

Erzeugung und Monte-Carlo-Simulation von intensiven, rein optisch angeregten metastabilen Krypton-Atomstrahlen

DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
an der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften
Fachbereich Physik der Universität Hamburg

vorgelegt von

Pablo Woelk

Hamburg, 2021

Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. Gerald Kirchner Prof. Dr. Klaus Sengstock
Zusammensetzung der Prüfungskommission:	Prof. Dr. Gerald Kirchner Prof. Dr. Klaus Sengstock Prof. Dr. Markus Drescher Prof. Dr. Götz Neuneck Prof. Dr. Michael Potthoff
Vorsitzende/r der Prüfungskommission:	Prof. Dr. Michael Potthoff
Datum der Disputation:	07.03.2022
Vorsitzender Fach-Promotionsausschusses PHYSIK:	Prof. Dr. Wolfgang Hansen
Leiter des Fachbereichs PHYSIK:	Prof. Dr. Günter H. W. Sigl
Dekan der Fakultät MIN:	Prof. Dr. Heinrich Graener

Danksagung

Ein komplexes physikalisches Projekt wie das ATTA Experiment am ZNF, an dem diese Doktorarbeit entstanden ist, beruht auf der Arbeit von vielen und ich möchte mich an dieser Stelle bei all denjenigen bedanken, die in der Vergangenheit dazu beigetragen haben und die es weiter vorantreiben. Mein Dank gilt Prof. Dr. Gerald Kirchner, der es mir ermöglicht hat, meine Doktorarbeit am ZNF durchzuführen und der mir auch an konzeptionellen Wendepunkten das Vertrauen entgegengebracht hat, in einer spannenden Phase das ATTA Experiment voranzutreiben. Ich danke Prof. Dr. Klaus Sengstock, dass er sich ebenfalls als Betreuer zur Verfügung gestellt hat. Ein besonderer Dank gilt Dr. Markus Kohler, der mich in den ersten zwei Jahren der Doktorarbeit gerüstet hat und auf den ich in der ganzen Zeit zählen konnte. Carsten Sieveke und Ergin Simsek danke ich, dass wir als Team über all die experimentellen Probleme gebrütet und sie aus dem Weg geräumt haben. Zusammen sind wir ein gutes Stück vorangekommen. Robert Steinbeck danke ich für die in so einem Projekt wichtige organisatorische Unterstützung und für eine gute Zeit am ZNF. Ein besonderer Dank gilt meiner Familie, auf deren Rückhalt ich in der auch sehr fordernden Zeit immer zählen konnte. Ganz besonders möchte ich meiner Frau Lena und meinem Sohn Lorenz für ihre unendliche Unterstützung danken.

Kurzzusammenfassung

Die Edelgasisotope ^{85}Kr und ^{81}Kr sind hervorragend als Umwelttracer geeignet, weshalb sich durch ihre Konzentrationsbestimmung in Luft- und Wasserproben vielversprechende Anwendungen in den Geowissenschaften und in der Rüstungskontrolle eröffnen. Die geringe Häufigkeit in der Atmosphäre von $^{85}\text{Kr}/\text{Kr} \approx 2 \cdot 10^{-11}$ und $^{81}\text{Kr}/\text{Kr} \approx 9 \cdot 10^{-13}$ erfordert ultrasensitive Analysemethoden. Mit der Atom Trap Trace Analysis (ATTA) ist eine solche Methode entwickelt worden, welche auf einer magneto-optischen Falle basiert (MOT) und einzelne Atome isotonen-selektiv zählen kann. Um eine MOT nutzen zu können, werden die Krypton-Atome in einem metastabilen Zustand präpariert, aus dem sie mit Laserquellen isotonen-selektiv in Geschwindigkeit und Ort eingeschränkt werden können. Allerdings ist der Probendurchsatz von State-of-the-Art ATTA-Anlagen von weniger als einer Probe pro Tag zu klein, um ein breites Anwendungsfeld zu erschließen. Die wesentliche Begrenzung wird durch Kreuzkontamination verursacht, da sich bei der Präparation der Atome Anteile der Probe ionisieren und in der Anlage einlagern.

Eine Möglichkeit zur Vermeidung der Kontamination ist die Verwendung einer optischen Anregung in das metastabile Niveau. Bei ansonsten gleicher Effizienz wäre eine Steigerung des Probendurchsatzes um mehr als eine Größenordnung möglich. Die übergeordnete Frage dieser Arbeit ist, ob sich mit einem solchen optischen Anregungsschema ähnliche Effizienzen bei der Messung wie bei bestehenden Anlagen erreichen lassen. Dafür wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Aufbau zur Erzeugung eines optisch angeregten metastabilen Atomstrahls entwickelt und charakterisiert. Als wichtiges Element zur Formung des Atomstrahls werden Kapillarsysteme eingesetzt, welche experimentell und anhand von Simulationen untersucht wurden. Um in Zukunft Optimierungen zu ermöglichen, wurde eine Simulation des vollständigen Aufbaus zur Atomstrahlerzeugung und Vermessung entwickelt und anhand der experimentellen Messungen validiert.

Die Ergebnisse zeigen Atomflüsse von mehreren 10^9 metastabilen Atomen pro Sekunde. Im vorgestellten Aufbau ist der Atomfluss durch Stoßverluste mit dem Hintergrundgas begrenzt. Mit weiteren Verbesserungen am Vakuumsystem sowie einer optischen Kollimation konnte prognostiziert werden, dass sich der Fluss um zwei Größenordnungen steigern lässt. Damit bietet eine neue ATTA Generation mit optischer Anregung das Potenzial den Probendurchsatz deutlich zu erhöhen und neue Anwendungsgebiete zu ermöglichen.

Abstract

The noble gas isotopes ^{85}Kr and ^{81}Kr are excellent tracers. Therefore, methods to determine their abundance in air and water samples enable a wide field of applications in geoscience and arms control. Because of their small concentration in the atmosphere, with $^{85}\text{Kr}/\text{Kr} \approx 2 \cdot 10^{-11}$ and $^{81}\text{Kr}/\text{Kr} \approx 9 \cdot 10^{-13}$, ultra-sensitive analysis methods are required. Such a method has been developed with the Atom Trap Trace Analysis (ATTA), which is based on a magneto-optical trap (MOT) and which allows the isotope-selective counting of single atoms. For the use of a MOT, it is necessary to prepare the krypton atoms into a metastable state, from which they can be cooled and captured isotope-selective with available laser sources. However, the sample throughput of state of the art ATTA systems with less than one sample per day is too small to allow for a broad range of applications. The current limitation is the cross-contamination which is caused in the process of preparing the atoms into the metastable state, in which atoms are ionized and implanted into the walls of the vacuum system.

A possibility to avoid the contamination is an optical excitation into the metastable state. In case of otherwise similar efficiencies, an increase in the throughput of one order of magnitude is possible. The overall question of this thesis is whether it is possible to reach comparable efficiencies during the measurement with an optical excitation scheme compared to current ATTA systems. Therefore, within this thesis, a setup for the creation of an optically excited metastable atomic beam is developed and characterized. As an important part in the shaping of the atomic beam, capillary systems are used, which are analyzed both experimentally and with a simulation. To allow optimization in the future, a simulation of the whole atomic beam creation system and its measurement is developed and validated with experimental measurements.

The results show a flux of several 10^9 metastable atoms per second. In the current setup, the flux is limited by collision loss with the background gas. With further improvements in the vacuum system and the implementation of an optical collimator, it is predicted that the flux can be increased by two orders of magnitude. This means that a new generation of ATTA systems, which employs an optical excitation scheme, has the potential to vastly increase the sample throughput and would allow new areas of application.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Atomstrahlformung durch Kapillaren – Theorie und Simulationsmethodik	7
2.1	Grundsätzliche Funktionsweise und Größen	8
2.2	Theoretische Beschreibung einer Blende	11
2.3	Theoretische Beschreibung einer Kapillare	13
2.4	Simulationsmethodik	19
2.4.1	Test Particle Monte Carlo Simulation mit Molflow+	20
2.4.2	Ermittlung relevanter Größen	23
2.4.3	Ablauf der Simulation	25
2.4.4	Voruntersuchungen: Statistische und geometrische Unsicherheiten	28
3	Atomstrahlformung durch Kapillaren – Ergebnisse	35
3.1	Vergleich Simulation und Theorie	35
3.2	Vergleich Simulation und Literaturmessungen	46
3.2.1	Messungen der Winkelverteilung	47
3.2.2	Messmethoden und Einflüsse auf die gemessenen Intensitätsprofile	50
3.2.3	Gas-Wand-Wechselwirkung - Einfluss der Spiegelreflektionen .	54
3.2.4	Atom-Atom-Stöße	59
3.3	Zwischenfazit und relevante Schlussfolgerungen	63
4	Metastabile Krypton-Atomstrahlen: Messungen und Simulationen	65
4.1	Experimentelle Aufbauten und Nachbildung	65
4.1.1	Messaufbau 1: Stahl-Kapillaren	66
4.1.2	Messaufbau 2: Glas-Kapillaren	71
4.2	Ergebnisse: Druck und Atomfluss	75
4.2.1	Druckverlauf höhere Drücke und Überlebenswahrscheinlichkeit	84
4.3	Fluoreszenzmessungen und Simulation	89
4.3.1	Messmethodik und Simulation metastabiler Atomstrahlen . .	89

4.3.2	Ergebnisse Messaufbau 1	97
4.3.3	Ergebnisse Messaufbau 2	104
5	Fazit und Ausblick	115
	Literatur	119
	Eidesstattliche Versicherung / Declaration on oath	125

Einleitung

Die Konzentrationsbestimmung von Edelgasisotopen u. a. in Ozeanen, in Seen, in Grundwässern, in Eisproben und der Atmosphäre stellt eine zentrale Methodik der Geowissenschaften bei der Untersuchung der Erde und deren Klimaprozessen dar. Edelgase als Umwelttracer sind hierbei unerlässlich, da sie aufgrund ihrer chemischen und physikalischen Eigenschaften in vernachlässigbarer Weise mit ihrer Umgebung reagieren und somit nur den Transportprozessen unterliegen. Die Voraussetzung für dieses weite Anwendungsfeld haben neue und verbesserte Messmethoden zur präzisen Bestimmung der Isotopenhäufigkeit geschaffen [PBW02; LP05]. Eine besondere Herausforderung aufgrund ihrer extrem niedrigen Konzentration ist die Konzentrationsbestimmung von radioaktiven Edelgasisotopen, von denen die Isotope ^{39}Ar , ^{85}Kr und ^{81}Kr Anwendung als Umwelttracer finden [Lu+14]. Diese eignen sich insbesondere für Datierungen und zur Validierung von Transportprozessen. Der Fokus dieser Arbeit liegt auf einer Analysemethode für die Krypton-Isotope.

^{81}Kr entsteht vor allem durch kosmische Strahlung in der Atmosphäre und besitzt eine Halbwertszeit von 229 000 Jahren, womit es einer der wenigen Umwelttracer für Datierungen bis zu einer Million Jahre darstellt [Pur+21]. Aktuelle Untersuchungen geben eine natürliche Konzentration von $^{81}\text{Kr}/\text{Kr} \approx 9 \cdot 10^{-13}$ [Zap+20] an. Die Quelle von ^{85}Kr hingegen ist fast ausschließlich anthropogen. Es entsteht als Spaltprodukt bei der durch Bestrahlung von Kernbrennstäben verursachten Kernspaltung und wird bei der Wiederaufbereitung freigesetzt. Es besitzt eine vergleichsweise kurze Halbwertszeit von 10,8 Jahren. Mit Beginn der ersten größeren nuklearen Aktivitäten Mitte des 20. Jahrhunderts reichert sich ^{85}Kr in der Atmosphäre an. Mittlerweile wird z. B. in Hamburg eine Aktivität von etwa $1,6 \text{ Bq/m}^3$ gemessen und die relative Konzentration beträgt $^{85}\text{Kr}/\text{Kr} \approx 2 \cdot 10^{-11}$ [Lu+14]. Das Isotop ^{85}Kr ist besonders für die Datierung junger Grundwässer bis 40 Jahre geeignet. Würde eine Messmethodik zur Verfügung stehen, mit der praktikabel viele tausend Proben im Jahr vermessen werden könnten – dies ist zurzeit nicht der Fall – wäre auch eine Anwendung in der nuklearen Rüstungskontrolle denkbar [Sch18]. Der ^{85}Kr -Gehalt kann per Low-Level Counting bestimmt werden, einer seit vielen Jahrzehnten eingesetzten Methode [Loo+86; Yan+13], bei der aus dem Nachweis des radioaktiven Zerfalls die Aktivität und daraus die Konzentration in einer Probe ermittelt wird. Aufgrund der geringen Aktivität sind aber sehr große Probengrößen und recht lange

Messzeiten im Bereich von Tagen notwendig. Aufgrund der geringen Aktivität und des nicht zu eliminierenden ^{85}Kr Untergrunds kann ^{81}Kr in aktueller natürlicher Zusammensetzung nicht per Low-Level Counting gemessen werden.

Eine vergleichsweise junge Messmethodik ist die Atom Trap Trace Analysis (ATTA). Voraussetzung hierfür war der enorme Fortschritt in den 1980er und 1990er Jahren beim Kühlen und Fangen von neutralen Atomen mit Laserlicht, für die auch 1997 der Nobelpreis für Physik vergeben wurde. Darauf aufbauend wurde Ende der 1990er-Jahre die extrem sensitive ATTA-Methode entwickelt [Che+99], hier wird auch von Ultraspurenanalyse gesprochen, welche auch die Vermessung von ^{81}Kr -Gehalts ermöglicht. Sie nutzt das Prinzip einer magneto-optischen Falle (MOT), bei der die Atome in einer Vakuumkammer durch sich kreuzende, paarweise gegenläufige Laserstrahlen in Kombination mit einem inhomogenen Magnetfeld an einem Raumpunkt gefangen werden. Über die gestreute Fluoreszenz können die gefangenen Atome gezählt werden. Zum Abbremsen und Einfangen der Atome ist eine hohe Streurrate im Bereich von 10^7 Photonen pro Sekunde notwendig. Da sowohl die Laserstrahlen als auch die verwendeten atomaren Kühlübergänge sehr schmalbandig sind, reicht bereits der Unterschied der Energieniveaus bei unterschiedlichen Isotopen dafür, dass die erforderliche Anzahl an gestreuten Photonen nur für das beabsichtigte Isotop erreicht wird. Bei dem für Krypton beabsichtigten Übergang gibt es deshalb keine Störeinflüsse durch andere Isotope, Elemente oder Moleküle. ATTA Anlagen wurden u.a. bisher erfolgreich für Krypton [Che+99; Jia+12], Argon [Wel+10] und Xenon [Apr+13] entwickelt und finden auch schon praktische Anwendung [Zap+20; Lu+14; Jia+20; Apr+18; Ebs+18]. Trotzdem handelt es sich um sehr komplexe Anlagen, die einen begrenzten Probendurchsatz bieten. So wird bspw. die weltweite Kapazität für die Vermessung von ^{81}Kr Proben auf 200–300 Proben pro Jahr geschätzt [Jia+20]. Damit haben die ATTA Anlagen also ihre Praxistauglichkeit bewiesen, sind aber noch weit entfernt davon, ein Standard-Messinstrument zu sein.

Diese Dissertation ist im Rahmen des ATTA Experiments am *Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung (ZNF)* entstanden, welches das Ziel hat, durch eine Steigerung des Probendurchsatzes von ATTA Anlagen das Anwendungsgebiet stark auszuweiten. Die wesentliche Limitierung beim Probendurchsatz einer State-of-the-Art Anlage ist, anders als vielleicht intuitiv vermutet, nicht die benötigte Zeit zum Vermessen einer Probe, welche abhängig von der Probengrößen bei nur zwei Stunden liegen kann. Vielmehr muss eine Anlage nach einer Messung für viele Stunden dekontaminiert werden, wodurch sie bis zu 36 Stunden nicht für die Vermessung einer weiteren Probe zur Verfügung steht [Jia+20]. Die Kontamination erfolgt bei der für das Fangen und Kühlen von Edel-

gasen mit Laserstrahlen notwendigen Präparation der Edelgasatome in metastabile Zustände. Metastabile Zustände sind angeregte Zustände, die nicht per einfachen Dipolübergang in den Grundzustand zerfallen können und deshalb sehr lange Lebensdauern von vielen Sekunden aufweisen. Da die nötige Anregungsenergie aus dem Grundzustand für Edelgase weit außerhalb praktikabler Laserwellenlängen liegt, werden diese metastabilen Zustände als unteres Niveau für den Kühlübergang verwendet [Met01].

Die Präparation der Atome in den metastabilen Zustand wird bei State-of-the-Art ATTA Anlagen mit einer RF-Gasentladung durchgeführt, bei der die Atome per Elektronenstoßanregung angeregt werden und welche typischerweise eine Effizienz von $Kr^*/Kr \approx 1 \cdot 10^{-3} - 1 \cdot 10^{-4}$ [Jia+12; Che+01; Che+10] aufweist. Die Gasentladung führt dazu, dass ein Teil der Probe ionisiert und in den Wänden der Vakuumkammer implantiert wird. Diese Atome können bei der Vermessung einer nachfolgenden Probe durch Atomstöße wieder freigesetzt werden und so zu einer Kreuzkontamination führen. Zur Dekontamination wird deshalb nach jeder Messung über viele Stunden eine RF-Gasentladung mit Xenon durchgeführt. Die zentrale Idee am ATTA Experiment des ZNF ist der Einsatz eines optischen Anregungsschemas in den metastabilen Zustand, welcher zu keiner Ionen-Implantation führt. Bei gleicher Effizienz der sonstigen Messung im Vergleich zu State-of-the-Art ATTA Anlagen ließe sich der Probendurchsatz pro Anlage um etwa eine Größenordnung steigern. Auch sind potenziell größere Anregungseffizienzen denkbar, wodurch sich die Messzeit weiter verkürzen ließe. Hierfür ist eine VUV-Strahlungsquelle notwendig, weshalb am ZNF eine langlebige VUV-Lampe entwickelt wurde [Dae+11; Koh11]. Dieser Typ wird im Rahmen dieser Dissertation verwendet. Wie eine erste Demonstration gezeigt hat [Dak+18], ist in Zukunft vielleicht auch eine auf Lasern basierende Anregung in das metastabile Niveau möglich. Falls dies in Zukunft eine praktikable Option wird, sind die Erkenntnisse dieser Arbeit darauf übertragbar.

Zentral für eine kurze Messdauer ist, dass die oben beschriebene Atomfalle eine hohe Laderate aufweist. Aus diesem Grund werden Vorstufen implementiert, mit denen ein Atomstrahl aus langsamen, in der MOT einfangbaren Atomen erzeugt und in die MOT-Vakuumkammer überführt wird. Klassischerweise wird durch eine kleine Öffnung oder ein Röhrchen zwischen einem Teil der Vakuumkammer mit hohem Druck und einem Teil mit niedrigem Druck zunächst ein Atomstrahl mit thermischen Atomen erzeugt und dann durch einen Zeeman-Slower, welcher einen gegenläufigen Laserstrahl und ein passendes Magnetfeld verwendet, abgebremst. Dieses Schema wird von bestehenden ATTA Anlagen verwendet. Für mit Laserkühlung relativ leicht zugängliche Elemente wie Alkalimetalle wurden seit den 1990er-Jahren alternative Konzepte entwickelt, bei denen ein Atomstrahl aus dem Hintergrundgas

durch eine zweidimensionale magneto-optische Falle (2D-MOT) [Die+98; CRU06] gebildet oder eine 2D-MOT seitwärts geladen wird [Tie+09; Dör+13]. Dies hat bei vergleichbaren Effizienzen zu einer erheblichen Reduzierung der Komplexität und auch der Dimensionen der experimentellen Aufbauten geführt und geht so weit, dass beispielsweise für Rubidium kommerzielle Komplettlösungen erwerbbar sind. Am ATTA Experiment des ZNF wurde unter Beteiligung des Autors dieser Arbeit ausführlich untersucht, ob ein 2D-MOT Konzept für Krypton praktikabel ist [Woe+19]. Das Ergebnis dieser Untersuchungen ist, dass es mit den vorhandenen VUV-Strahlungsquellen nicht möglich ist, im 2D-MOT Volumen eine ausreichend hohe Dichte an metastabile Atomen zu erzeugen und die Gesamteffizienz folglich zu klein ist.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde deshalb ein neuer Ansatz gewählt, welcher einen Zeeman-Slower mit optischer Anregung kombiniert. Der Vorteil des Zeeman-Slowsers im Vergleich zur 2D-MOT ist hier, dass ein größer Teil der in den metastabilen Zustand angeregten Atomen eingefangen und so eine größere Gesamteffizienz erreicht werden kann. Zugleich gibt es aufgrund der optischen Anregung keine Kreuzkontamination. Im Zentrum dieser Dissertation steht die Erzeugung des metastabilen Krypton-Atomstrahls für die Verwendung in dem nachfolgenden Zeeman-Slower. Dabei liegt eine zentrale Zielsetzung darin, neben der experimentellen Umsetzung auch eine Simulation zu entwickeln, welche es in Zukunft ermöglicht, durch zusätzliche Optimierung der Anlage die Effizienz zu steigern. Da die Anregung in den metastabilen Zustand nicht durch eine Gasentladung, sondern optisch umgesetzt wird, ist es möglich vor der Anregung ein hoch entwickeltes Kapillarsystem zu verwenden, welches allein durch die Geometrie den Strahl formt. Moderne Fertigungstechniken ermöglichen Systeme aus 10^8 Kapillaren mit Öffnungsdurchmessern der einzelnen Kapillaren im μm -Bereich. Solche Systeme werden in dieser Arbeit untersucht und das Potenzial bewertet. Ein weiterer wichtiger Aspekt ist die Zirkulation des Gases im Vakuumsystem und die Drücke, die sich unter verschiedenen Betriebsbedingungen einstellen. Deshalb wurden die Vakuumsysteme hier detailliert nachgestellt und der Teilchenfluss durch diese simuliert. Zum Schluss werden dann vollständige Systeme zur Bildung eines metastabilen Atomstrahls vermessen und simuliert.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt:

- **Kapitel 2** behandelt die Frage, wie Atomstrahlen durch Kapillaren geformt werden. Dazu wird eine analytische Beschreibung und die Methodik, mit der die Strahlformung in dieser Arbeit simuliert wird, erläutert.
- **Kapitel 3** stellt die Simulationsergebnisse zur Strahlformung durch Kapillaren dar und vergleicht sie zum einen mit theoretischen und zum anderen mit

experimentellen Ergebnissen aus der Literatur. Dabei geht es insbesondere darum, ein realistisches Bild von der Gültigkeit der Simulation zu erhalten.

- **Kapitel 4** erweitert die Betrachtung auf metastabile Atomstrahlen und deren Vermessung. Dazu werden eigene durchgeführte Messungen mit vier verschiedenen Kapillarsystemen an zwei unterschiedlichen experimentellen Aufbauten vorgestellt und analysiert. Zudem wird eine entwickelte Simulation des gesamten Strahl-Erzeugungssystems vorgestellt und anhand der Messungen validiert.
- **Kapitel 5** fasst die Ergebnisse zusammen.

Atomstrahlformung durch Kapillaren – Theorie und Simulationsmethodik

Als Erstes steht die Frage im Mittelpunkt, wie durch Kapillaren Atomstrahlen geformt werden können. Mit Blick auf die angestrebte Anwendung in einem Aufbau zur Ultraspurenanalyse von Krypton-Isotopen hängt es von vielen Faktoren und insbesondere von den nachfolgenden Baugruppen ab, ob ein Atom schlussendlich gefangen wird. Wie in Abb. 2.1 exemplarisch dargestellt ist, gehören neben dem Öffnungswinkel, das Vorhandensein und die Implementierung optischer Kollimationsstufen, die Abbremsfähigkeit des Zeeman-Slowers in Strahlrichtung und schlussendlich die Einfangfähigkeit der dreidimensionalen magneto-optischen Falle (MOT) dazu. Auch die Anregungswahrscheinlichkeit in den metastabilen Zustand und dessen Überlebenswahrscheinlichkeit, die in Kapitel 4 untersucht werden, sind entscheidende Faktoren. Tendenziell steigt aber die Anzahl der Atome, die gefangen werden können, je mehr Atome mit kleinen Austrittswinkeln vorhanden sind. Deshalb wird, abgestimmt mit den anderen Einflussgrößen wie dem Atomfluss, eine möglichst schmale Winkelverteilung angestrebt. Das Ziel dieses und auch des nächsten Kapitels ist es, ein Verständnis darüber zu erlangen, welche Atomstrahl-Eigenschaften unter welchen Bedingungen zu erwarten sind. Auch für die spätere Modellierung und Optimierung des Gesamtaufbaus ist die Kenntnis der Eigenschaften des von einem Kapillarsystem erzeugten Atomstrahls wichtig. Zunächst wird die Dynamik bei der Atomstrahlformung durch eine Kapillare anhand einer analytischen Beschreibung dargestellt und wichtige Größen herausgearbeitet. Zusätzlich wurden eigene Simulationen durchgeführt. Die entsprechende Methodik, sowie einige Voruntersuchungen werden ebenfalls in diesem Kapitel vorgestellt. Die theoretischen Beschreibungen sind grundsätzlich auch auf Moleküle anwendbar, welche aber nicht Zentrum dieser Arbeit stehen, weshalb nur von Atomstrahlen die Rede ist.

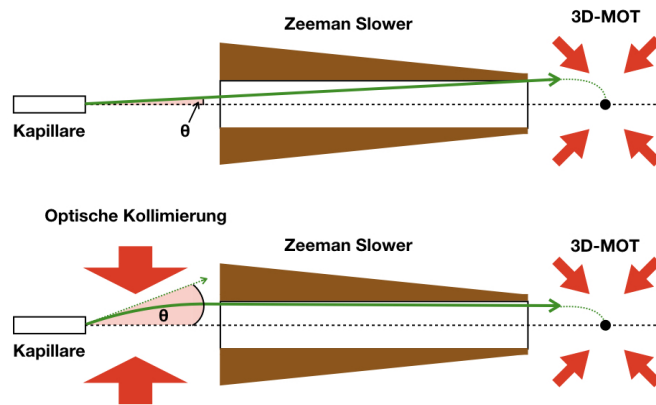


Abb. 2.1: Skizzenhafte exemplarische Trajektorien in einem Aufbau zur Ultrapurenanalyse mit einem Austrittswinkel aus dem Kapillarsystem θ , einem Zeeman-Slower, einer dreidimensionalen magneto-optischen Falle (3D-MOT) und mit (unten) und ohne (oben) optischer Kollimation.

2.1 Grundsätzliche Funktionsweise und Größen

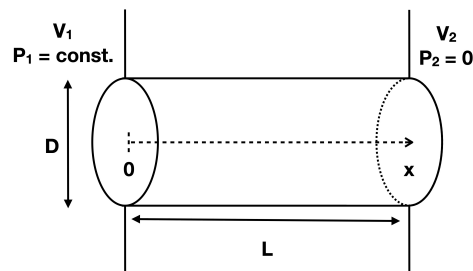


Abb. 2.2: Relevante Größen einer Kapillare, die zwei Volumina V_1 und V_2 verbindet.

Ein als Kapillare bezeichnetes zylinderförmiges Röhrchen zwischen einem Volumen V_1 mit hohem Druck und einem Volumen V_2 mit niedrigem Druck erzeugt einen Atomstrahl. Die Kapillare ist, wie in Abb. 2.2 skizziert, durch die Länge L , den Durchmesser D und deren Länge-Breite Verhältnis $\Gamma = L/D$ charakterisiert. Es gilt außerdem $L > D$ und Atome treten nur aus V_1 in die Kapillare ein, da der Druck in dem Volumen V_2 und folglich der Atomfluss von der Seite als vernachlässigbar angenommen wird. Mehrere Kapillaren können zu einem Array kombiniert werden, welches im Folgenden allgemein als Kapillarsystem bezeichnet wird. Die charakteristischen Größen des von einem Kapillarsystem erzeugten Atomstrahls hängen von den geometrischen Eigenschaften und dem Druck p_1 vor dem Kapillarsystem

ab. Auf Basis der charakteristischen Größen der Kapillare (Länge und Durchmesser) und der mittleren freien Weglänge zwischen Atom-Atom-Stößen λ werden verschiedene Druckregime unterschieden [Luc13, Kap. 8] und dafür zwei dimensionslose Parameter, genannt Knudsen-Zahlen, eingeführt:

$$Kn_D = \lambda/D \text{ und } Kn_L = \lambda/L. \quad (2.1)$$

Es werden die drei folgenden Druckregime unterschieden:

$$\begin{aligned} Kn_L > 1 &: \text{molekularer Bereich,} \\ Kn_L < 1 \text{ und } Kn_D > 1 &: \text{Übergangs-/Zwischenbereich,} \\ Kn_D < 1 &: \text{viskoser Bereich.} \end{aligned} \quad (2.2)$$

Die mittlere freie Weglänge λ in einem Gas, welches aus nur einer Gasart mit dem Atomdurchmesser d besteht, ist gegeben durch [Jou18, Kap 2.3]

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}\pi d^2 n}. \quad (2.3)$$

Für ein Edelgas wie Krypton gilt für die Teilchendichte n die Näherung des idealen Gases:

$$n = \frac{p}{k_B T}. \quad (2.4)$$

Hier wird für den Druck p der Druck p_1 vor der Kapillare verwendet, T ist die Temperatur und k_B die Boltzmann-Konstante.

Solange die mittlere freie Weglänge der Atome λ größer ist als die Länge der Kapillare, also $Kn_L > 1$, spielen Atom-Atom-Stöße eine untergeordnete Rolle und die Dynamik wird praktisch ausschließlich durch die Wandstöße bestimmt. Der Bereich, in dem Atom-Atom-Stöße vernachlässigt werden können, wird als *molekulare Strömung*, *molekularer Bereich* oder auch *Einzelteilchen-Strömung* bezeichnet. Im Zwischenregime $Kn_L < 1$ und $Kn_D > 1$ spielen Atom-Atom-Stöße zwar eine zunehmende Rolle, aber die Dynamik wird weiterhin vor allem durch die Wandstöße bestimmt. Ab $Kn_D < 1$ dominieren Stöße zwischen Atomen zunehmend. Falls nicht anders erwähnt, wird davon ausgegangen, dass Atom-Atom Stöße vernachlässigt werden können.

Zur Bewertung des geformten Atomstrahls sind insbesondere der Atomfluss und die Winkelverteilung innerhalb des Atomstrahls von Interesse. Der Atomfluss entspricht der pro Zeiteinheit aus der Kapillare austretenden Atomanzahl, welche als Durchfluss $\dot{q}$ bezeichnet wird. Häufig wird dies auch mit Effusion oder Ausströmen bezeichnet. Für die Berechnung des Durchflusses ist es notwendig, die Durchlaufwahrschein-

lichkeit W zu kennen. Dies ist die Wahrscheinlichkeit für ein Atom, welches die Eintrittsfläche der Kapillare passiert, auch die Ausgangsfläche zu passieren [Jou18, Kap 8.1 Gl 46]. Für ein Kapillarsystem, welches aus identischen Kapillaren besteht, gilt:

$$\dot{q} = \dot{q}_0 \cdot W \cdot N_K . \quad (2.5)$$

Der Atomfluss $\dot{q}$ ist also das Produkt aus dem Atomfluss in eine einzelne Kapillare $\dot{q}_0$, der Durchlaufwahrscheinlichkeit W und der Anzahl identischer Kapillaren N_K . Der Atomfluss durch die Öffnung einer einzelnen Kapillare $\dot{q}_0$ entspricht dem Atomfluss durch eine Blende von einem Behälter mit einem Druck p in einen Behälter mit einem vernachlässigbaren Druck und ist gegeben durch:

$$\dot{q}_0 = \frac{1}{4} A \bar{c} n . \quad (2.6)$$

Hierbei ist A die Öffnungsfläche der Blende respektive die Öffnung einer Kapillare und $\bar{c}$ die mittlere Geschwindigkeit, welche gegeben ist durch

$$\bar{c} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}} , \quad (2.7)$$

wobei m die Masse der Teilchen ist.

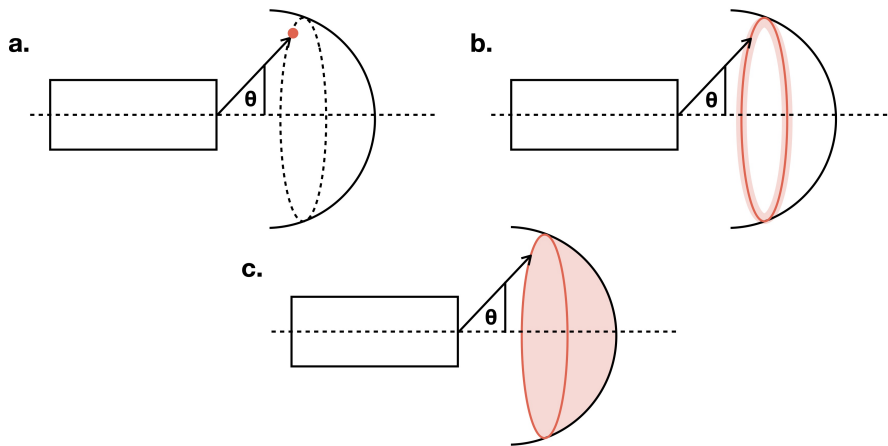


Abb. 2.3: Veranschaulichung der verschiedenen Repräsentationen der Austrittswinkelverteilung Gl. (2.8) (a), Gl. (2.9) (b) und Gl. (2.10) (c) eines Atomstrahls aus einer Kapillare.

Die andere wichtige charakteristische Größe des Atomstrahls, die Winkelverteilung, beschreibt die Verteilung der Öffnungswinkel der aus der Kapillare austretenden Atome. Der Öffnungswinkel Ω setzt sich dabei aus den zwei Komponenten θ und ϕ zusammen. Für die Beschreibung der Winkelverteilung gibt es verschiedene Optionen

oder auch Repräsentationen, die im Folgenden dargestellt werden. Die grundlegende Winkelverteilungs-Größe ist die Intensitätsverteilung abhängig vom Austrittswinkel $I(\theta, \phi)$, welche die Anzahl der Atome pro Sekunde im Raumwinkelement $d\omega$ darstellt und in Abb. 2.3 (a) illustriert ist. Wird die relative Intensitätsverteilung

$$j(\theta, \phi) = I(\theta, \phi)/I(0) \quad (2.8)$$

betrachtet, so ist $j(0) = 1$. Bei einem um die Strahlachse symmetrischen Kapillarsystem, ist auch die Winkelverteilung um den Azimutalwinkel ϕ symmetrisch und die Information zur Beurteilung der Winkelverteilung steckt in der Abhängigkeit vom Winkel mit der Strahlachse, dem Polarwinkel θ . Deshalb wird ϕ hier i. d. R. nicht mehr explizit angegeben. Eine praktisch relevante Größe ist der in Abb. 2.3 (b) illustrierte Anteil der Atome, die in einem endlichen Polarwinkelbereich $\theta \pm \Delta\theta$ aus der Kapillare austreten. Hierfür muss die Intensität über ϕ integriert werden:

$$J(\theta, \Delta\theta) = \frac{\int_0^{2\pi} \int_{\theta-\Delta\theta}^{\theta+\Delta\theta} I(\theta', \phi') d\omega}{\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} I(\theta', \phi') d\omega} . \quad (2.9)$$

Das Raumwinkelement ist gegeben durch $d\omega = \sin \theta d\theta d\phi$.

Zur Abschätzung des einfangbaren Anteils in einem Atomstrahl ist besonders der Anteil der Atome von Interesse, die unter einem Polarwinkel von 0 bis θ austreten. Dies ist in Abb. 2.3 (c) illustriert und lässt sich bestimmen, indem die Intensitätsverteilung $I(\theta, \phi)$ über den relevanten Raumwinkelbereich integriert wird:

$$F(\theta) = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\theta I(\theta', \phi') d\omega}{\int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} I(\theta', \phi') d\omega} . \quad (2.10)$$

Eine weitere skalare Größe, die häufig verwendet wird, ist die volle Halbwertsbreite H . Dies ist die volle Breite, bei der die Intensität $I(\theta)$, respektive die relative Intensität $j(\theta)$, auf die Hälfte abgefallen ist.

2.2 Theoretische Beschreibung einer Blende

Zunächst wird der Fall einer kreisförmigen Blende betrachtet, welche den Extremfall $L = 0$ darstellt, und die charakteristischen Größen ausgerechnet [Luc13, Kap 2.3].

Die Winkelverteilung eines durch eine Blende mit der Öffnungsfläche A und dem Durchmesser D erzeugten Atomstrahls ist gegeben durch:

$$I(\theta) = \frac{1}{4\pi} n A \bar{c} \cos \theta = \frac{1}{4} \bar{c} n \left(\frac{D}{2} \right)^2 \cos \theta. \quad (2.11)$$

Nach Gl. (2.8) ergibt sich die relative Intensitätsverteilung:

$$j_{\text{Blende}}(\theta) = I(\theta)/I(0) = \cos \theta. \quad (2.12)$$

In den folgenden theoretischen Berechnungen und Simulationen ist dies zugleich die Eintrittsverteilung in die Kapillare. Eine Blende erzeugt also einen Atomstrahl mit einer Winkelverteilung, welche proportional zu $\cos \theta$ ist und eine volle Halbwertsbreite von

$$H = 2 \cos^{-1}(1/2) = 120^\circ \quad (2.13)$$

aufweist. Die Verteilung der Atome, die in einem endlichen Polarwinkelbereich $\theta \pm \Delta\theta$ aus der Kapillare austreten, ist nach Gl. (2.9) gegeben durch:

$$J_{\text{Blende}}(\theta) = \int_0^{2\pi} j_{\text{Blende}}(\theta, \phi) d\phi = \frac{1}{2} n A \bar{c} \cos \theta \sin \theta. \quad (2.14)$$

In Abb. 2.4 sind $j(\theta)$ und $J(\theta)$ dargestellt. Es wird deutlich, dass es ein wenig irreführend sein kann, nur $j(\theta)$ zu betrachten. Zwar ist die Intensität für kleine Winkel nahe der Strahlachse groß, aber aufgrund des kleinen Raumwinkels für kleine Winkel θ ist der Anteil am gesamten Atomstrahl, welcher durch $J(\theta)$ ausgedrückt wird, am kleinsten. Exemplarisch wurde der Anteil der Atome mit einem Winkel $\leq 3^\circ$ eingezeichnet. Er beträgt nach Gl. (2.10):

$$F(0, 3^\circ) \approx 0,27\%. \quad (2.15)$$

Da alle Atome, die in die Blende hinein fliegen, auch durchkommen, beträgt die Durchlaufwahrscheinlichkeit $W_{\text{Blende}} = 1$. Damit ist der Durchfluss direkt das Integral der Intensitätsverteilung $I(\theta)$ über den gesamten Raumwinkel:

$$\dot{q}_{\text{Blende}} = \int_{\omega} I_{\text{Blende}}(\theta) d\omega = \frac{n A \bar{c}}{4}. \quad (2.16)$$

Es ist festzuhalten, dass eine Blende eine ineffiziente Strahlquelle darstellt. Sie definiert aber die untere Grenze, auf deren Basis Verbesserungen durch ein Kapillarsystem bewertet werden können.

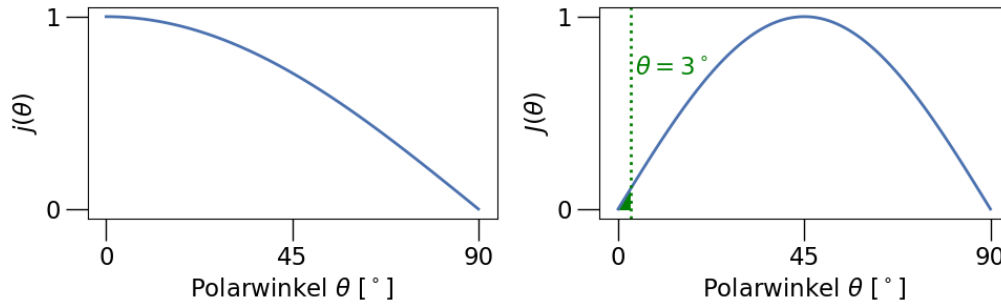


Abb. 2.4: Winkelverteilung eines Atomstrahls aus einer Blende $j_{\text{Blende}}(\theta)$ (links, s. Gl. (2.12)) und über ϕ integriert (rechts, s. Gl. (2.14)). Vergleiche schematisch Darstellung in Abb. 2.3 (a) mit links und Abb. 2.3 (b) und (c) mit rechts.

2.3 Theoretische Beschreibung einer Kapillare

Wird anstatt der Blende nun eine endlich ausgedehnte Kapillare $L > 0$ verwendet, so wird die Winkelverteilung mit zunehmender Länge und bei festgehaltenem Durchmesser zunehmend schmaler. In den folgenden Abschnitten wird erläutert, warum dies der Fall ist. Grundsätzlich lassen sich die Atome, die aus einer Kapillare austreten, in zwei Kategorien unterteilen. Zum einen die Atome, deren Winkel zur Hauptachse beim Eintritt so klein ist, dass sie ohne einen Stoß mit der Wand die Kapillare passieren. In der Veranschaulichung Abb. 2.5 ist deren maximaler Winkel θ_1 . Zum anderen gibt es die Atome, die mindestens einmal mit der Kapillarwand stoßen. Hier ist es entscheidend, an welcher Stelle sie das letzte Mal stoßen. Wie an θ_1 , θ_2 und θ_3 in Abb. 2.5 verdeutlicht, wird der mögliche Winkel größer, je näher am Ausgang der letzte Stoß stattfindet. Bei größeren Γ -Werten sind immer größere Abschnitte der Kapillare weit vom Ausgang entfernt.

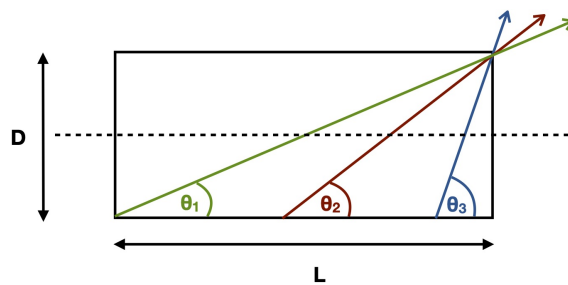


Abb. 2.5: Veranschaulichung des maximalen Austrittswinkels abhängig von der Position in der Kapillare.

Für die finale Winkelverteilung muss bestimmt werden, wie viele Atome an der jeweiligen Position streuen und den Ausgang erreichen, was wiederum maßgeblich von der Dynamik innerhalb der Kapillare abhängt. Im molekularen Strömungsbe-

reich ($Kn_L > 1$) wird diese durch die Wand-Atom-Wechselwirkung bestimmt. Für die analytische Beschreibung wird die idealisierte Annahme getroffen, dass jede Wand-Atom-Wechselwirkung diffus, also unabhängig von der Ursprungsrichtung ist. Wie in Abschnitt 3.2 untersucht, bestätigt sich diese Annahme in guter Näherung experimentell. Die neue Richtung wird durch die von Knudsen [Knu09] hergeleitete und als Lambertsches Kosinusetz bezeichnete Wahrscheinlichkeitsverteilung bestimmt:

$$ds = d\omega \pi \cos(\alpha). \quad (2.17)$$

Hierbei ist ds die Wahrscheinlichkeit, dass das Teilchen die Oberfläche in einem Raumwinkelement $d\omega$ verlässt, das mit dem Normalvektor der Fläche einen Winkel α bildet. Folglich können sich Atome nicht nur vorwärts durch die Kapillare bewegen, sondern auch rückwärts. Dies kann zu mehrfachen Richtungswechseln führen, mit der Folge, dass sich die Atome lange in der Kapillare aufhalten und auch wieder aus der Eintrittsöffnung hinaustreten können. Die Durchlaufwahrscheinlichkeit ist somit auch nicht mehr 1 wie bei einer Blende.

Flächenstoßrate in der Kapillare Sowohl die Winkelverteilung $j(\theta)$ als auch die Durchlaufwahrscheinlichkeit W hängen von dem Verlauf der Streurate auf den Kapillarwänden in der Kapillare ab, weshalb diese eine zentrale Bedeutung einnimmt und zuerst betrachtet wird. Da die Kapillarwand in dieser Theorie keine Atome absorbiert, ist die Rate der auf die Wand treffenden Atome, hier als Flächenstoßrate $\eta(x)$ bezeichnet, gleichzeitig die Rate der streuenden Atome.

Die Flächenstoßrate wird abhängig von ringförmigen infinitesimalen Oberflächenelementen auf der Innenwand der Kapillare an der Position x auf der Hauptachse betrachtet (s. Abb. 2.2). Grundsätzlich gibt es an einem Ort x in der Kapillare zwei unterschiedliche Beiträge zur Flächenstoßrate. Zum einen gibt es die „Erststoßbeiträge“ von Teilchen, die in die Kapillare eingetreten sind und mit der Wand an einer Position x stoßen. Dieser Beitrag sinkt mit zunehmendem x . Der zweite Beitrag wird durch Teilchen verursacht, die schon an einem anderen Ort in der Kapillare einen Stoß mit der Wand durchlaufen haben und am betrachteten Ort x ein weiteres Mal stoßen. Die mathematische Formulierung dieser vorgestellten Überlegungen wurde von Clausing [Cla32] entwickelt. Die beschriebenen Beiträge lassen sich in folgendem, als Clausing Integral bezeichneten Ausdruck [Luc13, Kap. 8.2] [Cer88] abbilden:

$$\eta(X) = \eta_0(X) + \int_0^X \eta(X') K |X - X'| dX' \quad (2.18)$$

mit

$$\eta_0(X) = \frac{X^2 + 1/2}{(X^2 + 1)^{1/2}} - X \quad (2.19)$$

und

$$K(X) = 1 - \frac{X^3 + 3X/2}{(X^2 + 1)^{3/2}}. \quad (2.20)$$

Zum besseren Vergleich unterschiedlicher Kapillar-Geometrien wurde hier der dimensionslose Parameter X eingeführt, sodass X/Γ von 0 bis 1 läuft. Der Term $\eta_0(X)dX$ beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass der erste Stoß mit der Kapillarwand zwischen X und $X + dX$ stattfindet. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Atom, welches einen ersten Stoß bei X' durchlaufen hat, den nächsten Stoß zwischen X und $X + dX$ haben wird, wird durch $K(|X - X'|)dX$ beschrieben.

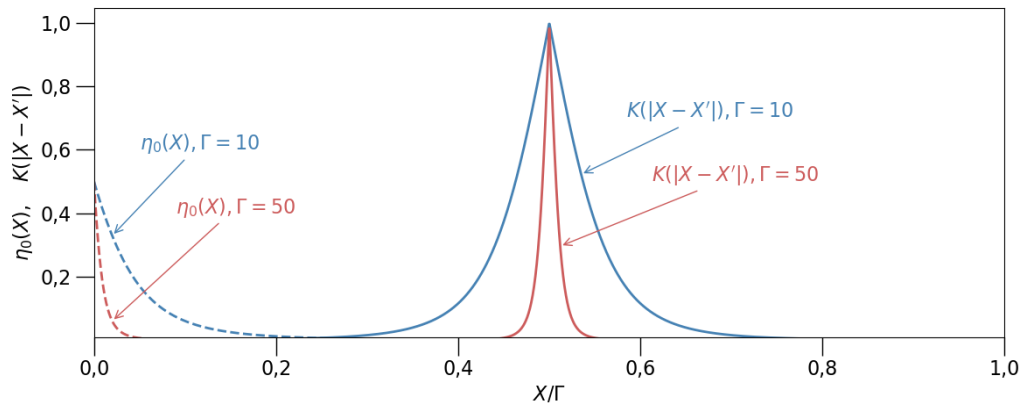


Abb. 2.6: Beiträge des Clausius Integrals $\eta_0(X)$ (Gl. (2.19)) und $K(X)$ Gl. (2.20) für eine Kapillare mit $\Gamma = 10$ (blau) und $\Gamma = 50$ (rot).

Die beiden in dem Integral enthaltenen Funktionen sind in Abb. 2.6 exemplarisch für $\Gamma = 10$ und $\Gamma = 50$ aufgezeichnet. Der Erststoßbeitrag $\eta_0(X)$ sinkt bezogen auf die relative Kapillarlänge schnell ab und bei großen Γ schneller. Ebenso wird auch die auf die Länge bezogene relative Reichweite des Mehrfachstoß-Beitrags $K(X)$ kleiner mit steigendem Länge-Breiten-Verhältnis. Dieser ist aber symmetrisch, da von einer diffusen Streuung ausgegangen wird. Dies veranschaulicht, dass mit zunehmendem Γ die Teilchen näher am Anfang ihren ersten Stoß vollziehen und auch in kürzeren Abständen ein weiteres Mal stoßen. Entsprechend wird die durchschnittliche Stoßzahl pro Atom stark ansteigen.

Die Clausius Integral Gleichung $\eta(X)$ (Gl. (2.18)) ist eine Fredholm-Integralgleichung zweiter Ordnung, für die es keine exakte analytische Lösung, aber gute analytische Näherungslösungen, und einige tabellarischen numerische Lösungen gibt. Für eine ausführliche Übersicht sei auf [Luc13, Kap. 8.3] und [OK70] verwiesen. Um die

komplexen Lösungen praktikabler zu machen, wird ausgenutzt [Smo10], dass für lange Kapillaren die Flächenstoßrate in guter Näherung durch eine lineare Funktion angenähert werden kann. Diese Annahme wird anhand der durchgeführten Simulationen in Kapitel 3 überprüft werden. Die lineare Funktion wird auf die Rate der in die Kapillare eintretenden Teilchen normiert und vollständig durch die Flächenstoßrate auf der Kapillarwand an der Position des Eingangs ξ_1 und an der Position des Ausgangs ξ_0 beschrieben. Mit der von Olander [OK70] verwendeten Skalierung kann die Funktion in der folgenden Form geschrieben werden:

$$\eta(X) = \xi_1 - (\xi_1 - \xi_0)X. \quad (2.21)$$

Damit ist die Differenz $\xi_1 - \xi_0$ zugleich die Steigung des linearen Abfalls der Flächenstoßrate. [OK70] leitet für den Grenzfall langer Kapillaren folgende Werte für die Flächenstoßrate an Eingang und Ausgang her:

$$\begin{aligned} \xi_1 &= 1, \\ \xi_0 &= \frac{2}{3\Gamma}. \end{aligned} \quad (2.22)$$

Dieser beschriebene Grenzfall und genauere tabellarische Ergebnisse für unterschiedliche Γ -Werte werden anhand der durchgeführten Simulationen überprüft.

