als die gemessene Linienverschiebung. Der Spiegelladungsreduktionsfaktor für Dielektrika ergibt sich für Wasserstoff zu 0,08 bei  $\epsilon=1,18$ . Linienverschiebung von der Größenordnung von  $0,08 \cdot \frac{3,6eV}{12,6} = 24$  meV wären zu erwarten.

<sup>17</sup>Die Vorzeichen haben sich zwischen beiden Messungen geändert, Polarisator wurde um  $180^\circ$



**Abbildung 6.15:** Die Linienposition nach Ablation zeigt eine Abhängigkeit der Linienposition. Es ist eine kleine Absenkung unterhalb von 220 mW zu erkennen. Dargestellt ist jeweils der Mittelwert jeder einzelnen Filmpräparation.

gung der Linienposition. Die Ablation konnte also die zunehmenden Verschmutzung bekannt aus vorausgehenden Messungen stoppen.

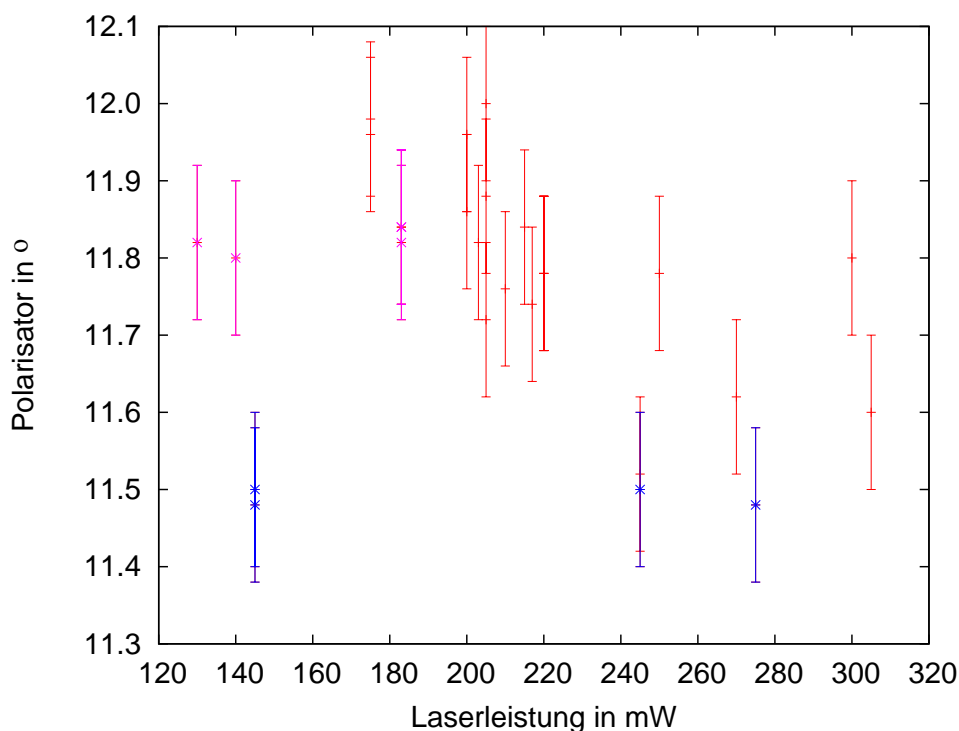
Mit der Abnahme der Polarisatorstellung geht eine Erhöhung der Energie der K-32-Elektronen einher<sup>18</sup> (s. Abb. 6.17).

Die Analysatorstellung variiert um geschätzte  $0,1^\circ$  (s. Abb 6.19). Diese Variation ist nicht auf eine Dickenveränderung zurückzuführen, da der Analysator kaum dickenabhängig ist im Monolagenbereich. Veränderungen in der Polarisatorstellung sind denkbar im Zusammenhang mit einer Änderung der Einfallswinkel oder thermischen Veränderungen der optischen Komponenten. Die Polarisatorstellung kann also kaum genauer als die Variation der Analysatorstellung angegeben werden. Deshalb wird die Variation der Analysatorstellung als Fehlerabschätzung der Polarisatorstellung verwendet.

Die Ellipsometriedaten wurden vor und nach der Messung aufgenommen. Die Veränderung des Polarisatorwertes während der Messung gibt das Maß der Verschmutzung des Substrats während der Messung an. Wenn während der Messung viel Restgas aufgefroren wäre, würde das die Linienposition beeinflussen. Die Daten vom 24./25.4. und aus dem Juni zeigen aber kein außerordentliches Dickenwachstum im Vergleich zu den restlichen Daten.

gedreht.

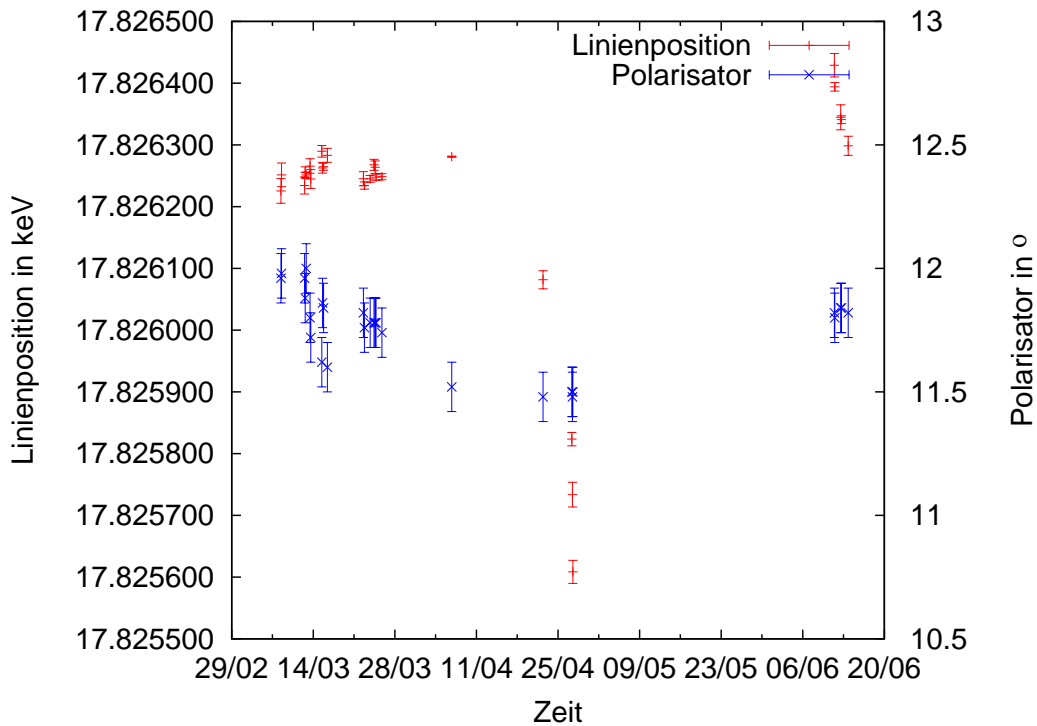
<sup>18</sup>wenn man wieder die Juni-Messungen(magenta) separat betrachtet



**Abbildung 6.16:** Die Polarisatorstellung in Abhängigkeit von der Laserleistung zeigt ebenfalls einen Trend. Insbesondere wenn man die Juni-Messungen (Magenta) und die Messungen mit HV-Instabilitäten (blau) separat betrachtet. Das Verhältnis von Polarisatorstellung und Ablationsleistung bleibt unbeeinträchtigt von den HV-Instabilitäten. Die besondere Stellung beider zueinander hängt damit zusammen, dass das Substrat zu diesem Zeitpunkt am saubersten war (kleinste Polarisatorstellung) und es damit unerheblich ist, wie stark die erneute Ablationsreinigungsleistung ist.

Ein Dickenwachstum mit Änderung des Polarisatorwinkels von ca.  $+0,2^\circ$  ( $\approx 2$  ML Krypton-Äquivalent, 2-3 ML  $H_2$ ), fand dank des guten Druckes sehr selten statt. Die drei Filme mit den stärksten Verschmutzung waren entweder nach einer Woche Messzeit aufgenommen oder mit einem sehr niedrigen Startwert für die Polarisatorstellung. Bei herrschendem Druck kann also nur ansatzweise und bei sehr langer Messzeit von einer Woche von einer Verschmutzung des Substrates im Rahmen der Messgenauigkeit der Ellipsometrie überhaupt gesprochen werden. Auswirkungen einer Substratverschmutzung durch ein für die Ellipsometrie nicht sichtbare Bedeckung auf die Linienposition sind natürlich möglich.

**Messblock - Juni 2007** Die Messungen aus dem Juni liegen in der Linienposition sehr hoch, zeigen aber andererseits mit einem Polarisatorwinkel von  $11,8^\circ$  ein mäßig sauberes bis sauberes Substrat im Vergleich zu den restlichen Ablationsfilmen an. Die Linienpositionen der Junimessungen kann nicht in Einklang mit den Ellipsometriedaten gebracht werden, d.h. es ist nicht wahrscheinlich, dass die Linienpositionsverschiebung auf ein verändertes oder verschmutztes Substrat zurückzuführen ist.



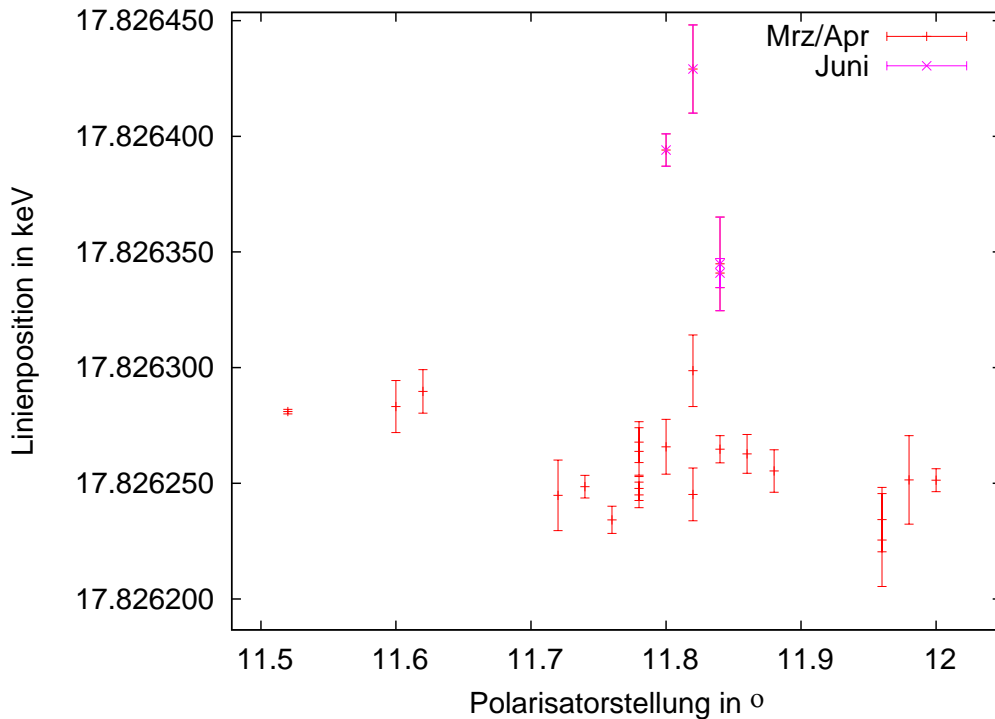
**Abbildung 6.17:** Die Linienposition und der Polarisatorwert sind hier gegen die Zeit aufgetragen. Im Gegensatz zum Analysatorwert ist der Polarisatorwert auch auf sehr dünne Schichtdickenveränderung sensitiv. 0,12(1) Grad Unterschied entspricht etwa einer Monolage Krypton [Vol89]. Die Polarisatorstellung nimmt im Laufe der Zeit ab, was einem saubereren Substrat entsprechen würde. Zu Berücksichtigen ist hier noch, dass die sehr kleinen Polarisatorstellungen direkt nach dem Ersetzen des Motorriemens auftraten, mit anschließender Neujustierung des Quellschlittens. Bei diesen Umbauarbeiten ist eine Krafteinwirkung auch auf den Optiktisch nicht zu umgehen.

Die hinzu höheren Energien verschobene Linienposition in Juni kann nicht erschöpfend geklärt werden, da hier nicht genug Daten vorliegen. Die Messungen dienen zur Überprüfung, ob die Positionerniedrigung vom 26.4.07 von einer irreversiblen Zerstörung des Substrats hervorgerufen sein könnten. Dies ist nicht der Fall. Die Polarisatorstartwerte stützen die Aussage.

In allen Betrachtungen zur Ellipsometrie und Ablationsleistungen stehen die Messungen aus dem Juni heraus. Sie zeigen trotz ihrer exponierten Position einen Polarisatorwert entsprechend eines mäßig sauberen Substrats, wie es auch der Erwartung entsprechen würde, wenn noch nicht viele Ablationsschüsse nach dem Kaltfahren oder Heizen angewendet wurden. Sie erfuhren keine außerordentlich hohe Laserablationsleistung ( $<200$  mW). Die vorliegenden Daten zeigen Indizien für eine HV-Instabilität (s. folgender Abschnitt). Andererseits ist eine Veränderung der radialen Verteilung der Zählrate und ein anderes Transmissionsverhalten zu vermerken (s. Abschnitt 6.4.4), was mit Änderungen der Erdfeldkompensationsfelder<sup>19</sup>, und/oder einer Dejustage der Quelle möglich wäre (s. Abschn. Spektrometerabhängigkeiten).

<sup>19</sup>Es wurde ein neues Netzteil eingesetzt.





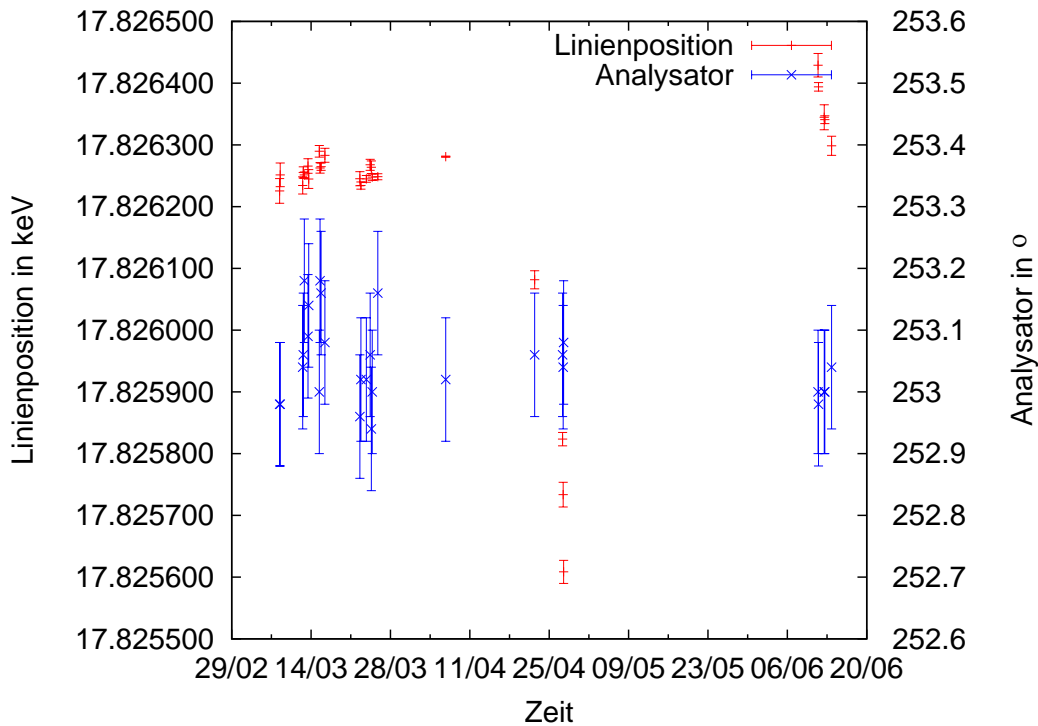
**Abbildung 6.18: Die Polarisatorstellung in Abhängigkeit von der Linienposition nach Ablation** zeigt ebenfalls einen deutlichen Zusammenhang. Die "störenden" Messwerte mit hohen Linienpositionen wurden 2 Monate später im Juni genommen und weisen wieder auf die Dejustage der Quelle oder einen anderweitigen Grund an diesen Messtagen hin. Messungenauigkeiten des Polarisatorwertes liegen bei  $0,1^\circ$ .

#### 6.3.2.4 Absenkung der Energiemesswerte durch Instabilitäten der Hochspannung

Es gab an den letzten beiden Aprilmesstagen deutliche Ausreißer hin zu niedrigerer Energie (blau in Abb. 6.12) im Anschluss an den Messblock mit stabiler Linienlage. Diese versetzten Linienpositionen können in Zusammenhang mit der HV-Messung gebracht werden. Zunächst wird aber untersucht, ob es Hinweise an der Quelle gibt, für die Besonderheit der Messungen an diesem Tag.

Die Messungen vom 26.4.07 fanden nach einer über Nacht laufenden Substratheizung ( $T \approx 55\text{K}$ ) statt. Ein solches Dauerheizen wurde zu keiner Zeit vorher angewendet. Die Ellipsometriedaten zeigen aber nach der Ablation eine Polarisatorstellung, die einem sehr sauberen Substrat entsprechen würde. Die Veränderung des Polarisatorwinkels nach der Ablation war mit  $0,02^\circ$  weit kleiner als der Fehler. Auch die Verschmutzungszunahme im Laufe der Messung lag mit  $0,04^\circ$  unterhalb des Fehlers bei bewegter Quelle.

Die Messungen vom 26.4. weisen das sauberste Substrat dieses Messblocks aufgrund ihrer Polarisatorstartwerte auf und dennoch eine Absenkung der Linienposition. Es ist aber nicht richtig zu folgern, dass die Linienposition sich bei zu geringen Polarisatorstellungen hin zu niedrigeren Position verschiebt, die im vorangegangenen



**Abbildung 6.19:** Die Linienposition und der Analysatorwert sind hier gegen die Zeit aufgetragen. Der Analysatorwert ist für sehr dünne Schichtdickenveränderung kaum sensitiv. Die Variationen des Analysatorwertes sind also eher auf Veränderungen des Einfallswinkels (Dejustageproblem). Oder thermische Veränderungen der optischen Komponenten zurückzuführen.

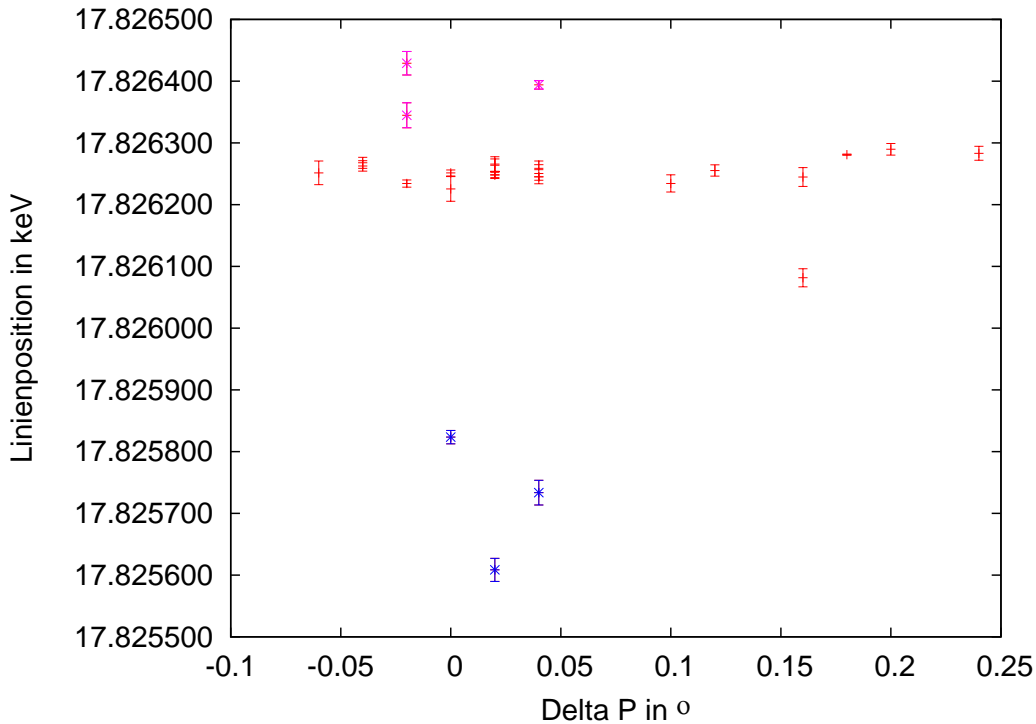
Abschnitt erwähnte Wochenmessung zeigt ebenfalls ein Polarisatorwert von  $11,52^\circ$ . Die sehr starke Absenkung der Elektronenenergie am 26.4. ist nicht in den Ellipsometriedaten wiederzufinden.

Das Spektrometervakuum war während der Nacht vor den Messungen an das Quellvakuum angeschlossen. Das aufgefrorene Ar-Restgasgemisch<sup>20</sup>, das sich zuvor im Substratbereich befand, wurde versehentlich ins Spektrometer hineingeheizt. Die Druckerhöhung dort kann aber kaum zu einer messbaren Veränderung der Austrittsarbeit der Retardierungselektroden auf Raumtemperatur geführt haben. Auch ließ sich ein solches Szenario nicht im Juni 2007 nachstellen, wohl aber eine wenn auch deutlich geringere Erniedrigung der Linienposition durch längeres Heizen des Substrats auf 55 K.

Auch Preplating-Filme von mehreren ML am gleichen Tag zeigten eine gleichsam verschobene Linienposition.

Abweichungen aufgrund der elektromagnetischen Konfiguration des Spektrometers sind ebenfalls denkbar. Allerdings wich das Magnetfeld im Labor in der Nähe der Analysierebene nur um 7 mG von vorigen Messungen ab. Auch das messbare Vakuum im Kryobereich der Quelle war unverändert.

<sup>20</sup>Zwischenzeitlich wurde mit Argon als Preplatingmaterial gearbeitet.

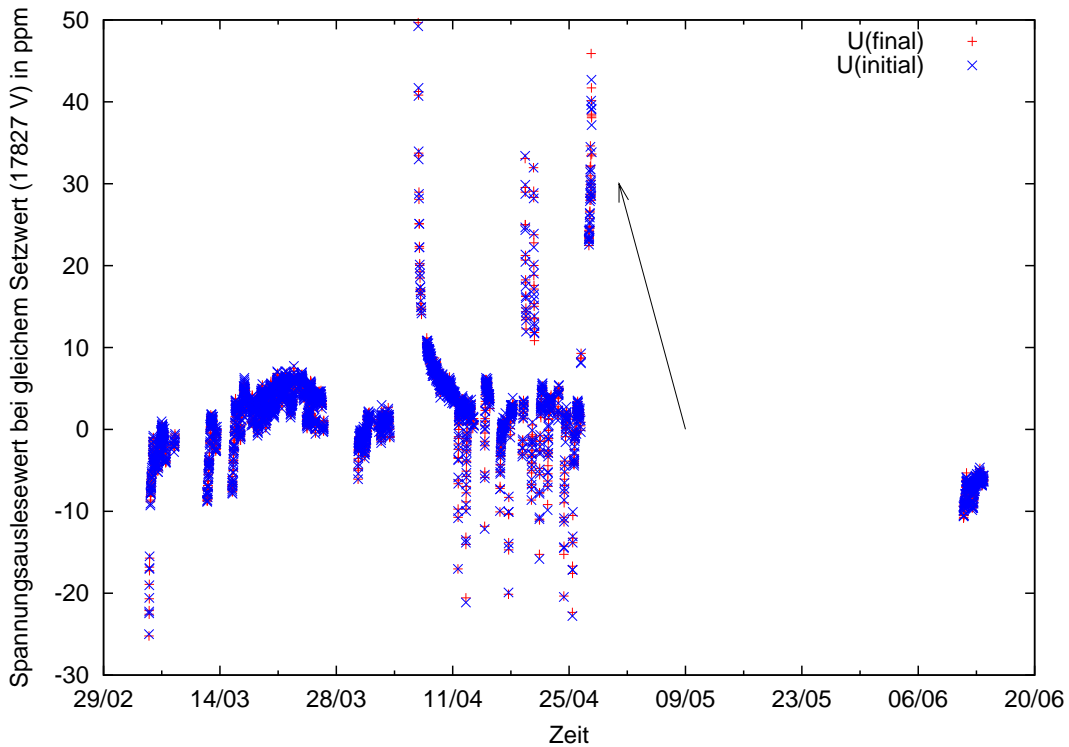


**Abbildung 6.20:** Linienposition in Abhängigkeit von der Veränderung des Polarisatorwinkel vor und nach der Messung zeigt den Grad der Verschmutzung durch Restgas und  $^{83m}\text{Kr}$  an. Die Filme mit sehr hoher (Juni) und sehr niedriger (24./25.4) Elektronenenergie zeigen kein exponiertes Dickenwachstum während der Messung.

Die Absenkung von insgesamt einem halben Volt lässt sich auch nicht mit Dejustage erklären, der gesamte Potentialdurchgang in der Analysierebene hat nur 371 mV. Da die Daten aus Segment 1 des Detektors ausgewertet wurden, beschränkt dies den Potentialdruckgriff weiter auf 108 mV bei zentriertem Detektor.

Der Gaussanteil des Linienfits ist weder außerordentlich groß noch klein.

Trägt man aber die Spannungswerte auf, die der Spannungsteiler im Verlauf der gesamten Messphase bei jeweils gleichem Befehl an die Spannungsversorgung gemessen hatte - hier wurde willkürlich 17827000 mV gewählt - so zeigt sich ein auffälliges Verhalten (s. Abb. 6.21). Zu sehen sein sollte hier lediglich die Stabilität der Spannungsversorgung. Einschaltvorgänge bzw. Wechsel des HV-Bereich führen wie erwartet zu Schwankung in den Messwerten. Von rigiden Regimewechseln einmal abgesehen, zeigt sich hier die Reproduzierbarkeit der Spannungsversorgung, die auch nach Herstellerangaben bei 10ppm ( $\approx 200\text{mV}$ ) liegt. Im Laufe der Zeit stabilisieren sich die groben Abweichungen bedingt durch Sprünge im 10 kV Bereich, während der Linienscans, die im gleichen HV-Bereich bleiben. Diese Schwankungen sind erwartet und stellen als solches kein Problem für die Messung der  $^{83m}\text{Kr}$ -Linie dar, weil der Spannungsteiler diese Abweichungen mit 1 ppm Genauigkeit detektiert und diese Spannungsteilerwerte zur Analyse verwendet werden.



**Abbildung 6.21: HV-Instabilitäten** sind in den Messungen vom letzten Apriltag aufgetreten. Aufgetragen ist der mit dem Spannungsteiler/Voltmeter gemessene Wert, bei jeweils demselben Spannungsversorgungsbefehl "17827000". Während sich im Vorfeld zwar größere Schwankungen der Spannungsversorgung zeigten, die vom Spannungsteiler gemessen wurden und damit nicht zu einer Verschiebung der Linienposition führten, so waren diese Verschiebungen aber immer mit dem Trend der Stabilisierung versehen. Grobe Schwankungen waren Effekte von Wechseln des HV-Bereichs oder von Abschaltvorgängen. Am letzten Aprilmesstag liegt aber ein anderes Verhalten vor. Die HV scheint sich zunehmend zu destabilisieren und bewegt sich insgesamt um etwa 20-30 ppm versetzt. Die 10 V-Kalibration des Voltmeters ist an dieser Stelle nicht miteingerechnet.

Am letzten Apriltag verhält es sich nun anders. Das Niveau ist zu Beginn um etwa 20-30 ppm am Fluke Voltmeter verschoben und destabilisiert sich im Laufe der Zeit zunehmend. Umgerechnet auf den K-Linienbereich bedeutet das einen Versatz von etwa 400 meV.

Auf Seiten der Spannungsversorgung wurde besondere Aufmerksamkeit daraufgesetzt, dass keine starken Einlaufverhalten dominieren. Die Spannungsversorgung wurde bereits am Abend vor den Messungen auf den 18 keV-Bereich gestellt. Es sollten also keine Spannungssprünge von mehr als 10 ppm zu sehen sein, da ja der Spannungswert nicht grob verstellt wird. Während den einzelnen Scans wird dieser Wert zwar ständig umgesetzt aber nicht aus dem Spannungsbereich heraus. Aus den Messungen im Mai 2006 ist bekannt, dass ein rigider Wechsel zwischen den Spannungsbereichen Sprünge von 100 mV in den Spannungswerten hervorruft. Die Veränderung der Spannungswerte um 20-30 ppm wie in Abb. 6.21 sind also zu groß

für die Herstellerangaben und Erfahrungswerte des HCP - Netzteils.

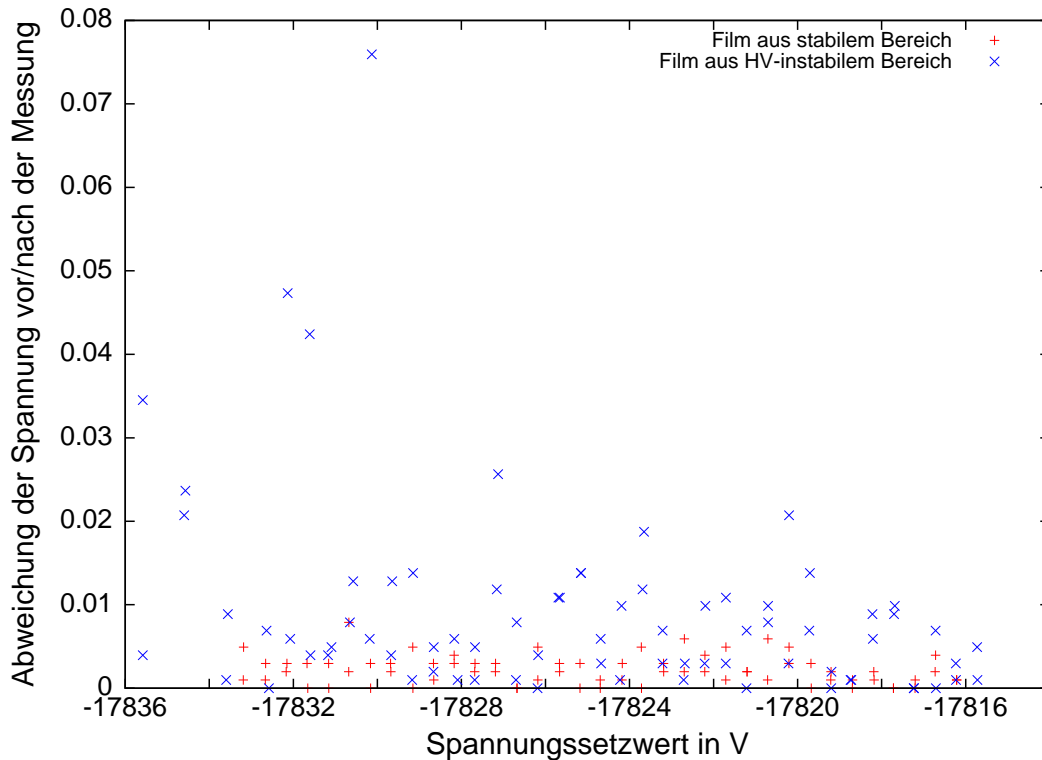
Die 10V-Kalibration des Flukevoltmeters durchgeführt nach der Vorgabe beschrieben in [Thu08] ergab keine außerordentlichen Abweichungen. Selbst die Schwankungen, die im wesentlichen aus der Temperaturabhängigkeit des Flukevoltmeters hervorgehen, beliefen sich über 300 Tage im Jahr 2006 nur auf etwa 2 ppm.

Möglich wären noch eine Lockerung der Erdungs- und Potentialkabel der Quelleinheit bzw. der Spektrometererde oder auch der Erdverbindung zwischen Spannungsteiler und Voltmeter. Unter der Bedingung, dass das Erdpotential der Messung nicht genau definiert ist, würde der Spannungsteiler falsche Spannungen ans Voltmeter liefern. Wenn die Konversionselektronenenergien gleichzeitig selbst nicht schwanken, so würden sie gerade den Sprung der Teilerspannung mitmachen. Es ist plausibler anzunehmen, dass die Spannungsauslese Irregularitäten zeigt, als davon auszugehen, dass sowohl Spannungsversorgung und die Konversionselektronenenergie gleichzeitig einen Sprung machen. Es wird an dieser Stelle deutlich, dass eine erschöpfende Spannungskontrolle nicht ohne Redundanzen auskommt. Mit einer parallelen Spannungsüberwachungsmessung mit einem zweiten Quelltypus, ließen sich Zweifel an einem Messfehler der Spannung weiter verhärten oder widerlegen.

Als weiteren Hinweis auf Irregularitäten der HV-Versorgung oder -auslese, können die Spannungsmesswerte von vor der Messung der Zählrate ( $U_{ini}$ ) und nach der Messung der Zählrate ( $U_{fin}$ ) (s. a. 6.2.1) hinzugezogen werden. Beide Messwerte sollten im regulären Messbetrieb kaum voneinander abweichen. Dies ist aber in diesem Messzeitraum nicht der Fall. Die Abweichungen der Spannung von vor zu nach der Messung schwanken deutlich verstärkt (s. Abb. 6.22). Die aufgetragenen Daten gehören zu einer Messung eines Films mit Krypton als Preplating, der im Anschluss an die Ablationsfilme am 26.4.07 aufgenommen wurde. Die Linienposition dieser Filme ist gleichsam verschoben. Die Abweichungen können nicht das Gros der Verschiebung erklären, sie weisen aber sehr wohl auf eine Unregelmäßigkeit der Hochspannung hin.

Ein ähnliches Verhalten konnte auch in den Daten vom Mai 2006 und anderen Quellpräparationsmethoden entdeckt werden: Sprünge der Linienposition um 200 meV hinzu positiveren Energien als auch 100 meV hinzu niedrigeren Energien im Gleichtakt mit Sprüngen in der Spannungsauslese (s. a. Abb. 6.36).

An dieser Stelle zeigt sich, dass die kondensierte  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle bzw. jede andere kontinuierlich gemessene Eichquelle hinreichender Kurzzeitstabilität nicht nur wichtig sein kann, um die Langzeitdriften des Spannungsteilers auszumessen, sondern auch im Kurzzeitfenster eine unabhängige Kontrolle wichtig und möglich ist. Schwankungen, die unter den optimal abgeschirmten und kontaktierten Bedingungen im PTB-Kalibrationslabor nicht auftreten können, sind im "normalen" Labor ohne weitere Vorsicht gut möglich. Diese Daten zeigen allerdings auch, dass eine Messung einer Kalibrationsquelle am Hauptspektrometer sich von denen einer Messung am Monitorspektrometer in Abhängigkeit von induzierten Potentialen auf den Erdleitern unterscheiden könnte. Eine Spannungskontrolle am Hauptspektrometer ist zusätzlich nötig.

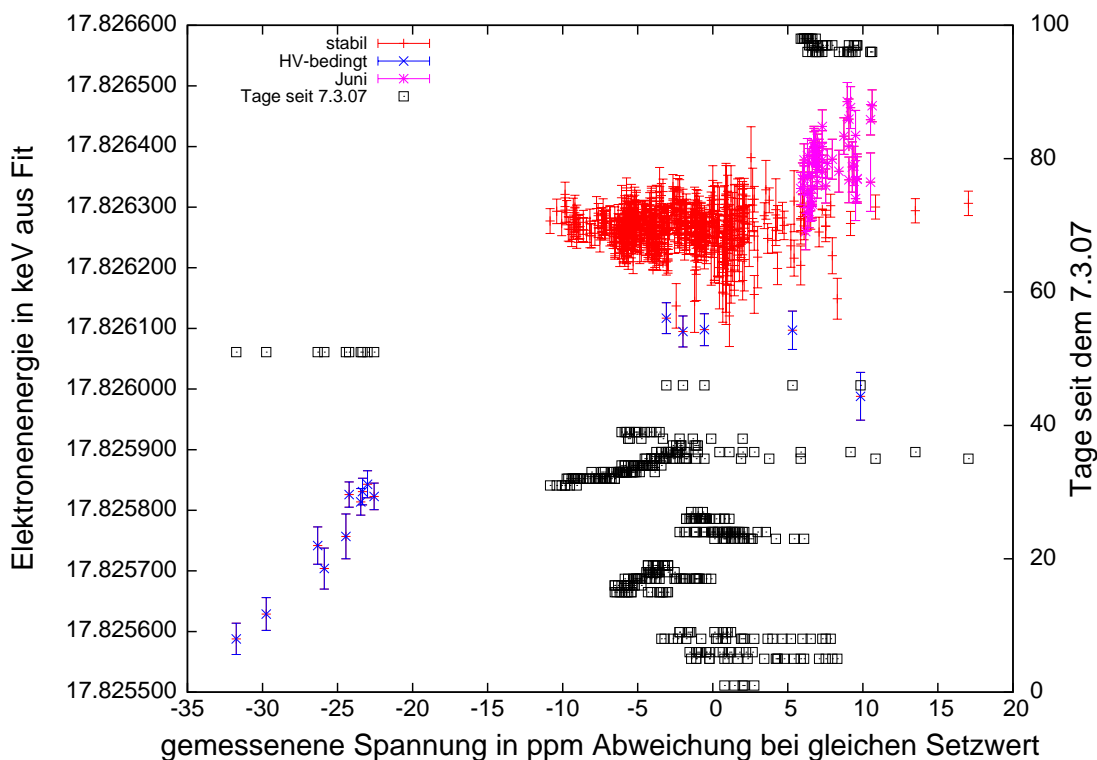


**Abbildung 6.22: HV-Instabilitäten**, d.h. die Abweichungen zwischen vor der Messung und nach der Messung sind hier für zwei Linienscans aufgetragen: einen aus dem zeitlichen Bereich als die Linienposition ebenfalls stabil war, und einen aus dem Bereich mit niedriger Linienposition.

### 6.3.2.5 Fazit zu den Filmen mit Ablationsreinigung

Filme mit kondensiertem  $^{83m}\text{Kr}$  auf HOPG können so präpariert werden, dass die Energie der 32-K-Konversionselektronen auf 17 meV von Film zu Film stabil bleibt. Dazu müssen eine Reihe von Bedingungen erfüllt sein.

- Minimierung der HV-Bereichswchsel  
Die Hochspannung sollte stabil im Messbereich eingeregelt sein, sodass starke Wechsel des HV-Bereichs keine Irregularitäten hervorrufen können. Eine Kontrolle möglicher Spannungsauslesefehler ist nur dann ansatzweise möglich, wenn die Spannungsversorgung nicht mehr von ihrem Einlaufverhalten dominiert ist.
- Überwachung der Abweichungen der Spannungsmesswerte  
Die Spannungswerte von vor der Zählratenbestimmung zu nach der Zählratenbestimmung sollten keine großen Abweichungen voneinander aufzeigen (s. Abb. 6.22). Durch eine kontinuierliche Spannungsauslese kann diese Kontrollmöglichkeit noch weiter verfeinert werden
- Polarisatormesswerte.  
Die Ellipsometriemesswerte für die Polarisatorstellung vor der Messung sollten



**Abbildung 6.23: HV-Instabilitäten** zeigen sich klar für die am 26. April gemessenen stark verschobenen Linienpositionen (blau). Es zeigt sich aber auch, dass die eine vorhergehende weniger abgesenkten Linienposition andere Gründe hatte. Die Juni Messungen (Magenta) liegen ebenfalls auf der Achse, die durch die Aprilmessungen angedeutet werden. Eine eindeutige Zuweisung in diesem Fall ist aber nicht möglich.

sich nicht um mehr als  $0,3^\circ$  voneinander unterscheiden. Damit ist eine gleichbleibende Reinheit des Substrats und damit eine Stabilität der Linienposition aufgrund von Restgas auf etwa 24 meV eingeschränkt. Das bedeutet auch, dass vor der ersten Messung das Substrat mit Ablationsschüssen gereinigt werden muss, um verbleibende Restgasbedeckungen sicher zu lösen.

- **Temperaturstabilisierung**  
Die Temperaturen von Substrat, Kapillare und Kühlkappe waren während der vorgestellten Messungen mit stabiler Linienposition stabil. Die Ablationsreinigung minimierte das erwärmte Volumen. Damit wird die Menge an Restgas in dem Halbraum über dem Substrat reduziert.
- **Substrattemperatur**  
Die Substrattemperatur lag bei den vorgestellten Messungen bei 26-27 K. Dieser Wert sollte nicht unterschritten werden, wie im folgenden Abschnitt erläutert wird.
- **Justage der Quelle**  
Die Justage der Quelle muss bei kleinem Quelldurchmesser exakt reproduzierbar sein, sonst treten Verschiebungen der Linienpositionen aufgrund des Potentialdurchgriffes im Spektrometer auf (s. Abschnitt 6.4.1).

- **Erdfeldkompensationsfelder**  
Die eingesetzten Erdfeldkompensationsfelder wurden im Verlauf dieser Messungen zur Ablation nicht variiert. Eine Änderung der Erdfeldkompensation, bzw. starke Fluktuationen des Erdmagnetfeldes können die Linienposition ebenfalls beeinflussen (s. Abschnitt 6.4.2). Dazu ist es angebracht, das Magnetfeld in der Spektrometerumgebung kontinuierlich zu überwachen.
- **Transmissionsverhalten**  
Nur Filme mit identischem Transmissionsverhalten können sinnvoll miteinander verglichen werden. (s. Abschnitt 6.4.1.1). Treten verzögerte Transmissionen der Elektronen auf, ist das ein Hinweis auf Dejustage, Änderung Erdmagnetfeldes, oder zunehmende Energieverluste aufgrund von Streuungen, die dann auftreten, wenn eine hinreichend dicke Schicht von Restgas auf die  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome aufkondensiert wurden.



### 6.3.3 Reinigung mit Substratheizer

Für eine Reihe von Messungen wurde ein TVO-Widerstandsheizer zur Reinigung des Substrats von  $^{83m}\text{Kr}$  verwendet. Dies stellt eine einfache und kostengünstige Alternative zur aufwendigen Ablationsreinigung des Substrats dar. Leider konnte mit dem Substratheizer alleine nicht die Stabilität wie mit Ablationsreinigungen erreicht werden.

#### 6.3.3.1 Desorptionsverhalten von $^{83m}\text{Kr}$ auf HOPG unter den Messbedingungen

Die Kenntnis des Desorptionsverhaltens von  $^{83m}\text{Kr}$  von dem HOPG-Substrat im gegebenen Druck- und Temperaturbereich ist nötig, um einerseits eine Substrattemperatur als sinnvollen Arbeitspunkt wählen zu können, andererseits um zu wissen, bei welcher Substrattemperatur kein Krypton mehr auf den Substrat sein sollte. Deshalb wurde das Desorptionsverhalten von  $^{83m}\text{Kr}$  von dem HOPG-Substrat nach seiner Temperaturabhängigkeit in einer kleinen Messeinheit vorerst überprüft. Ausserhalb der kalten Substrathauben lag ein Druck von ca.  $1 \cdot 10^{-9}$  mbar vor. Zunächst wurde die Kapillarheizung ausgeschaltet, um den weiteren  $^{83m}\text{Kr}$ -Zulauf zu reduzieren, dann die Substratheizung im 10 Minutentakt erhöht. Die Zählrate wurde etwa 5 Min. nach der jeweiligen Heizleistungserhöhung gemessen, als eine Stabilisierung der Temperatur erreicht war (s. Abb. 6.24). Diese Messung bildet die Grundlage für die gewählte Temperatur des Substrats während der Messungen<sup>21</sup>, die recht hoch liegen sollte, um nicht unnötig Restgas aufzufrieren, bei der aber noch nicht zuviel  $^{83m}\text{Kr}$  desorbiert, was die Zählrate weiter verringern würde. Die Einstellung des zweiten aufgetragenen Punktes bei 27 K wurde im folgenden als Arbeitspunkt benutzt. Zur Reinigung wurde 2007 die Heizleistung des letzten aufgetragenen Punktes verwendet<sup>22</sup>. Die Zählrate war hier auf 1 % der maximalen Zählrate gesunken. Die Sublimationstemperatur von Krypton bei einem Druck  $10^{-6}$  mbar liegt bei 42 K ([Mei01], [Cra77]). Dieses Verhalten ist auch in Abb. 6.24 zu sehen und bestätigt die Temperaturkalibration des Substratsensors.

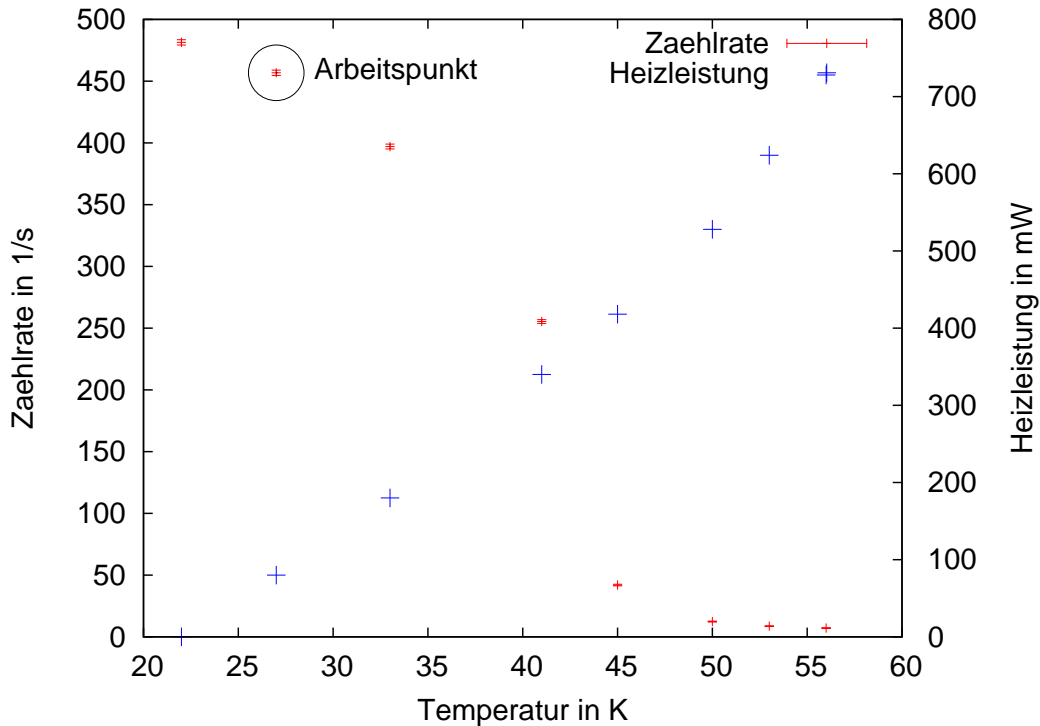
Der Widerstandsheizer wurde mit thermisch-leitendem, aber elektrische isolierenden Epoxydkleber (Epo-Tek E20) in den Edelstahlteil des Substrathalters bei etwa 70-90°C eingeklebt. Die Messung der Temperatur fand mit einem weiteren kalibrierten ebenfalls eingeklebten TVO-Widerstand<sup>23</sup> statt.

---

<sup>21</sup> Auch während der Filme, für die das Substrat zuvor mittels Ablation gereinigt wurde wie auch bei Preplatingfilmen.

<sup>22</sup> 2006 wurde auch bis zu 100 K geheizt

<sup>23</sup> Die Kalibration hat in ihrer Genauigkeit sehr wahrscheinlich eingebüßt, da auch dieser Sensor eingeklebt wurde. Des weiteren wurde der Sensor nicht mit exakt  $10 \mu\text{A}$  wie es in der Kalibrationstabelle angegeben war, betrieben, was zu einem Offset von etwa -2 K führte, um den das Substrat für kälter gemessen wurde als es bei genau  $10 \mu\text{A}$  anzeigen würde.



**Abbildung 6.24:** Dargestellt ist das Desorptionsverhalten von  $^{83m}\text{Kr}$  auf HOPG in Abhängigkeit von der Substrattemperatur bei etwa  $1 \cdot 10^{-9}$  mbar. Bei etwa 27 K ist noch das Gros der Zählrate erhalten. Dieser Wert wurde als Arbeitspunkt gesetzt. Bei 55 K wurde das Substrat bei den Messungen in 2007 von  $^{83m}\text{Kr}$  gereinigt.