Winkelverteilungen Mit der Beschreibung der Flächenstoßrate kann nun die Winkelverteilung aufgestellt werden. Hier äußert sich wieder die oben beschriebene Fallunterscheidung. Teilchen können die Kapillare nur unter der folgenden Bedingung ohne Stoß passieren:

$$\tan(\theta) < \frac{D}{L} = \Gamma^{-1}. \quad (2.23)$$

Hiermit lässt sich der Grenzparameter p einführen, der einem Grenzwinkel θ_c entspricht, bis zu dem Teilchen zur Winkelverteilung beitragen, die ohne Wandstoß die Kapillare passiert haben:

$$p = \Gamma \tan(\theta_c) = 1. \quad (2.24)$$

Bis zu dem Grenzparameter $p \leq 1$ setzt sich die Winkelverteilung somit sowohl aus Atomen zusammen, die ohne Wandstoß die Kapillare durchquert haben, als auch aus solchen, die mindestens einen Wandstoß durchlaufen haben. Ist der Winkel größer, sodass der Grenzparameter $p > 1$ ist, liefern nur noch Atome einen Beitrag, die mindestens einen Wandstoß hatten. Folgende Gleichungen aus [OK70], welche ursprünglich durch [Cla30] hergeleitet wurden, beschreiben die jeweiligen Winkelbereiche:

1. Fall $p \leq 1$:

$$j(\theta) = \xi_0 \cos \theta + (2/\pi) \cos \theta \left\{ (1 - \xi_0) R(p) + \frac{2}{3} (\xi_1 - \xi_0) [1 - (1 - p^2)^{\frac{3}{2}}] / p \right\} \quad (2.25)$$

mit

$$R(p) = \arccos(p) - p\sqrt{1 - p^2} \quad (2.26)$$

2. Fall $p > 1$:

$$j(\theta) = \xi_0 \cos \theta + \left(\frac{4}{3\pi\Gamma} \right) (\xi_1 - \xi_0) (\cos^2 \theta / \sin \theta) \quad (2.27)$$

Beide Fallunterscheidungen der Winkelverteilung weisen jeweils einen Term proportional zur Enddichte ξ_0 auf, welcher mit einer $\cos \theta$ Abhängigkeit und damit einer breiten Verteilung beiträgt. Daraus lässt sich folgern, je größer die relative Dichte am Ende des Rohres, desto breiter wird die Winkelverteilung. R beschreibt die Winkel der Teilchen, die ohne Wandstöße durch die Kapillare fliegen. Der Term kommt deshalb nur in der ersten Gleichung vor. Beide Fallunterscheidungen besitzen noch einen Term proportional zur Steigung $\xi_1 - \xi_0$ (s. Gl. (2.21)), welcher die Winkelverteilung durch die Verteilung der Flächenstoßrate innerhalb der Kapillare ausdrückt. Konkrete Winkelverteilungen für verschiedene Γ -Werte werden in Abschnitt 3.1 gezeigt und mit der Simulation verglichen. Für den Grenzfall $\Gamma \rightarrow \infty$ ist die Winkelverteilung durch die zweite Gleichung gegeben. Wie [Luc13, S. 208] zeigt, ergibt sich für die Halbwertsbreite folgende Näherung:

$$H \approx \frac{16}{3\pi\Gamma}. \quad (2.28)$$

Bei $\Gamma = 100$ ergibt dies $H \approx 1^\circ$, was einer erheblichen Steigerung im Vergleich zu der oben berechneten Halbwertsbreite einer Blende von 120° entspricht. Allerdings wird bei hohen Γ -Werten auch die Durchlaufwahrscheinlichkeit zunehmend reduziert.

Durchlaufwahrscheinlichkeit Für eine sehr präzise Berechnung kann die Durchlaufwahrscheinlichkeit aus einer Integration über die Flächenstoßrate $\eta(X)$ direkt ermittelt werden [Cer88]. Die genaueste, dem Autor bekannte Lösung sind die numerischen Lösungen von [MTL07]. Die in Tabellenform angegebenen Lösungen werden beim Vergleich mit den eigenen durchgeführten Simulationen als Referenz verwendet. Über eine Integration der Winkelverteilung, welche schon die Annahme einer linear verlaufenden Flächenstoßrate enthält, kann ebenfalls die Durchlauf-

wahrscheinlichkeit bestimmt werden. Für den Fall $\Gamma \rightarrow \infty$ ergibt sich mit der oben vorgestellten Winkelverteilung [OK70]:

$$W = \xi_0 + \frac{2}{3}(\xi_1 - \xi_0)/\Gamma. \quad (2.29)$$

Werden die Parameter für den Grenzfall langer Kapillare Gl. (2.22) eingesetzt, ergibt sich in erster Ordnung:

$$W = \frac{4}{3\Gamma} + \mathcal{O}((1/\Gamma)^2). \quad (2.30)$$

Dieses asymptotische Verhalten für lange Kapillaren wurde auch durch [Knu09] empirisch gefunden und durch [DeM57] bewiesen. Für eine genauere kontinuierliche Lösung, welche einen Kompromiss aus Praktikabilität und Genauigkeit bietet, sei auf die von Santeler [San86] gefundene Kurvenanpassung an numerische Lösungen verwiesen:

$$W_{Santeler} = \frac{2(2\Gamma + 7)}{3\Gamma^2 + 18\Gamma + 14}. \quad (2.31)$$

Die Durchlaufwahrscheinlichkeit sinkt also mit steigendem Γ -Wert. Beispielsweise erreichen nach der Näherung von Santeler bei $\Gamma = 100$ nur 0,75 % der in die Kapillare eintretenden Teilchen auch den Ausgang. Auch die vorgestellten Ergebnisse für die Durchlaufwahrscheinlichkeiten werden für verschiedene Γ -Werte mit den Ergebnissen der durchgeführten Simulation verglichen.

Drücke oberhalb des molekularen Bereichs Es wurden auch Modellierungen entwickelt, welche Atom-Atom-Stöße miteinbeziehen [GW60; Zug66; OK70; Jou18; Luc13]. Für die Erzeugung eines intensiven Atomstrahls ist vor allem der Bereich $Kn_D > 1$ von Interesse. Wird die freie Weglänge kleiner als der Durchmesser $Kn_D < 1$, bricht die kinetische Betrachtung zusammen und der Fluss wird viskos. In diesem Bereich wird die Halbwertsbreite vermutlich stark ansteigen. Für sehr hohe Drücke nähert sie die Winkelverteilung der einer Blende und damit einer Kosinus-Verteilung mit einer Halbwertsbreite von 120° an. Im Folgenden wird wieder die Beschreibung von [OK70] verwendet. Grundsätzlich wird hier der Einfluss von Atom-Atom-Stößen über die Knudsen-Zahl Kn_L (s. Gl. (2.1) quantifiziert. Im molekularen Bereich reicht die Flächenstoßrate auf den Kapillarwänden zur vollständigen Beschreibung. Für den Fall von Atom-Atom-Stößen muss auch die Teilchendichte im Volumen der Kapillare mit einbezogen werden. Olander kommt schlussendlich auf folgende Erweiterungen seiner Gleichungen:

1. Fall $p \leq 1$:

$$j(\theta) = \xi_0 \cos \theta + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\xi_0 \cos \theta \exp(\delta'^2)}{\delta'} \times \left\{ \frac{R(p)}{2} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\xi_1}{\xi_0} \delta' \right) - \operatorname{erf}(\delta') \right] + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \delta' \frac{\xi_1}{\xi_0} \left(\frac{1}{\xi_1} - 1 \right) \exp \left(-(\delta' \xi_1 / \xi_0)^2 \right) + S(p) \right\}. \quad (2.32)$$

2. Fall $p > 1$:

$$j(\theta) = \xi_0 \cos \theta + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\xi_0 \cos \theta \exp(\delta'^2)}{\delta'} S(1), \quad (2.33)$$

mit

$$S(p) = \int_0^p \sqrt{1-z^2} \left(\operatorname{erf} \left\{ \delta' \left[1 + \frac{\gamma z}{\tan \theta} \left(\frac{\xi_1}{\xi_0} - 1 \right) \right] \right\} - \operatorname{erf}(\delta') \right) dz, \quad (2.34)$$

und mit

$$\delta' = \delta / \sqrt{\cos \theta}, \quad (2.35)$$

sowie

$$\delta = \sqrt{\frac{1}{2Kn_L} \frac{\xi_0^2}{\xi_1 - \xi_0}}. \quad (2.36)$$

Im Vergleich zum Fall ohne Atom-Atom Stöße können nun Atome, die sich auf der Hauptachse bewegen, durch eine Kollision weggestoßen werden. Das Streuen aus der Kapillare durch Atom-Atom Stöße wird durch Gl. (2.34) beschrieben. Wenn Kn_L groß wird, lässt sich δ vernachlässigen und die Gleichungen Gl. (2.32) und Gl. (2.33) werden zu Gl. (2.25) und Gl. (2.27). In Abschnitt 3.2 und Abschnitt 4.3 wird anhand von Messungen in Kombination mit Simulationen untersucht, wie gut die vorgestellte Modellierung die Winkelverteilung beschreibt.

2.4 Simulationsmethodik

Wie im vorherigen Abschnitt deutlich wurde, ist es selbst für ein simples und symmetrisches System wie eine zylinderförmige Kapillare eine enorme Herausforderung die Dynamik zu beschreiben und makroskopische Größen zu berechnen. Im Rahmen dieser Arbeit sollen unter anderem komplexe experimentelle Aufbauten und andere Atom-Wand-Wechselwirkungen mit einbezogen werden. Hier bieten sich Monte-Carlo Simulationen an, bei denen eine hohe Zahl von zufällig generierten Testteilchen erzeugt und deren Trajektorien durch ein dreidimensionales Vakuumsystem verfolgt

werden. Die errechneten Größen werden auf die tatsächlichen Teilchenzahlen hochskaliert und statistische Aussagen über die Eigenschaften eines Systems erhalten. Die Methode wird zunehmend interessanter, da es mit steigenden Rechenkapazitäten die Möglichkeit gibt, komplexe Geometrien immer präziser zu simulieren.

Grundsätzlich kommen zwei Typen von numerischen Simulationen für diesen Anwendungsfall infrage: die Direct Simulation Monte Carlo (DSMC) Methode und die Test Particle Monte Carlo (TPMC) Methode. Bei der DSMC Methode [Bir94] wird eine große Anzahl an Teilchen und deren Interaktion gleichzeitig berechnet. Die Grundidee ist, dass Bewegung und Kollisionen der Testteilchen entkoppelt werden können, wenn die Zeitabstände kleiner sind als die mittlere Kollisionszeit. Dadurch werden alle Teilchen einen entsprechenden Zeitschritt frei bewegt und im Anschluss einige zufällig für eine Kollision ausgewählt. Zusätzlich wird die Geometrie in Zellen aufgeteilt, in denen ungefähr gleiche Strömungseigenschaften vorherrschen. In den einzelnen Zellen und in den diskreten, abgeleiteten Zeitschritten werden dann die Teilchen-Trajektorien berechnet [Jou18, Kap. 9]. Bei der TPMC Methode [Mal20, Kap. 6.3] werden Kollisionen zwischen Teilchen vernachlässigt. Dadurch wird die Simulation ereignisgesteuert und für ein generiertes Teilchen nicht die Bewegung im nächsten Zeitschritt, sondern der nächste Kollisionspunkt mit einer Oberfläche berechnet. Da jede Testteilchen-Trajektorie unabhängig berechnet wird, ist diese schon generell weniger speicher- und rechenaufwendige Methode auch noch sehr einfach parallelisierbar. Weil der Schwerpunkt dieser Arbeit auf dem tendenziell niedrigeren Druckbereich liegt, wurde hier die TPMC Methode verwendet. Für die Druckbereiche, in denen Atom-Atom Stöße eine Rolle spielen, können häufig trotzdem auf anderem Wege Aussagen getroffen werden.

2.4.1 Test Particle Monte Carlo Simulation mit Molflow+

Im Zentrum, der in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen, steht die am CERN entwickelte Open-Source-Software Molflow+ oder kurz Molflow. Dessen Algorithmus und Funktionsweise wird in [Ady14] und [Mal20] ausführlich beschrieben und im Folgenden kurz vorgestellt. Die prinzipielle Funktionsweise ist auch auf andere TPMC Programme übertragbar. In Molflow wird das Vakuumsystem durch Polygone, die als Facetten bezeichnet werden, repräsentiert. Die Visualisierung einer exemplarischen Simulation mit einigen Trajektorien ist in Abb. 2.7 dargestellt. Die Facetten sind in Schwarz eingezeichnet. Das dort simulierte System einer Kapillare besteht aus 20 Facetten, die die Kapillarwände bilden und jeweils einer Eingangs- und Ausgangsfacette. Facetten repräsentieren also nicht nur die Wände der Vakuumkammer, sondern können auch als Atomquelle, als Pumpe oder als eine Facette,

die lokal Messgrößen aufzeichnet, konfiguriert werden. Die Atome werden auf den entsprechenden Facetten mit zufälligen Eigenschaften generiert und ihre Trajektorien durch das System so lange berechnet, bis sie z. B. durch eine Pumpe aus dem System entfernt werden. Wo und mit welchen Eigenschaften Teilchen generiert werden und was bei einer Interaktion mit einer Facette passiert, wird durch die (physikalischen) Eigenschaften bestimmt, die den Facetten zugewiesen werden. Die initiale Konfiguration des zu simulierenden Systems sieht damit folgendermaßen aus:

1. Die Geometrie des Vakuumsystems wird mithilfe von Facetten nachgestellt.
2. Virtuelle Facetten werden zur lokalen Bestimmung von Messgrößen hinzugefügt (optional).
3. Den Facetten werden Eigenschaften zugewiesen.

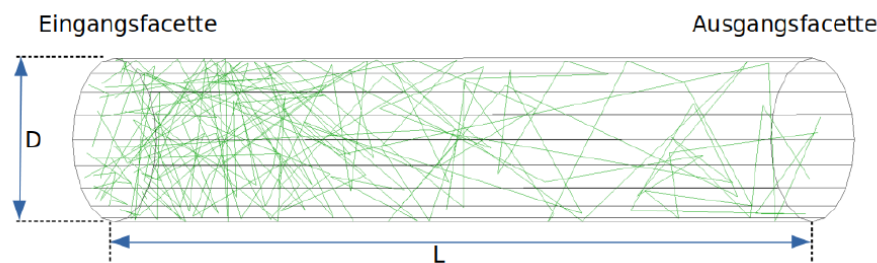


Abb. 2.7: Darstellung einer simulierten Kapillare in Molflow+ mit exemplarischen Teilchen-Trajektorien in Grün.

Eigenschaften der Facetten Die Funktion einer Facette kann über eine Reihe von physikalischen Eigenschaften definiert werden, die einer Facette zugewiesen werden. Die Wichtigsten, mit den von Molflow verwendeten Begriffen in Klammern, werden im Folgenden vorgestellt.

Desorption (Outgasing): Eine Facette kann Teilchen desorbieren, was dem Umkehrvorgang von Absorption entspricht. Dies ist die einzige Möglichkeit Teilchen zu generieren. Der Grund kann thermisches Ausgasen, eine andere Art von Atomquelle oder der Übergang von anderen separat simulierten Teilen des Vakuumsystems sein. Für ein neu generiertes Teilchen werden Richtung und Geschwindigkeit zufällig generiert. Dabei wird die Richtung über eine im Folgenden in der Regel als Winkelverteilung bezeichnete Verteilung bestimmt. Der Regelfall ist das Kosinusetz Gl. (2.17), es ist aber auch möglich, beliebige andere Verteilungen zu definieren. Die Geschwindigkeit wird aus einer Maxwell-Boltzmann-Wahrscheinlichkeitsverteilung

gezogen. Hierfür ist es notwendig eine Facetten-Temperatur zu definieren. Hier ist wichtig anzumerken, dass die Winkelverteilung auf eine Oberfläche umgerechnet werden muss, da Teilchen nicht in einem Volumen, sondern auf einer Oberfläche erzeugt werden.

Opazität / Undurchlässigkeit (Opacity): Trifft ein Teilchen auf eine Facette, wird aus der für die Facette definierten Opazität berechnet, ob eine Interaktion, also Absorption oder Reflexion stattfindet. Die Opazität ist also die Wahrscheinlichkeit für eine Interaktion. Bei einer Opazität von 0 wird bei keinem auftreffenden Teilchen die Trajektorie beeinflusst, bei einer Opazität von 1 wird jedes auftreffende Teilchen als Stoß oder Absorption registriert. Die Wände der Vakuumkammer oder der Kapillare haben eine Opazität von 1. Es kann aber auch sinnvoll sein, vollständig transparente Facetten zum Messen von lokalen Parametern zu definieren. Wird etwa ein Kapillarsystem mit der danach folgenden Vakuumkammer simuliert, kann der Ausgang des Kapillarsystems eine transparente Facette sein, auf der Größen wie die Winkelverteilung aufgezeichnet werden können, ohne dass die Teilchenbewegung beeinflusst wird.

Haftungskoeffizient / Pumpgeschwindigkeit (Sticking coefficient): Wird bei dem Auftreffen eines Teilchen auf eine Facette eine Interaktion festgestellt, wird im nächsten Schritt aus dem Haftungskoeffizient κ bestimmt, ob es absorbiert oder reflektiert wird. Der Haftungskoeffizient, also die Wahrscheinlichkeit für eine Absorption ist ebenfalls im Intervall $0 \leq \kappa \leq 1$ definiert. Bei $\kappa = 1$ ist die Wahrscheinlichkeit einer Absorption 100 %. Makroskopisch verbindet er die Fläche einer Facette A mit dem Saugvermögen:

$$S = \kappa \frac{1}{4} \bar{c} A . \quad (2.37)$$

Hier ist $\bar{c}$ die mittlere Geschwindigkeit der Teilchen. In Abschnitt 4.2 wird gezeigt, wie aus den Herstellerangaben der Vakuumpumpen ein Haftungskoeffizient für schwere Gase abgeschätzt werden kann.

Reflexion (Reflection): Für den Fall einer Interaktion und keiner Absorption wird das Teilchen reflektiert und es werden die neuen Richtungskomponenten und ein neuer Geschwindigkeitsbetrag bestimmt. Je nach Definition der Facette ist die Reflexion rein diffus, das heißt die neue Richtung wird unabhängig von der vorherigen Richtung nach dem Kosinusetz bestimmt Gl. (2.17). Zu einer definierbaren Wahrscheinlichkeit kann auch auf Basis der vorherigen Richtung eine Spiegelreflexion stattfinden. Die Geschwindigkeit wird ebenfalls entweder neu aus der Maxwell-Boltzmann-Wahrscheinlichkeitsverteilung gezogen oder im Falle nicht vollständiger

Thermalisierung zu einer definierbaren Wahrscheinlichkeit auf Basis der ursprünglichen bestimmt.

2.4.2 Ermittlung relevanter Größen

Im Folgenden wird erläutert, wie einige für diese Arbeit relevante physikalische Größen aus der Simulation bestimmt werden. Insbesondere für den Vergleich der theoretischen Ergebnisse sind Durchlaufwahrscheinlichkeit, Flächenstoßrate auf den Kapillarwände und die Winkelverteilung interessant.

Während der Simulation werden für jede Facette i die drei Ereigniszähler hochgezählt:

1. Bei jeder Desorption, die von einer Facette i ausgeht, wird der Zähler für Desorption $n_{i,\text{des}}$ um Eins erhöht.
2. Bei jeder Kollision eines Atoms mit einer Facette wird deren Stoßzähler $n_{i,\text{stoß}}$ um Eins erhöht.
3. Wird das Teilchen nicht reflektiert, sondern absorbiert, wird der Zähler für Absorptionen $n_{i,\text{abs}}$ hochgezählt.

Für ein simuliertes Kapillarsystem (s. Abb. 2.7) lässt sich aus dem Verhältnis am Eingang desorbierte Teilchen $n_{\text{Eingang,des}}$ zu am Ausgang absorbierte Teilchen $n_{\text{Ausgang,ab}}$ die Durchlaufwahrscheinlichkeit W berechnen:

$$W = \frac{n_{\text{Ausgang,abs}}}{n_{\text{Eingang,des}}} . \quad (2.38)$$

Wenn nicht relative Größen, sondern absolute Größen wie Druck oder Flächenstoßrate berechnet werden sollen, muss die Anzahl simulierter Teilchen n_{des} zum tatsächlichen Atomfluss $\dot{q}_{\text{real}}$, der in das simulierte System pro Sekunde eintritt, ins Verhältnis gesetzt werden:

$$K_{\text{real/sim}} = \frac{\dot{q}_{\text{real}}}{\sum n_{i,\text{des}}} . \quad (2.39)$$

Damit ergibt sich unter anderem die mittlere Flächenstoßrate auf eine Facette i zu

$$\eta_{i,\text{sim}} = \frac{n_{i,\text{stoß}} \cdot K_{\text{real/sim}}}{A_i} , \quad (2.40)$$

mit der Fläche der Facette A_i . Für die Berechnung der anderen physikalischen Größen sei auf [Ady16, Kap. 2.8] verwiesen. Zusätzlich können Facetten auf Kosten

der statistischen Genauigkeit auch unterteilt werden, um eine höhere räumliche Auflösung für die berechneten Größen zu erhalten. Darüber hinaus können Stichproben von Teilchen, die auf Facetten treffen, mit Orts- und Geschwindigkeitsvektoren genommen und separat weiter verarbeitet werden. Dies wird in Kapitel 4 zur Simulation von Fluoreszenzmessungen metastabiler Atomstrahlen verwendet.

Winkelverteilungen und Flächen-Volumen Umrechnung Zusätzlich zu den vorkonfigurierten Zählern für jede Facette können Histogramme für einzelne Facetten erstellt werden, die die Verteilungen der auf die Facette auftreffenden Atome aufzeichnen. Die Winkelverteilung lässt sich am effektivsten bestimmen, indem von jedem Teilchen, das eine Facette passiert, der Winkel zur Normalen bestimmt und in ein Histogramm eingetragen wird. Diese Methode wird zum Vergleich mit der Theorie verwendet. Da die so gemessene Anzahl an Kollisionen in dem entsprechenden Winkelintervall auf einer Oberfläche und nicht in einem Volumen bestimmt wurde, entspricht die so bestimmte Winkelverteilung der Verteilung $J(\theta)$ (s. Gl. (2.9)). Um aus den Simulationsergebnissen auf $j(\theta)$ (s. Gl. (2.8)) zu schließen, muss jeder Winkel durch den entsprechenden Raumwinkel mit $\sin(\theta)$ normalisiert werden. Eine äquivalente Methode ist es, die Winkelverteilung über die Anzahl an Treffern auf als Halbkugel angeordneten Facetten, deren Mittelpunkt auf der Ausgangsfacette liegt, zu bestimmen. Zur Veranschaulichung wurden in einer Simulation, die in Abb. 2.8 dargestellt ist, eine Halbkugel in Facetten unterteilt. Die Ausdehnung der Kapillare wird hier vernachlässigt. Die Facetten decken dabei gleich große Intervalle von $\Delta\theta$ ab und jeder Ring ist unterteilt in eine gleich große Zahl Facetten. Zur Bestimmung von $J(\theta)$ muss für ein Winkelintervall $\Delta\theta$ über den gesamten Ring summiert werden.

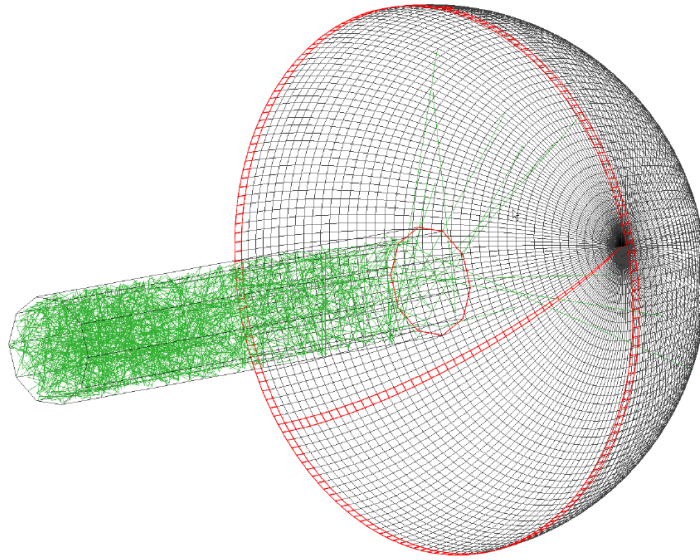


Abb. 2.8: Eine Kapillare bestehend aus 10 Facetten und einem Γ -Wert von 10 mit einigen exemplarische Trajektorien (grün). Die Halbkugel ist jeweils in 182 Facetten pro Ring unterteilt. Auf einem Ring (rot) sind alle Facetten gleich groß, von Ring zu Ring (ebenfalls rot) werden sie mit zunehmenden θ größer.

2.4.3 Ablauf der Simulation

Nachdem die Initialisierung, die Kernfunktionalität und die Berechnung von Größen eingeführt wurden, wird der gesamte Aufbau und Ablauf einer Simulation im Folgenden vorgestellt. Die Beschreibung orientiert sich an den Simulationen, wie sie in Abschnitt 3.1 durchgeführt wurden. Ein Flussdiagramm des Ablaufs der Simulation ist in Abb. 2.9 dargestellt. Ziel ist es, einen großen Parameterraum zu simulieren und insbesondere hohe, und damit rechenaufwendige Γ -Werte zu bestimmen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde um Molflow+ herum eine Steuerungssoftware geschrieben, welche Molflow+ in einem virtuellen Bildschirm und mit virtuellem Mauszeiger/Tastatur konfiguriert und startet. Vorteil der eigens entwickelten Steuerungssoftware ist, dass es möglich war, die Simulation auf einem Rechencluster auszuführen (s. Abb. 2.9 blaue Kästen). Zwar wird von den Entwicklern aktiv an einer Entkopplung gearbeitet [Ady19], aber zum Zeitpunkt, indem die Simulationen dieser Arbeit durchgeführt wurden, setzt Molflow für die Konfiguration und Ausführung eine laufende grafische Oberfläche voraus, über die alle Ein- und Ausgaben vorgenommen werden müssen.

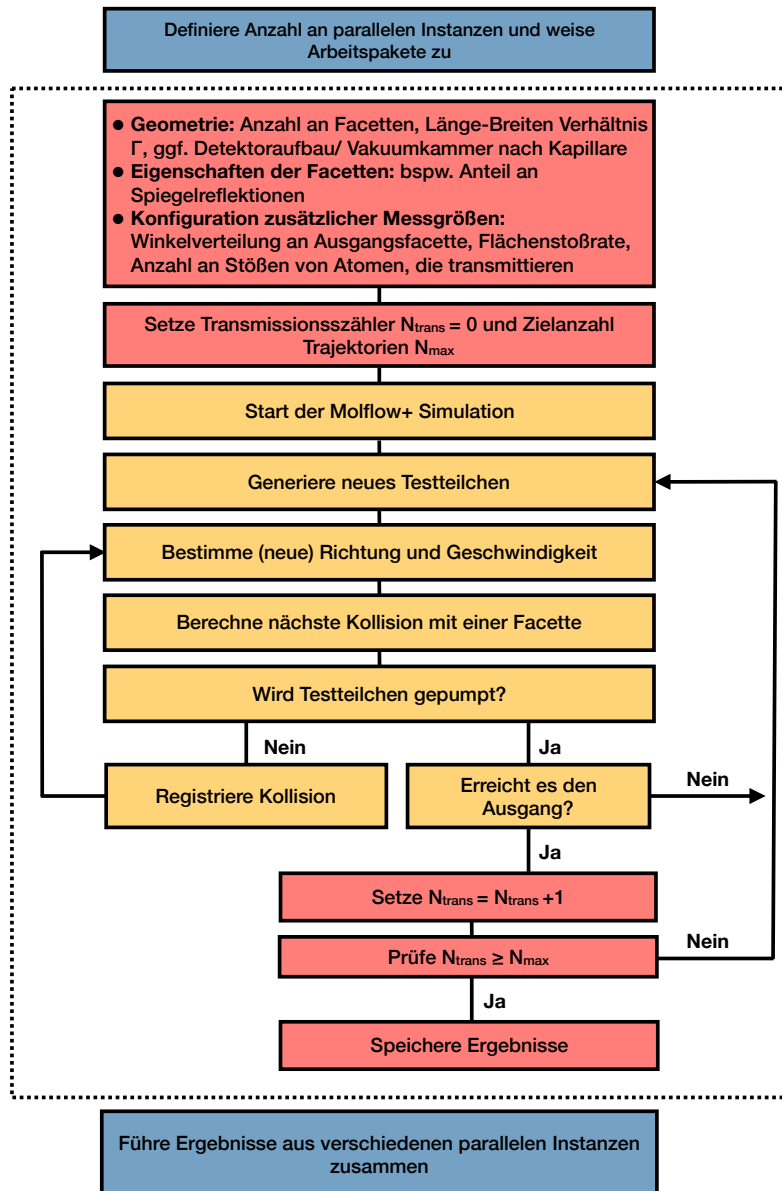


Abb. 2.9: Flussdiagramm des Simulationsablaufs mit der farblichen Kennzeichnung Parallelisierung (blau), Steuerungsprogramm (rot) und Molflow+ (orange). Der gestrichelte Kasten beschreibt den Ablauf innerhalb einer Instanz.

Grundsätzlich läuft die Simulation bis eine bestimmte Anzahl an Transmission $N_{\max}$ erreicht ist. Diese Zahl eignet sich besser als Abbruchkriterium als z. B. die Anzahl generierter Testteilchen, da die wichtigsten Messgrößen vor allem von der Anzahl an Transmissionen abhängen.

Ablauf einer Simulation:

1. Zunächst wird die zu betrachtende Geometrie geladen. Dies beinhaltet die Kapillare selbst mit gegebener Länge und Durchmesser sowie einer Anzahl an Facetten. Je nach Untersuchungsszenario kommen ggf. noch ein simulierter Messaufbau und angrenzende Vakuumkammern dazu.
2. Dann werden die Eigenschaften der Facetten und die Messparameter konfiguriert, siehe Abschnitt 2.4.1 und Abschnitt 2.4.2.
3. Es wird die Zielanzahl an Transmission $N_{\max}$ definiert und der Transmission-Zähler N_{trans} auf null gesetzt.
4. Start der Simulation.
5. Testteilchen werden an einem zufälligen Ort auf den desorbierenden Facetten erzeugt. Die Rate für jede einzelne Facette ist proportional zur eingestellten Rate und der Facetten-Fläche.
6. Wie in Abschnitt 2.4.1 beschrieben, bekommen die Testteilchen eine (neue) Richtung und Geschwindigkeit. Beide Größen werden jeweils aus ihrer definierten Verteilungsfunktion gezogen.
7. Im nächsten Schritt wird nun der nächste Schnittpunkt der Trajektorie mit einer Facette berechnet. Dann wird bestimmt, ob es durch die Facette hindurchfliegt oder ob es mit der Facette wechselwirkt (Kollision).
8. Bei einer Kollision wird bei der betreffenden Facette der Stoßzähler um einen erhöht und bestimmt, ob das Teilchen absorbiert (gepumpt) oder ob es reflektiert wird. Die Wahrscheinlichkeit einer Absorption wird durch den Haftungskoeffizient κ repräsentiert.
 - Im Falle einer Reflexion wird nach der für die Facette definierten Verweilzeit eine neue Richtung und Geschwindigkeit (zufällig) bestimmt (zurück zu Punkt 6).
 - Bei Absorption wird der Absorptionszähler der Facette um einen Zähler erhöht. Die Berechnung der Trajektorie für das betreffende Teilchen ist abgeschlossen.

- Falls es den Ausgang erreicht, handelt es sich um eine Transmission und der Zähler N_{trans} wird um Eins erhöht. Dann wird geprüft, ob $N_{\text{trans}} \geq N_{\text{max}}$ ist. Ist dies der Fall, ist die Simulation beendet, und die Ergebnisse werden gespeichert.
- Ist $N_{\text{trans}} < N_{\text{max}}$ oder der Ausgang wurde nicht erreicht (keine Transmission) wird ein neues Testteilchen generiert (zurück zu Punkt 5).

2.4.4 Voruntersuchungen: Statistische und geometrische Unsicherheiten

Bei dem Vergleich zwischen der Theorie der Kapillaren und den Simulationen sind zwei Unsicherheiten zu erwähnen. Die statistische Unsicherheit und die Unsicherheit bei der geometrischen Nachbildung mit Polygonen.

Im Vergleich zu realen physikalischen Drücken sind auch einige Millionen Trajektorien immer noch vergleichsweise wenig. Beispielsweise sind typische Flüsse aus der Kapillare 10^{15} Atome/s. Dies sind um viele Größenordnungen größere Teilchenzahlen, als in Simulationen realisierbar sind. In Test Particle Monte Carlo Simulationen repräsentiert deshalb jedes Testteilchen eine bestimmte Anzahl an $K_{\text{real/sim}}$ (s. Gl. (2.39)) realen Teilchen. Es stellt sich die Frage, bei welchen simulierten Teilchenzahlen statistisch signifikante Aussagen getroffen werden können.

Wie in [Mal20, Kap. 6.3.6] und [Sue96] dargestellt, wird mit jeder berechneten Trajektorie ein neues unabhängiges Experiment mit einem binären Ja oder Nein Ergebnis durchgeführt. In der Regel ist ein positives Ergebnis, dass ein Testteilchen mit einer Facette kollidiert. Bei N durchgeführten Experimenten ist n die Anzahl an positiven Ereignissen. Die Standardabweichung für positive Ergebnisse auf Facette i ist damit:

$$\sigma_i = \sqrt{n_i \left(1 - \frac{n_i}{N}\right)}. \quad (2.41)$$

Für eine große Anzahl generierter Testteilchen N ergibt sich folgende relative Standardabweichung:

$$\frac{\sigma_i}{n_i} \approx \sqrt{\frac{1}{n_i}}. \quad (2.42)$$

Da $n_i \propto N$, skaliert σ_i ebenfalls mit $1/\sqrt{N}$. Es ist also eine große Zahl an Testteilchen N notwendig, um die statistischen Schwankungen klein zu halten. Weil die Unsicherheit der zu bestimmenden Größen Durchlaufwahrscheinlichkeit und Winkelverteilung der austretenden Teilchen von der Anzahl an transmittierenden

Atomen abhängt, wird diese als Abbruchkriterium für die Simulation verwendet. Zur Abschätzung der nötigen Anzahl an zu berechnenden Teilchen wird ein empirischer Ansatz gewählt.

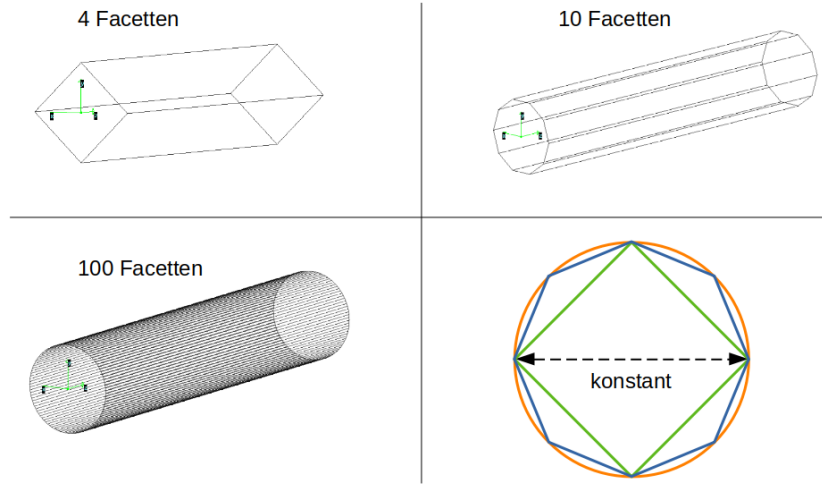


Abb. 2.10: Nachbildung eines Zylinders mit einer unterschiedlichen Anzahl an Facetten.

Ein Zylinder kann mit Polygonen nicht perfekt nachgebildet, sondern nur angenähert werden. Exemplarisch ist dies in Abb. 2.10 verdeutlicht. Ein unterschiedlicher Grad an Rundheit wird zu einem unterschiedlichen Atomstrahl führen und es stellt sich die Frage, was für eine Facettenanzahl N_F sinnvoll ist. Dafür wird in diesem Abschnitt die Abhängigkeit von der Facettenzahl untersucht. Zum Vergleich verschiedener Systeme wird zunächst der Durchmesser D eines Polygons als Abstand zwischen zwei gegenüberliegenden Ecken definiert. Die Fläche des Polygons lässt sich wie folgt berechnen [Bar11, Kap. 4.1.5.2]:

$$A_{Polygon} = \frac{N_F (D/2)^2}{2} \sin\left(\frac{2\pi}{N_F}\right). \quad (2.43)$$

Es ist zu erwarten, dass die Abweichung zum Zylinder mit der relativen Flächendifferenz zum Umkreis des Polygons skaliert:

$$\begin{aligned} \Delta A &= \frac{A_{Umkreis} - A_{Polygon}}{A_{Umkreis}} = \frac{\pi - (1/2) N_F \sin\left(\frac{2\pi}{N_F}\right)}{\pi} \\ &= 1 - \frac{N_F}{2\pi} \sin\left(\frac{2\pi}{N_F}\right). \end{aligned} \quad (2.44)$$

Für den Fall $N_F \rightarrow \infty$ gilt $\sin(2\pi/N_F) \rightarrow 2\pi/N_F$ und die Flächendifferenz verschwindet: $\Delta A \rightarrow 0$. Die relative Flächendifferenz zum Umkreis ist in Abb. 2.11 (gestrichelte Linie, linke y-Achse) für eine Anzahl an Facetten von 4 bis 10^4 darge-

stellt. Es ist zu erkennen, dass die relative Flächenabweichung ΔA mit der Anzahl an Facetten stark abfällt.

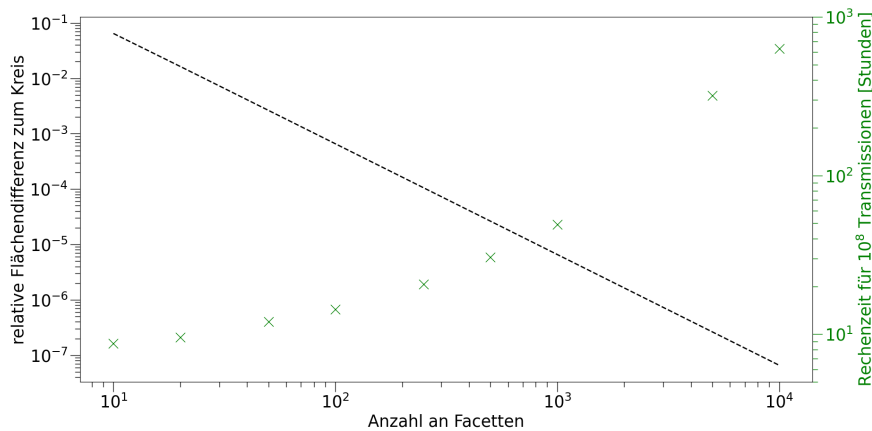


Abb. 2.11: Gestrichelt Linie mit linker Achse: Flächenabweichung zum Einheitskreis und Grüne Kreuze mit rechter Achse: prognostizierte Dauer zur Berechnung von 10^8 Trajektorien auf einem Intel i5-8600 Prozessors für eine Kapillare mit einem Längen-Breiten-Verhältnis $\Gamma = 50$.

Allerdings werden durch eine höhere Anzahl an Facetten auch die Simulationen rechenaufwendiger und es steigt die Zeit, um die gleiche Anzahl an z. B. Transmissionen zu berechnen. Dies liegt daran, dass das Leistungsverhalten der Simulation dadurch bestimmt wird, wie schnell der Algorithmus zur Strahlenverfolgung die nächste Kollision mit einer Facette berechnet. Je mehr Facetten in einer simulierten Geometrie vorhanden sind, desto länger dauert die Simulation. Zur Untersuchung der Abhängigkeit der Rechenzeit von der Facettenanzahl wurde eine Kapillare mit $\Gamma = 50$ mit verschiedenen Facettenanzahlen N_F zwischen 10 und 1000 für jeweils etwa 10 Minuten auf einem Desktop PC simuliert. Aus der in dieser Zeit erreichte Anzahl an Transmissionen wurde dann die nötige Zeit zur Berechnung von 10^8 Transmissionen prognostiziert. Die Ergebnisse sind in Abb. 2.11 (grüne Kreuze, rechte y-Achse) dargestellt. Die nötige Dauer zur Berechnung steigt ab einigen hundert Facetten ungefähr linear mit der Anzahl an Facetten. Bei einer Facettenzahl von 1000 würde eine Berechnung auf einem Desktop PC schon mehrere Wochen dauern. Für einen größeren Γ -Wert wird die Zeit noch weiter steigen, weil die Durchlaufwahrscheinlichkeit sinkt und zusätzlich jedes Testteilchen innerhalb der Kapillare häufiger stößt (s. Abschnitt 2.3). Bei einer Kapillare mit 10 Facetten erhöht sich die prognostizierte Rechenzeit bei einer Steigerung von $\Gamma = 10 \rightarrow 1000$ um das mehrere Tausendfache. In Kapitel 4 wird eine Kapillare mit $\Gamma = 1000$ experimentell untersucht, weshalb es das Ziel ist, Γ -Werte bis zu diesem Wert zu simulieren.

Zur Abwägung zwischen Rechenaufwand, geometrischer Genauigkeit und statistischer Unsicherheit wurden Simulationen mit einer etwa gleichen Transmissionsanzahl $N_{\max} = 1 \cdot 10^8$ und unterschiedlichen Facettenanzahlen durchgeführt. Um auszuschließen, dass durch den gewählten Γ -Wert ein Bias entsteht, wurden diese zusätzlich mit den vier Γ Werten 10, 20, 50 und 100 durchgeführt. Untersucht werden die Kenngrößen Durchlaufwahrscheinlichkeit und Winkelverteilung. Als Güteparameter wird jeweils die relative Differenz zu dem Ergebnis mit einer großen Anzahl an Facetten gewählt. Für die Durchlaufwahrscheinlichkeit wird $\Delta W_{F=5k}$ definiert, welches die relative Differenz zur Durchlaufwahrscheinlichkeit einer simulierten Kapillare mit $N_F = 5000$ Facetten ist:

$$\Delta W_{N_F=5000}(N) = \frac{|W_{N_F=5000} - W_{N_F=N}|}{W_{N_F=5000}}. \quad (2.45)$$

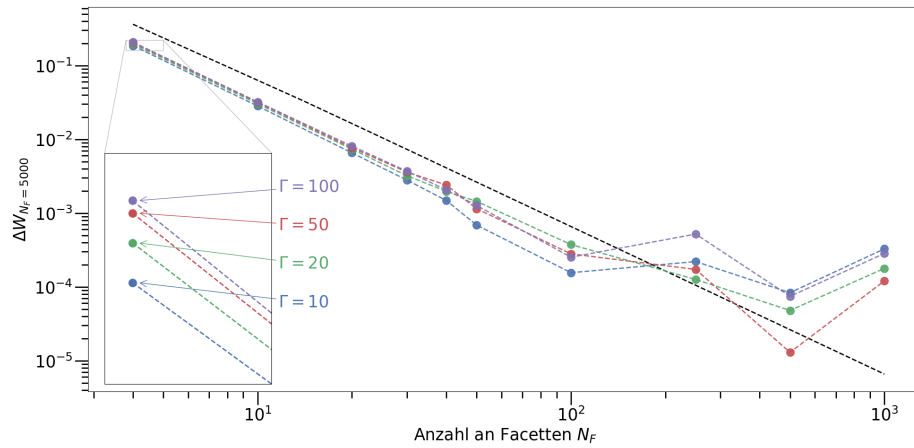


Abb. 2.12: Relative Differenz zur Durchlaufwahrscheinlichkeit zu einer Kapillare mit 5000 Facetten (s. Gl. (2.45)) für Kapillaren mit Länge-Breiten Verhältnissen Γ von 10 (blau), 20 (grün), 50 (rot) und 100 (lila). Die Verbindung zwischen den Punkten dient nur der Lesbarkeit. Die schwarz-gestrichelte Linie beschreibt ΔA s. Gl. (2.44).

Die Ergebnisse sind in Abb. 2.12 in doppelt logarithmischer Form dargestellt. Zusätzlich ist auch die relative Flächendifferenz ΔA (s. Gl. (2.44)) als schwarze gestrichelte Linie eingezeichnet. Es ist zu erkennen, dass der qualitative Verlauf von ΔW für alle vier Länge-Breite Kurven bis zu einer Facettenzahl von $N_F \approx 100$ dem von ΔA entspricht. Bis dahin wird die Differenz vor allem durch die unterschiedliche Geometrie verursacht. Danach bestimmen zunehmend statistische Unsicherheiten die Differenz, die hierbei mit $< 10^{-3}$ abgeschätzt wird. Wie an dem Vergrößerungsfenster ersichtlich ist, nimmt die Abweichung tendenziell mit größerem Γ zu. Die

Abweichungen sind aber nicht sehr groß und die untersuchten Γ -Werte liegen nahe, dass diese Abweichung konvergiert.

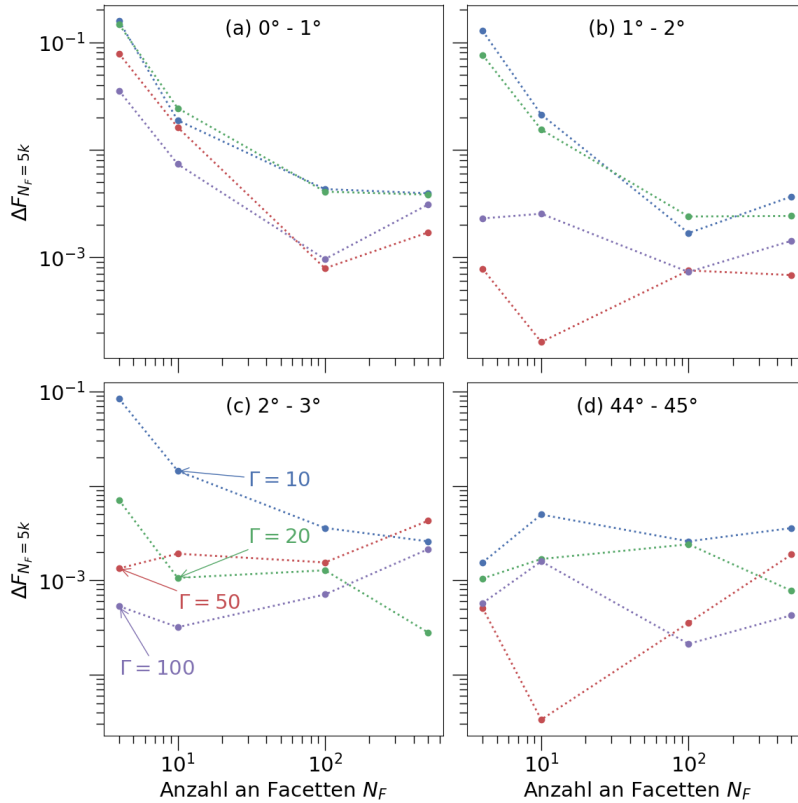


Abb. 2.13: Relative Differenz des Winkelanteils zu einer Simulation mit 5000 Facetten $\Delta F(\theta_1, \theta_2, x)_{N_F=5000}$ für vier verschiedene Intervalle 0° - 1° (a), 1° - 2° (b), 2° - 3° (c) und 44° - 45° (d) und jeweils die vier Länge-Breite Verhältnisse Γ von 10 (blau), 20 (grün), 50 (rot) und 100 (lila).

Auch die Winkelverteilung wurde auf diese Weise untersucht. Hier liegt der Fokus auf die von θ_1 bis θ_2 integrierte Winkelverteilung $F(\theta_1, \theta_2)$ Gl. (2.10), welche einen skalaren Wert ergibt und so anschaulich gegen die Entwicklung der Facettenzahl N_F dargestellt werden kann. Wieder wird die relative Differenz gegenüber einer Simulation mit $N_F = 5000$ Facetten verwendet, welche mit $\Delta F(\theta_1, \theta_2, x)_{N_F=5000}$ bezeichnet wird. In Abb. 2.13 sind die Ergebnisse für drei kleine Winkelintervalle (0° - 1°), (1° - 2°), (2° - 3°) und ein Intervall mit größerem Abstand von der Strahlachse (44° - 45°) dargestellt. Zunächst fällt auf, dass das Level der statistischen Unsicherheit deutlich höher liegt, als bei der Betrachtung der Durchlaufwahrscheinlichkeit. Dies ist auch zu erwarten, da die transmittierten Teilchen noch in Winkelintervalle von ca. 1° unterteilt werden. Bei einer gleichmäßigen Verteilung über alle Winkel würde man eine um $\sqrt{90} \approx 10$ höhere statistische Unsicherheit als bei der Betrachtung der Durchlaufwahrscheinlichkeit erwarten. Dies wird auch in etwa beobachtet. Die

Abhängigkeit von der Anzahl an Facetten zeigt sich vor allem in Winkelintervallen nahe der Strahlachse. Zeigen im Intervall (0° - 1°) in Abb. 2.13 (a) alle simulierten Länge-Breiten Verhältnisse eine Geometrieabhängigkeit, sind es im zweiten Intervall (b) nur noch die beiden kleineren Γ -Werte. Im dritten Intervall (c) erreicht auch die relative Differenz für $\Gamma = 20$ schneller das Niveau der statistischen Unsicherheit. Im Intervall 44° - 45° (d) ist keine Abhängigkeit von der Anzahl an Facetten erkennbar. Ab einer Facettenzahl von etwa 100 ist zu beobachten, dass die statistische Unsicherheit in allen untersuchten Intervallen die Geometrieabhängigkeit überdeckt und sie wird mit kleiner als $5 \cdot 10^{-2}$ abgeschätzt.

Schlussfolgerungen für die praktische Durchführung Gerade wenn Winkelverteilungen betrachtet werden, ist eine hohe Anzahl an Transmissionen nötig. Für einen präzisen Vergleich mit theoretischen Beschreibungen wurde eine Transmissionsanzahl von 10^8 als geeignet identifiziert. Ebenfalls sollte die Kapillare mit einer hohen Facettenanzahl von etwa 100 Facetten nachgebildet werden. Höhere Facettenanzahlen bringen bei dem gewählten Simulationsumfang nur Verbesserungen unterhalb der statistischen Unsicherheit. Mit diesen Parametern wurden umfangreiche Simulationen durchgeführt, die im nächsten Kapitel vorgestellt und mit den theoretischen Modellierungen verglichen werden.

Atomstrahlformung durch Kapillaren – Ergebnisse

Mit den Ergebnissen der Voruntersuchungen aus dem vorherigen Kapitel wurden Simulationen durchgeführt, die nun vorgestellt und mit der Theorie verglichen werden. Zur Beurteilung, inwiefern die Simulationen der Kapillarsysteme für die Beschreibung und Prognose tatsächlicher experimenteller Aufbauten verwendet werden können, werden im nächsten Schritt die Simulationen mit experimentellen Ergebnissen aus der Literatur verglichen. Dabei werden auch die Messungen selbst simuliert und die Gültigkeit der theoretischen Annahmen untersucht. Aufbauend auf den Ergebnissen zu Kapillarsystemen in diesem Kapitel werden dann im nächsten Kapitel vollständige Systeme zur Erzeugung metastabiler Atomstrahlen untersucht.

3.1 Vergleich Simulation und Theorie

Zunächst konzentrieren sich die Untersuchungen auf den simplen Fall einer vereinfachten Kapillare. Der wesentliche freie Parameter in der im letzten Kapitel vorgestellten theoretischen Beschreibung im molekularen Bereich ist das Länge-Breiten Verhältnis Γ . Für einen präzisen Vergleich mit analytischen und numerischen Lösungen wurden deshalb 29 Kapillarsysteme mit unterschiedlichen Γ -Werten über etwa drei Größenordnungen simuliert. Dies bildet den experimentell zugänglichen Bereich ab.

Auf Basis der Voruntersuchungen wurden die Kapillaren mit 100 Facetten simuliert. Dies stellt einen guten Kompromiss aus hoher Genauigkeit und akzeptabler Rechendauer, insbesondere für große Γ -Werte dar. Die Testteilchen werden auf der Eintrittsfacette der Kapillare mit einer Winkelverteilung gemäß der Austrittsverteilung einer Blende (Gl. (2.12)) generiert und bewegen sich so lange durch die Kapillare, bis sie die Eintritts- oder Austrittsfacette erreichen. Die Simulation wurde parallel auf einem Rechencluster ausgeführt, bis $N_{max} = 10^9$ (für $\Gamma \leq 10$) und $N_{max} = 10^8$ (für $\Gamma > 10$) Testteilchen die Austrittsfacette erreicht haben. Für $\Gamma < 10$ wurde mehr Transmissionen berechnet, damit die statistische Unsicherheit bei der

Flächenstoßrate klein bleibt. Aus der Simulation wurden verschiedene Größen bestimmt, darunter die Durchlaufwahrscheinlichkeit, die Austritts-Winkelverteilung und die Flächenstoßrate entlang der Länge der Kapillare. Als Vergleich mit der Theorie werden numerische Ergebnisse, welche häufig in Tabellenform vorliegen und Näherungslösungen herangezogen.

Durchlaufwahrscheinlichkeit Die Durchlaufwahrscheinlichkeit W beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass ein in die Kapillare eintretendes Teilchen, die Kapillare passiert, also am Ausgang austritt. Sie ermöglicht bei einem gegebenen Druck vor der Kapillare die Berechnung des Atomflusses durch diese. Die Ergebnisse der durchgeführten Simulation für die Durchlaufwahrscheinlichkeit W für verschiedene Γ -Werte sind in Abb. 3.1 (oben, rote Kreuze) dargestellt. Zusätzlich finden sich die genauen Zahlenwerte in Tab. 3.1. Dort ist zur Einschätzung der statistischen Genauigkeit ebenfalls angegeben, wie viele Testteilchen den Ausgang der Kapillare erreicht haben. Zusammen mit der berechneten Durchlaufwahrscheinlichkeit ergibt sich die Gesamtzahl an für den Γ -Wert berechneter Testteilchen-Trajektorien.

Zur Einschätzung über die Genauigkeit im Vergleich mit aufwendigen numerischen Lösungen des Clausius Integrals (s. Abschnitt 2.3), wurden die Ergebnisse aus [MTL07, Tab. 3], welche die genauesten dem Autor bekannten Lösungen darstellen, als graue Kreise eingezeichnet. Die relative Differenz zwischen den eigenen Simulationsergebnissen und den numerischen Ergebnissen in [MTL07] sind ebenfalls in Abb. 3.1 (unten, rote Kreuze) eingezeichnet und sind über den gesamten Γ -Bereich kleiner als $5 \cdot 10^{-4}$. Die verbliebene Abweichung liegt in dem aus den Voruntersuchungen aus Abschnitt 2.4.4 zu erwartenden Bereich. Für die experimentelle Praxis und die weiteren Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit sind die Ergebnisse ausreichend genau.

Zusätzlich sind in Abb. 3.1 (oben) auch die Näherung für lange Kapillaren Gl. (2.30) in Grün und die Näherungsformel von Santeler Gl. (2.31) in Blau eingezeichnet. Der Vorteil der Näherungsgleichungen ist, dass sich leicht für ein beliebiges Γ die Durchlaufwahrscheinlichkeit berechnen lässt. Analog zu den Ergebnissen der eigenen Simulationen sind in Abb. 3.1 (unten) auch die relativen Differenzen zu den numerischen Lösungen von [MTL07] eingezeichnet. Die Santeler Näherungslösung ist für die simple Form erstaunlich präzise und weist im untersuchten Bereich eine relative Abweichung von weniger als $1 \cdot 10^{-2}$ auf. Für Abschätzungen oder Rechnungen, die keine maximale Genauigkeit voraussetzen, ist diese hervorragend nutzbar. Die Genauigkeit der Näherungslösung für lange Kapillaren nimmt erwartungsgemäß mit steigendem Γ -Wert zu. Aber selbst für lange Kapillaren bis $\Gamma = 1000$, welche am

oberen Rand der experimentellen Realisierbarkeit sind, ist die Lösung von Santeler deutlich genauer und nur minimal komplexer. Zusammenfassend gibt es für die Durchlaufwahrscheinlichkeit eine hohe Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der eigenen Monte-Carlo-Simulationen, den numerischen Lösungen des Clausing Integrals und den Näherungslösungen.

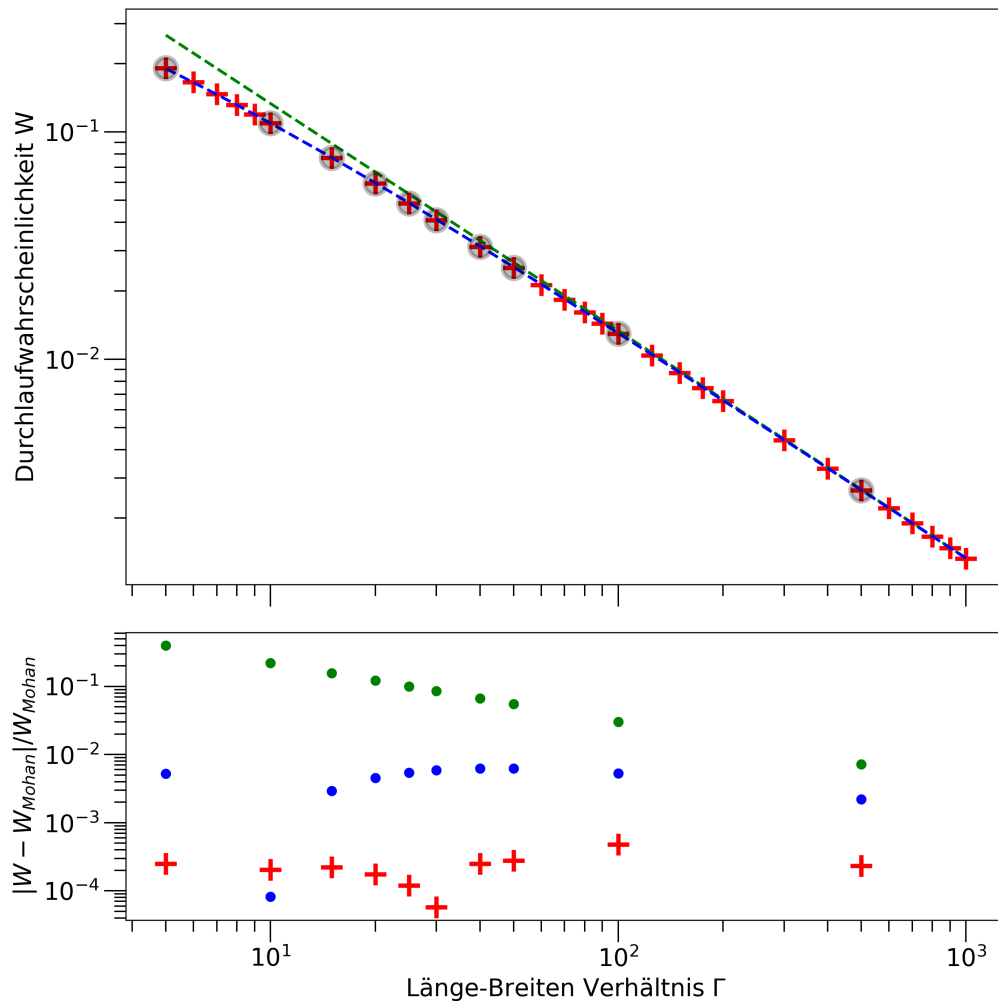


Abb. 3.1: Oben: Durchlaufwahrscheinlichkeit W in Abhängigkeit zum Länge-Breiten Verhältnis Γ bestimmt aus eigenen Simulationen (rote Kreuze), numerische Berechnungen durch [MTL07, Tab. 3] (graue Kreise), Näherungsformel von Santeler Gl. (2.31) (blaue Linie) und der Grenzfall für große Γ Gl. (2.30) (grüne Linie). Unten: Berechnete relative Differenz zu den Ergebnissen von [MTL07, Tab. 3] für die eigenen Simulationen (rote Kreuze), Gl. (2.31) (blaue Punkte) sowie Gl. (2.30) (grüne Punkte).

Γ	ξ_1	ξ_o	W	Anzahl Transmission
5	0,911 654	0,089 039	0,190 895	$1,06 \cdot 10^9$
6	0,922 887	0,077 233	0,165 858	$1,07 \cdot 10^9$
7	0,932 531	0,068 122	0,146 732	$1,04 \cdot 10^9$
8	0,939 659	0,060 953	0,131 644	$1,02 \cdot 10^9$
9	0,945 602	0,055 232	0,119 408	$1,04 \cdot 10^9$
10	0,949 559	0,050 449	0,109 298	$1,01 \cdot 10^9$
15	0,965 194	0,035 681	0,076 921	$1,04 \cdot 10^8$
20	0,972 724	0,027 478	0,059 440	$1,00 \cdot 10^8$
25	0,977 060	0,022 081	0,048 471	$1,05 \cdot 10^8$
30	0,982 041	0,018 850	0,040 942	$1,05 \cdot 10^8$
40	0,986 601	0,014 232	0,031 239	$1,02 \cdot 10^8$
50	0,988 717	0,011 588	0,025 269	$1,03 \cdot 10^8$
60	0,991 221	0,009 637	0,021 216	$9,86 \cdot 10^7$
70	0,992 334	0,008 309	0,018 286	$1,03 \cdot 10^8$
80	0,993 076	0,007 296	0,016 073	$1,01 \cdot 10^8$
90	0,994 022	0,006 615	0,014 340	$1,02 \cdot 10^8$
100	0,994 558	0,005 894	0,012 939	$1,03 \cdot 10^8$
125	0,995 173	0,004 782	0,010 407	$1,04 \cdot 10^8$
150	0,996 033	0,003 976	0,008 701	$1,04 \cdot 10^8$
175	0,996 797	0,003 402	0,007 480	$1,03 \cdot 10^8$
200	0,997 522	0,002 978	0,006 559	$9,83 \cdot 10^7$
300	0,998 293	0,001 997	0,004 394	$1,11 \cdot 10^8$
400	0,998 904	0,001 495	0,003 302	$1,06 \cdot 10^8$
500	0,999 384	0,001 200	0,002 647	$1,03 \cdot 10^8$
600	0,999 228	0,001 004	0,002 208	$1,03 \cdot 10^8$
700	0,999 603	0,000 863	0,001 894	$1,04 \cdot 10^8$
800	0,999 417	0,000 748	0,001 658	$1,03 \cdot 10^8$
900	0,999 784	0,000 670	0,001 475	$1,01 \cdot 10^8$
1000	1,000 086	0,000 598	0,001 327	$8,50 \cdot 10^7$

Tab. 3.1: Ergebnisse der durchgeführten Simulationen für verschiedene Längen-Breiten-Verhältnisse Γ . Angegeben sind die bestimmten Anfangsdichten ξ_1 und Enddichten ξ_0 in der Kapillare, die bestimmten Durchlaufwahrscheinlichkeiten W und zur Einschätzung der statistischen Genauigkeit die jeweilige Anzahl der berechneten Testteilchen, die den Kapillarausgang erreicht haben.

Da es das Ziel ist, einen rein optisch angeregten metastabilen Krypton-Atomstrahl zu erzeugen, stellt sich die Frage, ob auch eine Anregung in den metastabilen Zustand vor der Kapillare eine Option ist. Dies würde es z. B. ermöglichen, direkt nach dem Kapillarsystem eine optische Kollimation zu implementieren. Ansonsten sind erst einige Zentimeter Wegstrecke für den Anregungsabschnitt in den metastabilen Zustand notwendig. Durch Effekte wie Umstreuung der VUV-Photonen, könnte der höhere Druck vor der Kapillare auch zu einem höheren Anteil metastabiler Atomen führen [YYD02]. Es ist aber davon auszugehen, dass Atome bei Wandstößen aufgrund der vielen Vibrationszustände ihren metastabilen Zustand verlieren [Vas+12]. Deshalb wird nun der Anteil an Teilchen betrachtet, die ohne Stoß die Kapillare passieren und dafür die relative Durchlaufwahrscheinlichkeit ohne Stoß

$$W_{0,\text{rel}} = \frac{W_0}{W} \quad (3.1)$$

definiert. Hier ist W_0 die Durchlaufwahrscheinlichkeit ohne einen Wandstoß und W die gesamte Durchlaufwahrscheinlichkeit (mit und ohne Stoß). Die aus der Simulation bestimmte relative Durchlaufwahrscheinlichkeit ohne Stoß, also im betrachteten Kontext der Anteil der Atome, die den metastabilen Zustand behalten, ist für verschiedene Γ -Werte in Abb. 3.2 dargestellt. Für $\Gamma = 5$ beträgt der Anteil ca. 5 %, fällt auf 0,2 % für $\Gamma = 100$ und auf 0,02 % für $\Gamma = 1000$. Dies zeigt, dass für eine Anregung vor dem Kapillarsystem, wenn überhaupt nur kleine Γ -Werte geeignet sind. Und auch für eine weitere Frage, der thermalen Vorkühlung des Gases mit z. B. Flüssigstickstoff liefert dies wichtige Erkenntnisse. Wie später in Abschnitt 3.2 gezeigt wird, thermalisieren die Atome im Grunde schon nach einzelnen Stößen. Bei der Betrachtung der Flächenstoßrate wird zudem gezeigt (s. Abb. 3.5), dass die mittlere Stoßzahl schon bei einem kleinen Γ -Wert von 50 im Bereich von 1000 liegt. Soll also der Atomstrahl gekühlt werden, muss vor allem das Kapillarsystem selbst und nicht das Reservoir davor gekühlt werden.

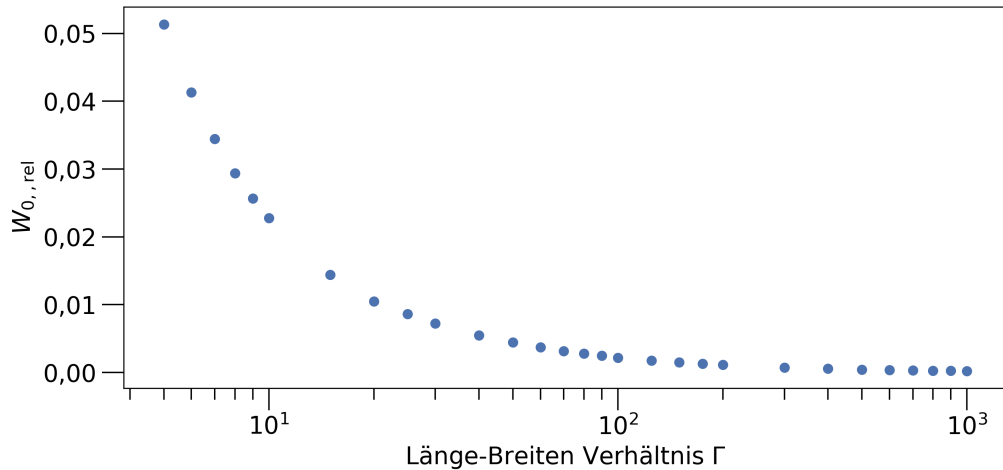


Abb. 3.2: Aus der Simulation bestimmte relative Durchlaufwahrscheinlichkeit ohne Stoß $W_{0,rel}$ (s. Gl. (3.1)).

Flächenstoßrate Die im vorherigen Kapitel vorgestellten theoretischen Beschreibungen nehmen an, dass die Flächenstoßrate auf den Kapillarwänden entlang der Kapillare linear abnimmt. Die Flächenstoßrate wird dabei auf den in die Kapillare eintretenden Atomfluss normiert. Mit zunehmendem Γ konvergiert die auf die Eingangsfacette normierte Dichte für die Anfangsdichte ξ_1 gegen 1 und für die Enddichte ξ_0 gegen 0. Zunächst werden diese Annahmen anhand der Simulation überprüft. In Abb. 3.3 ist die Flächenstoßrate, unterteilt in 100 gleich große Klassen, für ausgewählte Γ -Werte zwischen 5 und 1000 dargestellt. Die Farben gehen dabei von hell (kleine Γ -Werte) zu dunkel (große Γ -Werte).

In Rot ist zur Orientierung zusätzlich eine Gerade eingezeichnet, welche den theoretischen Grenzfall darstellt. Rein qualitativ bestätigen die Simulation die Annahmen und die Flächenstoßrate konvergiert schnell gegen den Grenzfall. Zusätzlich verlaufen alle Geraden durch den Punkt $(0,5, 0,5)$. Anhand der Krümmung der $\Gamma = 5$ Kurve ist zu erahnen, dass auch die Linearität mit steigendem Γ zunimmt. Für eine quantitative Betrachtung wurde für jedes Γ der Verlauf der Flächenstoßrate durch eine lineare Regression angepasst und das Residuum bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.4 eingezeichnet. Die Farbwahl ist wieder von hell (kleine Γ) nach dunkel (große Γ)

Grundsätzlich ist die Flächenstoßrate am Anfang höher als die der Ausgleichsgeraden und am Ende tiefer. Zusätzlich gibt es einen punktsymmetrischen Verlauf um den Mittelpunkt bei einer relativen Länge von 0,5. Betrachtet man die Tendenz bei steigendem Γ , so ist zu erkennen, dass die Linearität mit steigendem Γ stark zunimmt. Bei $\Gamma = 5$ beträgt die maximale Abweichung aber auch nur weniger als 0,8 %. Mit

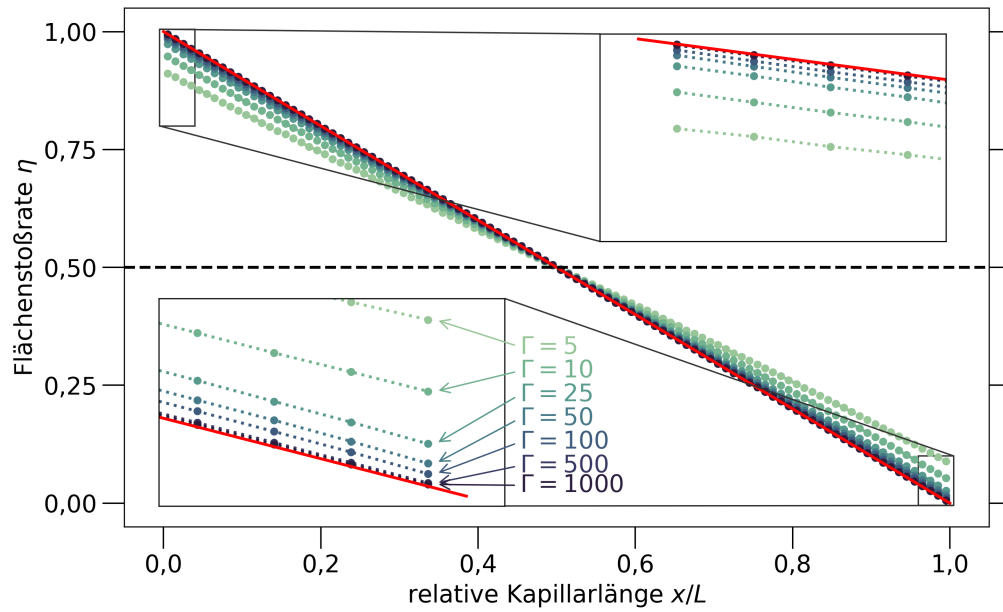


Abb. 3.3: Flächenstoßrate η bezogen auf den Eintrittsfluss in die Kapillare abhängig von der relativen Kapillarlänge x/L für sieben verschiedene Länge-Breiten Verhältnisse Γ zwischen 5 und 1000 (s. Beschriftung) und theoretischer Grenzfall in Form einer Geraden mit Steigung -1 (rote Linie).

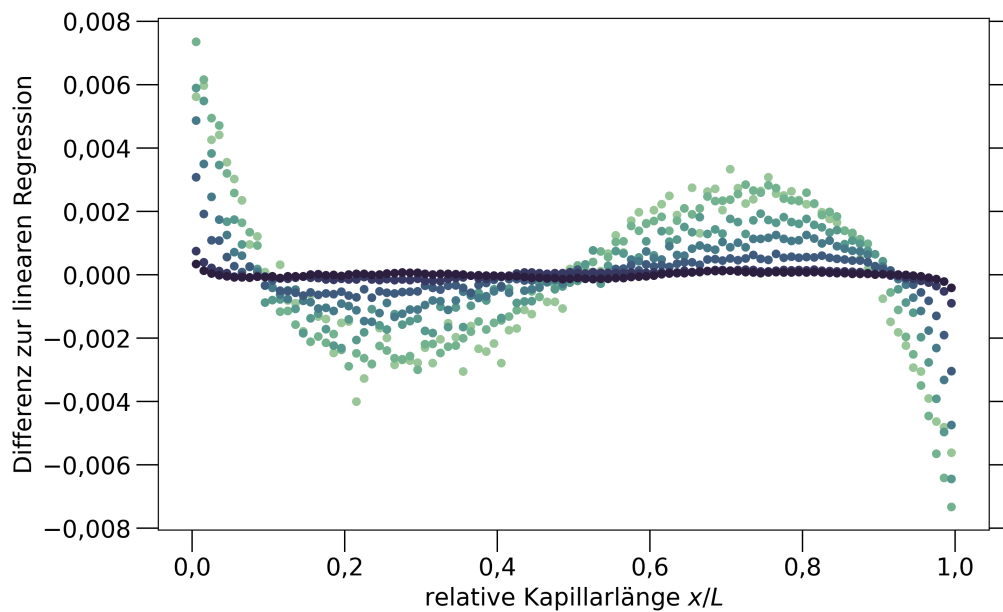


Abb. 3.4: Differenz zur jeweiligen linearen Regression des Verlaufs der Flächenstoßrate aus Abb. 3.3 für verschiedene Länge-Breiten Verhältnisse Γ als Funktion der relativen Kapillarlänge x/L .

Blick auf die Dynamik lässt sich dieses Bild erklären [Luc13, Kap. 8.3.3]. Bei kleinen Γ -Werten wird die Flächenstoßrate an einer Position von Atomen dominiert, die an der Stelle ihren ersten Wandstoß vollziehen. Dies ist auch anschaulich an der exemplarischen Darstellung Abb. 2.6 in Abschnitt 2.3 erkennbar, in der die Teilchen, die einen ersten Stoß vollziehen, in einem separaten Term dargestellt sind. Mit zunehmendem Γ wird dieser Anteil geringer, weil Teilchen weniger tief bis zu ihrem ersten Wandstoß in die Kapillare eindringen. Gleichzeitig nimmt die mittlere Stoßzahl zu, wodurch der Term für Stöße nach dem ersten Wandstoß mehr zur Flächenstoßrate beiträgt. Die aus der Simulation bestimmte Verteilung der Stoßzahl ist für ausgewählte Γ -Werte von 50, 100, 500 und 1000 in Abb. 3.5 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die häufigsten Stoßzahlen auch bei einem relativ kleinen Γ von 50 (blau) schon bei vielen hundert Stößen liegen und sich auf mehrere $1 \cdot 10^5$ bei $\Gamma = 1000$ (lila) erhöht. Insgesamt ist die Annahme eines linearen und um den Mittelpunkt der Kapillarlänge symmetrischen Abfalls auch für relativ kleine Γ -Wert schon zutreffend.

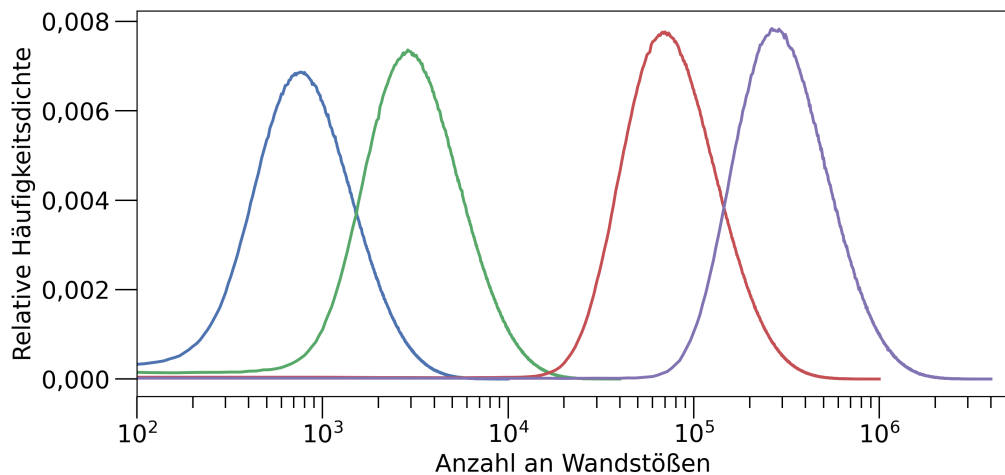


Abb. 3.5: Aus der Simulation bestimmte Verteilung der Anzahl an Wandstößen der Testteilchen für die Γ -Werte von 50 (blau), 100 (grün), 500 (rot) und 1000 (lila).

Für die Beschreibung der Winkelfunktion $I(\theta)$ (s. Abschnitt 2.3) ist die Kenntnis der Anfangsdichte ξ_1 und der Enddichte ξ_0 erforderlich, welche im Folgenden aus der Simulation bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.6 als rote Kreuze dargestellt. Auch hier werden wieder verfügbare Ergebnisse aus der Literatur als Referenz hinzugezogen. Der durch Olander [OK70] beschriebenen Grenzfall für langen Kapillaren ist in Grün dargestellt. Zusätzlich sind tabellarische Ergebnisse von Lucas aus [Luc13, Tab. 8.1], welche durch die Lösung des Clausing Integrals Gl. (2.19) mit der Tschebyschow-Polynom-Methode bestimmt wurde, als graue Punkte dargestellt. Der Vorteil der so berechneten Anfangs- und Enddichte ist, dass die Ergebnisse,

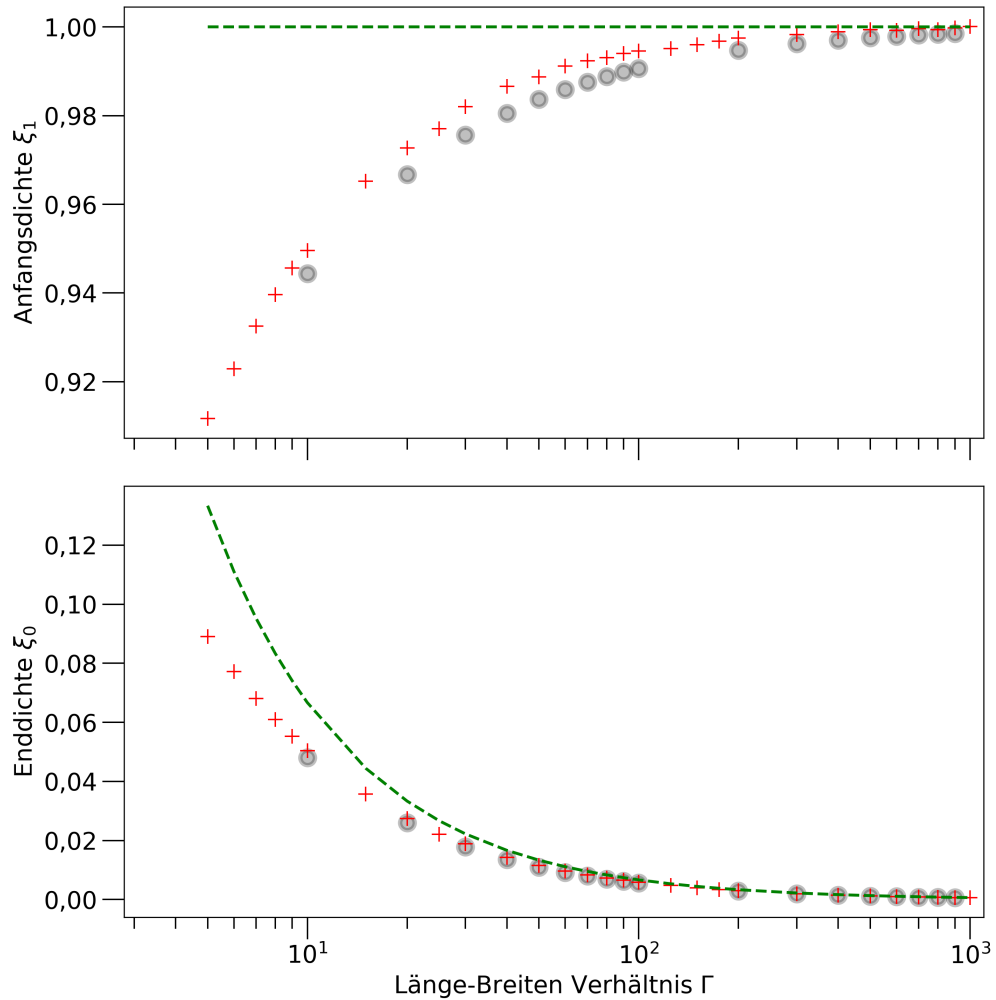


Abb. 3.6: Anfangsdichte ξ_1 (oben) und Enddichte ξ_0 (unten) bestimmt aus den durchgeführten Simulationen (rote Kreuze), aus [Luc13, Tab. 8.1] entnommenen Ergebnisse (grau Punkte) und durch Olander beschriebenen Grenzfall Gl. (2.22) (grün gestrichelt).

im Gegensatz zu den Monte-Carlo-Simulationen, keine Ortsunschärfe durch die Größe der Klassen aufweisen. Das von Lucas verwendete Verfahren bestimmt die Flächenstoßrate am Ende und bei 101 Punkten über die Länge der Kapillare. Dann wird eine lineare Regression über die gesamte Länge durchgeführt, die Enddichte aber fix gesetzt. Um in der Simulation eine vergleichbare Genauigkeit bei stark unterschiedlichem Γ zu erhalten, wurde am Anfang und am Ende jeweils ein Abschnitt mit einer Länge eines Kapillar-Durchmessers in je 21 Klassen unterteilt und die Flächenstoßrate ermittelt. Dann wurde jeweils eine getrennte lineare Regression des Anfangs- und des Endabschnittes durchgeführt, welche die Anfangsdichte ξ_1 und Enddichte ξ_0 lieferte.

Da die Anfangsdichte in Abb. 3.6 (oben) von Lucas (graue Punkte) durch eine lineare Regression über die gesamte Länge der Kapillare und in der Simulation direkt bestimmt wurde, gibt es sichtbare Abweichungen. Die Simulationsergebnisse liegen ein wenig höher. Dies ist zu erwarten, da wie in Abb. 3.4 dargestellt, durch die Ausgleichsgerade die Anfangsdichte systematisch unterschätzt wird. Für große Γ nähern sich beide Methoden dem von Olander verwendeten Grenzwert für lange Kapillaren von 1 an. Bei $\Gamma = 100$ beträgt die Abweichung der Näherungslösung zu den genaueren Simulations- und numerischen Ergebnissen weniger als 2 %. Die Enddichte wurde von Lucas direkt bestimmt. Entsprechend gibt es, wie in Abb. 3.6 (unten) zu entnehmen, eine sehr große Übereinstimmung zwischen Lucas und den Simulationsergebnissen. Die von Olander verwendete Näherung zeigt hier früher ab einem Γ um die 100 eine sehr große Übereinstimmung mit den anderen Ergebnissen. Insgesamt reichen für die experimentelle Praxis die Ergebnisse der Näherungslösungen ab $\Gamma = 100$ und auch die Linearität der Flächenstoßrate ist gegeben.

Winkelverteilung Die Winkelverteilung $I(\theta)$ kann aus der Simulation direkt durch die Richtung der die Ausgangsfacette erreichenden Testteilchen bestimmt werden. Für die vier Γ -Werte 5, 10, 100 und 1000 sind die auf 1 normierten Histogramme der Winkelverteilung in Abb. 3.7 dargestellt. Analytisch wird die Winkelverteilung durch Gl. (2.25) und Gl. (2.27) mit der Anfangs- und Enddichte ξ_1 und ξ_0 bestimmt. Es stellt sich die Frage, wie gut auf diese Weise bestimmte Winkelverteilungen, mit den aus dem vorherigen Abschnitt bestimmten Werten für Anfangs- und Enddichte, mit den direkt aus der Simulation bestimmten übereinstimmen. Die aus der Eingangsdichte ξ_1 und der Enddichte ξ_0 aus der Simulation berechneten Winkelverteilungen sind in Rot dargestellt. Die mit den Werten von Olander berechneten Winkelverteilungen sind in Grün dargestellt. Da unter der Verwendung der Ergebnisse von Lucas in dem dargestellten Diagramm keine sichtbaren Unterschiede zur Simulation erkennbar sind, sind diese nicht eingezeichnet. Grundsätzlich ist die Übereinstimmung der direkten Bestimmung aus der Simulation und die Bestimmung aus der Simulation über die Anfangs- und Enddichte über den gesamten Γ -Bereich sehr groß. Die Werte von Olander unterschätzen das Maximum der Winkelverteilung für kleine Γ -Werte. Dies ist schlüssig, da auch die Enddichte überschätzt wird (s. Abb. 3.6). Ab einem Γ -Wert von 100, bei welchem auch die Übereinstimmung mit der Enddichte groß ist, sind visuell keine Unterschiede mehr zu erkennen.

Insgesamt liefern die durchgeführten Simulationen und numerische Lösungen des Clausius Integrals für die Größen, Durchlaufwahrscheinlichkeit W , Anfangs- und Enddichte ξ_1 und ξ_0 und die Winkelverteilung $I(\theta)$ über den gesamten untersuchten

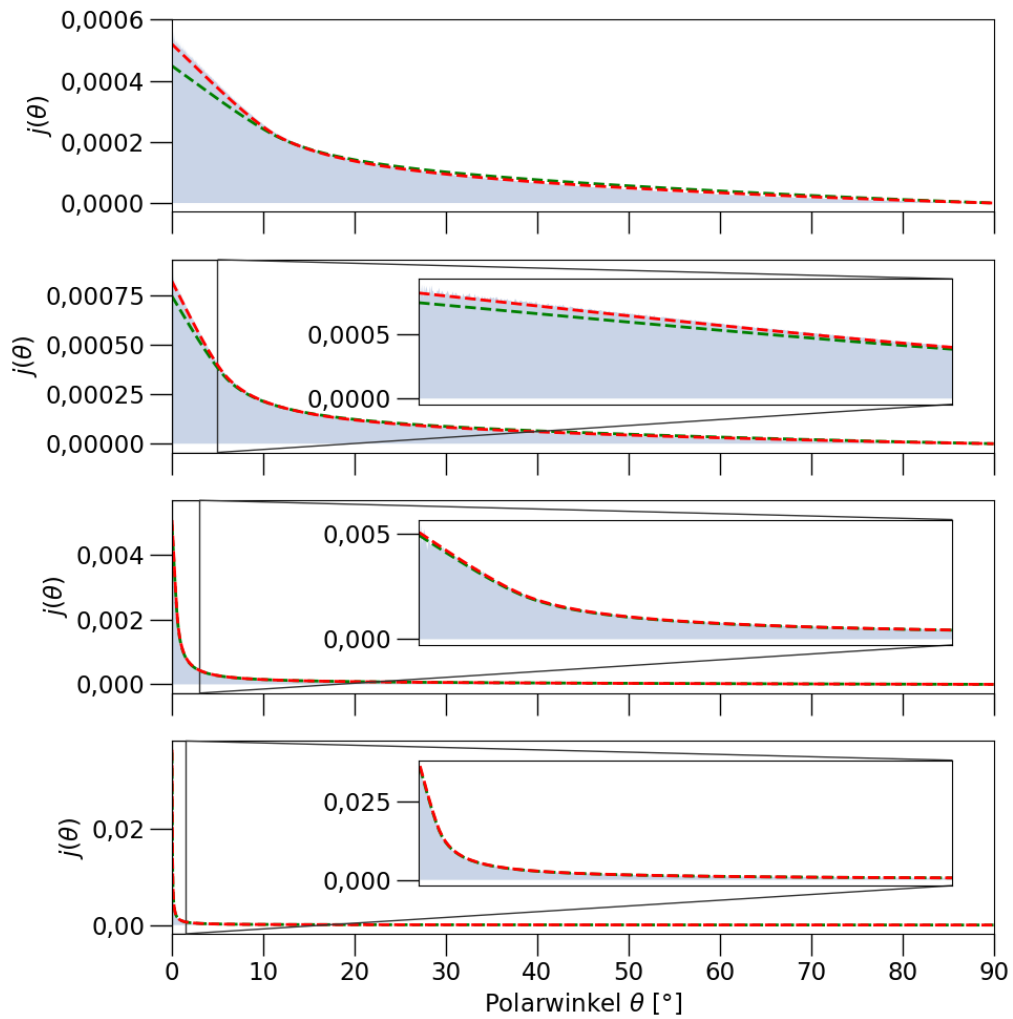


Abb. 3.7: Für Γ -Werte von 5, 10, 100 und 1000 (von oben nach unten) direkt aus der Simulation bestimmte Histogramme der Winkelverteilung der aus der Kapillare austretenden Testteilchen sowie nach Gl. (2.25) und Gl. (2.27) bestimmte Funktionen mit Werten für ξ_1 und ξ_0 bestimmt aus den eigenen Simulationen (Tab. 3.1) (rot) und aus dem durch Olander beschriebenen Grenzfall Gl. (2.22) (grün).

Γ -Bereich präzise und konsistente Resultate. Die gezeigten Näherungslösungen sind für große Γ -Werte ab $\Gamma = 100$ ausreichend genau.

Mit den bestätigten Winkelverteilungen bietet sich eine Zwischenabschätzung an, wie groß der Anteil nutzbarer Atome abhängig vom Γ -Wert ist. Als Abschätzung wird der Anteil der Atome in einem Winkelintervall von 0° bis 3° betrachtet. Die aus den Simulationen bestimmten Ergebnisse sind in Abb. 3.8 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass der nutzbare Anteil im Bereich von einigen hundert Γ bei etwa 3,5 % sättigt. Verglichen mit dem in Abschnitt 2.2 für eine Blende berechneten 0,3 % ist dies eine Steigerung um mehr als eine Größenordnung. Falls sich diese Winkelverteilungen

realisieren lassen, stellt dies eine deutliche Steigerung dar. Im Folgenden soll nun genau diese Frage, die Anwendbarkeit des theoretischen Modells für die Winkelverteilung auf die experimentelle Praxis, untersucht werden. Untersuchungen zum absoluten Atomfluss folgen im nächsten Kapitel.

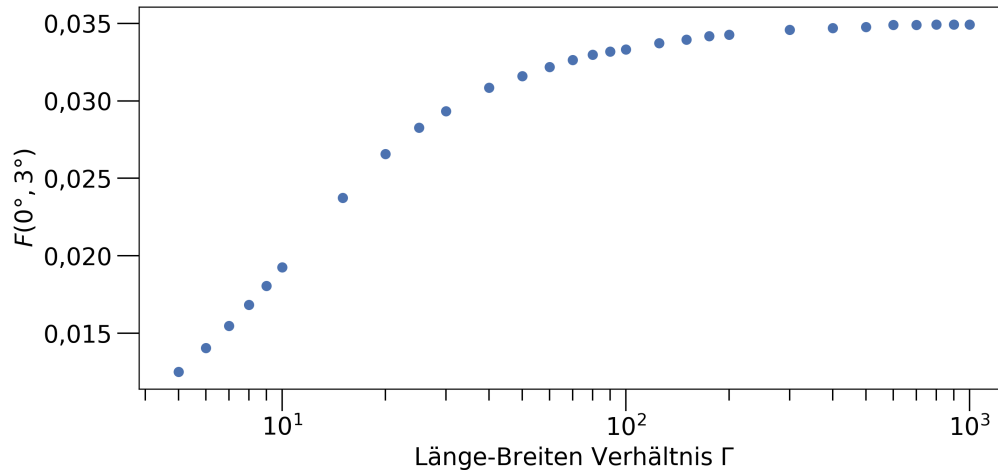


Abb. 3.8: Anteil des Atomflusses aus der Kapillare $F(0^\circ, 3^\circ)$ im Winkelintervall 0° bis 3° relativ zum Gesamtfluss für verschiedene Längen-Breiten-Verhältnisse Γ von 5 bis 1000 bestimmt aus den durchgeführten Simulationen.

3.2 Vergleich Simulation und Literaturmessungen

Bei dem Vergleich zwischen tatsächlichen Messungen und Simulationen liegt der Fokus zunächst auf Messungen, die bei möglichst niedrigen Vakuumdrücken vor und im Kapillarsystem durchgeführt wurden. Dadurch soll die Annahme des molekularen Bereichs in der Simulation, also die Vernachlässigung von Atom-Atom-Stößen, möglichst erfüllt werden. Vorweg gegriffen zeigt sich, dass gemessene Winkelverteilungen in der Regel deutlich breiter sind als Theorie oder Simulation dies prognostizieren. Es finden sich in den Publikationen verschiedene Erklärungsansätze für diese Diskrepanz. Hierzu zählen Einflüsse auf die Messung durch die endliche Größe von Kapillarsystem und Detektor und nur teilweise diffuse Reflexion an den Wänden. In diesem Abschnitt wird deshalb untersucht, wie groß der jeweilige Einfluss ist und ob durch die Berücksichtigung die starke Diskrepanz erklärt werden kann. Schlussendlich wird auch der Einfluss von Atom-Atom-Stößen berücksichtigt.

3.2.1 Messungen der Winkelverteilung

Das Ziel ist die Erzeugung eines metastabilen Krypton-Strahls, zu dem im nächsten Kapitel eigene Messungen mit verschiedenen Kapillarsystemen präsentiert werden. Hier führt die winkelabhängige Anregung in den metastabilen Zustand dazu, dass nicht die ursprüngliche Winkelverteilung vermessen werden kann. Deshalb wird zunächst auf veröffentlichte Messungen zurückgegriffen, die den aus der Kapillare austretenden Atomstrahl direkt vermessen haben. Eine direkte Messmethode ist es, um den Ausgang der Kapillaren eine definierte Ionisationskammer zu rotieren. Der gemessene Ionisationsstrom ist proportional zur Gasmenge, die in den Winkelbereich strömt. Dies stellt die Standardmethode dar. Die Messungen sind aber technisch anspruchsvoll, weil eine genaue Führung und Ausrichtung des Detektors entscheidend ist. Zusätzlich sind gerade im molekularen Strömungsbereich die Signale aufgrund der kleinen Gasmengen sehr gering. Für den angestrebten Vergleich mit den Simulationen sind einige der publizierten Daten unvollständig, da keine Winkelprofile gezeigt, sondern nur die Halbwertsbreiten angegeben werden oder genauen Betriebsparameter, wie der Druck vor dem Kapillarsystem, fehlen. Dies schränkt die verfügbaren Messungen für einen Vergleich sehr stark ein.

Sehr detaillierte Messungen mit zwei verschiedenen Kapillarsystemen wurden von Rugamas et al. [Rug+00] durchgeführt. Das erste System aus einer einzelnen Kapillare aus Stahl wird im Folgenden als *Rugamas25* bezeichnet. Die Kapillare weist ein $\Gamma = 25$ bei einer Länge von 2 cm und einem Durchmesser von 0,08 cm auf. Das zweite System, im Folgenden als *Rugamas100* bezeichnet, besteht aus einem Array aus 91 einzelnen Stahlkapillaren. Das Kapillarsystem weist ein $\Gamma = 100$ und einen Gesamtdurchmesser von 0,9 mm auf. Eine einzelne Kapillare des Arrays besitzt einen Durchmesser von 0,0508 mm und eine Länge von 5,08 mm. Rugamas et al. haben viele verschiedene Elemente und Moleküle vermessen, darunter insbesondere die Edelgase He, Ne, Ar und Xe. Neben den in Tabellenform dargestellten Werten für die volle Halbwertsbreite bei verschiedenen Drücken zeigen die Autoren insbesondere auch zwei ausgewählte Profilmessreihen bei verschiedenen Drücken mit Ar.

Abb. 3.9 zeigt die gemessenen Halbwertsbreiten von *Rugamas25* in Blau und die von *Rugamas100* in Rot gegen die Knudsen-Zahl Kn_L für Argon (Kreuze) und Xenon (Punkte). Es ist zu beobachten, dass im molekularen Bereich ($Kn_L > 1$) die bestimmten Halbwertsbreiten und damit vermutlich auch die gesamten Winkelverteilungen konstant sind. Hieraus lässt sich schlussfolgern, dass Atom-Atom-Stöße noch keine große Rolle spielen und sich Messungen in diesem Druckbereich als Vergleich mit den Simulationen im molekularen Strömungsbereich eignen. Bei höheren Drücken (kleineren Knudsen-Zahlen) nimmt die Breite der Winkelverteilung stark zu. Des

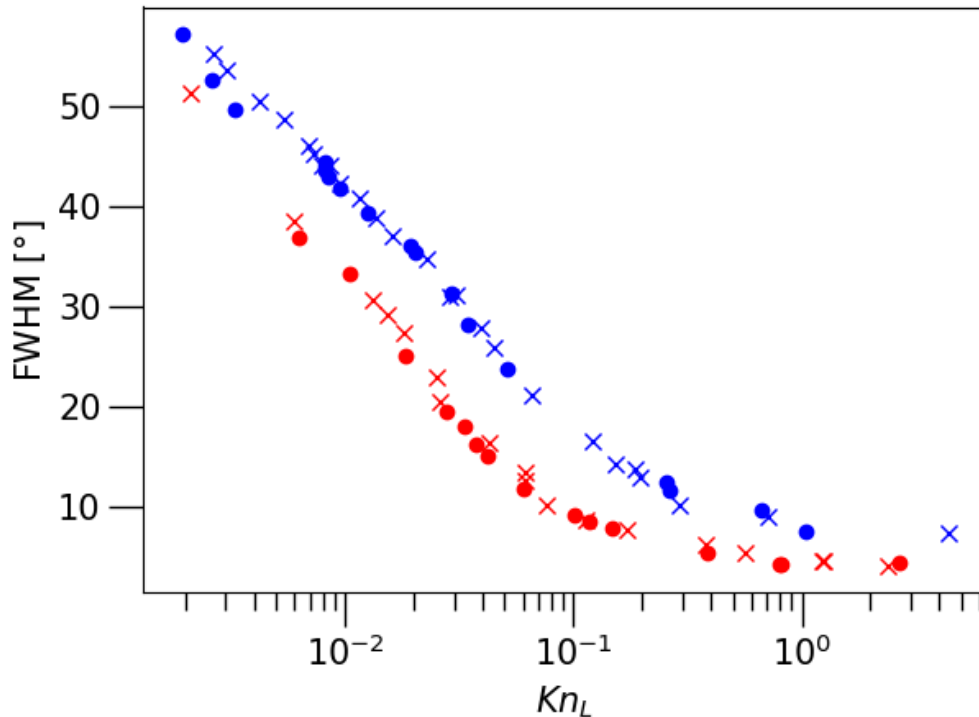


Abb. 3.9: Aus [Rug+00, Tab. 4] (Rugamas25, blau) und aus [Rug+00, Tab. 7] (Rugamas100, rot) entnommene Messungen für Argon (Kreuze) und Xenon (Punkte) für die volle Halbwertsbreite der Winkelverteilung gegen die aus dem angegebenen Druck berechnete Knudsen-Zahl Kn_L .