### 6.3.3.2 Beschreibung einer "Standardreinigung" mit dem Substratheizer

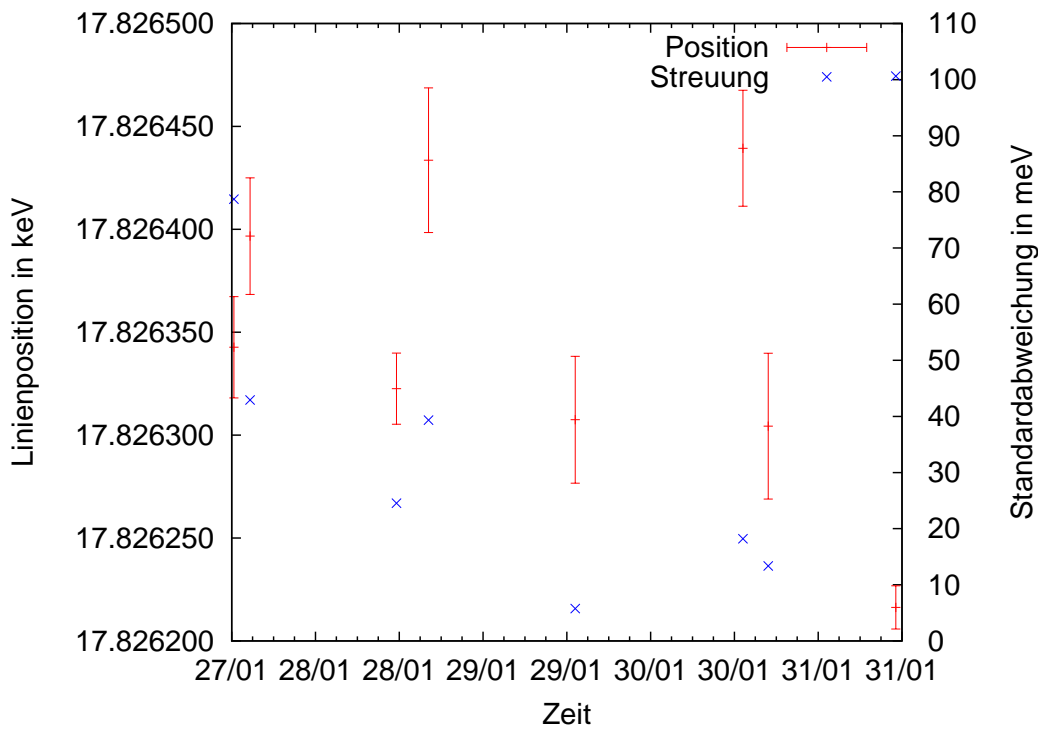
2007 wurde das Substrat mit ca. 700 mW geheizt, bis sich die Substrattemperatur nach ca. 10 Min. auf etwa 55 K stabilisiert hatte. Wenn Krypton auf dem Substrat vor der Reinigung ausreichend vorhanden war, so konnte der Reinigungsprozess auch mittels der schnell steigenden Intensität des Ellipsometriesignals beobachtet werden. Nach wenigen Minuten wurde die Heizung wieder auf 80 mW heruntergeregelt. Mit dieser Heizleistung wurde eine Temperatur von 26-27 K am Substrat nachgewiesen, bei der die  $^{83m}\text{Kr}$ -Filme dann kondensiert und gemessen wurden. 2006 wurden auch höhere Heizleistungen zur Reinigung eingesetzt, die die Substrattemperatur auf über 100 K brachten. Die Substrattemperatur während der Kryptonmessungen lag zu Beginn der Messphase 2006 bei 15-20 K.

Der  $^{83m}\text{Kr}$ -Einlass wurde gestartet, nachdem das Substrat wieder auf mindestens 30 K heruntergekühlt war<sup>24</sup>.

<sup>24</sup>Die Temperatur am  $^{83m}\text{Kr}$  kann zu diesem Zeitpunkt noch leicht höher gelegen haben, da der Sensor im Edelstahlteil eingelebt war und nicht direkt an der Graphitoberfläche messen kann.

### 6.3.3.3 Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers

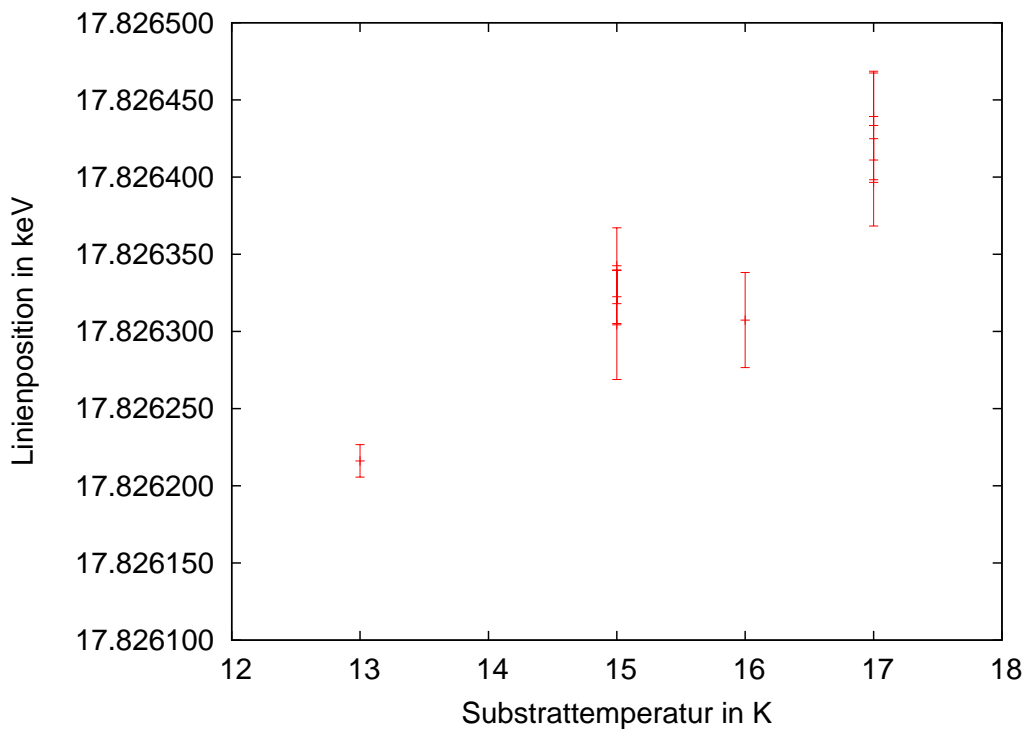
**Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers - 1,35 eV Auflösung 02/2006:** Dieser Messblock stellt den ersten mit der kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle am Mainzer Neutrinomassenspektrometer dar. Zunächst wurde das  $^{83m}\text{Kr}$  nur vor den Aufnahmen der Linienspektren aufgefroren. Während der Aufnahmen blieb das Ventil zum Rb-Behälter geschlossen. Dadurch ist die Statistik der einzelnen Messungen im Vergleich zu den Quellen mit kontinuierlichem Auffrieren deutlich reduziert. Bei diesem Messblock wurde die Kapillarheizung für jeden  $^{83m}\text{Kr}$ -Einlass ein- und während der Messungen wieder ausgeschaltet. Das Substrat wurde auf Temperaturen von etwa 95 K zur Reinigung gebracht. Der höchste Druck bei frisch eingeschalteten Heizungen lag um die  $7\text{-}8 \cdot 10^{-8}$  mbar und fiel um etwa eine Größenordnung während der Messung.



**Abbildung 6.25:** Die Linienposition in der Messphase 1 in 2006 (1,35 eV Auflösung bei 17,8 keV) zeigt scheinbar zwei Elektronenergiebänder, die nicht in zeitlichem Zusammenhang stehen. In dieser Darstellung finden sich die Mittelwerte der einzelnen Scans zu je einer Quellpräparation ( $E_{kin,prep,i}$ ) sowie die Standardabweichungen ( $\sigma_{E_{kin,prep}}$ ).

Es ergibt sich eine Streuung von  $\sigma_{E_{prep}} = 75$  meV der Positionen der einzelnen Filme zueinander. Diese Aufspaltung in höher oder niederenergetischer, ist unabhängig von den Ellipsometriestart- oder endwerten, der Verschmutzung während der Messung abzulesen aus der Veränderung des Polarisatorwinkels von vor zu nach der Messung, dem Druck im Kryobereich, der Kapillartemperatur oder ob mit He gespült wurde oder nicht. Man sieht lediglich einen relativ starken Grad der Verschmut-

zung bei dem letzten Film im Verlauf der Messung. Es zeigte sich allerdings eine Substrattemperaturabhängigkeit der Linienposition (s. Abb. 6.26), die sich gut mit Kondensation von  $\text{H}_2$  in Verbindung bringen lässt. Bei  $10^{-9}$  mbar friert  $\text{H}_2$  ab einer Temperatur von 15 K auf. Im Vergleich zu späteren Messpunkten müssen hier die höchsten Linienpositionen bei der höchsten Substrattemperatur gewählt werden, da später bei höheren Substrattemperaturen gemessen wurde, wo die  $\text{H}_2$ -Kondensation unterdrückt ist. Ein konstantes Anheben der Substrattemperatur kurz unter die Desorbitionsschwelle von  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  ist positionsstabilisierend. Die theoretische  $\text{H}_2$ -Kondensation als Funktion der Temperatur ergibt sich im Monolagenbereich nach der Langmuir-Adsorbtiionsisotherme und im Falle der Adsorbtiion vieler Lagen nach der Brunauer-Emmett-Teller-Isotherme [Wu89].



**Abbildung 6.26:** Die Linienposition in der Messphase 1 bei 1,35 eV Auflösung zeigt eine Abhängigkeit von der Substrattemperatur beim Auffrieren. Der Sprung liegt um die 15 K. Diese Temperatur ermöglicht das Auffrieren von  $\text{H}_2$ . Eine geringe Belegung mit  $\text{H}_2$  hat eine Verringerung der Austrittsarbeit zur Folge, ist aber noch nicht sichtbar für die Ellipsometriedaten.

Die angegebene Linienposition wurde mit einer festen Linienbreite von 2,81 eV angefitet, welches dem Mittelwert der Linienbreite bei freiem Fit bei dieser Auflösung entspricht. Die Linienbreite wird im Vergleich zu den Messungen 2007 also um 110 meV überschätzt. Die Linienposition erhält dadurch nach Abb. 6.9 eine Verschiebung von -13 meV. Im Langzeitvergleich würde damit die Liniendrift um diesen Wert künstlich verringert.

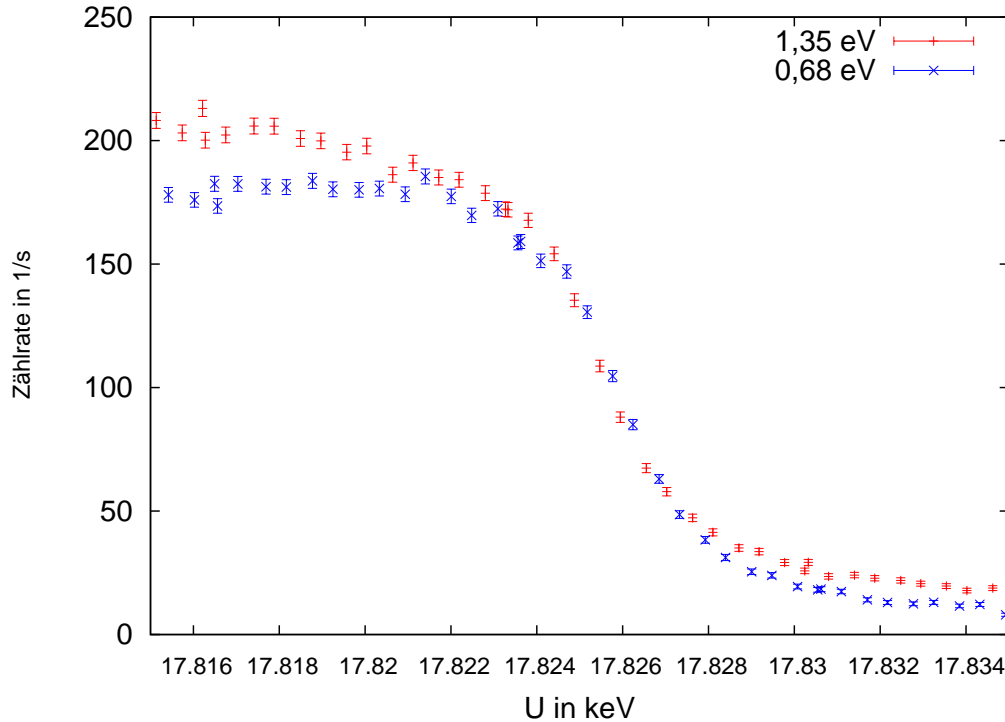
Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
3	6

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans(Schwankung)	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Heizung
17826,422(17) eV	43(6) meV	23 meV	<14 meV <sup>a</sup>

<sup>a</sup>Bei 23 meV resultierender Schwankung bestehen bei 6 Scans à 43 meV Genauigkeit zu 18 meV statistische Schwankung und 14 meV Schwankungen anderer Ursache.

Für 17826,422 eV ergibt sich für einen Konstantenfit ein nichtreduziertes  $\chi^2=1,29$ , welches eine Wahrscheinlichkeit von 53 % hat.

**Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers - 0,68 eV Auflösung 02/2006:** Die nun gewählte Auflösung von 0,68 eV überstrapaziert das Spektrometer leicht. Früh einsetzende Transmissionsverluste lassen die Fits nur mit sehr knappem unteren Energieauswertelimit von 17823 eV zu (s. Abb. 6.27). Dennoch lässt sich der Effekt aus der vorausgehenden Messphase wiederfinden: eine Abhängigkeit von der Substrattemperatur (s. Abb. 6.29).

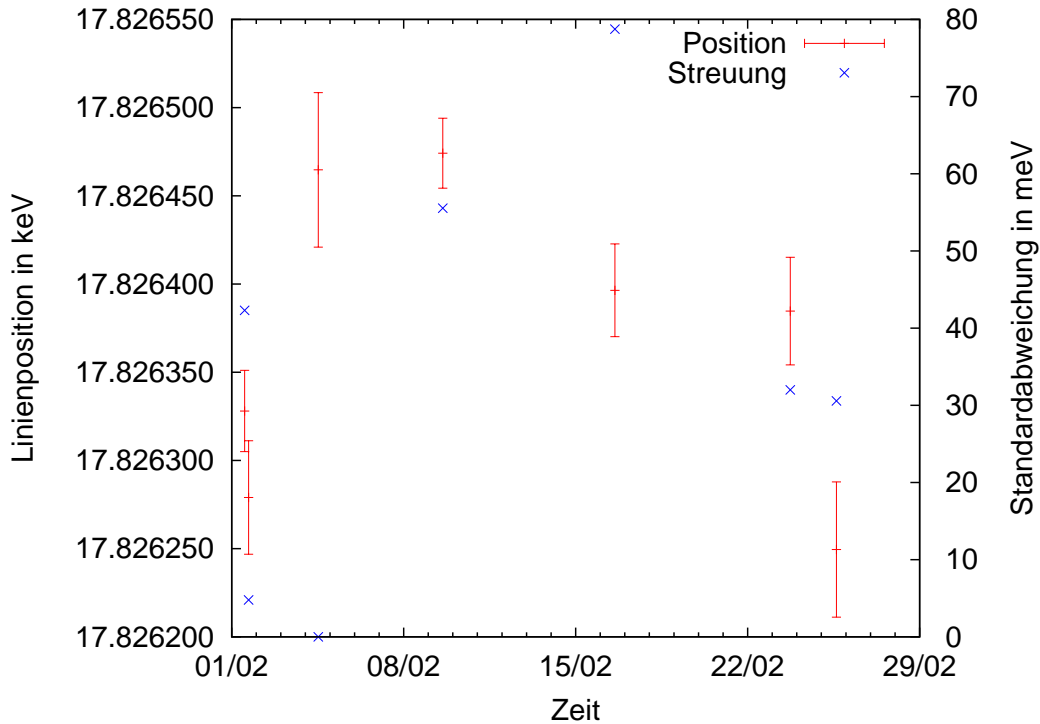


**Abbildung 6.27:** Die Erhöhung der Auflösung von 1,35 eV auf 0,68 eV bei 17,8 keV verändert das aufgenommene Spektrum. Zur Illustration sind hier zwei Spektromaufnahmen gezeigt, wovon eine bei 1,35 eV Auflösung und eine bei 0,68 eV Auflösung gemacht wurde. Es zeigt sich eine Zunahme an Transmissionsverlusten durch die gesteigerte Auflösung. Zur Minimierung des Einflusses auf die Linienposition wurde das Auswertefenster für die 0,68 eV Messungen auf 17823 eV gesetzt.

Die Temperaturangaben in dieser Messperiode sind ungenauer, da zwar teils kontinuierlich aufgefroren wurde, die Temperatur aber nicht kontinuierlich mitgeschrieben wurde. Die angegebenen Temperaturwerte können sich also während der Messung weiter verändert haben. Die geheizten Filme lagen bei Substrattemperaturen knapp unter 30 K. Ihre Elektronenenergien haben eine mittlere Energie von  $17826,450(16;55)$  eV (s. Abb. 6.28)<sup>25</sup>, was noch verträglich mit den Messungen bei moderaterer Auflösung ( $=17826,422(17;43)$  eV) ist.

Die Daten wurden mit einer festen Breite von 2,85 eV gefittet. Eine künstliche Verringerung der Position um 20 meV kann angenommen werden. Es werden nur die Filme mit Substrattemperaturen über 20 K ein.

<sup>25</sup>(Fehler des gewichteten Mittelwerts, Fehler eines Scans)

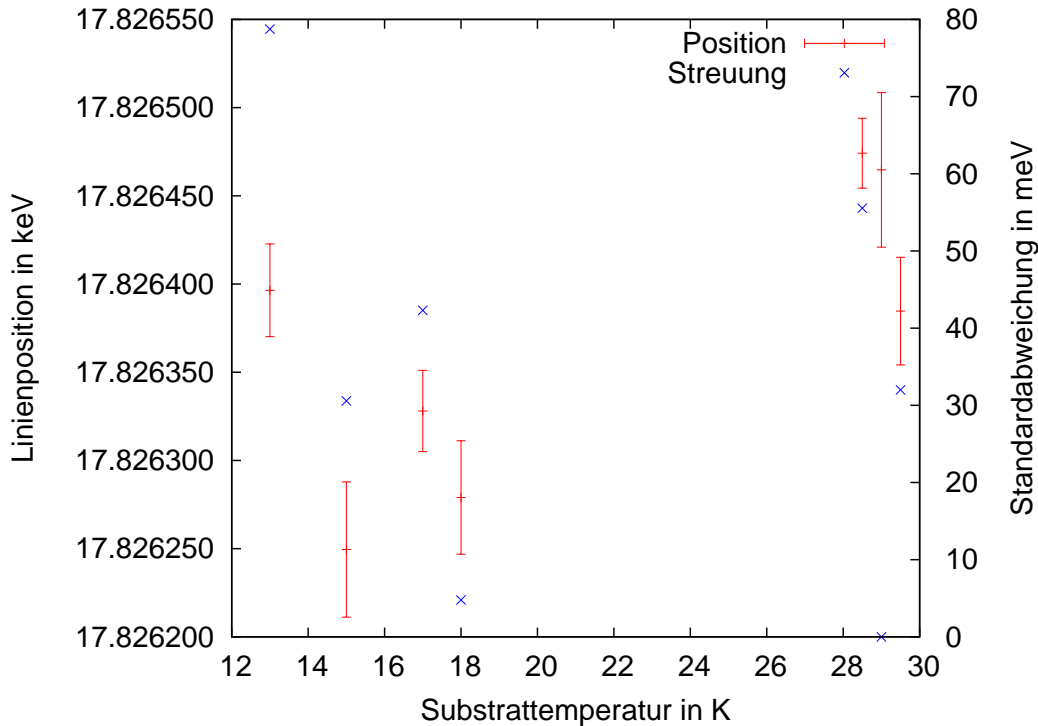


**Abbildung 6.28:** Die Linienposition in der Messphase 1 bei 0,68 eV Auflösung zeigt wie auch schon die vorausgehenden Messungen bei 1,35 eV Auflösung eine starke Streuung. Diesem ist nun aber auch andeutungsweise eine zeitliche Drift überlagert hin zu niedrigeren Energien.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
3	12

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans (Schwankung)	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Heizung
17826,450(16) eV	55(6) meV	49 meV	<46 meV

Für 17826,450 eV ergibt sich für einen Konstantenfit ein nichtreduziertes  $\chi^2=6,18$ , welches nur eine Wahrscheinlichkeit von 5 % hat.

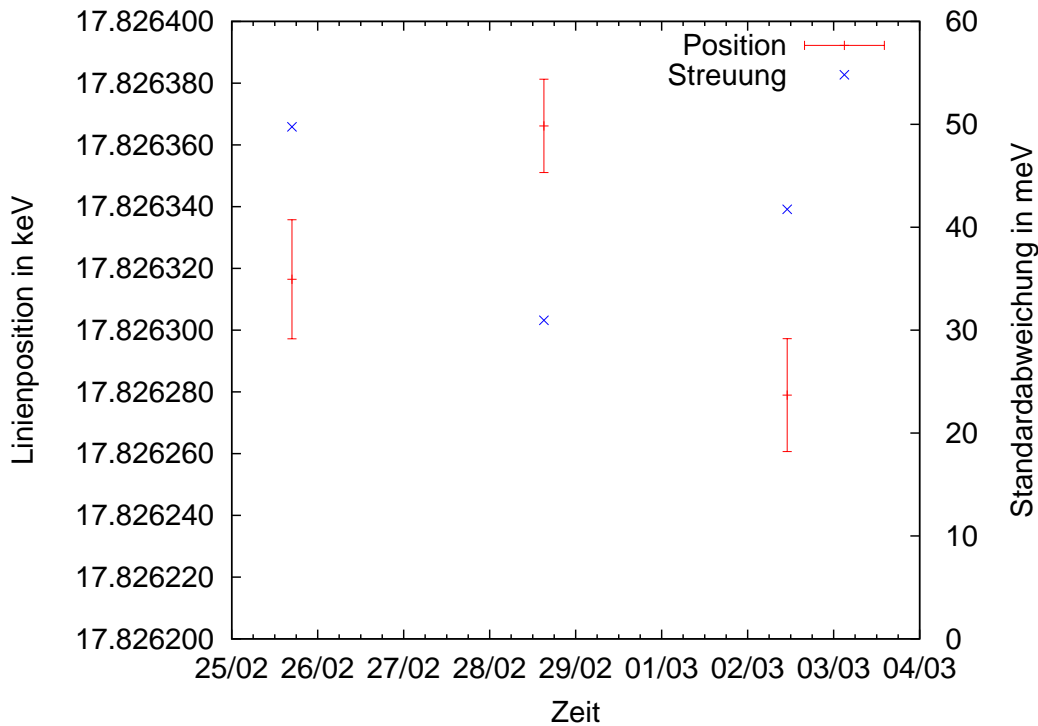


**Abbildung 6.29:** Die Linienposition in der Messphase 1 in 2006 bei 0,68 eV Auflösung zeigt wieder eine deutliche Abhängigkeit von der Substrattemperatur. Ein zusätzliches Heizen des Substrats führt zu einer Stabilisation der Linie bei höheren Energien. Der Messwert bei 13 K kommt von einem Film mit kontinuierlichem Aufrieren, wobei nach einigen Stunden der Temperaturwert notiert wurde. Es ist also gut möglich, das zu Beginn der Messung, als eine große Anfangsmenge Krypton vorlag, die Temperatur wärmer war. Die starke Schwankung zeigt die Instabilität der Linienlage auf wahrscheinlich rauher, wachsender  $H_2$ -Unterlage, wie sie bei Temperaturen unter 15 K zu erwarten ist. Der Messwert bei 29 K stellt einen Film nach ersten Preplating Versuchen bei 50 K dar. Bei dieser Temperatur bleibt Krypton noch nicht haften, deshalb wurde der Film als ein Film ohne Zwischenschicht gewertet.

**Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers - 0,9 eV Auflösung - 02-03/2006:** Es gab eine abschließende sehr kurze Messphase bei 0,9 eV Auflösung bevor das Spektrometer modifiziert wurde. Die Scans waren größtenteils sehr kurz und in groben Schritten von 1 eV gehalten. Während eine Temperatur oberhalb von 25 K eingestellt wurde, war der Substratheizer in dieser Zeit allerdings nicht mehr voll funktionsfähig, d.h. eine Temperatur von 95 K konnte nicht mehr erreicht werden. Fits unter gleichen Bedingungen ergeben ein schlechteres  $\chi^2$ . Die mittlere Linienposition beläuft sich auf 17826,327(10;48)eV (s. Abb. 6.30), was nicht mehr verträglich ist mit den vorausgehenden Messphasen.

Bei diesen Messwerten muss man aber die Beobachtungen der Ellipsometriestartwerte hinzuziehen. Es wurde im Verlauf des Februars eine zunehmende Veränderung des Substrats festgestellt wie schon in [Thu08] und [Hil07] berichtet. Die Elektronenenergie sinkt im Laufe der Zeit von 1 1/2 Monaten, während die Veränderung der Polarisatorstellung demgegenüber ansteigt, also auf eine Verschmutzung des Sub-





**Abbildung 6.30:** Die Linienposition in der Messphase 1 bei 0,9 eV Auflösung liegt im Mittel nur bei 17826,327(10;48) eV. Insbesondere der letzte Messpunkt liegt deutlich bei niedrigerer Energie.

strats hinweist. Es muss also angenommen werden, dass eine Restgaskomponente im größeren Zeitfenster zu einer Reduzierung der Elektronenenergie führte. Die verantwortliche Restgaskomponente löst sich nicht bei Temperaturen bis 100 K. Ein möglicher Kandidat wäre  $\text{H}_2\text{O}$ , welches sich erst in der Nähe der Raumtemperatur lösen kann. Diese These wird gestützt von der Tatsache, dass direkt nach Messbeginn der folgenden Messphase, nachdem die Apparatur Raumtemperatur für eine geraume Weile erlangt hatte, die Linienposition sich wieder an altbekannter "hoher" Position befand (s. Abschnitt 6.3.3.3).

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
3	23

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans (Schwankung)	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Heizung
17826,327(10) eV	48(2) meV	44 meV	<43 meV

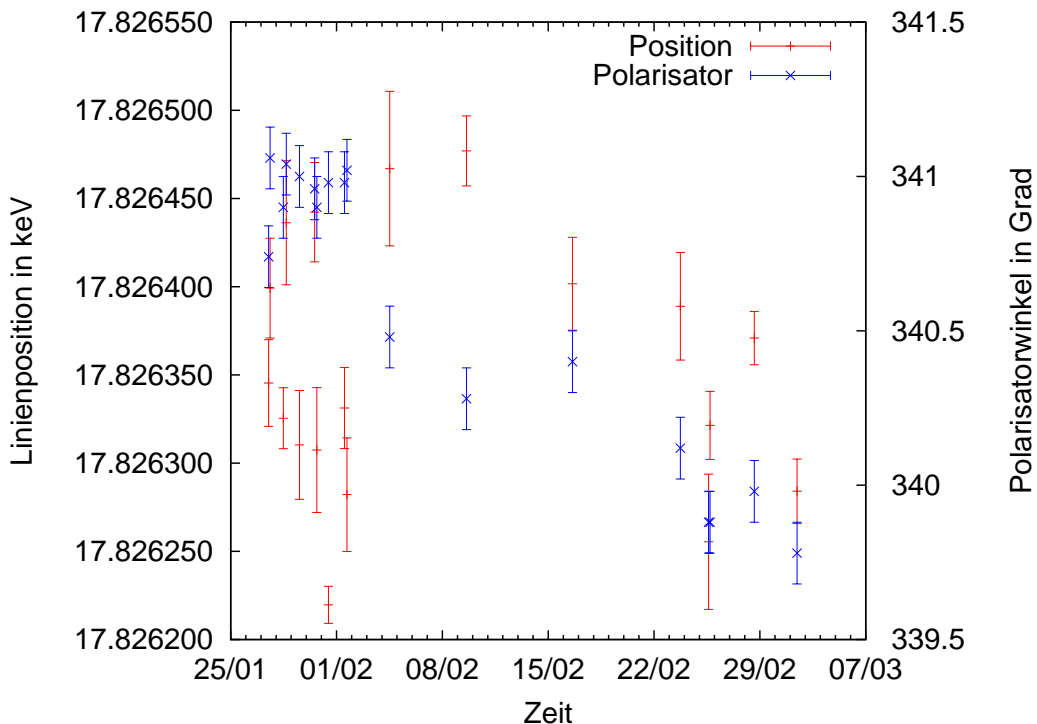
Für 17826,327 eV ergibt sich ein nichtreduziertes  $\chi^2=13,9$  für einen Konstantenfit,

welches nur eine Wahrscheinlichkeit von 0,1% hat. Eine zusätzliche Schwankung von 20 meV hebt die Wahrscheinlichkeit für den  $\chi^2$  über 5%.

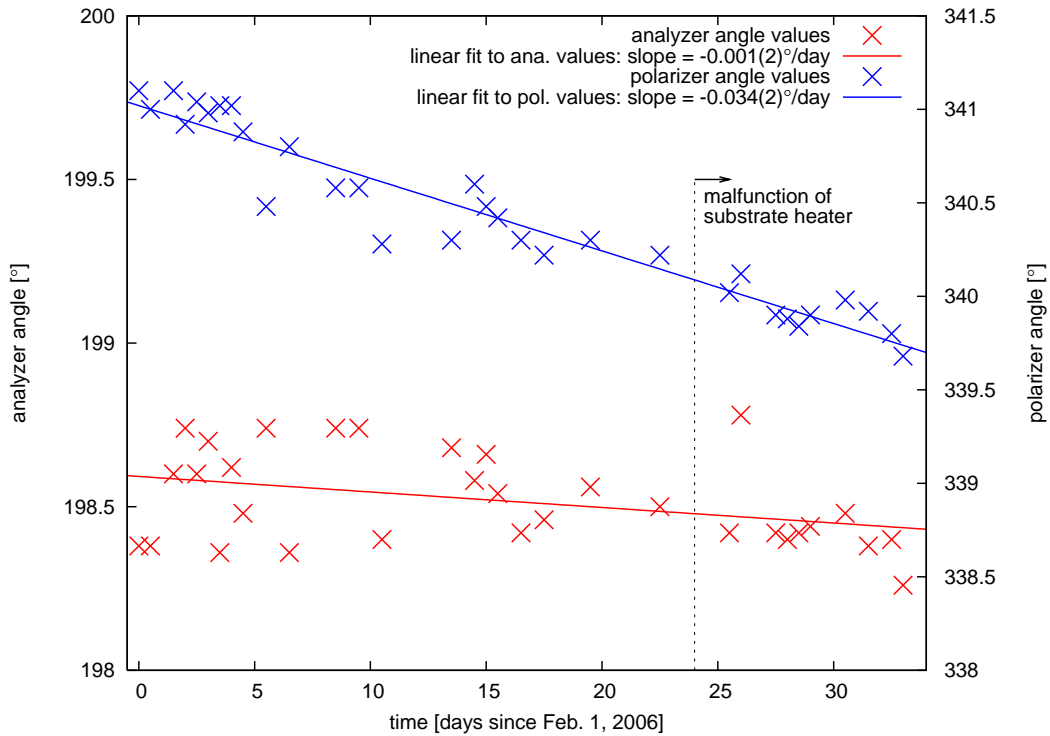
**Überblick Messphase Winter 2006:** Betrachtet man die erste Messphase im Winter 2006, so fällt auf, dass die Ellipsometriewerte, die bei frisch gereinigtem Substrat aufgenommen wurden, nicht konstant waren (s. Abb. 6.32). Vielmehr zeigt sich eine stetige Abnahme des Polarisatorwertes, was in dieser Messphase der Zunahme eines Belages auf dem Substrat entspricht. Nimmt man die Messdaten zur Linienposition der K-32-konversionselektronen mit hinzu, so fällt ein Absinken der Linienposition mit der Zeit auf (s. Abb. 6.31).

Linienposition und Substratverschmutzung sind korreliert (s. Abb. 6.33). Hat sich der Polarisatorstartwert zu stark geändert, so ändert sich ebenfalls die Linienposition.

Beschränkt man also die Messungen auf solche mit einer Polarisatorstellung von größer als  $340,2^\circ$  und einer Substrattemperatur von mehr als 17 K, dann ergibt sich ein Mittelwert von  $17826,437(11;51)$  eV für die Messungen vom Februar 2006. Nach zwei Wochen ist also bei einem Druck von mehreren  $10^{-9}$  mbar und kurzzeitig bis zu einer Größenordnung mehr das Substrat zu stark verschmutzt und muss neu gereinigt werden, beispielsweise durch Ausschalten des Kaltkopfes und stärkerem Heizen des Substrats oder durch Ablation.



**Abbildung 6.31:** Dargestellt sind die Ellipsometriewerte und Linienpositionen gegen die Zeit von allem Heizergereinigten Filmen aus der ersten Messphase 01-03/2006. Linienposition und Polarisatorwinkel weisen starke Veränderungen auf.

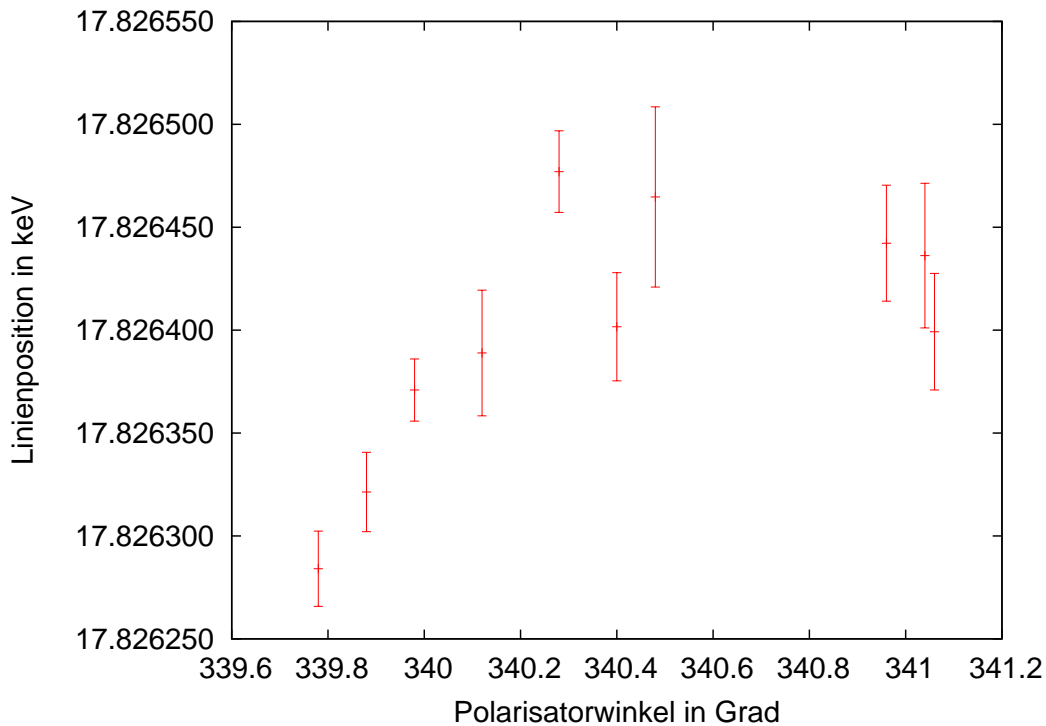


**Abbildung 6.32:** Die Ellipsometriewerte bei "sauberem" Substrat [Hil07] weisen das Substrat als gar nicht so sauber wie erwartet aus. Jedem Messpunkt muss etwa ein Fehler für die Absolutposition von  $0,1^\circ$  hinzugegeben werden. Man sieht, dass die Fehlfunktion des Heizers keinen Einfluss auf den Trend der Messwerte hat. Das Heizen auf 100 K reicht also auch nicht aus, um die zunehmende Substratveränderung zu stoppen.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
6	18

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans (Schwankung)	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Heizung
17826,437(11) eV	51 meV	33 meV	<31 meV

Für 17826,437 eV ergibt sich ein nichtreduziertes  $\chi^2=8,35$  für einen Konstantenfit, welches nur eine Wahrscheinlichkeit von 14% hat.



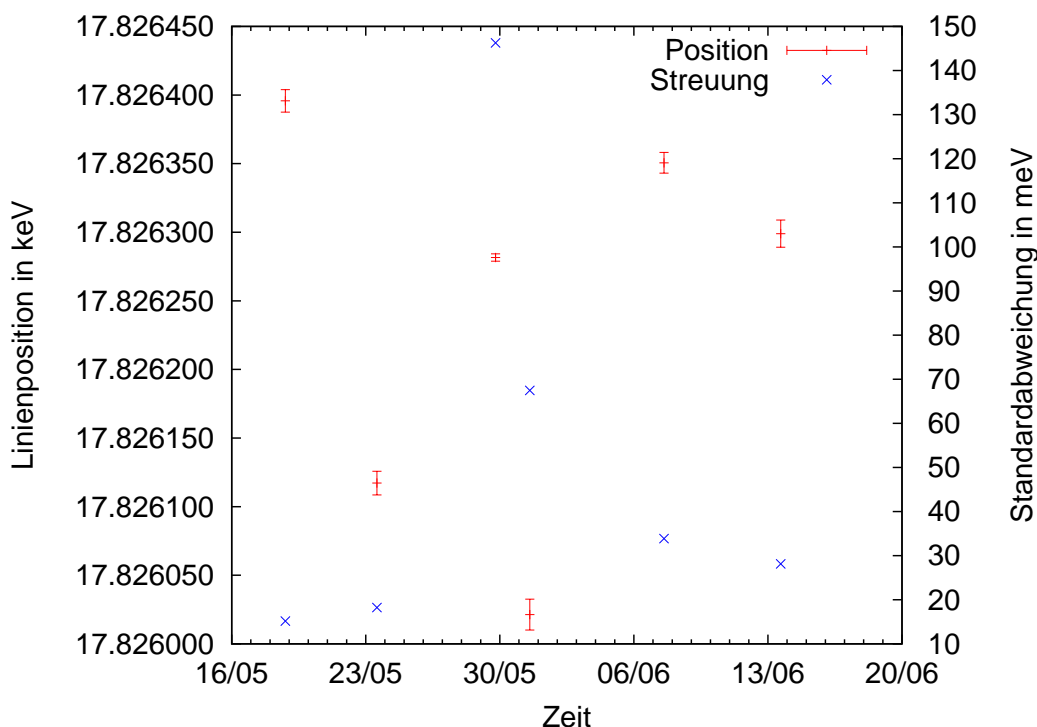
**Abbildung 6.33:** Aufgetragen sind die Linienpositionen gegen die Polarisatorstartwerte von den Messungen der ersten Messphase Jan-März 2006, wobei hier die Filme mit niedriger Substrattemperatur ausgespart wurden. Verschmutzung des Substrats und Linienposition im Laufe von 1 1/2 Monaten sind klar korreliert.

**Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers - 0,9eV Auflösung - 05/2006:** In dieser Messphase wurde mit einem schlechten Druck im Detektorvakuum gemessen. Ein Druck von  $10^{-6}$  mbar im Detektorvakuum<sup>26</sup> konnte nicht unterschritten werden. Das bedeutete eine Verschlechterung des Vakuums im Spektrometer um ca. eine Größenordnung auf den unteren  $10^{-9}$  mbar Bereich. Am Quellvakuum lag ein Druck von  $6-7 \cdot 10^{-9}$  mbar vor, der durchaus noch vergleichbar war mit den Bedingungen im Februar dank der Pumpleistung des Spektrometer-tanks. Zusätzlich konnte in dieser Messphase der Substratheizer das Substrat nicht mehr auf die nötigen 50 K bringen, um die  $^{83m}\text{Kr}$ -Aktivität zu entfernen. Folglich wurden wenige Filme mit langer Messzeit bearbeitet. Auch wurde nach der vermissten Zählrate gesucht [Hil07], [Smo08]. Als einzige Reinigungsmethode wurde ein Ausschalten des Kaltkopfes über die Wochenenden praktiziert<sup>27</sup>.

In Abb. 6.35 sieht man die Messungen der heizergereinigten Filme aus dem Mai 2006. Zunächst liegt die Elektronenenergie auf erwartet hohem Niveau von 17826,397(8,22) eV. Dieser Wert, der -40(33) meV kleiner ist als der Mittelwert der Messwerte bei einer Auflösung von 1,35 eV und 0,68 eV, entspricht nominell der erwarteten

<sup>26</sup>2 Größenordnungen schlechter als zuvor

<sup>27</sup>Die Dauer eines Wochenendes reicht aber nicht aus, um die Temperatur des Substrats ohne weitere Heizung sicher über den Gefrierpunkt zu heben, weshalb der Verbleib von  $\text{H}_2\text{O}$  nicht geklärt werden kann.



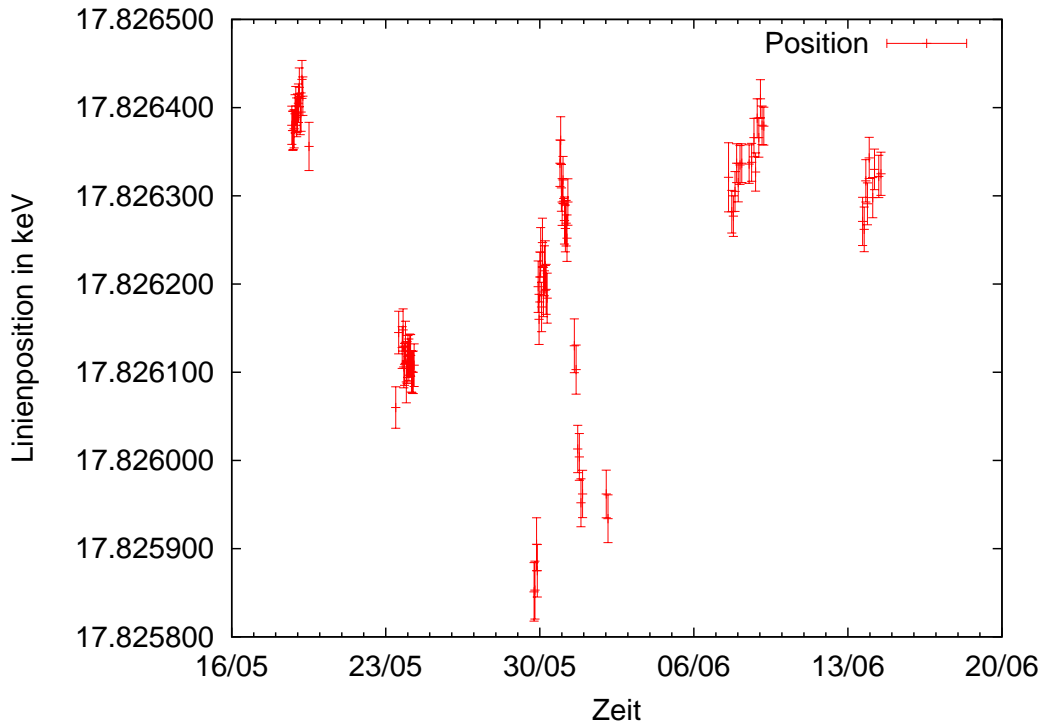
**Abbildung 6.34:** Die Linienposition unter schlechten Vakuumbedingungen zeigt besonders starke Schwankungen. Zunächst beginnt die Elektronenenergie bei bekannt hohem Wert 17826,396 eV. Vor dem nächsten Messpunkt wurde das Substrat auf 15 K abgekühlt und schlechtem Druck im Spektrometer ausgesetzt zur Suche nach Zählrate. Zusätzlich wurde kurze Zeit zuvor die Kapillare auf 73 K hochgeheizt, nachdem sie die Nacht zuvor bei 55 K gestanden und  $^{83m}\text{Kr}$  und Restgas sich dort hat sammeln können. Die Reaktion der Elektronenenergie ist drastisch. Eine Verschiebung um 278 meV hin zu niedrigerer Energie. Zwei Filme fallen aufgrund ihrer starken Standardabweichung auf. Ein Hub dieser Größe ist auch aus den Februarmessungen bei nichtgeheiztem und geheiztem Substrat bekannt (s. Abb. 6.29).

Drift der HV-Messung von -30 meV (0,6 ppm über 2,5 Monate). Aus diesen Messungen und den vorgestellten Auswahlkriterien würde man ein Driftverhalten von 0,9(7)ppm/Monat angeben.

Diese Messphase war aber insgesamt geprägt von nicht guten Bedingungen für eine stabile Linienlage. Solch "schlechte" Bedingungen helfen aber abzuschätzen, wie deren Auswirkungen auf die Linienposition der K-32-Konversionselektronen sind.

Bereits der nächste Film vom 23.5. weicht um 280 meV von diesem ab. Das lässt sich aber durch die provoziert schlechten Vakuumbedingungen von  $10^{-8}$  mbar im Spektrometer beim Kaltfahren zusammen mit einem nicht geheizten Substrat  $T \leq 15$  K erklären. Auch im Februar zeigten nicht geheizte Filme schon eine Verschiebung um -160 meV (s. Abb. 6.25).

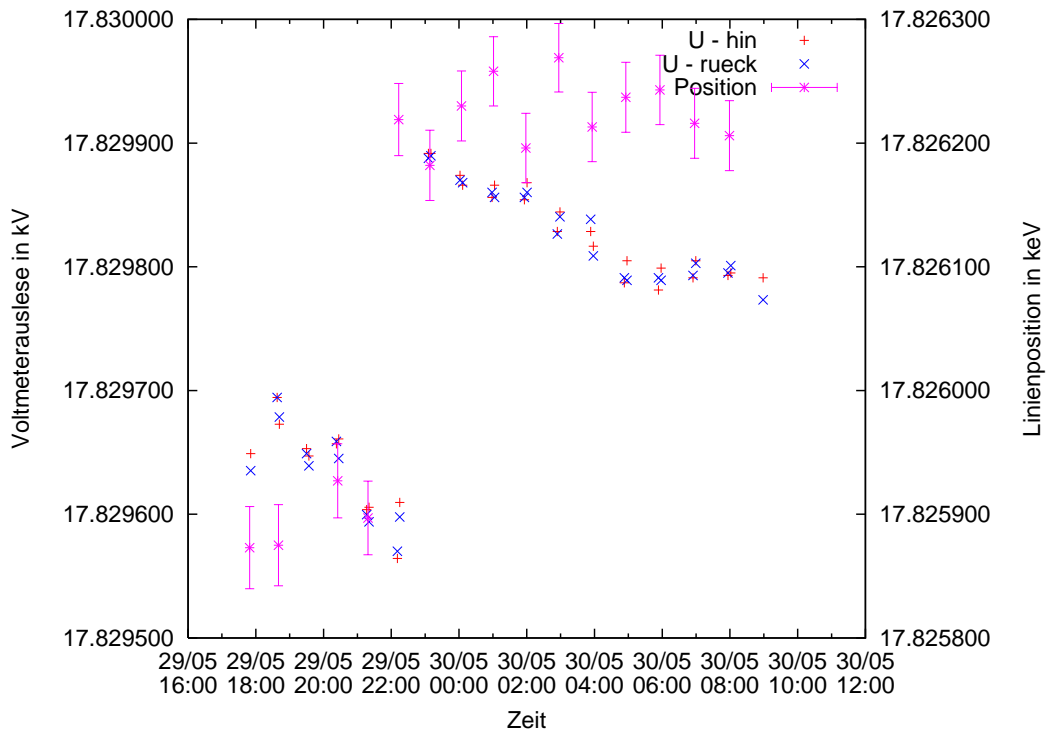
Der nächste Messwert beginnend in der Nacht zum 30.5. weist Unstimmigkeiten in der HV-Messung auf (s. Abb. 6.36). Trägt man den vom Voltmeter gemessenen Wert bei immer dem gleichen Befehl an die Spannungsversorgung auf wie auch schon



**Abbildung 6.35:** Die Messphase im Mai 2006 ist von einer Reihe von Instabilitäten geprägt. Einige können der HV-Messung zugeordnet werden (um den 30.5. s. nächste Abb.). Direkt im Anschluss ist eine extrem niedrige Linienposition zu sehen, die sich nach wenigen Messpunkten wieder nach oben korrigiert. Auffällig hier ist wieder die Reaktion des Spannungsversorgungs-Teiler Komplexes. Ein gleicher Befehl führt zu einem Sprung in der Linienposition wie auch in den 2007er Daten nur in umgekehrter Sprungrichtung. Selbst wenn man die Messungen zwischen dem 22.5.06 und dem 6.6.06 ausklammert ist eine Drift hinzu niedrigeren Energien zu erkennen mit einem Hub von etwa -100 meV.

für Abb. 6.36 und schaut gleichzeitig nach der Linienposition, so ist ein gleichzeitiger Sprung gleicher Größe und Richtung von Elektronenenergie und Teilmesswert zu erkennen. Das würde wieder genau dann passieren, wenn der Teiler die Spannung falsch misst. Am 25.5. wurden die Spannungsversorgungsgeräte ausgetauscht. Es liegt der Verdacht nahe, dass bei diesem Wechsel die Erdleitungsverbindungen verschlechtert wurden. Eine weitere Schwachstelle ist sicher das Umstöpseln der Kabel am Voltmeter zur regelmäßigen Kalibration. Schwankungen beispielsweise auf der Erdleitung des bereits heruntergeteilten Spannungssignals würden sich am empfindlichsten bemerkbar machen.