Weiteren ist bei der Darstellung gegen die Knudsen-Zahl keine auffällige Abhängigkeit zur Masse der beiden vermessenen Edelgase zu beobachten. Somit ist davon auszugehen, dass sich die Situation für Krypton ähnlich darstellt, welches ebenfalls ein Edelgas ist und eine zwischen den beiden Elementen liegende Atommasse aufweist. Es kann damit angenommen werden, dass die von Rugamas gezeigten vollständigen Profilmessungen für Ar gut auf Kr übertragbar sind.

Die Profilmessung der Winkelverteilung sind in Abb. 3.10 für Rugamas25 (oben) und Rugamas100 (unten) bei jeweils dem am niedrigsten verfügbaren Druck vor der Kapillare von 0,019 mbar und 0,011 mbar dargestellt. Bei diesen Drücken weist die Einzelkapillare ein Kn_L von 0,18 und das Array ein Kn_L von 1,2 auf. Auf Basis der bisherigen Überlegungen sollten Atom-Atom-Stöße vor allem für das Array noch keine große Rolle spielen. Insbesondere ist auch bei diesen Knudsen-Zahlen in Abb. 3.9 noch keine starke Druckabhängigkeit der Halbwertsbreite festzustellen. Damit eignen sich diese Messungen gut für einen Vergleich mit der Simulation. Die

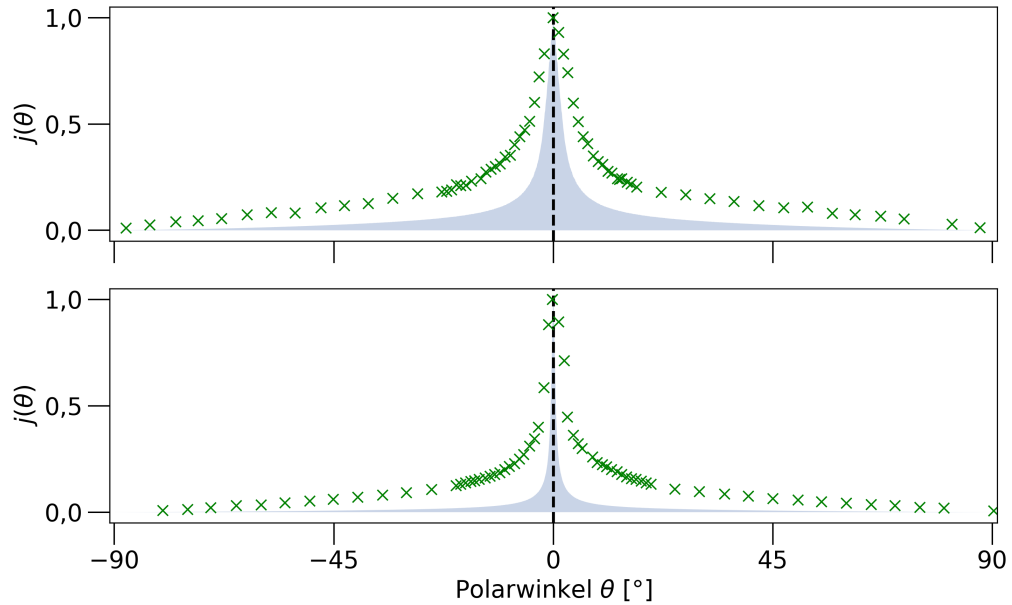


Abb. 3.10: Erster Vergleich der Winkelverteilungen zwischen eigener Simulation (Histogramm) und experimentellen Daten aus [Rug+00, Abb. 5] (grüne Kreuze) für die Einzelkapillare *Rugamas25* mit $\Gamma = 25$ bei 0,019 mbar (oben) und dem Array *Rugamas100* mit $\Gamma = 100$ bei 0,011 mbar (unten).

Simulationsergebnisse bei denen jeweils eine Kapillare mit $\Gamma = 25$ und $\Gamma = 100$ analog zu Abschnitt 3.1 simuliert wurden, sind ebenfalls in Abb. 3.10 dargestellt.

Aus dem Vergleich zwischen den eigenen Simulationsergebnissen und den Messungen von Rugamas ergibt sich ein typisches Bild, welches sich auch bei einem Vergleich mit anderen Messergebnissen zeigt. Die theoretischen Kurven sind schmäler und spitzer, wohingegen die Messergebnisse breite Flanken bis in hohe Winkelbereiche aufweisen. So ist die gemessene Halbwertsbreite für das Array etwa $H \approx 5^\circ$, Simulation und Theorie sagen aber eine Halbwertsbreite von $H \approx 0,9^\circ$ voraus. Dieses qualitative Bild zeigt sich sowohl bei unterschiedlichen Gasarten, bei verschiedenen Maßen der Kapillaren und bei Einzelkapillaren sowie auch bei Arrays [Buc+93; Rug+00; Luc13].

Es werden nun Schritt für Schritt verschiedene Effekte der Simulation hinzugefügt, um zu untersuchen, ob sich die Übereinstimmung erhöhen lässt. Dabei werden bei der Darstellung der Ergebnisse die zwei vorgestellten Messungen und die Simulation ohne zusätzliche Effekte als Referenz mit dargestellt.

3.2.2 Messmethoden und Einflüsse auf die gemessenen Intensitätsprofile

Der erste Aspekt, der nun mitberücksichtigt werden soll, betrifft die Einflüsse der Messung selber. Die Führung des Detektors hat einen Einfluss, Kapillarsysteme sind keine Punktquellen und die Detektoren besitzen keine unendlich hohe Auflösung. Dadurch wird nicht die tatsächliche, zugrunde liegende Winkelverteilung gemessen, sondern eine Abbildung. Die Einflüsse können aber in die Simulation mit integriert werden. Wie im vorherigen Abschnitt kurz angerissen wurde, lässt sich die Intensität des Atomstrahls abhängig vom Winkel durch die Verwendung einer Ionisationskammer messen. Dieses Messprinzip wird auch als Ionisationsvakuummeter verwendet, um den Hintergrundgasdruck im Bereich des Ultrahochvakuums (UHV) zu messen [Jou18, Kap. 25]. Anders als bei den im nächsten Abschnitt verwendeten optischen Methoden, bei denen geeignete optische Übergänge und Lichtquellen nötig sind, können hier die Winkelverteilungen verschiedener Gasarten mit einem Messaufbau bestimmt werden. Typischerweise werden hier, wie in Abb. 3.11 dargestellt, Ionisationskammern nach der Bauweise von Bayard-Alpert-Vakuummetern verwendet. Eine beheizte Kathode (Glühkathode) emittiert Elektronen, die durch eine angelegte Spannung zwischen Anode und Kathode beschleunigt werden und bei ausreichender Energie Atome im Hintergrundgas ionisieren. Diese werden von einer zweiten Kathode mit einem größeren Potenzial als der ersten angezogen und neutralisiert und der entstehende Ionenstrom gemessen [Jou18, Kap. 25]. Zur Erhöhung der Sensitivität wird der Detektor bei Winkelmessung [AM86] häufig in ein Gehäuse mit spitz zulaufenden Öffnung platziert. Die Öffnung hat typischerweise einen Durchmesser im Bereich von einigen hundert μm und die spitze Form sorgt dafür, dass der Atomstrahl so wenig wie möglich gestört wird.

Es gibt nun zwei Arten wie der Detektor geführt wird, die ebenfalls in Abb. 3.11 dargestellt sind. Die erste Möglichkeit ist, wie z.B. von [Buc+93] verwendet, den Detektor oder das Kapillarsystem auf einer Geraden senkrecht zum austretenden Strahl zu verschieben und ihn zu schneiden. Dies ist von der experimentellen Umsetzung im Ultrahochvakuum sehr praktikabel, da hier z.B. die Kapillare einfach mit einem Schrittmotor verschoben und die Position des Detektors konstant gelassen werden kann. Die einfache Umsetzung bringt aber den Nachteil mit sich, dass sich die Größe des Raumwinkels vom Atomstrahl, den der Detektor abdeckt, mit dem Abstand zur Hauptachse verringert. Da der Detektor nicht geneigt ist, muss die Öffnung des Detektors zusätzlich auf den Raumwinkel projiziert werden. Zusammen ergeben beide Effekte einen Faktor $\propto \cos^3 \theta$ [KT95]. Die zweite Möglichkeit ist, wie z.B. von [Rug+00] verwendet, den Detektor um die Quelle herum zu rotieren. Dadurch

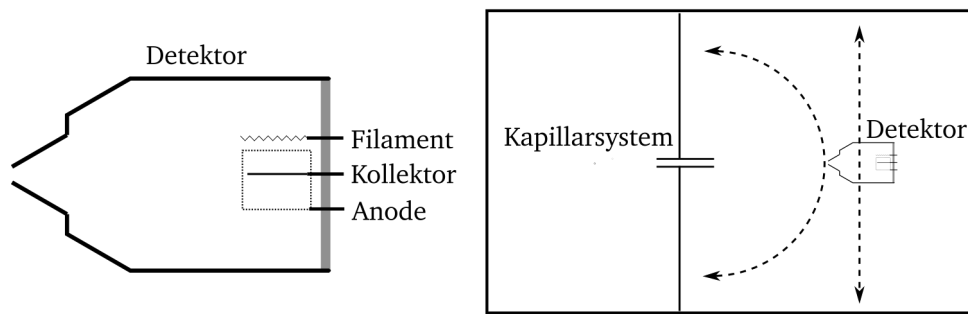


Abb. 3.11: Skizze eines für die Winkelmessung typischerweise verwendeten Detektors und mögliche Arten der Führung des Detektors (nach [Buc+93]).

bewegt sich der Detektor gewissermaßen auf einer konstanten Kugeloberfläche um den Ausgang des Kapillarsystems und erfasst immer einen konstanten Raumwinkelbereich. Zusätzlich ist es möglich den Untergrund zu bestimmen, indem die Messung bei $> 90^\circ$ durchgeführt wird. Die Umsetzung im UHV ist aber deutlich aufwendiger als bei der ersten Methode.

Je nach Ausdehnung der Kapillarsysteme und der Detektorfläche bzw. Detektoröffnung wird auch bei der Rotationsmethode nicht die reale Verteilung gemessen. Das Zusammenspiel aus Größe der Detektoröffnung und dem Abstand zum Kapillarausgang bestimmt den Raumwinkel, den der Detektor abdeckt. Wie anhand von Abb. 3.12 (rechts) deutlich wird, führt ein großer abgedeckter Raumwinkel des Detektors dazu, dass beispielsweise bei einer Position des Detektors von 0° auch Atome mit größerem Winkel gemessen werden. Dies führt zu einer scheinbaren Verbreiterung der Winkelverteilung.

Auch die Ausdehnung des Kapillarsystems hat eine Auswirkung auf die gemessene Winkelverteilung. Dies wird anhand von Abb. 3.12 (links) verdeutlicht. Zu sehen ist, dass unter einem Winkel von θ_0 noch Beiträge gemessen werden, die eigentlich einen Winkel von 0° aufweisen. Ebenso werden bei einem Winkel von 0° nicht alle 0° Beiträge gemessen, aber dafür einige mit einem größeren Winkel. Wie stark dieser Effekt ist, hängt vom Verhältnis aus Durchmesser des Kapillarsystems und dem Radius des Halbkreises auf dem der Detektor gefahren wird ab. Insgesamt führt dies zu einer Verbreiterung der Spitze der Intensitätskurve. Sie wird breiter und weniger hoch. Da zusätzlich die Winkelverteilung typischerweise zum Vergleich auf das Maximum normiert wird, kann ein deutlicher Verbreiterungseffekt sichtbar werden.

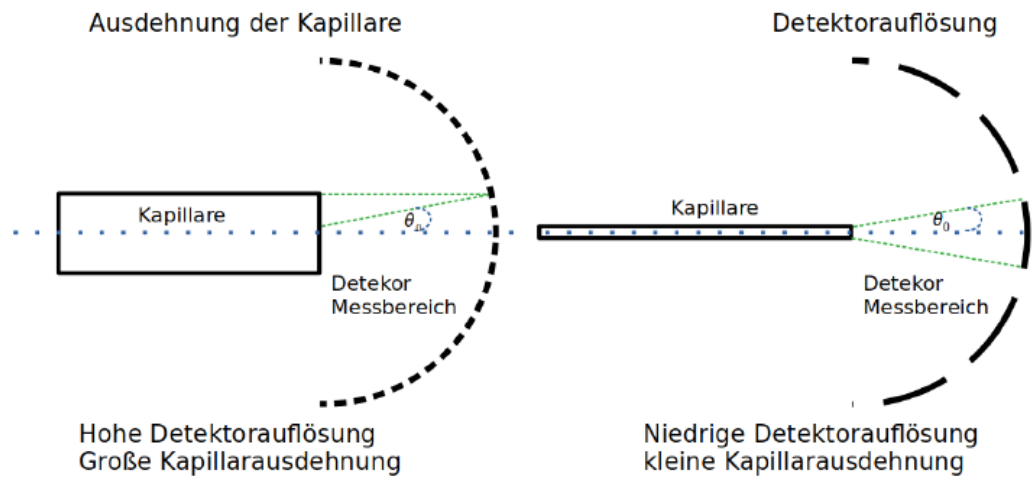


Abb. 3.12: Veranschaulichung der zwei Effekte endliche Ausdehnung der Kapillaren und endliche Detektorauslösung, die zur Verbreiterung der Winkelverteilung führen. Links hohe Detektorauslösung und große Ausdehnung der Kapillare. Rechts: Niedrige Detektorauslösung und kleine Ausdehnung der Kapillare.

Mithilfe geometrischer Überlegungen kann die Größenordnung eingeschätzt werden, in der sich der Effekt bei den betrachteten Messungen von Rugamas bewegt. Die Öffnung des Detektors beträgt 0,8 mm. Bei schwachen Quellen (also niedrigen Drücken) wurde mit einem Abstand von 30 mm gemessen. Daraus ergibt sich, dass bei einer Position des Detektors von 0° noch Atome mit einem Winkel von bis zu

$$\arctan(0,4 \text{ mm}/30 \text{ mm}) \approx 0,8^\circ \quad (3.2)$$

gemessen werden. Überlegungen zur Ausdehnung des Kapillarsystems bewegen sich in einem ähnlichen Bereich. Im Falle der betrachteten Messung weist das Kapillarsystem einen Durchmesser von 0,9 mm auf. Daraus ergibt sich, dass bei einem unendlich hoch aufgelösten Detektor noch 0° Beiträge bei einer Detektorposition von

$$\theta_0 = \arctan(0,45 \text{ mm}/30 \text{ mm}) \approx 0,9^\circ \quad (3.3)$$

gemessen werden. Zum Vergleich: Die halbe Halbwertsbreite aus den Simulationen beträgt ca. $0,45^\circ$, weshalb davon auszugehen ist, dass sich dieser Effekt bemerkbar macht und zu einer scheinbaren Verbreiterung führt. Für eine quantitative Einschätzung wurde die Messung in der Simulation nachgestellt.

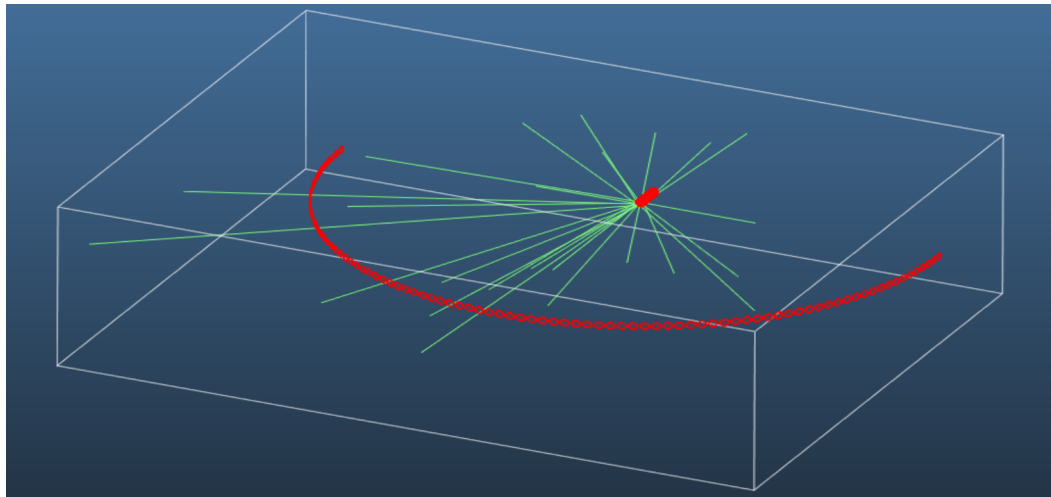


Abb. 3.13: Darstellung der Detektorsimulation in Molflow. In rot markiert sind die Kapillare und die symmetrisch um die Hauptachse angeordneten runden Facetten, die die Detektorposition an einem Ort darstellen. In grün sind exemplarisch einige Trajektorien eingezeichnet.

Beide Messprinzipien lassen sich ausgezeichnet in der Simulation nachbilden, da der Detektor und Kapillare maßstabsgerecht und dreidimensional implementiert werden können. Im Falle von absoluten Messungen wäre es sinnvoll, den Detektor detailliert mit der Umhausung nachzubilden. Da aber ein Winkelprofil hier nur relativ betrachtet wird, genügt es, dass der Detektor durch die Detektoröffnung repräsentiert wird. Um eine komplette Winkelmessung zu simulieren, werden in 2° Abständen 91 runde Facetten in der Größe der Detektoröffnung auf einem Halbkreis um den Kapillarausgang verteilt. Jede Facette entspricht einer Detektorposition. Der Abstand und der Kapillardurchmesser entsprechen den tatsächlichen Maßen. Auch eine Messung mit der linearen Methode kann so simuliert werden, indem die Messfacetten auf einer senkrechten Achse zur Hauptachse angeordnet werden. Nun werden Testteilchen auf der Ausgangsfacette der Kapillare mit der zu erwartenden Winkelverteilung (s. Abschnitt 3.2) generiert und die Teilchen gezählt, die die jeweiligen Facetten treffen. Das Ergebnis der Simulation mit den gleichen Parametern wie in Abb. 3.10 bei einem Detektorabstand von 30 mm und einer Detektoröffnung von 0,8 mm ist für Rugamas25 und Rugamas100 in Abb. 3.14 dargestellt. Erwartungsgemäß ist der Einfluss der Messung besonders beim Array bemerkbar, da hier der Durchmesser des Kapillarsystems größer und die theoretische Winkelverteilung schmäler ist. Es findet eine deutliche Verbreiterung statt und insbesondere innerhalb der Halbwertsbreite nähern sich die simulierten Messergebnisse den tatsächlichen deutlich an. Darüber hinaus ist die Abweichung aber nach wie vor stark. Beim Rugamas25 gibt es kaum Unterschiede zur Simulation ohne Detektor.

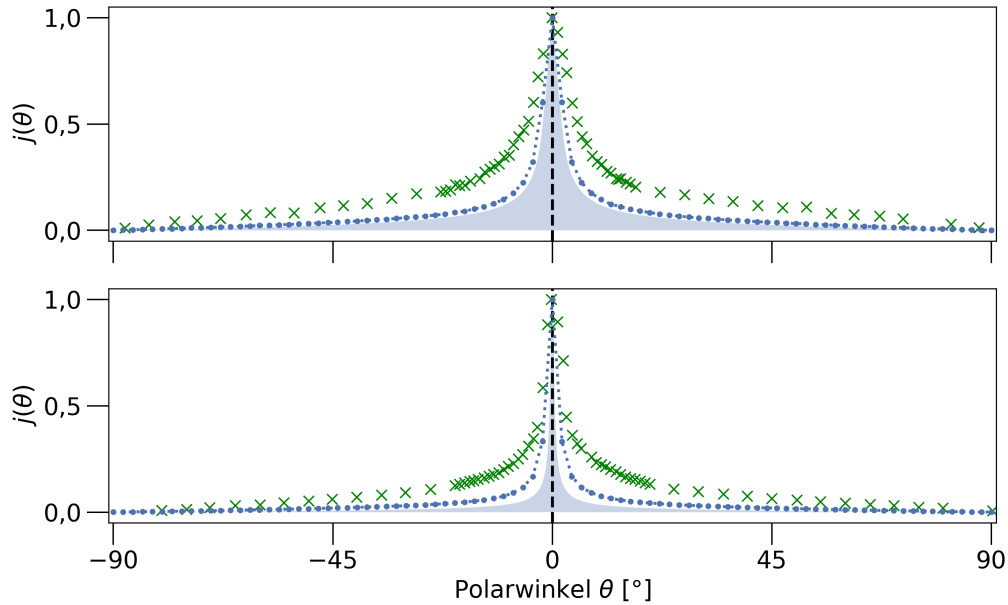


Abb. 3.14: Winkelverteilung zwischen simulierten Daten ohne Detektorsimulation (Histogramm), mit Detektorsimulation (blaue verbundene Punkte) und experimentellen Daten aus [Rug+00, Abb. 5] (grüne Kreuze) für die Einzelkapillare *Rugamas25* mit $\Gamma = 25$ bei 0,019 mbar (oben) und dem Array *Rugamas100* mit $\Gamma = 100$ bei 0,011 mbar (unten). Der simulierte Detektor hat einen Abstand von 30 mm und einen Öffnungsdurchmesser von 0,8 mm.

3.2.3 Gas-Wand-Wechselwirkung - Einfluss der Spiegelreflektionen

Die Strahlformungswirkung von Kapillaren entsteht vor allem durch Stöße der Gasatome mit den Wänden der Kapillare. Deswegen wird als Nächstes untersucht, inwieweit die Annahme gerechtfertigt ist, dass die Teilchen bei einem Zusammenstoß mit der Kapillarwand diffus, also zufällig in eine neue, von ihrer ursprünglichen Impulsrichtung unabhängige, Richtung streuen. Physikalisch lässt sich diese Annahme begründen, indem argumentiert wird, dass auf mikroskopischer Ebene die Oberfläche rau ist. Es zeigt sich experimentell und auch in Modellierungen [LS66], dass diese Annahme zwar häufig in hohem Maße zutreffend ist, es aber auch Fälle gibt, in denen sie nicht gerechtfertigt ist. Zur Untersuchung wird das Modell der sogenannten diffus-spiegelnden Gas-Wand-Wechselwirkung verwendet [Jou18, S. 205]. Als Maß, wie nahe an der rein diffusen Streuung die Wechselwirkung ist, wird ein empirischer Parameter verwendet, der Akkommodationskoeffizient α [RTT05]. Dieser entspricht dem Anteil der diffusen Wechselwirkung. Demzufolge kann α Werte zwischen 0 und 1 annehmen und der Fall $\alpha = 1$ beschreibt, dass nur diffuse Streuung nach dem Kosinusetz stattfindet. Der andere Extremfall $\alpha = 0$ beschreibt eine vollständig spiegelnde Reflexion.

Es stellt sich nun die Frage, welche Akkommodationskoeffizienten für die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Fälle angenommen werden können. Experimentelle Untersuchungen [SBS01] zeigen, dass α von der Gasart und den Eigenschaften der Oberfläche abhängig ist. Bei Letzterem spielen insbesondere Material, Rauigkeit und die Tatsache, ob sich Gas (insbesondere Wasser) auf der Oberfläche abgesetzt hat, eine Rolle. Für diese Arbeit sind vor allem die zwei Materialien Edelstahl und Glas interessant. Für Edelstahl (mit der Legierung 304) hat [RTT05] einen Akkommodationskoeffizienten von 0,8 mit Stickstoff und 0,87 mit Argon gemessen. Hier ist die Beobachtung interessant, dass der Wert außerhalb der Messunsicherheit nicht davon abhängig ist, ob die Oberfläche poliert wurde oder nicht. [LS66] zeigt für Glas und PTFE, dass zwar ein großer Teil zufällig gestreut wird, es aber eine messbare Abweichung gibt. Laut [YTH06] erhöht sich der Anteil von Spiegelreflexionen mit einer durch abgesetztes Gas kontaminierten Oberfläche. Für diese Arbeit ist relevant, dass die betrachteten Kapillarsysteme im Ultrahochvakuum verbaut sind. Dies bedeutet, dass die Oberfläche von vornherein sehr sauber und zusätzlich noch über eine längere Zeit ausgegast sein wird. Von diesem Aspekt her kann also ein etwas höherer Akkommodationskoeffizient erwartet werden. [SBS01] untersucht die Akkommodation für verschiedene Edelgase. Dort wird ein Akkommodationskoeffizient für Krypton von 0,9 angegeben. Laut [Jou18, S. 206] nimmt der Akkommodationskoeffizient tendenziell mit der Masse des Gases zu. Somit wird bei gleicher Oberfläche der Akkommodationskoeffizient für Krypton höher sein als zum Beispiel für Argon.

Grundsätzlich kann festgestellt werden, dass der Anteil diffuser Streuung vermutlich überwiegt und je schwerer das Gas und je mikroskopisch rauer die Oberfläche, desto näher ist der Akkommodationskoeffizient an 1. Die experimentellen Daten weisen eine große Schwankung auf, was vor allem mit der hohen Materialabhängigkeit zusammenhängen dürfte. Insgesamt ist davon auszugehen, dass für die betrachteten Kapillaren nicht nur diffuse Reflexion eine Rolle spielt. Da aber der genaue Anteil an Spiegelreflexionen schwer vorherzusagen ist, ist zunächst das generelle Ziel den Einfluss unterschiedlicher Anteile an Spiegelreflexion zu simulieren und die Auswirkung auf die Atomstrahlformung zu quantifizieren.

Dazu wird die Simulation um die Wechselwirkung „Spiegelreflexion“ erweitert, in dem nun nicht mehr nur rein diffuse Wandstöße stattfinden, sondern bei jedem Wandstoß eine gewisse Wahrscheinlichkeit für eine diffuse Reflexion α_d und eine gewisse Wahrscheinlichkeit für eine Spiegelreflexion α_s vorliegt:

$$\alpha_s + \alpha_d = 1. \quad (3.4)$$

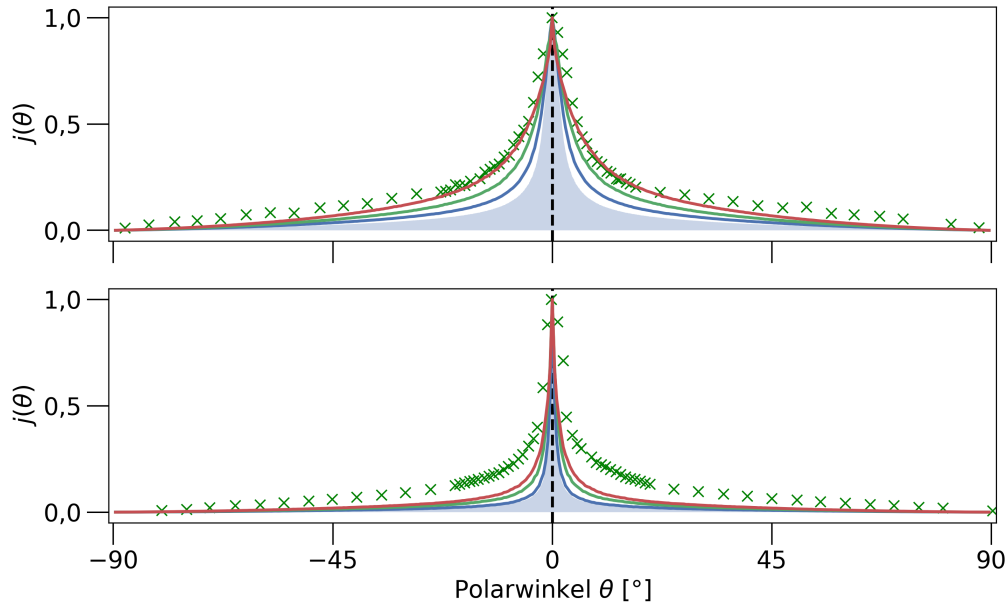


Abb. 3.15: Simulation mit Spiegelreflexionen und ohne Detektorsimulation für einen Anteil an Spiegelreflexionen α_s von 0,2 (blau), 0,4 (grün) und 0,6 (rot) für eine Kapillare mit $\Gamma = 25$ (oben) und $\Gamma = 100$ (unten) und zur Referenz (s. Beschreibung Abb. 3.10) Simulation ohne Spiegelreflexionen (blaues Histogramm) und Messdaten (grüne Punkte).

Analog zu Abschnitt 3.1 wurden Simulationen für verschiedene Γ -Werte und unterschiedlichen Anteilen an Spiegelreflexionen α_s durchgeführt und die Winkelverteilung am Kapillarausgang bestimmt. Die reine Winkelverteilung ohne Detektorsimulation ist in Abb. 3.15 für Anteile α_s von 0,2, 0,4 und 0,6 dargestellt. Die so bestimmten Winkelverteilungen wurden dann wieder als Verteilung zur Generierung der Winkelverteilung am Kapillarausgang genutzt und die Detektorsimulation durchgeführt. Diese ist in Abb. 3.16 dargestellt.

Insgesamt ist der Einfluss überraschend überschaubar und zu erwartende Anteile an Spiegelreflexionen von bis zu 0,2 führen zu keinen großen Veränderungen in der Winkelverteilung. Es fällt zudem auf, dass Spiegelreflexionen bei kleinerem Γ (oben) einen größeren Effekt aufweisen, als bei größeren Γ -Werten. Bei $\Gamma = 25$ verbreitert sich die Winkelverteilung deutlich und bei einem unrealistisch hohen Anteil von $\alpha_s = 0,6$ nähert sich die Winkelverteilung den Messdaten von Rugamas25 an. Im Fall von $\Gamma = 100$ ist bei $\alpha_s = 0,2$ noch keine Auswirkung erkennbar und die Aufweitung wirkt deutlich kleiner. Dies zeigt sich auch an den in Abb. 3.17 dargestellten Ergebnissen. Dort ist der relative Anteil in einem Winkelintervall gegen Γ im Winkelintervall 0° bis 3° und 3° bis 15° dargestellt. Es wurden wieder Spiegelreflexionsanteile von 0 (blau), 0,2 (grün) und 0,4 (rot) und 0,6 (lila) verwendet. Im Intervall bis 3° sieht

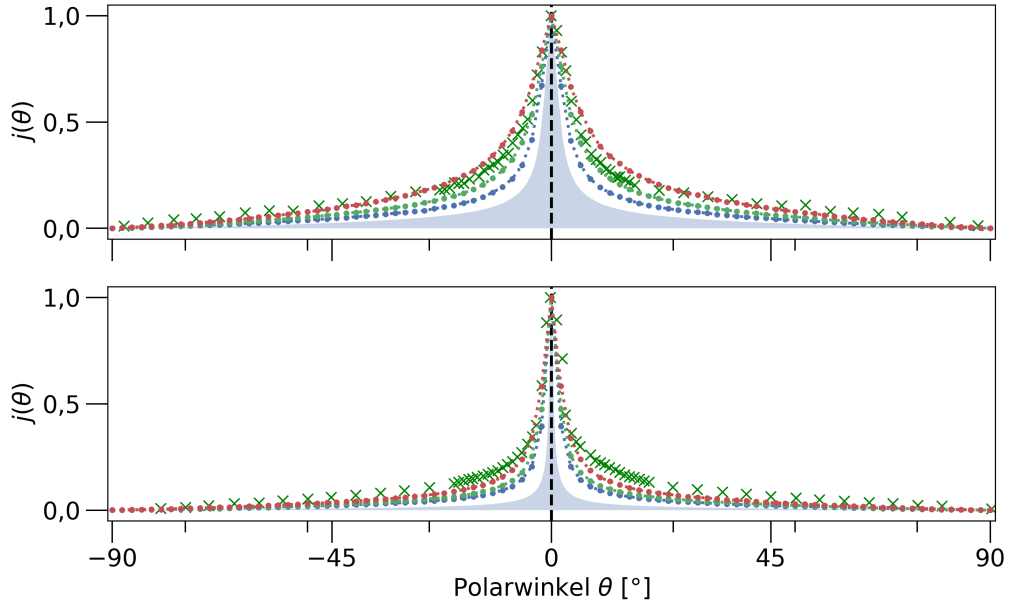


Abb. 3.16: Simulation mit Spiegelreflexionen und Detektorsimulation für einen Anteil an Spiegelreflexionen α_s von 0,2 (blau), 0,4 (grün) und 0,6 (rot) für eine Kapillare mit $\Gamma = 25$ (oben) und $\Gamma = 100$ (unten) und zur Referenz (s. Beschreibung Abb. 3.10) Simulation ohne Spiegelreflexionen (blaues Histogramm) und Messdaten (grüne Punkte).

man bei kleinen Γ eine deutliche Reduzierung bei einem zunehmenden Anteil an Spiegelreflexionen. Die Reduzierung wird aber mit zunehmendem Γ immer kleiner und verschwindet bei Γ -Werten von einigen hundert. Die gleiche Tendenz zeigt sich auch im Intervall 3° bis 6° , wobei sich die Unterschiede hier schon bei kleineren Γ -Werten von weniger als 100 annähern. Die Erklärung dürfte die mittlere Anzahl an Stößen liefern, die ein Atom durchführt (s. Abschnitt 3.1). Je höher die Anzahl an Stößen ist, desto geringer ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Teilchen aufgrund von Spiegelreflexion die Kapillare unter einem größeren Winkel verlässt.

Dies führt zu einem weiteren Aspekt, der gegen einen hohen Anteil an Spiegelreflexionen spricht: Der Durchlaufwahrscheinlichkeit. In Abb. 3.18 ist das Verhältnis der Durchlaufwahrscheinlichkeit W aufgrund von Spiegelreflexionen gegenüber einem System ohne Spiegelreflexionen $W_{\alpha=0}$ gegen das Längen-Breiten Verhältnis dargestellt. Generell ist zu sehen, dass das Verhältnis mit Γ zunimmt. Dies ist mit dem bei steigendem Γ immer kleiner werdenden Anteil an stoßfrei die Kapillare passierenden Atomen zu erklären, auf die eine Veränderung der Gas-Wand-Wechselwirkung keinen Einfluss hat. Das Verhältnis, welches die Steigerung der Durchlaufwahrscheinlichkeit ausdrückt, erhöht sich stark mit zunehmendem α_s . Da die Durchlaufwahrscheinlichkeit direkt in den resultierenden Atomfluss eingeht, müsste z.B. bei einem $\alpha_s = 0,4$

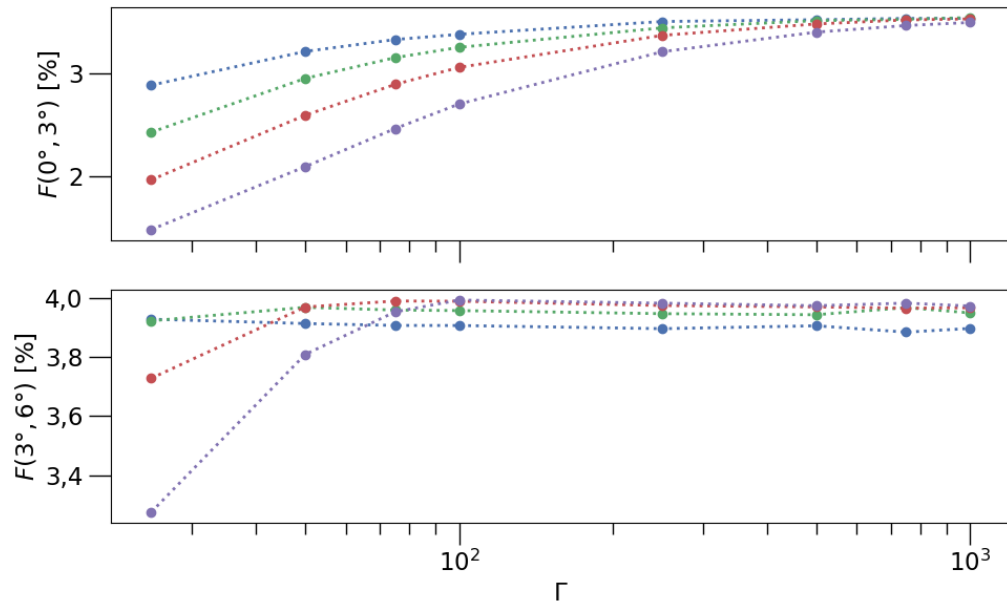


Abb. 3.17: Relativer Anteil eines Winkelintervalls F in Abhängigkeit von dem Längen-Breiten-Verhältnis Γ zwischen 25 und 1000 in den Winkelintervallen 0° bis 3° (oben) und 3° bis 6° (unten) für einen Anteil an Spiegelreflexionen von 0 (blau), 0,2 (grün), 0,4 (rot) und 0,6 (lila).

der Atomfluss um den Faktor 2 größer sein. Auch wenn experimentelle Daten dazu schwanken, wird eine Abweichung in dieser Größenordnung nicht beobachtet. Auch die eigenen Messungen im nächsten Kapitel zeigen keinen stark erhöhten Durchfluss.

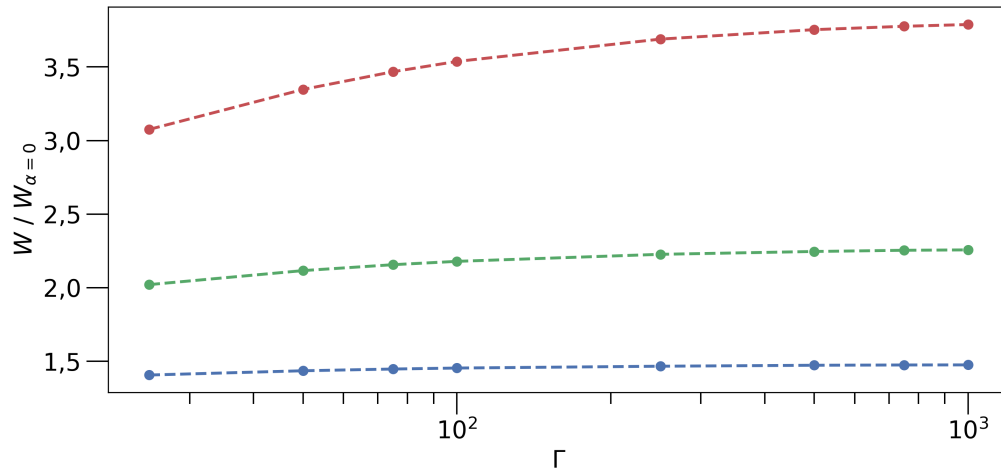


Abb. 3.18: Aus Simulation bestimmtes Verhältnis der Durchlaufwahrscheinlichkeit mit den Spiegelreflexionsanteilen α_s von 0,2 (blau), 0,4 (grün) und 0,6 (rot) zur Durchlaufwahrscheinlichkeit ohne Spiegelreflexionen gegen das Längen-Breiten-Verhältnis Γ .

3.2.4 Atom-Atom-Stöße

Unter Berücksichtigung der vorgestellten Effekte tritt bei den resultierenden Winkelverteilungen weiterhin eine deutliche Abweichung zwischen Simulation und Messungen auf. Eine weitere bisher nicht berücksichtigte Wechselwirkung ist die sogenannte Oberflächendiffusion. Hier werden Teilchen nicht direkt wieder am Wechselwirkungspunkt reflektiert, sondern von der Wand absorbiert, wandern auf der Oberfläche eine gewisse Entfernung und werden dann wieder desorbiert. Bei Elementen, für welche die Oberflächendiffusion eine größere Rolle spielt, scheint es eine größere Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment zu geben. Elemente, für die Oberflächendiffusion eine geringere Rolle spielt, in der Regel Metalle, zeigen eine größere Übereinstimmung zwischen Messungen und Theorie [Luc13, S. 295] [Sen+15]. Auf Basis der vorgestellten Untersuchungen wird aber auch der Einfluss auf die Winkelverteilung einer möglichen Oberflächendiffusion als gering eingeschätzt. Denn auch hier würde sich bei einem großen Anteil auf die Gas-Wand-Wechselwirkung die Durchlaufwahrscheinlichkeit stark erhöhen und damit zu einem messbar gesteigerten Durchfluss führen. Dieser wird nicht beobachtet.

Es bietet sich jedoch ein anderer Erklärungsansatz an, warum die Übereinstimmung für Metalle größer ist. Metalle müssen bei hohen Temperaturen verdampft werden. So wird beispielsweise in [Sen+15] mit Temperaturen im Bereich von 400° bis 525° gearbeitet um Rubidium zu verdampfen. Rubidium ist von den kinetischen Eigenschaften insbesondere mit Krypton vergleichbar, da es ähnliche Atomdurchmesser

und Atommassen aufweist. Die in diesem Kapitel vorgestellte Messmethode ist hier nicht geeignet, da alle Oberflächen auf der entsprechenden Temperatur gehalten werden müssten. Zur Vermessung des Strahls werden deshalb optische Methoden verwendet, was im Falle von Rubidium relativ einfach möglich ist, da der erste angeregte Zustand im Bereich kommerziell erhältlicher Laser liegt. Die dort gemessenen Winkelverteilungen weisen eine hohe Übereinstimmung mit den aus der Theorie zu erwartenden Werten auf. Der wohl entscheidende Unterschied ist, dass die höhere Sensitivität auch Messungen bei kleineren Drücken ermöglicht.

Daraus folgt, dass viele Messungen vermutlich nicht mehr wirklich im molekularen Bereich stattfinden, auch wenn scheinbar wie z.B. in Abb. 3.9 noch keine Druckabhängigkeit sichtbar ist. Wie in den letzten Abschnitten vorgestellt, kann allein durch eine begrenzte Detektorauflösung und die Ausdehnung der Kapillarsysteme die Winkelverteilung in kleineren Druckbereichen zunächst nicht messbar breiter werden. Die Winkelauflösung der Messung kann häufig durch größere Abstände zum Kapillarausgang nicht erhöht werden, da viele Messungen im molekularen Bereich am Rande der Messbarkeit sind.

Es soll nun mithilfe der Simulation höhere Druckbereiche betrachtet werden, um zu untersuchen, ob sich dieses Bild bestätigt. Im letzten Kapitel wurde die analytische Form der Winkelverteilung unter Berücksichtigung von Atom-Atom-Stößen (Gl. (2.32)-Gl. (2.36)) vorgestellt, bei der die Knudsen-Zahl Kn_L verwendet wird, um den Einfluss von Atom-Atom-Stößen zu quantifizieren. Diese wird nun verwendet, um die Winkelverteilungen am Ausgang des Kapillarsystems zu generieren und die Detektorsimulation durchzuführen. Für einen Vergleich der Druckabhängigkeit für das Kapillarsystem Rugamas25 wurden zu der schon gezeigten Messung noch drei weitere Messungen und für Rugamas100 fünf weitere Messungen mit höheren Drücken hinzugezogen. Für Rugamas25 liegen die betrachteten Drücke zwischen 0,019 mbar und 0,827 mbar und für Rugamas100 liegen sie zwischen 0,011 mbar und 6,599 mbar. Diese Messungen und entsprechende Simulationen mit gleichen Parametern sind in Abb. 3.19 dargestellt. Da für die Beurteilung des Druckregimes nicht der Druck direkt, sondern die Knudsen-Zahlen Kn_L und Kn_D (s. Abschnitt 2.1 verwendet werden, sind diese ebenfalls berechnet und angegeben.

Für Rugamas25 Abb. 3.19 (oben) fällt auf, dass die Messungen mit tieferen Drücken bis zu einem $Kn_D \approx 0,5$ breiter sind, als die entsprechenden Simulationsergebnisse. Für den höchsten Druck mit $Kn_D = 0,1$ ist die aus der Simulation erhaltene Winkelverteilung breiter. Die Simulation mit dem niedrigsten Druck ist deutlich dichter an der entsprechenden Messung als bei der Simulation ohne die Berücksichtigung von Atom-Atom-Stößen (s. Abb. 3.14). Insgesamt entsteht für die drei

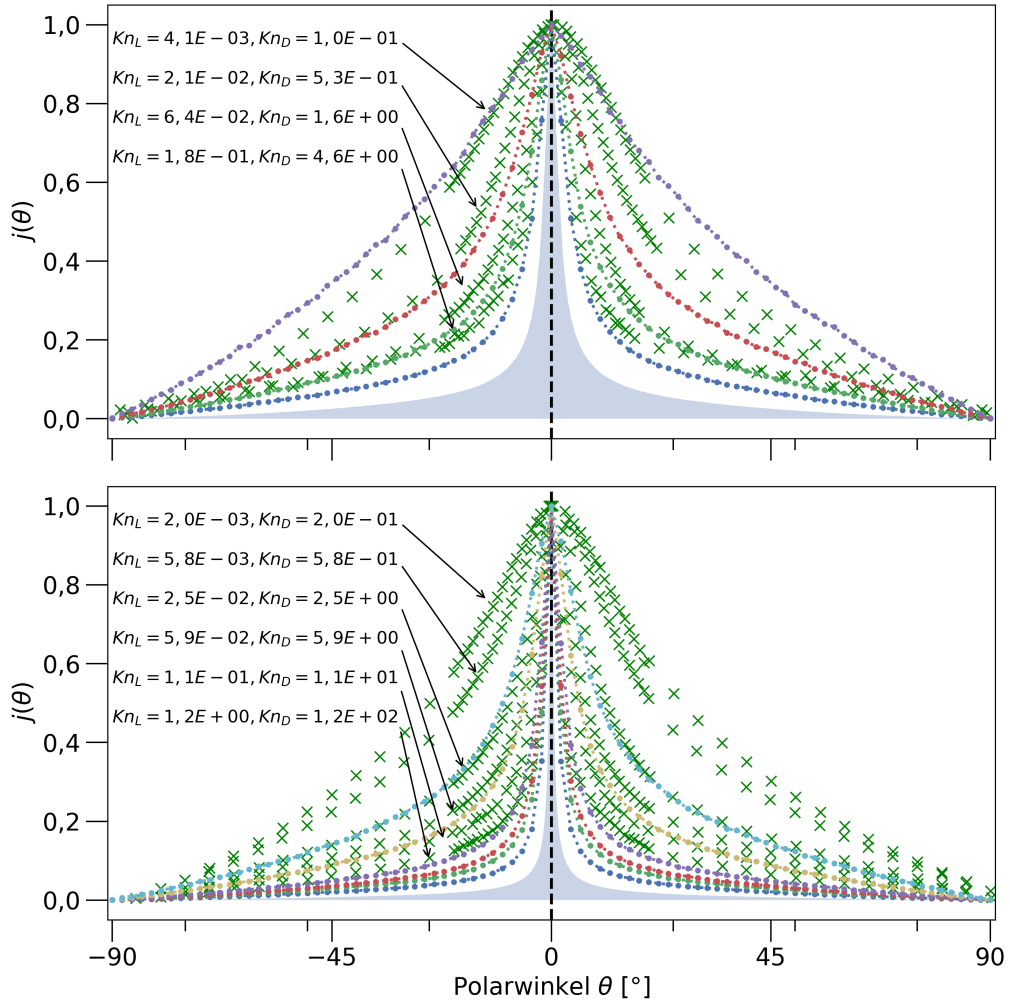


Abb. 3.19: Simulierte Messung mittels Detektor mit generierter Winkelverteilung nach Gl. (2.32)-Gl. (2.36) und Messungen (grün) aus [Rug+00]. Angegeben sind auch die Knudsen-Zahlen Kn_D und Kn_L (s. Gl. (2.1)).

unteren Drücke der Eindruck, dass die Beschreibung die Abhängigkeit vom Druck unterschätzt. Wird ein größerer Kn_L -Wert betrachtet, scheint der Verlauf aber qualitativ gut übereinzustimmen. So weisen die niedrigste Messung und die Simulation mit $Kn_L = 6,4 \cdot 10^{-2}$ mbar (grün) eine recht gute Übereinstimmung auf. Der höchste Druck scheint mit $Kn_L = 4 \cdot 10^{-3}$ und $Kn_D = 0.1$ schon an die Grenzen der Gültigkeit der analytischen Beschreibung zu kommen. Der Druckbereich ist hier vermutlich schon viskos. Im Falle von Rugamas100 in Abb. 3.19 (unten) ist ebenfalls mit steigendem Druck eine deutliche Aufweitung der aus der Simulation erhaltenen Winkelverteilung beobachtbar. Allerdings sind hier alle simulierten Verteilungen schmäler als die entsprechenden Messungen. Der qualitative Verlauf lässt sich aber

auch hier wieder in Übereinstimmung bringen, wenn Messungen mit Simulationen bei einem höheren Kn_L -Wert verglichen werden.

Auf Basis dieser Beobachtung lassen sich die nun folgenden Überlegungen aufstellen. Die in die Kapillare eintretenden Teilchen haben bereits eine gewisse Wegstrecke in der Kammer vor der Kapillare zurückgelegt. Je nachdem, ob ihre letzte Wechselwirkung mit einer Wand oder mit einem Atom stattgefunden hat, kann dies der gesamten Länge der Kammer vor der Kapillare entsprechen. Gerade bei sehr kurzen Kapillaren, wie bei Rugamas100 mit $L \approx 5$ mm, kann es sein, dass die vorher zurückgelegte Strecke länger ist, als die Kapillarlänge. Aufgrund dieser Tatsache wird das Atom im Mittel früher als zunächst erwartet in der Kapillare stoßen bzw. auch nicht stoßfrei hindurchkommen. Mit der Verwendung von Kn_L als einzigen Parameter für das Maß an Atom-Atom-Stößen wird diese Tatsache vernachlässigt. Dies zu berücksichtigen ist sehr komplex, da neben der Dimensionierung der Vorkammer auch wieder eine Druckabhängigkeit zu erwarten ist. Bei sehr niedrigen Drücken werden alle Atom, die die Kapillare erreichen, zuletzt einen Wandstoß vollzogen haben. Bei steigenden Drücken werden sie zunehmend mit Hintergrundgasatomen in der Vorkammer stoßen und der letzte Wechselwirkungspunkt wird näher an den Eingang der Kapillare heranrücken.

Für einen pragmatischen Ansatz wird nun in der Berechnung der Winkelverteilung Kn_L durch Kn_L^{eff} ersetzt:

$$Kn_L^{\text{eff}} = \epsilon \cdot Kn_L. \quad (3.5)$$

ϵ ist hier ein empirischer Skalierungsfaktor für Kn_L . Im nächsten Schritt wurden die Simulationen mit verschiedenen ϵ -Werten durchgeführt und untersucht, ob sich ein Wert findet, mit dem die Messungen besser reproduzierbar sind. Die Ergebnisse mit $\epsilon = 1/1.6$ für Rugamas25 und $1/13$ für Rugamas100 sind in Abb. 3.20 dargestellt. Obgleich es sich um einen sehr empirischen Ansatz handelt, sind die Übereinstimmungen groß. Simulation und Messung für Rugamas25 stimmen deutlich besser überein. Dies gilt insbesondere für den mittleren Druckbereich.

Auch für Rugamas100 findet sich ein empirischer Skalierungsfaktor ϵ , für den eine deutlich höhere Übereinstimmung mit den Messungen erreicht werden kann. Nur der geringste und höchste Druck weisen noch starke Abweichungen auf. Das ϵ ist hier etwa achtmal größer als bei Rugamas25. Da das Kapillarsystem Rugamas100 kürzer ist, könnte hier die Wegstrecke vor der Kapillare eine größere Rolle spielen als bei Rugamas25. Sowohl für Rugamas25 als auch für Rugamas100 gilt, dass für sehr hohe Drücke die simulierte Winkelverteilung sehr viel breiter wird als die gemessene. Da die freie Weglänge bei diesen Drücken sehr viel kleiner als der Durchmesser der Kapillaren wird, verliert die Flugstrecke vor der Kapillare an Bedeutung. Wie oben

erwähnt, findet hier zusätzlich der Übergang in den viskosen Druckbereich statt und die analytische Beschreibung verliert zunehmend ihre Gültigkeit. Insgesamt lassen sich mit dieser Methode Winkelverteilungen im für diese Arbeit interessanten mittleren Druckbereich finden, welche die gemessenen Winkelverteilungen beschreiben.

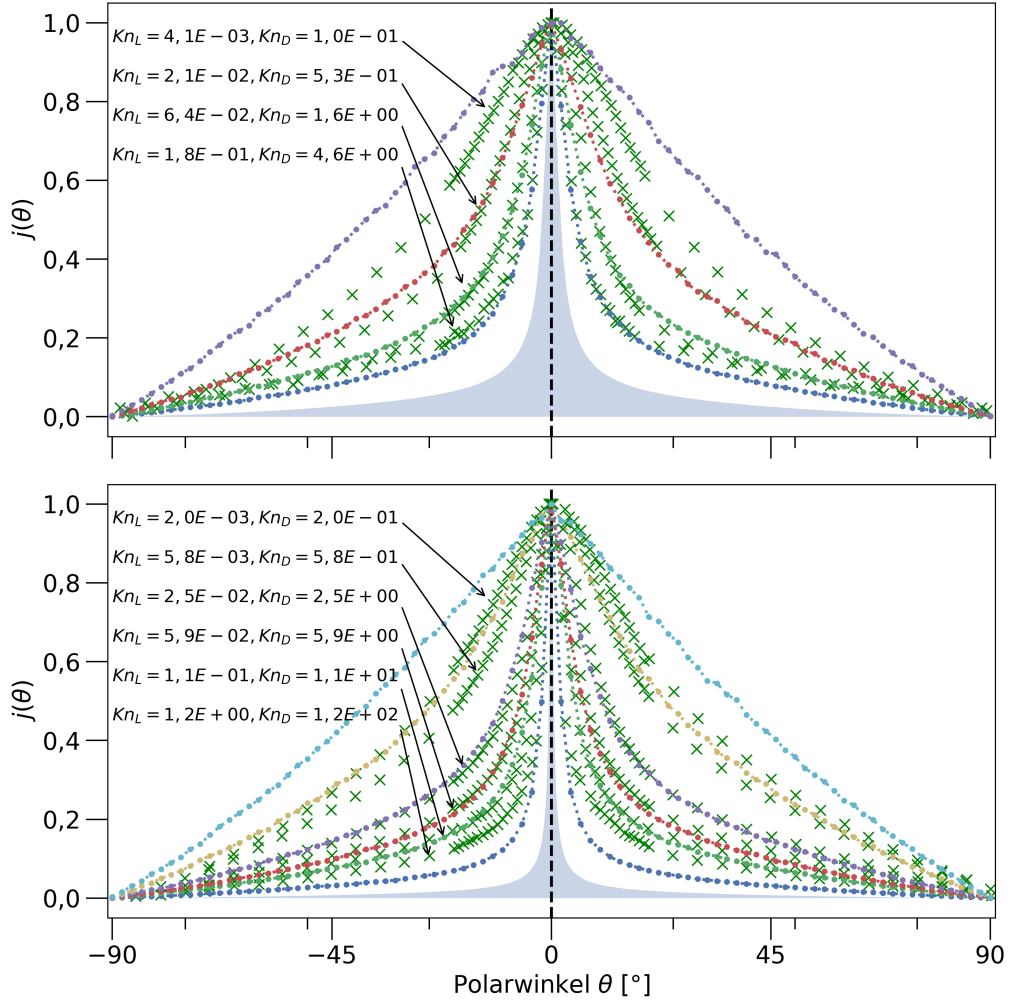


Abb. 3.20: Simulierte Messung mittels Detektor mit generierter Winkelverteilung nach Gl. (2.32)-Gl. (2.36) unter Verwendung von Kn_L^{eff} (s. Gl. (3.5)) mit $\epsilon = 1/1.6$ ($\Gamma = 25$) und $\epsilon = 1/13$ ($\Gamma = 100$) und Messungen (grün) aus [Rug+00]. Angegeben sind auch die Knudsen-Zahlen Kn_D und Kn_L (s. Gl. (2.1)).

3.3 Zwischenfazit und relevante Schlussfolgerungen

Insgesamt zeigt sich eine exzellente Übereinstimmung zwischen den durchgeführten Simulationen und den theoretischen Modellen. Beim Vergleich der Simulationser-

gebnisse mit aus der Literatur entnommenen experimentellen Ergebnissen ergibt sich zunächst aber eine große Diskrepanz, da die realen Winkelverteilungen deutlich breiter sind. Wie herausgearbeitet und anhand der Simulation quantifiziert wurde, spricht trotzdem viel für die Gültigkeit der theoretischen Beschreibung, allerdings nur in einem niedrigeren Druckbereich. Eine Akkumulation verschiedener kleinerer Effekte führt zudem zu einer Verbreiterung der tatsächlichen und der abgebildeten Winkelverteilung. Die Untersuchungen zeigen, dass die Annahme rein diffuser Streuung akzeptabel ist und realistische Akkommodationskoeffizienten nur zu kleineren Verbreiterungen führen. Als in der Praxis herausfordernd zeigen sich die Messungen selbst. Wie die Simulation gezeigt hat, haben typische Detektorauflösungen und die Ausdehnung der Kapillarsysteme spürbare Einflüsse auf die Abbildung schmaler Verteilungen. Die kleinen Atomflüsse im tatsächlichen molekularen Bereich zu vermessen ist aufgrund der geringen Signale an der Grenze der Messbarkeit vieler Messaufbauten. Hier sind optische Methoden, wie sie im nächsten Kapitel verwendet werden, im Vorteil, auch wenn hier die Flexibilität fehlt, mit einem Aufbau verschiedene Gasarten zu vermessen. Für die Praxis der Atomstrahlerzeugung relevante Größen an Atomflüssen lassen sich nicht ohne Weiteres im molekularen Bereich erreichen. Die Untersuchungen deuten darauf hin, dass dieser schon früher als angenommen, verlassen wird. Die analytische Beschreibung der Winkelverteilung Gl. (2.32)-Gl. (2.36), die Atom-Atom-Stöße mit einbezieht, liefert im mittleren Druckbereich unterhalb der viskosen Strömung für die betrachteten Messungen mit einem empirischen $K n_L^{\text{eff}}$ gute Ergebnisse und wird im nächsten Kapitel verwendet.

Mit der Einordnung der Gültigkeit der theoretischen Beschreibung lassen sich einige relevante Schlüsse für die Atomstrahlformung ziehen. Größere Γ -Werte führen zu schmalen Winkelverteilungen, der Effekt sättigt aber vermutlich bei einem Γ -Wert um 100. Generell sind die entstehenden Atomflüsse kleiner, je niedriger der Druck vor der Kapillare ist. Um trotzdem hohe Atomflüsse bei großen Γ -Werten zu erreichen, sollte unbedingt ein Array verwendet werden. Zudem sollte der hohe Γ -Wert bei gleichzeitig möglichst kurzer Kapillarlänge erreicht werden. Auch wenn die Angabe für den molekularen Strömungsbereich nicht die Flugstrecke vor der Kapillare außer Acht lassen sollte, erlaubt es trotzdem länger in einem möglichst stoßfreien Regime zu arbeiten. Im nächsten Kapitel werden zwei Kapillarsysteme aus Glas untersucht, die diese Bedingungen ausgezeichnet erfüllen.

Metastabile Krypton-Atomstrahlen: Messungen und Simulationen

In diesem Kapitel wird die Sichtweise von der isolierten Betrachtung der Atomstrahl-Erzeugung durch ein Kapillarsystem auf die Erzeugung metastabiler Atomstrahlen mit Krypton, deren Propagation in einem System und deren Charakterisierung erweitert. Hierfür wurden umfangreiche Messungen mit vier verschiedenen Kapillarsystemen an zwei Vakuumkammersystemen durchgeführt. Für eine präzise Modellierung des Systems müssen weitere Effekte berücksichtigt werden, die in diesem Kapitel vorgestellt werden. Insgesamt ergibt sich ein komplexes Bild, weshalb eine erweiterte Monte-Carlo-Simulation entwickelt wurde. Diese beinhaltet die anfängliche Erzeugung durch eine Kapillare, die Anregung in den metastabilen Zustand, die Propagation durch das Vakuumssystem inklusive Stoßverluste sowie die Messung. Anhand des Vergleichs mit den durchgeführten experimentellen Messungen unter unterschiedlichen Bedingungen wurde eine passende Parametrisierung gefunden und die Modellierung validiert.

Das Kapitel gliedert sich in drei Teile. Zunächst werden die untersuchten Kapillarsysteme, die verwendeten Messaufbauten und deren Nachbildung in der Simulation vorgestellt. Im zweiten Teil werden die Krypton-Atomstrahlen im Grundzustand betrachtet und es werden die entstehenden Atomflüsse und Druckverteilungen in den Vakuumssystemen untersucht. Im dritten Teil werden dann metastabile Atomstrahlen vermessen und simuliert.

4.1 Experimentelle Aufbauten und Nachbildung

Die Messungen in diesem Kapitel wurden im Zuge der Entwicklung eines Krypton-Zeeman-Slowers unter Verwendung von Permanentmagneten in Zusammenarbeit mit Ergin Simsek und Carsten Sieveke realisiert. Für die Vermessung des Anteils metastabiler Atome eines Atomstrahls eignet sich nicht die im vorherigen Kapitel

angewendete Methode mittels Bayard-Alpert-Vakuummeter, da bei dieser nicht zwischen metastabilen Atomen und Atomen im Grundzustand diskriminiert werden kann. Stattdessen sind zwei andere Messprinzipien geeignet. Bei Messungen mit einem Faraday-Becher wird ausgenutzt, dass metastabile Atome durch ihre hohe Energie beim Auftreten auf eine Metalloberfläche Elektronen herauslösen können. Über ein positives Potenzial können die Elektronen eingesammelt, der Elektronenfluss bestimmt und daraus auf den metastabilen Atomfluss geschlossen werden [Rit14].

Sind geeignete atomare Übergänge vorhanden, eignen sich für die Vermessung des Atomstrahls auch spektroskopische Methoden [Dem13]. Im Falle von metastabilem Krypton weist der im infraroten Bereich liegende und in Abb. 4.16 dargestellte $4p5\ 5s[3/2]2 \rightarrow 4p5\ 5s[5/2]3$ Übergang eine hohe mögliche Streurate und eine gut per Laser zugängliche Wellenlänge von 811 nm auf. Für die angestrebte Verwendung in einem Zeeman-Slower dient dieser Übergang auch als optischer Kühlübergang. Damit eignet sich zur Analyse des Atomflusses und der Geschwindigkeitsverteilung der Atome die Fluoreszenz- bzw. Absorptionsspektroskopie. Beim Vergleich der beiden Messprinzipien ist die Spektroskopie-Methode für den hier besprochenen Fall flexibler und nutzt bereits vorhandene Aufbauten. Wird an örtlich versetzten Messpunkten gemessen, können auch Rückschlüsse auf geometrische Strahleigenschaften und Verlustprozesse gezogen werden. Bei beiden im Folgenden vorgestellten Vakuumkammersystemen gibt es deshalb optische Zugänge für die Anregung in den metastabilen Zustand und für die Fluoreszenzspektroskopie. Eine detaillierte Beschreibung der Messmethodik und deren Nachbildung in der Simulation folgt im dritten Teil dieses Kapitels (s. Abschnitt 4.3.1).

4.1.1 Messaufbau 1: Stahl-Kapillaren

Im ersten Messaufbau wurden Stahlröhrchen verwendet, die den Vorteil haben, dass es relativ einfach möglich ist, große Γ -Werte zu realisieren. Verwendet wurden Kapillarröhrchen mit einem Innendurchmesser von 1 mm, die aus circa 2 m langen nahtlosen Edelstahlröhrchen mit der Legierung 316L zugeschnitten wurden. Als Anforderung für die Halterung der Stahlröhrchen wurde eine Möglichkeit gesucht, die das Kapillarsystem flexibel im Ultrahochvakuum (UHV) zwischen zwei Druckregimen befestigt und das UHV erhält. Zudem sollte durch eine gute Abdichtung zwischen Halterung und Kapillaren sichergestellt werden, dass Atome möglichst durch die Kapillare von einer Kammer in die nächste strömen. Eine weitere Anforderung war die Möglichkeit zur Kühlung von außerhalb des Vakuumsystems mittels flüssigem Stickstoff. In Anbetracht der hohen Anzahl an Stößen mit der

Kapillarwand, die ein Teilchen im Mittel vollzieht (s. Abb. 3.5), sollten insbesondere auch die Kapillaren selber von außerhalb des Vakuums kühlbar sein.

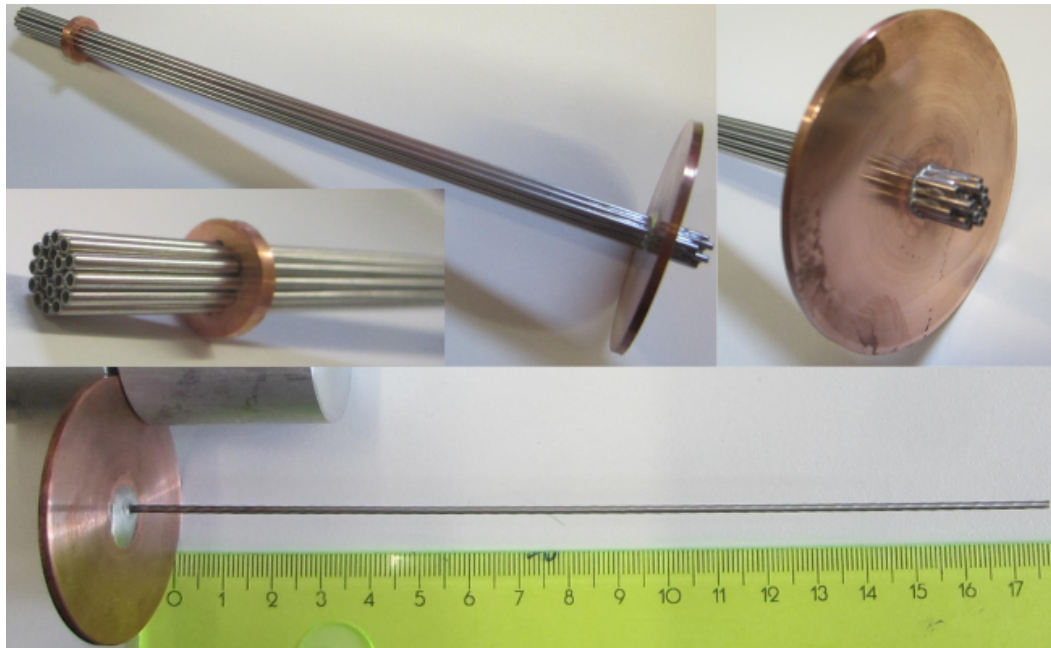


Abb. 4.1: Aufnahmen der zwei angefertigten Typen von Kapillarsystemen *Array172* (drei Bilder oben) und *Single165* (unten). Die Spezifikationen sind in Tab. 4.1 aufgelistet.

Bei der gefundenen Lösung werden die Stahlröhrchen in einer runden Kupferscheibe gehalten. Die Kupferscheibe dient gleichzeitig als DN 40 Dichtung. Die beiden angefertigten Typen an Stahl-Kapillarsystemen sind in Abb. 4.1 dargestellt. Das erste System besteht aus nur einer Kapillare mit einem $\Gamma = 165$, welches im Folgenden als *Single165* bezeichnet wird. Das zweite System besteht aus 19 Stahlkapillaren mit jeweils $\Gamma = 172$, welches als *Array172* bezeichnet wird. Die genauen Spezifikationen sind auch in Tab. 4.1 aufgelistet.

	Single165	Array172
Γ	165	172
Länge einer Kapillare [mm]	165	172
Innendurchmesser einer Kapillare [mm]	1	1
Wandstärke einer Kapillare [mm]	0,25	0,25
Anzahl an Kapillaren	1	19
Durchlaufwahrscheinlichkeit (Gl. (2.31))	$7,91 \cdot 10^{-3}$	$7,62 \cdot 10^{-3}$

Tab. 4.1: Eigenschaften der beiden für die Messungen angefertigten Kapillarsysteme *Single165* mit einem und *Array172* mit 19 Stahlröhrchen.

Um die Kontaktfläche zwischen Kupferscheibe und Kapillaren abzudichten, wurden diese UHV-dicht kalt verlötet. Eine Untersuchung mittels Massenspektrometer zeigte keine auffälligen Verunreinigungen des UHVs durch das Löten. Auch konnte bestätigt werden, dass ein zum Test verlötetes Loch in einer Kupferscheibe ohne Kapillaren UHV-dicht gegen Atmosphäre abdichtet. Die Dichtigkeit blieb auch beim mehrfachen Kühlen der Kupferscheibe mit Flüssigstickstoff und anschließendem Erwärmen erhalten. Aufgrund der Wärmeleitfähigkeit des Kupferrings und der demonstrierten Robustheit eignen sich die Kapillarsysteme auch für das Vorkühlen des eingeleiteten Probengases. Dies wird im Rahmen dieser Arbeit aber nicht weiter vertieft.

Zur Charakterisierung der beiden Kapillarsysteme wurde das in Abb. 4.2 abgebildete Vakuumkammersystem *Messaufbau 1* verwendet. Das Vakuumsystem besteht aus drei UHV-Teilsystemen, eines für das Lampengas der VUV-Plasmalampen, welches zur Anregung der Krypton-Atome in den metastabilen Zustand verwendet wird, und zwei für das eigentliche Probengas. Die zwei Probengaskammern sind über das verwendete Kapillarsystem verbunden und werden im folgenden als Vor- und Messkammer bezeichnet. Für eine präzise Simulation wurde das Messkammersystem in Molflow nachgebildet und ist in Abb. 4.3 zusammen mit wichtigen Maßangaben dargestellt. Eine genaue Beschreibung der Simulation folgt in den nächsten Unterkapiteln. Die Kapillaren ragen von oben durch den Deckel der Messkammer. Zwei VUV-Plasmalampen nach der in [Koh11] beschriebenen Bauweise sind ebenfalls am Deckel befestigt und in Richtung des Ausgangs der Kapillaren 45° geneigt. Lampengas- und Messkammer sind durch Magnesiumfluorid-Fenster getrennt.

Das Probengas strömt von der Vorkammer durch das Kapillarsystem in die Messkammer. Die Vorkammer ist mit einem Drucksensor (Pfeiffer Vacuum PKR 360) ausgestattet und besteht in dem Teil nahe des Kapillarsystems aus Kupfer. Dies dient der angesprochenen Vorkühlung. Atome, die aus der Kapillare austreten, haben eine maximale Flugstrecke von 13 cm und treffen dann auf den Boden der Messkammer. Von der Messkammer pumpt eine Turbomolekularpumpe (Pfeiffer Vacuum TMU 200M) das Probengas zurück in die Gaszufuhr der Vorkammer. Zur Druckmessung in der Messkammer ist ein Drucksensor (Pfeiffer Vacuum IKR 270) am Kammerdeckel angebracht.

Aufgrund der geringen Messsignale ist eine Minimierung des Photonenuntergrunds, insbesondere durch Anregungs- und Messlaserstrahl, entscheidend. Diese besitzen eine Wellenlänge nahe bzw. identisch mit der Detektionswellenlänge und lassen sich somit nur eingeschränkt bzw. gar nicht optisch herausfiltern. Auf einer Flugstrecke von 10 cm stehen sechs optische Zugänge auf drei sich kreuzenden Achsen zur Verfügung. Alle optischen Zugänge weisen eine Antireflexbeschichtung auf. Wie

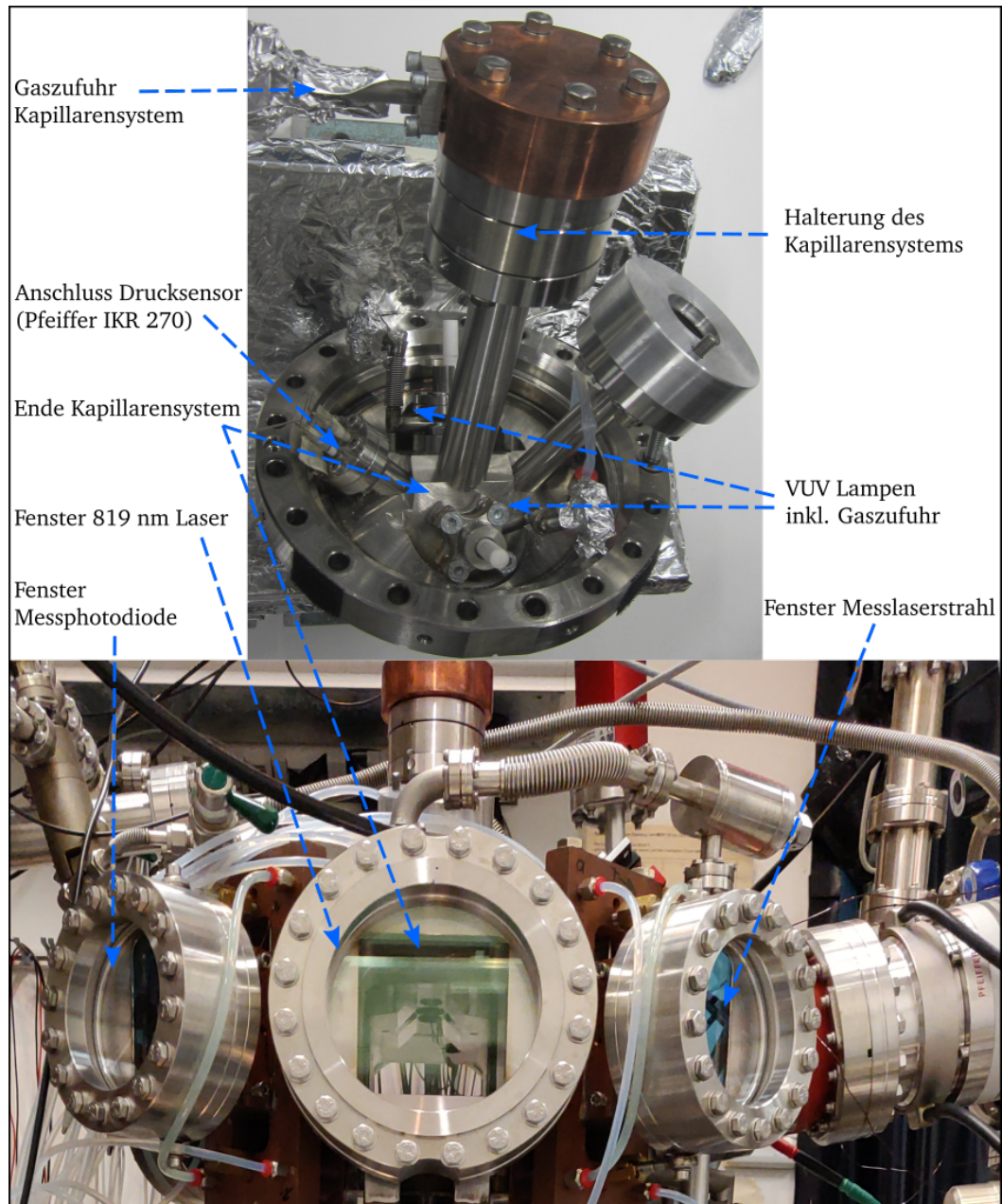


Abb. 4.2: Abbildung des Deckels der Messkammer mit einem eingebauten Kapillarsystem (oben) und Messkammer mit montiertem Deckel (unten).

in Abb. 4.3 skizziert wird jeweils eine Achse für den Anregungslaserstrahl, den Messlaserstrahl und für die Detektion verwendet. Dies ermöglicht es die Laserstrahlen aus der Kammer zu führen und kontrolliert zu absorbieren. Auf der Achse des Detektors besteht die Möglichkeit die gegenüberliegende Seite hinter dem Fenster zu verdunkeln. Zudem hat die Detektion keine direkte Sichtachse auf die Ein- und Austrittsfenster der Laserstrahlen, wodurch Streuungen an den Fenstern nicht

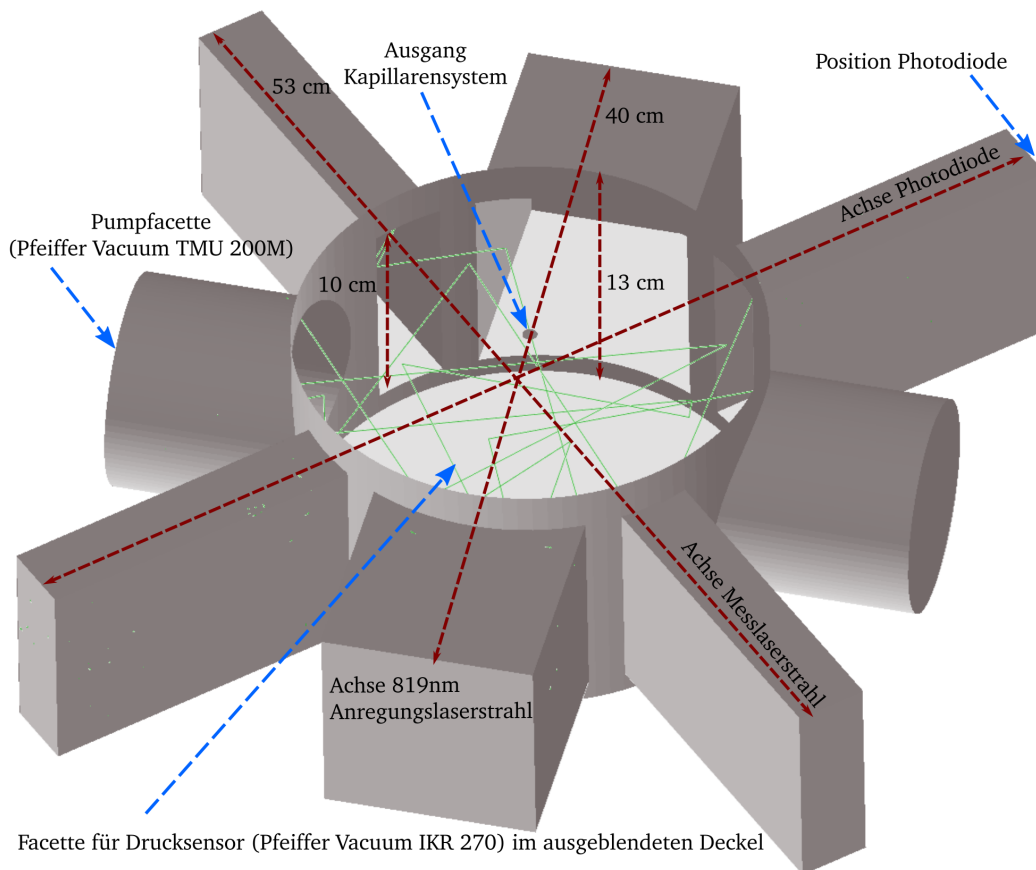


Abb. 4.3: Nachbildung des in Abb. 4.2 abgebildeten Vakuumsystems in Molflow zur Simulation der Druck- und Lasermessungen mit ausgeblendetem Deckel, einigen exemplarischen Trajektorien (grüne Linien) und charakteristische Maßangaben (rote Pfeile).

direkt in die Detektion gelangen können. Zusammen mit einer phasenempfindlichen Verstärkung mit einem Lock-in-Verstärker war es möglich, ein akzeptables Signal-Rausch-Verhältnis zu erhalten

Der Vorteil des Messaufbaus 1 liegt darin, dass es auf einer sehr kurzen Distanz nach dem Ausgang des Kapillarsystems möglich ist, die Atome sowohl in den metastabile Zustand anzuregen als auch die metastabilen Atome zu charakterisieren. Dies ermöglicht die Vermessung des Atomstrahls mit sehr geringer geometrischer Selektion und vermeidet Stoßverluste aufgrund einer längeren Flugdauer. Auch Einflüsse der phasenempfindlichen Verstärkung, verursacht durch eine längere Flugzeit, sind gering. Aufgrund der langen Kapillaren von mehr als 16 cm zusammen mit der geringen offenen Fläche gelangen messbare metastabile Flüsse nur im nicht-molekularen Druckbereich.

4.1.2 Messaufbau 2: Glas-Kapillaren

Beim Messaufbau 2 stellt sich die Situation anders dar. Hier wurden zwei Kapillarsysteme aus Glas des Herstellers Hamamatsu verwendet, die eine Länge von nur 1 mm aufweisen. Aufgrund der geringen Kapillardurchmesser von $6\text{ }\mu\text{m}$ bzw. $1\text{ }\mu\text{m}$ können trotzdem sehr hohe Γ -Werte von 165 und 1000 erreicht werden. Die Spezifikationen sind auch in Tab. 4.2 aufgelistet. Das $\Gamma = 165$ Kapillarsystem, im Folgenden als *Glas165* bezeichnet, weist einen effektiven Durchmesser von 2 cm auf und der Anteil der offenen Fläche beträgt circa 60 %. Hieraus ergibt sich eine Anzahl an Kapillaren von $6,7 \cdot 10^6$. Das als *Glas1000* bezeichnete Kapillarsystem mit $\Gamma = 1000$, besitzt einen fast identischen effektiven Durchmesser von 1,9 cm aber nur einen halb so großen Anteil offener Fläche von 30 %. Aufgrund des extrem geringen Kapillardurchmesser folgt eine enorme Anzahl an Kapillaren von $1 \cdot 10^8$.

In Arbeit verwendete Bezeichnung	Glas165	Glas1000
Γ	165	1000
Länge einer Kapillare [mm]	1	1
Durchmesser einer Kapillare [μm]	6	1
Effektiver Durchmesser [mm]	20	19
Anteil der offenen Fläche [%]	60	30
Berechnete Anzahl an Kapillaren	$6,7 \cdot 10^6$	$1,083 \cdot 10^8$
Typbezeichnung	J5022-09	J5022-09-Y014
Durchlaufwahrscheinlichkeit (Gl. (2.31))	$7,91 \cdot 10^{-3}$	$1,33 \cdot 10^{-3}$

Tab. 4.2: Verwendete Kapillarsysteme *Glas165* und *Glas1000* und die den Datenblättern entnommenen Spezifikationen.

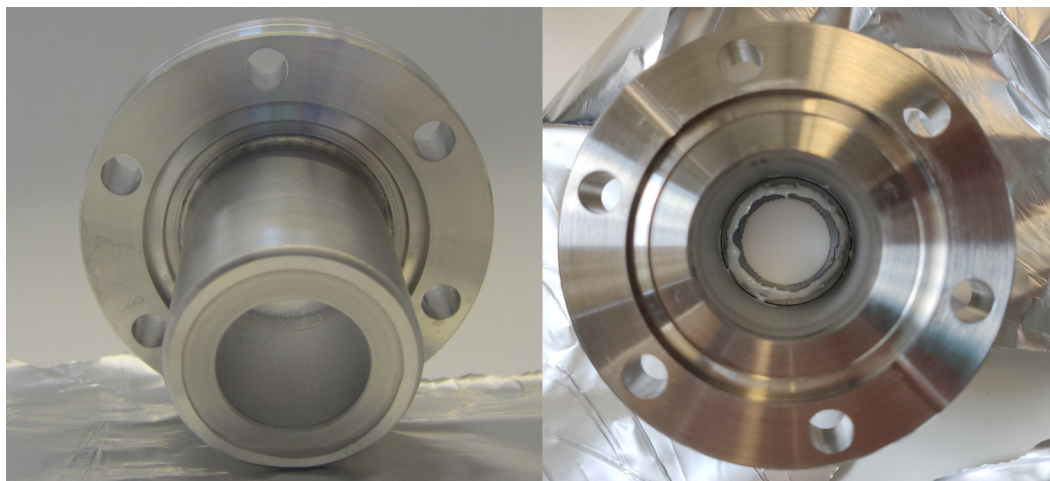


Abb. 4.4: Kapillarsystem aus Glas mit einer Länge von 1 mm eingeklebt in eine Halterung in einem beidseitigen DN 40 Vakuumflansch.

Mit der Ausnahme der Option zur direkten Kühlung wurden an die Halterung für die Glas-Kapillaren dieselben Anforderungen wie für die Stahl-Kapillaren gestellt. Als sehr praktikabel hat sich die in Abb. 4.4 dargestellte Lösung erwiesen. Hier wurde ein in ein DN 40 Flansch eingeschweißtes Rohr verwendet, indem das Kapillarsystem in eine passgenaue Einkerbung eingelegt und mit einem für UHV geeigneten Epoxidharz (Torr Seal) eingeklebt wurde. Über die Wahl der Länge des Rohres kann die Kapillare nahe der Anregung positioniert werden.

Theoretisch ist auch hier eine Kühlung des Kapillarsystems möglich. Auf eine experimentelle Überprüfung der Kühlung wurde aber aufgrund der Unsicherheit bzgl. der Beständigkeit der Verbindung aus Epoxidharz beim mehrfachen Runterkühlen verzichtet. Bei einem Versuch sollten auch die ggf. unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten und daraus potenziell resultierenden Materialverspannungen beachtet werden. Ebenfalls eine Option zur Abdichtung könnten elastische Metaldichtungen (z.B. HELICOFLEX) darstellen, wie sie auch schon bei der Abdichtung der Fenster aus Magnesiumfluorid in den VUV-Plasmalampen [Koh11] verwendet wurden.

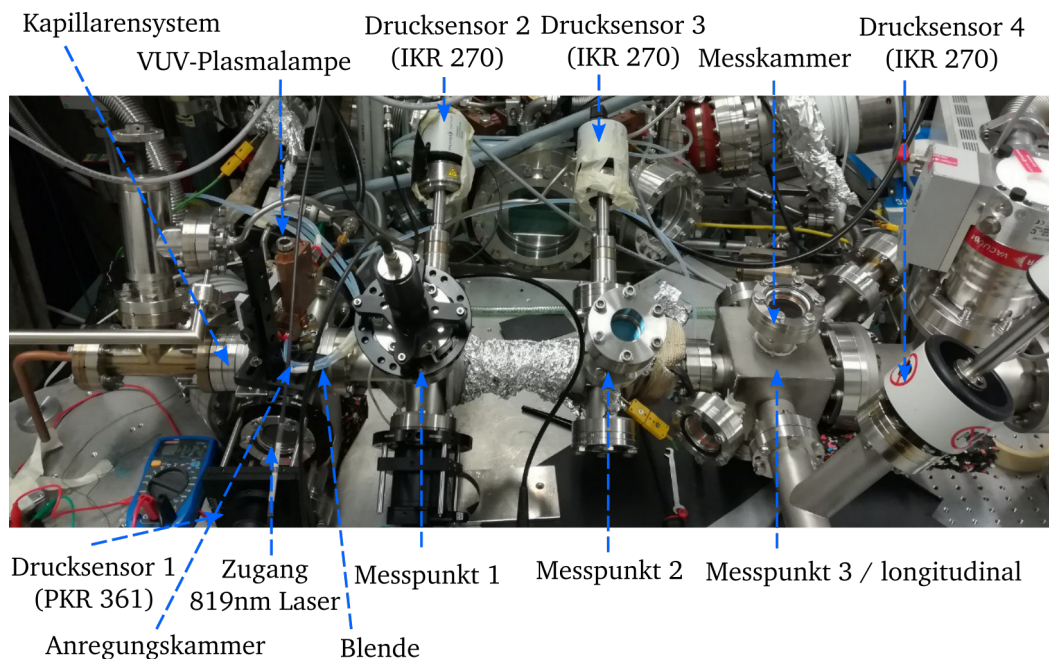


Abb. 4.5: Abbildung von Messaufbau 2 mit Anregungskammer (links), Messkammer (rechts), den transversalen Messpunkten 1-3 und dem longitudinalen Messpunkt.

Das zur Charakterisierung verwendete Messsystem ist in Abb. 4.5 abgebildet. Da die exakte Geometrie und Anordnung in der Simulation eine große Rolle spielen, wird das Messsystem im Folgenden detailliert beschrieben. Im Vergleich zu Messsystem 1 lag hier der Schwerpunkt bzgl. Geometrie und Messzugängen bei der angestrebten

finalen Anwendung in einem Zeeman-Slowers für Krypton-Atome. Auch dieses System wurde für die Simulation detailliert in Molflow nachgebildet. Diese ist in Abb. 4.6 zusammen mit zentralen Maßangaben abgebildet.

Das Kapillarsystem trennt eine Vorkammer mit Gaszufuhr und den Messkammerkomplex. Der Ausgang des Kapillarsystems mündet in der Anregungskammer, in der beide Anregungsschritte vollzogen werden. Ebenfalls an der Messkammer befindet sich eine Turbomolekularpumpe (Pfeiffer Vacuum TMU 200M) und der Drucksensor 1 (Pfeiffer Vacuum PKR 360). Die Achse des 819 nm Laserstrahls verläuft horizontal in x-Richtung, die der VUV-Plasmalampe vertikal in y-Richtung. Nach der Anregungskammer fliegen die Atome im Atomstrahl circa 50 cm in z-Richtung bis zum Zentrum der Messkammer. Zwischen der Anregungskammer und Messkammer befinden sich zwei sechsfach Kreuzstücke, an welchen sich, bei einer Entfernung von 17 cm und 31 cm zum Ausgang der Kapillaren, die transversalen Fluoreszenz-Messpunkte 1 und 2 befinden. In der Messkammer gibt es sechs optische Zugänge auf drei sich kreuzenden Achsen, welche transversale (Messpunkt 3) und longitudinale (longitudinaler Messpunkt, 45° zur z-Achse) Fluoreszenzmessungen ermöglichen. An den Messpunkten 1-3 befindet sich jeweils ein Drucksensor (Pfeiffer Vacuum IKR 270). Hinter der Messkammer ist über ein DN 63 T-Stück eine zweite Turbomolekularpumpe (Pfeiffer Vacuum HiPace 80) positioniert

Aufgrund der kurzen Kapillarlängen kombiniert mit einer großen offenen Fläche, liegen messbare metastabile Atomflüsse hier tendenziell eher im molekularen und Übergangsbereich. Aufgrund mehrerer Messpunkte auf einer Flugstrecke von circa 50 cm sind die Aufweitung des Atomstrahls und Verlustprozesse besser beobachtbar als in Messaufbau 1. Allerdings liegt der erste Messpunkt 17 cm vom Ausgang der Kapillare entfernt, wodurch nicht der gesamte Raumwinkel des Atomstrahls charakterisiert werden kann.

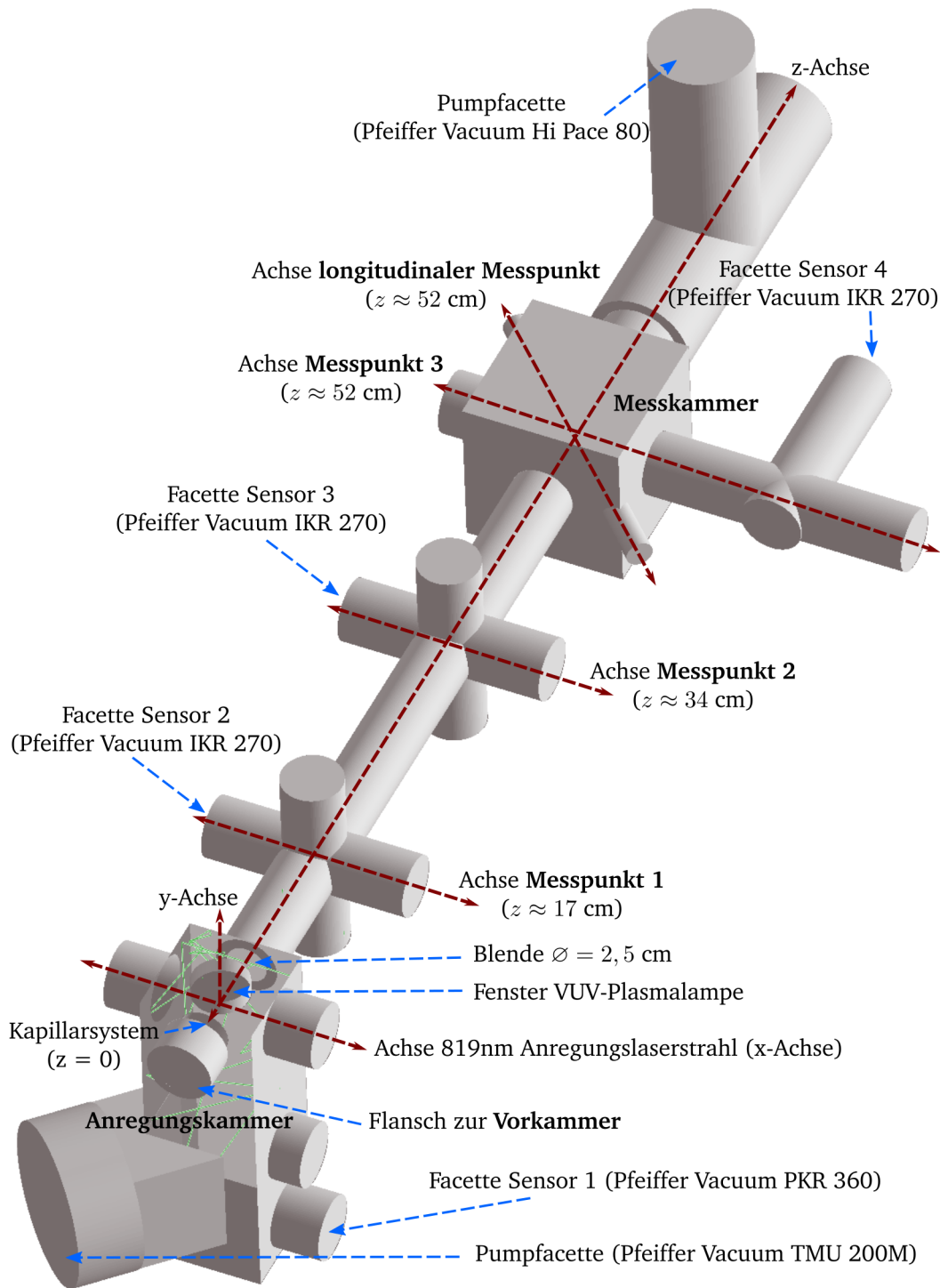


Abb. 4.6: Nachbildung des in Abb. 4.5 abgebildeten Vakuumsystems von Messaufbau 2 in Molflow zur Simulation der Spektroskopie und der Druckmessungen mit ausgeblendetem Deckel und Rückwand der Anregungskammer, einigen exemplarischen Trajektorien (grüne Linien) und wichtigen Maßangaben.

4.2 Ergebnisse: Druck und Atomfluss

Eine Möglichkeit die Dynamik der Atomstrahlerzeugung zu untersuchen, ist über die Druckverteilungen im UHV-System. Damit lassen sich zum einen die Rate der Atome, die bei einem bestimmten Vordruck durch die Kapillare strömen, mit den simulierten und theoretischen Vorhersagen vergleichen. Wie sich zeigen wird, lassen sich aber auch Schlüsse auf die Winkelverteilung ziehen, wenn die Drücke an mehreren Stellen im Vakuumsystem bestimmt werden können.

Im tatsächlichen Aufbau sind die Drucksensoren jeweils an einem DN 40 Flansch angebracht. Zur Bestimmung des Drucks in der Simulation, den ein Drucksensor messen würde, wird eine Facette auf den Flansch positioniert, die gleichzeitig den Abschluss des Vakuumsystems bildet. Ein Versuch mit einer transparenten Facette, die die Maße des Drucksensors im Vakuum nachbildet und die den Drucksensor eventuell präziser repräsentieren würde, zeigte keinen nennenswerten Unterschied.

Entscheidend für eine präzise Simulation ist zudem die Desorptions- und Absorptionsprozesse möglichst genau nachzubilden. Desorption entsteht durch Einströmen des Gases durch das Kapillarsystem. Absorbiert werden Teilchen bei Messaufbau 1 durch eine Pumpe und bei Messaufbau 2 durch zwei Pumpen. Ausgasungsprozesse oder Undichtigkeiten des UHV-Systems werden vernachlässigt, da sie um Größenordnungen kleiner als die Menge an durch die Kapillarsysteme strömenden Teilchen sind. Zur Simulation der Drücke müssen also sowohl das einströmende Gas als auch das Saugvermögen der Vakuumpumpen bekannt sein.

Saugvermögen Das Saugvermögen bzw. die Pumpgeschwindigkeit wird in der Simulation über den Haftungskoeffizienten, für die Facette bestimmt, welche die Pumpe darstellt. Dies ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein auftreffendes Teilchen absorbiert wird. Bei den verwendeten Pumpen handelt es sich um Turbomolekularpumpen. Deren Saugvermögen ist unabhängig vom Druck, solange sie im molekularen Strömungsbereich betrieben werden. Dies ist der Fall, solange die mittlere freie Weglänge der Atome größer ist als die Abstände der Rotorblätter. Dies gilt laut Datenblatt für schwere Gase bis circa 10^{-3} mbar. Bei allen gezeigten Messungen ist der Druck im simulierten Messsystem kleiner und somit Pumpgeschwindigkeit und Haftungskoeffizient konstant. Das Saugvermögen ist aber von der Gasart und insbesondere von der Masse der Gasteilchen abhängig. In den Herstellerangaben finden sich typischerweise nur Angaben für die Saugvermögen für Ar, H₂, He und N₂. Zur Abschätzung des Saugvermögens für schwere Gase aus den gegebenen Angaben

wird ein von Malyshev [Mal07] vorgeschlagenes und z.B. von [Dre+17] verwendetes Modell genutzt. In den Untersuchungen von Malyshev zeigt sich, dass der Haftungskoeffizient von Turbomolekularpumpen verschiedener Hersteller und Typen für schwere Gase ($M > 28$) proportional zum Logarithmus der molaren Masse M des Gases ist. Somit lässt sich das Saugvermögen S für eine Gasart mit der molaren Masse M_2 aus den bekannten Saugvermögen einer Gasart mit molarer Masse M_1 auf folgende Weise abschätzen:

$$S(M_2) = S(M_1) \sqrt{\frac{M_1 \ln M_2}{M_2 \ln M_1}}. \quad (4.1)$$

Zur Abschätzung wird das schwerste bekannte Edelgas, in diesem Fall Ar, verwendet. Damit ergibt sich ein Saugvermögen der verwendeten Pumpen für Krypton von 141 L s^{-1} (TMU 200M) und 55 L s^{-1} (HiPace 80). Wird als Facettendurchmesser die Nennweiten der Pumpanschlussflansche verwendet (100 mm und 63 mm) ergibt sich nach Gl. (2.37) ein Haftungskoeffizient κ für Krypton bei 20°C von 0,264 und 0,260. Die im Folgenden in den Simulationen verwendeten Parameter sind auch in Tab. 4.3 aufgelistet.

Typenbezeichnung	HiPace 80 (Pfeiffer Vacuum)	TMU 200 M (Pfeiffer Vacuum)
S_{Ar} (Datenblatt) [L s^{-1}]	66	170
S_{Kr} (Gl. (4.1)) [L s^{-1}]	55	141
Facetten Durchmesser [mm]	63	100
κ_{Kr} bei 20°C (Gl. (2.37))	0,260	0,264

Tab. 4.3: In der Simulation verwendete Parameter für Durchmesser der Pumpfacette, Saugvermögen S_{Kr} und Haftungskoeffizienten κ_{Kr} für Krypton sowie Datenblattangabe für Argon S_{Ar} .