Außerdem wurden dem System rigide Wechsel des HV-Bereichs abverlangt. Dadurch werden die vollen 10 ppm Reproduzierbarkeit der Spannungsversorgung ausgeschöpft. Eine Untersuchung der Linienposition auf Unstimmigkeiten in der Spannungsversorgung kleiner als 10 ppm ( $\approx 200$  meV) ist dadurch ohne weitere Redundanz wie eine zweite Eichquelle oder einer Approximation von  $E_0$  aus dem T- $\beta$ -Spektrum nicht möglich. Aus diesem Grund werden diese und die anschließenden



**Abbildung 6.36: Ein Sprung in der Elektronenenergie und ein gleichzeitiger Sprung in der Spannungsskala** ist zu zwei Zeitpunkten der Messungen aufgetreten. Hier ist der Sprung in den Messdaten von 2006 zu sehen. Man sieht an der linken Ordinate die Spannungsmesswerte, die vom Spannungsteiler und dem Fluke-Voltmeter ausgelesen wurde, wenn jeweils der gleiche Befehl an die Spannungsversorgung geschickt wurde. Für die Darstellung hier wurden die Messwerte durch das Teilverhältnis 1:1972,4645 dividiert. Auf der zweiten Achse sind die gefitteten Linienpositionen aufgetragen. Auch hier ist das gleiche Teilverhältnis eingerechnet. Es liegt nahe, anzunehmen, dass die Spannungsmessung die tatsächlichen Werte verfälscht. Der Sprung von  $\approx 17$  ppm ist zu groß für die Spezifikationen von Versorgung und Voltmeter<sup>28</sup>.

Messungen nicht weiter für den Langzeitvergleich hinzugezogen.

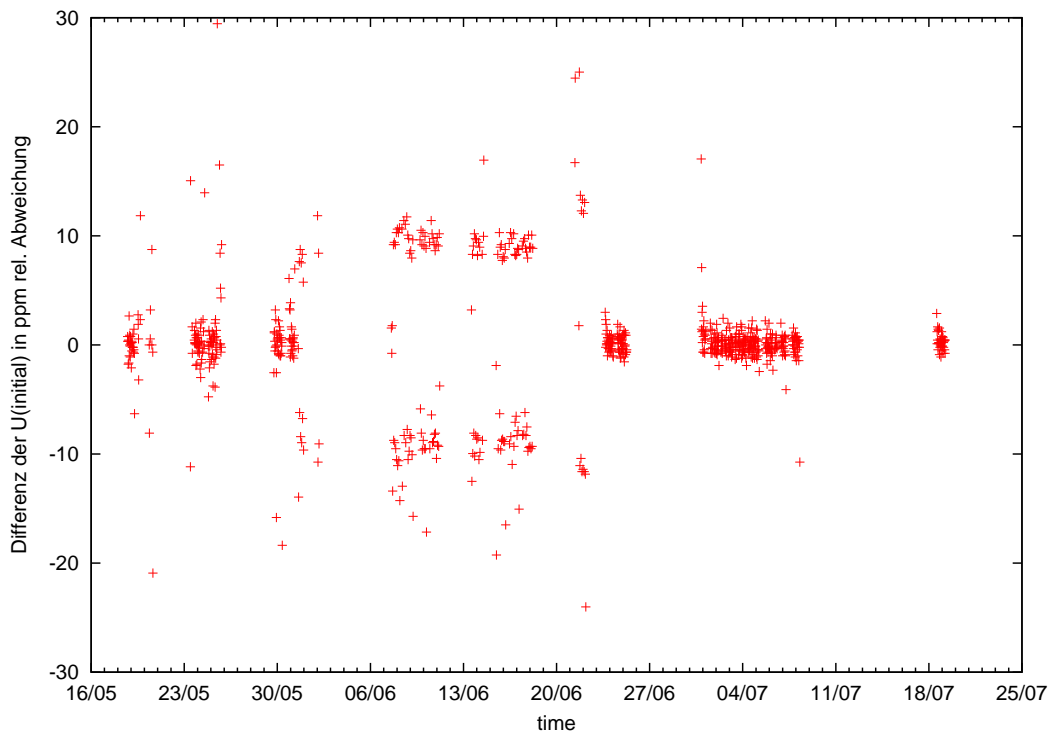
Der nächste Messpunkt wurde aufgenommen, nachdem die Kapillarheizung bis zu ihrem Limit ausgereizt wurde. Das bedeutet einen starken Eingriff in das lokale Vakuum über dem Substrat. Zusammen mit den generell mäßigen Vakuumbedingung zu dieser Zeit ist ein Absinken der Elektronenenergie einzusehen. Auffällig ist auch die grosse Standardabweichung der einzelnen Messpunkte vom Mittelwert der einzelnen Filmpräparationen. Die Mittelungen über Hin- und Rücklauf des Scans sind fraglich<sup>29</sup>.

Ab dem 22.6.06 wurden nur noch K-32-Scans durchgeführt. Die Spannungsversorgung stand ab hier also nicht unter der besonderen Belastung von wechselnden Belastungen im 10 keV, 20 keV und oder 20 keV und 30 keV Bereich wie im Zeitraum

<sup>29</sup>Bei Quellen mit stabilisierter Aktivität, also nach mehreren Stunden Kondensation ist es möglich Hin- und Rücklauf separat zu betrachten und auf die Zählratenkorrektur zu verzichten, bei den vorliegenden Filmen ist das aber noch nicht der Fall gewesen.

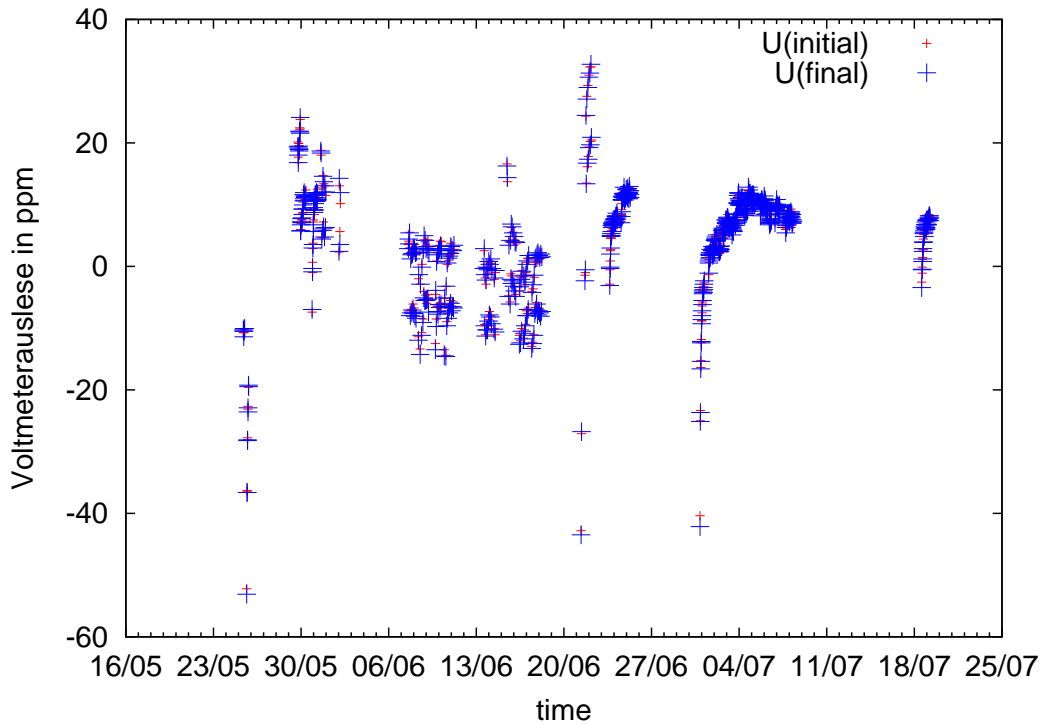
vom 19.5. bis zum 20.6.06. Die Voltmeterauslese bei jeweils dem gleichen Befehl an die Spannungsversorgung schwankt nicht mehr mit  $\pm 10$  ppm, sondern zeigt nur gleichmäßige Driftverhalten (s. Abb. 6.38 u. Abb. 6.37).

Die verbleibenden Filme zeigen eine leicht abgesenkte Elektronenenergie von 17826,351(8;34) eV und 17826,300(10;28) eV, also 50 meV und 100 meV tiefer als zu Beginn der Messphase. Dieses Absenken der Linienposition ist aus der ersten Messphase 2006 bekannt, und kann mit einer Verschmutzung des Substrats in Verbindung gebracht werden. Am Ende der Messphase wurden erste Ablationstests durchgeführt. Die Linienposition der K-32-Elektronen sprang infolgedessen hoch auf 17826,445(21) eV. Aus diesen Gründen wird zum Langzeitvergleich nur die erste Filmpräparation vom 18.5.06 herangezogen.



**Abbildung 6.37:** Die Differenz der Spannungsauslese bei gleichen Spannungsversorgungsbefehlen zwischen zwei Scans zeigt klar stabile Bereiche, in denen kein rigider Spannungsbereichswchsel durchgeführt wurde und Sprünge von  $\approx \pm 10$  ppm verzeichnet wurden, was im Rahmen der Reproduzierbarkeit der Spannungsversorgung liegt.





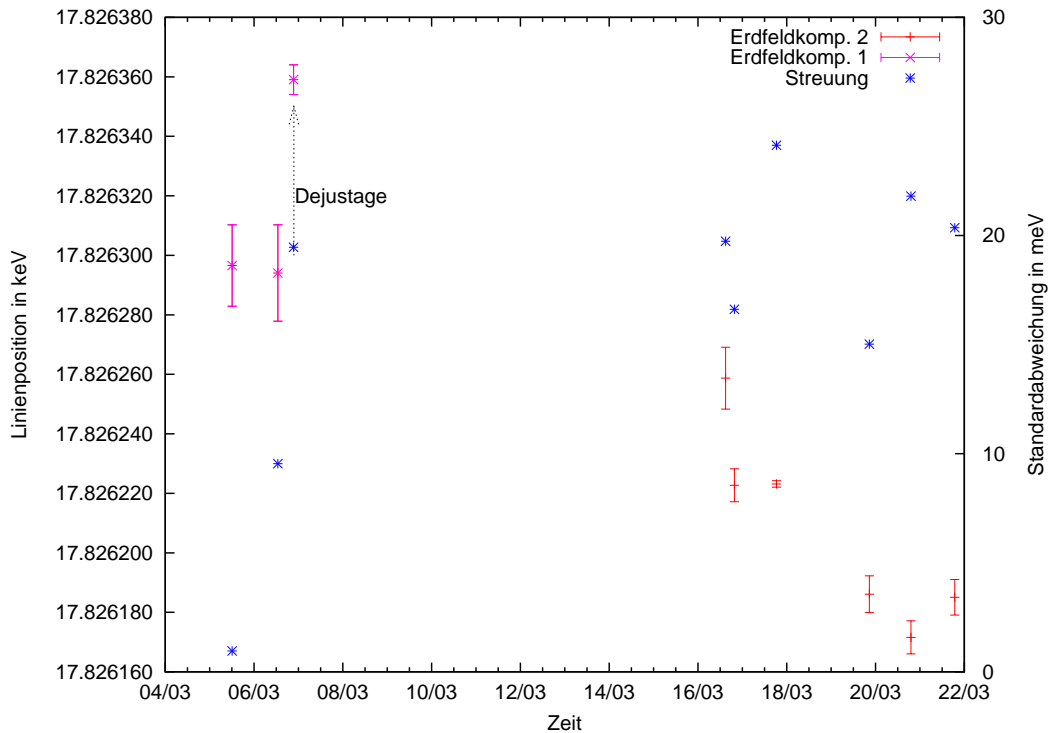
**Abbildung 6.38:** Die Spannungsauslesewerte aus dem Mai 2006 mit dem HCP-Netzteil zeigen aufgrund der rigiden Spannungsbereichswechsel kein leicht zu kontrollierendes Bild. Variationen der Quelle bis zu 200 mV können nicht von Spannungsauslesefehlern unterschieden werden.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
1	7

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Heizung
17826,397(8) eV	22 meV	- meV	-

**Stabilität der Linie nach Substratreinigung mittels Heizers - 03/2007:** Die Messphase begann nicht direkt nach dem Kaltfahren des Kaltkopfes. Dem ersten aufgetragenen Film dieser Messperiode ging u.a. die Aufnahme einer Referenzellipse voraus. Die Anfangsbedingungen waren also sicherlich nicht optimal sauber.

Das Substrat wurde zu dieser Zeit noch nicht aktiv auf 28 K geheizt. Für ein Ausfrieren von  $H_2$  ist aber bei den 2007er Messungen ohne Preplating weniger Gefahr gegeben, da das Substrat thermisch schlechter an den Kaltkopf angekoppelt war, sodass die tiefste erreichbare Temperatur bei etwa 22 K lag. Zusätzlich war der Restgasdruck um eine Größenordnung niedriger.



**Abbildung 6.39:** Dargestellt ist die Linienstabilität nach Substratheizung hier aufgetragen im Mittel der einzelnen Scans pro Quellpräparation mit Voltmeterkalibrationskorrektur. Dazu ist die Standardabweichung der einzelnen Scans mit angegeben, die alle im verträglichen Bereich liegen und nicht deutlich schlechter sind als die nach Ablationsreinigung. Auffällig ist der Messwert vom 7.3., sowie das Absinken im Laufe der Zeit. Vor den letzten 6 Messpunkten fanden Ablationen statt mit deutlich höheren Elektronenenergien als Resultat. Die letzten drei Messpunkte wurden im Wechsel mit Preplatingfilmen aufgenommen.

Die Linienposition zeigt eine größere Schwankung ( $\approx 200$  meV) als der stabile Bereich der Ablationsfilme und auch als die heizergereinigten Filme aus dem Vorjahr (s. Abb. 6.39). Insbesondere ist ein Sprung vor (rosa) und nach (rot) dem 9.3.07 zu sehen als auch eine Drift hin zu geringeren Elektronenenergien mit der Zeit.

Am 9.3. kam es zu mehreren Ereignissen nahezu gleichzeitig:

- Zum einen geschah eine Teilbelüftung des Spektrometers durch einen Stromausfall an den Turbopumpen. Der Druckanstieg im Spektrometer wird auf min.  $10^{-6}$  mbar abgeschätzt. Während des Druckanstiegs war das Quellvakuum vom Spektrometervakuum entkoppelt, so dass dort keine Veränderung des Substrats und damit der Linienposition zu erwarten ist.
- Außerdem gab es Probleme mit dem Quellschlitten, der sich auf den Führungsschienen verkeilt hatte.
- Schließlich wurden die Erdfeldkompensationsspulen einen Tag vorher auf das Signal/Untergrund-Verhältnis optimiert. Die Auswirkungen der Veränderung der Erdfeldkompensationsfelder werden in Abschnitt 6.4.2 diskutiert. Dieses Ereignis fällt für die heizergereinigten Filme und solche mit Preplating zusammen mit den anderen genannten Ereignissen, sodass eine Zuordnung von Ursache und Wirkung schwierig ist. Auf ablationsgereinigten Substraten gibt es aber Filme mit einheitlichen Erdfeldkompensationsfeldern und nur Veränderungen von Justage und Druckanstieg. Der Einfluss einer veränderten Quellposition wird in Abschnitt 6.4.1 diskutiert. Ihre Position blieb unter Druckanstieg und ähnlicher Justage stabil. Im Abschnitt "Spektrometerabhängigkeiten" wird das Gros der Verschiebung auf die Erdfeldkompensationsfeldveränderungen zurückgeführt.

Die Bewertung dieser Daten wird also durch diese koinzidenten Ereignisse erschwert. Auffällig in den Daten ist nicht nur die Diskrepanz der Elektronenenergien vor (rosa) dem 9.3. und danach (rot), sondern auch schon zwischen der dritten und den ersten beiden Quellpräparationen in Abb. 6.39. Die Auslenkung der dritten Quelle wird in Abschnitt Spektrometerabhängigkeiten auf einen Dejustageeffekt zurückgeführt.

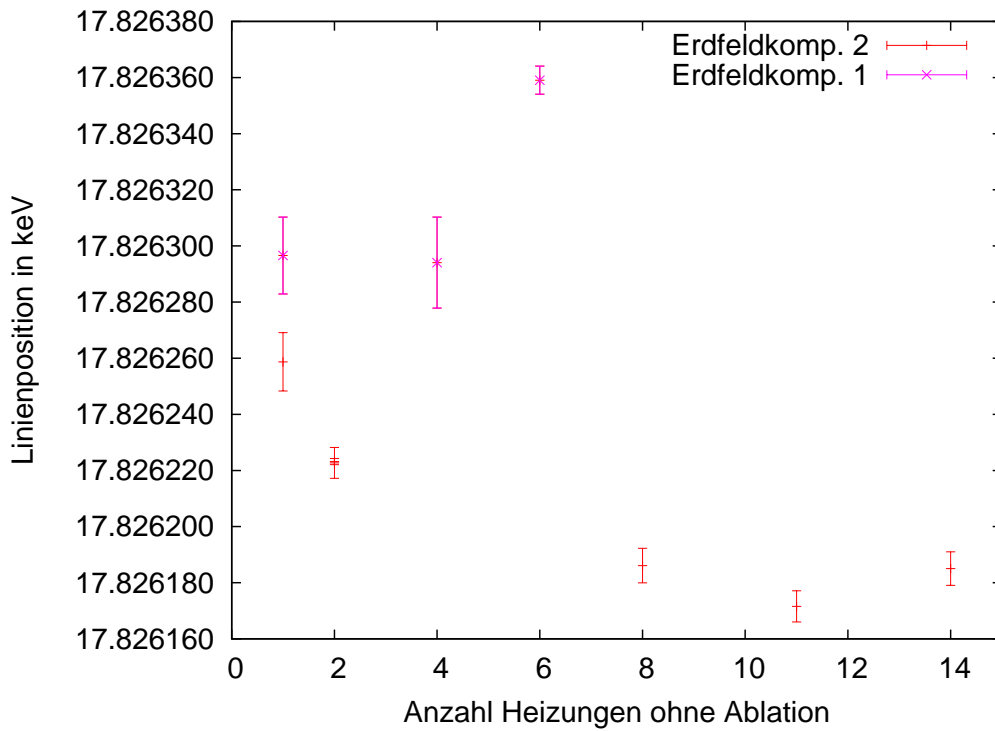
Die mittlere Position der ersten beiden Filmen liegt bei 17826,296(10;21)eV, die dritte Quellpräparation im Mittel bei 17826,371(5;22)eV, die mittlere Position nach dem 9.3.07 bei 17826,220(1;21) eV.

Mit dem Einsatz des Heizers und damit einer kurzzeitigen Temperaturdestabilisierung des Substratbereichs geht eine Absenkung der Linienposition einher. Auch in den Messungen von Juni zeigt der Einsatz des Substrateizers eine Verringerung der Linienposition (s. Abb. 6.13)<sup>30</sup>. Es ist denkbar, dass das Anheizen des gesamten Substratkopfes inklusive Kleber und Lötzinns<sup>31</sup> adsorbiertes Restgas gelöst und auf das Substrat umgelagert haben könnte. Auch wäre es denkbar, dass der Widerstand lokal noch wärmer ist und es so zum Ausgasen des Klebers oder Widerstandsverkapselung kommen konnte und so weitere Koadsorbate möglich werden. In keiner Messung dieser Messphase führte die Substrateizung allerdings zu einer Erhöhung des Polarisatorwinkels, also zu keiner der Ellipsometrie zugänglichen Substratverschmutzung.

---

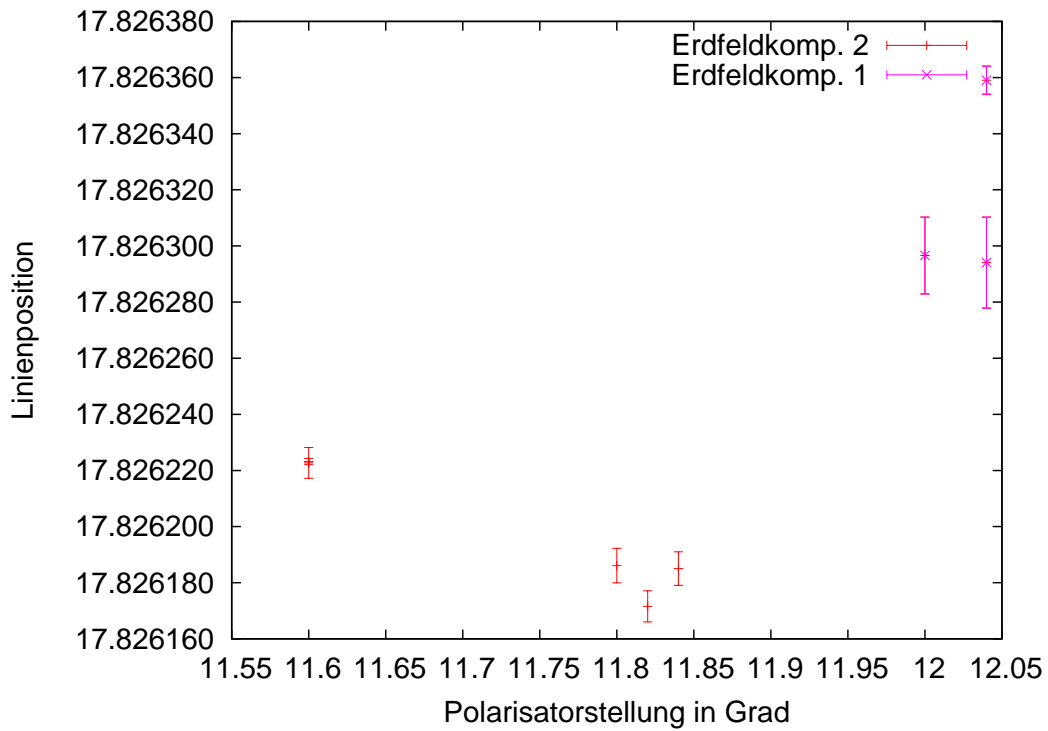
<sup>30</sup>Dies gilt natürlich nur, wenn sich an dieser Stelle nicht eine weitere Drift wie beispielsweise eine Drift der Hochspannung überlagert.

<sup>31</sup>2007 wurden beim Umbau die Zuleitungen von Temperatursensor von Substrat, Kapillarende und Substrateizer gelötet.



**Abbildung 6.40:** Die Linienposition in Abhängigkeit der Anzahl von Substratheizungen ohne vorherige Ablation zeigt eine deutliche Depression bei steigender Heizanzahl. Die drei höchsten Linienpositionen passen nicht in den abwärtsgerichteten Trend. Sie sind alle aus der Zeit vor dem 8.3..

Betrachtet man die Polarisatorstellungen vor den jeweiligen Messpositionen zeigt sich kein so einheitliches Bild wie in den 2006er Februardaten oder den Ablationsdaten von 2007 (s. Abb. 6.18), wo mit sinkender Linienposition der Polarisatorwinkel größere Verschmutzung anzeigte. Um ein ähnliches Verhalten in den Heizergereinigten Filmen zu erkennen, müsste man die Messungen in zwei Blöcke aufteilen: die vor dem 9.3. und die danach. Die danach zeigen wieder ein Absinken der Elektronenenergie mit ansteigender Polarisatorstellung.



**Abbildung 6.41:** Die Linienposition in Abhängigkeit von der Polarisatorstellung zeigt keinen eindeutigen Zusammenhang. Trennt man aber wieder die 3 höchsten Linienpositionen von den restlichen, die vor dem Sprung stattfanden und größere Dejustageprobleme beinhalteten, so kann man bei den verbleibenden vier Messungen den Trend der Positionserhöhung bei kleinerer Polarisatorstellung erkennen.

	Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
vor 9.3.	2	4
9.3. separat	1	18
nach 9.3.	6	73

	$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Ablation
vor 9.3.	17826,296(10) eV	21(2) meV	- <sup>a</sup>	
3 separat	17826,359(22) eV	22(4) meV	-	-
alle vor 9.3.	17826,347(5)	22(3) meV	37 meV	37 meV
nach 9.3.	17826,220(2) eV	21(6) meV	33 meV	33 meV
alle	17826,226(1) eV	21(4) meV	63 meV	63 meV

<sup>a</sup>Nimmt man einen gemeinsamen ungewichteten Mittelwert für die Zeit vor dem 9.3. mit 17826,317(5) an. Dann schwanken die drei Filme im Mittel 28(12) meV um diesen Wert. So bleiben 28 meV Schwankung zusätzlich zur statistischen Unsicherheit.

### 6.3.4 Filme auf einer Kryptonunterlage - Preplating

Es wurde angenommen, dass sich wenige Monolagen Krypton als Zwischenschicht zwischen dem HOPG-Substrat und dem  $^{83m}\text{Kr}$  positiv auf die Stabilität der K-32-Elektronenenergie auswirken würden, da mit der frisch präparierten Unterlage ein reproduzierbar sauberes Substrat erreichbar wäre.

Zusätzlich müsste sich die Energie der K-32-Elektronen stark verändern in Abhängigkeit von der Distanz des Ionenendzustands zum Substrat. Der mit der Distanz schwindende Spiegelladungsterm (s. Glg. (6.3.4.3)) müsste die gemessene Energie mit zunehmender Dicke heruntersetzen und gleichzeitig nivellieren.

Eine merkliche Anzahl von Kryptonnachbaratomen in der Filmebene stellen ebenfalls polarisierbares Medium dar, zu dem eine Spiegelladung aufgebaut werden kann, was die Elektronenenergie im Gegenzug aber wieder etwas heraufsetzen kann und bis zur vollständigen Bedeckung je einer ML zur Sättigung führen müsste.

Außerdem kann die Belegung des Substrats mit Krypton natürlich zu einer Veränderung der Austrittsarbeit des HOPGs führen (s. Glg. (4.8)). In Analogie zu Xe zu einer Verringerung der Austrittsarbeit, einer Absenkung des Vakuumniveaus am  $^{83m}\text{Kr}$ -Ort, also einer Verringerung der gemessenen Elektronenenergie [Ish91].

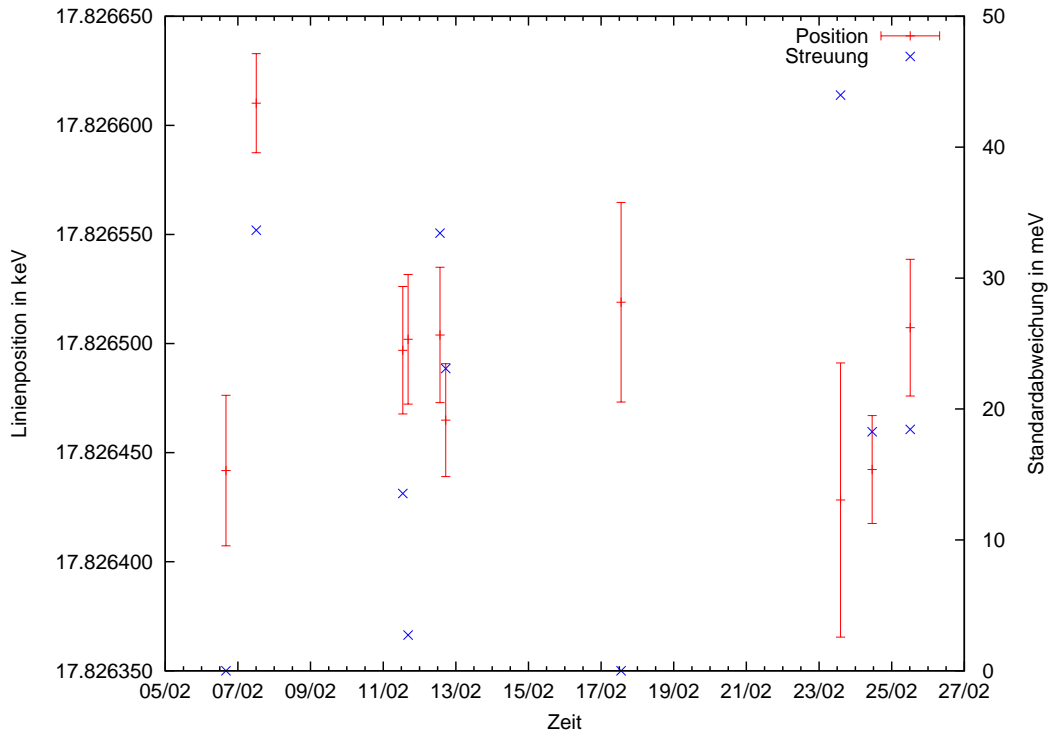
Restgas kann ein deutlich verändertes Auffrierverhalten bei Krypton anstelle von HOPG als Substrat haben und so die Linienlage mit anderer Temperaturabhängigkeit verschieben. Gerade Edelgase sind als Kryoadsorptionshilfen bekannt.

Es ist auch nicht sicher auszuschließen, dass ein unbelegtes HOPG-Substrat eventuell nie vorgelegen hat, und die heizergereinigten Filme in Wahrheit zunächst auch schon "Preplating-Filme mit Restgas" darstellen. Ein reguläres Ausheizen des Substrats auf mehrere  $100^\circ\text{C}$  ist nicht möglich, da der thermisch angekoppelte Kaltkopf nicht geheizt werden darf<sup>32</sup>. Damit sind zunächst Restlagen von Wasserstoff zu erwarten. Sporadisch durchgeführte Ablationen des Substrats führen aber sehr wohl zu einer Reinigung und Reinhaltung des Substrats (s. Abschnitt 6.12). Dies lässt sich damit belegen, dass die Linienposition von Filmen mit ablationsgereinigtem Substrat keine zeitliche Drift hin zu kleineren Energien zeigen, Filme, die aber nicht mit Ablation gereinigt wurden, dies sehr wohl zeigten (s. Abschnitt 6.3.3.3). Da die 2006 aufgetretene Drift nicht bis zu einer Sättigung des Wertes verfolgt wurde, kann der Endpunkt der maximalen Linienpositionsverschiebung nur schlecht abgeschätzt werden. Auch ist der Anfangspunkt ohne Ablationsreinigung nicht klar definiert. In Abschnitt 6.46 werden Filme gezeigt, die mit einem frisch präparierten Substrat, d.h. einem Preplating aus Krypton, starten und dann schnell an Energie verlieren. Dieser Prozess wurde bis zu Sättigung verfolgt. Es findet nicht mehr als eine Verschiebung von 300 meV statt. Damit kann abgeschätzt werden, dass die mögliche Verschmutzung eines ablatierten Filmes nur einen Effekt auf die Linienposition haben kann, die kleiner als 300 meV ist.

---

<sup>32</sup>Genaue Temperaturlimits werden vom Hersteller nicht angegeben. Das Ausheizen der Vakuumapparatur wurde so ausgelegt, dass der Kaltkopf nicht wärmer als  $50^\circ\text{C}$  wurde.

### 6.3.4.1 Stabilität der Linie bei $^{83\text{m}}\text{Kr}$ -Filmen auf eine Kryptonunterlage

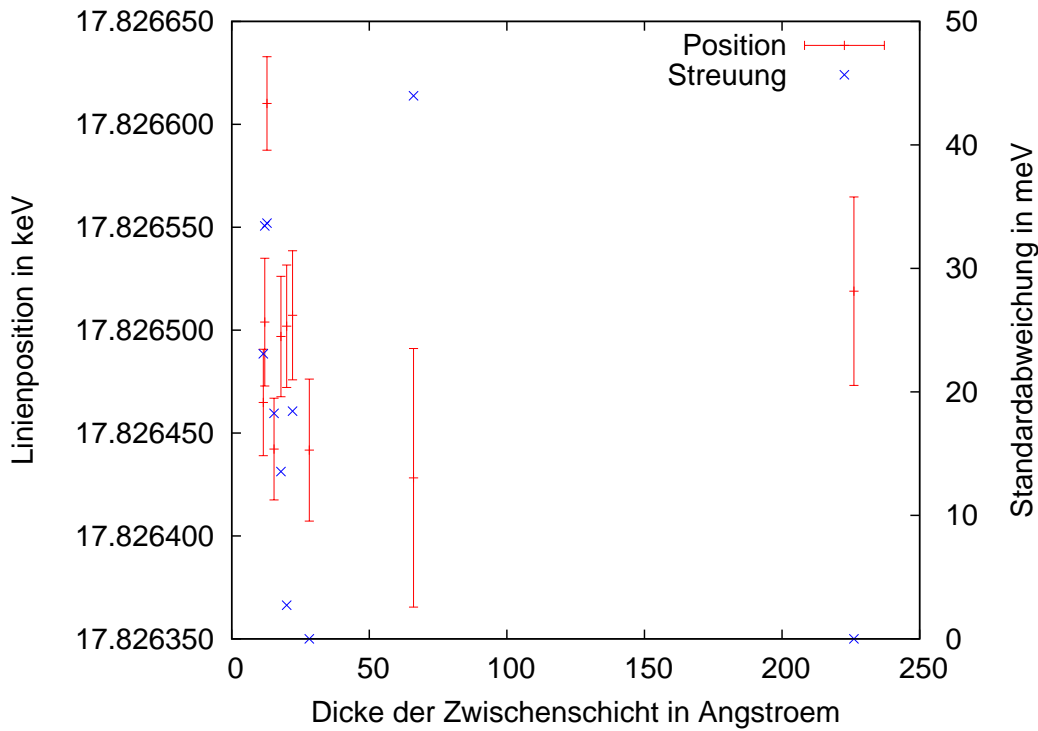


**Abbildung 6.42:** Die ersten Preplatingfilme zeigen eine sehr hohe Linienposition. Der zweite gemessene Preplatingfilm zeigt außerordentlich energiereiche Elektronen. Dieser Film zeichnet sich sonst durch keine Besonderheiten aus: Substrattemperatur, Ellipsometriewerte vor dem Preplating und während der Messung oder Dicke der Unterlage.

**Stabilität der Linie bei  $^{83\text{m}}\text{Kr}$ -Filmen auf eine Kryptonunterlage - 0,68 eV 02/2006:** Das Plateau der Preplatingfilme mit einer Zwischenschicht unter 70 Å liegt im Mittel bei 17826,498(10;49) eV, was 48(19;67) meV höher liegt als die Filme ohne Kryptonzwischenschicht (s. Abb. 6.42). Hält man sich die starke Streuung von 49 meV der einzelnen Scans der Preplatingfilme allein und die Streuung der Filme zueinander von 53 meV gegenüber ihrem Mittelwert vor Augen und die geringe Anzahl an Scans pro Filmpräparation sind die Positionen miteinander verträglich.

Es fällt auf, dass bei dünnen Zwischenschichten bis 70 Å ( $\approx 20$  ML) keine starke Dickenabhängigkeit gemessen wurde (s. Abb. 6.43).





**Abbildung 6.43:** Bereits die Dickenabhängigkeit der ersten Preplatingfilme zeigt überraschenderweise kein ausgeprägtes Verhalten.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
10	23

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Ablation
17826,498(10) eV	49(14) meV	53 meV	<52 meV

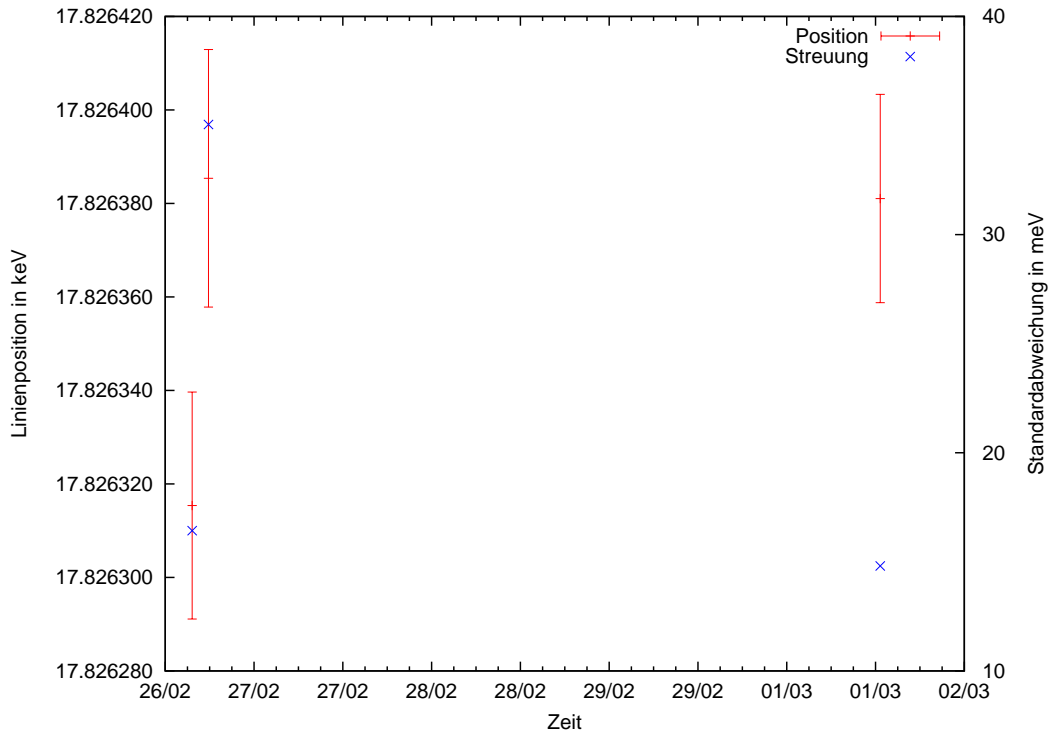
Für den Wert  $E_{kin, meth} = 17826,498$  eV ergibt sich ein nichtreduziertes  $\chi^2 = 14,8$  für einen Konstantenfit, welches unter der Annahme einer weiteren Fluktuation von 30 meV eine Wahrscheinlichkeit von 10% hat.

#### **Stabilität der Linie bei Filmen auf eine Kryptonunterlage - 0,9 eV 02/2006:**

Auch bei der mittleren Auflösung von 0,9 eV des ersten Messblockes 2006 wurden ebenfalls Preplatingfilme präpariert. Ihre mittlere Position lag bei 17826,360(14,22) eV (s. Abb. 6.44).

Die Linienposition liegt um 138(17) meV tiefer als im Messblock mit der Auflösung von 0,68 eV. Die Energie ist also in vergleichbarem Maße abgesunken wie die Energie

der Filme ohne Zwischenschicht Krypton, die auf die zunehmende Verschmutzung des Substrates zurückgeführt wurde, d.h., dass die frische Präparation der Unterlage mit stabilem Krypton keine zusätzliche Stabilisierung herbeiführt. Wenn das Substrat mit Restgas belegt ist, so verändert sich das Vakuumniveau der Oberfläche bezüglich des Fermi-niveaus also des effektiven Retardierungspotentials. Darauf kondensiertes  $^{83m}\text{Kr}$  koppelt mit seinem Vakuumniveau an dieses Vakuumniveau, ob nun mit stabilem Krypton als Mittler oder ohne.



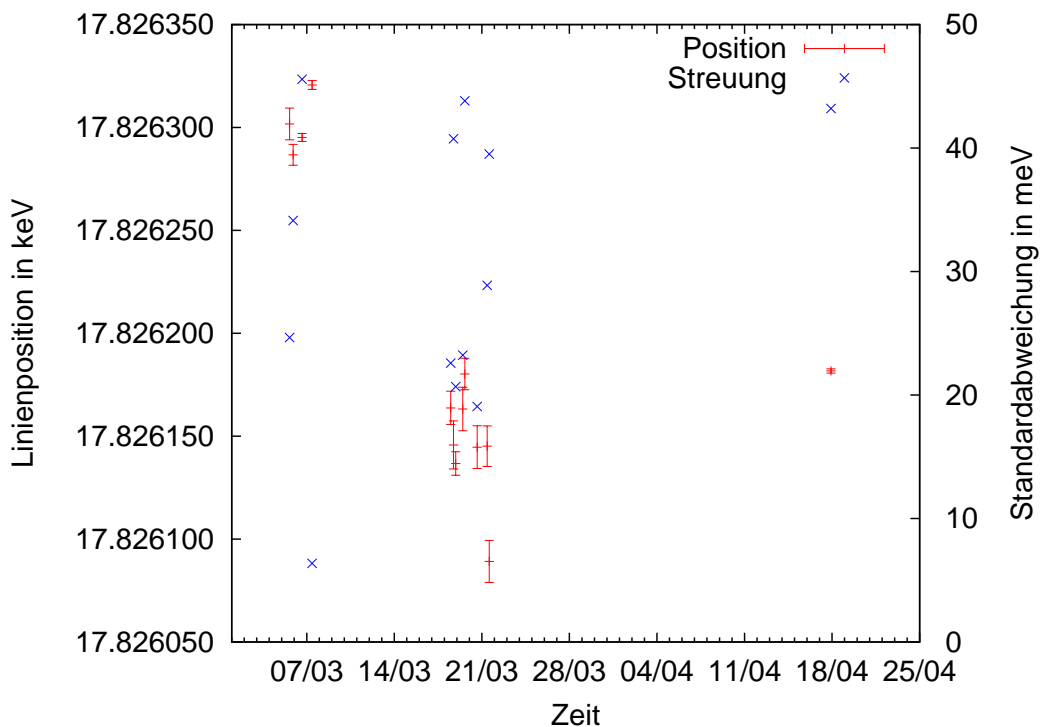
**Abbildung 6.44:** Die ersten Preplatingfilme bei 0,9 eV Auflösung zeigen ebenfalls ein Absinken der Elektronenenergie von 138(17) meV gegenüber den Messungen bei einer Auflösung von 0,68 eV (s. Abb. 6.42). Dieses Absinken zeichnet sich auch innerhalb der Heizergereinigten Filme beim Übergang von 0,68 eV Auflösung zu 0,9 eV Auflösung mit einer Änderung von 123(19) meV ab. Es hat einen eindeutigen zeitlichen Zusammenhang, welcher einher geht mit den Polarisatorstartwerten.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
3	8

$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Ablation
17826,360(14) eV	41(7) meV	39 meV	<37 meV

Für 17826,360 eV ergibt sich ein nichtreduziertes  $\chi^2=5,12$  für einen Konstantenfit, was eine Wahrscheinlichkeit von 7% hat.

**Stabilität der Linie bei Filmen auf eine Kryptonunterlage - 2007:** Die Elektronenenergien teilen sich wieder wie bei den heizergereinigten Filmen ohne Preplating in zwei Plateaus auf.



**Abbildung 6.45:** Kontinuierlich aufgedampfte Preplatingfilme bei  $3 \cdot 10^{-10}$  mbar zeigen keine solch starke Zeitabhängigkeit wie in den Messungen bei schlechterem Druck aus dem Vorjahr. Man sieht aber zwei deutliche Niveaus wie auch bei den Heizergereinigten Filmen. Hierbei handelt es sich insgesamt um ähnliche Filmdicken alle unter 50 Å. Der letzte angegebene Film wurde sowohl geheizt als auch ablatiert. Seine Position liegt leicht erhöht.

Eines vor dem 8.3. und eines nach dem 8.3. (s. Abschnitt Spektrometerabhängigkeiten). Zunächst ergibt sich eine Linienposition von 17826,294(2;22) eV. Dann springt die Linie auf 17826,321(2;10) eV. Danach sinkt die gemessene Elektronenenergie ab auf 17826,178(1;24) eV (s. Abb.6.45).

Diese Quellpräparationsmethode ist aufgrund ihrer stärkeren Schwankungen zwischen den Scans und dieser vorprogrammierten Absenkung der Linie nicht gut geeignet, Charakteristika des Hauptspektrometers zu überwachen, aber dennoch einsetzbar als Langzeitstabilitätskontrolle am Monitorspektrometer.

Für 17826,178 eV ergibt sich ein nichtreduziertes  $\chi^2=13,43$  für einen Konstantenfit, wenn man eine weitere Schwankung von 30 meV annimmt. Das  $\chi^2$  hat dann eine Wahrscheinlichkeit von 10% hat.

Nimmt man keine Unterteilung der Daten vor, so tritt eine zusätzliche Fluktuation der Größe 76 meV hinzu. Nimmt man an, dass 30 meV den Schwankungen der Preplatingfilme entspricht, muss dieser anderen Streuursache 70 meV zu lasten gelegt werden. Diese 70 meV lassen sich mit der Änderung der Erdfeldkompensationsspulen in Zusammenhang bringen.

Anzahl der Filme	Anzahl der Scans
3	37
1	3
9	81

	$E_{kin, meth}$ : Position	$\langle E_{kin, fit} \rangle$ : mittl. Fehler eines Scans	$\sigma_{E_{kin, meth}}$ : Streuung um die Position $E_{kin, meth}$ d. Filme	max. Beitrag der Ablation
1.-3. Film	17826,294(4) eV	22(5) meV	-	-
4.Film	17826,321(2) eV	10(12) meV	-	-
1.-4. Film	17826,305(1) eV	21(6) meV	14 meV	< 14 meV
5.-14. Film	17826,178(1) eV	24(5) meV	31 meV	< 31 meV
alle	17826,222(1)	23(5)meV	76 meV	<76 meV

### 6.3.4.2 Druckabhängigkeit der Preplatingfilme

**$p = 10^{-8}$  mbar:** Bei sehr schlechtem Druck in der Substratumgebung außerhalb der Substratkühlkappen von wenigen  $10^{-8}$  mbar sinkt die Elektronenenergie der Konversionselektronen um mindestens 200-300 meV mit der Zeit ab (s. Abb. 6.46). Filme ohne Preplatingschicht zeigen kein solches Verhalten bei erhöhter Temperatur ( $\approx 28\text{K}$ ). Dieses Absinken steht in klarem Zusammenhang mit der großen Anzahl an Restgasatomen.

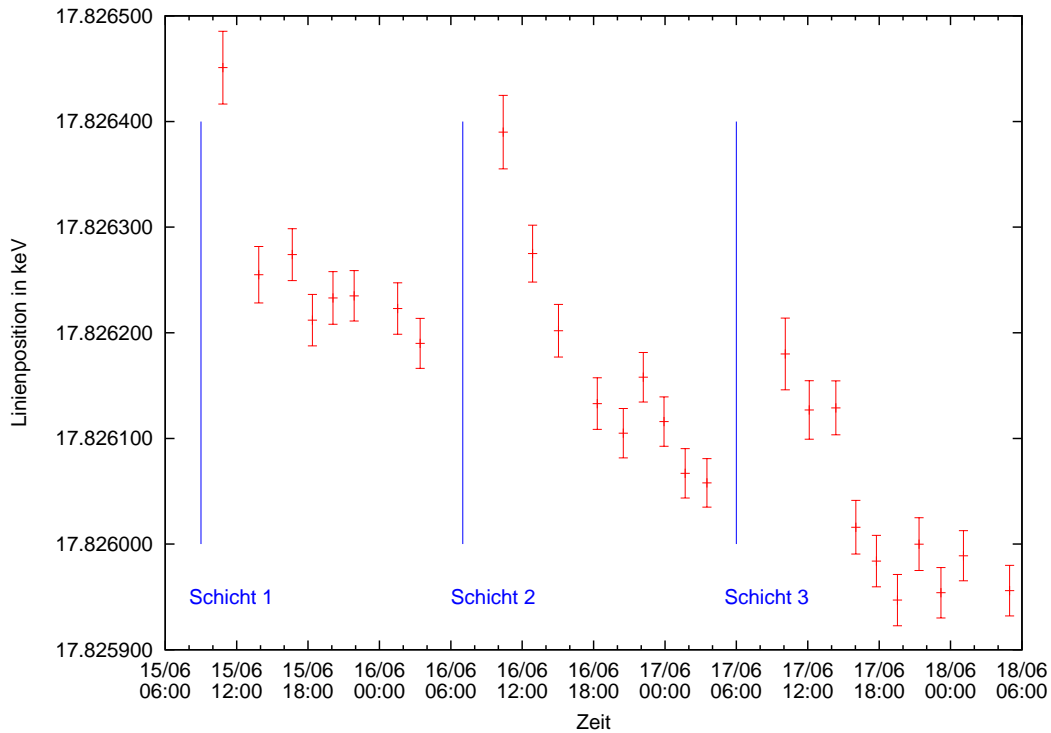
In der Messphase Mai und Juni 2006 wurden die Preplatingfilme in mehreren Lagen präpariert, d.h. zunächst wurde ein Film ohne Zwischenschicht ausgemessen (17826,299(10)eV), dann eine Lage stabiles Krypton darüber gedeckt und wieder die  $^{83m}\text{Kr}$ - Zufuhr gestartet. Das wurde dann wiederholt, so dass die Abfolge: abgeklungenes  $^{83m}\text{Kr}$  - 70 Å stabiles Krypton- abgeklungenes  $^{83m}\text{Kr}$  - 70 Å abgeklungenes  $^{83m}\text{Kr}$  - 70 Å stabiles Krypton unter der letzten Schicht  $^{83m}\text{Kr}$  als Substrat vorlag.

Man sieht in Abb. 6.46 klar drei Energieniveaus, die nach einer gewissen Stabilisierungszeit angesteuert werden. Es handelt sich auch bei längeren Messzeiten um eine Stabilisierung und keine Schwankung. Die gemessene stabilisierte Energie der Elektronen sinkt mit der Dicke der Unterlage ab.

Eine Veränderung der Austrittsarbeit des Graphits ist nach der ersten Krypton-schicht weitestgehend ausgeschlossen, da das Substrat ja abgedeckt ist. Die Spiegelladungsshift bezüglich des Substrats ist ausgeschlossen, da sich mit jeder neuen Schicht eine "Erholung" der Depression zeigt, die nächste Reihe Messpunkte beginnt wieder auf höherem Niveau als die letzte endete. Zunehmende polarisierbare Nachbarn könnten eine weitere Spiegelladungsshift in der Ebene aufbauen, die die Linienposition mit der Zeit aber hin zu höheren Energien antreiben müsste, in der Nähe der Vollbedeckung einer ML aber zunehmend weniger.

Ein ähnlicher Effekt trat nicht auf bei Filmen ohne Kryptonzwischen-schicht. Das lässt sich damit erklären das  $\text{H}_2$  auf blankem HOPG einen schlechteren Stickingkoeffizienten bei gleicher Temperatur aufweist als auf der Edelgasunterlage. Dieser Effekt ist bekannt von Kryosorptionspumpen, bei denen Edelgasbelegung zur Steigerung der Pumpleistung eingesetzt werden.

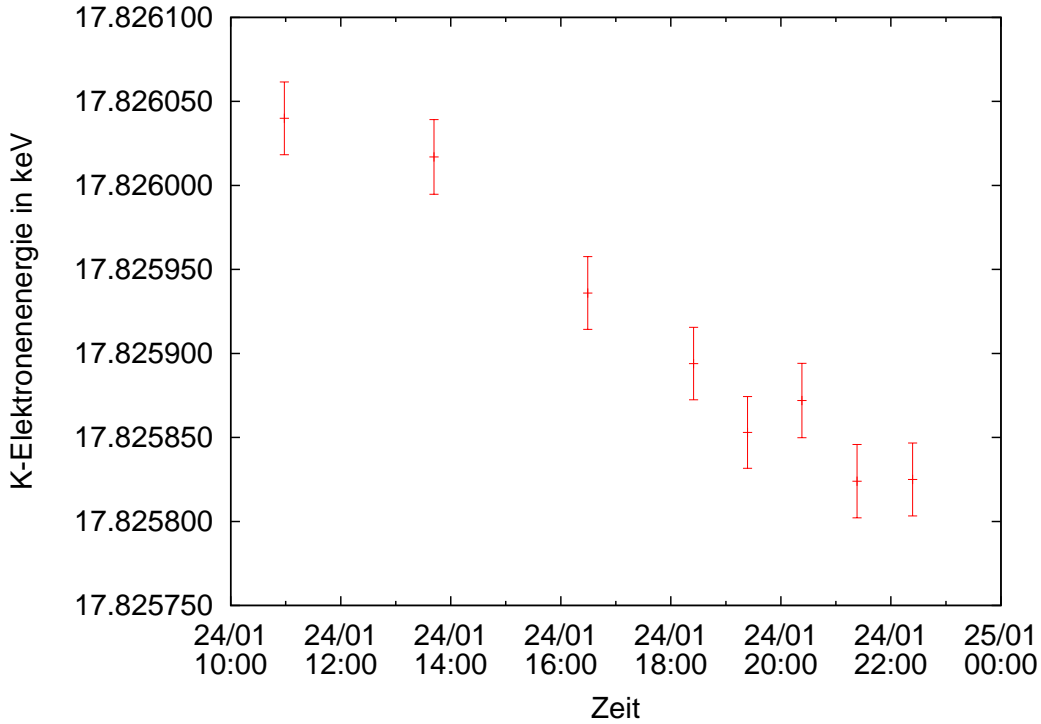
Eine Mittelwertbildung ist hier nicht mehr sinnvoll. Kontinuierlich aufgedampfte  $^{83m}\text{Kr}$ -Filme mit einem Preplating aus stabilem Krypton bieten keine Grundlage für eine Filmpräparation in Hinblick auf eine stabile Elektronenenergie, wenn der Druck in der Kalkkopfumgebung im unteren  $10^{-8}$  mbar Bereich liegt. Es bliebe nur die Möglichkeit sich auf ein kleines Zeitfenster nach dem Auffrierbeginn zu konzentrieren. Hier fehlt allerdings die statistische Signifikanz.



**Abbildung 6.46: Kontinuierlich aufgedampfte Preplatingfilme bei  $10^{-8}$  mbar** ausserhalb der Substratkühlkappen taugen nicht mehr verlässlich zur stabilen Filmpräparation. Bereits in den ersten Stunden sinkt die Elektronenenergie um 200-300 meV. Es wurden etwa 70 Å dicke Kryptonunterlagen aufgefroren, dann  $^{83m}\text{Kr}$  darüber wieder eine 70 Å Dicke Pufferschicht Krypton und dann  $^{83m}\text{Kr}$  darüber und noch einmal. Man sieht jedesmal ein "Erholen" der Linienlage hinzu höheren Energien und ein sofortiges Absinken.

**$p = 10^{-9}$  mbar:** In einer sehr kurzen Messphase im Februar 2007 wurde ebenfalls ein Preplatingfilm präpariert. Er zeigt das gleiche Verhalten wie die kontinuierlich aufgedampften Preplatingfilme aus dem Mai des Vorjahres, obwohl der Druck zu dieser Zeit um eine Größenordnung auf  $10^{-9}$  mbar ausserhalb der Kühlkappen des Substrats verbessert wurde (s. Abb. 6.47).

**$p = 3 \cdot 10^{-10}$  mbar:** Die 2007er Preplating-Daten dünnerer Filme zwischen ca. 25 Å und 50 Å zeigen in ihrem Kurzzeitverhalten nach Auffrierbeginn keine starke Absenkung der Elektronenenergien mehr (s. Abb. 6.48). Diese Messungen fanden bei einem 2 Größenordnungen besseren Vakuum als im Mai 2006 statt. Kontinuierlich aufgedampfte Preplatingfilme sind also doch generell möglich. Es ist aber zu erwarten, dass sie im Langzeitverhalten das Absenken der Elektronenenergien einen Faktor 100 langsamer als im Vorjahr reproduzieren werden. Ein stabiler Film über eine Woche Messzeit ist also nicht zu erwarten.



**Abbildung 6.47:** Kontinuierlich aufgedampfte Preplatingfilme bei  $10^{-9}$  mbar taugen ebenfalls nicht mehr verlässlich zur stabilen Filmpräparation. Bereits in den ersten Stunden sinkt die Elektronenenergie wieder - wenn auch langsamer als bei  $10^{-8}$  mbar - stark ab. Die Substrattemperatur lag bei etwa 23 K.

### 6.3.4.3 Abhängigkeit der Linienposition von der Dicke des Preplatings

Ladungen werden von einer Oberfläche mit dielektrischer Konstante  $\varepsilon$  durch die klassische Spiegelladung ([Zan88]) angezogen:

$$V(z) = -\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} \frac{e^2}{4z} = -\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 1} \frac{3,6eV}{z}, \quad z \text{ in } \text{\AA} \quad (6.38)$$

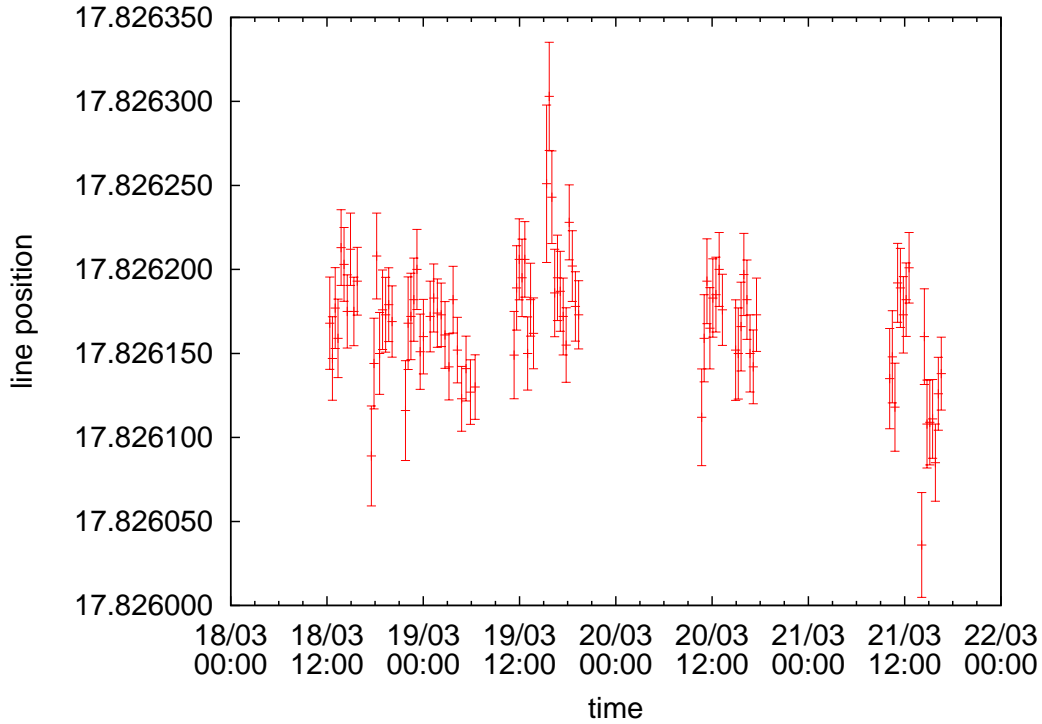
Obwohl HOPG als Halbleiter klassifiziert wird, hat das Material freie Ladungsträger und damit metallische Eigenschaften. Darüberhinaus ist HOPG ein stark anisotropes Medium. Seine Polarisierbarkeit wird in [Nic87] für den normal und senkrecht zur Oberfläche der Basalebene angegeben. Der Mittelwert aus beiden wird mit  $\bar{\alpha}=1,61 \text{ \AA}^3$  angegeben. Das molare Volumen von Graphit beträgt  $5,27 \frac{\text{cm}^3}{\text{mol}}$ . Mit der Clausius-Mosotti-Gleichung

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = \frac{4\pi}{3} \alpha \frac{N_A}{V_{\text{mol}}} \quad (6.39)$$

mit

$N_A$ : Avogadrozahl und

$V_{\text{mol}}$ : molares Volumen



**Abbildung 6.48:** Kontinuierlich aufgedampfte Preplatingfilme bei  $3 \cdot 10^{-10}$  mbar zeigen keine solch starke Zeitabhängigkeit wie in den Messungen bei schlechterem Druck aus dem Vorjahr.

kann daraus die Dielektrizitätskonstante  $\varepsilon$  bestimmt werden:

$$\bar{\varepsilon}_{\text{HOPG}} = 10,92 \quad (6.40)$$

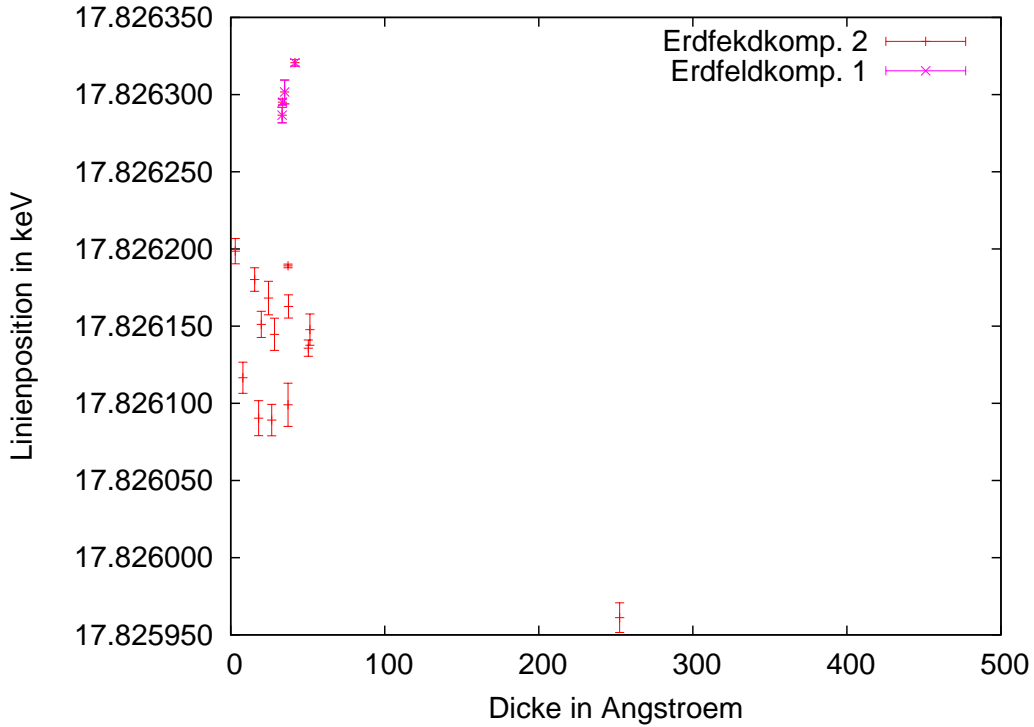
Der Abstand eines Kryptonatoms vom Wabenzentrum der Graphitunterlage liegt bei  $3,46 \text{ \AA}$  [Che03]. Als Abstand zur Spiegelebene wurde hier der halbe Abstand zwischen  $^{83m}\text{Kr}$  und dem HOPG eingesetzt<sup>33</sup>. Damit ergibt sich für die Spiegelladungsverschiebung von

$$\Delta V_{\text{theo}} = +1,72_{-0,76}^{+0,31} \text{ eV} \quad (6.41)$$

für ein zerfallendes  $^{83m}\text{Kr}$ -Atom auf einer HOPG-Oberfläche, wenn man als Fehlergrenzen die Unterschiede in der Polarisierbarkeit aufgrund der Anisotropie von HOPG zugrunde legt. Da die Genauigkeit dieses Wertes durch die Anisotropie und speziellen Leitereigenschaften von Graphit sehr groß sind, werden darüberhinaus die experimentellen Werte von [Man85] hinzugezogen. Dort wurde einerseits direkt die Änderung

<sup>33</sup>In [App72] wird angegeben, dass für  $z$  der Abstand  $D-d$  eingesetzt wird.  $D$  ergibt sich aus dem Kristallradius des Adsorbats Krypton. Damit ist  $D=4,26/2 \text{ \AA}$ .  $d$  ist abhängig vom Wigner-Seitz-Radius des Substrats, welcher ein Ausdruck der dritten Wurzel der Dichte des Substrats ist. Der Wigner-Seitz-Radius für Kupfer beträgt  $r_s=1,41$  [Cit74] und der Wert für  $d$  liegt bei  $0,68 \text{ \AA}$ . Die dritte Wurzel des Verhältnisses der Dichte von Graphit zu Kupfer ist  $(\frac{2,2}{8,92})^{1/3} = 0,6$ . Damit ergibt sich ein  $d$  für Graphit von  $0,4 \text{ \AA}$  und damit  $z=2,13\text{\AA}-0,4\text{\AA}=1,73\text{\AA}$ . Dieser Wert entspricht der Hälfte der angegebenen Distanz der  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome über dem Carbon-Hexagon.





**Abbildung 6.49: Dickenabhängigkeit der Preplatingfilme 2007 beschränkt auf dünnere Zwischenschichten** zeigen eine Abnahme der Linienposition mit zunehmender Dicke der Zwischenschicht. Das erwartete Absinken der Elektronenenergie mit zunehmendem Abstand fällt deutlich geringer aus als erwartet.

der Bindungsenergien Krypton durch die Adsorption auf Graphit gemessen,

$$\Delta E_B = 1,9 \pm 0,2 eV \quad (6.42)$$

andererseits auch die Änderung von Augerelektronen gemessen,

$$\Delta E_K = 4,73 \pm 0,2 eV \quad (6.43)$$

welche einer dreifachen Spiegelladungsverschiebung entsprechen. Der Mittelwert und die Standardabweichung von beiden beträgt:

$$\overline{\Delta E}_{\text{exp}} = 1,74 eV \pm 0,23 eV \quad (6.44)$$

Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit Glg. (6.41) und wird in Kapitel 7 eingesetzt und dort durch einen Vergleich mit der extern bestimmten Übergangsenergie [Ven06] weitestgehend bestätigt.

Die Polarisierbarkeit von Krypton ist  $\alpha=2,5 \text{ \AA}^3$  und das molare Volumen  $29,68 \text{ cm}^3$ . Mit Glg. (6.39) ergibt sich eine Dielektrizitätskonstante von 1,80. Der Abstand liegt bei  $4,26 \text{ \AA}$ . Damit ergibt sich eine Spiegelladungsverschiebung von  $+0,48 \text{ eV}$  für ein zerfallendes  $^{83m}\text{Kr}$ -Atom auf einer reinen Kryptonunterlage.

Wenn sich also der Endzustand von Krypton auf Graphit zu Krypton auf Krypton verschiebt, so ließe die Spiegelladung eine Verschiebung von 1,24 eV hin zu niedrigeren Energien erwarten. Ein Absinken dieser Energie wäre bereits bei Dicken bis 30 Å vollzogen. Wie in Abb. 6.49 zu sehen ist, wurde aber nur ein Absinken von grob 150 meV gegenüber dem Wert des saubersten Films mit ablationsgereinigtem Substrat gemessen.

Daher muss davon ausgegangen werden, dass diese Situation nicht vorlag. Bei einem Randwertproblem bei Anwesenheit von Dielektrika wie in [Por78] beschrieben, kann die Arbeit  $W$  die verrichtet werden muss, um eine Ladung  $q$  aus dem Unendlichen in ein Dielektrikum mit  $\varepsilon_1$  im Abstand  $d$  zu einer Grenzfläche zu einem weiteren Dielektrikum mit  $\varepsilon_2$  zu platzieren, durch

$$W = \frac{1}{8\pi\varepsilon_0} \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \frac{q^2}{2z} \quad (6.45)$$

angegeben werden. Wenn  $\varepsilon_2 > \varepsilon_1$  ist, dann gilt dass die Testladung  $q$  angezogen wird. Ohne umgebendes Krypton, d.h. für  $\varepsilon_1=1$  geht die Glg. (6.45) in Glg. (6.38) über. Die prinzipielle Abhängigkeit vom Abstand  $z$  der Ladung zur Spiegelebene ändert sich durch die Gegenwart des Dielektrikums aber nicht, so dass das aufgetretene Verhalten damit auch nicht erklärt werden kann.

Hinzu kommt aber, dass die zerfallenden  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome nicht nur mit der Unterlage wechselwirken, sondern dass im Falle eines Films mit Preplating auch Nachbar-Krypton-Atome innerhalb der Oberflächenschicht hinzutreten, die wiederum zur Anbindung des geladenen Endzustands führen. Ausserdem kommt hinzu, dass nicht experimentell geklärt werden konnte, ob die Filme epitaktisch, d.h. Lage für Lage, wie hier angenommen, oder eher stochastisch, was wahrscheinlicher ist, aufgefroren wurden. Damit könnten zusätzlich Bindungsenergien zu weiteren Kryptonnachbaratomen aufgebaut werden und somit die Bindungsenergie der  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome mit Preplating steigern. Die resultierende Energieverschiebung könnte man näherungsweise mit der Polarisationsverschiebung beschreiben. Man kann diese innerhalb von Krypton in Analogie zu  $\text{CS}_2$ , wie in [Sza87] beschrieben, unter der Annahme, dass sich die Kristallgitter nicht stark voneinander unterscheiden, ausrechnen. Für die Polarisationsverschiebung gilt:

$$\Delta V_{pol} \propto -\frac{1}{2} \frac{\alpha}{R_l^4} \quad (6.46)$$

mit:

$\alpha$ : Polarisierbarkeit und

$R_l$  = Distanz zwischen den Molekülen.

Ferner gilt:

$$r = \frac{\Delta V_{pol,CS_2}}{\Delta V_{pol,Kr}} = \frac{\frac{\alpha_{CS_2}}{R_{l,CS_2}^4}}{\frac{\alpha_{Kr}}{R_{l,Kr}^4}} \quad (6.47)$$

In [Sza87] finden sich folgende Angaben:

$$\Delta V_{pol,CS_2} = 3,6 \text{ eV} \quad (6.48)$$

$$\alpha_{CS_2} = 9,1 \cdot 10^{-40} \frac{\text{Cm}^2}{\text{V}} \quad (6.49)$$

$$= 54 \text{ a.u. mit} \quad (6.50)$$

$$1 \text{ a.u.} = 1,6488 \cdot 10^{-40} \text{ Fm}^2 \quad (6.51)$$

$$R_l = 8,5 \text{ bohr} \quad (6.52)$$

$$= 4,50 \text{ \AA mit} \quad (6.53)$$

$$1 \text{ bohr} = 5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m} \quad (6.54)$$

Für Krypton gilt [Ish91]<sup>34</sup>:

$$\alpha_{Kr} = 2,5 \cdot 10^{-3} \text{ nm}^3 \quad (6.55)$$

$$= 2,78 \cdot 10^{-40} \frac{\text{Cm}^2}{\text{V}} \quad (6.56)$$

$$= 16,87 \text{ a.u.} \quad (6.57)$$

und

$$R_l = 4,26 \text{ \AA} \quad (6.58)$$

$$= 8,05 \text{ bohr} \quad (6.59)$$

Mit Glg. (6.47) ergibt sich:

$$V_{pol,Kr} = \frac{3,6 \text{ eV}}{r} = 1,4 \text{ eV} \quad (6.60)$$

Der Fehler dieser Größe wird grob mit 10% abgeschätzt. Die Änderung der Linienposition zwischen der Linienposition eines auf reinem HOPG zerfallendem <sup>83m</sup>Kr-Atom und der eines <sup>83m</sup>Kr-Atoms, welches eingebettet in eine Matrix von Krypton ist, ist damit stark reduziert und mit den gemessenen Daten verträglich. Sie beträgt nur:

$$\Delta E = 340 \pm 270 \text{ meV} \quad (6.61)$$

[Man85] berichten von einer Positionsverschiebung für Krypton in der Bulk-Umgebung von  $(1,21 \pm 0,2) \text{ eV}$ . Damit wäre eine Verschiebung von

$$\Delta E_{exp} = 0,53 \pm 0,3 \text{ meV} \quad (6.62)$$

zu erwarten<sup>35</sup>.

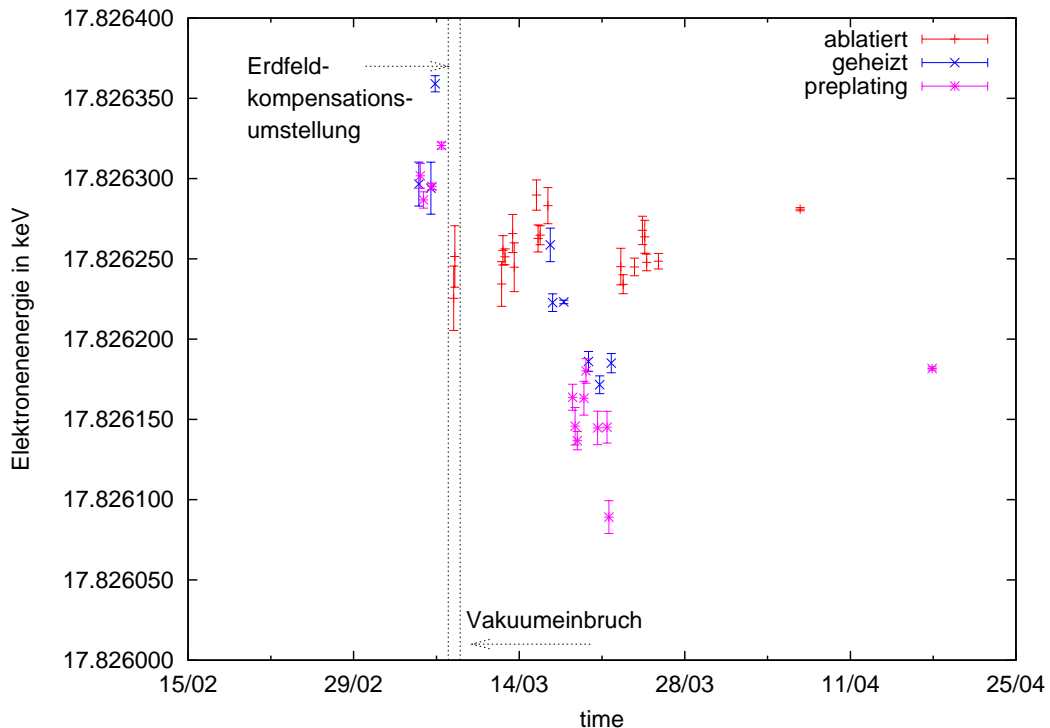
---

<sup>34</sup>  $\alpha \text{ cm}^3 = \frac{10^6}{4\pi\epsilon_0} = 8,987 \cdot 10^{15} \frac{\text{Vm}}{\text{As}}$

<sup>35</sup> Ein genereller Unterschied zwischen den Werten aus [Man85] und den hier genommenen Daten

## 6.4 Spektrometerabhängigkeiten

Sowohl Filme mit blankem Substrat als auch Filme mit einer Zwischenschicht Krypton zeigten ein unruhigeres Verhalten 2007 als es aus den 2006er Daten zu erwarten wäre. Die Breite der Verteilung der Preplatingfilme vergrößert sich von 31 meV (2006) auf 76 meV (2007) und die der Heizer gereinigten Substrate verbreitert sich von 37 meV (2006) auf 63 meV (2007), wenn man keine weiteren Auswahlregeln für die 2007er Daten annimmt.



**Abbildung 6.50:** Die Messdaten von 2007 werden auch vom Spektrometer beeinflusst. Eingezeichnet sind hier der Zeitpunkt der Umstellung der Erdfeldkompensation und des Vakuumeinbruchs. Kurz vor dem Vakuumeinbruch fand die Verkeilung des Quellschlittens statt.

Zwei wesentliche Spektrometer abhängige Eingriffe in die Linienpositionsstabilität sind zu erwarten: Änderung der Erdfeldkompensationsspulenströme und eine relative Dejustage der Quelle im Fluss Schlauch. Beides fand während der Messungen 2007 statt (s. Abb. 6.50). Ein Vakuumeinbruch im Spektrometer stellt eine dritte Möglichkeit zur Modifikation der Linienposition dar, die ebenfalls unabhängig von der Quelle und deren Präparation ist. In diese Auflistung gehören auch die HV-Instabilitäten wie sie in den vorangegangenen Abschnitten aufgeführt wurden.

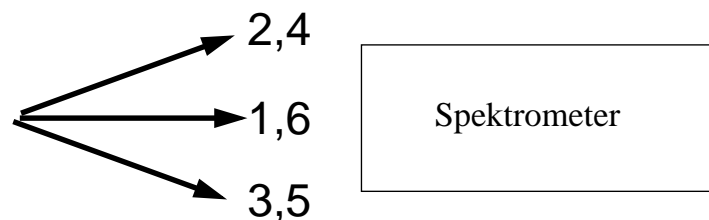
ist sicherlich, dass hier nur mit Submonolagen von  $^{83m}\text{Kr}$  gearbeitet wurde, während in [Man85] sicher mit vollständigen Monolagen gearbeitet wurde. Daneben kann es leichte Unterschiede im Restgasverhalten geben. Dies kann sich wieder auf die Austrittsarbeit und die Bindungsenergien, die bezüglich der Nachbaratome innerhalb der Monolage aufgebaut werden kann, auswirken.

Die spektrometerabhängigen Instabilitäten sollen nun diskutiert (s. Abschnitt 6.4.1 und 6.4.2) und anschließend auf die vorliegenden Daten angewendet werden (s. Abschnitt 6.4.4). Es wird dabei gezeigt werden, dass aus der Änderung der Erdfeldkompensationseinstellungen und der Dejustage von Quelle und Detektor, Änderungen der Linienposition in einer für KATRIN relevanten Größe möglich sind, diese sich darüberhinaus aber auch an anderer Stelle in den Daten bemerkbar machen. Es werden damit weitere Ausschlusskriterien zur Vergleichbarkeit der einzelnen Messungen gegeben. Ein weiterer Beitrag kann der Einfluss der Austrittsarbeit der Spektrometerelektroden sein, welcher in Abschnitt 6.4.3 diskutiert wird.

## 6.4.1 Dejustage

### 6.4.1.1 Kriterien zur Positionsbestimmung aus den Daten

Im Juni 2007 wurde eine kurze Messreihe durchgeführt, bei der die Position der Quelle im Flussschlauch absichtlich variiert wurde. Die Variation entsprach einer Verkippung von  $0,12^\circ$  und  $-0,23^\circ$ , was wiederum einer Verschiebung der Quellposition um weniger als  $+2$  mm und  $-4$  mm entspricht. Eine solche Verkippung wurde als maximal mögliche unentdeckte Verkippung während der Messungen abgeschätzt.



**Abbildung 6.51:** Die Variation der Quellposition ist hier symbolisch dargestellt. Die Position (1,6) entspricht der bislang für zentral gehaltenen Messposition. Während die eine Seite des Quellschlittens (in Draufsicht die rechte Seite) fix gehalten wurde, der Abstand der anderen Seite vom Spektrometer am Gestell um  $-4$  mm und um  $+2$  mm variiert. Jede Position wurde zweimal angefahren.

**Geometrische Abbildungseigenschaften:** Zum Überblick darüber, welcher Einfluss auf die Linienposition bei Verkippung zu erwarten ist, werden hier die geometrischen Abbildungseigenschaften aufgeführt. Das Quellsubstrat ist  $10 \times 10$  mm groß. Der Detektor ist konzentrisch kreisförmig unterteilt. Jede einzelne Fläche hat eine Größe von  $1 \text{ cm}^2$ . Drei Detektorsegmente wurden ausgelesen.

Ort	Quelle	Analysierebene	Detektor
Magnetfeld	0,766 T	3,09 G	0,35 T
	Radius	Radius (Potentialdip)	Radius
Segment 1	3,8 mm	19 cm (108 mV)	5,6 mm
Segment 2	5,4 mm	27 cm (80 mV)	7,9 mm
Segment 3	6,6 mm	33 cm (88 mV)	9,8 mm

Bei optimaler Erdfeldzentrierung wird bis zu einem Radius an der Quellposition von 3,8 mm auf Detektorsegment 1 abgebildet<sup>36</sup>, bis zu einem Radius von 5,4 mm auf Detektorsegment 2, da das Magnetfeldverhältnis am Ort des Detektors zum Ort der Quelle 0,46 ist. Verschiebt man die Quelle um 4 mm radial aus dem Zentrum, dann verschiebt man das Zentrum der Quelle gerade von Segment 1 in Segment 2. Eine solche Verschiebung würde sich also nicht nur in der Linienposition, sondern auch in den Zählratenverhältnissen von Segment 2 zu Segment 1 erkennen lassen.

In der Analysierebene bedeutet es, dass der Flussschlauch, der auf Segment 1 abgebildet wird, einen Potentialdurchgriff der Breite von 108 mV ( $r=19\text{cm}$ ) überstreicht. Sofern also der Elektronenfluss von der Quelle mit Segment 1 beobachtet wird, kann eine Quelle maximal eine Variation von 108 meV aufgrund von Dejustage aufweisen, wenn der Detektor nicht gleichzeitig auch bewegt bzw. dezentral angebracht wurde. Wenn der Detektor aber bereits beispielsweise um 2 mm aus der Mittellage ausgelenkt wird, so blickt Segment 1 in Richtung der Auslenkung in der Analysierebene statt bis auf  $r=19\text{cm}$  (108 mV) bis auf  $r=26\text{ cm}$ , was einen richtungsabhängigen Justagefehler von 188 meV ermöglichen würde!

Bei zentral angebrachter Quelle und Detektor und aktuellen positionsabhängigen Magnetfeldverhältnissen wird die gesamte HOPG-Substratfläche auf Segment 1 und 2 des Detektors abgebildet. Segment 3 sieht nur Untergrund. Bei einem homogen belegten Substrat wäre ein Zählratenverhältnis zwischen erstem und zweitem Segment von 1:1 zu erwarten. Auffällig ist in den Messdaten, dass die Zählratenverhältnisse von Segment 2/Segment 1 unter 15 % liegen. Das Substrat wird also ganz und gar nicht gleichmäßig bedeckt. Damit wird das System zusätzlich durch das Zählratenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 sensitiv auf die Quellposition und damit auf Linienpositionsverschiebungen<sup>37</sup>.

Bei einer Verschiebung von 4 mm würde eine Quelle mit 5 mm Radius, was einem vollbedeckten Substrat entsprechen würde<sup>38</sup>, in der Analysierebene den vollen Potentialdip ausleuchten, was eine gesamte Potentialverschmierung von 371 mV bedeutet<sup>39</sup>. Bei Analyse von nur Segment 1 gilt natürlich weiterhin eine maximale

<sup>36</sup>Dies ist natürlich nur so, wenn der Detektor optimal justiert ist.

<sup>37</sup>Wäre das Substrat homogen und ganz bedeckt, wäre die Sensitivität stark eingeschränkt, andererseits wäre auch eine Linienpositionsverschiebung nicht mehr möglich sondern nur eine Verbreiterung der Linie um den überstrichenen Potentialberg.

<sup>38</sup>Tatsächlich ist die Substratform quadratisch. Die Bedeckung ist aber nicht homogen. Es kann von einer radialen Bedeckung ausgegangen werden.

<sup>39</sup>Am Detektor würden Segment 1-3 ausgeleuchtet. Eine Potentialverschmierung von 276 mV wären zu sehen, da auch Segment 3 nur bis  $r=33\text{ cm}$  in der Analysierebene schaut.

Variation von 108 meV. Das Zählratenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 würde sich nur wenig ändern. Von der Gesamtzählrate dürften aber nur maximal 73 % erhalten sein, der Rest wird radial weiter außen am Detektor vorbei abgebildet. Trotzdem ändert sich das effektive mittlere Potential und damit die Linienposition. Ein Detektor mit azimuthaler Auflösung würde hier helfen.

Eine punktförmige Quelle würde bei 4 mm Verschiebung außerhalb des Zentrums den Potentialdip radial weiter außen an 118 mV höherer Stelle passieren und dabei eine entsprechend niedrigere Linienposition ergeben.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass bei zentral justiertem Detektor eine Potentialverschiebung durch räumliche Dejustage kleiner als 108 mV sein muss, insofern nur Segment 1 zur Auswertung herangezogen wird. Bei einer Dejustage des Detektors steigt dieser Wert richtungsabhängig an. Eine Abschätzung der Dejustage ist bei kleiner Quellgröße bzw. entsprechendem Magnetfeldverhältnis anhand des Amplitudenverhältnisses von Segment 2/Segment 1 (im Extremfall auch im Verhältnis zu Segment 3) annähernd möglich.

**Quellposition, -größe und Potentialdurchgriff:** Da der Potentialdurchgriff auf der Zylindersymmetrieachse des Spektrometers sein Minimum hat, ist hier mit den höchsten Messwerten für die Linienposition zu rechnen. Stellung 1 wurde bislang für die zentrale Position gehalten. Ein Blick in Tab. 6.4.1.1, bzw. auf Abb. 6.52 zeigt, dass das nicht stimmen kann. Trägt man die gemessene Elektronenenergie gegen die jeweilige Dejustage auf, dann fällt auf, dass die vermeintliche zentrale Position nicht die höchste Elektronenenergie hat. Hierfür wurden nur die Daten ausgewertet, die mit dem Detektorsegment 1 genommen wurden. Die höchste Elektronenenergie wurde bei Position 3 bzw. 5 gemessen.

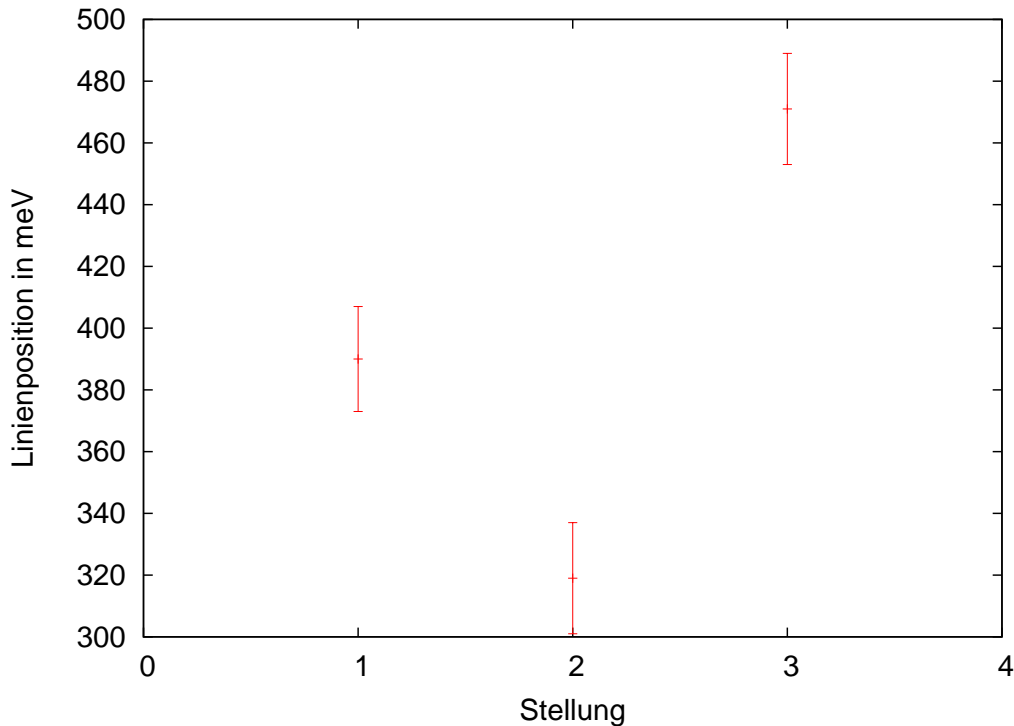
Stellung	Position(Seg.1) <sup>a</sup> 17826,xxx eV	Rate(Seg.1) <sup>b</sup>	Rate(Seg.2)	$\frac{Amp(Seg.2)}{Amp(Seg.1)}$
3	471(18)	173(1) 1/s	12(1) 1/s	0,069(5)
1	390(17)	203(1) 1/s	15(1) 1/s	0,074(5)
2	319(18)	183(1) 1/s	34(1) 1/s	0,186(5)

<sup>a</sup>Diese Werte sind nicht mit der Voltmeterkalibration und dem Teilverhältnis korrigiert, da sie nur relativ zueinander betrachtet werden und an einem Tag aufgenommen wurden

<sup>b</sup>Die Auswertegrenzen lagen bei 17819 eV - 17835 eV. Die Linienbreite wurde fixiert auf 2,7 eV.

Ohne sonstige Änderungen<sup>40</sup> kommt es zu einem Hub von 152(25) meV, der im Rahmen seiner Fehler mit dem Vollausschöpfen des Fluss Schlauches im ersten Detektorsegment (108 mV) nicht mehr zu erklären ist.

<sup>40</sup>keine neue Quellpräparation, keine Erdfeldkompensationsspulenstromänderung, kein Vor- und Zurückfahren der Quelle, keine Änderung des Vakuums



**Abbildung 6.52:** Die Positionsveränderung durch Dejustage macht eine eindeutige Aussage über den Passageort des Potentialdips in der Analysierebene. Je näher dem Minimum des Potentialdips um so höher die bestimmte Linienposition. Stellung 3 muss eindeutig als zentralste Position angenommen werden. Jede Position wurde zweimal angefahren. Es handelt sich nicht um eine rein zeitliche Drift.

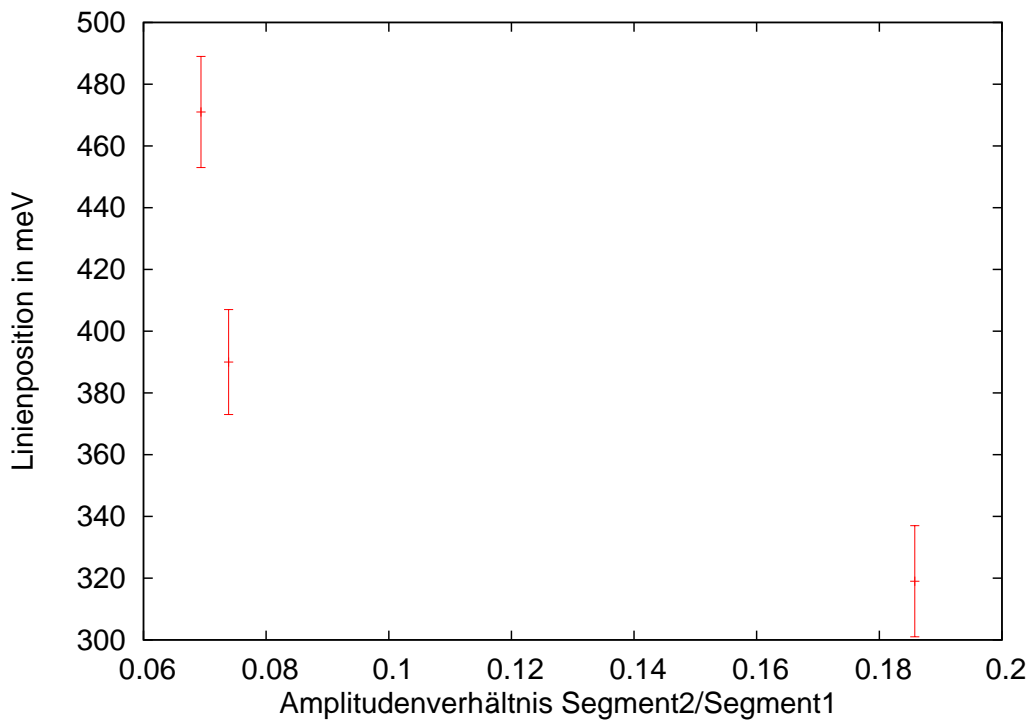
Die Gesamtzählrate aus Segment 1 und 2 liegt für die dezentralen Einstellungen bei  $218 \text{ s}^{-1}$ . Für die Einstellung mit der höchsten Linienposition, der mutmaßlich zentralsten, ist die Gesamtzählrate leicht abgesenkt auf  $185 \text{ s}^{-1}$ . Schaut man in die Rohdaten der Scans (s. Abb. 6.54) mit dem ersten Detektorsegment, fällt auf, dass die Zählrate bei Stellung 3, der wahrscheinlich zentralsten Position, unterschätzt wurde. Eine genaue Ursache für die verstärkten Transmissionsverluste konnte bislang nicht gefunden werden. Mögliche Ursachen sind Magnetfeldinhomogenitäten, und Einflüsse auf die Radialsymmetrie des Systems. Der Quellfleck ist also hinreichend klein, damit bei der vorgenommenen Auslenkung kein Zählratenverlust auftritt.

Amplitudenverhältnisse (Seg.2/Seg.1) von 7 %- 18% belegen, dass der Quellfleck im Kern einen Radius kleiner als 3,8 mm hat. Damit wird es möglich die Quellposition am Amplitudenverhältnis (Seg.2/Seg.1) zu kontrollieren.

Ohne eine zusätzliche Dejustage des Detektors lässt sich die Größe der Linienverschiebung aus Geometrieargumenten nicht verstehen. Die Quelle muss mindestens so ausgedehnt wie der Kapillarkupferaufsatzdurchmesser (4mm) abzüglich der Verdeckung des Fluss Schlauchs durch denselbigen sein. Aus Fotos lässt sich rekonstruieren, dass etwa 30 % des Substrats in direkter Linie zum Detektor abgedeckt wurden und



sich das auf eine Mindestgröße von einem Quellspot von 1,5 mm Radius<sup>41</sup> übertragen lässt. Wenn sich der Quellspot am Rande zu Segment 2 befand mit eben dem Abstand seiner Breite, dann hätte er die Analysierebene bei einem Radius von 11 cm und nur 38 mV überqueren müssen. Das passt nicht zu den Messwerten. Nur wenn der Detektor um 2,4 mm dejustiert wäre, dann würde Segment 1 auf einen Radius von 27 cm in der Analysierebene blicken können. Wenn das Zentrum der Quelle nun bei  $r=4$  mm saß und eine Spotgröße von  $\min r=1,5$  mm angenommen wird, dann könnte praktisch die gleiche Zählrate in Segment 1 einfallen, während das Analysierpotential um bis zu 188 mV schwankt<sup>42</sup>.



**Abbildung 6.53:** Der Einfluss der Dejustage auf Position und Amplitudenverhältnis ist eindeutig: je mehr Elektronen auf Segment 2 abgebildet werden, um so niedriger ist die bestimmte Linienposition.

**Position und Amplitudenverhältnis:** An den Verhältnissen der Amplituden der Segmente 2 zu 1 zeigt sich eine klare Abhängigkeit (s. Abb 6.53): je höher die Linienposition, um so weniger relativen Anteil im zweiten Segment. Wobei für die Einstellung 3 (zentralste Position) die Amplitude von Segment 1 noch zusätzlich unterschätzt wurde. Es kommt bei Einstellung 3 zu 15 % weniger Gesamtamplitude, da

<sup>41</sup> $r_{max}=3,8$  mm

<sup>42</sup>Eine Dejustage des Detektors bezüglich des Potentialminimums in der Analysierebene könnte einen weiteren kleinen Betrag zur Zählratenverringerung bei zentraler Passage der Elektronen durch das Potentialminimum in der Analysierebene hergeben. Eine zentral positionierte Quelle mit einer Ausdehnung von  $r=1,5$  mm hat am Detektor einen maximalen Radius von 2,2 mm. Wenn man die Detektorfläche von Segment 1 mit  $r=5,6$  mm um 2,4 mm verschiebt, blickt der Detektor immer noch auf die "ganze" Quelle. Die Reduktion hier ist also sehr gering.

diese Kurven unter einem zusätzlichen Elektronenverlust an der niederenergetischen Flanke leiden.