Drücke vor und nach der Kapillare Für ein ideales System im molekularen Bereich ist zu erwarten, dass der Druck vor dem Kapillarsystem, der Durchfluss durch dieses und der sich nach der Kapillare einstellende Druck proportional zueinander sind. Bei den vier Kapillarsystemen wurden die Drücke vor und nach der Kapillare bei einer Reihe von Vordrücken gemessen. Der untersuchte Druckbereich ist durch den Messbereich der verwendeten Drucksensoren für Krypton begrenzt. Innerhalb dieses Messbereichs wurden alle gemessenen Drücke anhand der Kalibrierungskurven in den Datenblättern der drei Drucksensortypen auf Krypton umgerechnet. Für den Messaufbau 1 sind Messungen im Bereich von etwa $2,4 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$ bis $3,8 \cdot 10^{-1} \text{ mbar}$

(Array172) und bis 2,4 mbar (Single165) in Abb. 4.7 dargestellt. Die Knudsen-Zahl Kn_D für diesen Bereich bezogen auf den Kapillardurchmesser beträgt etwa $2,3$ bis $2,2 \cdot 10^{-2}$ (Single165) und $2,2$ bis $1,4 \cdot 10^{-1}$ (Array172) und liegt damit im Übergangsbereich bis hin zur viskosen Strömung. Dies zeigt sich auch im Verlauf der Messkurven, welche anfänglich linear sind und dann bei höheren Drücken ab $3 \cdot 10^{-1}$ mbar durch zunehmende Atom-Atom-Stöße stärker ansteigen.

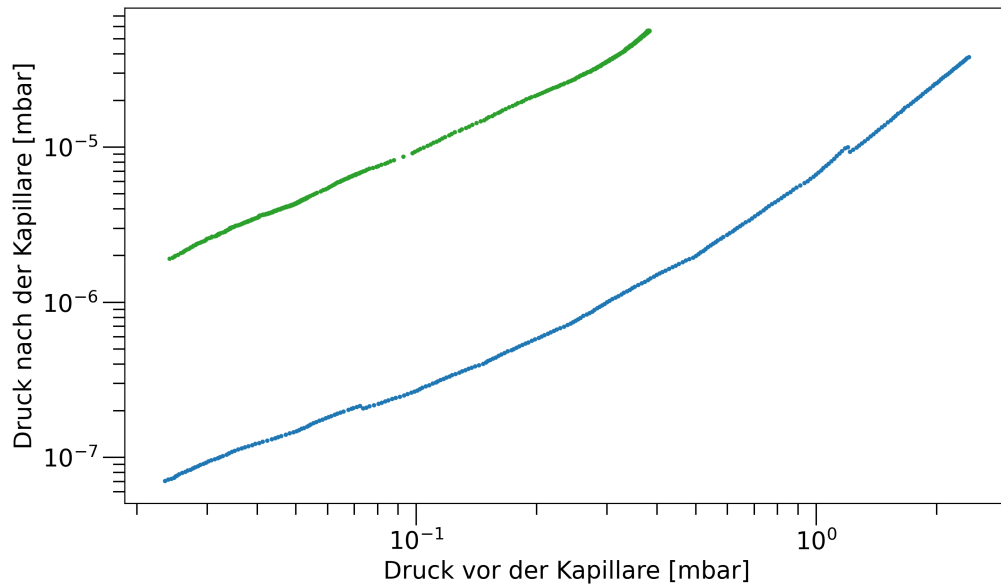


Abb. 4.7: Durch Messung an Messaufbau 1 bestimmter Druck für Krypton vor dem Kapillarsystem gegen den Druck danach mit den Kapillarsystemen *Single165* (blau) und *Array172* (grün).

Es ist auch ein relativer Vergleich zwischen den Kapillarsystemen möglich. Durchmesser und Länge der einzelnen Kapillaren sind in etwa gleich, weshalb tendenziell zu erwarten ist, dass der Unterschied in der Anzahl an Kapillaren (hier Faktor 19) den größten Einfluss auf den Atomfluss hat. Da, wie oben erwähnt, das Saugvermögen konstant bleibt, ist zu erwarten, dass der Druck in der Anregungskammer bei gleichem Vordruck für Array172 ebenfalls um den Faktor 19 erhöht ist. In den Messungen zeigt sich aber eher ein Faktor 30. Eine Erklärung könnte ein Leck bei der Abdichtung des Kapillarsystems sein. Im Zuge der Verlötung konnte nur am äußersten Rand des Kapillarbündels eine gute Abdichtung durch das Lötzinn sichergestellt werden.

Die Messungen für den zweiten Messaufbau sind in Abb. 4.8 zu sehen. Der untersuchte Druckbereich liegt mit $2,4 \cdot 10^{-3}$ mbar bis $7,6 \cdot 10^{-2}$ mbar (Glas165) und $1,1 \cdot 10^{-3}$ mbar bis 1,3 mbar (Glas1000) generell niedriger. Zusammen mit den sehr viel kleineren geometrischen Abmessungen liegen die Messungen im molekularen

Bereich und im Übergangsbereich. Für die Knudsen-Zahlen Kn_D ergibt sich bspw. $3,7 \cdot 10^3$ bis $1,2 \cdot 10^2$ (Glas165) und $4,9 \cdot 10^3$ bis $4,2 \cdot 10^1$ (Glas1000). Entsprechend ist von einem linearen Verlauf auszugehen, der sich auch deutlich in den Messungen zeigt. Beim relativen Vergleich ist bei Glas165 bei gleichem Vordruck, aufgrund der größeren offenen Fläche (Faktor 2,2) und der größeren Durchlaufwahrscheinlichkeit (Faktor 5,9), ein um den Faktor 13 größerer Gleichgewichtsdruck in der Messkammer zu erwarten als bei Glas1000. Beobachtet wird hier eher ein Faktor 10. Gründe hier können Unsicherheiten in den Durchlaufwahrscheinlichkeiten und in den Spezifikationen der Kapillarsysteme sein.

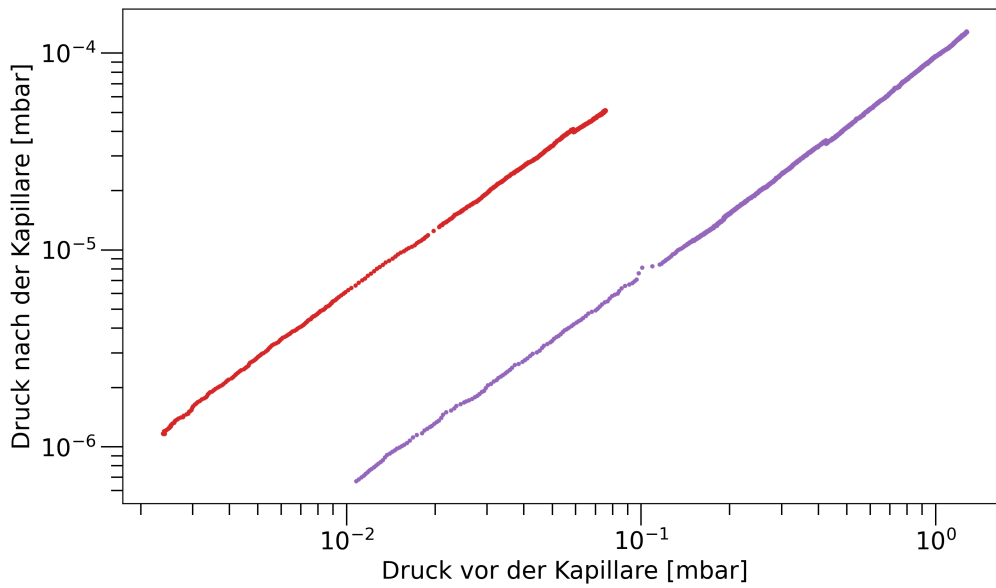


Abb. 4.8: Durch Messung an Messaufbau 2 bestimmter Druck für Krypton vor dem Kapillarsystem gegen den Druck danach (Drucksensor 1) mit den Kapillarsystemen *Glas165* (rot) und *Glas1000* (lila).

Atomfluss Sowohl aus dem Vordruck als auch dem Druck in der Messkammer können die konkreten Atomflüsse abgeschätzt werden. Für die Berechnung über den Vordruck werden Gl. (2.5) und Gl. (2.6) verwendet. Die benötigten Durchlaufwahrscheinlichkeiten im molekularen Bereich lassen sich durch die in den Simulationen (Kapitel 3) bestätigte empirischen Formel Gl. (2.31) berechnen. Diese sind für die verwendeten Kapillarsysteme in Tab. 4.1 und Tab. 4.2 aufgelistet. Aus dem Druck in der Kammer nach der Kapillare p_{nach} lässt sich der Durchfluss $\dot{q}_{\text{nach}}$ in Atomen pro Sekunde folgendermaßen bestimmen:

$$\dot{q}_{\text{nach}} = \frac{S_{\text{Kr}} p_{\text{nach}}}{k_B T}. \quad (4.2)$$

Hierbei ist S_{Kr} das Saugvermögen für Krypton und T die Temperatur des Gases. Als erste Annahme kann hier die Saugfähigkeit der Pumpen und der gemessene Druck direkt eingesetzt werden. Dies ist aber für komplexe Vakuum-Geometrien und sich aufgrund des Druckregimes verändernde Winkelaustrittsverteilungen aus der Kapillare (s. Abschnitt 3.2) eventuell nur eingeschränkt gültig. Mit der detaillierten dreidimensionalen Drucksimulation ist ein genauerer Einblick möglich. Hier lässt sich der mit einem gemessenen Druck zusammenhängende Atomfluss iterativ bestimmen, indem ein aus der Kapillarfacette austretender Atomfluss gesetzt und dann der Druck bestimmt wird, der sich an der Facette einstellt, welche den Drucksensor repräsentiert. Da in der durchgeführten Simulation keine druckabhängigen Effekte, wie Atom-Atom-Stöße berücksichtigt werden, reicht es das effektive Saugvermögen $S_{Kr,eff}$ einmal für ein erstelltes System aus Vakuumkammer, Pumpen und der Austrittswinkelverteilung aus der Kapillare zu bestimmen. Über die erhaltene Größe lässt sich der Fluss bei einem beliebigen Druck bestimmen.

Dies wurde für beide Messsysteme mit den nachgestellten Systemen (s. Abb. 4.3 und Abb. 4.6) durchgeführt. Wie untersucht wurde, sind die Auswirkungen der gewählten Austrittswinkelverteilung am ersten Drucksensor gering. Der Unterschied zwischen einer idealen Verteilung im molekularen Bereich mit $\Gamma = 165$ und einer Kosinus-Verteilung im Falle von Messsystem 1 ist weniger als 0,5 %. Bei Messsystem 2 sind es aufgrund der komplexeren Geometrie weniger als 5 %. Deshalb wird dieser Effekt hier vernachlässigt und eine mittlere zu erwartenden Austrittsverteilung bei einem effektiven Vordruck von 10 mbar angenommen. Diese ist auch in Abb. 4.11 (rot) dargestellt ist. Für Messsystem 1 ergibt sich aus der Simulation $S_{Kr,eff} = 116,56 \text{ L s}^{-1}$ und für Messsystem 2 ergibt sich $S_{Kr,eff} = 120,29 \text{ L s}^{-1}$.

Die Atomflüsse aus den gemessenen Drücken vor dem Kapillarsystem $\dot{q}_{vor}$ und die aus den Drücken danach $\dot{q}_{nach}$ können nun berechnet werden. Die sich aus den in Abb. 4.7 und Abb. 4.8 dargestellten Messungen ergebenden Atomflüsse sind für Messaufbau 1 in Abb. 4.9 und für Messaufbau 2 in Abb. 4.10 dargestellt. Hier wurde die Knudsen-Zahl Kn_D als x-Achse gewählt, um das jeweilige Druckregime zu verdeutlichen. Im Fall der Stahl-Kapillaren bewegen sich die Atomflüsse im untersuchten Bereich zwischen $10^{14} - 10^{17}$ Atomen pro Sekunde. Ebenfalls dargestellt ist das Verhältnis $\dot{q}_{vor}/\dot{q}_{nach}$, welches sich bis zur einem $Kn_D > 1$ für beide Kapillarsystem um 1 bewegt. Bei Single165 ist $\dot{q}_{vor}$ um etwa 25 % höher als $\dot{q}_{nach}$, bei Array172 ist $\dot{q}_{vor}$ um etwa 25 % niedriger als $\dot{q}_{nach}$. Vor allem für Array172 ist aber eine deutliche Steigung zu sehen, ein Zeichen, dass hier schon die Druckabhängigkeit der Durchlaufwahrscheinlichkeit vorliegt. Die Tatsache, dass die aus dem Vordruck berechneten Flüsse nahe der theoretischen Vorhersage liegen, ist ein Indiz dafür,

dass Spiegelreflexionen bei Stößen mit den Kapillarwänden keine sehr große Rolle spielen.

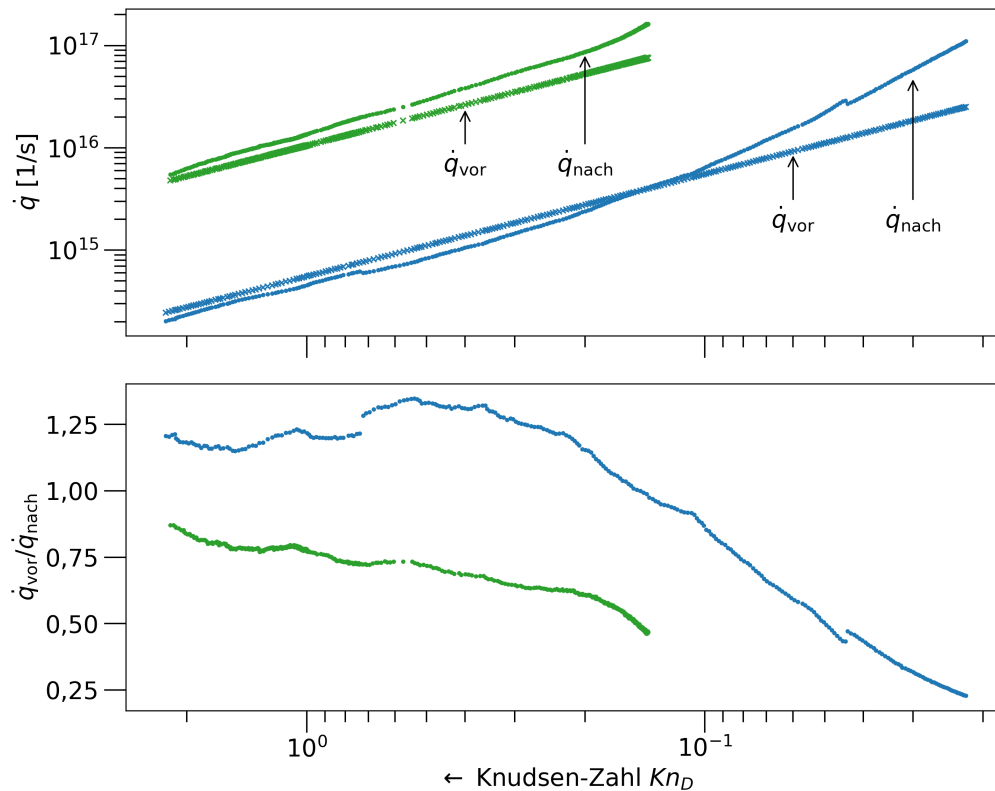


Abb. 4.9: Aus Vorkammerdruck p_{vor} und Anregungskammerdruck p_{nach} bestimmte Atomflüsse $\dot{q}_{vor}$ und $\dot{q}_{nach}$ gegen die Knudsen-Zahl Kn_D (oben) und Verhältnis aus den berechneten Atomflüssen $\dot{q}_{nach}$ und $\dot{q}_{vor}$ (unten) für die Kapillarsysteme Single165 (blau) und Array172 (grün).

Im Falle der Glas-Kapillarsysteme ist der beobachtete Druckbereich mit $Kn_D > 100$ noch weit von dem viskosen Bereich entfernt. Trotzdem ist auch hier schon der deutliche Trend zu sehen, dass das Verhältnis $\dot{q}_{vor}/\dot{q}_{nach}$ zunehmend kleiner wird. Wie auch bei den vorherigen Messungen nimmt das Verhältnis mit abnehmender Knudsen-Zahl (zunehmendem Druck) ab. Auch dies ist ein Indiz, dass die Durchlaufwahrscheinlichkeit nicht mehr unabhängig vom Druck ist. Es ist eine Abweichung um den Faktor 1,6 bis 1,3 (Glas165) und 1 bis 0,75 (Glas1000) zu sehen.

Es stellt sich die Frage, warum die Abweichungen für das Kapillarsystem Glas165 bei gleicher Knudsen-Zahl größer sind als bei Glas1000. Mögliche Erklärungen sind eventuelle Verunreinigungen oder Unsicherheit bei den Spezifikationen der Kapillaren. Auch Unsicherheiten in den Messungen können ein Grund sein. So sind bei den Messungen für Glas165 bei niedrigen Drücken ein vergleichsweise starker

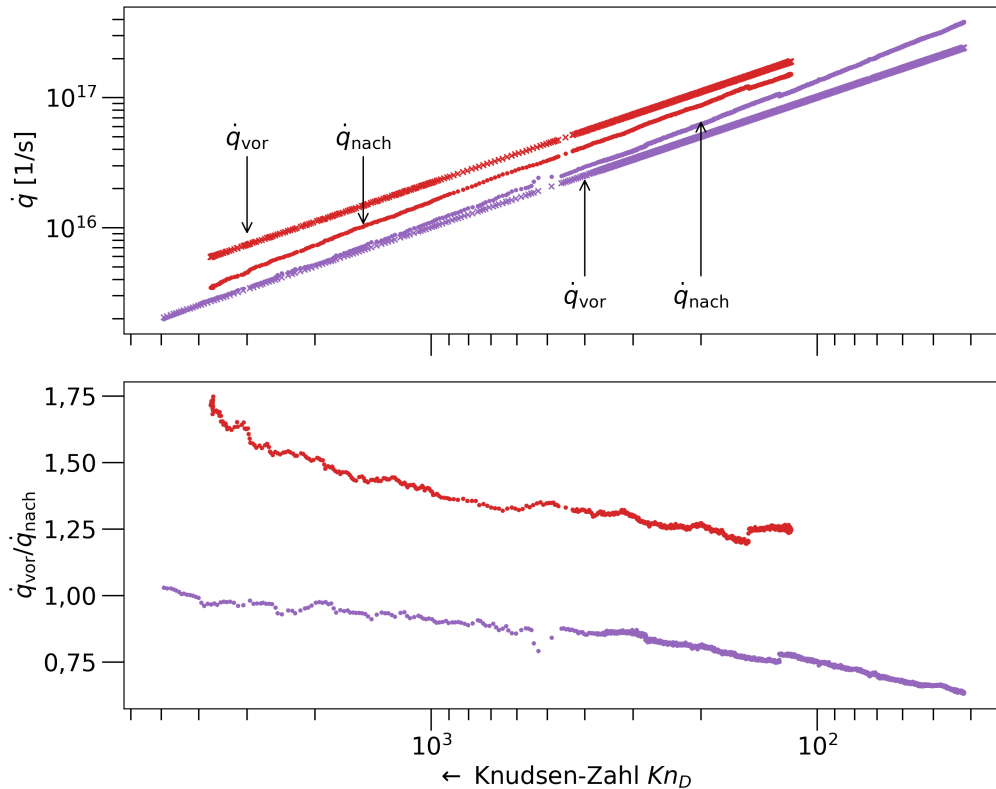


Abb. 4.10: Aus Vorkammerdruck p_{vor} und Anregungskammerdruck p_{nach} bestimmte Atomflüsse $\dot{q}_{\text{vor}}$ und $\dot{q}_{\text{nach}}$ gegen die Knudsen-Zahl Kn_D (oben) und Verhältnis aus den berechneten Atomflüssen $\dot{q}_{\text{nach}}$ und $\dot{q}_{\text{vor}}$ (unten) für die Kapillarsysteme Glas165 (rot) und Glas1000 (lila).

Abfall und Schwankungen zu sehen. Dies könnte ein Indiz dafür sein, dass sich bei der Messung noch kein Gleichgewichtsdruck eingestellt hat. Insgesamt zeigen aber auch die Ergebnisse bei den Glas-Kapillarsystemen kein Indiz für einen großen Anteil an Spiegelreflexionen, da in dem Fall ein Quotient von deutlich unter 1 zu erwarten ist.

Grundsätzlich sind die Unsicherheiten bei der Bestimmung des Atomflusses durch den Druck vor der Kapillare größer, weil mehr Unsicherheitsfaktoren existieren. Diese sind die geringere Genauigkeit bei der Bestimmung des Druckes direkt vor der Kapillare, die Berechnung der Durchlaufwahrscheinlichkeit mit Unsicherheiten bei der Modellierung aber auch Unsicherheiten bei der Spezifikation des Kapillarsystems. Insgesamt gibt es im Rahmen der Unsicherheiten eine hohe Übereinstimmung und Konsistenz zwischen den theoretischen Vorhersagen bzw. den Simulationsergebnissen und den Messungen. Es ist aber in der Praxis zu empfehlen, den Fluss aus dem Druck nach der Kapillare abzuschätzen.

Einfluss Austritts-Winkelverteilung Das komplexere Vakuumsystem von Messaufbau 2 mit Drucksensoren an mehreren Stellen (vgl. Abb. 4.6) ermöglicht einen detaillierten Vergleich zwischen der Simulation und den gemessenen Drücken. Eine exemplarische Messung der Drucksensoren (Sensor 1-4) ist in Abb. 4.12 (oben, lila Kreuze) dargestellt. Mit Drücken im Messkammersystem im Bereich von $1 \cdot 10^{-6}$ mbar sollten Stöße zwischen Atomen eine untergeordnete Rolle spielen. Es ist zu sehen, dass der Druck von der Anregungskammer zum ersten Messpunkt leicht zunimmt und dann stetig abfällt bis zu weniger als die Hälfte des ursprünglichen Wertes. Um zu untersuchen, wie sich die Drücke bei verschiedenen Winkelverteilungen aus der Kapillare verhalten, wurde die Simulation mit drei verschiedenen Winkelverteilungen, die in Abb. 4.11 dargestellt sind, simuliert. Eine Verteilung, wie sie laut Simulation im stoßfreien Regime zu erwarten ist (grün) und eine Verteilung, wie sie aus einer Blende austritt (Kosinus-Verteilung, blau) stellen die beiden Extremfälle dar. Dazwischen wurde eine Verteilung bei einem effektiven Vordruck von 10 mbar (rot) gewählt, wie sie auf Basis der Untersuchungen in Abschnitt 3.2 als realistisch erscheint. Für die Simulation des Druckverlaufs wurde der Fluss aus der Kapillare immer so gewählt, dass am ersten Drucksensor derselbe Wert erreicht wird, wie bei der Messung. Die Ergebnisse für die drei betrachteten Winkelaustrittsverteilungen sind in Abb. 4.12 dargestellt.

Zunächst fällt auf, dass ein deutlicher Effekt sichtbar ist. Je schmaler die Winkelverteilung, desto höher ist der relative Druck an Sensor 2, 3 und 4. Dies ist plausibel, da je schmaler die Verteilung, desto mehr Atome werden unmittelbar und nicht erst nach Wandstößen in das Rohr fliegen und so den Druck im Rohr erhöhen. Dieser Effekt nimmt mit der Entfernung im Rohr zu. An den hinteren Drucksensoren beträgt der Unterschied zwischen stoßfreier Verteilung und Kosinus-Verteilung bis zu 30 %. Nur die breiteste, die Kosinus-Verteilung (blau), die auf Basis der Untersuchungen in Abschnitt 3.2 als zu breit eingeschätzt wird, erreicht ungefähr das Niveau der Messung. Zur Erklärung des Verlaufs wurde in der Simulation auch eine Verkipfung des Rohres und eine Rückstreuung durch das Kapillarsystem implementiert. Die hierbei beobachteten Effekte waren klein und werden im Folgenden vernachlässigt. Eine Erklärung für die beobachteten Abweichungen zwischen Messung und Simulation könnten Atom-Atom-Stöße nach dem Kapillarsystem liefern. Dies wird nun genauer untersucht.

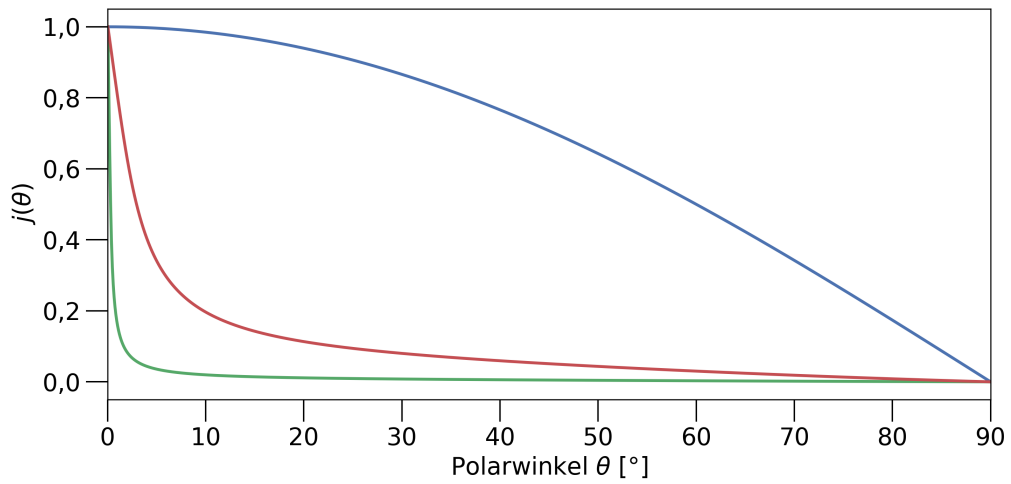


Abb. 4.11: Darstellung der generierten und für die Simulationen in diesem Kapitel verwendeten Austritts-Winkelverteilungen aus dem Kapillarsystem. Die Verteilungen wurden mittels Gl. (2.32)-Gl. (2.36) mit $\Gamma = 165$ und den effektiven Drücken $p \approx 0$ mbar (grün, stoßfreies Regime) und 10 mbar (rot) sowie der Austrittsverteilung aus einer Blende mit Gl. (2.17) (blau) generiert.

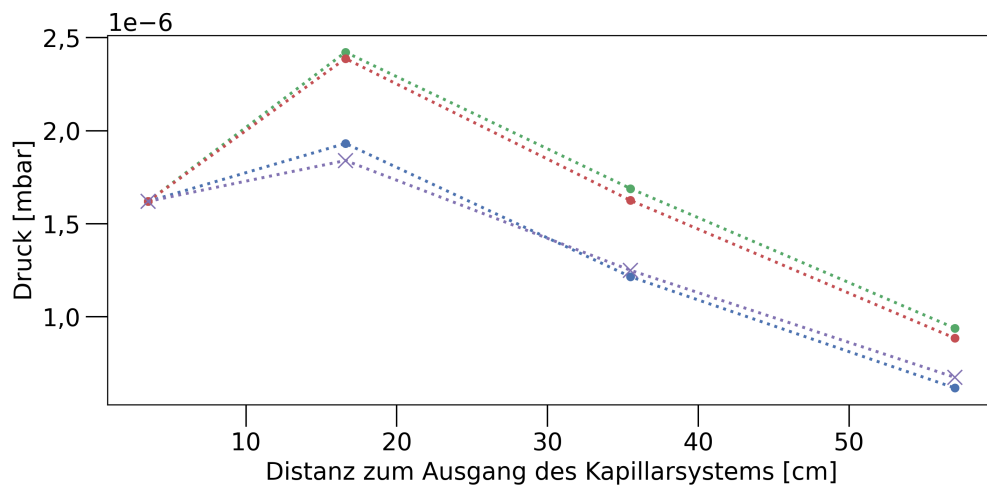


Abb. 4.12: Aus Simulation bestimmte Drücke an den Positionen der Drucksensoren 1-4 (s. Abb. 4.6) für die Winkelverteilungen in Abb. 4.11 (Punkte, gleiche Farbwahl wie in Abb. 4.11) zusammen mit einer Messung an Messaufbau 1 (Kreuze).

4.2.1 Druckverlauf höhere Drücke und Überlebenswahrscheinlichkeit

Im nächsten Schritt wird nun der Einfluss von Atom-Atom-Stößen nach den Kapillarsystemen untersucht. Dies ist insbesondere für longitudinale Messungen von Bedeutung, bei denen die geschwindigkeitsabhängigen Stoßverluste mit einbezogen werden müssen, um eine gute Übereinstimmung zwischen Messungen und Simulation zu erhalten. Zur Einschätzung der Gültigkeit des molekularen Bereichs ist der gemessene Druckverlauf (Sensoren 1-4) für vier verschiedene Vordrücke im Bereich zwischen 10^{-6} mbar bis 10^{-4} mbar in Abb. 4.13 (oben) für das Kapillarsystem Glas165 (Punkte) dargestellt. Es fällt auf, dass sich die relative Druckverteilung mit der Distanz zum Kapillarsystem mit steigendem Druck verändert. Zur besseren quantitativen Verdeutlichung sind in Abb. 4.13 (Mitte) alle Drücke jeweils auf den ersten Drucksensor normiert dargestellt. Bei niedrigen Drücken im Bereich von $1 \cdot 10^{-6}$ mbar ändern sich die relativen Drücke kaum. Hier scheint weitestgehend noch der molekulare Bereich vorzuliegen. Bei steigendem Druck zeigt sich gerade am Anfang des Rohres (Sensor 2) ein starker Anstieg relativ zum ersten Sensor auf mehr als den Faktor 2 bei etwa $4 \cdot 10^{-5}$ mbar. Zum Vergleich sind auch zwei Messdaten mit Glas1000 (Kreuze) eingezeichnet. Hier ist der relative Anstieg noch deutlich stärker. Bei $4 \cdot 10^{-5}$ mbar ist ein Faktor 3 relativer Druckerhöhung zu beobachten. An Sensor 3 verändert sich der relative Druck nur leicht. Der deutlichste Effekt ist bei der Messung mit dem höchsten Druck mit Glas1000 zu beobachten. Der relative Druck an Sensor 4 ist ziemlich konstant.

Als Erklärungsansatz ist die zu erwartende, sich mit steigendem Vordruck verbreiternde, Austrittswinkelverteilung nicht geeignet. Wie im letzten Abschnitt gezeigt wurde, führt eine verbreiterte Winkelverteilung zu einem Absinken und nicht zu einem Anstieg der Drücke an Sensor 2-3 und der Effekt ist minimal. Für den beobachteten Effekt müssen also tatsächlich die vermehrten Stöße zwischen Atomen innerhalb des Messkammersystems die Ursache sein. Atome, die innerhalb des Rohres stoßen, verweilen länger im Rohr und führen zu einer Druckerhöhung. Auf den ersten Blick scheint dies vom Druckregime nicht plausibel, da die freien Weglängen zu lang sind. Die genauen im Folgenden besprochenen Drücke und resultierenden freien Weglängen sind für beide Kapillarsysteme in Tab. 4.4 aufgelistet. Exemplarisch liegt der Fokus auf den Messungen in Abb. 4.13 bei einem Druck in der Anregungskammer von etwa 10^{-5} mbar (Glas165: rote Punkte, Glas1000: gelbe Kreuze), der durch Drucksensor 1 gemessen wurde. Bei diesem Druck ist schon eine deutliche Verschiebung sichtbar, die mittlere freie Weglänge $\lambda_{\text{sensor-1}}$ beträgt aber noch etwa 4 m und ist damit deutlich länger als bspw. die 17 cm Wegstrecke bis Sensor 2.

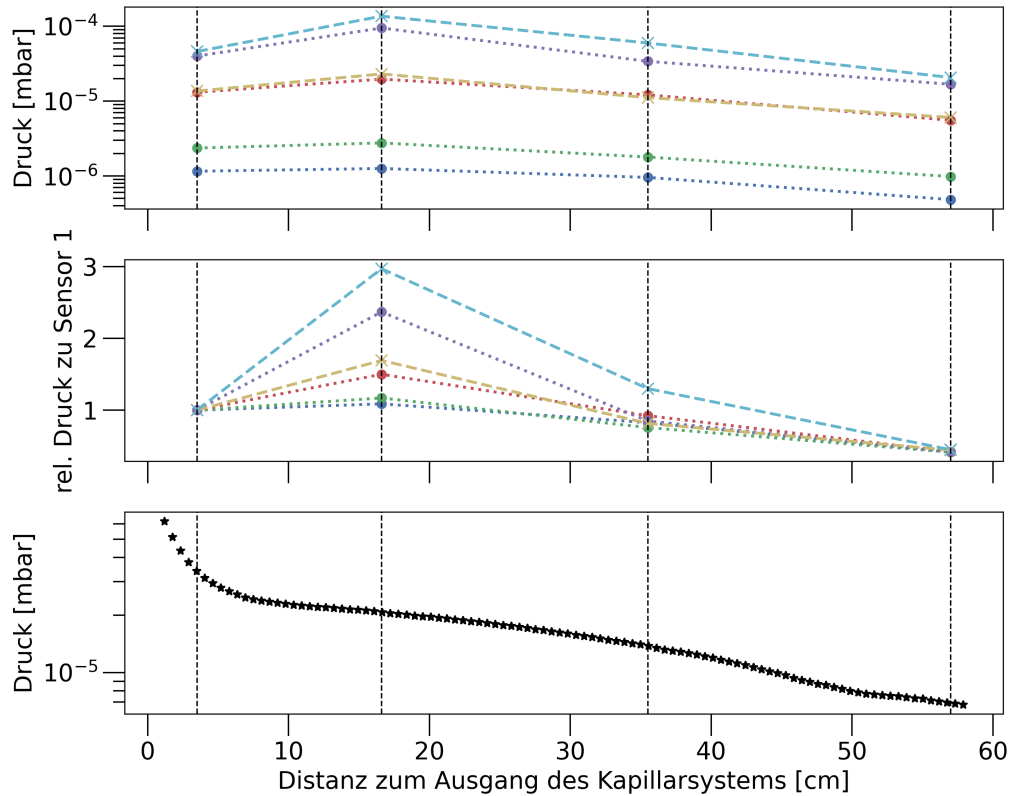


Abb. 4.13: Messungen des Drucks durch Drucksensor 1-4 (s. Abb. 4.5) von Messaufbau 2 bei verschiedenen Drücken vor dem Kapillarsystem (oben) und Druckverlauf in Einheiten des Drucks an Sensor 1 (Mitte) für die Systeme Glas165 (Punkte) und Glas1000 (Kreuze) sowie aus Simulation bestimmtes Druckprofil auf der Strahlachse bei einem Druck an Sensor 1 von $1,3 \cdot 10^{-5}$ mbar (unten).

Genauer betrachtet wird der lokale Druck auf der Strahlachse höher sein, als durch den weiter unten in der Messkammer liegende Sensor 1 gemessen wird (vgl. Abb. 4.6). Mit der Simulation gibt es die Möglichkeit den Druck lokal an beliebigen Stellen zu bestimmen. Dazu werden auf der Wegstrecke transparente Facetten verteilt, an deren Oberfläche der Druck bestimmt wird. Ein Ausschnitt der Simulationsgeometrie mit in rot markierten Facetten zur Druckbestimmung ist in Abb. 4.14 dargestellt. Das resultierende Profil auf der Strahlachse für einen Druck an Sensor 1 von $1,3 \cdot 10^{-5}$ mbar ist in Abb. 4.13 (unten) dargestellt. Mit dem resultierenden mittleren Druck $\bar{p}_{z\text{-Achse}}$ (Tab. 4.4) erhält man eine freie Weglänge $\lambda_{z\text{-Achse}}$ von etwa 2 m. Dies ist immer noch zu lang um die beobachtete Druckerhöhung zu erklären. Insbesondere erklärt es auch nicht, warum für Glas165 und Glas1000 unterschiedliche relative Druckverteilungen beobachtet werden. Betrachtet man das System genauer, so starten die Teilchen nicht am Ausgang der Kapillare, sondern waren in der Kapillare und eventuell in der Vorkammer auch schon eine Wegstrecke

bei sehr hohem Druck unterwegs. Eine Simulation des gesamten Systems mit Vorkammer, Kapillaren- und Messkammersystem würde aufgrund der hohen Stoßzahl in der Kapillare zu sehr langen Simulationszeiten führen. Deshalb wird hier eine Abschätzung vorgenommen. Aus den Ergebnissen in Abschnitt 3.1 zeigt sich, dass die Flächenstoßrate auf den Kapillarwänden und damit auch der Druck innerhalb der Kapillare für lange Kapillaren linear abnimmt. Deshalb wird angenommen, dass die Teilchen in erster Näherung im Mittel die Hälfte der Kapillarlänge bei halbem Vordruck zurücklegen. Mit diesem Druck zusammen mit dem mittleren Druck auf der Strahlachse $\bar{p}_{z\text{-Achse}}$ bis zur z-Position lässt sich ein mittlerer Druck für die gesamte Flugstrecke bis zu einer z-Position $\bar{p}_{\text{ges}}$ errechnen:

$$\bar{p}_{\text{ges}}(z) = \frac{1/4 L p_{\text{vor}} + \bar{p}_{z\text{-Achse}}(z)z}{1/2 L + z} \quad (4.3)$$

Hier ist L die Länge der Kapillare und p_{vor} der Druck vor der Kapillare. Im Fall der beiden untersuchten Messungen ergibt sich eine freie Weglänge λ_{ges} von 60 cm (Glas165) bzw. 10 cm (Glas1000). Bei diesen Werten sollten Atom-Atom-Stöße eine merkliche Auswirkung auf die Druckverteilung innerhalb der Vakuumkammer haben. Der Unterschied zwischen den Kapillarsystemen kommt dadurch zustande, dass bei Glas1000 ein fast um eine Größenordnung höherer Vordruck p_{vor} nötig ist, um den gleichen Durchfluss zu erreichen wie bei Glas165. Dies erklärt auch, warum die Druckerhöhung an Sensor 1 in Abb. 4.13 für Glas1000 höher ist.

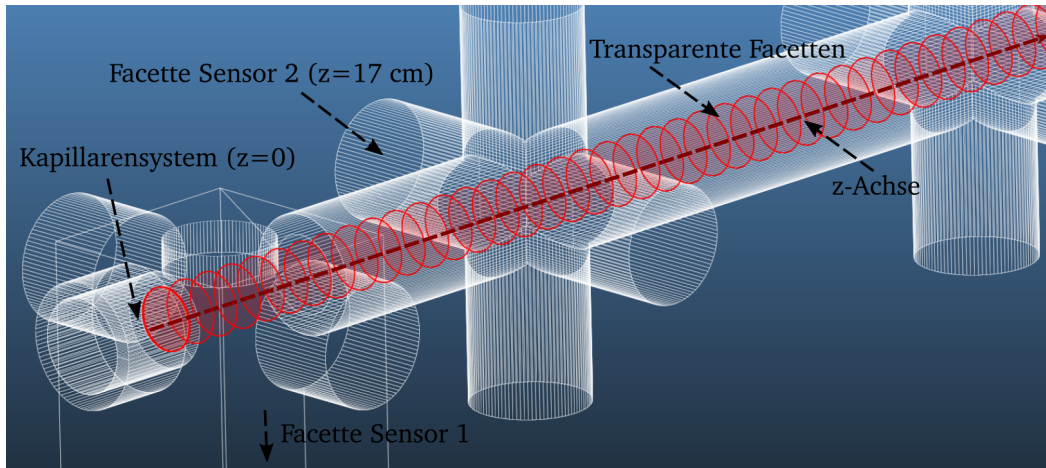


Abb. 4.14: Ausschnitt aus dem in Molflow nachgebildeten Messaufbau 2 mit transparenten Facetten (rot) zur lokalen Bestimmung des Druckes und der Geometrie-Verluste.

Für die Monte Carlo Simulation und insbesondere für die Simulation der longitudinalen Messungen ist es wichtig, nicht die freie Weglänge eines Ensembles, sondern die Wahrscheinlichkeit für ein einzelnes Atom zu berechnen, dass es eine Wegstrecke bei

Γ	$p_{\text{sensor-1}}$ [mbar]	$\lambda_{\text{sensor-1}}$ [m]	$\bar{p}_z\text{-Achse}$ [mbar]	$\lambda_z\text{-Achse}$ [mbar]	p_{vor} [m]	$\bar{p}_{\text{ges}}$ [mbar]	λ_{ges} [m]
165	$1,3 \cdot 10^{-5}$	4,05	$2,8 \cdot 10^{-5}$	1,93	$2,1 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-5}$	0,59
1000	$1,4 \cdot 10^{-5}$	3,90	$2,9 \cdot 10^{-5}$	1,86	$1,8 \cdot 10^{-1}$	$5,5 \cdot 10^{-4}$	0,10

Tab. 4.4: Für jeweils die Kapillarsysteme Glas165 und Glas1000 durch Messung an Sensor 1 (Abb. 4.13, oben, Glas165: rote Punkte, Glas1000: gelbe Kreuze), durch Simulation (Abb. 4.13, unten) und nach Gl. (4.3) durch die Kombination aus Vordruck und Simulation bestimmte Drücke sowie die sich daraus ergebenden mittleren freien Weglängen λ für Kr.

einem bestimmten Druck zurücklegt ohne mit anderen Atomen zu stoßen. Es wird davon ausgegangen, dass ein Atom durch einen Stoß aus dem Atomstrahl entfernt wird. Deswegen wird hier die Überlebenswahrscheinlichkeit $\eta_{\bar{U},i}$ eines Testteilchens i definiert, wie sie bspw. auch [CRU06] verwendet:

$$\eta_{\bar{U},i}(z) = \exp(-\Gamma_{\text{koll}} \tau_{\text{Flug}}) = -\exp(\sigma n_{\text{Gas}} \bar{c}_{\text{Gas}} z / v_i) . \quad (4.4)$$

Hier ist Γ_{koll} die Kollisionsrate, τ_{Flug} die Flugzeit bis zur Position z und n_{Gas} die Dichte des Hintergrundgases nach Gl. (2.4). Die mittlere Geschwindigkeit in einem dreidimensionalen Hintergrundgas $\bar{c}_{\text{Gas}}$ ist gegeben durch Gl. (2.7) und v_i ist die Geschwindigkeit des Testteilchens, für das die Überlebenswahrscheinlichkeit berechnet werden soll. Die Wirkungsquerschnitte σ sind auch davon abhängig, ob metastabile Atome oder Atome im Grundzustand betrachtet werden. Für Kr im Grundzustand ergibt sich mit dem Atomdurchmesser $d_{\text{Kr}} = 414 \text{ pm}$ [Jou18, S. 58] ein Wirkungsquerschnitt von $\sigma_{\text{Kr}} = \pi(d_{\text{Kr}})^2 = 54 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$. Für metastabile Atome Kr^* gibt es einen Beitrag für elastische Streuung von $42 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ und einen Beitrag für metastabilen Austausch von $75 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ [YYD02]. Da beide Stoßarten ein metastabiles Atom aus dem Atomstrahl nehmen, ergibt sich ein Gesamtwirkungsquerschnitt für metastabile Krypton-Atome von $\sigma_{\text{Kr}^*} = 117 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$.

Exemplarisch wurden die mittlere Überlebenswahrscheinlichkeit $\bar{\eta}_{\bar{U}}$ abhängig von der Entfernung zum Kapillarausgang für das System Glas165 bei einem Druck an Sensor 1 von $1,3 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$ bestimmt und in Abb. 4.15 dargestellt. Dazu werden wie bei der Bestimmung des Druckprofils auf der Strahlachse transparente Facetten verteilt. Dann werden alle Wandfacetten auf absorbierend gestellt, sodass nur Atome die Profil-Facetten erreichen, die direkt aus der Kapillare austreten. Dann wird auf jeder Profil-Facette eine Stichprobe an Testteilchen genommen. Von jedem Teilchen in der Stichprobe wird die Überlebenswahrscheinlichkeit $\eta_{\bar{U},i}(z)$ für die drei Drücke $p_{\text{Sensor-1}}$, $\bar{p}_z\text{-Achse}$ und $\bar{p}_{\text{ges}}$ bestimmt. Auch hier zeigt sich, dass wenn der Druck in der Kapillare mit einbezogen wird, ein relevanter Anteil im Rohr stößt.

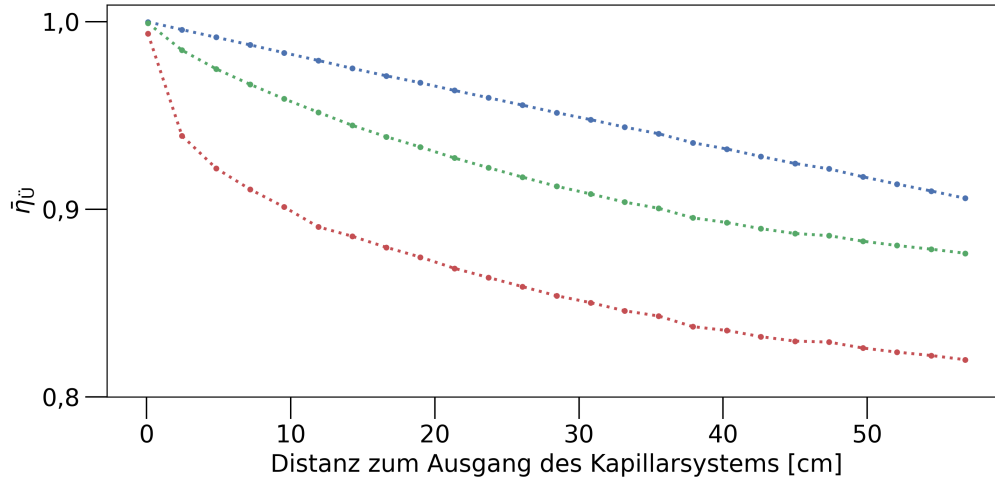


Abb. 4.15: Aus Simulation von Messaufbau 2 bestimmte mittlere Überlebenswahrscheinlichkeit $\bar{\eta}_U$ mittels Gl. (4.4) für Kr (nicht metastabil) bei verschiedenen Annahmen für die vorliegenden Drücke analog zu Tab. 4.4. Diese Annahmen sind ein konstanter Druck von 1,3 mbar (blau), ein aus der Simulation bestimmtes Druckprofil auf der Strahlachse bei einem angezeigten Druck von Sensor 1 von $1,3 \cdot 10^{-5}$ mbar (grün) sowie nach Gl. (4.3) berechneter kombinierter Druck mit demselben Druckprofil und einem Vordruck von $p_{\text{vor}} = 2,1 \cdot 10^{-2}$ mbar und einer Kapillarlänge von $L = 1$ mm (rot).

Neben den Verlusten durch Stöße ist ein weiterer Verlustfaktor, dass Atome aus dem Strahl fliegen und mit der Vakuumkammer kollidieren. Dieser von der z -Position abhängige geometrische Verlustfaktor wird im Folgenden mit η_{geo} bezeichnet. $\eta_{\text{geo}}(z)$ wird in der Simulation bestimmt, indem analog zum Druckprofil eine Reihe äquidistanter, transparenter Facetten auf der Strahlachse positioniert werden. Wieder werden alle Wandfacetten auf absorbierend gestellt. Für jede dieser Profil-Facetten werden dann die auftreffenden Teilchen gezählt und auf die aus der Kapillare austretenden Teilchenanzahl normiert.

Zusammenfassend ergibt sich ein konsistentes Bild zwischen den durchgeführten Messungen und den Simulationen. Auch mit wenigen Drucksensoren an verschiedenen Stellen lassen sich im Zusammenspiel mit detaillierten Simulationen Einblicke in die Dynamik von Systemen erhalten. Die Berechnung der Atomflüsse ist konsistent. Aufgrund der kleineren Unsicherheit wird empfohlen den Atomfluss auf Basis des Druckes nach der Kapillare zu bestimmen. Bezüglich der Translation der Atome im Messkammersystem deutet viel auf den Einfluss von Stoßeffekten schon bei vermeintlich geringeren Drücken hin. Mit der Simulation der Überlebenswahrscheinlichkeit $\bar{\eta}_U$ und den geometrischen Strahlverlusten η_{geo} stehen weitere Bausteine

bereit, um im nächsten Schritt die Fluoreszenzmessung simulieren und analysieren zu können.

4.3 Fluoreszenzmessungen und Simulation

4.3.1 Messmethodik und Simulation metastabiler Atomstrahlen

Bei der Betrachtung des Atomflusses und den entstehenden Druckverteilungen wurde bisher die Anregung in den metastabilen Zustand vernachlässigt. Nun wird der metastabile Atomfluss untersucht, welcher durch das in Abb. 4.16 dargestellte Anregungsschema erzeugt wird. Dabei werden die Atome zunächst mittels 123 nm Photonen aus der VUV-Lampe und durch 819 nm Photonen aus dem entsprechenden Anregungslaser angeregt und zerfallen dann in den metastabilen Zustand 5S[3/2]2, welcher eine Lebensdauer von 39 s aufweist. Der Übergang 5S[3/2]2 nach 5P[5/2]3 wird dann für die Fluoreszenzspektroskopie verwendet.