Lediglich 5 ‰ Vergrößerung im Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 bedeuten bereits ein Absinken der Linienposition um 81 meV. Diese Angaben beziehen sich nur auf die gewählten Erdfeldkompensationseinstellungen.

Eine weitere Bestätigung der Dejustagereihenfolge findet man auch in dem Signal in Detektorsegment 3 (s. Abb. 6.54): Bei Einstellung 2 konnte dort sogar ein Signal mit  $10 \text{ s}^{-1}$  aufgenommen werden, bei Einstellung 1 ist ein Signal den Daten kaum zu entnehmen. Bei Einstellung 3 ist keine Abweichung von einer Konstanten zu erkennen.

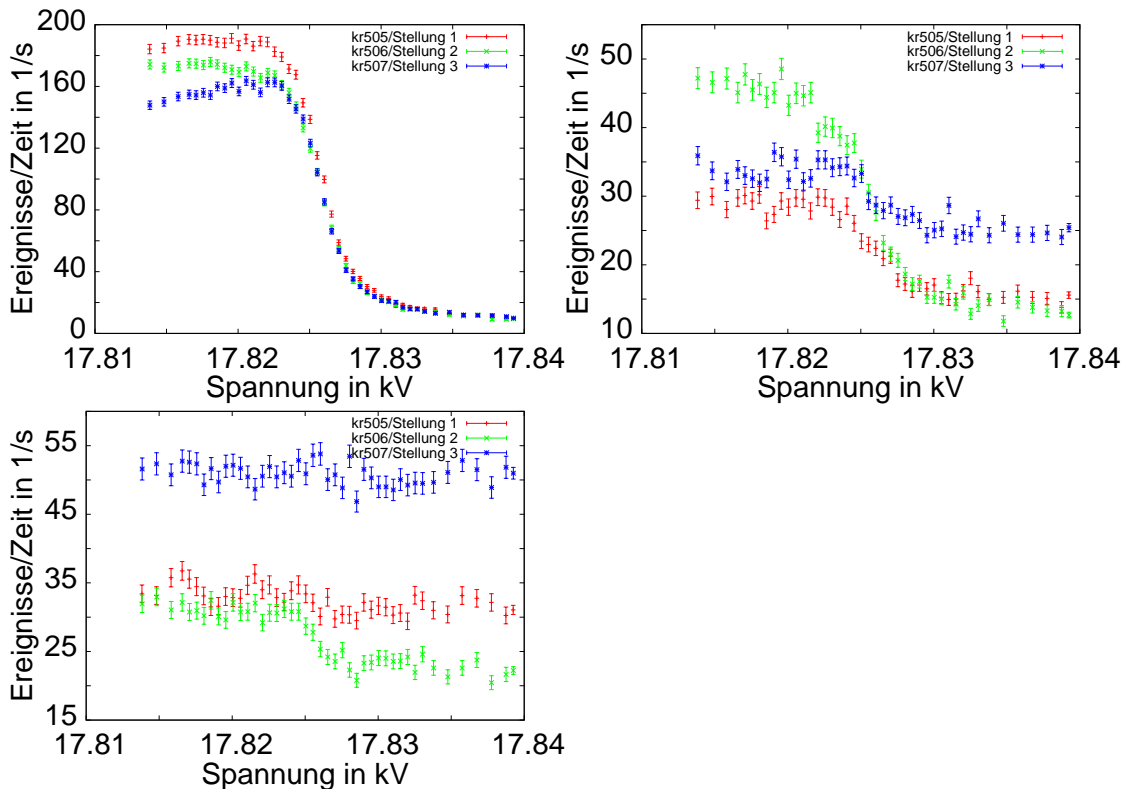
Wenn man davon ausgeht, dass die Quellposition 1 der Quellposition der Messungen aus März und April desselben Jahres entspricht, dann wäre die bestimmte Elektronenenergie um ca.  $54(30) \text{ meV}$  ( $\hat{=} 2,7 \text{ ppm}$ ) zu tief gemessen<sup>43</sup>.

Für die Kontrolle der Hochspannung kann dieser Fehler an mehreren Stellen verbessert werden: Ermöglichung einer mechanische Justage der Quelle und deren Überwachung, geringere Spektrometerauflösung, was die mögliche Potentialverschmierung reduzieren würde, Reduzierung des Potentialdurchgriffs, Detektorposition weiter von der Analysierebene rücken, kleinere Detektorfläche nutzen ...

**Position und Breite:** Betrachtet man die Rohdaten (s. Abb. 6.3) so fallen mehrere Dinge auf: Die Zählrate von Stellung 1 liegt deutlich über der von Stellung 2 und Stellung 3. Transmissionsverluste an der niederenergetischen Flanke des Spektrums nehmen von Stellung 2 (stärkste Auslenkung) über Stellung 1 (mittlere Auslenkung) zu Stellung 3 (geringste Auslenkung) hin zu. Diese Transmissionsverluste haben unterschiedliche Linienbreiten beim Fit zur Folge. Es soll nun geklärt werden, ob die Linienhöhe von Stg. 3 gegenüber Stg. 1 allein aus dieser zusätzlichen "Änderung" der Linienbreite hervorgeht. Außerdem sollen die Daten hier als Beispiel dafür dienen, dass die Fixierung der Linienbreiten beim Fit nicht automatisch dazu führt, dass Instabilitäten maximal in die Stabilität der Linienposition projiziert werden.

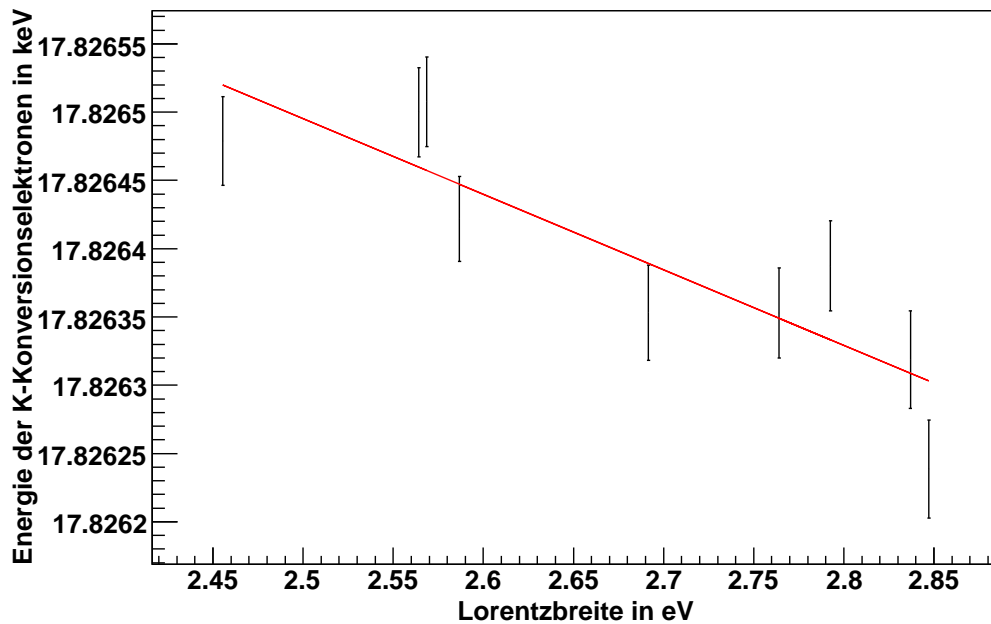
Fittet man die Daten mit einer Lorentzkurve freier Breite, so ergibt sich eine Steigung von  $-55(8) \text{ meV}$  bei  $0,1 \text{ eV}$  Variation in der Breite (s. Abb. 6.55). Die Erhöhung der Linienposition geht einher mit einer schmäleren Linie. Die zentralste Position hat im Mittel eine Breite von  $2,5 \text{ eV}$ , die Position mit mittlerer Auslenkung hat eine mittlere Breite von  $2,7 \text{ eV}$  und die dezentralste Position hat eine Breite von  $2,8 \text{ eV}$ . Es lassen sich nun die Differenzen der Linienpositionen bei einem Fit mit freier Breite und einem mit einer festgesetzten Breite auf  $2,7 \text{ eV}$  bilden. Durch eine Fixierung der Breite auf einen Werte von  $2,7 \text{ eV}$  ergibt sich eine Erhöhung der Linienposition von Stellung 2 ( $+15 \text{ meV}$ ) und eine Erniedrigung von Stellung 3 um  $-24 \text{ meV}$ . Durch die Fixierung der Linienbreite wird der maximale Hub um  $39 \text{ meV}$  reduziert. Hier sollte gezeigt werden, dass das Fixieren der Linienbreite nicht unbedingt bedeutet, dass damit der größtmögliche Hub in der Linienposition angegeben wird.

<sup>43</sup>Zur genauen Aussage ist es aber nötig die Erdfeldkorrekturfelder zusätzlich zu berücksichtigen, s. Abschnitt "Erdfeldkompensationsfelder"



**Abbildung 6.54:** Die Rohdaten von Segment 1, 2 und 3 unter Dejustage sind hier aufgetragen. Die Rohdaten für Segment 1 zeigen ein auffälliges Verhalten. Während Stellung 1 (mittel) die größte Amplitude zeigt, bleiben Stellung 2 (dezentral) und 3 (zentral) dahinter zurück. Die Transmissionsverluste an der niederenergetischen Flanke des Spektrums nehmen von Stellung 3 über Stellung 1 zu Stellung 2 hin ab.

Die Linienpositionserhöhung von Stellung 3 ist nicht allein dadurch bedingt, dass die Breite der Linie aufgrund von Transmissionsverlusten 0,2 eV verschmälert gegenüber der von Stellung 1 erscheint. Es wäre nach Abb. 6.9 eine Positionserhöhung bei einer Verschmälerung um 0,2 eV Positionserhöhung von 26 meV beim Fit mit freier Breite relativ zum Fit fester Breite (2,7 eV) zu erwarten. 24 meV Positionserhöhung konnten gemessen werden. Insgesamt tritt aber eine viel größere Positionserhöhung von 108 meV (Pos(Stg.3)-Pos(Stg.1), freie Breite) auf. Die Verschiebung der Linienposition lässt sich also aus einer Variation der Schwankung der Linienbreite allein nicht erklären, wohl aber der Unterschied zwischen Fit mit freier Breite und dem mit fester Breite. Eine Unterschätzung der Breite erhöht die Linienposition eine Überschätzung der Linienbreite erniedrigt sie um 14 meV/0,1 eV Variation. Man erkennt also eine effektive Steigung wie auch schon bei der nicht bewegten Quelle der Wochenmessung (s. Abb. 6.9).



**Abbildung 6.55: Der Fit mit freier Breite für Detektorsegment 1 bei Dejustage** zeigt eine klare Korrelation je kleiner die Linienposition umso größer die Breite. Bei 0,1 eV Variation der Linienbreite resultiert eine Verschiebung von 55(9) meV in der Linienposition. Die Variation der Breite ist nicht die alleinige Ursache der Verschiebung. Aufgetragen sind hier jeweils die drei einzelnen Spektromaufnahmen zu den Einstellungen 1, 2 und 3

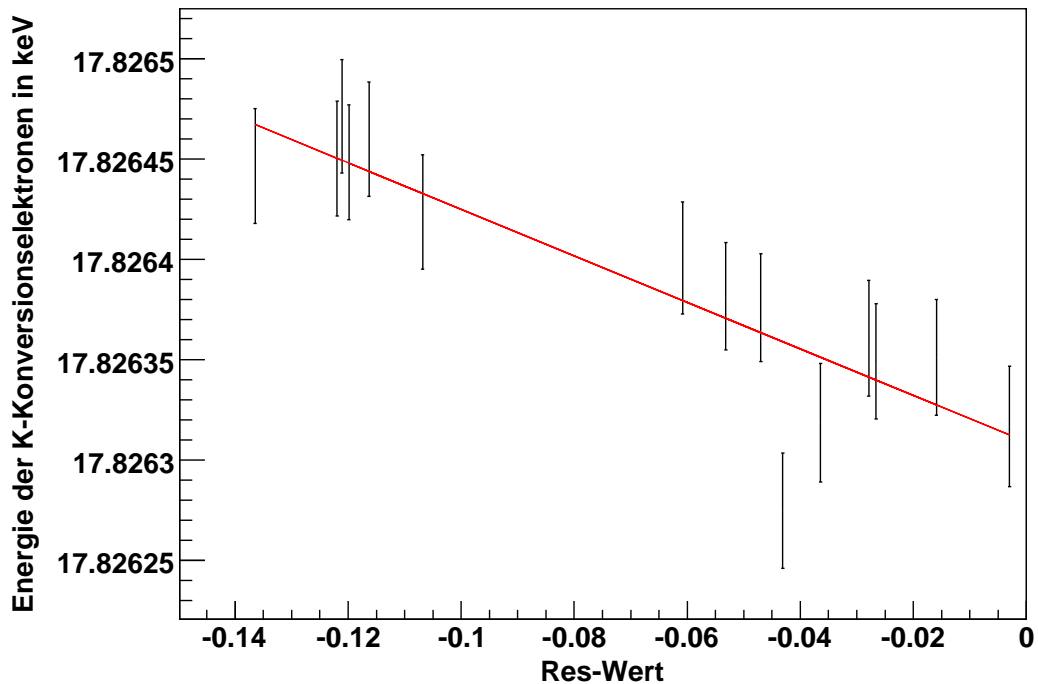
Stellung	Breite in eV	Position in meV	Differenz zum Fit mit 2,7 eV
3	2,5(1)	495	+24
1	2,7(1)	387	-3
2	2,8(1)	304	-15

**Position und Transmissionsverluste:** Die Fits an die Daten zeigen großen  $\chi^2$ -werte. Diese rühren von Verlusten an der niederenergetischen Flanke des Elektronenpeaks. Dies wird i.a. mit Transmissionsverlusten in Verbindung gebracht. Transmissionsverluste treten gehäuft auf bei kleinen Krümmungsradien der Elektronenbahnen und schwachen Magnetfeldern, also schlechten Bedingungen für die Adiabasie der Bewegung, sowie Störungen der Radialsymmetrie des Spektrometers [Thu08]. Da die Transmissionsverluste mit der Dejustage skalieren, können sie zur Überprüfung der Quelljustage herangezogen werden.

Für Abb. 6.56 wurde ein Energiefenster von 17814 eV-17817 eV an der niederenergetischen Flanke gewählt. Über dieses Energiefenster wurde die Differenz der Zählraten zwischen Fit, der keine Transmissionsverluste kennt, und tatsächlichen gemessenen

Zählraten gemittelt und schließlich zur Normierung durch die Amplitude des Fits dividiert. Diese Größe im folgenden Res-Wert genannt, zeigt eine klare Korrelation zu den Messwerten. Der Res-Wert wird mit sinkender Energie kleiner. Eine Erklärung für dieses Verhalten konnte leider nicht gefunden werden.

Wenn sich die Veränderung der Quellposition als Transmissionsverlust bemerkbar macht so kann der Res-Wert dazu genutzt werden, die Stabilität der Justage der Quelle gegenüber dem Spektrometer zu überprüfen. Da andererseits aber auch Bedeckungen der Quelle mit Restgas zu Transmissionsverlusten an der niederenergetischen Flanke führen, ist dies keine eindeutige Kontrolle. Positionsverschiebungen, die aber mit einer Veränderung der niederenergetischen Flanke korreliert sind, sind zur Überprüfung der Spannungsstabilität zweifelhaft. Für den Betrieb einer Eichquelle am Monitorspektrometer sollte man die niederenergetische Flanke des Spektrums mitmessen.



**Abbildung 6.56: Der Res-Wert und die Linienlage zeigt einen klaren Zusammenhang.** Mit einer Steigung von 12 meV/0,01 Res-Wert nimmt die Linienposition ab. Eine Dejustage führt also in der vorliegenden Konfiguration zu einer Abnahme der Transmissionsverluste.

### 6.4.2 Erdfeldkompensation

Im Spektrometer werden senkrecht zur Spektrometerachse auftretende Magnetfelder durch vier Luftspulen kompensiert. Es sollen damit die Einflüsse von Erdmagnetfeld und Störungen aus der Laborumgebung reduziert werden. Es wurden 2007 zwei Einstellungen für die sogenannten Erdfeldkompensationsspulen benutzt: die erste mit  $I_1=45$  A und  $I_2=20$  A wurde zu Beginn der Messreihe eingesetzt, die zweite mit  $I_1=70$  A und  $I_2=15$  A wurde ab dem 8.3.07 genutzt. Die erste Einstellung war dieselbe Einstellung wie in den Messungen von 2006. Die Änderung am 7.3. diente der Optimierung vom Zählrate zu Untergrundverhältnis in Segment 1. Die Differenz von Signal zu Untergrund stieg von  $345 \text{ s}^{-1}$  auf  $439 \text{ s}^{-1}$ . Im weiteren Verlauf also ab dem 8.3.07 wurde diese neue Einstellung verwendet.

Zu einem späteren Zeitpunkt wurde ein direkter Vergleich der beiden Einstellungen in einer kurzen Messreihe untersucht, bei der im Wechsel die beiden Einstellung eingeregelt wurden.

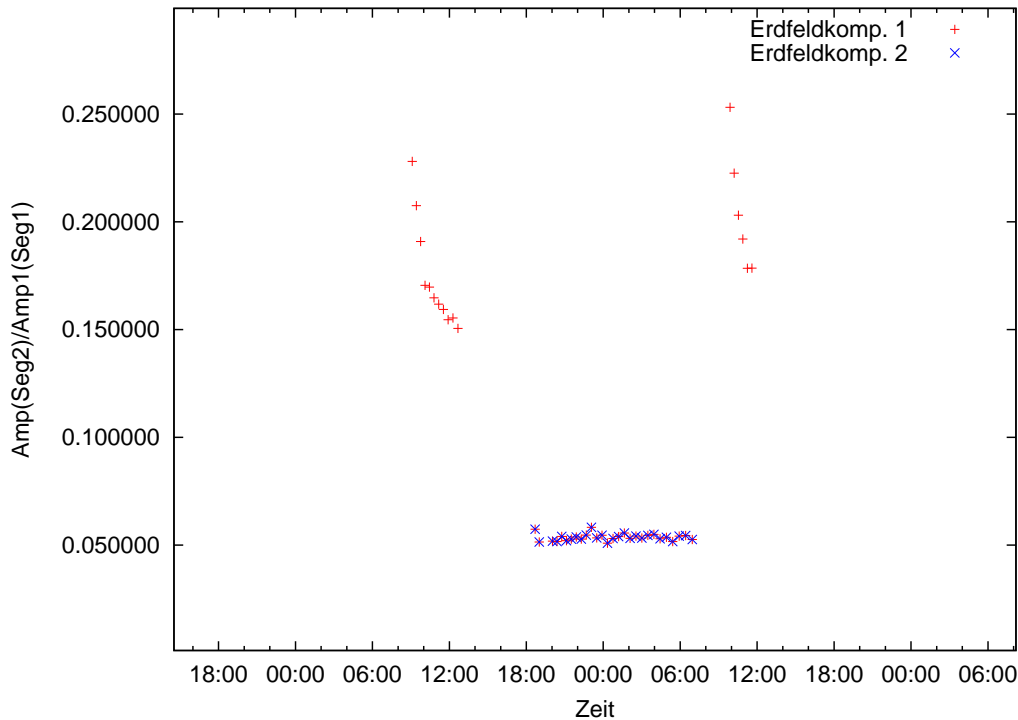
Wenn man mit dem Erdfeldkorrekturfeld in das System eingreift, dann wird zum einen die Position des Flussschlauchs bezüglich des Potentialminimums in der Analysierebene variiert, zum anderen auch seine Ausrichtung bzgl. der elektrischen Feldlinien am Analysierpunkt. Durch die zusätzliche Verkippung kann dann zusätzlich eine vermeintliche Energieänderung der Konversionselektronen auftreten.

Bei  $I = 10$  A wird ein transversales Magnetfeld von 0,08 G für  $r < 25\text{cm}$  erwartet [Bor00]. Bei 70 A wären das 0,56 G, bei 45 A wären das 0,36 G, also eine Veränderung von 0,2 G bei einem Feld von 3,09 G, was einer maximalen relativen Änderung  $3,4^\circ$  entspricht. Nur eine Verkippung von  $0,17^\circ$  bzgl. des elektrischen Feldes ist nötig, um eine Verschiebung von 80 meV zu erreichen<sup>44</sup>.

Eine Veränderung der Erdfeldkompensationsspulenströme hat einen direkten Einfluss auf das Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 (s. Abb. 6.57). Man sieht also, dass die Veränderung der Erdfeldkorrektur nicht nur den Flussschlauch in der Analysierebene verändern kann, sondern auch die Abbildungseigenschaften des Spektrometers verändert. Mit der Einstellung 2 (70 A/15 A) wird das Abbild der Quelle also auf den Detektor ausgerichtet.

Zeitlich koinzident mit einer Änderung der Erdfeldspulen am 8.3.07 ist ein Sprung in den Preplatingfilmen von  $-127(32)$  meV. Ein Sprung in den Heizergereinigtenfilmen:  $-127(47)$  meV (mit 3. Quelle). Schließt man die dritte gemessene Quelle aus Gründen der Justage aus, dann ergibt sich nur ein Hub von  $-76(47)$  meV Ablationsfilme wurden erst nach der Änderung der Erdfeldkompensationsspulen gemessen. Aus diesem Zeitfenster ist also kein Vergleich gegeben. Zu einem späteren Zeitpunkt wurden die Erdfeldspulenstromänderungen bei Ablationsfilmen getestet. Die ungewichtete Standardabweichung aller Ablationsfilme bis Ostern beträgt 21 meV. Hier ergibt sich ein Sprung von  $-42(21)$  meV. Mit oben angegebener Wichtung ergibt sich  $-75(16)$  meV. Die Wichtung führt zu einer leichten Bevorzugung der Ablationsfilme.

<sup>44</sup>Zum Vergleich hat das Erdmagnetfeld Werte von 44 und 20  $\mu\text{T}$  respektive der Richtung. Eine Veränderung von 24  $\mu\text{T}$  ist also ganz erheblich und geht über eine Kompensation des Erdfelds hinaus.



**Abbildung 6.57:** Die radiale Verteilung der Signalelektronen nach Veränderung der Erdfeldspulen von 45/20 A auf 70/15 A zeigt eine klare Auswirkung auf das Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1. Dargestellt sind drei Filme. Der erste und letzte entspricht den Einstellungen vor dem 8.3.07(45A,20A) und der mittlere denen danach(70A,15A).

Schließt man wieder die 3. Quelle der Heizer gereinigten Substrate aus, reduziert sich die Verschiebung auf 69(16) meV.

Es ist nicht möglich, statistisch signifikant zu unterscheiden, auf was die Energieabsenkung zurückzuführen ist, eine Spektrometer bedingte Depression der Elektronenenergie ist aber eindeutig zu erkennen. Deshalb wird der Wert -69(16) meV als Korrekturterm beim Übergang zwischen den Einstellungen 45 A/20 A nach 70 A/15 A, Vakuumeinbruch und Justageproblem und damit im Vergleich zwischen den Daten von 2006 zu 2007 hinzugezogen. Die Unsicherheit in diesem Wert wird aber um 34 meV<sup>45</sup> angehoben, damit ergibt sich dann ein Korrekturwert von -69(38) meV

Eine Reduzierung der Linienposition allein durch die Änderung der Erdfeldkompensation würde dafür sprechen, dass die Elektronen den Flusschlauch radial weiter außen durchlaufen haben, wenn man annimmt, dass die Positionserniedrigung allein durch den Potentialdip ausgelöst wird. Andererseits votiert die Reduzierung des Zählratenanteils in Segment 2 zu Segment 1 für eine zunehmende Optimierung der Abbildung des Flusschlauchs auf den Detektor. Wenn dieser zentral angebracht ist, so würde das auch eine Optimierung des Flusschlauchs auf die Spektrometerachse bedeuten. Beide Aussagen widersprechen sich zunächst. Nur wenn man entweder an-

<sup>45</sup>=Differenz aus dem Hub bei Heizer gereinigten Substraten und dem bei ablatierten.

nimmt, dass der Detektor dezentral angebracht ist, kann beides miteinander gehen<sup>46</sup> oder wenn man die Verkippung der magnetischen zu elektrischen Felder in der Analysierebene als Hauptursache für die Energiereduktion annimmt, sind beide Effekte gleichzeitig möglich. Letzteres tritt insbesondere dann auf, wenn die Quelle nicht zentral angebracht ist. Eine Optimierung des Signal zu Rauschverhältnisses durch die Erdfeldkompensation muss dann eine Veränderung des Winkels zwischen magnetischem und elektrischen Feld. In der Analysierebene resultiert daraus eine andere Linienposition, außerhalb der Analysierebene kann es zur Änderung der Transmissionseigenschaften kommen.

#### 6.4.2.1 Zusammenfassung zu den beschriebenen Spektrometerabhängigkeiten

Eine Änderung der Position der Quelle und des Detektors sowie eine Änderung der Ströme in den Erdfeldkompensationsspulen beeinträchtigen die Linienpositionsbestimmung jeder Kalibrationsquelle. Da Quellposition und die Ströme der Erdfeldkompensationsspulen während der Messungen nicht konstant gehalten wurden, musste untersucht werden, welche Einflüsse diese Parameter auf die Linienposition haben. Es wurde versucht zu zeigen, wo sich eine Änderung dieser Parameter an anderer Stelle in den Daten zeigen.

#### Dejustage bei gleicher Erdfeldkompensationseinstellung

- Je höher die gemessene Linienposition, um so kleiner ist der Radius, bei dem der Potentialberg in der Analysierebene überwunden wird.
- Eine relative Dejustage der Quelle ist an einer Änderung des Zählratenverhältnisses von Segment 2 zu Segment 1 zu erkennen
- Je höher die Linienposition ist, um so schmaler ist die Linienbreite bei einem Fit mit freigelassener Lorentzbreite.
- Je höher die Linienposition, d.h. je zentraler die Passage der Elektronen in der Analysierebene, um so stärkere Transmissionsverluste traten an der niedereenergetischen Flanke der Linie auf.

#### Erdfeldkompensation

Ändert man die Erdfeldkompensationseinstellung können zwei Effekte auftreten: a) der Flussschlauch wird an anderer radialer Stelle über den Potentialberg in der Analysierebene gelenkt und b) die Richtung des Flussschlauchs wird gegen die Richtung des analysierenden elektrischen Feldes verkippt. Die Änderung der Erdfeldkompensationseinstellung, die während der Messungen 2007 gemacht wurden, ändern mit der Position des Flussschlauches auch das Zählratenverhältnis von Segment 1 zu Segment 2. Der Flussschlauch wird bei der Änderung der Einstellung 1 zur Einstellung 2 zentraler auf den Detektor gelenkt. Die gemessene Linienpositionen von allen

---

<sup>46</sup>Der vermessene Hub bei den Dejustagemessung sprach ebenfalls für eine Dejustage des Detektors.



Filmpräparationsmethoden steigen unter dieser Änderung aber nicht an, sondern sie sinken ab. Dies kann dann verstanden werden, wenn der Detektor nicht zentral angebracht ist oder wenn die zusätzliche Verkippung der elektrischen und magnetischen Felder die Linienpositionsmessung so beeinflussen, dass die Linienposition sinkt. Der Mittelwert aus allen Präparationsmethoden liegt bei  $-69(38)$  meV.

### 6.4.3 Austrittsarbeit der Filterelektroden

Prinzipiell ist es möglich, dass die Austrittsarbeit der Filterelektroden nicht nur materialabhängig variiert, sondern auch im Laufe der Zeit Veränderungen aufweist. Relevant für die Austrittsarbeit außer der Materialzusammensetzung und Orientierung der Oberflächendipole ist die Belegung der Oberfläche mit Restgas. Es ist also zu erwarten, dass die gemessene Elektronenenergie abhängig vom vorauslaufenden Reinigungsprozess und der Zeit ist, die seit dem verstrichen ist. Im Falle der Kryptonmessungen von 2006 und 2007 wurde kein Ausheizen des Spektrometers durchgeführt. Der Druck im Spektrometer lag bis auf den einen Vakuumeinbruch am 9.3. immer unterhalb  $10^{-8}$ , meistens aber unterhalb  $10^{-9}$  mbar. Es ist also zu erwarten, dass sich auf die lange Zeit von mehr als 2 Jahren ein Gleichgewichtszustand an den Oberflächen eingestellt hat, der nicht der sauberst mögliche direkt nach dem Ausheizen ist. Ein kurzer nicht zu großer Vakuumeinbruch sollte also keinen relevanten Effekt auf die Austrittsarbeit haben.

Während diesen Messungen kam es kurz nach Änderung der Erdfeldkompensation zu einem Vakuumeinbruch auf mindestens  $10^{-6}$  mbar. Der Einfluss dieses Vakuumeinbruchs soll nun ansatzweise analysiert werden. Die teilweise synchrone Erdfeldkompensationsänderung erschwert klare Aussagen. Es werden Heizer gereinigte Filme und Preplatingfilme, die sowohl eine Änderung der Erdfeldkompensation als auch den Vakuumeinbruch erfahren haben, verglichen mit Ablationsfilmen zu späterem Zeitpunkt, bei denen nur die Erdfeldkompensation verändert wurde. Der Unterschied zwischen den Sprüngen in den Preplatingfilmen und den Heizergereinigten Filmen auf der einen Seite zu Beginn der Messphase zu dem Sprung in den Ablationsfilmen zu späterer Zeit, legt die Vermutung nahe, dass der Vakuumeinbruch Einfluss auf die Linienposition genommen hat. In den Ablationsfilmen, die vor und nach den letztgenannten Vorfällen gemessen wurden zeigte sich keine Verringerung der Elektronenenergie ( $+20(21)$ meV). Andererseits muss man aber zusätzlich berücksichtigen, dass die Energie der Ablationsfilme mit der Zeit und der Reinheit des Substrats ansteigt und hier bei  $17826,281(21)$  eV sättigt, was  $61(43)$  meV über dem Mittel der Heizer gereinigten Substrate und  $103(37)$  meV über dem Mittel der Preplatingfilme liegt. Im kurzen Messfenster vor den Änderungen der Erdfeldkompensation und genannten Vorfällen liegt die Energie der Ablationsfilme aber  $57(43)$  meV unter den der anderen Präparationsmethoden. Es könnte also sein, dass ein Sprung in den Ablationsfilmen von einer Drift in den Ablationsfilmen verwischt wird. Für die Austrittsarbeitsveränderung blieben damit die Differenzen zwischen der Änderung der Erdfeldspulen in den Ablationsfilmen und den Änderungen in den anderen Präparationsmethoden von  $34(51)^{47}$  also eine Obergrenze von  $86$  meV als schwache Abschätzung.

<sup>47</sup>Mit der dritten Heizerquelle:  $85(51)$  meV. Diese Mittelung wird disfavorisiert, da hier eine

Das Mainzer Neutrinomassenspektrometer zu dieser Zeit befand sich während der Messungen in einem relativ günstigen Zustand zur Überwachung der Retardierungsspannung. Schwankungen und Einlaufverhalten gerade unterschiedlicher Edelstahlmaterialien sind aber nicht auszuschließen.

Für die KATRIN-Stabilitätsüberwachung ist also eine zusätzliche Überprüfung der Retardierungsspannung in der Hauptbeamline sinnvoll, sowie zumindest eine mögliche weitere Redundanz durch die Endpunktsbestimmung des Tritiumspektrums.

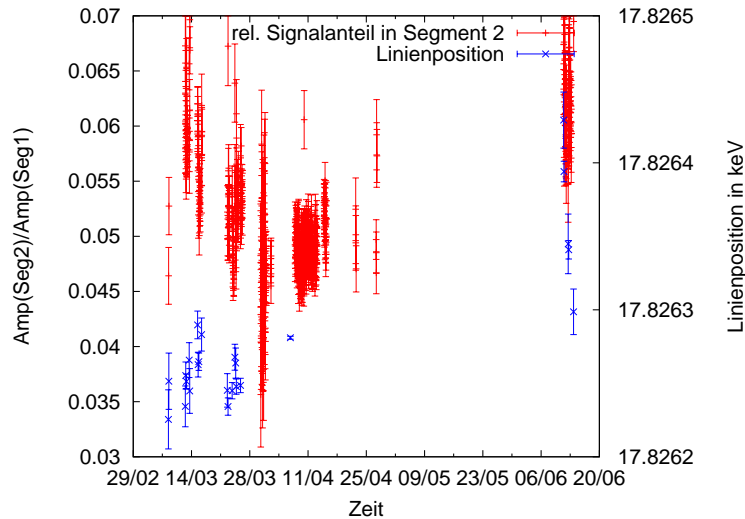
---

starke Dejustage der Quelle vorlag(s. Abschnitt zur Dejustage).

## 6.4.4 Anwendung der Kriterien auf die Messdaten von 2007

### 6.4.4.1 Ablationsfilme

Die angegebenen Ablationsfilme aus dem Jahr 2007 wurden bei immer gleichen Erdfeldkompensationsströmen gemessen, sodass hier keine Modifikation der Daten relativ zueinander zu erwarten ist<sup>48</sup>. Mechanische Dejustagen traten hingegen auf.



**Abbildung 6.58:** Das Zählratenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 der ablatierten Filme ist hier aufgetragen zusammen mit den bestimmten mittleren Linienpositionen der Fits.

Zur Überwachung der Dejustage wird das Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 herbeigezogen. Je größer dies bei gleicher Erdfeldkompensation ist, um so niedriger müsste die vermeintliche Elektronenenergie ausfallen. Das Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 nimmt zunächst mit der Zeit ab. Die Elektronen nutzen also zunehmend einen zentraleren Flusschlauch, damit muss sich die Linienposition synchron erhöhen (s. Abb. 6.58).

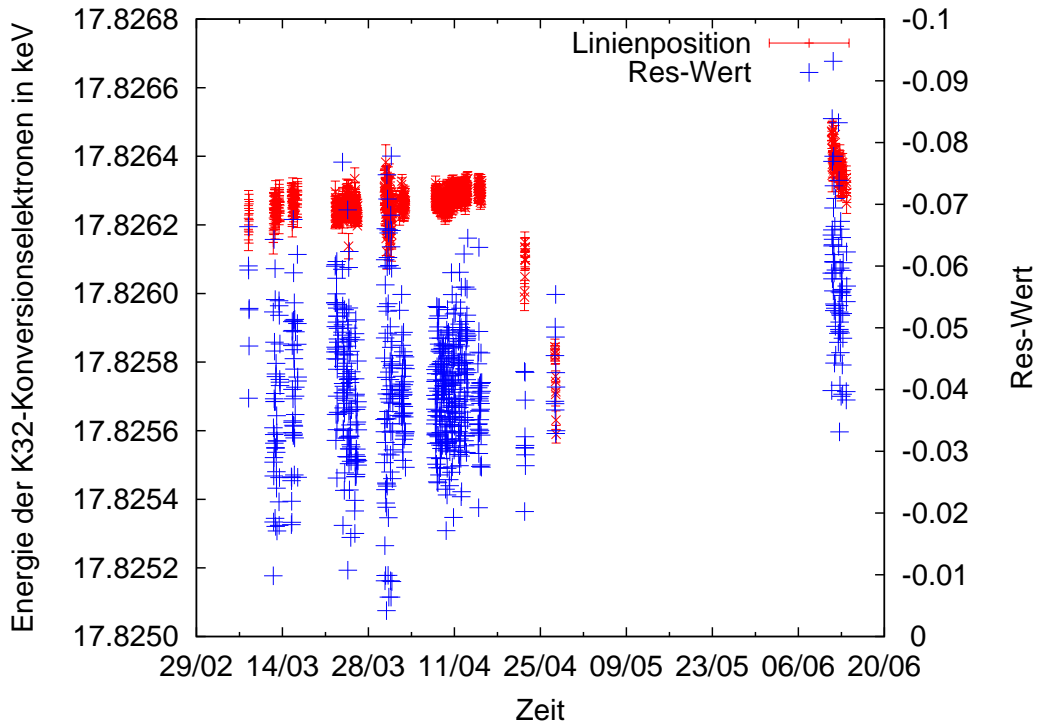
Im Juni ist aber sowohl das Verhältnis von Segment 2/Segment 1 als auch die Linienposition relativ erhöht. Aus einer reinen Dejustage lässt sich diese Linienerhöhung im Juni also nicht erklären<sup>49</sup>.

Vergleicht man die Spektren der Filme während der Messperiode 2007, fällt auf, dass die niederenergetische Flanke des Elektronenpeaks unterschiedlich gut zu den Fitkurven passt. Im Abschnitt 6.4.1.1 wurde ein Zusammenhang von Transmissionsverlusten an der niederenergetischen Flanke des Spektrums mit einer Dejustage

<sup>48</sup>Die Messungen aus dem Juni unterscheiden sich nur insofern, dass hier ein anderes Netzteil für den Spulenstrom der 70 A Spule verwendet wurde. Eine Änderung des Kompensationsfelds hierdurch wird nicht erwartet.

<sup>49</sup>Es lässt sich an dieser Stelle mutmaßen, dass im Juni ein verändertes Zusammenspiel von Erdfeldkompensation und Quellposition vorlag. Sowohl die relative Signalrate in Seg 2 als auch die zunehmende Transmissionsverluste geben dazu Anlass.

gezeigt. In Abb. 6.59 ist die Differenz der Messwerte zur ermittelten Fitkurve im Mittel im Energieintervall 17814 eV bis 178217 eV normiert mit der jeweiligen Amplitude aufgetragen. Trägt man diese Werte der ablatierten Filme gegen die Zeit auf, so fällt auf, dass die Daten von Juni 2007 um ca. 0,02 erhöhte Res-Werte aufweisen. Das bedeutet, dass die Linienform an der niederenergetischen Flanke schlechter mit dem Modell hier übereinstimmt, dass keine Transmissionsverluste annimmt.



**Abbildung 6.59:** Die Fitabweichung der ablatierten Filme an der niederenergetischen Flanke heben die Daten aus dem Juni mit höheren Fitabweichungen hervor.

Ein direkter Vergleich der Elektronenenergien ist hier also beeinträchtigt. Eine Vergrößerung der Transmissionsverluste um 0,02 ausgedrückt im Res-Wert, entspricht einer Verschiebung der Linienposition um 24 meV. Transmissionsverluste an der niederenergetischen Flanke des Spektrums können aber auch durch Energieverluste aufgrund von Streuungen der Elektronen an einer Deckschicht aus Restgas hervorgerufen werden. Das Einbrechen der Transmission ist außerdem abhängig von der Erdfeldkompensation. Es ist also zweifelhaft die Korrektur von 24 meV auf die Daten anzuwenden. Vielmehr bietet der Res-Wert hier die Möglichkeit eines weiteren Ausschlusskriteriums.

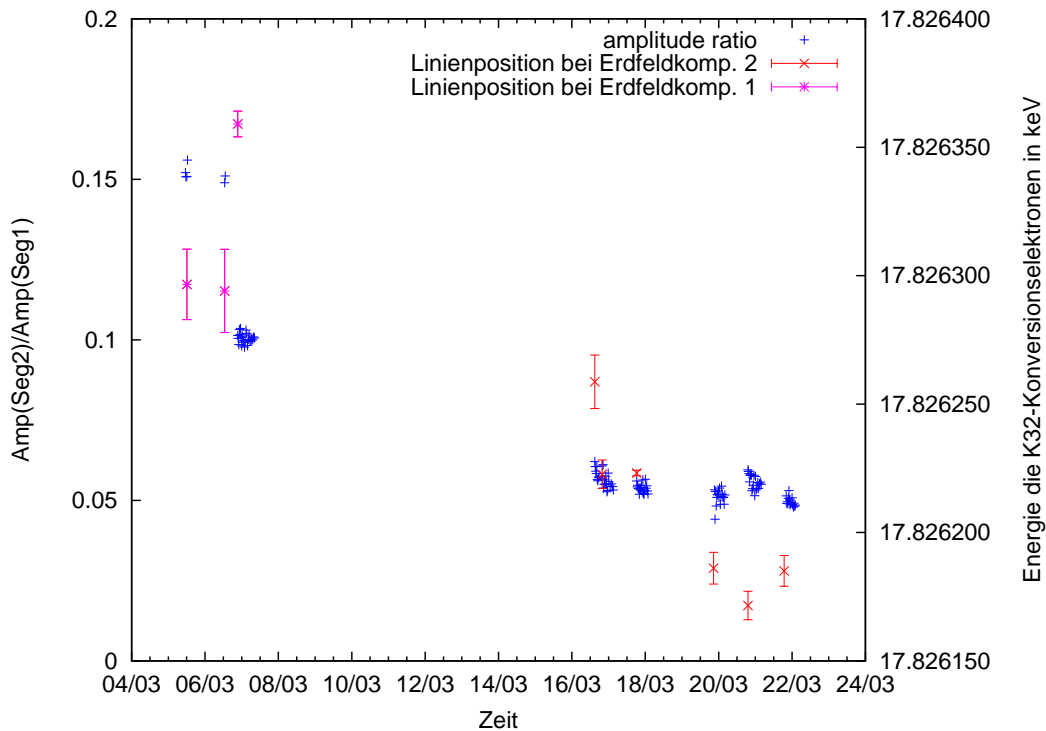
Wenn also Res-Wert und das Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 nicht miteinander übereinstimmt, kann nicht davon ausgegangen werden, dass die Linienposition davon unbeeinträchtigt bleibt. Eine Verschiebung der Linienposition wäre dann kein sicheres Veto für die HV-Stabilität. Res-Wert und Amplitudenverhältnis hängen von der Justage und der Erdfeldkompensationseinstellung. Um die Sicherheit der HV-Überwachung zu verbessern, müssen diese Parameter zusätzlich überwacht werden.

#### 6.4.4.2 Heizergereinigte Filme

Die heizergereinigten Filme wurden bei beiden Erdfeldkorrekturkonfigurationen eingesetzt. Dejustage ist ebenfalls insbesondere bis zum 8.3.07 zu erwarten<sup>50</sup>.

Hervorstechend ist die Messung vom 7.3.07. Um 63 meV höher als die vorausgehende Messung liegt die Linienposition bei  $17826,359(22)\text{eV}$ . Gleichzeitig ist der relative Anteil der Zählrate in Segment 2 zu Segment 1 um 5 % abgesenkt, was einer zunehmend zentraleren Passage der Elektronen an der Analysierebene also einer Positionserhöhung entspricht. Diese Messung wurde kurz vor dem Verkeilen des Quellschlittens gemacht. Man kann damit aus dem Zählratenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 schließen, dass diese Quelle stark dejustiert war.

Nach der Erdfeldkompensationsänderung sinkt der Anteil in Segment 2 erwartungsgemäß stark ab, da der Flussschlauch auf den Detektor zentriert wurde. Vergleiche zur Dejustage sind nur sinnvoll bei unveränderter Erdfeldkompensation.



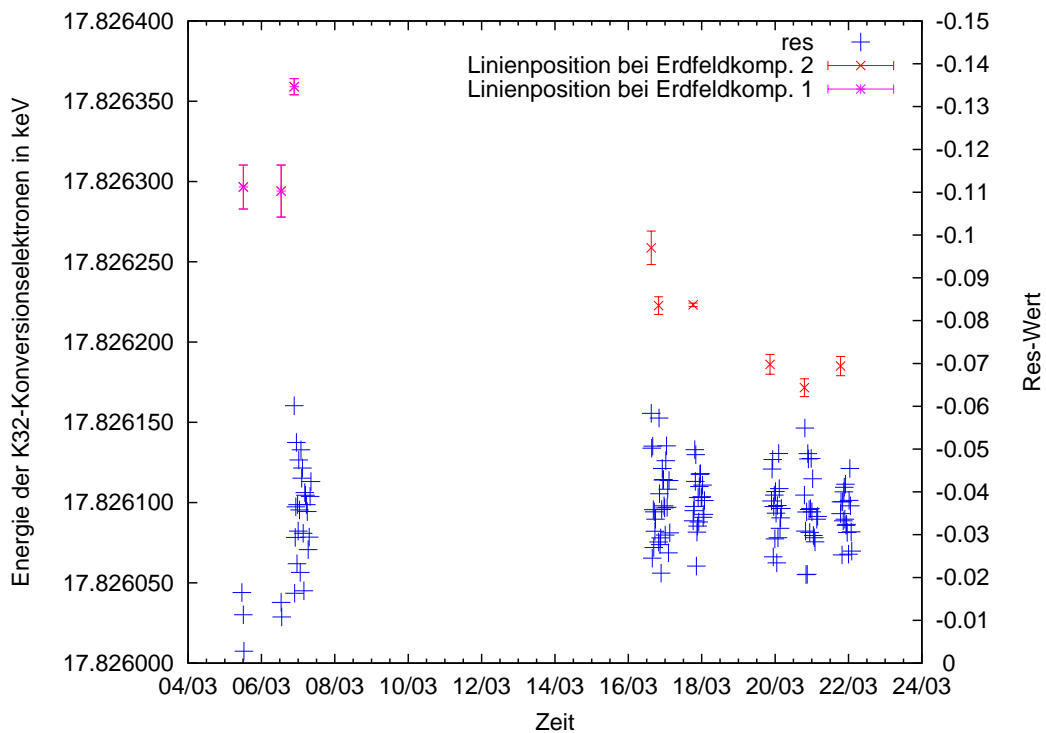
**Abbildung 6.60:** Das Segment 2 zu Segment 1 Verhältnis der Amplitude der Heizergereinigten Filme zeigt einen deutlichen Einschnitt nach dem 8.3.. Ein solches Verhalten ist ebenfalls in der Testmessreihe zur Erdfeldkompensation mit Ablationsfilmen gemessen worden. Innerhalb einer Erdfeldkonfiguration treten Schwankungen der Linienposition und der Amplitudenverhältnisse aus. Sinkt der Anteil in Segment 2, steigt die gemessene Linienposition an.

Leider ist ein Vergleich der Res-Werte wie im vorangegangenen Kapitel hier nicht über die gesamte Messperiode in gleichem Maße nötig. Da sich die Transmissionsei-

<sup>50</sup> Am 8.3. fand ein mechanisches Neujustieren des Quellschlittens nach einem Verkeilen statt.

genschaften des Spektrometers mit den Erdfeldspuleneinstellungen geändert haben und nicht der vorab angegebene Zusammenhang für die Res-Werte und die Linienposition gegeben ist. Die Res-Werte sind dennoch erstellt worden und in Abb. 6.61 aufgetragen. Sie weichen nicht von denen der Ablationsfilme ab. Man kann daraus schließen, dass sich die Flächenbedeckung bei beiden Präparationsmethoden nicht unterscheiden.

Die Betrachtung der zusätzlichen Kontrollparameter des Spektrometers, Erdfeldkompensation und Justage, führt in diesem Fall zum Ausschluss der Messung von 7.3.07 bei der Stabilitätsüberwachung.

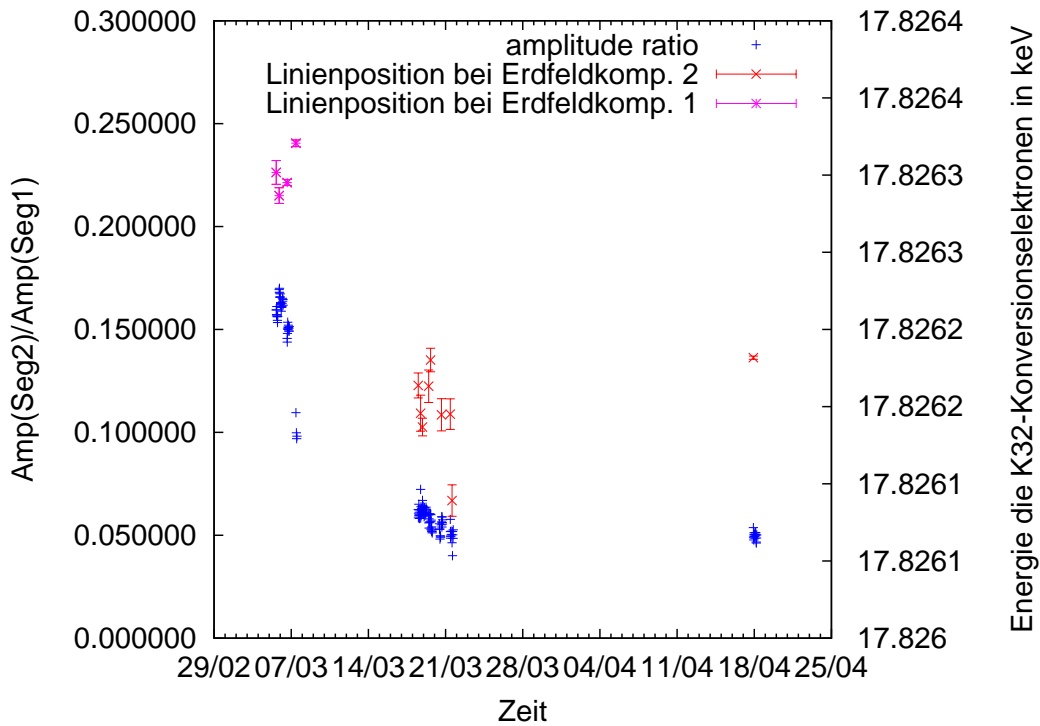


**Abbildung 6.61:** Der Res-Wert der Heizer gereinigten Filme 2007 zeigt keine deutliche Abweichungen von -0,04. Die Heizer gereinigten Filme bleiben deshalb vergleichbar mit den Ablationsfilmen.

### 6.4.4.3 Preplating

Preplatingfilme zeigen ein analoges Verhalten zu den heizergereinigten Filmen.

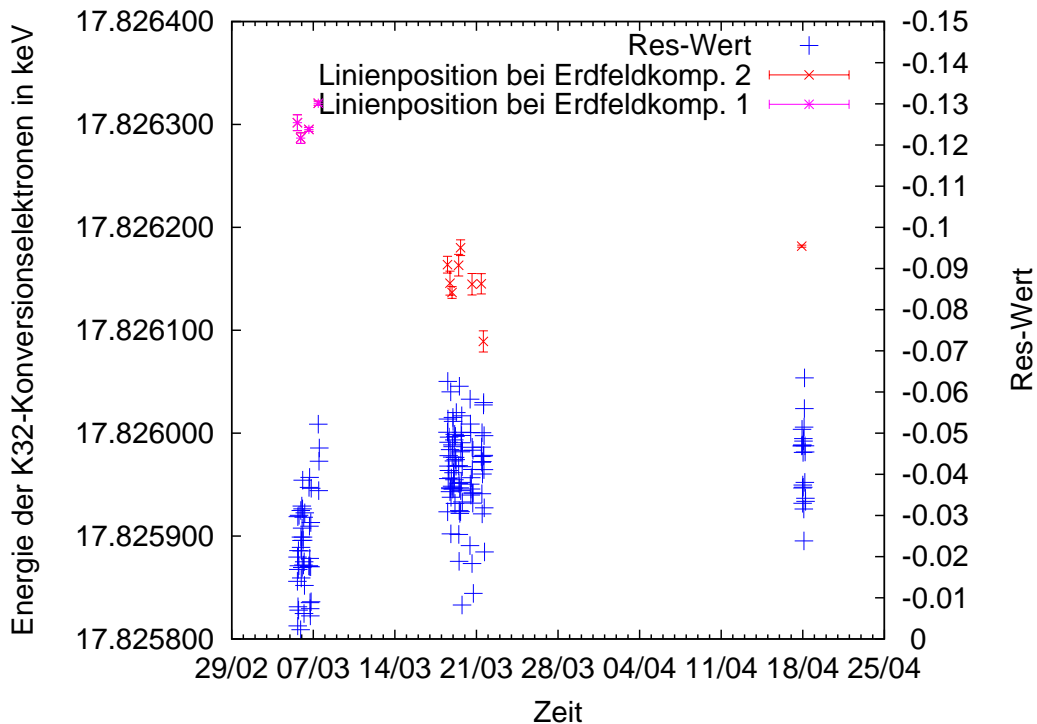
Auch das Amplitudenverhältnis von Segment 2 zu Segment 1 bei Preplatingfilmen zeigt einen starken Sprung nach dem 8.3. synchron zu einem Sprung in der Linienposition (s. Abb. 6.62).



**Abbildung 6.62:** Segment 2 zu Segment 1 Verhältnis der Preplating Filme zeigt wie die Heizer gereinigten Filme eine starke Reduktion beim Wechsel der Erdfeldkonfiguration.

Die Res-Werte spiegeln ebenfalls die Änderung der Erdfeldspulenströme wieder. Größere Dejustagen innerhalb einer Erdfeldkonfiguration traten nicht auf, sodass alle Filme miteinander verglichen werden können.

Die letzte Messung vor dem 8.3. wurde direkt im Anschluss an die stark dejustierte Heizer gereinigte Quelle gemessen. Die Dejustage ist nicht gleichstark ausgeprägt wie im Falle der heizergereinigten Filme. Das ist aber auch nicht weiter verwunderlich, da der Quellschlitten zur Filmpräparation zwischenzeitlich bewegt wurde.



**Abbildung 6.63:** Der Res-Wert der Preplatingfilme 2007 zeigt keine deutliche Abweichungen von -0,04. Die Heizer gereinigten Filme bleiben deshalb vergleichbar mit den Ablationsfilmen. Die Veränderung der Erdfeldspulen ist aber auch in den Res-Werten zu erkennen.

## 6.5 Stabilität im Langzeitverhalten

Die Spannungsüberwachung der KATRIN-Retardierungsspannung sieht als ersten Schritt eine HV-Versorgung mit einer Reproduzierbarkeit von 10 ppm und eine Driftverhalten von 2ppm/8h (bzw. 5ppm/8h) vor. Dieser "grobe" Rahmen wird von einem Präzisionsspannungsteiler überwacht, der eine Langzeitdrift von 0,6 ppm/Monat im Übergang von 2005 zu 2006, eine Reproduzierbarkeit von 0,3 ppm innerhalb eines Monats und eine relative Standardabweichung von 0,3 ppm (2006) und 0,55ppm (2005) aufwies. Wenn sich keine Kurzzeitschwankungen einstellen, wie beispielsweise in den aufgeführten Daten zum Thema HV-Instabilitäten, gilt es, das Driftverhalten des Spannungsteilers zu überwachen. Bei einem Driftverhalten von 0,6 ppm/Monat ist nach 5 Monaten eine Veränderung des Messwertes von 3 ppm, also dem Limit für die systematischen Unsicherheit der Spannungsüberwachung erreicht.

Die Auflösung eines zeitlich konstanten Driftverhaltens steigt mit der Länge des zeitlichen Messfensters. Je mehr die Kalibrationslinie fluktuiert, desto länger muss diese Zeitachse gewählt werden, bei der die Drift überprüft werden kann. Sollte sich die Energieinstabilität im Langzeitversuch auf die Schwankungen der Ablationsfilme zueinander reduzieren, d.h. auf ein  $\sigma = 17$  meV (1 ppm), so steigt Auflösung mit jedem Monat  $m$  dann mit  $\frac{\Delta Pos}{\sigma} = \frac{0,6 \text{ ppm} \cdot m}{1 \text{ ppm}} = 0,6 \cdot m$ , also gerade proportional zu der



Anzahl der verstrichenen Monate. Nach 2 Monaten berühren sich die Messwerte also gerade noch mit ihren Fehlerbalken. Häufiger die Stabilität zu überprüfen ist also bei dieser Stabilität der Kalibrationslinie nicht sinnvoll. 2 Monate entsprechen grob der Dauer eines Tritiummessruns. Zur Kontrolle einer konstanten elektronischen Drift bringt ein synchrones Messen einer Kalibrationslinie keine Verbesserung in einem Zeitfenster, welches kleiner als 2 Monate ist. Bei einer Abweichung von einem linearen Verhalten der Drift hingegen, wird eine synchrone Messung wichtig. Eine Fluktuation könnte ab 1,5 ppm mit einer Kalibrationsquelle innerhalb eines Tritiummessruns aufgedeckt werden.

Zur Überprüfung der Langzeitdrift des Spannungsteilers fanden vier Messperioden am Mainzer Neutrinomassenspektrometer statt:

- Phase I : Februar/März 2006
- Phase II: Mai 2006
- Phase III: Jan/Feb. 2007
- Phase IV: März/April + Juni 2007

Aus diesen Messphasen sollen nun Aussagen über das Langzeitdriftverhalten des HV-Systems gewonnen werden. Eine Überprüfung einer Langzeitdrift und ein gleichzeitiges Prototypstesten mit verschiedenen Einstellungen sind allerdings an sich kontraproduktiv.

Für ideal stabile Bedingungen würde man versuchen, ein kontinuierliches Vakuum von weniger als  $5 \cdot 10^{-10}$  mbar ( $\hat{=} 10^{-11}$  mbar über dem Substrat) außerhalb des Kühlfingers zu erreichen. Man würde auch die Temperaturen für die Messbedingungen möglichst stabil halten: Substrattemperatur  $\approx 28$  K, Kühlkappentemperatur  $\approx 16$  K und Kapillartemperatur  $\approx 100$  K sollten nicht unterschritten werden, um keine Gase zu speichern, und auch nicht sporadisch überschritten werden, wobei jedesmal die Restgaszusammensetzung und -menge gestört werden kann.

Man muss sich entscheiden zwischen der Reduktion auf eine Quellpräparationsmethode, oder dem Vorteil der Nutzung der Redundanz aus mehreren Präparationsmethoden, die aber den Nachteil zusätzlicher Instabilitäten mit sich führen: bei Heizer gereinigten Filmen bleibt die Temperatur des Substratbereichs nicht konstant, bei Preplating-Filmen wird die Substratumgebung mit zusätzlicher Gasmenge belastet. Diese Messungen votieren für einen alleinigen Gebrauch von ablationsgereinigten Substraten ohne Krypton-Zwischenschicht.

Die Positionierung der Quelle muss genauer bekannt, leichter und exakter modifizierbar sein als während dieser Messungen. Ein Vorschlag zur kapazitiven Bestimmung der Position wurde gemacht [Jb], bzw. eine Benutzung einer hinreichend kleinen Blende im Falle des Monitorspektrometers. Am allerbesten wäre es, die Bewegung der Quelle ganz zu unterbinden, wenn es möglich wäre, einen optischen Zugang zum Substrat für Ellipsometrie und Ablation bei hinreichend großem Magnetfeld zu erreichen. Ansonsten könnte man das Monitorspektrometer regelmäßig mit der Quelle durchscannen, um so jeweils das Positionsmaximum zu bestimmen.

Eine Modifikation der Magnetfeldkonfiguration würde man natürlich nicht vornehmen und bestehende Felder mit Magnetfeldsonden und an ihren Spulenströmen überwachen.

Rigide Spannungsbereichswechsel würde man in einer Phase der Überwachung der Stabilität der K32-Konversionselektronen umgehen. Andererseits ist es aber überaus ratsam weitere Informationen über den Zustand von Quelle und Teilerverhältnis aus anderen Linien des  $^{83m}\text{Kr}$ -Spektrums zu gewinnen (s. a. Ausblick). Hier muss ein ausgewogenes Verhältnis beider sich widersprechender Forderungen gefunden werden.

Unter Aussparung einer zweiten Spannungsüberwachungsmethode, wie sie durch einen zweiten Spannungsteiler oder eine zweite Kalibrationsquelle gegeben wären, ist die Zuweisung einer Fluktuation auf den Verursacher schwierig.

Es konnten in den vorausgehenden Kapiteln einige Fluktuationsursachen außerhalb der Quelle an Nebenerscheinungen festgemacht werden:

- Dejustage führt zu einer Veränderung des Zählratenverhältnisses der Detektorsegmente 1 und 2
- Veränderung der Erdfeldkonfigurationsspulen verändert ebenfalls das Zählratenverhältnis der Detektorsegmente 1 zu 2. Eine zusätzliche Verkippung der elektrischen und magnetischen Felder in der Analysierebene werden möglich.
- Messfehler des Spannungsteilers korrelieren mit Positionssprüngen der Konversionslinien, die weit über die Spezifikationen der Spannungsversorgung hinausgehen.

Es ist wohl möglich Effekte, die nicht von der Quelle herrühren, aufzuzeigen, sie nachträglich aus den Daten zu korrigieren, ist aber schwierig.

Auch die Präparationstechnik wurde variiert. In der ersten Messphase wurde eine zuvor gesammelte Menge  $^{83m}\text{Kr}$  auf einmal ins System eingelassen und die Zufuhr im Anschluss gestoppt. In späteren Phasen wurde diese Zufuhr nicht unterbrochen und ein kontinuierliches Auffrieren von  $^{83m}\text{Kr}$  praktiziert und auf diese Weise die statistische Genauigkeit gesteigert.

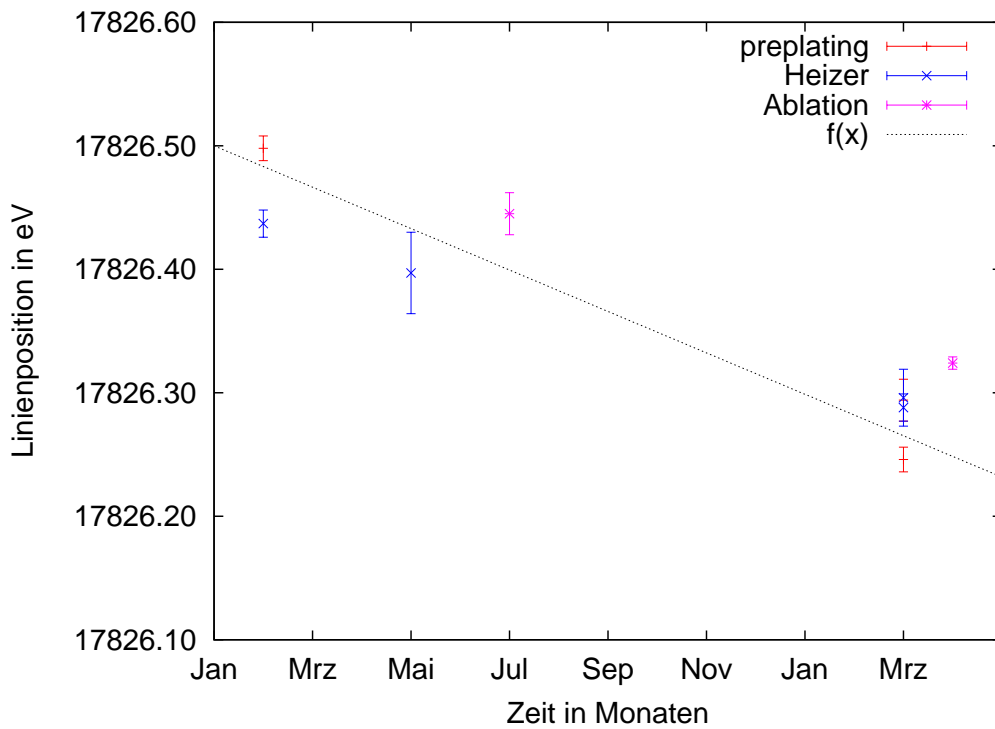
Die Messphasen waren geprägt von unterschiedlichen Fragestellungen: Transmissionsfunktion (s. [Thu08]), Spannungsabhängigkeit des HV-Teilers, Erhöhung der Auflösung des Spektrometers, Suche nach Zählrate<sup>51</sup>, verschiedene Substratreinigungstechniken, unterschiedliche Vakuumbedingungen, unterschiedliche Substrattemperaturen, Änderung der Kapillardüse und Dejustage der Quelle im Flussschlauch.

Will man also einen Langzeittest der Drift des Spannungsteilers bzw. der Linienposition mit den bisherigen Daten anführen, muss klar sein, dass die Werte hinter den Möglichkeiten des Teiler-Kalibrationsquellenkonzepts zurückbleiben.

---

<sup>51</sup>Diese wurde im Anschluss an diese Messungen in Münster erfolgreich fortgeführt [Hil07], [Smo08] [Zbo10] und dabei auf eine mangelnde  $^{83m}\text{Kr}$ -Emanation des Rubidiums zurückgeführt.

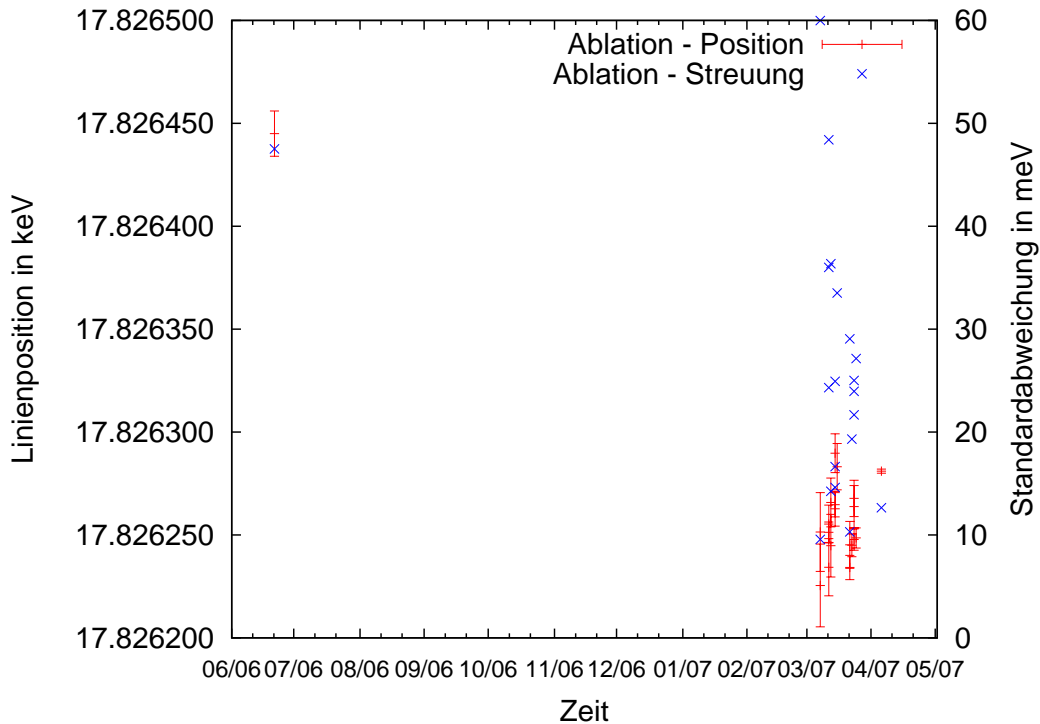
Alle Filmtypen zeigen nichtsdestotrotz ein Absinken der Linienposition, d.h. sie deuten auf ein Ansteigen der Teilerwertes (s. Abb. 6.64). In der Abbildung 6.64 ergab ein Geradenfit eine zeitliche Drift von  $17(2)$  meV/Monat, d.h.  $0,95$  ppm/Monat. Wendet man die Erdfeldkorrektur mit an, so ergibt sich eine mittlere Drift von  $12$  meV/Monat ( $0,67$  ppm/Monat). Jede Filmpräparationsmethode im Einzelnen zeigt ein leicht unterschiedliches Verhalten. Welche Driften sich aus der einzelnen Präparationsmethoden ergeben, soll im folgenden erst einzeln dargelegt werden, zum Abschluss wird dann noch einmal ein gemeinsamer Mittelwert angegeben.



**Abbildung 6.64:** Der Jahresüberblick aller Filme zeigt eine deutliche Verschiebung der Linienposition zu niedrigeren Position. Der eingezeichnete Geradenfit ergab eine zeitliche Drift von  $17(2)$  meV/Monat ( $0,95$  ppm/Monat).

### 6.5.1 Ablation

Die zeitliche Entwicklung der Ablationsfilme zeigt eine deutliche Abnahme der gemessenen Elektronenenergie (s. Abb. 6.65): von 17826,445(21) eV vom Juli 2006<sup>52</sup> hinzu 17826,256(5)eV im April 2007. Ihre Differenzen werden tabellarisch aufgetragen. Dazu kommt eine Erdfeldkompensationsshift von +69(38) meV für die 2007er April Daten.



**Abbildung 6.65:** Die zeitliche Entwicklung der Ablationsfilme zeigt eine deutliche Abnahme der gemessenen Elektronenenergie: von 17826,445(17) meV vom Juli 2006 hinzu 17826,256(1) Juni 2007. Es wurde alle gemessenen Filme berücksichtigt unter Ausschluss der Daten mit HV-Instabilitäten. Dargestellt sind die Fehler, die sich für die Mittelwerte der einzelnen Filme ergeben. Diese unterscheiden sich von den Fehlern, die für die Berechnungen der Driften angenommen wurden.

Es ergibt sich also eine zeitliche Drift des Spannungsteilers von  $0,7 \pm 0,3$  ppm/Monat aus den Ablationsfilmen. Die Unsicherheit dieser Größe ist einerseits dominiert von der geringen Anzahl an Messungen 2006, andererseits von der zusätzlichen Veränderung durch die Erdfeldkompensationsänderung. Unberücksichtigt blieb ein möglicher relativer Justagefehler zwischen 2006 und jedem der beiden Messwerte aus 2007. Nimmt man eine weitere Unsicherheit hierfür an von 50 meV erhöht sich die Fehlerangabe auf 0,4 ppm an.

Würde man mit einer Quelle von 17 meV Stabilität 20 Filme präparieren, was innerhalb einer Woche gut möglich ist, und vermessen, erhielte man eine statistische

<sup>52</sup>nur eine gemessene Quelle, es wird deshalb eine Unsicherheit in der Größe der Fluktuationsbreite der 2007er Daten angenommen.

Zeit	Position in eV	$\frac{\text{Diff.zuPos.}(Juli06)}{\text{Zeitintervall}}$ <sup>a</sup> in $\frac{\text{meV}}{\text{Monat}}$ ; $\frac{\text{ppm}}{\text{Monat}}$	mit Erdfeldkorrektur -69(38) meV in $\frac{\text{meV}}{\text{Monat}}$ ; $\frac{\text{ppm}}{\text{Monat}}$
Juli 2006	17826,445(17) <sup>b</sup>	/	/
April 2007	17826,256(1)	21(8);1,2(4)	13(5);0,7(3)

<sup>a</sup>Wenn keine Erdfeldkorrektur angewendet wird, so muss eine Unsicherheit diesbezüglich eingehen. Diese Unsicherheit wird hier mit 69 meV angesetzt.

<sup>b</sup>Der Fehler wurde hier aus den Daten von 2007 abgeschätzt, da 2006 nur ein vergleichbarer Film mittels Ablation präpariert wurde.

Genauigkeit von 4 meV auf die Linienposition. Eine Drift von 0,6 ppm/Monat würde innerhalb von zwei Wochen einer Verschiebung von 5 meV entsprechen. Nach 2 Monaten ein Signal mit 5,6  $\sigma$  Abstand ergeben. Der Teilerwert wäre dann erst soweit gedriftet, dass dies 21 meV entsprechen würde.

Zur Spannungsüberwachung bei KATRIN würde man also versuchen, während der Tritiumruns etwa wöchentlich einen Ablationsfilm zu präparieren und damit die Kurzzeitfluktuationen überwachen und dann während der Messpausen etwa 20 Filme präparieren, um die Langzeitdrift zu protokollieren.

### 6.5.2 Heizergereinigte Filme

Aus den Heizer gereinigten Filmen werden nur die Filme ausgewertet, deren Substrattemperatur größer als 17 K war<sup>53</sup>, bzw. deren Verschmutzungszustand seit dem Kaltfahren laut Ellipsometrie nicht mehr als  $\Delta=1^\circ$  in der Polarisatorstellung beträgt. Ferner wurden die Filme aus dem Mai 2006 ausgeschlossen, die während den rigiden Spannungsbereichswechseln gemacht wurden, da hier keine Kontrolle über Spannungssprünge möglich ist, als auch solche mit entdeckten HV-Auslesesprüngen. Auch Quellen mit sehr schlechtem Vakuum oder mit stark geheizter Kapillare wurden nicht berücksichtigt. Bei den Daten von 2007 wurde nur die eine stark dejustierte Quelle ausgeschlossen (a. Abb. 6.66). Die Daten vor und nach der Umstellung der Erdfeldkompensationsfelder werden getrennt betrachtet.

Es ergeben sich also folgende Driften:

Im Mittel ergibt sich mit Erdfeldkorrekturen 0,6(1) ppm/Monat und ohne Erdfeldkorrektur 0,8(2) ppm/Monat für die Heizer gereinigten Filme.

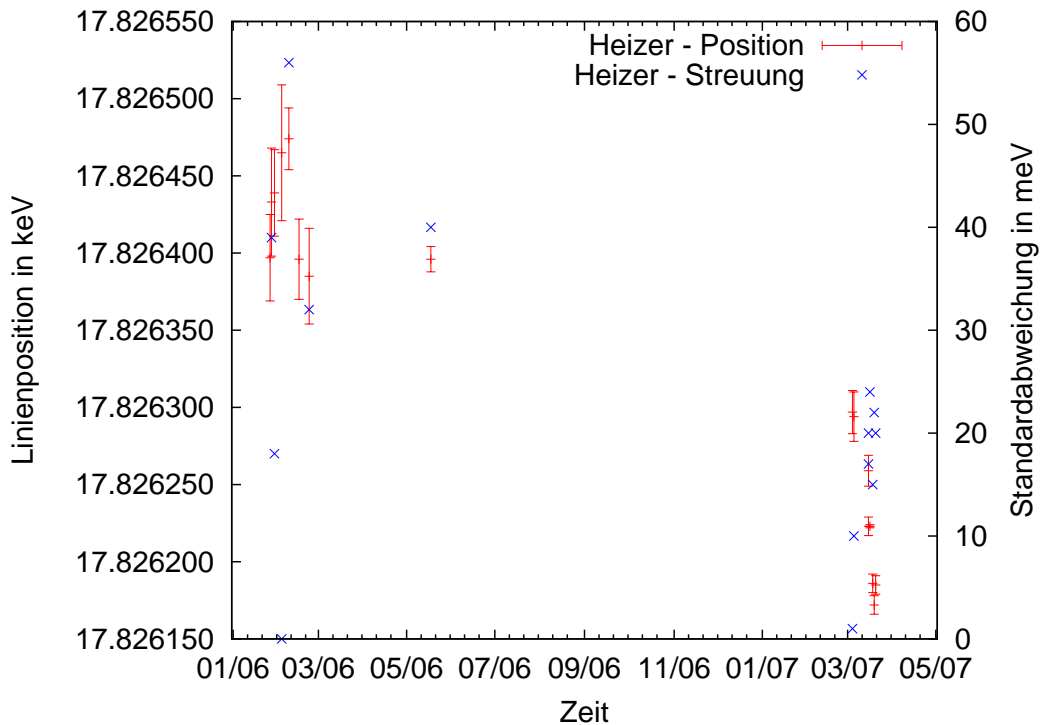
<sup>53</sup>Für zukünftige Messungen ist es sicher sinnvoll, eine höhere Substrattemperatur von ca. 25 K zu fordern.

Zeit	Position in eV	$\frac{\text{Diff.zuPos.}(Feb06)}{\text{Zeitintervall}}$	mit Erdfeldkorr. in $\frac{\text{meV}}{\text{Monat}}$ ; in $\frac{\text{ppm}}{\text{Monat}}$
		in $\frac{\text{meV}}{\text{Monat}}$ ; in $\frac{\text{ppm}}{\text{Monat}}$	
Februar 2006	17826,437(11)	/	
Mai 2006 (2,5 Monate)	17826,397(33) <sup>a</sup>	16(31);0,9(17)	/
März1 2007 (13 Monate)	17826,296(23) <sup>b</sup>	11(6);0,6(3)	/
März2 2007 (13 Monate)	17826,220(2)	17(5);1,0(3)	11(3);0,6(2)

<sup>a</sup>Da hier wieder nur eine Filmpräparation eingeht, entspricht der Fehler den Schwankungen von Film zu Film  $\sigma_{E_{meth}}$  aus der ersten Messphase 2006.

<sup>b</sup>Hier wird die Unsicherheit wieder ausgehend von 33 meV Unsicherheit angegeben, wobei die statistische Genauigkeit um  $1/\sqrt{2}$  verbessert wird, da hier zwei Filme präpariert wurden.

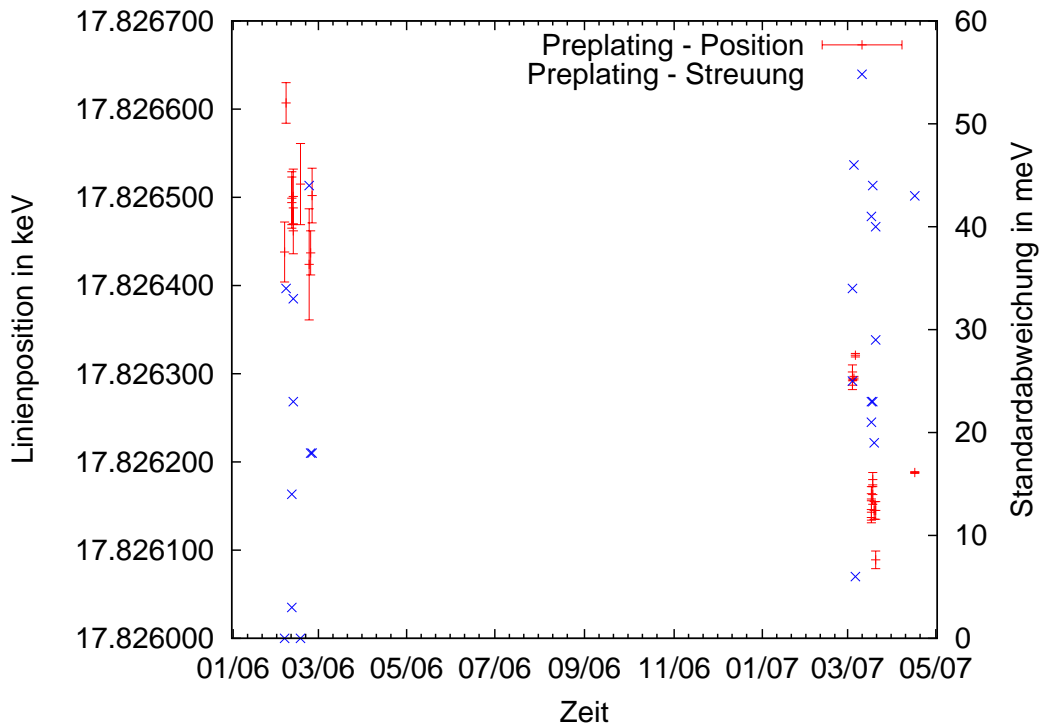
Zeit	Position in eV	$\frac{\text{Diff.zuPos.}(Mai06)}{\text{Zeitintervall}}$	mit Erdfeldkorr. 69(38) meV in $\frac{\text{meV}}{\text{Monat}}$ ; in $\frac{\text{ppm}}{\text{Monat}}$
		in $\frac{\text{meV}}{\text{Monat}}$ ; in $\frac{\text{ppm}}{\text{Monat}}$	
März1 2007 (10 Monate)	17826,296(23)	10(8);0,6(4)	/
März2 2007 (10 Monate)	17826,220(2)	18(8);1,0(5)	11(5);0,6(3)



**Abbildung 6.66:** Der Jahresüberblick der heizergereinigten Substrate zeigt eine deutliche Verschiebung der Linienposition.

### 6.5.3 Preplating Filme

Die Preplatingfilme lassen ebenfalls auf ein Ansteigen des Teilerwertes schließen. Es wurden wieder nur die Filme mit einer Substratverschmutzung von weniger als 70 Å berücksichtigt. Es wurde kein Film aus dem Mai/Juni 2006 miteingeschlossen, da Preplatingfilme bei diesem Druck bereits über wenige Stunden nicht stabil sind (s. Abb. 6.67).



**Abbildung 6.67: Der Jahresüberblick der Filme mit Kryptonzwischen-schicht** zeigt ebenfalls eine deutliche Verschiebung der Linienposition.

Zeit	Position in eV	$\frac{\text{Diff.zuPos.}(Feb06)}{\text{Zeitintervall}}$		mit Erdfeldkorr. 68(38) meV in $\frac{meV}{\text{Monat}}$ ; in $\frac{ppm}{\text{Monat}}$
		in $\frac{meV}{\text{Monat}}$	in $\frac{ppm}{\text{Monat}}$	
Februar 2006	17826,498(10)	/	/	/
März1 2007 (13 Monate)	17826,294(18) <sup>a</sup>	16(6);0,9(3)	/	/
März2 2007 (13 Monate)	17826,178(1)	25(5);1,4(3)	19(3);1,1(2)	

<sup>a</sup>Hier wird als Fehler wieder von einer Streuung der Preplatingfilme um 31 meV ausgegangen. Die Unsicherheit bei drei Filmen errechnet sich dann nach  $\frac{31}{\sqrt{3}}$  meV

Im Mittel ergibt sich 1,0(2) ppm/Monat mit Erdfeldkorrektur bzw. 1,2(2) ppm/Monat ohne Erdfeldkorrektur.

### 6.5.4 Bestimmung der zeitlichen Drift des Teilerwertes

Es ergeben sich mit Erdfeldkorrektur folgende Driften:

Präparationsmethode	Drift in ppm/Monat	Unsicherheit in ppm/Monat
Preplating	1,0	0,2
Heizer	0,6	0,1
Ablation	0,7	0,3

Preplatingfilme haben bei kontinuierlicher Kondensation die Tendenz mehr Restgas zu adsorbieren. Damit wird ihre Linienposition reduziert. Da 2006 die Kondensation nicht kontinuierlich durchgeführt wurde und 2007 hingegen doch, ist verständlich, dass die resultierende Abschätzung der Drift größer ausfällt.

Die Ablationsfilme wurden nur 2007 sehr genau mit höchster Stabilität vermessen. Die Daten aus 2006 sind aber mit leicht anderer Apparatur vorgenommen worden. Insbesondere der optische Zugang für die Ablation hatte sich verändert.

Die Heizer gereinigten Filme wurden sowohl 2006 als auch 2007 häufig gemessen, sodass hier sogar zwei Messperioden mit langem zeitlichen Abstand verglichen werden können, wobei einschränkend zu bemerken ist, dass aus der ersten Messphase im Winter 2006 nur die saubersten Filme ausgewählt wurden und aus der Mai/2006-Messphase wieder nur eine Präparation gewertet wurde. Im Jahr 2007 wurden diese Filme im Wechsel mit Ablationsfilmen präpariert. Dadurch entsteht eine Kopplung an die Ablationsfilme.

Aus genannten Gründen werden die Ergebnisse der Preplatingfilme bei der Angabe der Drift des Teilerwertes ausgeschlossen.

Bildet man den mit den jeweiligen Fehlern gewichteten Mittelwert aus den Daten aus Tabelle 6.5.4 unter Ausschluss der Preplatingfilme so erhält man:

$$\frac{1}{M} \frac{\partial M}{\partial t} = 0,61 \pm 0,09 \frac{\text{ppm}}{\text{monat}} \quad (6.63)$$

Dieser Wert kann nun mit der Teilerdrift von 2005 auf 2006 von 0,6 ppm/Monat verglichen werden. Es ist also anzunehmen, dass sich das Driftverhalten des Spannungsteilers auch im zweiten Jahr nicht stark geändert hat. Es sei aber daraufhingewiesen, dass beide Angaben lineare Interpolationen über 1 Jahr sind, die Linearität des Driftverhaltens ist damit nicht belegt. Das wird erst bei kontinuierlicher Spannungskontrolle möglich.



## Kapitel 7

# Das Konversionselektronenspektrum von adsorbiertem $^{83m}\text{Kr}$

Das Spektrum der Konversionselektronen von adsorbiertem  $^{83m}\text{Kr}$  auf HOPG wurde aufgenommen. Dabei wurden sowohl die Konversionselektronen resultierend aus dem E3-Übergang ( $E_{\Gamma} = 32151,7(5)$  [Ven06]) als auch aus dem M1/E2-Übergang ( $E_{\Gamma} = 9400(10)$  eV [Kol72], bzw.  $9405,9(8)$  eV [Pic92b]) untersucht.

Im folgenden werden zunächst die Ergebnisse der Anpassungen an die Daten tabellarisch angegeben: Amplitude, Linienbreite, Untergrund und die Position der Linie zunächst als unkorrigierter  $E_0$ -Wert (entsprechend der Gleichung (6.5)). Im Fließtext werden dann die Positionsangaben nach Gleichung (6.6) korrigiert. Abschließend werden Vergleichswerte zu gasförmigem  $^{83m}\text{Kr}$  angegeben, für die die Terme der Austrittsarbets- und Spiegelladungskorrektur hinzukommen.

Es können zwei Angaben zur Linienposition gemacht werden: Die eine beinhaltet alle Korrekturen, die nötig sind um die Energie der Konversionselektronen von adsorbiertem  $^{83m}\text{Kr}$  zu beschreiben:

$$E_{kin,ads} = q(U_{mess} - U_{offset}) \cdot K \cdot M \left( 1 + \frac{1}{M} \frac{\partial M}{\partial U} (M \cdot U_{mess} - 20kV) \right) - \partial E_{shift} + \partial E_{Erdf.} \quad (7.1)$$

oder man kann im Hinblick auf einen Vergleich der  $\Gamma$ -Energie des Kernübergangs die weiteren Terme der Austrittsarbetsdifferenz und der Spiegelladung miteinrechnen

$$E_{kin,gas} = E_{kin,ads,spec} + E_{rec,e} - E_{rec,\Gamma} - E_{spiegel} + \Delta\Phi \quad (7.2)$$

mit

$E_{rec,e}$ : Rückstoßenergie bei der Elektronenemission,

$E_{\Gamma}$ : Rückstoßenergie beim Kernübergang,

$$E_{\text{spiegel}} = (1,74 \pm 0,23) \text{ eV} \text{ und} \\ \Delta\Phi = (-0,17 \pm 0,26) \text{ eV}$$

Die entsprechende  $\gamma$ -Energie ergibt sich dann in der Summe mit der Bindungsenergie der jeweiligen Schale:

$$E_{\gamma} = E_{\text{kin,gas}} + E_{\text{bin}} \quad (7.3)$$

Der Teilerwert  $M$  des Spannungsteilers wurde nach den bei der PTB gemessenen Driftwerten [Thu08] auf 1972,48669 im April 2007 bestimmt.

Der Korrekturterm  $K$  ergibt sich aus etwa wöchentlichen Kalibrationen des Voltmeters. Die erhaltenen Daten sind im Abschnitt 9.1 des Anhangs angegeben. Für den Messzeitraum des Spektrums ergibt sich dieser zu 0,9999984(1). Die Nullpunktverschiebung liegt bei 0,00000045 V. Das Einrechnen des letzteren Wertes verändert die Messgröße um weniger als 0,9 meV und ist damit zu vernachlässigen.

Der mittlere Potentialdurchgang des Spektrometers variiert von 156 meV (9LI) bis 668 meV (32N2/3) je nach angelegter Spannung. Eine tabellierte Auflistung findet sich im Anhang (s. Tab. 9.4). Der Fehler wird mit 5 % abgeschätzt, was im höchsten Fall 33 meV sind<sup>1</sup>. Auch die Elektronrückstoßenergien variieren mit den Energien der Konversionselektronen zwischen 49 meV und 210 meV je nach Elektronenenergie und finden sich ebenfalls tabelliert im Anhang.

Die  $\Gamma$ -Rückstoßenergien von 7 meV und 2 meV respektive werden berücksichtigt, können aber bei dieser Betrachtung vernachlässigt werden.

Ausgehend von der Verschiebung der K-Linie unter Änderung der Erdfeldkorrekturfelder und den Messungen zur Variation der Quellposition wird ein Justage- und Erdfeldkorrekturfelder mit  $(3,5 \pm 2)$  ppm abgeschätzt. Die Erdfeldkorrekturpulen können durch Verkippung des magnetischen Feldes bezüglich des elektrischen Feldes die Linienposition nur erniedrigen nicht erhöhen.

Die Austrittsarbeiten sind in Gleichung (4.6) gegeben. Die Differenz der Austrittsarbeiten ergibt sich damit zu  $-0,17(26)$  eV.

Die zu erwartende Spiegelladungsschicht wurde nach Gleichung (6.38) bestimmt und liegt bei  $1,74(23)$  eV für innere Schalen (s. a. Glg. (6.44)).

Die dominierenden Unsicherheiten zur Bestimmung eines Absolutwertes zum Vergleich mit gasförmigem  $^{83m}\text{Kr}$  sind die Unsicherheiten in der Austrittsarbeitdifferenz von 260 meV und die Unsicherheit in der Größe der Spiegelladung von 230 meV. Hinzu kommt die statistische Genauigkeit des jeweiligen Fits und die Stabilitätsabschätzung aus der K-32-Linie von 1 ppm.

Gibt man also nur Unterschiede in den Bindungsenergien an, reduziert sich der Fehler auf den der Spannung und der Unsicherheit in der Linie, da die Austrittsarbeit und die Spiegelladung für nahezu alle Schalen in erster Näherung gleich sein sollte. Bei

<sup>1</sup>Durch eine zusätzliche mangelnde Justage kann diese Unsicherheit natürlich ansteigen. Für die hier aber auch betrachteten Energiedifferenzen spielt diese Unsicherheit aber keine Rolle, da für das Gros der hier vorgestellten Linien die Quelle nicht bewegt wurde.

---

genauerer Betrachtung ist eine Änderung der Spiegelladung in Abhängigkeit der Geometrie der Schale, aus der das Elektron herausgeschlagen wurde, zu erwarten. Dies gilt insbesondere für die Valenzschale [Kai80].

Die Linienaufnahmen der Linien:  $L_I$ -9,  $L_{II}$ -9,  $L_{III}$ -9,  $M_I$ 1-9,  $M_{II}$ 2-9,  $M_{III}$ -9,  $N_I$ -9,  $N_{II}$ -9,  $N_{III}$ -9,  $L_{II}$ -32,  $L_{III}$ -32 und der  $N_I$ -32 wurden mit derselben nicht bewegten Quelle gemacht, mit der auch die K-32-Linie im Wechsel über die Dauer einer Woche gemessen wurde (s. Abschnitt 6.3.1.2). Die Linienaufnahmen der  $M_{II}$ -32 und  $M_{III}$ -32 wurde mit einer separaten Quellpräparation zeitlich vor der erwähnten Wochenmessung gemacht. Eine weitere Messung der  $N_{II}/N_{III}$ -32 wurde ebenfalls mit einer separaten Quelle gemessen. Damit wurde das Spektrum zu einem Zeitpunkt gemessen, in dem die Stabilität der Quelle durch die Stabilität der K-Linie belegt ist. Desweiteren ist die Amplitude bis auf den radioaktiven Zerfall des Mutterisotops  $^{83}\text{Rb}$  stabil. Damit sind Vergleiche der einzelnen Intensitäten gut möglich und erlauben Rückschlüsse auf die Verhältnisse der Konversionskoeffizienten von  $^{83m}\text{Kr}$ .

## 7.1 Der 9.4 keV-Übergang

### 7.1.1 Das Spektrum der Konversionselektronen des 9 keV-Übergangs

Die  $L_{II}$ -9-Linie wurde als einzige Linie mit einem Voigtprofil angefitet (s. Abb. 7.1). Eine reine Lorentzform kann diese Daten im Gegensatz zu den übrigen nicht gut genug beschreiben ( $\chi^2/\text{dof}=3,29$ ). Dies liegt daran, dass diese Linie mit 7,5 keV in der Nähe der Nachweisgrenze des Si-Detektors liegt und dort das Rauschen bereits sehr ausgeprägt ist. Nichtsdestotrotz konnte die Linie mit einem zusätzlichen Gaussanteil gut beschrieben werden. Die Elektronen wurden für diese Messung nicht wie in [Pic92b] durch ein zusätzliches Potential an der Quelle beschleunigt. Ein wesentlicher Unterschied zu den Ergebnissen von [Pic92b] ist die erheblich geringere Breite der Linie von 3,72(19) eV. Dieser neue Wert ist aber in guter Übereinstimmung mit [Cam01].

Die  $M_{II}$ -9- und  $M_{III}$ -9-Linien wurden mit zwei Lorentzprofilen gleichzeitig gemeinsam angefitet (s. Abb. 7.1). Da die  $M_{II}$ -9-Linie energetisch sehr nahe an der  $M_{III}$ -9-Linie liegt, wurde Alternativ die  $M_{II}$ -9-Linie mit einem zusätzlichen linearen Untergrund gefittet, der die Transmissionsverluste der  $M_{III}$ -9-Linie annähern soll (s. Abb. 7.1).

$$E_{kin,ads} = (9184,353 \pm 0,148_{fit} \pm 0,017_{stab} \pm 0,031_{\Delta U_{korrr}})eV \quad (7.4)$$

$$E_{kin,gas} = (9182,503 \pm 0,152_{vorige} \pm 0,35_{spiegel,\varphi})eV \quad (7.5)$$

Die Linienposition liegt damit um -267 meV bei niedrigerer Energie mit einem  $\chi^2/\text{dof}=\frac{26,63}{25-3}=1,21$ . Für die Breite der Linie ergab dieser Fit 1,0(3) eV.

Es ist bekannt, dass die  $N_{II}$ -9- und  $N_{III}$ -9-Linien nur 650 meV voneinander entfernt liegen [Moo58]. Ihre Formen entsprechen bei gasförmigem Krypton annähernd Deltadistributionen, da die Löcher in den Valenzschalen nicht von anderen Hüllenelektronen aufgefüllt werden können<sup>2</sup>. Lässt man also zwei Deltadistributionen zu und fixiert die Amplitude der höherenergetischen Linie, während die Amplitude der niederenergetischeren Linie( $N_{II}$ ) relativ dazu freigelassen wurde, sowie den Abstand beider zueinander auf 0,65 eV so ergeben sich die in Tabelle 7.1 angegebenen Fitwerte.

---

<sup>2</sup>Durch den Kontakt zum Substrat im Falle von adsorbiertem Krypton treten allerdings weitere Füllmechanismen hinzu, die dann zu einer messbaren Linienbreite führen können.

Niveau	Amplitude in 1/s	Position in eV	$\sigma_l$ in eV	Untergrund in 1/s	$E_{ads}$ in eV $E_{gas}$ in eV	$\chi^2/\text{dof}$
2s <sub>1/2</sub> L <sub>I</sub>	112 ± 1.0	7481.108 ± 0.035	3.72 ± 0.19 *	19.9 ± 0.3	7481,050 ± 0,034 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,026 $\Delta U_{korr}$ 7479,187 ± 0,046 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{32,81}{27-5} = 1,49$
2p <sub>1/2</sub> L <sub>II</sub>	13.2 ± 0.4	7674.702 ± 0.056	1.29 ± 0.14	20.3 ± 0.1	7674,646 ± 0,055 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,027 $\Delta U_{korr}$ 7672,784 ± 0,063 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{29,27}{27-4} = 1,27$
2p <sub>3/2</sub> L <sub>III</sub>	10,4 ± 0,2	7727,452 ± 0,063	1,58 ± 0,16	15,1 ± 0,1	7727,397 ± 0,063 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,027 $\Delta U_{korr}$ 7725,536 ± 0,71 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{30,12}{35-4} = 0,97$
3s <sub>1/2</sub> M <sub>I</sub>	105.9 ± 0.6	9113,540 ± 0,034	3,123 ± 0,004	167,2 ± 0,3	9113,472 ± 0,034 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,031 $\Delta U_{korr}$ 9111,621 ± 0,049 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{32,44}{35-4} = 1,05$
3p <sub>1/2</sub> M <sub>II</sub> **	2.8 ± 0.3	9184.687 ± 0.148	0.63 ± 0.39	6,2 ± 0.2	9184,620 ± 0,148 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,031 $\Delta U_{korr}$ 9182,770 ± 0,152 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{26,70}{39-7} = 0,83$
3p <sub>3/2</sub> M <sub>III</sub>	2.8 ± 0.2	9192.292 ± 0.142	1.1 ± 0.4	3.41 ± 0.08	9192,225 ± 0,139 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,031 $\Delta U_{korr}$ 9190,375 ± 0,144 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{26,70}{39-7} = 0,83$
4s <sub>1/2</sub> N <sub>I</sub>	6.3 ± 0.2	9378.982 ± 0,006	0,288 ± 0,093	19,8 ± 0,1	9378,910 ± 0,006 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,032 $\Delta U_{korr}$ 9377,061 ± 0,046 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{46,72}{44-4} = 1,2$
4p <sub>1/2</sub> N <sub>II</sub>	0,44 ± 0,12	9391,472 ± 0,126	0***	19,4 ± 0,4	9391,400 ± 0,179 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,032 $\Delta U_{korr}$ 9389,551 ± 0,183 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub> )	$\frac{30,83}{44-3} = 0,75$
4p <sub>3/2</sub> N <sub>III</sub>	0,4 fest	9392,122 ± 0,126	0***	19,0 ± 0,1	9392,050 ± 0,179 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,032 $\Delta U_{korr}$ 9390,201 ± 0,183 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{30,83}{44-3} = 0,75$

**Tabelle 7.1:**

\*: Hier wurde ein Voigtprofil angefitet. Der Gaussanteil der Breite betrug:  $(1.381 \pm 0.141)\text{eV}$ .