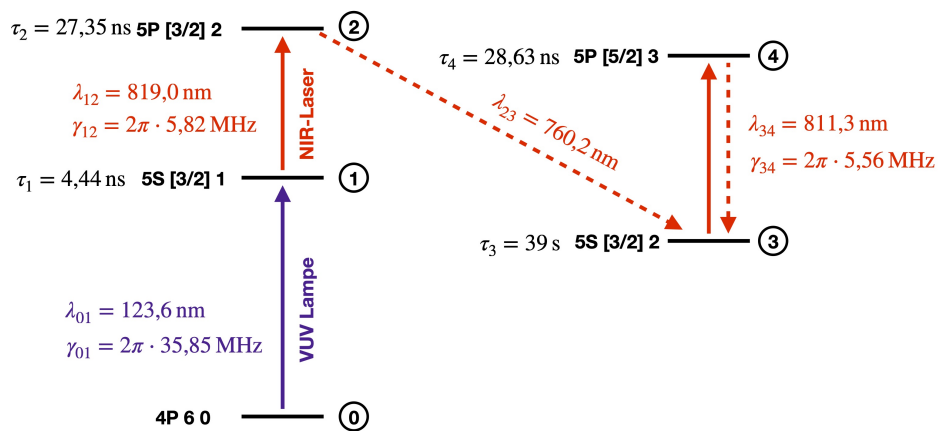


Abb. 4.16: Energieniveauschema für Kr mit Lebensdauern der Niveaus τ , den Wellenlängen λ und den Übergangsfrequenzen γ

Eine exemplarische Fluoreszenzmessung, wie sie im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurde, ist in Abb. 4.17 dargestellt. Der aus der Kapillare austretende Atomstrahl wird durch die VUV-Lampe und den 819 nm Anregungslaserstrahl angeregt und zerfällt anschließend in den metastabilen Zustand. Transversal zur Achse des Atomstrahls, hier exemplarisch in x-Richtung, wird der Messlaserstrahl mit der Frequenz

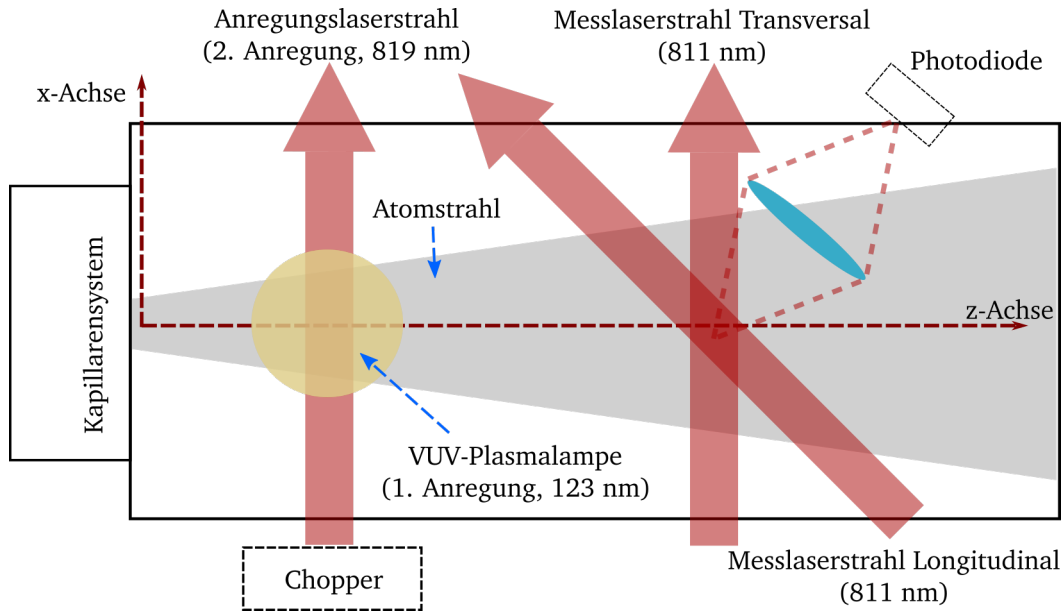


Abb. 4.17: Exemplarische Darstellung der Anregung in den metastabilen Zustand und Vermessung eines durch eine Kapillare erzeugten Atomstrahls.

ω_L eingestrahlt. Für ein Atom im Atomstrahl mit der transversalen Geschwindigkeit v_x ist die Frequenz aufgrund des Dopplereffektes verschoben:

$$\delta\omega = \omega_L - \vec{k} \cdot \vec{v} = \omega_L - v_x k . \quad (4.5)$$

Ist die dopplerverschobene Frequenz $\delta\omega$ nahe der Resonanzfrequenz ω_0 des Übergangs, findet eine relevante Absorption und anschließende spontane Emission isotrop in den Raum statt. Die Anzahl der absorbierten Photonen ist damit direkt proportional zur Anzahl der Atome mit einer Geschwindigkeit nahe v_x . Durch Durchstimmen der Laserfrequenz und Bestimmen der aus dem Laserstrahl absorbierten Photonen hat man somit Zugriff auf die Geschwindigkeitskomponente in x-Richtung des Atomstrahls. Durch eine andere Orientierung des Messlaserstrahls können andere Geschwindigkeitskomponenten bestimmt werden. In der Praxis wurde hier ein transversaler Messlaserstrahl in x-Richtung und ein in der xz-Ebene um 45° zur z-Achse orientierter Messlaserstrahl verwendet.

Da die emittierte Photonenrate der absorbierten Rate entspricht, gibt es zwei Möglichkeiten die Absorption zu bestimmen. Entweder durch eine Absorptionsmessung, bei der direkt die Reduzierung der Leistung des Laserstrahls gemessen wird, oder durch eine Fluoreszenzmessung, bei der ein Teil der isotrop in den Raum emittierten spontanen Emission durch ein auf den Wechselwirkungspunkt gerichtetes Objektiv auf eine Fotodiode abbildet und dort in ein elektronisches Signal umgewandelt

wird. Beide Methoden wurden evaluiert. Im Gegensatz zur Fluoreszenzmessung konnten bei der Absorptionsmessung nur sehr geringe Signal-Rausch-Verhältnisse realisiert werden, weshalb in dieser Arbeit die Fluoreszenzmessung verwendet wird. Zwar wird hier nur ein kleiner Teil aller emittierten Photonen detektiert, aber durch optische Filter und Raumfilter ließ sich der Untergrund deutlich besser reduzieren.

Ist bspw. die transversale Geschwindigkeit von Interesse, ist es in der Regel sinnvoll auf den Maximalwert zu normieren. Sind nicht nur relative Messungen von Interesse, muss die absolute Zahl an Photonen bestimmt werden. Die gemessene Photonenrate, im Endeffekt die elektrische Lichtleistung auf der Fotodiode, ist proportional zur Stromstärke. Schlussendlich gemessen wird der Spannungsabfall U_{Diode} an einem Messwiderstand R , aus dem sich die emittierte Photonenrate folgendermaßen bestimmen lässt:

$$\dot{n}_{\gamma,em}(\omega_L) = \frac{\dot{n}_{\gamma,Diode}(\omega_L)}{\Omega_{Abb}} = \frac{U_{mess}(\omega) \beta}{R \eta E_\gamma \Omega_{Abb}}. \quad (4.6)$$

Hierbei ist $\dot{n}_{\gamma,Diode}$ die gemessene Photonenrate und Ω_{Abb} der als Abbildungseffizienz bezeichnete Anteil der emittierten Photonen, den das Objektiv abdeckt und der auf die Fotodiode abgebildet wird. η ist der Konversionsfaktor der Fotodiode, der bei der verwendeten Fotodiode bei $\eta = 0,55 \text{ A W}^{-1}$ lag und $E_\gamma = \hbar\omega$ ist die Energie eines absorbierten bzw. emittierten Photons. Der zusätzliche Integrationsfaktor β entsteht, weil aufgrund des geringen Signals für die Messungen eine phasenempfindliche Verstärkung durch einen Lock-in-Verstärker verwendet wurde. Dazu wurde der 819 nm Anregungslaserstrahl periodisch mittels eines Akustooptischen Modulators unterbrochen. Effektiv wurden so nur etwa während der Hälfte der Zeit Atome angeregt, wodurch der Faktor $\beta \approx 2$ zustande kommt. Aus dem Verhältnis des Integrals der gemessenen Fluoreszenzverteilung und der natürlichen Linienbreite Γ_{nat} lässt sich der metastabile Atomfluss folgendermaßen abschätzen:

$$\dot{n}_{metastabil} = \frac{v_z}{d} \frac{1}{\gamma_{Streu}} \int_{\omega_L} \dot{n}_{\gamma,em}(\omega_L) / \Gamma_{nat}. \quad (4.7)$$

Hierbei ist γ_{Streu} die Streurrate, v_z die mittlere Geschwindigkeit in z-Richtung und d die Breite des Laserstrahls. Typische realisierte metastabile Atomflüsse lagen im Bereich von 10^8 bis 10^{10} Atomen pro Sekunde. Zusammen mit Abbildungseffizienzen Ω_{Abb} von teilweise nur 10^{-5} lagen typische Messsignale im nV-Bereich. Dies machte einen großen Messwiderstand von $R = 10 \text{ M}\Omega$ und Mittlungen über typischerweise 15 s pro Messpunkt notwendig.

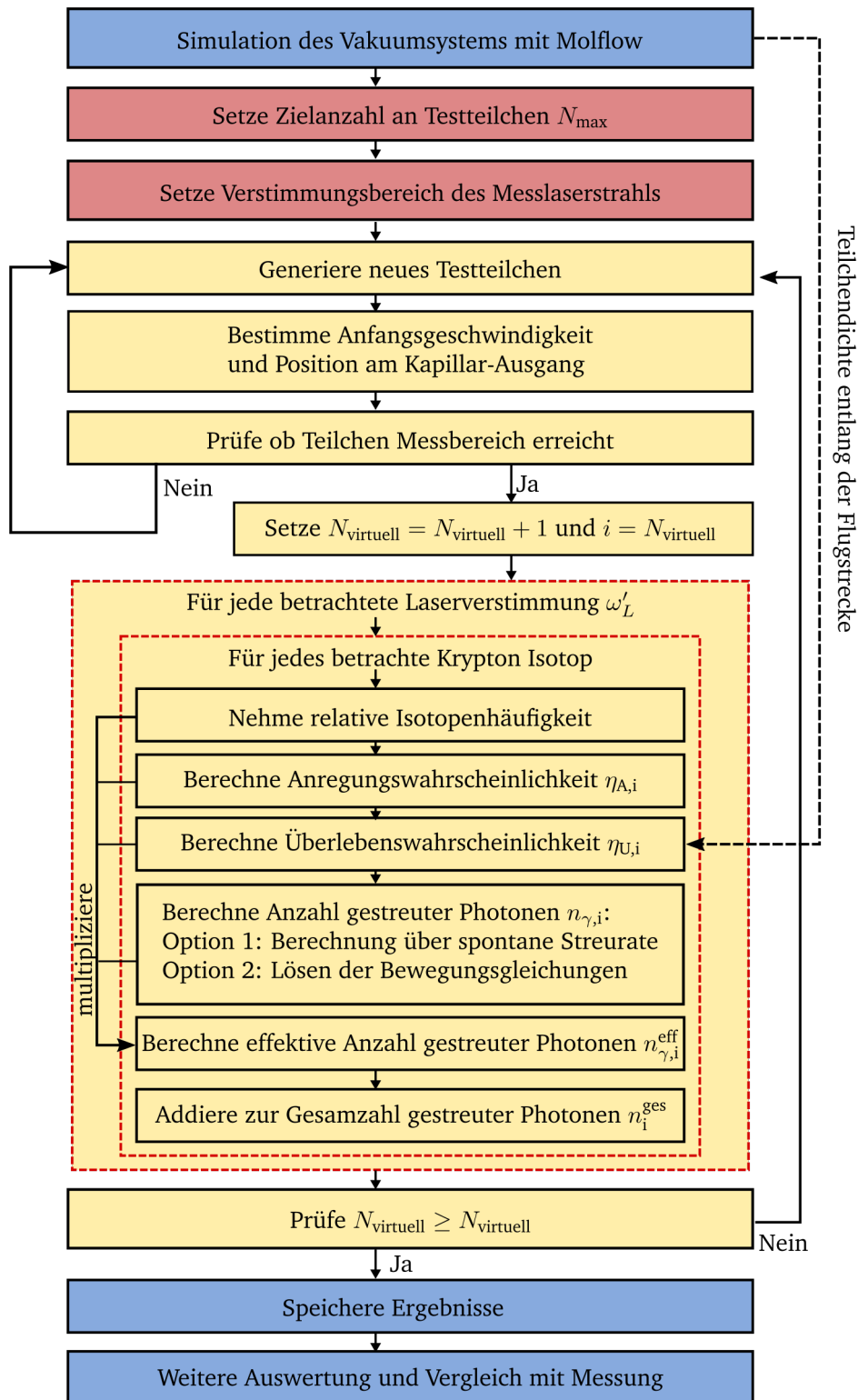


Abb. 4.18: Flussdiagramm der Simulation der Fluoreszenzmessung eines durch eine Kapillare erzeugten und optisch angeregten metastabilen Krypton-Atomstrahls.

Simulation Die Erzeugung des metastabilen Atomstrahls und die anschließende Fluoreszenzmessung wurde auch in der Monte Carlo Simulation implementiert. Ein Flussdiagramm des Simulationsablaufs ist in Abb. 4.18 dargestellt. Der Messlaserstrahl wird in der Simulationsgeometrie durch eine transparente Facette repräsentiert. Da nur Teilchen berücksichtigt werden, die ausgehend vom Ausgang des Kapillarsystems die Messfacette ohne Wandstöße erreichen, werden alle Wandfacetten auf Absorption gestellt. Es wird eine Stichprobe von N_{virtuell} Teilchen genommen, die die Messfacette aufgrund ihrer Startposition und Richtungskomponenten erreichen. Im Bild der Testteilchen repräsentiert jedes Teilchen der genommenen Stichprobe, eine Anzahl an realen Teilchen, die pro Sekunde die Facette erreichen. Dieser Faktor K lässt sich über den aus dem Geometrieprofil bestimmten Faktor η_{geo} und dem realen Fluss aus der Kapillare $\dot{n}_{\text{real,Kap}}$ berechnen:

$$K = \frac{\dot{n}_{\text{real,Kap}}}{N_{\text{virtuell}}} \times \eta_{\text{geo}} \quad (4.8)$$

Inwiefern ein konkretes Testteilchen i zum Fluoreszenzsignal beiträgt, ist von der Anregungswahrscheinlichkeit in den metastabilen Zustand $\eta_{\text{A},i}$, der Überlebenswahrscheinlichkeit aufgrund von Stößen mit dem Restgas $\eta_{\text{Ü},i}$ und von der Anzahl der im Messlaserstrahl gestreuten Photonen $n_{\gamma,i}$ abhängig. Aus diesen Größen ergibt sich die effektive Anzahl gestreuter Photonen für das Testteilchen:

$$n_{\gamma,i}^{\text{eff}} = \eta_{\text{A},i} \times \eta_{\text{Ü},i} \times n_{\gamma,i}. \quad (4.9)$$

Aus der Summe der effektiv gestreuten Photonen aller Testteilchen und dem Faktor K kann dann die Streurrate bezogen auf den realen Atomfluss eines reinen, monoisotopen Gases berechnet werden:

$$\dot{n}_{\gamma}^{\text{Isotop}} = K \sum_{i=1}^{N_{\text{virtuell}}} n_{\gamma,i}^{\text{eff}} \quad (4.10)$$

In der Praxis enthält das verwendete Krypton Gas aber nicht nur ein Isotop, sondern eine natürliche Isotopenzusammensetzung, die zusammen mit den relativen Übergangsfrequenzen Tab. 4.5 entnommen werden kann. Die Übergänge liegen dabei teilweise relativ nahe zusammen, weshalb bei der Fluoreszenzmessung nicht nur ein Isotop beobachtet wird, sondern eine Überlagerung mehrerer Isotope.

Um ein vollständiges Probengas zu simulieren werden für jedes Testteilchen die durch dieses gestreute Anzahl an Photonen $n_{\gamma,i}^{\text{eff}}$ separat für jedes Isotop Kr-x berech-

Isotop	$t_{1/2}$ [CKL04]	Nat. Häufigkeit ρ [CKL04]	$\Delta\omega_{0,34}/2\pi$ [MHz] [LL95] [KNS05, S. 91]	$\Delta\omega_{0,12}/2\pi$ [MHz] [KNS05, S. 92]
^{80}Kr	stabil	$2,25 \cdot 10^{-2}$	-138	
^{81}Kr	229 000 a	$3 \cdot 10^{-13}$	-	
^{82}Kr	stabil	0,116	-64	-101,7
^{83}Kr	stabil	0,115		
^{84}Kr	stabil	0,57	0	0
^{85}Kr	10 a	$1,1 \cdot 10^{-11}$	-77	
^{86}Kr	stabil	0,173	66	-103,8

Tab. 4.5: Auswahl an Krypton Isotopen und deren Halbwertszeit $t_{1/2}$, natürliche Isotopenzusammensetzung ρ und Frequenzverschiebung relativ zu Kr84 für die beiden Übergänge $N1 \rightarrow N2$ und $N3 \rightarrow N4$ (s. Abb. 4.16).

net. Gewichtet mit der relativen Isotopenhäufigkeit $\rho_{\text{Kr-x}}$ geht die Anzahl gestreuter Photonen dann in die Gesamtstreurate ein:

$$\dot{n}_{\gamma}^{\text{ges}} = K \sum_{x \in \{\text{Kr-Isotope}\}} \rho_{\text{Krx}} \sum_{i=1}^{N_{\text{virtuell}}} n_{\gamma,i}^{\text{eff}} \quad (4.11)$$

Mit Gl. (4.6) kann die in der Simulation bestimmte Streurrate dann in Beziehung zum Messsignal gesetzt werden. Dafür müssen aber für jedes Testteilchen $\eta_{\ddot{U},i}$, $\eta_{A,i}$ und $n_{\gamma,i}^{\text{eff}}$ berechnet werden. Die Modellierung und Berechnung dieser Effekte wird nun vorgestellt.

Zur Berechnung der Überlebenswahrscheinlichkeit wird, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, aus dem Druckprofil der mittlere Druck entlang der Flugstrecke und dann mittels Gl. (4.4) für jedes Testteilchen $\eta_{\ddot{U},i}$ bestimmt. Da keine isotopenspezifischen Wirkungsquerschnitte vorliegen, wird für alle Isotope der Wirkungsquerschnitt für Kr* verwendet.

Bei den optischen Prozessen stellt sich die Situation anders dar. Das Energieniveauschema für die relevanten Übergänge ist zusammen mit den Eigenschaften in Abb. 4.16 abgebildet. Die Fluoreszenzmessungen konzentrieren sich auf das am häufigsten vorkommende Isotop Kr-84, weshalb um dessen Resonanzfrequenz die Wellenlänge Messlaserstrahls herum verstimmt wird. Dieses Isotop wird im Folgenden als Referenzisotop gewählt und die jeweilige Laserfrequenz ω_L wird relativ zur Resonanzfrequenz von Kr-84 ω_0^{Kr84} des entsprechenden Übergangs angegeben:

$$\omega_L \rightarrow \omega'_L = \omega_L - \omega_0^{\text{Kr-84}}. \quad (4.12)$$

Für ein Isotop Kr-x mit der Resonanzfrequenz $\omega_0^{\text{Kr-x}}$ ergibt sich damit eine Verstimmung von

$$\delta_0^{\text{Kr-x}} = \omega_L - \omega_0^{\text{Kr-x}} = \omega'_L + \omega_0^{\text{Kr-84}} - \omega_0^{\text{Kr-x}}. \quad (4.13)$$

Der Frequenzabstand eines Übergangs für ein Isotop Kr-x zu dem Übergang für Kr84 wird folgendermaßen definiert:

$$\Delta\omega_0^{\text{Kr-x}} = \omega_0^{\text{Kr-84}} - \omega_0^{\text{Kr-x}} \quad (4.14)$$

Die Frequenzabstände zu Kr84 für die jeweiligen Isotope sind für beide relevanten Übergänge in Tab. 4.5 aufgelistet.

Da in den metastabilen Zustand optisch angeregt wird und der zweite Anregungsschritt durch einen schmalbandigen Laserstrahl getrieben wird, gibt es sowohl ein Geschwindigkeits- als auch eine Isotopen-Abhängigkeit der Anregung. Da die VUV-Plasmalampe ein nicht näher bestimmtes, breitbandiges Emissionsspektrum aufweist, wird der erste Anregungsschritt vernachlässigt. Für den zweiten Anregungsschritt wird ein Lorentzprofil angenommen. Für detaillierte Information bzgl. der optischen Übergänge sei auf [Dem11, Kap. 3] verwiesen. In der Konvention der relativen Frequenzen zu Kr-84 ergibt sich:

$$L_i^{\text{Kr-x}} = \frac{1}{L_0} \frac{\gamma_{12}/2\pi}{(\omega_{L,819} - \Delta\omega_{0,12}^{\text{Kr-x}} + \omega_{D,819})^2 + (\gamma_{12}/2)^2}. \quad (4.15)$$

Hier ist L_0 der Wert am Maximum des Lorentzprofils für eine gewählte Linienbreite γ_{12} des Übergangs $N1 \rightarrow N2$. Die Doppler Verstimmung $\omega_{D,819}$ zwischen Anregungslaserstrahl und Testteilchen i berechnet sich aus dem Wellenvektor $\vec{k}$ bzw. der Wellenlänge λ des Lasers und der Geschwindigkeit $\vec{v}$ des Testteilchens:

$$\omega_{D,i}^{\text{laser}} = -\vec{k}_{\text{laser}} \vec{v}_i \quad \text{mit } |k| = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{laser}}} \quad (4.16)$$

In dem Fall der Anregung handelt es sich um einen 819 nm Laserstrahl. In der Praxis wurde für den zweiten Anregungsschritt Intensitäten von einigen hundert mW cm^{-2} verwendet. Es ist davon auszugehen, dass bei diesen Intensitäten eine Verbreiterung

des Übergangs auftritt [Dae11, Kap. 6]. Die natürliche Linienbreite kann aber als untere Grenze betrachtet werden und wird folgendermaßen bestimmt:

$$\gamma_{12} = \frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2} = 41,6 \text{ MHz} \quad (4.17)$$

In der Simulation wird die effektive Linienbreite dann empirisch bestimmt. Auch ist davon auszugehen, dass in den betrachteten Wechselwirkungszeiten zwischen Anregungsphotonen und Atom, die Anregungswahrscheinlichkeit linear abhängig von der Wechselwirkungszeit und damit zur Geschwindigkeit v_i des Testteilchens i ist. Weil vor allem die Intensität und das konkrete Emissionsspektrum der VUV-Lampen nicht bekannt sind, wird zudem ein Anregungseffizienzfaktor α_A eingeführt. Insgesamt ergibt sich für die Anregungswahrscheinlichkeit in das metastabile Niveau

$$\eta_{A,i}^{\text{Krx}} = \alpha_A \frac{1}{v_i} L_i^{\text{Krx}}. \quad (4.18)$$

Steht nur ein relativer Vergleich der gemessenen Profile im Vordergrund, ist $\alpha_A = 1$. Im nächsten Schritt muss für das Testteilchen die Anzahl absorbiertes und damit emittierter Photonen $n_{\gamma i}$ bestimmt werden. Für den gewählten Messübergang kann ein effektives Zwei-Niveau-System angenommen werden. Damit lässt sich die Absorptionsrate eines mit dem Messlaser interagierenden Atoms mithilfe der aus den optischen Bloch-Gleichungen resultierende spontanen Streurrate [Met01, Kap. 2] berechnen:

$$\gamma_{\text{Streu}}^{\text{Krx}} = \frac{\gamma_{34}}{2} \frac{s_0}{1 + s_0 + 4 \left(\frac{\omega_L - \Delta\omega_{0,34}^{\text{Krx}} + \omega_{D,811}}{\gamma_{34}/2\pi} \right)^2} \quad (4.19)$$

Hier ist γ_{34} die spontane Zerfallsrate bzw. natürliche Linienbreite, des betrachteten Messübergangs $N3 \rightarrow N4$ und beträgt $\gamma_{34} = \frac{1}{\tau_4} = 2\pi \cdot 5,56 \text{ MHz}$. Die spontane Streurrate berücksichtigt neben der Doppler-Verstimmung auch die Sättigungsverbreiterung als Einflussfaktor. Als Parameter geht hierfür der Sättigungsparameter $s_0 = I/I_s$ ein, wobei I die Intensität des Laserstrahls und I_s die Sättigungsintensität, bei der der Übergang einfach gesättigt ist, darstellen.

Aus der spontanen Streurrate kann über die Wechselwirkungszeit des Testteilchens mit dem Messlaserstrahl τ die Anzahl gestreuter Photonen bestimmt werden:

$$n_{\gamma,i} = \gamma_{\text{Streu}} \tau. \quad (4.20)$$

Die Wechselwirkungszeit ergibt sich aus der Breite des Laserstrahls in Bewegungsrichtung des Testteilchens und dessen Geschwindigkeit. Bei kurzen Wechselwirkungszeiten und nicht zu großen Intensitäten findet keine relevante Kraftübertragung durch die Photonen auf das Testteilchen statt. Für langsame Teilchen und hohen Intensitäten des Messlaserstrahls gilt dies nicht mehr. Dann führt der Kraftübertrag zu einer veränderten Geschwindigkeit, damit zu einer veränderten Verstimmung und folglich zu einer veränderten Streurrate. Deshalb werden in der Simulation nur Atome mit einer z-Geschwindigkeit von mehr als 10 m s^{-1} berücksichtigt. Langsamere Teilchen weisen unter den betrachteten Bedingung sowieso eine verschwindend geringe Überlebenswahrscheinlichkeit aufgrund des Restgasdruckes auf.

4.3.2 Ergebnisse Messaufbau 1

An der vorgestellten Modellierung wird deutlich, dass es eine Vielzahl von Einflüssen auf die resultierende metastabile Verteilung an einem bestimmten Ort gibt. Das gemessene Fluoreszenzspektrum ist dann noch mal von weiteren Faktoren abhängig. Je nach Messsituation können einzelne Faktoren aber vernachlässigt werden und die übrigen Faktoren isoliert untersucht werden. Zunächst werden die Ergebnisse von Messaufbau 1 vorgestellt. Hier ist es möglich, bis zu 2 cm nah am Ausgang der Kapillarsysteme zu messen und so die anfängliche metastabile Verteilung in einem relativ großen Raumwinkelbereich zu untersuchen. Aufgrund des geringen Abstandes sollten Stoßeffekte nach der Kapillare noch keinen großen Einfluss haben.

Generell ist der Einfluss der VUV-Lampe ein großer Unsicherheitsfaktor. Die VUV-Photonenleistung, der maßgebliche Faktor für die Anregungseffizienz, konnte nicht direkt gemessen werden. Zusätzlich kann sie je nach eingestellte Mikrowellen-Einkopplung schwanken und zudem gibt es eine Degeneration mit der Zeit. Die Messungen mit dem Kapillarsystem Single165 wurden mit VUV-Lampen durchgeführt, die bereits mehr als ca. 500 Stunden in Betrieb war. Wie [Koh11, Abschn. 3.3] zeigt, ist mit einer Reduzierung des VUV-Photonenflusses auf etwa 25 % im Vergleich zur Anfangsleistung zu rechnen. Für die Messungen mit Array172 wurden die VUV-Lampen erneuert und der Messaufbau im Hinblick auf die Stabilisierung der Laser verbessert. Um eine bessere Vergleichbarkeit zu erreichen, wurden die verwendeten Messungen für das jeweilige Kapillarsystem an einem Tag hintereinander durchgeführt. Es ist davon auszugehen, dass die absoluten Signalthöhen innerhalb einer Messreihe vergleichbar sind. Die relativen Verteilungen sollten auch zwischen den Kapillarsystemen vergleichbar sein.

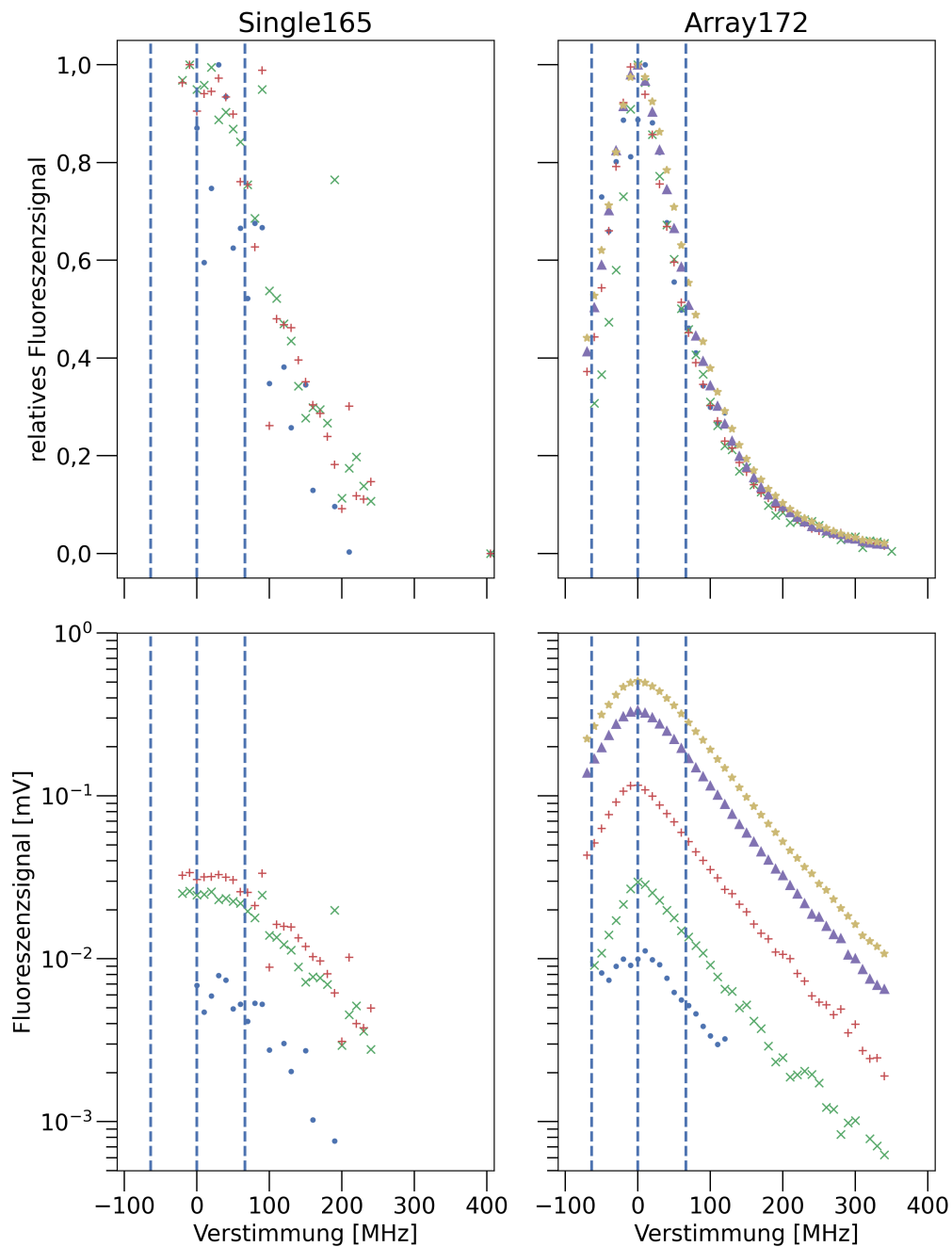


Abb. 4.19: An Messaufbau 1 gemessene Fluoreszenzsignale 1,5 cm vom Ausgang der Kapillarsysteme entfernt gegen die relative Verstimmung zur Kr-84 Resonanz für Single165 (links) und Array172(rechts) auf das Maximum normiert (oben) und als direktes Messsignal (unten). Eingezeichnet sind ebenfalls die Resonanzlinien von Kr-82, Kr-84 und Kr-86 (blau gestrichelt). Die Leistung des 819 nm Laserstrahls betrug etwa 200 mW bei einer Halbwertsbreite von etwa 1 cm.

Bezeichnung	Symbol	p_{vor} [mbar]	p_{nach} [mbar]	λ [mm]	Kn_L	Kn_D
Single165-1	○	1,0	$7,1 \cdot 10^{-6}$	$5,1 \cdot 10^{-2}$	$3,1 \cdot 10^{-4}$	$5,1 \cdot 10^{-2}$
Single165-2	×	2,2	$3,2 \cdot 10^{-5}$	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$2,4 \cdot 10^{-2}$
Single165-3	+	2,5	$4,3 \cdot 10^{-5}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$
Array172-1	○	$2,9 \cdot 10^{-2}$	$2,6 \cdot 10^{-6}$	1,8	$1,1 \cdot 10^{-2}$	1,8
Array172-2	×	$5,8 \cdot 10^{-2}$	$5,5 \cdot 10^{-6}$	$9,1 \cdot 10^{-1}$	$5,5 \cdot 10^{-3}$	$9,1 \cdot 10^{-1}$
Array172-3	+	$2,5 \cdot 10^{-1}$	$2,9 \cdot 10^{-5}$	$2,1 \cdot 10^{-1}$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$2,1 \cdot 10^{-1}$
Array172-4	△	$5,1 \cdot 10^{-1}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-1}$	$6,4 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-1}$
Array172-5	★	$5,2 \cdot 10^{-1}$	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-1}$	$6,2 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-1}$

Tab. 4.6: Bezeichnung der Messungen mit gemessenen Drücken vor (p_{vor}) und nach (p_{nach}) den Kapillarsystemen und freie Weglänge λ sowie Knudsen-Zahlen für die in Abb. 4.19 dargestellten Fluoreszenzmessungen.

Die nahe am Ausgang der Kapillarsysteme gemessenen Fluoreszenzsignale in Abhängigkeit von der Verstimmung des Laserstrahls sind in Abb. 4.19 für Single165 (linke Spalte) und Array172 (rechte Spalte) bei verschiedenen Drücken dargestellt. Aufgrund von Verbesserungen an der Laserstabilisierung und Phasenverstärkung schwanken die Messungen für Array172 weniger. Die jeweiligen Drücke vor und nach dem Kapillarsystem sind zusammen mit der mittleren freien Weglänge auf Basis des Druckes vor dem Kapillarsystem und den Knudsen-Zahlen in Tab. 4.6 aufgelistet. Für Array172 liegen die Drücke vor der Kapillare zwischen $2,9 \cdot 10^{-2}$ mbar und $5,2 \cdot 10^{-1}$ mbar. Die mittlere freie Weglänge λ beträgt damit zwischen 1,8 mm und 0,1 mm und ist um Größenordnungen kürzer als die Kapillarlänge und im Bereich des Kapillardurchmessers bzw. darunter. Aufgrund der kleineren offenen Fläche und geringeren VUV-Photonenleistung waren für Single165 nur Messungen bei noch höheren Drücken möglich. Diese liegen bei 1 mbar bis 2,5 mbar mit mittleren freien Weglängen zwischen $5,1 \cdot 10^{-2}$ mm und $2,1 \cdot 10^{-2}$ mm. Die Messungen liegen damit alle weit oberhalb des molekularen Strömungsbereichs und auf Basis der Untersuchungen von Abschnitt 3.2 ist mit einer stark verbreiterten Verteilung zu rechnen. Die Austrittsverteilung ist nicht direkt beobachtbar, sondern nur die daraus erzeugte metastabile Verteilung. Eine mögliche Aufweitung der Verteilung ist am besten an den auf den Maximalwert normierten relativen Profilen in Abb. 4.19 zu erkennen, welche in der oberen Zeile dargestellt sind. Deutlichere Aussagen lassen sich hier aus den Messungen an Array172 ziehen. Für Array172 ist die halbe Halbwertsbreite in dem betrachteten Druckbereich um die 70 MHz und es ist keine starke Aufweitung mit steigendem Druck erkennbar. Dies entspricht einer transversalen Geschwindigkeit von etwa 57 m s^{-1} . Mit einer longitudinalen Geschwindigkeit von 270 m s^{-1} ergibt sich ein abgeschätzter mittlerer halber Aufgehwinke von 12° . Die weniger stabilen Messungen an Single165 deuten eine anfängliche Aufweitung

an. Bei hohen Drücken ergibt sich eine halbe Halbwertsbreite von 100 MHz. Die transversale Geschwindigkeit beträgt dann 80 m s^{-1} und der halbe Aufgehwinkel ist 16° .

Insgesamt sind die gemessenen Verteilungen deutlich schmaler als die in Abschnitt 3.2 untersuchten Winkelverteilungen, obwohl aufgrund der deutlich höheren Drücke vor den Kapillarsystemen eher breitere Verteilungen zu erwarten sind. Zwei Einflussfaktoren bieten sich als Erklärung für diesen Effekt an. Zum einen ist die Anregungswahrscheinlichkeit in den metastabilen Zustand von der transversalen Geschwindigkeit abhängig. Zum anderen wird durch den 1,5 cm vom Ausgang positionierten Messlaserstrahl nicht der gesamte Atomstrahl erfasst, wodurch eine räumliche Selektion stattfindet. Beide Effekte wurden durch die Simulation untersucht. Zur Einschätzung, wie stark der Einfluss der räumlichen Selektion auf die gemessene Breite ist, wurde zunächst die Anregung vernachlässigt und angenommen, dass der gesamte Atomstrahl metastabil ist. Auch wurden Stoßverluste und die Wechselwirkungszeit mit den Anregungsquellen vernachlässigt. Simuliert wurde ein natürliches Isotopengemisch (s. Tab. 4.5) der drei häufigsten Isotope Kr-82, Kr-84 und Kr-86. Unter diesen Annahmen wurde eine Fluoreszenzmessung direkt am Ausgang des Kapillarsystem und eine Messung im Abstand von 2 cm simuliert, welche in Abb. 4.20 dargestellt sind. Der Simulationsalgorithmus ist in Abschnitt 4.3.1 erläutert und Details zur Orientierung der beiden Laserstrahlen sowie die Position der Fotodiode sind in Abb. 4.3 dargestellt. Als Referenz wird die Messung Array172-3 bei einem Vordruck von $2,5 \cdot 10^{-1} \text{ mbar}$ herangezogen. Da die Austrittswinkelverteilung aus dem Kapillarsystem nicht bekannt ist, wurden die Simulationen mit drei Austrittsverteilungen durch Gl. (2.32)-Gl. (2.36) und Gl. (2.17) generiert. Diese sind eine Austrittsverteilung als untere Grenze, wie sie im stoßfreien Regime zu erwarten ist, eine bei einem Vordruck von $2,5 \cdot 10^{-1} \text{ mbar}$ und eine Kosinus-Verteilung als obere Grenze. Auf Basis der Voruntersuchung und des sehr hohen Vordrucks ist eine Verteilung zwischen der mit einem Druck von $2,5 \cdot 10^{-1} \text{ mbar}$ und einer Kosinus-Verteilung zu erwarten.

Der Messlaserstrahl wird durch eine Facette mit einer Breite von 2 cm und einer Länge von 3 cm simuliert. Der Messlaserstrahl wird nicht auf der gesamten Länge simuliert, da die Atome zum einen auch durch den Anregungsbereich fliegen müssen und zum anderen Fluoreszenz-Photonen noch auf die Fotodiode treffen müssen. Beides ist ab einem gewissen Abstand zur Hauptachse nicht mehr möglich. Die Simulationsergebnisse direkt am Kapillarausgang sind in Abb. 4.20 (oben) und die bei 2 cm Entfernung in Abb. 4.20 (unten) dargestellt. Als Referenz ist die Messung Array172-3 als rote Plus-Symbole mit eingezeichnet. Bei der Simulation mit der Austrittsverteilung für die stoßfreie Austrittsverteilung (grüne Punkte) sind

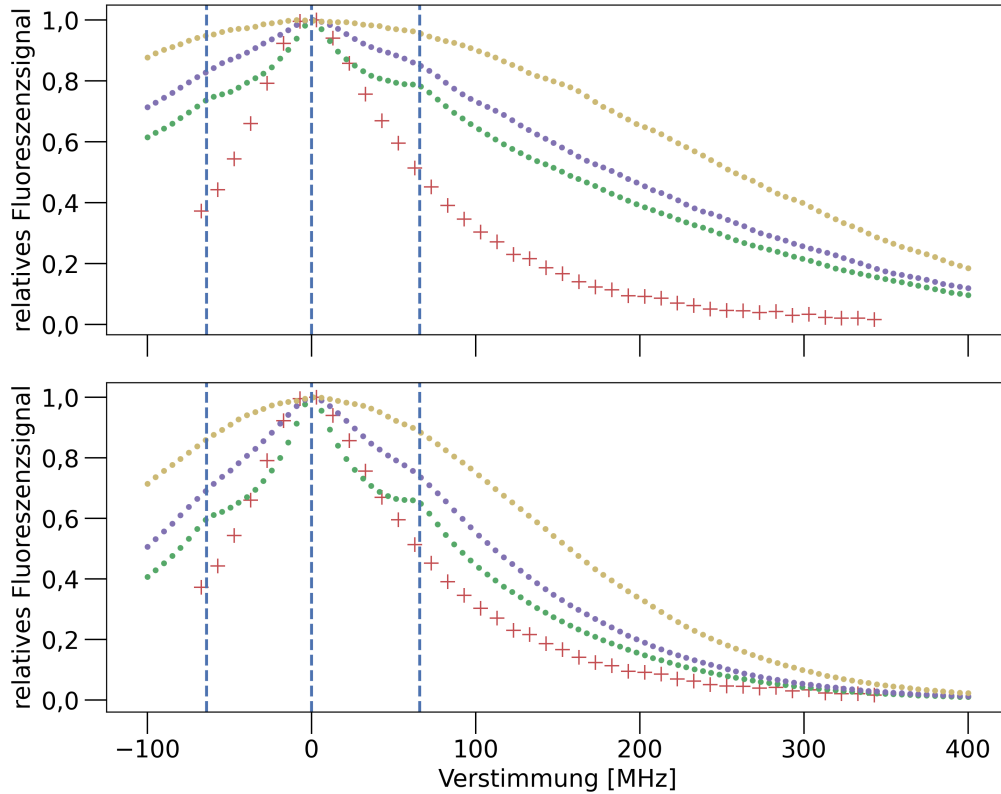


Abb. 4.20: Simulierte Fluoreszenzmessung mit einem Laserstrahl direkt nach dem Kapillarausgang (oben) und mit einer Entfernung von 2 cm (unten) unter Vernachlässigung der Anregungswahrscheinlichkeit η_A und der Überlebenswahrscheinlichkeit η_U (s. Abschnitt 4.3.1) für drei Austrittsverteilungen generiert nach Gl. (2.32)-Gl. (2.36) und Gl. (2.17) (grüne Punkte: Stoßfreier Fall, lila Punkte: mit $p_{\text{vor}} = 2,5 \cdot 10^{-1}$ mbar, gelbe Punkte: Kosinus-Verteilung). Als Referenz (rote Plus-Symbole) ist die Messung Array172-3 (s. Tab. 4.6) eingezeichnet.

die Resonanzen der beiden selteneren Isotope Kr-82 und Kr-86 zu erkennen. Die relative Position der Resonanzen ist in Blau eingezeichnet. An der Messposition 2 cm vom Ausgang entfernt (Abb. 4.20, oben) reduziert sich die Breite aller drei Austrittsverteilungen deutlich, sie sind aber immer noch deutlich breiter als die exemplarische Messung. Bei der Messung ist eine Asymmetrie zu erkennen, welche wahrscheinlich durch die schräge Position der VUV-Lampen verursacht wurde, welche in der Simulation nicht berücksichtigt wurde. Die Tatsache, dass bei schmalen Verteilungen, welche der Breite der Messung nahe kommen, an den Resonanzen der weniger häufigen Isotope Kr-82 und Kr-86 Erhöhungen sichtbar werden, ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass die hier noch nicht berücksichtigte Anregungswahrscheinlichkeit einen maßgeblichen Einfluss hat. Sowohl räumliche Filterung durch den Messlaserstrahl als auch die Breite der Austrittsverteilung betreffen immer alle

Isotope gleichermaßen. Bei der Anregung durch den 819 nm Laserstrahl hingegen, welcher auf die Kr84 Resonanz eingestellt ist, werden die anderen Isotope hingegen deutlich unterdrückt.

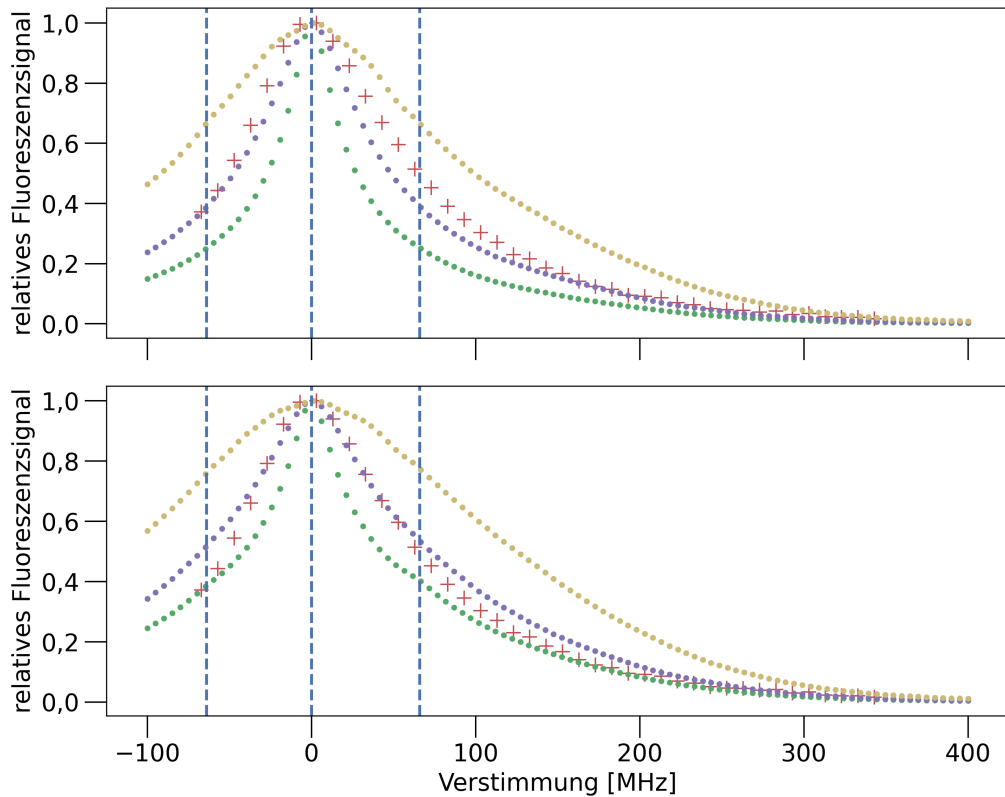


Abb. 4.21: Simulierte Fluoreszenzmessung mit einem Laserstrahl in einer Entfernung von 2 cm vom Kapillarausgang unter Berücksichtigung der Anregungswahrscheinlichkeit η_A mit $\omega = 2\pi 41,6$ MHz (oben) und mit $\omega = 2\pi 70$ MHz (unten) unter Vernachlässigung der Überlebenswahrscheinlichkeit $\eta_{\bar{U}}$ (s. Abschnitt 4.3.1) für drei Austrittsverteilungen generiert nach Gl. (2.32)-Gl. (2.36) und Gl. (2.17) (grüne Punkte: Stoßfreier Fall, lila Punkte: mit $p_{\text{vor}} = 2,5 \cdot 10^{-1}$ mbar, gelbe Punkte: Kosinus-Verteilung). Als Referenz (rote Plus-Symbole) ist die Messung Array172-3 (s. Tab. 4.6) eingezeichnet.

Die Anregungswahrscheinlichkeit wird nun in der Simulation berücksichtigt. In Abschnitt 4.3.1 wurde erläutert, dass für die Abhängigkeit der Anregungswahrscheinlichkeit von der Verstimmung eine Lorentzkurve mit einer zu bestimmenden Breite ω angenommen wird. Als untere Grenze wurde die natürliche Linienbreite des Überganges in den zweiten angeregten Zustand $\gamma_{12} = 2\pi 41,6$ MHz postuliert. Die Ergebnisse einer Simulation, welche die Anregungswahrscheinlichkeit mit dieser Breite ω berücksichtigt, sind in Abb. 4.21 (oben) dargestellt. Alle drei betrachteten Austrittsverteilungen sind deutlich schmäler als zuvor und die eingezeichnete Messung liegt zwischen den Ergebnissen der Simulation mit einem Vordruck von

$2,5 \cdot 10^{-1}$ mbar (lila Punkte) und der Simulation mit einer Kosinus-Verteilung (gelbe Punkte). Die Erhöhungen des Signals an den Resonanzen von Kr-82 und Kr-86 sind nicht mehr zu erkennen. Exemplarisch ist in Abb. 4.21 (unten) auch eine Simulation mit einer Breite $\omega = 2\pi 70$ MHz dargestellt. Mit dieser Breite wird bei Messaufbau 2 eine große Übereinstimmung zwischen Simulation und Messungen erreicht. Auch dieser ω -Wert liefert plausible Ergebnisse. Genauere Aussagen lassen sich hier nicht treffen, da die tatsächliche Austrittsverteilung nur abgeschätzt werden kann. Eine größere Breite als die natürliche Linienbreite ist erklärbar, da die VUV-Lampe ebenfalls eine begrenzte spektrale Breite aufweist und hohe Intensitäten des 819 nm Anregungslaserstrahls auch zu einer Verbreiterung führen. Insgesamt sind die Übereinstimmung zwischen Simulation und Messungen hoch.

Da die Anregungsrate in den metastabilen Zustand eine zentrale Limitierung im angestrebten ATTA-Aufbau darstellt, stellt sich die Frage, ob bei den gemessenen Atomflüssen schon eine Reduzierung der Anregungseffizienz beobachtbar ist. Bei Messaufbau 1 konnte nahe am Kapillarausgang gemessen werden, wodurch Stoßverluste beim metastabilen Atomstrahl erst bei höheren Drücken maßgeblich werden. Da beim ATTA-Aufbau vor allem die metastabilen Atome mit starker Vorwärtsrichtung zum einfangbaren Atomfluss beitragen werden, wird als Kennzahl das Fluoreszenzsignal auf der Kr-84 Resonanz, also einer relativen Verstimmung von 0 MHz, untersucht. Dieses ist in guter Näherung proportional zur Anzahl der Atome ohne transversale Geschwindigkeit. In Abb. 4.22 ist das Fluoreszenzsignal der vorgestellten Messungen gegen den Druck nach dem Kapillarsystem dargestellt. Wie in Abschnitt 4.2 erläutert, ist der Druck nach dem Kapillarsystem ein gutes Maß für den Atomfluss durch das Kapillarsystem. Es ist zu erkennen, dass für beide Kapillarsysteme das Fluoreszenzsignal in guter Näherung linear mit dem Druck ansteigt. Im Falle des Array172 wurde bis zu einem Druck von ca. $2 \cdot 10^{-4}$ mbar gemessen. Bei einem Druck im Bereich von 10^{-4} mbar wird es auf einer längeren Strecke zu großen Stoßverlusten kommen. Um das volle Potenzial der VUV-Quelle auszuschöpfen, ist es deshalb entscheidend, durch eine größere Pumpleistung und ein optimiertes Vakuumdesign auch bei hohen Atomflüssen durch die Kapillare akzeptable Drücke auf der Flugstrecke des metastabilen Atomstrahl zu erreichen.