\*\* : Hier wurde alternativ ein Fit mit einem linearen Untergrund angefitet, der die ausklingende Amplitude der MIII-Linie simulieren sollte.

\*\*\*: Hier wurde eine  $\delta$ -Distribution angenommen.

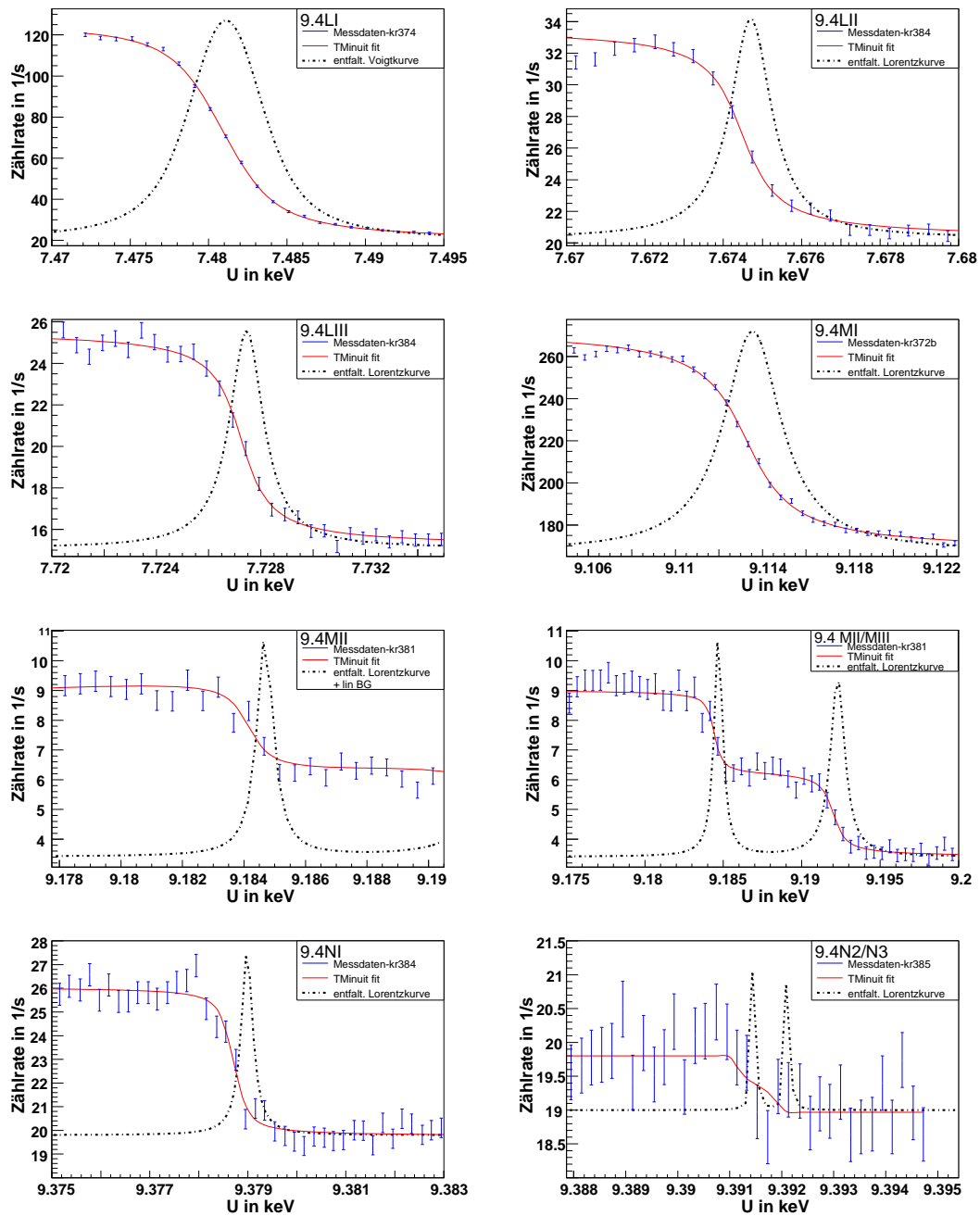


Abbildung 7.1: Das gemessene Spektrum des M1/E2-Überganges ist hier aufgetragen. Es wurden nur die Rohdaten ohne weitere Korrekturen hierfür verwendet. Bei den N2/N3-Linien wurden zur Darstellung der Position schmale Lorentzkurven eingezeichnet. Die Daten wurden aber mit Deltadistributionen angepasst.

### 7.1.2 Bestimmung 9.4 keV Übergangsenergie

Nach Glg. (7.3) lässt sich aus dem gemessenen Spektrum der Konversionselektronen die  $\gamma$ -Energie des zugrundeliegenden M1/E2-Kernübergangs bestimmen. Zunächst wird überprüft, ob es niveauabhängige Linienpositionsverschiebungen durch die Adsorption gibt. Dazu werden alle bekannten linienabhängigen Korrekturterme eingerechnet und die Bindungsenergien für gasförmiges  $^{83m}\text{Kr}$  aufaddiert. Die Korrektur der Spiegelladung und der Austrittsarbeitdifferenz wird also zunächst nicht ergänzt. Zur Bestimmung der Übergangsenergie  $E_\gamma$  müssen die Rückstoßterme aber zusätzlich berücksichtigt werden.

$$E_{\gamma,ads} = E_{kin,ads,rec} + E_{bin,gas} \quad (7.6)$$

$$E_{kin,ads,rec} = E_{kin,ads} + E_{rec,e} - E_{rec,\gamma} \quad (7.7)$$

Diese Werte<sup>3</sup> werden in Tabelle 7.2 zusammengetragen. Der Wert  $E_{\gamma,ads}$  kann noch nicht direkt verglichen werden mit der Kernübergangsenergie.

Niveau	$E_{kin,ads,rec}$ in eV	$\Delta E_{kin,ads,rec}$ in eV	$E_{bin,lit}$ in eV	$\Delta E_{bin,lit}$ in eV	$E_{\gamma,ads}$ in eV	$\Delta E_{\gamma,ads}$ in eV
L <sub>I</sub>	7481,097	0,046	1921,400	0,800	9402,497	0,801
L <sub>I</sub>	7481,097	0,046	1924,600	0,300	9405,697	0,304
L <sub>II</sub>	7674,694	0,063	1731,910	0,030	9406,604	0,070
L <sub>III</sub>	7727,446	0,071	1679,210	0,030	9406,656	0,077
M <sub>I</sub>	9113,531	0,049	292,800	0,300	9406,331	0,304
M <sub>II</sub>	9184,680	0,152	222,300	0,100	9406,980	0,182
M <sub>II</sub> *	9184,412	0,152	222,300	0,100	9406,713	0,182
M <sub>III</sub>	9192,285	0,144	214,350	0,090	9406,635	0,170
N <sub>I</sub>	9378,970	0,046	27,400	0,200	9406,989	0,205
N <sub>II</sub>	9391,339	0,183	14,650	0,000	9406,111	0,183
N <sub>III</sub>	9392,111	0,183	14,000	0,000	9406,713	0,183

**Tabelle 7.2: Tabelle der kondensierten Konversionselektronenenergien und Bindungsenergien des 9keV-Übergangs**

\*: bezeichnet der Fit mit linearem Untergrundterm

<sup>3</sup>Eine vollständigere Auflistung der Literaturbindungsenergien mit Referenzen befindet sich im Anhang.

Die Literaturwerte bzgl. der Bindungsenergie der  $L_I$  variieren stark (s. [Sie69] und [Dra04]). Mit den vorliegenden Daten kann der Wert  $E_{\text{Bin},L_I}=1924,6(3)$  aus [Dra04] sicher ausgeschlossen werden<sup>4</sup>.

Der Mittelwert für die Energie des 9keV-Kernübergangs noch ohne die Spiegelladungs- und Austrittsarbeitskorrektur ergibt sich zu

$$E_{\gamma,ads,9} = (9406,623 \pm 0,047)eV \quad (7.8)$$

mit einem  $\chi^2/\text{dof}=\frac{4,13}{5-1}=1,08$ , wenn man nur über die L- und M-Linien<sup>5</sup> mittelt (s. Abb. 7.2). Eine Datenanpassung mit einer Konstanten ist also möglich. Damit ist keine niveauabhängige Abweichung der Linienposition im Unterschied zu den gleichen Linien bei gasförmigem  $^{83m}\text{Kr}$  aufgetreten. Die zusätzlichen Korrekturterme (Spiegelladung und Austrittsarbeitskorrektur) können also bei dieser Genauigkeit der Messung für beide Schalen gleichermaßen angewendet werden.

Mit diesem Wert lässt sich die  $L_I$ -Bindungsenergie angeben:

$$E_{\text{Bin},L_I} = 9406,627(47) - 7481,097(46)eV \quad (7.9)$$

$$= 1925,53 \pm 0,065 \pm 0,34eV \quad (7.10)$$

Aus den Differenzen der  $M_I$ -9 zu  $M_{II}$ -9 und  $M_{III}$ -9 einerseits und der Differenz der K-32 zu den  $L_{II}$ -32 und  $L_{III}$ -32 lässt sich die Unsicherheit durch eine mögliche Schalenabhängigkeit auf 0,34 eV abschätzen.

Mit Glg. (7.8) und zusätzlicher Spiegelladungskorrektur und Austrittsarbeitskorrektur ergibt sich für den Kernübergang:

$$E_{\gamma,9} = (9404,71 \pm 0,35)eV \quad (7.11)$$

Dieser Wert kann nun mit den Werten 9400(10) eV[Kol72] und 9405,9(8) eV [Pic92b] verglichen werden. Eine separate Bestimmung der Energie dieses Kernübergangs analog zur Bestimmung Energie des 32-keV-Übergangs [Ven06] ist aktuell in Arbeit [Ven08].

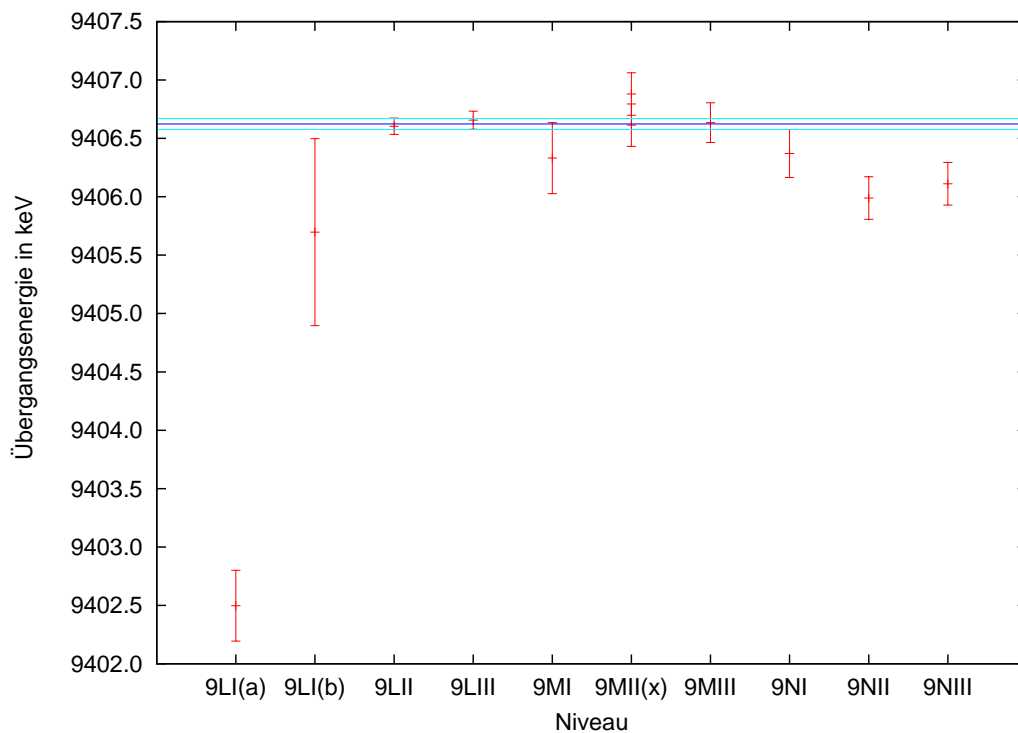
Eine weitere Bestimmung der 9 keV-Übergangsenergie unabhängig von den gemachten Korrekturen zu Austrittsarbeit und Spiegelladung sind möglich, indem man sie ausgehend von [Ven06] und der hier bestimmten Energiedifferenz zwischen 32 keV- und 9 keV-Übergang ableitet. Diese Rechnungen finden sich im Abschnitt 7.2.2 im Anschluss an die Dokumentation der Bestimmung der Energie des 32 keV-Übergangs.

Die  $N_I$ -9,  $N_{II}$ -9 und  $N_{III}$ -9-Linien ergeben im Mittel  $E_{\gamma,9}$ -Werte von  $(0,48 \pm 0,12)$  eV weniger als die anderen gemessenen Linien. Bei einer Reduktion der Spiegelladung um 80 % für die Valenzschalen  $N_{II}$  und  $N_{III}$  wie in [Kai80] würden die N-Linien um 0,33 eV relativ zu den anderen Linien verschoben und damit näher an die übrigen Linien heranreichen.

<sup>4</sup>Die Autoren von [Dra04] räumen selbst Zweifel an dem experimentellen Wert ein [Dra08].

<sup>5</sup>Es wurde der mit \* bezeichnete Wert benutzt.





**Abbildung 7.2: Stabilität der 9 keV Übergangsenergie** zeigt eine deutliche Abweichung für die Energie die  $L_I$ -9 Linie, wenn (a) der Wert 1921,4 aus [Dra04] benutzt wird. Unter Verwendung des älteren Wertes aus [Sie69] (b) verringert sich die Abweichung vom Mittelwert der übrigen Linien. Klammert man den ersten Wert aus und bildet das gewichtete Mittel über die Daten der L- und M-Linien, so ergibt sich ein Wert von  $(9406,62 \pm 0,05)$  eV, welcher hier in dunkelblau mit hellblauen Fehlerbalken eingezeichnet ist.

## 7.2 Der 32 keV-Übergang

### 7.2.1 Das Spektrum der Konversionselektronen des 32 keV-Übergangs

Nahezu alle Linien dieses E3-Übergangs<sup>6</sup> mit Energien oberhalb von 30 keV konnten mit einem Voigtprofil am besten beschrieben werden. Dies erklärt sich mit dem zunehmenden Rauschen der Hochspannung in diesem Bereich.

Die  $M_{II}$ -32- und  $M_{III}$ -32-Linien wurden zunächst mit zwei Voigtprofilen gemeinsam angefitet (s. Abb. 7.3). Da die  $M_{II}$ -Linie energetisch aber sehr nahe an der  $M_{III}$ -Linie liegt, wurde Alternativ die  $M_{II}$ -Linie wieder wie auch schon Abschnitt 7.1.1 mit einem zusätzlichen linearen Untergrund angepasst, der die Transmissionsverluste der  $M_{III}$ -Linie annähern soll (s. Abb. 7.3).

$$E_{kin,ads} = 31930,898 \pm 0,017_{fit} \pm 0,017_{stab} \pm 0,334_{\Delta U_{korrr}} eV \quad (7.12)$$

$$E_{kin,gas} = 31929,190 \pm 0,335_{vorige} \pm 0,35_{spiegel,\varphi} \quad (7.13)$$

Die Breite der Linie lag damit bei 1,7(1) eV.

Die  $N_{II}$ -32- und  $N_{III}$ -32-Linien müssten zunächst mit zwei Deltadistributionen, d.h. der reinen Transmissionsfunktion angefitet werden. Das Signal der Linien ist aber verrauscht. Deshalb wurden zunächst zwei Gaußkurven mit festem bekanntem Abstand angefitet. Deren Breiten lagen aber in der Größenordnung des Abstands der beiden Linien, sodass nur der Fit einer einzelnen gemeinsamen Gaußkurve sinnvoll ist (s. Abb. 7.3).

---

<sup>6</sup>In [Ram06] wird eine geringe Beimischung eines M4-Übergangs mit einem Anteil von  $\delta^2=1,4(37) \cdot 10^{-4}$  erwähnt, die in [Nuc01] unerwähnt bleibt und hier deshalb auch nicht weiter berücksichtigt wird.

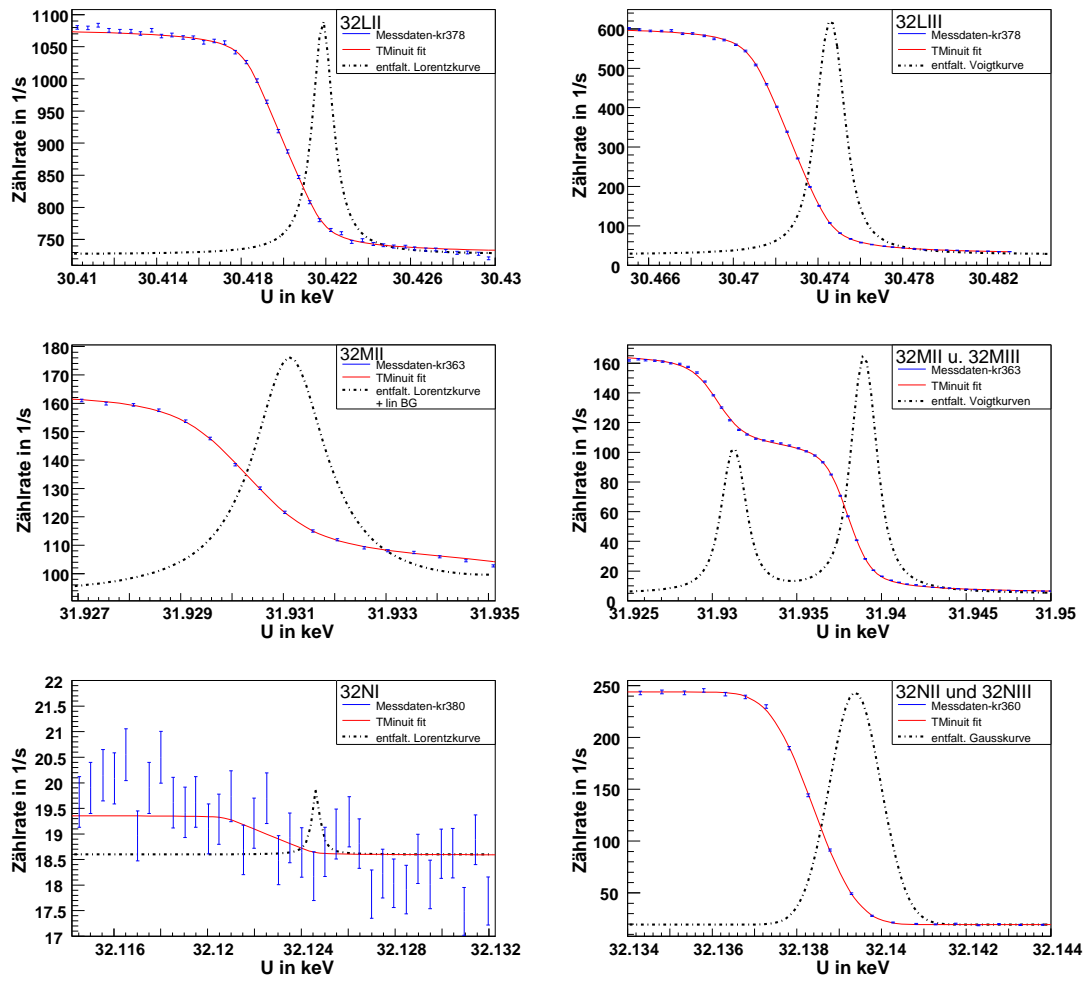


Abbildung 7.3: Das gemessene Spektrum des E3-Übergang ist hier aufgetragen. Es wurden nur die Rohdaten ohne weitere Korrekturen hierfür verwendet.

Niveau	Amplitude in 1/s	Position in eV	$\sigma_l$ in eV	$\sigma_g$ in eV	$E_{ads}$ in eV $E_{gas}$ in eV	$\chi^2/\text{dof}$
1s <sub>1/2</sub> K	440 ± 15	17826,309 ± 0,001	2,70 ± 0,06		17826,181 ± 0,001 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,057 $\Delta U_{korr}$ 17824,381 ± 0,059 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{30,06}{24-4} = 1,25$
2p <sub>1/2</sub> L <sub>II</sub>	353 ± 3	30421,856 ± 0,020	1,165 ± 0,069		30421,639 ± 0,018 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,094 $\Delta U_{korr}$ 30419,921 ± 0,097 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub> )	$\frac{19,33}{23-4} = 1,02$
2p <sub>3/2</sub> L <sub>III</sub>	587 ± 2	30474,575 ± 0,006	1,108 ± 0,013	0,388 ± 0,0001	30474,357 ± 0,006 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,094 $\Delta U_{korr}$ 30472,639 ± 0,096 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub>	$\frac{21,99}{26-5} = 1,05$
3p <sub>1/2</sub> M <sub>II</sub>	58,6 ± 0,5	31931,274 ± 0,006	1,230 ± 0,061	0,403 ± 0,027	31931,046 ± 0,006 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,334 $\Delta U_{korr}$ 31929,338 ± 0,335 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub> )	$\frac{46,10}{50-8} = 1,10$
3p <sub>3/2</sub> M <sub>III</sub>	105 ± 0,3	31938,960 ± 0,006	1,322 ± 0,018	0,403 ± 0,027	31938,731 ± 0,006 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,334 $\Delta U_{korr}$ 31937,023 ± 0,335 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub> )	$\frac{46,10}{50-8} = 1,10$
4s <sub>1/2</sub> N <sub>I</sub>	0,8 ± 0,4	32124,625 ± 0,963	0,4 ± fest		32124,176 ± 0,963 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,099 $\Delta U_{korr}$ 32122,688 ± 0,968 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub> )	$\frac{11,21}{14-4} = 1,12$
4p N <sub>II/III</sub>	224 ± 1	32139,377 ± 0,010		0,608 ± 0,013	32139,147 ± 0,010 <sub>fit</sub> ± 0,017 <sub>stab</sub> ± 0,099 $\Delta U_{korr}$ 32136,750 ± 0,101 <sub>vorige</sub> ± 0,35 <sub>spiegel,φ</sub> )	$\frac{27,95}{22-4} = 1,55$

Tabelle 7.3

### 7.2.2 Bestimmung der 32 keV-Übergangsenergie

Zunächst wird auch hier, wie schon in Abschnitt 7.1.2, überprüft, ob niveaubabhängige Linienpositionsverschiebungen durch die Adsorption auftreten. Dazu wird wieder der Wert von  $E_{\gamma,ads}$  (s. Glg. (7.7)) bestimmt.

Niveau	$E_{kin,ads,rec}$ in eV	$\Delta E_{kin,ads,rec}$ in meV	$E_{bin,lit}$ in eV	$\Delta E_{bin,lit}$ in meV	$E_{\gamma,ads}$ in eV	$\Delta E_{\gamma,ads}$ in meV
K	17826,291	59	14327,26	40	32153,55	71
L <sub>II</sub>	30421,831	97	1731,91	30	32153,74	102
L <sub>III</sub>	30474,549	96	1679,21	30	32153,76	101
M <sub>II</sub>	31931,248	335	222,2	100	32153,45	350
M <sub>III</sub>	31938,933	335	214,35	90	32153,28	347
N <sub>II/III</sub>	32139,350	101	14,08		32153,43	101

**Tabelle 7.4:** Tabelle der Konversionselektronen und Bindungsenergien des 32keV-Übergangs

Der Mittelwert für die Energie des  $E_{\gamma,ads}$  des Übergangs noch ohne der Spiegelladungs- und Austrittsarbeitskorrektur ergibt sich zu

$$E_{\gamma,ads,32} = 32153,65 \pm 0,05eV \quad (7.14)$$

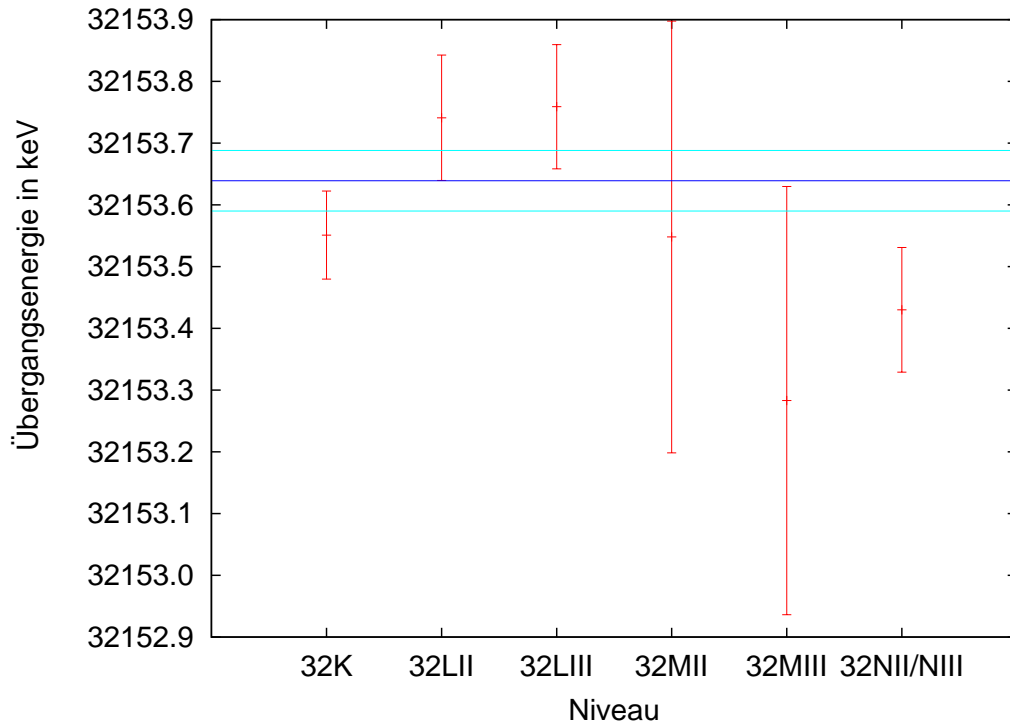
mit einem  $\chi^2/dof = \frac{3,92}{3-1} = 1,96$ , wenn man nur über die K-, L und M-Linien mittelt (s. Abb. 7.3). Auch hier ergibt sich also wieder die Möglichkeit, die inneren Schalen (K, L und M) bzgl. weiterer Korrekturterme, die den Unterschied zwischen gasförmigem und adsorbiertem  $^{83m}\text{Kr}$  ausgleichen, gleich zu behandeln<sup>7</sup>. Mit zusätzlicher Spiegelladungs- und Austrittsarbeitskorrektur ergibt sich

$$E_{\gamma,32} = 32151,74 \pm 0,35eV \quad (7.15)$$

Dieser Wert kann mit dem Wert von 32151,7(5) eV [Ven06] verglichen werden. Es zeigt sich das beide Werte in guter Übereinstimmung sind. Dies bestätigt die angewendeten Korrekturen bezüglich der Austrittsarbeit und der Spiegelladung.

<sup>7</sup>Die hier angegebenen Daten für die M-Linien wurden nicht mit derselben Quellpräparation gemessen wie die anderen angegeben Linien. Ein Vergleich einer K-Linienposition, die mit der gleichen Quelle wie die M-Linien gemessen wurde, zeigte nur eine Abweichung von 1 meV gegenüber der K-Linie, die mit der Quelle gemessen wurde, mit der die übrigen Linien gemessen wurden. Die M-Linien wurden aber fälschlicherweise mit einem zusätzlichen Teilerverhältnis, welches im Fluke-Voltmeter eingespeichert war, gemessen. Der genaue Wert konnte im Nachhinein nicht eindeutig ermittelt werden und erklärt den stark vergrößerten Fehler in der Positionsangabe.

Die Valenzschalen  $N_{II}/N_{III}$  ergeben einen Wert von  $32153,4(1)$  eV ohne Austritts- und Spiegelladungskorrektur. Dieser Wert liegt etwas niedriger als der, der sich aus den Konversionselektronen der Schalen K, L und M ergibt. In [Kai80] und [Pic92b] wurde eine Reduktion der Spiegelladung für die Valenzschale auf nur 80% angenommen. Wendet man also nur 80% der Spiegelladungskorrektur auf die  $N_{II}/N_{III}$ -Schalen an, so ergibt sich eine Erhöhung der  $\gamma$ -Energie, die aus den N-Linien bestimmt würden, um eben  $(0,33 \pm 0,2)$  eV.



**Abbildung 7.4:** Die Stabilität des 32 keV Übergangsenergie ist hier aufgetragen. Austritts- und Spiegelladungskorrektur sind nicht miteingerechnet. Die eingetragene Linie entspricht dem gewichteten Mittel über die K-, L- und M-Linien.

### 7.2.3 Die Differenz der Übergangsenergien

Wenn man mögliche schalenabhängige Unterschiede der Bindungsenergien für die inneren Schalen K, L und M vernachlässigt, dann kann man die Differenz der Energien der beiden Kernübergänge aufgrund der vorliegenden Daten (s. Glg. (7.8) und Glg. (7.14)) angeben zu:

$$E_{\gamma,32} - E_{\gamma,9} = 22747,027 \pm 0,069 \text{ eV} \quad (7.16)$$

Unabhängig von hier angeführten Korrekturen der Spiegelladung und Austrittsarbeit lässt sich damit ausgehend von [Ven06] die Energie  $E_\gamma$  des zweiten Kernübergangs angeben zu:

$$E_{\gamma,9} = 32151,7(5) \text{ eV} - 22747,03(7) \text{ eV} \quad (7.17)$$

$$= 9404,7(5) \text{ eV} \quad (7.18)$$

Zusätzlich kann man die Differenz der beiden Kernübergänge auch durch den direkten Vergleich der Energie der Konversionselektronen nach Schalen getrennt angeben (s. Tab. 7.5).

Orbital	$E_{kin,ads,rec,32}$ in eV	$\Delta E_{kin,ads,rec,32}$ in meV	$E_{kin,ads,rec,9}$ in eV	$\Delta E_{kin,ads,rec,9}$ in meV	Differenz in eV
L <sub>II</sub>	7674,694	63	30421,831	97	22747,137 ± 0,116
L <sub>III</sub>	7727,446	71	30474,549	96	22747,103 ± 0,119

**Tabelle 7.5:** Eine Tabelle der Differenz der Energie der Kernübergänge für einzelne Orbitale ist hier angegeben.

Der Mittelwert aus beiden aus Tab. 7.5 ergibt in Übereinstimmung mit Glg. (7.16):

$$\Delta E_\gamma = 22747,121 \pm 0,083 \text{ eV} \quad (7.19)$$

Die Energie des M1/E2-Übergangs beläuft sich damit auf:

$$E_{\gamma,9} = 32151,7(5) - 22747,121(83) \text{ eV} \quad (7.20)$$

$$= 9404,6(5) \text{ eV} \quad (7.21)$$

### 7.3 Breiten der Konversionselektronenlinien

In [Cam01] werden die in der folgenden Tabelle (7.6) aufgelisteten theoretischen Breiten der Konversionslinien angegeben. Die Breite der Linie ist bedingt durch die Rate des Füllens des entstandenen Lochs. Strahlungs-, Auger- und Costers-Kronig-Übergänge (Übergänge innerhalb derselben Hauptschale) werden als mögliche Füllprozesse angenommen. Die Breiten decken sich mit den theoretischen Annahmen im Rahmen ihrer Unsicherheiten. Ausnahmen stellen ansatzweise die MII-Linien dar, die sich auf dem Sockel der höherenergetischen MIII-Linie im integrierenden Spektrometer befinden. Lässt man einen linearen Untergrundanteil im Fit zu, um dem Transmissionsverlustspektrum der M<sub>III</sub>-Linie gerecht zu werden, erhält man eine Breite von  $1,7 \pm 0,14$  eV für den 32 keV Übergang und  $1,0 \pm 0,3$  eV für den 9 keV-Übergang, im Mittel also  $(1,57 \pm 0,13)$  eV, was sich mit den theoretischen Werten deckt.

Name	Breite in eV (32keV)	Breite in eV (9keV)	mittlere Breite in eV diese Arbeit	Breite in eV aus Ref.[Cam01]
K	2,70±0,06		2,70±0,06	2,71±0,27
LI		3,72±0,19	3,72±0,19	3,75±0,94
LII	1,03±0,07	1,29±0,14	1,08±0,06	1,25±0,38
LIII	1,086±0,019	1,58±0,16	1,1±0,02	1,19±0,36
MI		3,12±0,004	3,12±0,004	3,5±0,35
MII*	1,230±0,061	0,63±0,38	1,57±0,13	1,6±0,16
MIII	1,322±0,018	1,11±0,36	1,28 ±0,02	1,1 ±0,11
NI		0,29±0,09	0,29±0,09	0,4 ±0,04

**Tabelle 7.6: Die Breiten der Konversionselektronenlinien** sind hier für beide Übergänge getrennt angegeben. Daraus wurde ein gemeinsamer Mittelwert berechnet (zu dem mit \* markierten Wert s.a. Fließtext).

## 7.4 Relative Intensitäten Konversionselektronenlinien

Da die vorgestellten Messungen zum Spektrum der Konversionselektronen im Großteil mit einer Quelle nach einer einzelnen Quellpräparation durchgeführt wurden<sup>8</sup>, ist es möglich die relative Stärke der einzelnen Linien miteinander zu vergleichen. Dabei muss erwähnt werden, dass die hier aufgeführten Intensitäten nur den Beiträgen der jeweiligen Hauptlinien entnommen sind und weitere Beiträge der shake-up und shake-off Prozesse unberücksichtigt bleiben.

Der 32 keV-Übergang ist ein reiner E3 Übergang<sup>9</sup> mit einem Konversionskoeffizienten für die Summe der Elektronenlinien von

$$\alpha(32keV) = \frac{I_e}{E_{\gamma|32}} = 2035 \quad (7.22)$$

Der 9 keV-Übergang ist eine Kombination aus einem M1- und einem E2-Übergang. Bei Übergängen mit gemischter Multipolarität wird das Mischungsverhältnis mit  $\delta$  angegeben, wobei theoretisch gilt:

$$\alpha(9keV) = \frac{\alpha(M1) + \delta^2\alpha(E2)}{1 + \delta^2} \quad (7.23)$$

Für den hier vorliegenden Fall gilt [Nuc01]:

$$\delta = 0,0129(3) \quad (7.24)$$

<sup>8</sup>Auflistung am Beginn dieses Kapitels

<sup>9</sup>In [Ram06] wird dieser Übergang als eine Mischung aus E3 und M4 Übergang behandelt, wobei ein  $\delta^2=1,410^{-4}$  angegeben wird.



angegeben, und einem Konversionskoeffizient [Nuc01] für die Summe der Elektronenlinien von

$$\alpha(9keV) = \frac{I_e}{I_{\gamma|9}} = 17,09(5) \quad (7.25)$$

Die Unsicherheiten der gemessenen Intensitäten des E3-Übergangs dieser Arbeit werden aufgrund leicht veränderter Auswertefenster und abklingender Amplitude über die Dauer einer Woche auf 10 % abgeschätzt. Die Unsicherheiten des zweiten Überganges (M1/E2) sind stärker aufgrund des Detektorrauschens. Es werden hierfür ebenfalls zunächst 10% angesetzt. Dem Detektorrauschen wird hier zusätzlich durch eine pauschale Unsicherheit von 5 1/s Rechnung getragen Die Amplitudenverhältnisse der Übergänge werden mit den Konversionskoeffizienten aus [Rös78] verglichen, indem die Linien einmal auf die Intensität der  $L_I$ -Linie und das andere Mal auf die Intensität des K-Linie normiert werden. Die einzelnen Werte der Konversionskoeffizienten für die einzelnen Schalen sind aus [Rös78] entnommen und in den Tabellen 7.4 und 7.4 angegeben.

Name	mitt. rel. Intensität in $s^{-110}$	rel. Intensität bzgl. LI-Linie	rel. Intensität bzgl. L1-Linie [Rös78]	Konversionskoeff. aus Ref.[Rös78]
LI	112±14	1	1	11,9±0,6
LII	13±5	0,12±0,05	0,113±0,008	1,35±0,07
LIII	10±5	0,09±0,05	0,087±0,006	1,04±0,05
MI	106±12	0,95±0,16	0,17±0,01	1,98±0,1
MII	3±5	0,03±0,05	0,018±0,001	0,22±0,01
MIII	3±5	0,03±0,05	0,014±0,001	0,168±0,008
MIV			$3 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-5}$	0,003±0,0002
MV			$2 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-4}$	0,003±0,0002
NI	6±5	0,056±0,05	0,020±0,001	0,25±0,01
NII	2±5	0,01±0,05	$0,0017 \pm 1 \cdot 10^{-4}$	0,020±0,001
NIII	1±5	0,004±0,05	$0,0012 \pm 1 \cdot 10^{-4}$	0,015±0,001
NII/NIII	2±5	0,02±0,05	$0,0042 \pm 1 \cdot 10^{-4}$	0,035±0,001
gesamt	256±23	2,3±0,4	1,4±0,1	16,99±0,85

Weitere Werte für Amplitudenverhältnisse innerhalb des 32keV-Überganges sind in Tabelle 7.7 eingetragen, die des 9 keV-Überganges finden sich in Tabelle 7.8. Sie können mit den experimentellen Werten aus [Kol72] und den theoretischen nach [Rös78] verglichen werden. Insbesondere für das Verhältnis  $\frac{M_{23}}{M1}$  ergibt sich hier trotz

der groben Fehlerabschätzung ein Wert in deutlich besserer Übereinstimmung mit den theoretisch Berechnungen als in [Kol72].

Name	mitt. rel. Intensität in $\text{s}^{-1}$	rel. Intensität bzgl. K-Linie	rel. Intensität bzgl. K-Linie[Rös78]	Konversionskoeff. aus Ref.[Rös78]
K	440±44	1	1	476±24
LI			0,067±0,003	31,7±1,6
LII	353±35	0,8 ±0,1	1,04±0,08	494±25
LIII	587±59	1,3±0,2	1,6±0,2	765±38
MI			0,011±0,001	5,2±0,3
MII	59±6	(0,13±0,02)	0,177±0,009	84±4
MIII	105±11	(0,24±0,03)	0,273±0,014	130±7
NII/NIII	(19)	0,04±0,01	0,04±0,001	19,1±1
gesamt	1563± 82	3,5±0,4	4,2±0,9	2011±101

Name	Amplitudenverhältnisse bei E3	theo. Werte aus [Ram06]			exp. Werte aus
		RHFS <sup>a</sup>	BTNTR <sup>b</sup>	RNIT <sup>c</sup>	[Kol72]
K/L	0,47±0,06	0,3950	0,3727	0,3863	0,36(1)
LII/LIII	0,60±0,01	0,6391	0,6381	0,6383	0,77(3)
L/M	4,7±0,6	5,908	5,926	5,946	5,6(1)
N/M	0,11±0,01	...	0,0734	0,0733	0,087(6)

<sup>a</sup>Relativistische Hartree-Fock Methode

<sup>b</sup>Dirac-Fock-Methode: Austauschsterme der Wechselwirkung zwischen den gebundenen Elektronen und zwischen den gebundenen Elektronen und dem emittierten Elektron sind berücksichtigt, das entstehende Lcoh bleibt aber unberücksichtigt.

<sup>c</sup>wie BTNR, aber mit zusätzlicher Berücksichtigung des Schalenlochs

**Tabelle 7.7:** Amplitudenverhältnisses beim 32 keV-Übergang

Name	Amplitudenverhältnisse bei M1/E2	Werte aus [Kol72]	Werte nach [Rös78]
$\frac{M_{23}}{M_1}$	0,06±0,07	2,19±0,013	0,196±0,012
$\frac{N}{M}$	0,08±0,08	0,163±0,024	0,120±0,007

**Tabelle 7.8:** Amplitudenverhältnisses beim 9 keV-Übergang

## Kapitel 8

# Zusammenfassung und Ausblick

Neutrinos nehmen aufgrund ihrer speziellen Eigenschaften eine Sonderrolle unter den Elementarteilchen ein: Ihre Wechselwirkungsfähigkeit ist extrem gering, ihre Anzahl aber groß, sie sind frei von elektromagnetischer Ladung und haben eine so kleine Ruhemasse, dass diese lange Zeit mit Masselosigkeit gleichgesetzt wurde. Für wechselwirkungsarme Teilchen sind größte Distanzen und Energiedichten noch transparent. Damit sind Neutrinos optimale Sonden zur Erörterung astrophysikalischer Fragestellungen. Sehr leichte Teilchen beeinflussen darüberhinaus die Strukturbildung im Universum, bei der sie als heiße dunkle Materie zur Reduktion kleinerer Materieballungen führen und so die Entwicklung der Struktur des Universums von der Zeit der Entkopplung des kosmischen Mikrowellenhintergrundes bis zur heutigen Galaxienverteilung mit erklären helfen. Daneben erlaubt ihre elektromagnetische Ladungsfreiheit, dass die Unterscheidung zwischen Teilchen und Antiteilchen bei Neutrinos als einzigen Elementarteilchen redundant sein könnte. Gerade die absolute Massenskala des Neutrinos kann dabei als Schlüssel zur Erweiterung des Standardmodells angesehen werden.

Das KATRIN (KARlsruhe TRITium Neutrino)-Experiment wird die Neutrinomasse anhand des Tritium- $\beta$ -Zerfalls erforschen. Dazu wird wie auch bei den direkten Vorgängerexperimenten in Mainz und in Troitsk ein MAC-E-Filter eingesetzt. Dies ist ein elektrostatischer Energiefilter, bei dem zusätzlich ein inhomogenes Magnetfeld eingesetzt wird, um den Elektronenimplus an der Filterschwelle zu kollimieren und den Elektronenfluss von der Quelle zum Detektor zu leiten. Basierend auf den Erfahrungen und Erkenntnissen aus Mainz und Troitsk wird eine Sensitivität auf die Neutrinomasse von 0,2 eV angestrebt. Um dieses Ziel zu erreichen, ist es nötig, nahezu jeden experimentellen Parameter deutlich gegenüber den Vorgängerexperimenten zu verbessern und so die systematischen Unsicherheiten zu begrenzen.

Ein wesentlicher Beitrag zur systematischen Unsicherheit des KATRIN-Experiments ist die Stabilität der Hochspannung, die das Niveau des Analysierpotentials des KATRIN-Hauptspektrometers definiert. Bei gleichmäßiger Verteilung der systematischen Unsicherheiten auf die verschiedenen erwarteten und identifizierten Ursachen, ergibt sich als Anforderung an die Stabilität der Hochspannung ein Grenzwert von 60 meV. Das entspricht bei 18 keV ( $\approx$ Endpunkt des Tritium- $\beta$ -Spektrums) einer Präzision von 3ppm.

Die Hochspannung wird zunächst von einem Präzisionsspannungsteiler [Thu08] überwacht. Ein solch aufwendiges Präzisionsexperiment wie KATRIN kann aber nicht auskommen, ohne eine so wichtige Messgröße wie die Größe des Analysierpotentials mit Redundanz zu bestimmen. Eine Langzeitstabilität über mehrere Jahre Messzeit im ppm Bereich kann bei keinem Präzisionshochspannungsteiler vorausgesetzt werden. Ein geringes wenn auch relevantes zeitliches Driftverhalten von 0,6 ppm/Monat wurde bei dem verwendeten Spannungsteiler im ersten Jahr nach seiner Fertigstellung mit Präzisionsmessungen bei der PTB-Braunschweig nachgewiesen. Darüberhinaus ist weder belegt, ob dieses Driftverhalten linear mit der Zeit ist, noch ob kurzzeitige Irregularitäten zu erwarten sind. Deshalb muss die Stabilität des Spannungsteilers zusätzlich überwacht werden.

Um Driften der Hochspannungsmessung in Abhängigkeit von der Zeit zu identifizieren, werden bei KATRIN Kalibrationsquellen eingesetzt, deren Stabilität daher rührt, dass die Energie der emittierten Elektronen an einen atomaren und/oder nuklearen Übergang gekoppelt ist. Das kann in Form von Photoelektronen aber auch in Form von Konversionselektronen geschehen. Diese Kalibrationsquellen werden alternativ zur Tritiumquelle an das Hauptspektrometer und permanent synchron an ein zweites Spektrometer (Monitorspektrometer) mit identischer Hochspannung angeschlossen und dort ausgemessen. Das zeitliche Verhalten dieser an sich stabilen Quellen kann dann zur Anzeige der Drift der Hochspannungsmessung genutzt werden.

Hier wurde eine Kalibrationselektronenquelle aufgebaut und getestet, die auf einem Konversionsprozess beruht und die so ihre Stabilität aus der Anregungsenergie eines nuklearen isomeren Übergangs in den Grundzustand und der elektrischen Bindungsenergie des emittierten Hüllenelektrons bezieht. K-32-Konversionselektronen von  $^{83m}\text{Kr}$  haben eine Energie von 17,83 keV und eine Breite von 2,7 eV. Damit sind sie bestens geeignet, die Hochspannung zu kontrollieren, die für die Messung des Endpunktbereichs des Tritium- $\beta$ -Spektrums nötig ist.

Die Halbwertszeit von  $^{83m}\text{Kr}$  beträgt nur 1,83 h. Damit kann keine dauerhafte Kontamination des Spektrometers durch unbeabsichtigtes Handeln herbeigeführt werden. Die im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute kondensierte  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle kann damit nicht nur im Monitorspektrometer sondern auch im Hauptstrahlengang des KATRIN-Aufbaus eingesetzt werden.

Die kurze Halbwertszeit und darüberhinaus die Flüchtigkeit des Edelgases macht es andererseits aber nötig, die  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome zu lokalisieren. Im Rahmen dieser Dissertation wurde dazu eine Quelle aufgebaut, bei der  $^{83m}\text{Kr}$  auf eine Graphitunterlage des Typs HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) aufkondensiert wurde, und am Mainzer Neutrinomassenspektrometer zusammen mit dem neuen KATRIN-Spannungsteiler auf ihrer beider Stabilität hin getestet wurde. Die besondere Schwierigkeit bei einer kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle ist einerseits die Reproduzierbarkeit der einzelnen Filmpräparationen, die die Stabilität der K-32-Konversionselektronen gewährleisten muss, andererseits das schwer aufzulösende Problem, wie im Falle einer aufgetretenen Instabilität darüber zu urteilen ist, was die Ursache der Instabilität war, wenn Kalibrationsquelle und Messgerät gleichzeitig ohne sichere externe Referenz vorliegen.

Von seiten der Quelle sind folgende Ursachen für eine Instabilität zu erwarten: Im Laufe der Zeit können sich die Austrittsarbeit des Substrats und die Bindungsenergien, insbesondere die des geladenen Endzustands des Konversionsprozesses, ändern. Beides geschieht im wesentlichen durch die Präsenz von Fremdmaterial, d.h. im wesentlichen durch die Adsorption von Restgas. Deshalb wurde ein Vakuumsystem mit  $p \approx 1 \cdot 10^{-11}$  mbar über einem HOPG-Substrat aufgebaut, welches mittels Laserablation vor jeder Filmpräparation gereinigt wurde. Damit konnte eine Stabilisierung der Substratbelegung erreicht werden, die mit Ellipsometrie überwacht wurde. Die Temperatur des Substrats wurde bis kurz unter die Desorptionsschwelle von  $^{83m}\text{Kr}$  gebracht als Kompromiss zwischen dem Erhalt von Zählrate und der Minimierung von Restgasadsorption.

Eine Überwachung der Stabilität der Retardierungsspannung des KATRIN-Spektrometers fußt aber nicht alleine auf eine stabile Kalibrationsquelle und eine stabile Spannungsmessung. Ebenso wichtig sind die Bedingungen der Spektrometer. Die Einflüsse des Erdmagnetfeldes, bzw. dessen Korrekturen durch magnetische Querfelder, die Justage der Quelle und des Detektors im Spektrometer sowie mögliche Veränderungen der Austrittsarbeit der Filterelektroden können die gemessene Elektronenenergie einer an sich stabilen Kalibrationsquelle oder Hochspannungsmessung modifizieren.

Eine Zuweisung der Ursache der Instabilität auf Quelländerungen, Spektrometernmodifikationen oder Hochspannungsfluktuationen oder -driften, ist nur durch Redundanzen, d.h. weitere Kalibrationsquellen und zusätzliche Spannungsteiler, möglich. Darüberhinaus können Instabilitäten auch aus den gewonnenen und gewinnbaren Daten direkt extrahiert werden:

- Quelländerungen können mittels Ellipsometrie direkt überwacht werden, Konversionselektronen aus der Valenzschale können Aufschluss über die chemische Umgebung geben, Auger-Elektronen Auskunft über die Bindungsenergie des geladenen Endzustands.
- Die Spektrometereigenschaften können durch Überwachung der Spulenströme, Messungen des Erdmagnetfeldes und mechanische Positionierung von Quelle und Detektor präzise definiert und stabilisiert werden. Änderungen der Austrittsarbeit des Spektrometers müssten separat überwacht werden.
- Unsicherheiten in der Hochspannung können minimiert werden, indem die Hochspannungsversorgung nicht während ihrer Einlaufzeit benutzt wird und auch die Stabilität nicht durch rigide Wechsel des Spannungsbereiches belastet wird. Hinweise auf Instabilitäten können aus den Abweichungen der einzelnen Spannungsmesswerte abgeleitet werden. Darüberhinaus wäre es möglich, die Spannung mit einem zweiten Spannungsteiler zu kontrollieren [Hoc08]. Selbst diese redundante Messung bleibt aber unempfindlich auf mögliche Einflüsse der Verkabelung und Kontakte.

Außer den intrinsischen Kontrollen der drei Standbeine (Hochspannung, Spektrometer und Kalibrationsquelle(n)) können diese Komponenten sich nur gegenseitig

überwachen. Nur wenn sich aus dem korrekten Zusammenspiel eine stabile Linienposition oder zumindest eine identifizierte und charakterisierte Variation der Linienposition der Kalibrationselektronen ergibt, können die Daten zur Bestimmung der Neutrinomasse genutzt werden.

Zur Herstellung möglichst stabiler reproduzierbarer Quellbedingungen wurden drei Filmpräparationsmethoden getestet.

- Reinigung des Substrats mit Laserablation
- Reinigung des Substrats durch Heizen des Substratbereiches mit einem Widerstandsheizger
- Aufkondensieren einer Unterlage aus stabilem Krypton unter die zerfallenden  $^{83m}\text{Kr}$ -Atome (Preplating)

Zur Kontrolle der Langzeitdrift des Teilerwertes des Spannungsteilers kann aufgrund der Daten dieser Arbeit die Filmpräparationsmethode vorgeschlagen werden, bei der das HOPG-Substrat mittels Laserablation gereinigt und  $^{83m}\text{Kr}$  kontinuierlich über die Dauer einer Woche aufkondensiert wurde und der Substratzustand mittels Ellipsometrie überwacht wurde. 19 Filme, die auf diese Weise präpariert wurden, zeigten eine Verteilung der mittleren Linienposition mit einer Breite von 17 meV ( $\hat{=}1$  ppm) widerspruchsfrei über die Dauer von 38 Tagen. Bei Filmen, die nach diesem Messblock auf gleiche Weise präpariert wurden und nicht die gleiche Präzision erreichten, konnte auf Unstimmigkeiten von Hochspannung und Spektrometereigenschaften hingewiesen werden. Die zeitliche Drift des Spannungsteilerwertes wurde mit diesen  $^{83m}\text{Kr}$ -Messungen auf 0,61(9) ppm/Monat bestimmt, wobei ein zeitlicher Hebelarm von einem Jahr benutzt wurde.

Filme, die zur Reinigung mit dem Widerstandsheizger nur auf bis zu 100 K gebracht wurden, zeigten eine zunehmende Verschmutzung des Substrats, welche gleichzeitig zu einer Verschiebung der Kalibrationslinie führte. Wenn zudem eine Unterlage aus stabilem Krypton präpariert wurde, so wurde dieses Verhalten verstärkt, da kondensierte Edelgase die Adsorption von Restgas zusätzlich befördern. Dieses Verhalten ist bekannt und wird bei Kryoadsorptionspumpen technisch eingesetzt.

Die Kontrolle der Langzeitdrift erlaubt nur ein minimales Driftverhalten, eine mangelnde Kurzzeitstabilität in Form einer breiten ebenmäßigen Fluktuation kann über eine hinreichend große Zeitachse ausgeglichen werden. Wesentlich strenger sind die Anforderungen an eine Kalibrationsquelle, wenn sie die Kurzzeitfluktuationen innerhalb einer Tritiummessphase aufzeigen soll. Hierfür ist eine Quelle mit einer hinreichend schmalen Breite der Verteilung der Linienpositionen nötig, um Fluktuationen oder Abweichung von der Linearität der Drift des Teilerwertes auf 3 ppm genau nachweisen zu können. Die Verteilung der einzelnen Spektrumaufnahmen nach einer Filmpräparation hatte im Mittel eine Standardabweichung von  $(27 \pm 12)$  meV ( $\hat{=}1,5$  ppm)<sup>1</sup>. Eine mögliche Fluktuation über die Dauer einer Spektrumaufnahme von 20 Minuten von 3 ppm könnte dann mit  $2 \sigma$  detektiert werden.

<sup>1</sup>Dieser Wert entspricht der statistischen Unsicherheit der einzelnen Messungen. Bei besserer Statistik pro Messpunkt, was im hiesigen Fall nur über ein längeres Messzeitfenster erreicht werden

Zusammenfassend zeigten die hier vorgestellten Messungen, dass mit einer kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Kalibrationsquelle die Stabilität der Retardierungsspannungsmessung mit dem Präzisionsspannungsteiler des KATRIN-Experiments am Monitorspektrometer sowohl auf eine Langzeitdrift als auch auf kurzzeitige Fluktuationen mit der nötigen Genauigkeit überwacht werden kann. Darüber hinaus ist eine Kontrolle der Stabilität des effektiven Analysierpotentials des Hauptspektrometers inklusive dessen Austrittsarbeit mit einer kondensierten  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle im KATRIN-Hauptstrahlengang in Tritiummesspausen möglich.

Neben den Messungen der K-32-Konversionselektronen wurden auch die übrigen Konversionselektronenlinien gemessen, die eine ausreichende Intensität haben. Damit wurde die Kontrolle der Spannungsmessung auf den Bereich von 7 kV bis 31 kV erweitert. Diese Messungen wurden größtenteils mit einer Quellpräparation durchgeführt, wobei alternierend die Stabilität der Quelle mit der Position der K-32-Konversionselektronen auf  $\sigma = 17$  meV überprüft wurde.

Unter Hinzunahme von Literaturwerten der Bindungsenergien der einzelnen Schalen, konnte überprüft werden, ob sich die Energien der Konversionselektronen durch die Adsorption zueinander unterschiedlich verändern. Mit Ausnahme der Valenzschalen, deren Konversionselektronen eine leicht geringere Energie aufwiesen, zeigte sich keine signifikante relative Verschiebung für die K-, L- und M- Schalen. Damit konnten ausgehend von diesen Schalen die Energien des Kernübergangs bestimmt werden. Dies geschah einmal durch eine zusätzliche Abschätzung der Einflüsse von Austrittsarbeitdifferenzen zwischen Substrat und Filterelektrode und der zusätzlichen Bindungsenergie des geladenen Endzustands des Konversionsprozesses. Die  $E_{\gamma,32}$ -Messung ist in genauer Übereinstimmung mit der genauesten aktuellen  $E_{\gamma,32}$ -Messung: 32151,7(5) eV [Ven06]. Die Bestimmung der Energie  $E_{\gamma,9}$  ist in Einklang mit älteren Messungen: 9405,9(8) eV [Pic92b] und 9400(10) [Kol72]. Eine genauere Bestimmung dieses Wertes in Analogie zu [Ven06] ist in Vorbereitung [Ven08]

$$E_{\gamma,32} = 32151,74(35)eV \quad (8.1)$$

$$E_{\gamma,9} = 9404,71(35)eV \quad (8.2)$$

Alternativ dazu konnte die Übergangsenergie der zweiten Relaxationsstufe ausgehend von der extern bestimmten Übergangsenergie des ersten Übergangs 32151,7(5) eV [Ven06] über die Differenz der Bindungsenergien bestimmt werden.

$$E_{\gamma,9} = 32151,7(5)eV - 22747,03(7)eV \quad (8.3)$$

$$= 9404,7(5)eV \quad (8.4)$$

Ferner konnten die Bindungsenergien der einzelnen Schalen überprüft werden. Gerade bei den Werten zur Bindungsenergie der  $L_I$ -Schale gibt es sehr unterschiedliche

---

konnte, ergaben sich für eine Messung mit kontinuierlicher Kondensation über den Zeitraum einer Woche eine Breite der statistisch auf 5 meV bekannten Linienspektren von nur 14 meV ( $\hat{=}$  0,8 ppm). Damit wäre die Stabilität auf die Präzision der Spannungsmessung von 1 ppm zurückgeführt.

Literaturwerte. Für diese Bindungsenergie ergab sich ein von den Literaturwerten [Dra04] abweichendes Bild, sodass der neuere Wert ausgeschlossen werden kann.

$$E_{bin,L_I} = 9406,627(47)eV - 7481,097(46)eV \quad (8.5)$$

$$= 1925,53(36)eV \quad (8.6)$$

Zusätzlich konnten die Intensitäten der einzelnen Hauptlinien unter Ausschluss der Nebenlinien von shake-up/off-Elektronen miteinander verglichen werden, und so Aussagen über die Verhältnisse der Konversionkoeffizienten gewonnen werden.

Abschließend sollen neben der schon diskutierten apparativen Verbesserung zur Steigerung der Stabilität der  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle auch noch weitere physikalische Messungen vorgeschlagen werden, die für die Überprüfung der Stabilität der Quelle genutzt werden können:

**KLL-Auger-Peak** Jede Augerlinie im Anschluss an eine K-Konversionsemission, stellt einen Übergang von einfach geladenem Anfangszustand zu einem zweifach geladenen Endzustand dar. Damit müsste sich darin der in Kapitel 4 beschriebene Spiegelladungseffekt dreimal stärker bemerkbar machen (s. a. [Man85]). Eine gleichzeitige oder zeitnahe Überprüfung von K-Linie und KLL-Auger-Peak könnte eine Schwankung der Linienposition aufgrund einer Änderung des Substrats aufdecken. Schwankt die Augerlinie nicht dreimal stärker als die K-Linie, und bleibt die Energiedistanz stattdessen zwischen beiden konstant, kann die Spiegelladung als Grund für die Schwankung ausgeschlossen werden.

**Valenzschale** Das Kryptonspektrum zeigt zwei sehr nah benachbarte ( $\Delta E=0,65$  eV) Valenzschalenlinien. Bei direkter Nachbarschaft von Kryptonatomen, zeigte sich eine deutliche Verbreiterung dieser Linien, was auf eine Bänderbildung hinweisen könnte. Wenn die chemische Umgebung auf die innere K-Schale einwirken kann, so müsste sie das verstärkt bei der N-Schale tun. Eine Überwachung von Position und Breite der N-Linien könnte Aufschluss über die Konstanz der chemischen Umgebung geben.

**Austrittsarbeit der Retardierungselektroden** Im Vorfeld der KATRIN-Messungen sollte geklärt werden, welchen Einfluss ein Vakuumeinbruch auf die Austrittsarbeit der Spektrometerelektroden haben kann. Eine gezielte Belüftung oder ein gezieltes Einlassen ausgewählter Gase würde helfen, die Instabilitäten aufgrund der Austrittsarbeit der Spektrometerelektroden abzuschätzen. Ergänzend wäre eine Messung mit Photoelektronen aus einem metallischen Quellmaterial in der Lage, die Austrittsarbeit der Filterelektrode unabhängig von der Austrittsarbeit des Quellmaterials zu messen. Bei Graphit liegt die Bindungsenergie der 1 s Schale aber bei etwa 290 eV, was den Einsatz einer Röntgenquelle erforderlich machen würde. Zwar können Austrittsarbeit und Hochspannung mit einer  $^{83m}\text{Kr}$ -Quelle gemeinsam untersucht werden, Änderungen der Austrittsarbeit müssen aber an sich nicht mit



Elektronen mit einer Energie entsprechend dem Endpunktsbereichs des Tritium- $\beta$ -Spektrums überwacht werden, sondern können auch mit niederenergetischen Elektronen, welche mit einem nachbeschleunigenden Detektor, wie er bei KATRIN zu Einsatz kommen soll, nachgewiesen werden. Darüberhinaus können stabile Kalibrationsquellen, die mit dem Hauptspektrometer gemessen werden, mit ebensolchen verglichen werden, die am Monitorspektrometer gemessen werden. Treten keine relativen Verschiebungen auf, so kann davon ausgegangen werden, dass sich die Austrittsarbeiten nicht relativ zueinander verändert haben.



## Kapitel 9

# Anhang

### 9.1 Voltmeterkalibration

Es wurde eine regelmäßige Kalibration des Flukevoltmeters an der Fluke 732A-Referenzspannungsquelle durchgeführt. Die 10 V-Ausgabewerte sowie die Nullpunktverschiebung wurde wie in [Thu08] beschrieben bestimmt und daraus ein Korrekturfaktor  $K$  berechnet. Das Digitalvoltmeter zeigt eine zeitliche Drift (laut Datenblatt: 1,4 ppm/90 Tage). In [Thu08] wurden die daraus resultierenden Korrekturfaktoren mit

$$\begin{aligned} f(x) &= a + b * x \\ a &= 0.999999722(53) \\ b &= -5.98(36) \cdot 10^{-9} \text{ Tag}^{-1} \end{aligned} \tag{9.1}$$

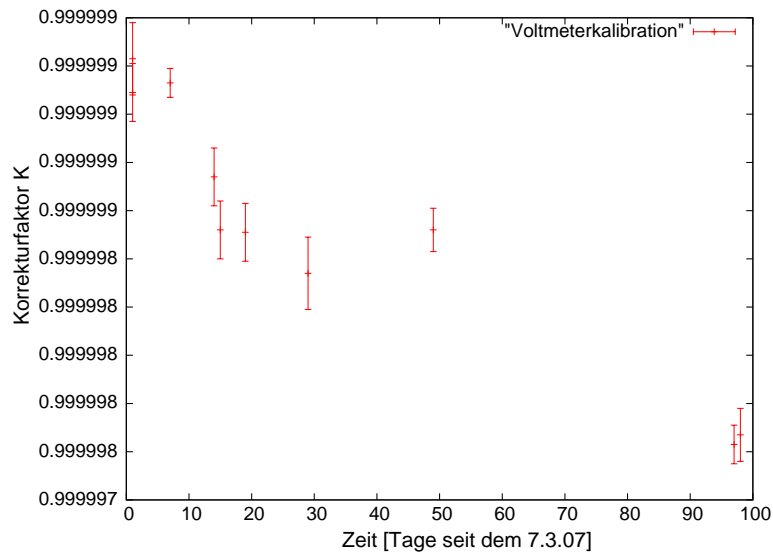
bestimmt, wobei  $x=0$  für den 16. Dezember 2005 gesetzt wurde. Diese Kalibrationskurve wird zur Korrektur der hier dargestellten Messungen aus dem entsprechenden Zeitbereich zugrundegelegt. Die 10 V-Referenzspannungsquelle wurde am 21.11.06 bei der PTB nachkalibriert. Der 10 V-Referenzwert beträgt 10,00001678(59) V.

Für die Messungen aus dem Jahr 2007 gelten folgenden Korrekturfaktoren:

Für den Zeitraum vom 7.3. bis zum 21.3. gilt also:

$$\begin{aligned} f(x) &= a + b * x \\ a &= 0.99999925(9) \\ b &= -3(1) \cdot 10^{-8} \text{ Tag}^{-1} \end{aligned} \tag{9.2}$$

Für den Zeitraum vom 21.3. bis zum 12.6. gilt:



**Abbildung 9.1:** Die Voltmeterkalibration von 2007 ist davon gezeichnet, dass das Voltmeter zweimal aussetzte. Dies geschah am 15. Tag und am 98. Tag. Die Korrekturfaktoren werden also in zwei Teilkurven zerlegt entsprechend der Zeitfenster.

$$\begin{aligned}
 f(x) &= a + b * x \\
 a &= 0.99999881(9) \\
 b &= -1.15(12) \cdot 10^{-8} \text{ Tag}^{-1}
 \end{aligned}
 \tag{9.3}$$

Für 2007 ergibt sich also zunächst eine Korrektur um 0,8 ppm. Im zweiten Zeitfenster trat aber eine erhebliche Veränderung der Korrektur um 2 ppm auf.

Die extrapolierten Driften des Voltmeters liegen damit zwischen 1-4 ppm/Jahr.

Für die Messungen im Februar 2007 wurde eine separate 10 V Kalibration durchgeführt. Es gilt der Korrekturfaktor

$$K = 0.9999988 \pm 1,05 \cdot 10^{-7}
 \tag{9.4}$$

## 9.2 Tabelle der Positionen der einzelnen Messphasen

Die Positionen in nachfolgender Tabelle sind jeweils als Position - 17826 eV in meV angegeben. Die Fehler sind an erster Stelle der Fehler des Fits eines einzelnen Scans, an zweiter Stelle der statistische Fehler abhängig von der Anzahl der Scans und an dritter Stelle die Breite der Verteilung der Linienlage der einzelnen Präparationen um deren Mittelwert.

Messperiode	Heizer	Preplating	Ablation
Feb. 06/1,35	422(43;17;23)	/	/
Feb. 06/0,68	450(55;16;49)	498(49;10;53)	/
Feb. 06/0,9	327(48;10;44)	360(41;14;39)	/
Mai 06/0,9	397(22;8;?)	/	/
Jul. 06/0,9	/	/	445(43;11;?)
Mär1. 07/0,9	296(21;10;?)	294(22;4;?)	/
Mär2. 07/0,9	220(21;2;33)	178(24;1;31)	256(25;1;21) 274(25;1;17)

### 9.3 Bindungsenergie für Krypton

In der Literatur finden sich Bindungsenergien bzgl. des Vakuumniveaus von gasförmigem Krypton:

Niveau	Name	$E_{B,gas}^V$ in eV	Breite $\Gamma$ in eV
$1s_{1/2}$	K	14327,2(8) [Bre80]	2,26 [Bam72]
		14327,26(4) [Dra04]	2,9 [Pic90]
			2,83(12) [Pic90]
$2s_{1/2}$	L1	1924,6(8)[Sie69]	7
		1921,4(3)[Dra04]	5,30(4) [Pic90]
$2p_{1/2}$	L2	1727,2(6) [Kra65]	2,05 [Bam72]
		1727,2(5) [Bea67]	1,84(5) [Pic90]
		1730,9(5) [Sie69]	
		1731,91(3) [Dra04]	
$2p_{3/2}$	L3	1674,8(6)[Kra65]	1,95 [Bam72]
		1674,9(5) [Bea67]	1,40(2) [Pic90]
		1678,4(5) [Sie69]	
		1679,21(3) [Dra04]	
		1680,45(3)	
$3s_{1/2}$	M1	292,8(3) [Sie69]	4,27(5) [Pic90]
$3p_{1/2}$	M2	222,5 [Ohn78]	1,97 [Ohn78]
		221,8 [Sve78]	1,80 [Sve78]
		222,2(2) [Sie69]	1,99(32) [Pic90]
		222,3(1)	
$3p_{3/2}$	M3	214,6 [Ohn78]	1,5 [Ohn78]
		214,2 [Sve78]	1,48 [Sve78]
		214,4(2) [Sie69]	1,66(8) [Pic90]
		214,35(9)	
$4s_{1/2}$	N1	27,51 [Moo58]	0,19(4) [Pic90]
		27,4(2) [Sie69]	
$4p_{1/2}$	N2	14,65 [Moo58]	
$4p_{3/2}$	N3	14,00 [Moo58]	
	N2/3	14,08 [Sie69]	0,59(4)[Pic90]

**Tabelle 9.1:** Tabelle der Literaturwerte zu den Bindungsenergien in Krypton sind hier aufgetragen.

## 9.4 Potentialdurchgriff und Rückstoßterme

Linie	Potentialdurchgriff in meV	Elektronenrückstoß in meV
9L1	156	49
9L2	156	50
9L3	156	51
9M1	187	61
9M2	187	62
9M3	187	62
9N1	195	63
9N2/N3	195	63
32K	371	117
32L2	632	199
32L3	633	209
32M2	663	209
32M3	664	210
32N1	668	210
32N2/3	668	210

Die Unsicherheit in der Angabe des Potentialdurchgriffs wird mit 5 % abgeschätzt.

## 9.5 HOPG-Eigenschaften

Bei 500°C beginnt HOPG an Luft zu brennen, unter Vakuum erhöht sich diese Schwelle um ein 5-faches. Die thermische Leitfähigkeit von Graphit ist nicht isotrop. Innerhalb der Sechsringebene beträgt sie 1800 W/C° in der dazu senkrechten Richtung nur 8-10 W/C°.

Die Dichte beträgt 2.27 g/cm<sup>-3</sup>.

Nach Herstellerangaben ist die Seite von HOPG, die unebener aussieht, tatsächlich die ebenere und sollte dem Detektor zugewandt sein.

Es wurden zwei Qualitäten verwendet. In den Messungen von 2006 handelt es sich um Graphit der Herstellerqualitätsangabe SPI-2: Es hat eine Mosaizität von  $0,8^\circ \pm 0,2^\circ$ . Die Körnung liegt zwischen 0,5 mm und 1 mm. In den Messungen von

2007 wurde HOPG der Qualität SPI-1 eingesetzt. SPI-1 kommt ZYA-Graphit sehr nahe. Es hat eine Mosaizität von  $0,4^\circ \pm 0,1^\circ$ . Die Körnungsgröße beträgt zwischen 3 mm bis 10 mm. Diese Art Graphit weist die höchste Ordnung auf

## 9.6 Kondensationsbindungen

Edelgase sind kugelsymmetrisch, chemisch weitgehend inert und ihre Wechselwirkung lassen sich damit theoretisch gut beschreiben. Krypton bildet mit HOPG einen physisorbierten Film, d.h. die Kryptonmoleküle gehen keine chemische Bindung mit dem Substrat ein. Die Bindung des Films an das Substrat geschieht über langreichweitige Van-der-Waals-Kräfte. Es entstehen durch Fluktuationen der an sich sphärisch-symmetrischen Ladungsverteilung neutraler Atome Dipolmomente, welche miteinander wechselwirken können. Die Wechselwirkung dieser isotrop miteinander wechselwirkender Atome lässt sich durch das Lennard-Jones Potential beschreiben.

$$\Phi(r) = 4\varepsilon \left[ \frac{\sigma^{12}}{r} - \frac{\sigma^6}{r} \right] \quad (9.5)$$

mit

$\sigma$  : Gleichgewichtsabstand bei  $\Phi(r_0) = 0$

$\varepsilon$  : Muldentiefe

Zur Berücksichtigung der Grenzfläche zwischen HOPG und Krypton kann man ein 3-9 Potential hinzuziehen[Fle98]:

$$\Phi_{3-9}(z) = \frac{1}{2}\Phi_{min} \left[ \left( \frac{z_{min}}{z} \right)^9 - 3 \left( \frac{z_{min}}{z} \right)^3 \right] \quad (9.6)$$

wobei gilt:

$$\Phi_{min} = \frac{2}{9}\pi\sqrt{5}n_S\varepsilon_S A r_{SA}^3 \quad (9.7)$$

$$z_{min} = \frac{1}{\sqrt[6]{5}}r_{SA} \quad (9.8)$$

$r_{SA}$  und  $\varepsilon_{SA}$  sind die Lennard-Jones-Parameter für die Wechselwirkung zwischen einem Adsorbat und einem Substratmolekül.  $n_S$  ist die Teilchendichte des Substrats. Die Integration von Glg. (9.5) über den Halbraum des Substrats führt zu dem 3-9 Potential:

$$V(z) = \frac{4C_3^3}{27D^2z^9} - \frac{C_3}{z^3} \quad (9.9)$$



Ein Koeffizientenvergleich liefert:

$$\Phi_{min} = D \quad (9.10)$$

$$z_{min} = \sqrt[3]{\frac{2 C_3}{3 D}} \quad (9.11)$$

Für die Wechselwirkungen mit einem Graphitsubstrat ergeben sich [Vid83]:

Element	$C_3$ [K Å <sup>3</sup> ]	D [K]
Krypton	20083	1178

Die Bindungsenergien liegen also im Bereich von 100 meV [Che93b]:

Element	$\varepsilon/k_B$ [K]	$\sigma$ [Å]
Krypton	199,9	4,01

Für die Masse  $m$ , die Potentialtiefe  $\varepsilon$  und Abstand  $\sigma$  findet man auch [Put95]:

Element	$m$ [amu]	$\sigma$ [Å]	$4 \varepsilon$ [meV]
Krypton	83,8	3,64	17,1

oder [Pol64], [Sil80] :

Element	$m$ [amu]	$\sigma$ [Å]	$4 \varepsilon/k_B$ [K]
Krypton	83,8	3,59	159,4



# Literaturverzeichnis

- [Abh08] B. Abharmim et al. (SNO Collaboration), Phys. Rev. Lett. Vol. 101 (2008) 111301
- [Ago] H. Ago, T. Kugler, F. Cacciali, F. Petrisch, R.H. Friend, W.R. Salaneck, Y. Ono, T. Yamabe, K. Tanaka, Synth. Met. 103 (1999) 2494
- [Ahn03] M. H. Ahn et al. (K2K Collaboration), Phys. Rev. Lett. 90 (2003) 041801
- [Ang04] J. Angrik et al., KATRIN Design Report 2004, FZK Scientific Report 7090, <http://www-ik.fzk.de/katrin>
- [Apo03] M. Apollonio et al. hep-ex/0301017v1 (2003)
- [App72] J.A. Appelbaum, D.R. Hamann: Phys. Rev. B6, 1122 (1972)
- [Ara04] T. Araki et al. (KamLAND Collaboration), hep-ex/0405035 v3
- [Ard06] F. Ardellier et al. hep-ex/0301017v1 (2003)
- [Ash04] Y. Ashie et al. (Super-Kamiokande Collaboration), hep-ex/0404034
- [Azz77] R. M. A. Azzam, N.M. Bashara, Ellipsometry and Polarized Light, North Holland 1977
- [Bam72] W. Bambynek et al.; Rev. Mod. Phys. 44 (1972) 716
- [Bar91] H. Barth, Diplomarbeit, Inst. f. Physik, Universität Mainz, 1991
- [Bar97] H. Barth, Dissertation, Inst. f. Physik, Universität Mainz, 1997
- [Bas04] S. Bashinsky, astro-ph/0411013v2, 2004
- [Bea67] J. A. Bearden, A. F. Burr; Rev. Mod. Phys. 39 (1967) 125
- [Ben71] A. Bennett, B. McCarroll, R. P. Messmer, Phys. Rev. B, Vol. 3, No 4 (1971) 1397-1405
- [Ber06] C. Berger, Elementarteilchenphysik, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2006
- [Bjo] J.D. Bjorken, S.D. Drell, Relativistische Quantenmechanik, Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, Berlin, 1998

- [Bla04] K. Blaum, persönl. Mitteilung
- [Bla06] K. Blaum, High-accuracy mass spectrometry with stored ions, Phys. Rep. 425 (2006)
- [Boe92] F. Boehm, P. Vogel: Physics of Massive Neutrinos, 2nd ed., Cambridge University Press, Cambridge etc., 1992
- [Bon99] J. Bonn, L. Bornschein, B. Degen, E. W. Otten, Ch. Weinheimer, NIM A421 (1999)
- [Bor00] B. Bornschein, Dissertation, Universität Mainz (2000)
- [Bow02] R. Bowen, Monthly Notices of the Royal Astronomical Society, Volume 334, Number 4, (08/2002) 760-768
- [Bre80] Breinig et al.; PRL 58 (1987) 2019
- [Bru07] Bruch, Diehl, Venables Progress in the measurement and modeling of physisorbed layers, Rev. Mod. Phys. Vol 79, (2007), 1381-1453
- [Cam01] Campbell, Papp, Atomic Data and Nuclear Data Tables, Vol 77, No. 1 (2001)
- [Car73] T. A. Carlson, C. W. Nestor, Phys. Rev. A, Vol. 8, Nr. 6 (1973) 2887-2893
- [Chad] J. Chadwick, Verh. d. Deutsch. Phys. Ges. 16 (1914) 383
- [Che03] X. Chen, A. Oshiyama, S. Okada, Phys. Rev. B 67 (2003) 033408
- [Che03] X.-R. Chen et al., Phys. Rev. B 67, 033408 (2003)
- [Che93b] E. Cheng, M.W. Cole, W.F. Saam, J. Trein, Phys. Rev. B 48 (1993) 18214
- [Che] Yen. C. Chen, J.E. Cunningham, C.P. Flynn Phys. Rev. B B30 (1984) 7317
- [Cit74] P.H. Citrin, D.R. Hamann; Phys. Rev. B10 (1974) 4948
- [Cob] COBE-Satellite
- [Cos] Supernova Cosmology Project: <http://supernova.lbl.gov/>
- [Cra77] R.K. Crawford, Melting, vaporization and sublimation, in Rare gas solids 2, Ed.: M.L. Klein, J.A. Venables (Academic Press, London, 1977) 663
- [Cur65] A.E. Curzon, A.T. Pawlowicz, Proc. Phys. Soc. 85 (1965) 375
- [Dec90] Capture  $\gamma$  Ray Spectroscopy and Related Topics, AIP Conf. Proc. No. 238 (1991) 415-17
- [Die04] R. D. Diehl, Th. Seyller, M. Caragiu, G. S. Leatherman, N. Ferralis, K. Pussi, P. Kaukasoina and M. Lindroos, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) 2839-2862
- [Dig77] M. J. Dignam, J. Fedyk, J. Phys., Paris, 38 (1977) C5-57

- [Don00] Long Baseline News, Juli 2000
- [Dra04] O. Dragoun, A. Špalek, F.J. Wuilleumier, Czech. J. Phys. 54 (2004) 833-839
- [Dra08] O. Dragoun, A. Špalek, persönliche Mitteilung
- [Dun08] J. Dunkley et al, astro-ph: 0803.0586v1
- [Ege86] W.F. Egelhoff, Jr. Core-Level Binding-energy shifts at surfaces and in solids, Surf. Sci. Rep. 6 (1986) 253-415
- [Eic08] F. Eichelhardt, Dissertation, Institut für Experimentelle Kernphysik, Universität Karlsruhe, voraussichtlich 2008
- [Ess04] K. Essig, Diplomarbeit, HISKP, Universität Bonn, 2004
- [Fer34] E. Fermi 1934, Z. Physik 88 11
- [Fio07] G. Fiorentine, M. Lissia, F. Mantovani, Physics Reports 453 (2007) 117-172
- [Fla04] B. Flatt, Dissertation, Inst. f. Physik, Universität Mainz, 2004
- [Fle98] L. Fleischemann, Dissertation, Inst. f. Physik, Universität Mainz, 1998
- [Fog06] Fogli et al., hep-ph/0608060
- [Glu] F. Glück, KATRIN internes Papier
- [Gol58] M. Goldhaber et al.: Phys. Rev. 48 (1935) 512
- [Got84] Y. Gotoh, O. Okada, Jour. of Nucl. Science and Technology, 21(3), (1984) 205-214
- [Gre69] D. L. Greenaway, G. Harbeke, Phys. Rev. 178 (1969) 1340
- [Gru05] C. Grupen, Astroparticle Physics, Springer, 2005
- [Gur88] Ch. Guryan, K. B. Lee, p. Stephens, Phys. Rev. B, Vol 37, No 7 (1988) 3461-3466
- [Hae81] R. A. Haefer, Kryo-Vakuumtechnik, Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1981
- [Han07] S. Hannestad, Vortrag 13. KATRIN-Kollaboration-Meeting, 2007
- [Hei02] M. Heitz, Dissertation, Universität Heidelberg, 2002
- [Hei98] M. Heitz, Diplomarbeit, Universität Heidelberg 1998
- [Hil07] B. Hillen, Diplomarbeit, Universität Münster, 2007
- [Hoc08] F. Hochschulz, Diplomarbeit Universität Münster 2008
- [Hoh99] S. Hohmann, Diplomarbeit, Universität Heidelberg 1999
- [Ish91] S. Ishi, B. Viswanathan, Thin Solid Films, 201 (1991) 373-402

- [Jack82] J. D. Jackson, "Klassische Elektrodynamik", zweite Auflage, Berlin, New York, de Gruyter, 1982
- [Jaco82] K. Jacobi, H.H. Rotermund, Surface Sci. 117 (1982) 683
- [Jb] J. Bonn, persönliche Mitteilung
- [Kai80] G. Kaindl, et al, Phys. Rev. Lett. 45 (1980) 1808
- [Kas04] J. Kašpar, Diplomarbeit, IN Rez, 2004
- [Kas08] J. Kaspar, Dissertation, NI Rez, Tschechische Republik, 2008
- [Kin77] G. C. King et al. J. Phys B: Atom. Mol. Phys. 10 (1977) 2479
- [Kla01] V. Klapdor-Kleingrothaus et al, Foundations of Physics, Vol. 32, No. 8 (2002)
- [Kla04] V. Klapdor-Kleingrothaus et al., Physics Letters B 586 (2004) 198-212
- [Kol72] B. Kolk, F. Pleiter, W. Heeringa: Nucl. Phys. A194 (1972) 614
- [Küp79] J. Küppers, K. Wandelt, G. Ertl, Phys. Rev. Letters 43 (1979) 928
- [Kra03] Ch. Kraus, Dissertation Universität Mainz, 2003
- [Kra03] Ch. Kraus, Dissertation, Inst. F. Physik, Universität Mainz, 2003
- [Kra05] Ch. Kraus, B. Bornschein, I. Bornschein, J. Bonn, B. Flatt, A. Kovalik, B. Ostrick, E.W. Otten, J.P. Schall, Th. Thümmel, Ch. Weinheimer, Eur. Phys. J. C 40 (2005)
- [Kra65] M. O. Krause, PR a 140 (1965) 1845
- [Kur99] O. Kurtz, Dissertation, Freie Universität Berlin, 1999
- [Le07] R. Lewis, Dissertation Universität Swansea, 2007
- [Les06] J. Lesgourgues, S. Pastor, Phys. Rep. 429 (2006) 307
- [Lob04] V. M. Lobashev, persönliche Mitteilung
- [Man85] W. Mandel et al. Surf. Sci. 162 (1985) 453-460
- [Mar] <http://mare.dfm.uninsubria.it/frontend/exec.php>
- [Mat02] Matsui, Kambara, Fukuyama, Journal of low temperature physics, Vol. 126, Nos. 1/2, (2002)
- [Mau04] J. Maul, Dissertation Universität Mainz, 2004
- [Mei01] J. Meier, Dissertation, Universität Heidelberg, 2001
- [Men91] H. Menges, H. von Löhneysen, J. Low Temp. Phys. 84 (1991) 237
- [Mey64] L. Meyer, C.S. Barret, P. Haasen, J. Chem. Phys. 40 (1964) 2744

- [Moo58] C. E. Moore, Atomic Energy Levels, Nat. Bureau of Standards, Washington 1958
- [Mue86] J. Müller, Nucl. Data Sheets 49 (1986) 579
- [Muk99] T. Mukoyama, Y. Ito, K. Taniguchi, X-RaySpectrom. 28 (1999) 491-496
- [Mül85] K. Müller, J. Vac. Sci. Technol. A 3 (1985) 2089
- [Mur80] M.J. Murray, J.V. Sanders, Phil. Mag. A 42 (1980) 721
- [Na06] Sz. Nagy et al., Europhys. Lett. 74 (3) (2006) 404-410
- [Nas05] A. F. Nastoyashchii, N. A. Titov, I. N. Morozov, F. Glück, E. W. Otten
- [Nic87] D. Nicholson, Surface Science 181 (1987) L189-L192
- [Nuc01] S. Wu, Nuclear Data Sheets 92 (2001) 893 ,doi:10.1006/ndsh.2001.0010
- [Nukr] URL: <http://www.nndc.bnl.gov/chart/decaysearchdirect.jsp?nuc=83KR>
- [Ohn78] M. Ohno, G. Wendin; J. Phys. 11B (1978) 1557
- [Osi01] A. Osipowicz et al. (KATRIN-Collaboration) hep-ex/0109033 (2001)
- [Ost02] B. Ostrick, geb. Müller, Diplomarbeit, Universität Mainz, 2002
- [Ott06] E. W. Otten, J. Bonn, Ch. Weinheimer, International Journal of Mass Spectrometry 251 Iss. 2-3 (2006) 173-178
- [Ott08] E.W. Otten, C. Weinheimer, Rep. Prog. Phys. 71 (2008) 086201 doi: 10.1088/0034-4885/71/8/086201
- [Pau] W. Pauli, Biref an die physikalische Gesellschaft in Tübingen vom 4.12.1930, nachzulesen in L.M. Brown, Phys. Today 31 (1978) 23
- [PDG] W. M. Yao et al. (Particle Data Group) 2006 J. Phys. G.: Nucl Part. Phys. 33 1 <http://pdg.lbl.gov>
- [Pel] O. Pellegrino, M. Rei Vilar, G. Horowitz, A.M. Botelho do Rego Oligothiophene filme under electron irradiation:electron mobility and contact potentials, Materials Science and Engineering C 22 (2002) 267-372
- [Pic90] A. Picard, Dissertation Universität Mainz 1990
- [Pic92a] A. Picard, et al., Nucl. Instr. Meth. B63 (1992) 345
- [Pic92b] A. Picard et al., Z. Phys. A342 (1992) 71-78
- [Pol64] G. Pollack, Rev. Mod. Phys. 36 (1964) 748.
- [Por78] A. Portis, Electromagnetic Fields, Sources and Media, Wiley and Sons, New York, Santa Barbara, Chichester, Brisbane, Toronto 1978
- [Pra05] M. Prall, Diplomarbeit Universität Münster 2005

- [Prz95] M. Przyrembel, Dissertation Universität Mainz, 1995
- [PTB05] Jahresbericht der PTB Braunschweig 2005,  
[http://www.ptb.de/de/org/2/nachrichten2/2005/abteilung2\\_102.htm](http://www.ptb.de/de/org/2/nachrichten2/2005/abteilung2_102.htm)
- [Put95] Putz, J.C. Schön, M. Jansen, Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 99 (1995) 1148
- [Ram06] S. Raman, M. Ertugrul, C.W. Nestor Jr. M.B. Trzhaskovskaya, Atomic Data and Nuclear Data Tables 92 (2006) 207-243
- [Ras08] M. Rasulbaev, K. Maier, R. Vianden, T. Thümmeler, B. Ostrick and Ch. Weinheimer, Applied Radiation and Isotopes, Volume 66, Issue 12 (2008) 1838-1843
- [Ras] M. Rasulbaev, persönliche Mitteilung
- [Rei59] F. Reines, C. L. Cowan, Phys. Rev. 113 (1959) 273
- [Rie90] E. Riedel, Allgemeine und Anorganische Chemie, Walter de Gruyter, Berlin, 1990
- [Rin05] A. Ringwahn, hep-ph/0505024 v1 (2005)
- [Rob88] R.G.H. Robertson, D.A. Knapp, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 38 (1988) 185
- [Rob91] R.G.H. Robertson et al., Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 957
- [Rös78] F. Rösler, H.M. Fries, K. Alder, Atomic Data and Nuclear Data Tables, Vol. 12, Nos. 2-3, February-March 1978
- [Ruf04] P. Ruffieux, O. Groening, M. Biemann, P. Groening, Appl. Phys. A 78 (2004) 975-980
- [Sch00] P.G. Schröder, M.W. Nelson, B.A. Parkinson, R. Schlaff, Surf. Science 459 (2000) 349
- [Sch85] M. Schneider, A. Rahman, I. K. Schuller, Phys. Rev. Lett. 55 (1985) 604
- [Sch90] M. Schrader, Diplomarbeit, Inst. f. Physik, Universität Mainz, 1990
- [Sch97] Schmitz, "Neutrino-Physik", Teubner Verlag, Stuttgart, 1997
- [Ser07] P. Serra et al. astro-ph/0701690v1 (2007)
- [Shi00] M. Shiraishi, M. Ata MRS Fall Meeting (2000)
- [Sie69] K. Siegbahn et al.; North-Holland Publishing Company; Amsterdam-London 1969
- [Sil80] I. F. Silvera, Rev. Mod. Phys. 52 (1980) 393
- [Smo08] J. Smollich, Diplomarbeit Universität Münster, 2008
- [Smo41] R. Smoluchowski, Anisotropy of the Work Functions of Metals, Phys. Rev. 60 (1941) 661



- [Som99] C. Sommerhalter, Kelvin probe force microscopy in ultrahigh vacuum for the characterization of semiconductor heterodiodes based on chalkopyrites, Dissertation, FU Berlin (1999)
- [Sve78] S. Svensson et al; Phys. Sci. 14
- [Sza87] K. Szalewicz, Phys. Rev. A 35 (1987) 965
- [Thu08] T. Thümmel, Dissertation, Universität Münster
- [Tots91] Youji Totsuka, We caught neutrinos from a supernova! "An image of the universe today", Edited by The Physical Society of Japan, Baifukan, Tokyo, 1991
- [Ubi07] M. Ubieto-Diaz, Diplomarbeit, Universität Mainz, 2007
- [Ulb02] H. Ulbricht, G. Moos, T. Hertel, Phys. Rev. B 66 (2002) 075404
- [Val04] K. Valerius, Diplomarbeit, HISKP Universität Bonn, 2004
- [Val09] K. Valerius, Dissertation, Institut für Kernphysik, Universität Münster, voraussichtlich 2009
- [Ven06] D. Vénos, O. Dragoun, A. Špalek, M. Vobecký, Nucl. Inst. and Meth, in Phys. Res. A 560 (2006) 352-359
- [Ven08] persönliche Mitteilung
- [Vid83] G. Vidali, M.W. Cole, Phys. Rev, B 28 (1983) 3064
- [Vol89] U.G. Volkmann, K. Knorr, Surf. Sci. 221 (1989) 379-393
- [Wan84] K. Wandelt, J.E. Hulse, J. Chem. Phys. 80 (1984) 1340
- [War91] D.L. Wark, R. Bartlett, T.J. Bowles, R.G.H. Robertson, D.S. Sivia, W. Trela, J.F. Wilkerson, G.S. Brown, B. Craseman, S.L. Sorensen, S.J. Schaphorst, D.A. Knapp, J. Henderson, J. Tulkki, T. Åberg, Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 2291
- [Wil] J.W.G. Wildöer, L.C. Venema, A.G. Rinzler, R.E Smalley, C. Decker Nature 391 (1998) 59
- [Wol08] I. Wolf, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Universität Münster, 2008
- [Wu89] M. Wutz, H. Adam, W. Walcher, Theory and Practice of Vacuum Technology, Vieweg, Braunschweig, Wiesbaden 1989, S. 66
- [Zan88] A. Zangwill, Physics at Surfaces, Cambridge University Press, 1988, 268
- [Zbo10] M. Zbořil, Dissertation Universität Münster vorrauss. 2010
- [Zha07] L. Zhan-Ling, W. Chang-Qing, J. Yu, Z. Bing-Lin, Y. Ning, Chin. Phys. Soc., Vol 16, No. 3 (2007) 843-847
- [Zho97] W. Zhou, R.A. Johnson, H.N.G. Wadley Acta mater. 45 (1997) 1513
- [Zub06] K. Zuber, nucl-ex/0610007v1



# Danksagung

Ich möchte mich bei all denen bedanken, die dazu beigetragen haben, dass diese Arbeit entstehen und abgeschlossen werden konnte.

Ich möchte mich zuerst namentlich bei meiner Mutter, Karla Müller, bedanken, dass sie jederzeit eingesprungen ist, wenn es nötig war. Ohne diesen Einsatz wäre vieles für mich schlichtweg nicht möglich gewesen.

Mein Dank gilt natürlich Prof. Christian Weinheimer, für die Themenstellung der Arbeit und seine Diskussionsbereitschaft in jeder Phase dieser Arbeit trotz seiner immensen zeitlichen Belastung. Insbesondere jeder zusätzliche Aufwand, der aus meinem 'Exotenstatus' als praktizierende Mutter entstand, verpflichtet mich zu besonderem Dank. Im gleichen Atemzug möchte ich mich bei Jochen Bonn bedanken, von dem man mehr lernen kann, als ich es in der Vergangenheit habe schaffen können und der in experimentellen Fragen immer der erste Ansprechpartner war, und damit zum Gelingen dieser Arbeit stark beigetragen hat.

Ich danke allen Mitgliedern der KATRIN-Arbeitsgruppe am Institut für Kernphysik der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster für die angenehme Atmosphäre, wann immer wir uns getroffen haben. Insbesondere gilt mein Dank denjenigen, mit denen ich intensiver zusammenarbeiten durfte: Thomas Thümmler, Miroslav Zboril, Hans-Werner Ortjohann und Helmut Baumeister, Björn Hillen, Matthias Prall, Jürgen Smollich, Nikita Titov, Marcus Beck und Kathrin Valerius.

Dem Institut für Physik der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz und darin der Arbeitsgruppe von Prof. Bloch danke ich für die Gastfreundschaft, die ich während meines 3-jährigen Aufenthalts hier genießen durfte. Bei Prof. Dr. E. Otten möchte ich mich für die angenehme Atmosphäre in unserer ungewöhnlichen Bürogemeinschaft danken. Aber auch Mitglieder anderer Projekte haben mir auf unkomplizierte Weise geholfen - Werner Lauth, Gerhard Huber und Jochen Maul -, wofür ich mich bedanken möchte. Nicht vergessen werden sollen auch die Mitarbeiter in der mechanischen Werkstatt und der Heliumversorgung.

Bei Klaus Schlösser möchte ich mich für seine Anregungen, sein Interesse und seine Mitarbeit an der kondensierten Kryptonquelle danken, welche sich nicht durch die Fahrtstrecke zwischen Karlsruhe und Mainz haben trüben lassen.

Für die angenehme Arbeitsatmosphäre zu Beginn dieser Dissertation möchte ich den Mitgliedern der Arbeitsgruppe am Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik in Bonn danken. In diesem Zusammenhang möchte ich mich bei Prof. Beck und seiner Gruppe für ihre Gastfreundschaft auch über meine Vertragslaufzeit hinaus bedanken. In diesem Zusammenhang danke ich auch Prof. K Maier, Rainer Vianden und Makhsud Rasulbaev für die Zusammenarbeit bzgl. der Rubidiumproduktion.

Für die Hilfe der beteiligten studentischen Hilfskräfte möchte ich mich bedanken: Marta Ubieto-Diaz, Stefan Materne, Alexander Winnebeck und Fernando Soler.

Am Forschungszentrum Karlsruhe möchte ich mich insbesondere bei Ferenc Glück, Armen Beglarian, Sascha Wüstling und Lutz Bornschein, aber auch allen nicht namentlich erwähnten Mitgliedern der KATRIN-Kollaboration bedanken.

Auch bei den Mitgliedern der Kalibrationsgruppe: Prof. O. Dragoun, D. Venos, A. Kovalik und J. Kaspar möchte ich mich für die Hilfe und die angenehme Zusammenarbeit in den letzten Jahren danken.

Meinem Mann möchte ich dafür danken, dass er mich während dieser Arbeit ermuntert hat, weiterzumachen, wenn ich Zweifel bekam. Abschliessend möchte ich mich bei meiner Tochter bedanken, die mich immer wieder daran erinnert, was wichtig ist und was nicht.