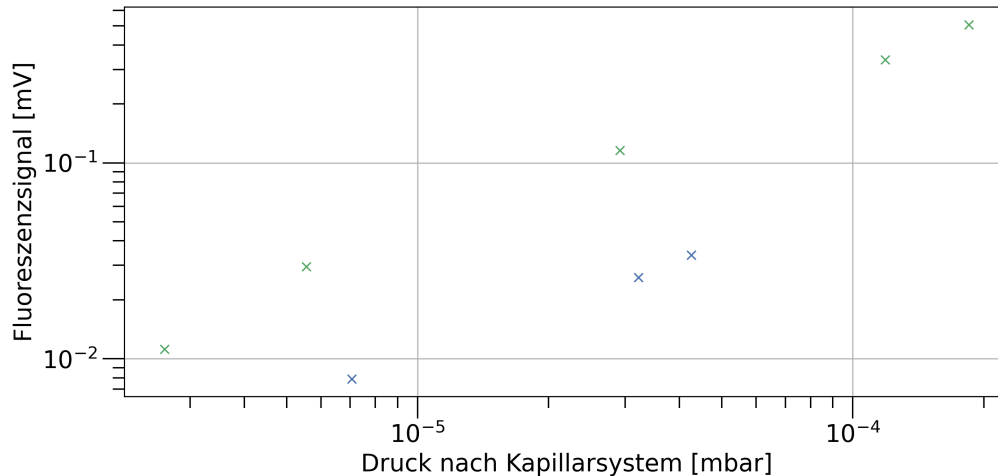


Abb. 4.22: Gemessenes Fluoreszenzsignal bei einer Verstimmung auf der Kr-84 Resonanz der in Abb. 4.19 dargestellten Messungen gegen den Druck nach dem Kapillarsystem für Single165 (blaue Kreuze) und Array172 (grüne Kreuze).

4.3.3 Ergebnisse Messaufbau 2

Bei Messaufbau 2 ist die dem Kapillarausgang am nächsten liegende Messstelle mit 17 cm deutlich weiter entfernt als bei Messaufbau 1. Dafür ist der grundsätzliche Aufbau schon recht nahe an einem typischen Zeeman-Slower Aufbau und es kann zusammen mit den weiter hinten liegenden Messpunkten ein Eindruck auf der gesamten Länge der Flugbahn des Atomstrahls gewonnen werden. Zusätzlich ist es auch möglich, longitudinale Profile zu vermessen. Zunächst wurden transversale Messungen an allen drei Messstellen bei verschiedenen Drücken vor der Kapillare durchgeführt. Diese sind normiert auf den Maximalwert in Abb. 4.23 dargestellt. Die linke Spalte zeigt die Messungen für Glas165 an Messpunkt 1-3 und die rechte Spalte die für Glas1000. Die bei den Messungen aufgezeichneten Drücke sind in Tab. 4.7 aufgelistet. Bei der Messung Glas1000-4 (lila Dreiecke) ist beim dritten Messpunkt um -25 MHz ein plötzlicher Sprung im Messsignal zu erkennen. Dies ist durch ein Problem bei der Laserstabilisierung zu erklären. Insgesamt fällt auf, dass die Verteilungen deutlich schmäler als die im vorherigen Abschnitt vorgestellten Messungen von Messaufbau 1 sind. Dies ist vor allem damit zu erklären, dass vom Messlaserstrahl aufgrund des größeren Abstandes ein kleinerer Raumwinkelbereich des Atomstrahls um die Strahlachse erfasst wird. Mit größer werdendem Abstand bei Messpunkt 2 und 3 werden die Profile erwartungsgemäß noch schmäler. Allerdings ist im Gegensatz zu Messaufbau 1 eine Verbreiterung mit steigendem Druck deutlich sichtbar. Zudem sind bei den tieferen Drücken die Resonanzen der Krypton Isotope Kr-82 und Kr-86 zu erkennbar.

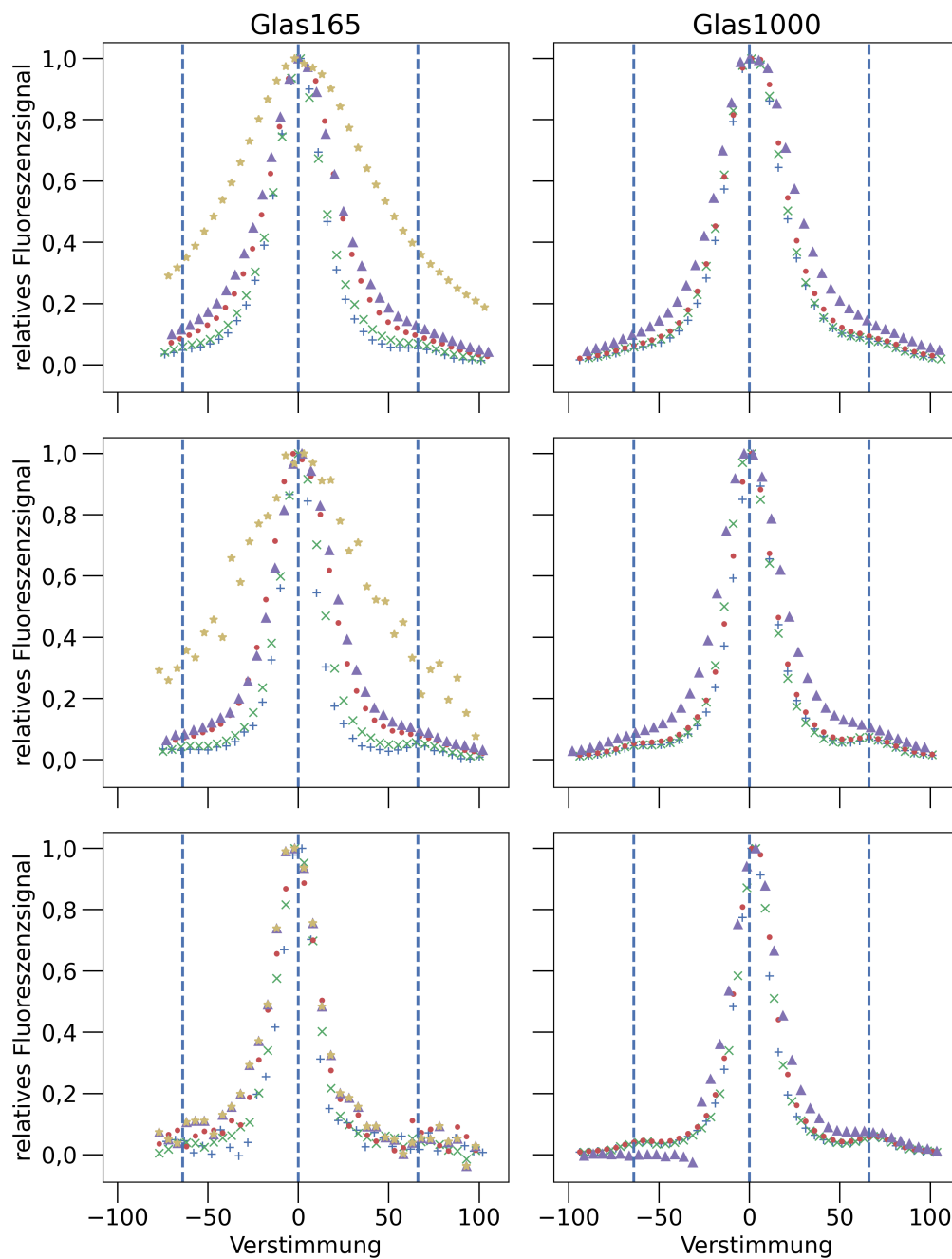


Abb. 4.23: An Messaufbau 2 gemessene Fluoreszenzsignale gegen die relative Verstimmung zur Kr-84 Resonanz an Messpunkt 1-3 (Reihe 1-3) für Glas165 (linke Spalte) und Glas1000 (rechte Spalte). Eingezeichnet sind ebenfalls die Resonanzlinien von Kr-82, Kr-84 und Kr-86 (blau gestrichelt). Die Zuordnung der Symbole und die Parameter der Messungen sind in Tab. 4.7 aufgelistet.

Bezeichnung	Symbol	p_{vor} [mbar]	p_{sensor1} [mbar]	p_{sensor2} [mbar]	p_{sensor3} [mbar]	p_{sensor4} [mbar]
Glas165-1	+	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$9,6 \cdot 10^{-7}$	$4,8 \cdot 10^{-7}$
Glas165-2	$\times$	$2,1 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{-5}$	$1,2 \cdot 10^{-5}$	$5,5 \cdot 10^{-6}$
Glas165-3	$\circ$	$6,2 \cdot 10^{-2}$	$4,0 \cdot 10^{-5}$	$9,5 \cdot 10^{-5}$	$3,4 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-5}$
Glas165-4	$\triangle$	$8,0 \cdot 10^{-2}$	$5,3 \cdot 10^{-5}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$3,8 \cdot 10^{-5}$	$2,2 \cdot 10^{-5}$
Glas165-5	$\star$	$2,5 \cdot 10^{-1}$	$1,6 \cdot 10^{-4}$	$> 2 \cdot 10^{-4}$	$1,7 \cdot 10^{-4}$	$1,0 \cdot 10^{-4}$
Glas1000-1	+	$1,8 \cdot 10^{-1}$	$1,4 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$6,1 \cdot 10^{-6}$
Glas1000-2	$\times$	$1,9 \cdot 10^{-1}$	$1,6 \cdot 10^{-5}$	$3,1 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$7,1 \cdot 10^{-6}$
Glas1000-3	$\circ$	$2,7 \cdot 10^{-1}$	$2,1 \cdot 10^{-5}$	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$2,5 \cdot 10^{-5}$	$9,6 \cdot 10^{-6}$
Glas1000-4	$\triangle$	$5,3 \cdot 10^{-1}$	$4,6 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$6,0 \cdot 10^{-5}$	$2,1 \cdot 10^{-5}$
Glas165-long	$\diamond$	$3,0 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{-5}$	$8,1 \cdot 10^{-6}$

Tab. 4.7: Gemessene Drücke für die in Abb. 4.23 und Abb. 4.26 dargestellten Fluoreszenzmessungen.

Es stellt sich die Frage, ob die beobachtete Aufweitung durch eine Veränderung der Austrittsverteilung des Atomstrahls mit steigendem Druck oder mit Stößen mit dem Hintergrundgas zu erklären ist. Dafür wurden wiederum wie in Messaufbau 1 Simulationen durchgeführt. Da auch hier die tatsächliche Austrittsverteilung unbekannt ist, wurden wieder die drei Austrittsverteilungen verwendet, die schon bei der Untersuchung des Einflusses der Winkelverteilung auf die Druckverteilung in Abb. 4.12 angenommen wurden. Dies sind eine Verteilung für den stoßfreien Fall (grün), eine bei einem effektiven Vordruck von 10 mbar (rot) und eine Kosinus-Verteilung (blau). Zunächst wurde wieder angenommen, dass der gesamte Atomstrahl metastabil ist. Die Ergebnisse der Simulation für alle drei Messpunkte sind als Punkte in Abb. 4.24 (linke Spalte) dargestellt. Als Referenz wurde die Messung Glas165-1 (blaue Pluszeichen) hinzugezogen. Sowohl für die Kapillare als auch für die Kammer danach sollte das stoßfreie Regime gültig sein. Für die Kapillare wurde ein Vordruck $p_{\text{vor}} = 2,3 \cdot 10^{-3}$ mbar gemessen, woraus sich $K n_L = 23$ ergibt. Bei einem Vergleich der Simulationsergebnisse mit der Messung fällt auf, dass die Verläufe um 0 MHz zunächst recht gut übereinstimmen. Insbesondere an Messpunkt 1 sind aber die Simulationsergebnisse für alle drei Austrittsverteilungen deutlich breiter. Insbesondere sind auch die Maxima der anderen Krypton Isotope ausgeprägter. Auch hier ist also wieder deutlich, wie bei den Untersuchungen zu Messaufbau 1, der Einfluss des Anregungsschemas in das metastabile Niveau zu erkennen.

Im nächsten Schritt wurde deshalb die Anregung mit in der Simulation berücksichtigt und ein plausibler Wert für ω gefunden. Gut mit der Messung übereinstimmende Ergebnisse, welche in Abb. 4.12 (rechte Spalte) dargestellt sind, wurden bei einer Breite von $\omega = 2\pi$ 70 MHz erreicht. Insbesondere sind auch die Erhöhungen an

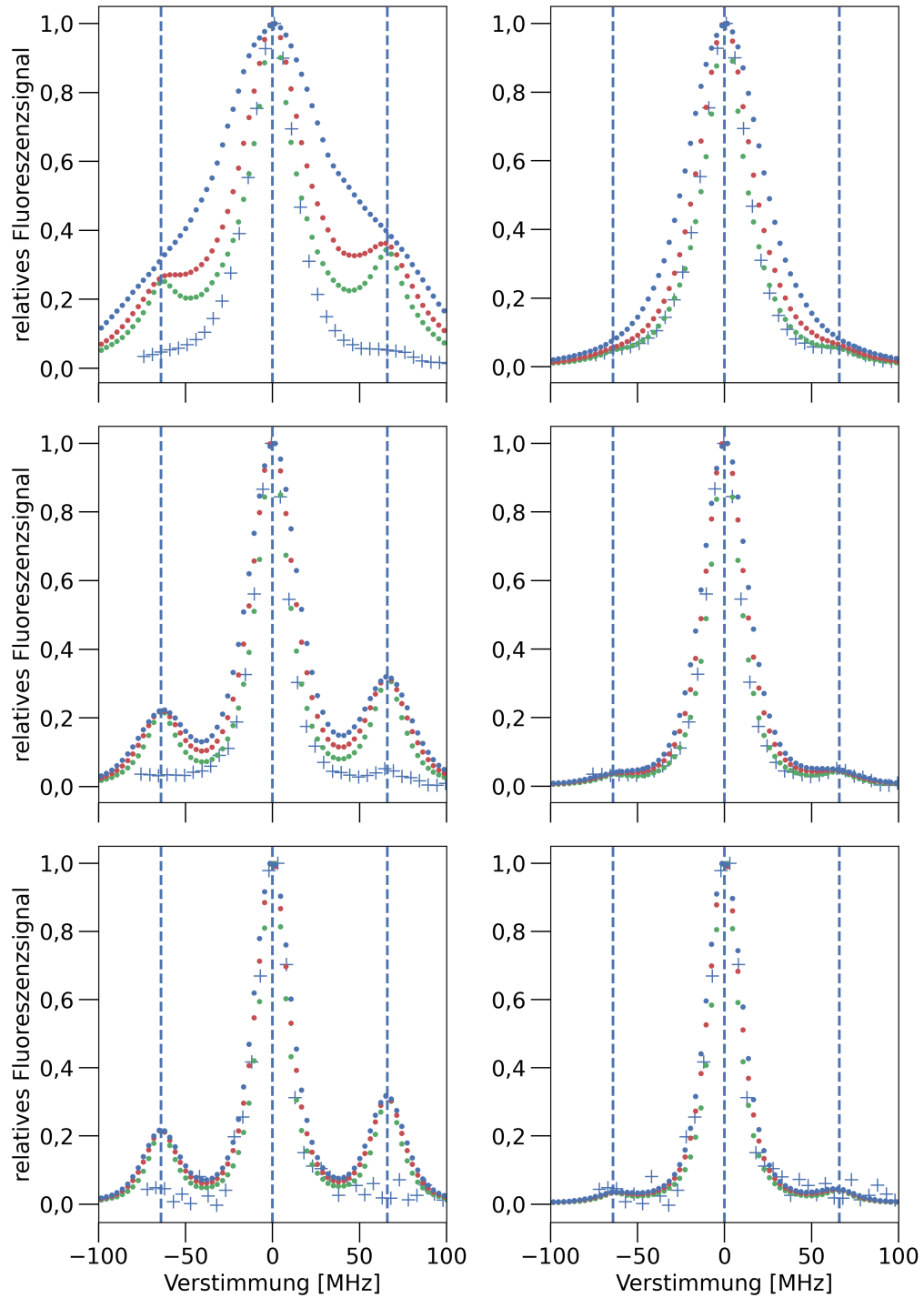


Abb. 4.24: Simulation der transversalen Fluoreszenzmessungen an Messpunkt 1-3 (Zeile 1-3) ohne (linke Spalte) und mit (rechte Spalte) Berücksichtigung der Anregungswahrscheinlichkeit mit einer Breite von $\omega = 2\pi \cdot 70$ MHz für die drei in Abb. 4.11 dargestellten Austrittsverteilungen (Punkte). Zur Referenz ist die Messung Glas165-1 (Pluszeichen) mit eingezeichnet.

den Resonanzen von Kr-82 und Kr-86 vergleichbar mit denen, wie sie bei der Messung zu beobachten sind. Bei kleineren ω -Werten sind diese nicht mehr sichtbar. Aufgrund der räumlichen Selektion sind die größten Unterschiede zwischen den Austrittsverteilungen am ersten Messpunkt beobachtbar. Am besten stimmt die simulierte Fluoreszenzverteilung für die stoßfreie Austrittsverteilung (grün) mit denen der Messung überein. Bei Messpunkt 2 und 3 sind die Übereinstimmungen aller Verteilungen groß. Dies bestätigt insbesondere die in Kapitel 3 aufgestellte These, dass das Modell, welches Atom-Atom-Stöße vernachlässigt, grundsätzlich gültig und beobachtbar ist, wenn wirklich im entsprechenden Regime Messungen durchgeführt werden. Außerdem lässt sich aus den Simulationsergebnissen der Schluss ziehen, dass die beobachtete anfänglich Verbreiterung der Fluoreszenzverteilung in Abb. 4.23 mit steigendem Druck durch eine zu erwartende breiter werdende Austrittsverteilung erklärbar ist. Die starke Aufweitung, welche insbesondere in den Messungen Glas165-5 (gelbe Sternchen) beobachtet wird, erklärt dies aber nicht. Stattdessen liegt die Vermutung nahe, dass hier die Wechselwirkung des Atomstrahls mit dem Hintergrundgas in Form von metastabilem Austausch die Verbreiterung verursacht.

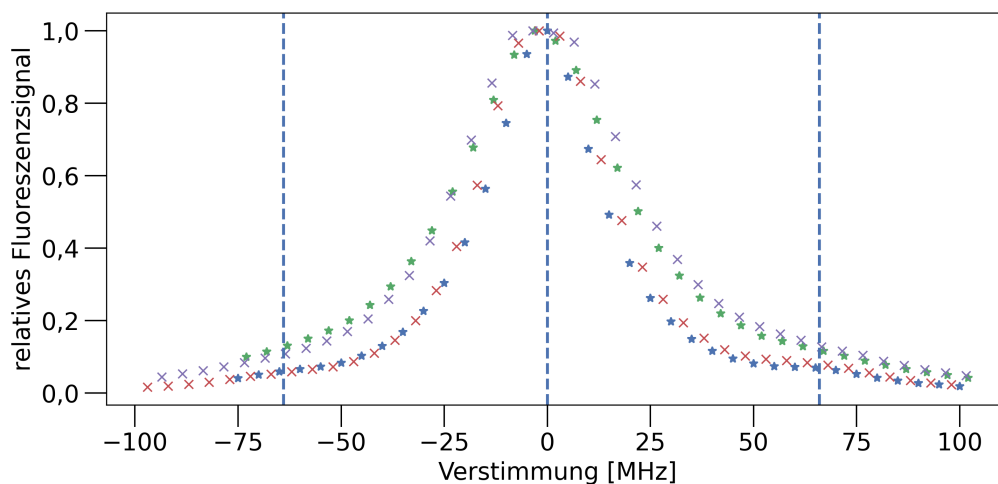


Abb. 4.25: Direkter Vergleich zwischen den gemessenen Fluoreszenzsignalen von Glas165 (Sternchen) und Glas1000 (Kreuze) bei ungefähr gleichen Drücken an Drucksensor 1 von $1,3 \cdot 10^{-5}$ mbar (Messungen Glas165-2 und Glas1000-1) und $5 \cdot 10^{-5}$ mbar (Messungen Glas165-4 und Glas1000-4).

Eine gleiche Beobachtung zeigt sich auch, wenn man die zwei Kapillarsysteme Glas165 und Glas1000 miteinander vergleicht. Diese ähneln sich vor allem bei gleichen Atomflüssen und damit Drücken in der Anregungskammer und nicht bei gleichen Vordrücken. Für einen anschaulichen Vergleich wurden in Abb. 4.23 die Messungen bei jeweils einem ungefähr gleichen Druck in der Anregungskammer

von $1,3 \cdot 10^{-5}$ mbar und $5 \cdot 10^{-5}$ mbar zusammen eingezeichnet. Die Profile haben einen sehr vergleichbaren Verlauf, wobei die von Glas165 (Sternchen) tendenziell ein wenig schmaler sind. Aufgrund der kleineren offenen Fläche und geringeren Durchlaufwahrscheinlichkeit ist der Vordruck bei Glas1000 aber ungefähr eine Größenordnung höher, weshalb trotz des größeren Γ -Wertes mit einer breiteren Austrittsverteilung zu rechnen ist. Dies bestätigt wieder, dass ein größerer Γ -Wert nicht unbedingt von Vorteil für die Strahlformung ist. Wie in Kapitel 3 anhand des Modells gezeigt wurde, welches Atom-Atom-Stöße vernachlässigt, sättigt die Güte der Strahlformung bei Γ -Werten im Bereich von 100 bis 200. Größere Γ -Werte haben keine wesentlich bessere Strahlformung, aber eine deutlich schlechtere Durchlaufwahrscheinlichkeit. Dies bestätigt sich anhand der vorgestellten Messungen auch für höhere Druckbereiche.

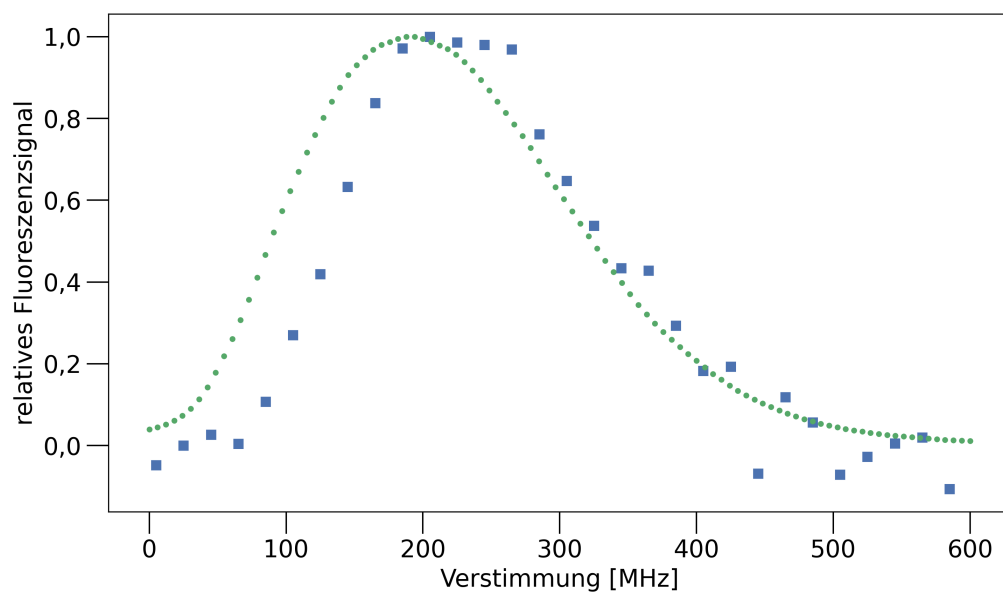


Abb. 4.26: Longitudinales Fluoreszenzmessung Glas165-long (für Drücke s. Tab. 4.7) an Messpunkt 3 (blaue Rechtecke) und Simulation der Messung mit einer stoßfreien Austrittsverteilung aus der Kapillare, unter Berücksichtigung der Anregungswahrscheinlichkeit sowohl aufgrund der Verstimmung mit $\omega = 2\pi \cdot 70$ MHz als auch der Wechselwirkungszeit sowie unter Berücksichtigung von Stoßverlusten mit dem Hintergrundgas.

Zur genaueren Untersuchung der Prozesse, welche von der longitudinalen Geschwindigkeit v_z abhängig sind, wurde am longitudinalen Messpunkt (s. Abb. 4.6 ein longitudinales Profil aufgenommen. Die Messpunkte der Messung Glas165-long sind als blaue Vierecke in Abb. 4.26 eingezeichnet und die Druckparameter der Messung sind in Tab. 4.7 aufgelistet. Die longitudinale Messung wurde auch anhand einer Simulation nachgestellt. Als Austrittsverteilung aus der Kapillare wurde die oben

bestätigte stoßfreie Verteilung verwendet. Da nun Prozesse beobachtbar sind, die von der longitudinalen Geschwindigkeit abhängen, wurde in der Simulation sowohl die Anregungswahrscheinlichkeit aufgrund der Wechselwirkungszeit als auch die Überlebenswahrscheinlichkeit bis zu dem Messpunkt mit einbezogen. Für weitere Erläuterung sei auf Abschnitt 4.3.1 verwiesen. Da es bei den Untersuchungen der Druckverteilung von Messaufbau 2 in Abschnitt 4.2.1 bereits starke Hinweise darauf gab, dass es notwendig ist, die Drücke in der Kapillare mit einzubeziehen, wird hier wieder das gleiche empirische Modell verwendet. Insbesondere bei Teilchen mit einer starken Vorwärtsrichtung kann davon ausgegangen werden, dass sie im Mittel in der Nähe des Eingangs der Kapillare ihren letzten Wandstoß vollziehen. Deshalb wird bei der Berechnung der Überlebenswahrscheinlichkeit angenommen, dass die Teilchen auf der halben Kapillarlänge dem halben Druck vor der Kapillare ausgesetzt sind. Nach dem Ausgang fliegen sie noch 2,5 cm bis zum Zentrum des 819 nm Lasers. Bis hier gilt der Wirkungsquerschnitt der Grundzustandsatome, danach bis zum Messpunkt der für metastabile Atome.

Die Simulation weist in den hohen Verstimmungen und damit Geschwindigkeiten eine gute Übereinstimmung mit der Messung auf. Für kleinere Verstimmungen bis 200 MHz scheint die Simulation das Signal zu überschätzen. Vor allem das verwendete Modell der optischen Anregung könnte eine Erklärung für die Diskrepanz liefern. Zum einen wurde angenommen, dass es keine Sättigung bei der Anregung gibt. Sollte dies aber in den betrachteten Wechselwirkungszeiten zutreffen, würde der Anteil der angeregten Atome in einem Geschwindigkeitsintervall überschätzt werden. Des Weiteren wurde auch die optische Zerstörung des metastabilen Zustandes durch die passenden von der VUV-Plasmalampe ebenfalls emittierten Wellenlängen vernachlässigt. Dies wären insbesondere 760 nm (s. Abb. 4.16). Auch dieser Effekt sollte insbesondere die langsamen Atome betreffen. Eine weitere Erklärung wären zusätzliche Verlustprozesse bei der Wechselwirkung im Atomstrahl.

Der zweite Messzugang zu Druckverlusten besteht über den Abfall des Messsignals bei gleichen Bedingungen über die drei verschiedenen Messpunkte. Hierfür wurden Messwerte auf Kr-84 Resonanz, also die Maximalwerte, an allen drei transversalen Messpunkten für verschiedene Drücke an Drucksensor 1 bestimmt. Um möglichst vergleichbare Bedingungen, insbesondere auch der Leistung der VUV-Plasmalampe zu schaffen, wurden nur Messungen verwendet, die innerhalb eines Zeitraums von drei aufeinanderfolgenden Tagen durchgeführt wurden. Die Messergebnisse sind in Abb. 4.27 als blaue Kreuze gegen den Druck in der Anregungskammer dargestellt. Dieser ist wie oben beschrieben proportional zum Teilchenfluss durch die Kapillare. Mit steigendem Teilchenfluss durch die Kapillare steigt auch der metastabile Fluss, da in dem Bereich noch ausreichend Photonen für die Anregung zur Verfügung

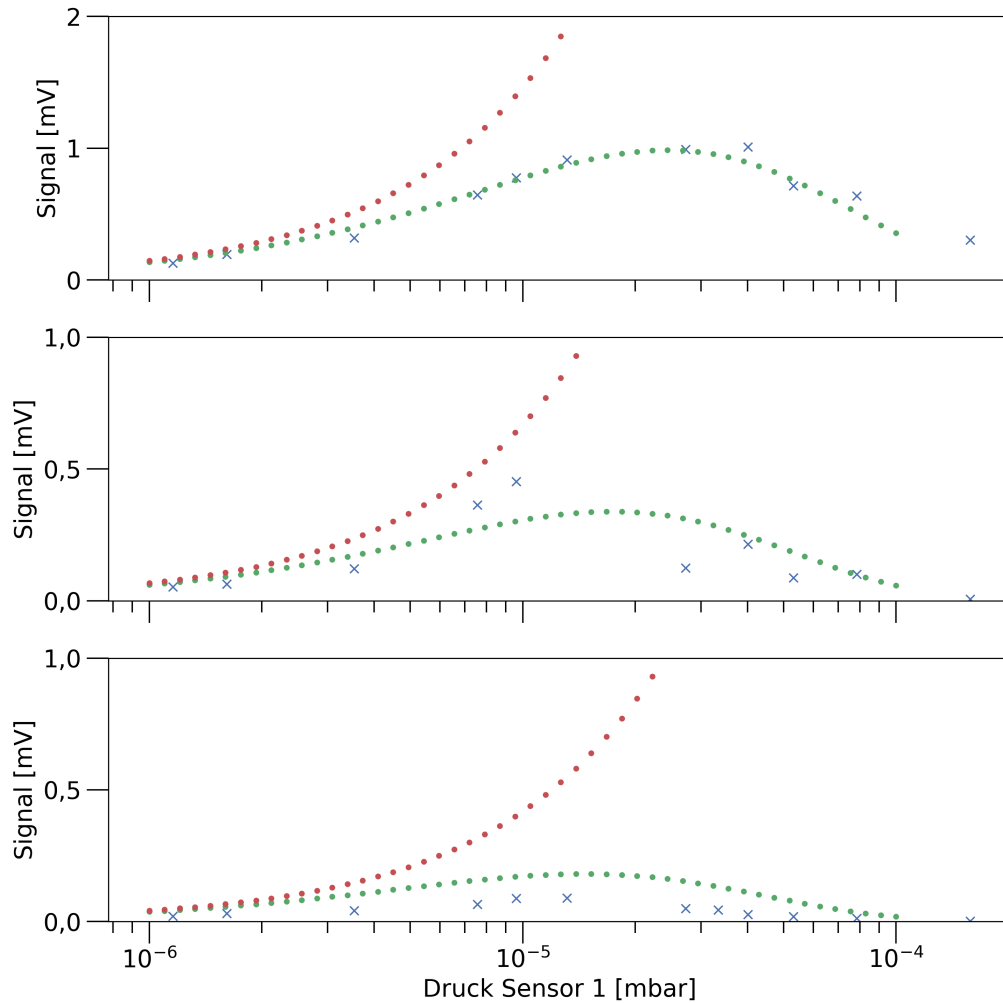


Abb. 4.27: Maximalwert des gemessenen Fluoreszenzsignals an Messaufbau 2 mit Glas165 (blaue Kreuze) gegen den Druck in der Anregungskammer für Messpunkt 1 (oben), Messpunkt 2 (Mitte) und Messpunkt 3 (unten) und Ergebnis der Simulation unter Berücksichtigung von Stoßverlusten bei entsprechendem Druck (grüne Punkte) und unter Vernachlässigung von Stoßverlusten (rote Punkte). Die Anregungseffizienz wurde so gewählt, dass das simulierte Signal mit dem Signal der Messungen an Messpunkt 1 beim niedrigsten Druck bei ca. $1 \cdot 10^{-6}$ mbar übereinstimmt.

stehen. Mit zunehmendem Druck sinkt aber auch die Überlebenswahrscheinlichkeit, was ab einem gewissen Punkt dazu führt, dass der metastabile Fluss wieder absinkt. Je größer die Distanz zum Messpunkt, desto früher sinkt das Signal wieder. Dies ist insbesondere gut an Messpunkt 1 und 3 zu erkennen.

Anhand dieser Messung lässt sich ebenfalls die Simulation gut überprüfen. Da die Anregungswahrscheinlichkeit nicht bekannt ist, wird sie in der Simulation so ge-

wählt, dass das aus der Simulation bestimmte Signal mit dem Messsignal am ersten Messpunkt bei einem Druck von $1 \cdot 10^{-6}$ mbar etwa gleich groß ist. Hier sind viele Unsicherheitsfaktoren, wie die Überlebenswahrscheinlichkeit am geringsten. Des Weiteren wird angenommen, dass die Anregungswahrscheinlichkeit unabhängig vom Teilchenfluss gleich bleibt. Auch die Austrittsverteilung bleibt in der Simulation konstant. Die Simulation wurde durchgeführt bis jeweils $1 \cdot 10^5$ Teilchen den Messpunkt erreichen. Die Ergebnisse unter Berücksichtigung von Stoßverlusten sind in Abb. 4.27 als grüne Punkte dargestellt. Für Messpunkt 1 stimmen die Simulationsergebnisse sehr gut mit dem Verlauf der Messungen überein. Insbesondere bestätigt sich aber die Annahme, dass es noch keine Sättigung bei der Anregung gibt. Auch bei Messpunkt 2 und 3 passt der generelle Verlauf recht gut überein. Allerdings liegt bei der Messung an Messpunkt 2 eine höhere Streuung der Messwerte vor. Bei Messpunkt 3 liegt die Simulation deutlich höher. Ein Aspekt könnte hier sein, dass die Modellierung, wie anhand der longitudinalen Messung sichtbar war, den Beitrag langsamerer Geschwindigkeitsintervalle bis 200 MHz überschätzt. Auch wurde bei den Messungen beobachtet, dass das höchste Signal nicht auf der Strahlachse erreicht wurde. Dies bedeutet, dass der Atomstrahl nicht auf Achse fliegt, was entlang der Wegstrecke zu einer schnelleren Verringerung des metastabilen Flusses um die Hauptachse führt.

Insgesamt beschreibt die Modellierung die vorgestellten transversalen, longitudinalen und Maximalwert Messungen gut. Aus den Messungen kann nun der metastabile Fluss mittels Gl. (4.7) abgeschätzt werden. Exemplarisch wird eine Messung bei einem Druck an Sensor 1 von ca. $1 \cdot 10^{-5}$ mbar betrachtet. Die Halbwertsbreite des Fluoreszenzsignals ist etwa 70 MHz. Mit einer mittleren Geschwindigkeit $v_z = 200 \text{ m s}^{-1}$, einem Durchmesser des Laserstrahls von 2 cm und einer Abbildungseffizienz von $1 \cdot 10^{-3}$ ergibt sich an Messpunkt 1 ein metastabiler Fluss von etwa $4 \cdot 10^9$ Atomen pro Sekunde. An Messpunkt 3 sinkt dieser Fluss aufgrund des kleineren Signals von 0,1 mV und der geringen Halbwertsbreite von 30 MHz auf $2 \cdot 10^8$ Atome pro Sekunde. Unsicherheiten sind hier insbesondere die Abbildungseffizienz und die genaue Geschwindigkeit der Atome und werden insgesamt mit einem Faktor 2 in beide Richtungen abgeschätzt.

Wie mehrfach gezeigt wurde, gibt es deutliche Hinweise darauf, dass die Anregungseffizienz bei den betrachteten Atomflüssen nicht sättigt. Stattdessen begrenzen Stoßverluste mit dem Hintergrundgas den metastabilen Atomfluss. Dies wird insbesondere deutlich, wenn in der Simulation Stoßverluste vernachlässigt werden. Das dann zu erwartenden Signal ist ebenfalls in Abb. 4.27 als rote Punkte dargestellt. Das simulierte Signal ohne Stoßverluste hebt sich ab ca. $3 \cdot 10^{-6}$ mbar deutlich vom Signal mit Stoßverlusten ab. Im Vergleich zu bestehenden ATTA-Anlagen ist das

Pumpensystem vergleichsweise klein dimensioniert. Deshalb ist eine Steigerung der Pumpleistung um eine Größenordnung umsetzbar. Die Ergebnisse in diesem Kapitel deuten darauf hin, dass sich so der metastabile Fluss um ebenfalls eine Größenordnung steigern lässt. Zusammen mit weiteren Verbesserungen, die im Ausblick vorgeschlagen werden, sind sehr große metastabile Flüsse erreichbar.

Fazit und Ausblick

Der zentrale Hebel zur Steigerung des Probendurchsatzes im Vergleich zu State-of-the-Art ATTA Anlagen ist die Verwendung eines optischen Anregungsschemas für die Präparation der Atome in das metastabile Niveau. Die übergeordnete Frage in dieser Arbeit war es, ob ein solcher neuer Anlagentyp bestehend aus einer optischen Anregung in Kombination mit einem Zeeman-Slower hohe Effizienzen erreichen kann. Dafür wurde in dieser Dissertation ein Aufbau zur Erzeugung eines optisch angeregten metastabilen Krypton-Atomstrahls entwickelt, umgesetzt und evaluiert. Aufgrund der vielen teils gegenläufigen Einflussfaktoren zeigt sich, wie entscheidend ein abgestimmtes Design ist, um eine hohe Effizienz zu erreichen. Daher wurde eine Monte-Carlo-Simulation entwickelt, welche die durchgeführten Messungen präzise beschreibt und für zukünftige Optimierungen verwendet werden kann. Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen: Ein neuer ATTA Anlagentyp mit optischer Anregung ist möglich und hat das Potenzial den möglichen Probendurchsatz deutlich zu steigern.

Der Einsatz einer optischen Anregung anstelle einer Gasentladung ermöglicht ein Strahlformungssystem neutraler Art vor der Anregung in den metastabilen Zustand. Aufgrund neuer Fertigungstechniken ist es möglich, kleinste Strukturen und extrem hohe Länge-Breiten Verhältnisse, wie bspw. das untersuchte Kapillarsystem mit einem Kapillardurchmesser von $1\text{ }\mu\text{m}$ und einem Längen-Breiten-Verhältnis $\Gamma = 1000$, herzustellen. Hierfür wurden in dieser Arbeit zunächst Kapillarsysteme ausführlich simuliert und analysiert. Im ersten Teil wurde die Modellierung der Strahlformung mit Kapillaren anhand durchgeführter Test Particle Monte-Carlo-Simulationen mit Γ -Werten zwischen 5 und 1000 simuliert, welche in den charakteristischen Parametern eine extrem große Übereinstimmung mit analytischen und numerischen Rechnungen aus der Literatur zeigen. Es zeigt sich, dass ein größeres Längen-Breiten-Verhältnis zu einer besseren Kollimation führt, dieser Effekt sättigt aber ab $\Gamma \approx 100$. Bei einem Vergleich mit experimentellen Messungen aus der Literatur wird eine deutliche Diskrepanz beobachtet, da die gemessenen Winkelverteilungen deutlich breiter sind als durch Theorie und Simulation vorhergesagt. Zum Teil kann dies, wie in dieser Arbeit durch Erweiterung der Simulation gezeigt wurde, durch Effekte wie die endliche Ausdehnung von Kapillare und Detektor erklärt werden. Für die verbleibende Diskrepanz stellt der Autor die These auf, dass die Länge und Breite als charakte-

ristische Größe für das vorliegende Stoßregime eine zu große Vereinfachung sind und Atom-Atom Stöße schon bei niedrigen Drücken eine Rolle spielen. Wie gezeigt wird, lassen sich die experimentellen Daten mit einem vorgestellten analytischem Modell, welches auch Atom-Atom Stöße miteinbezieht, in Übereinstimmung bringen, wenn ein empirischer Parameter hinzugefügt wird, der effektiv dafür sorgt, dass der Einfluss von Atom-Atom-Stößen höher gewichtet wird.

Im nächsten Teil wurden zwei unterschiedliche experimentelle Aufbauten mit vier verschiedenen Kapillarsystemen bei unterschiedlichen Druckregimen charakterisiert und simuliert. Grundsätzlich führt eine Steigerung des Atomflusses zu einer Steigerung des metastabilen Flusses, solange die Anregungseffizienz auf einem konstanten Level bleibt. Diese Steigerung wird durch Stoßverluste mit Hintergrundgasatomen limitiert, wenn der sich aufbauende Druck zu groß wird. Deshalb wurde der Gasfluss und die entstehenden Druckverteilungen im Vakuumsystem untersucht. Wie anhand von Messungen bestätigt wurde, lässt sich der durch ein Kapillarsystem einstellende Atomfluss anhand der geometrischen Eigenschaften der Kapillaren und dem Druck vor der Kapillare vorhersagen. Die entstehende Druckverteilung in der Vakuumkammer, welcher der Atomstrahl ausgesetzt ist, wurde mithilfe einer Monte Carlo Simulation simuliert und anhand von Messungen validiert. Die in dieser Arbeit verwendete Methodik erlaubt es in Zukunft verschiedene Vakuumsysteme vor der Umsetzung detailliert zu evaluieren.

Im dritten Teil wurde dann mit den zwei experimentellen Aufbauten die vollständige Erzeugung metastabiler Atomstrahlen untersucht. Zur Bestimmung des Flusses und der Geschwindigkeitsverteilung wurden laserinduzierte Fluoreszenzmessungen in verschiedenen Abständen zum Kapillarsystem durchgeführt. Hieraus wurde die transversale Breite der Verteilungen bei unterschiedlichen Drücken bestimmt. Aufgrund ihrer kleineren Strukturen sind die Glas-Kapillaren den verwendeten Stahl-Kapillaren überlegen. Es zeigt sich, wie schon aus den Voruntersuchungen naheliegend, dass der Gewinn durch höhere Längen-Breiten-Verhältnisse sättigt. Sowohl $\Gamma = 165$ als auch $\Gamma = 1000$ führen zu vergleichbaren Strahlen. Da $\Gamma = 165$ einen gleichen Atomfluss bei geringerem Vordruck erreicht und so die Verwendung kleinerer Proben ermöglicht, ist diese Kapillare zu präferieren.

Zudem wurde eine Simulation implementiert, welche die Atomstrahlerzeugung, die Anregung, Translation, Stoßverluste im Vakuumsystem und die Fluoreszenzmessung berücksichtigt. Da sich die Spektren der verschiedenen Krypton-Isotope aufgrund der Dopplerverbreiterung bei der Fluoreszenzmessung überlagern, wurden bei der Simulation verschiedene Isotope berücksichtigt. Im Vergleich mit den durchgeführten Messungen wurden verschiedene Effekte und deren Auswirkung

quantifiziert und eine passende Parametrisierung gefunden. Für den Aufbau mit den Glas-Kapillaren lässt sich die optische Anregung durch eine Lorenz-Verteilung mit einer Halbwertsbreite von etwa 70 MHz beschreiben. Wie anhand der Simulationen gezeigt wird, verbessert sich die Übereinstimmung, wenn bei der Berechnung der Überlebenswahrscheinlichkeit die Wegstrecke in der Kapillare miteinbezogen wird. Insgesamt wurden am zweiten Messaufbau Atomstrahlen mit einem metastabilen Fluss von ca. $4 \cdot 10^9$ Atomen pro Sekunde in einer Entfernung 17 cm und ca. $2 \cdot 10^8$ Atome pro Sekunde in einer Entfernung von 54 cm gemessen.

Aufbauend auf den Ergebnissen dieser Arbeit sind einige Verbesserungen zu erwägen, um die Effizienz weiter zu steigern, von denen einige bereits umgesetzt werden. Ein großes Potenzial bietet eine Laserkühlung in transversaler Richtung kurz nach der Anregung in den metastabilen Zustand. Bei bestehenden ATTA-Experimenten wird hier von einer Steigerung von über zwei Größenordnungen [Che+10] berichtet. Eine Vorkühlung mittels Flüssigstickstoff erhöht zum einen die Anregungseffizienz, da langsame Atome aufgrund der längeren Wechselwirkungsdauer eine höhere Anregungswahrscheinlichkeit besitzen und zum anderen erlaubt es, einen hohen Anteil des Atomstrahls mit einem nachgelagerten relativ kurzen Zeeman-Slower abzubremesen. Eine wichtige Erkenntnis aus den in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen ist, dass aufgrund der hohen Wandstoßzahl im Kapillarsystem schon bei kleinen Länge-Breiten Verhältnissen für eine Vorkühlung das Kapillarsystems selbst gekühlt werden muss. Damit Stoßverluste diese Steigerung nicht wieder eliminieren, sollten die Drücke $1 \cdot 10^{-6}$ mbar nicht übersteigen.

Die Messungen im Rahmen dieser Dissertation deuten darauf hin, dass bei den verwendeten Aufbauten Stoßverluste den metastabilen Atomfluss begrenzen und sich dieser bei einer höheren Pumpleistung deutlich steigern ließe. Eine Möglichkeit hierfür ist der Einsatz von Vakuumpumpen mit größerem Saugvermögen. Würden die bei bestehenden ATTA Anlagen zum Einsatz kommenden 2000 l Turbopumpen verwendet werden, ließe sich die Pumpleistung um circa eine Größenordnung steigern. Für die Entwicklung von Verbesserungen am Vakuumsystem ist die hier verwendete Simulationsmethodik hervorragend geeignet. Alternativ oder ergänzend ist es sinnvoll, die durch die optische Anregung eröffnete Möglichkeit der Kollimation des Atomstrahls vor der Anregung weiter zu verbessern. Da das Kollimationspotential durch ein Kapillarsystem wie oben beschrieben ausgeschöpft ist, bieten sich hier vor allem Pumpstufen an. Eine direkte Möglichkeit wäre der Einsatz von Blenden. Eine weitere vielversprechende Möglichkeit wäre es, nicht nur eine Kapillare zu verwenden, sondern mehrere hintereinander anzuordnen und die Zwischenabschnitte als Pumpstufen zu verwenden. Ein solches System wurde kürzlich für Rubidium demonstriert [Li+19; Li+20]. Bei der Verwendung von Strukturen im μm -Bereich

ließe sich die Wegstrecke durch die gesamte Kaskade auf wenige Zentimeter begrenzen, wodurch hohe Drücke und damit hohe Atomflüsse möglich wären. Da der Möglichkeitsraum groß ist, bieten sich auch hier wieder Simulationen an. Eine gute Abschätzung wird man vermutlich mit Test Particle Monte Carlo erhalten. Da die angestrebten Druckbereiche für so eine Konfiguration aber hoch sind, wäre es sehr aufschlussreich Atom-Atom-Stöße zu berücksichtigen, wie es z. B. bei Direct Simulation Monte Carlo (DSMC) der Fall ist.

Welche Maßnahmen umgesetzt werden, hängt vom Anwendungsfall ab. Langfristig ist es bei der Entwicklung sinnvoll, vor allem auch die Robustheit und einfache Realisierbarkeit einer ATTA-Anlage zu priorisieren. Hier können Kapillarsysteme eine wichtige Rolle spielen, weil sie passiv arbeiten und relativ kostengünstig sind. Zusammen mit den vorgeschlagenen Verbesserungen zeigen die Ergebnisse dieser Arbeit, dass das Konzept einer ATTA-Anlage mit optischer Anregung eine sehr hohe Effizienz und damit kurze Messzeiten erreichen kann. Damit liefert diese Dissertation einen Beitrag zu demonstrieren, wie ATTA Anlagen verbessert werden können, um in Zukunft ein größeres Anwendungsfeld zu ermöglichen.

Literatur

- [AM86] S Adamson und J. F. McGilp. “Measurement of gas flux distributions from single capillaries using a modified, uhv-compatible ion gauge, and comparison with theory”. en. In: *Vacuum* 36.4 (Apr. 1986), S. 227–232 (zitiert auf Seite 50).
- [Ady14] Márton Ady. *Molflow User Guide*, <https://molflow.web.cern.ch>. 2014 (zitiert auf Seite 20).
- [Ady19] Marton Ady. *Molflow roadmap for 2020*, <https://molflow.web.cern.ch>. Nov. 2019 (zitiert auf Seite 25).
- [Ady16] Marton Ady. *The algorithm behind Molflow 2.6*, <https://molflow.web.cern.ch>. 2016 (zitiert auf Seite 23).
- [Apr+18] E. Aprile, D. Daw, Z. Greene, G. Plante und T. Zhu. “Atom trap trace analysis of krypton in xenon for the XENON Dark Matter Project”. en. In: *Journal of Instrumentation* 13.10 (Okt. 2018), P10018–P10018 (zitiert auf Seite 2).
- [Apr+13] E. Aprile, T. Yoon, A. Loose, L. W. Goetzke und T. Zelevinsky. “An atom trap trace analysis system for measuring krypton contamination in xenon dark matter detectors”. In: *Review of Scientific Instruments* 84.9 (Sep. 2013), S. 093105 (zitiert auf Seite 2).
- [Bar11] Hans-Jochen Bartsch. *Taschenbuch mathematischer formeln für ingenieurinnen und naturwissenschaftlerinnen mit zahlreichen beispielen und umfassenden integritabellen*. Hrsg. von Michael Sachs. 22., neu bearb. Aufl. Fachbuchverl. Leipzig im Hanser Verl., 2011 (zitiert auf Seite 29).
- [Bir94] G. A. Bird. *Molecular Gas Dynamics and the Direct Simulation of Gas Flows*. en. Clarendon Press, 1994 (zitiert auf Seite 20).
- [Buc+93] S. J. Buckman, R. J. Gulley, M. Moghbelalhossein und S. J. Bennett. “Spatial profiles of effusive molecular beams and their dependence on gas species”. en. In: *Measurement Science and Technology* 4.10 (1993), S. 1143 (zitiert auf den Seiten 49–51).
- [Cer88] Carlo Cercignani. *The Boltzmann Equation and Its Applications*. en. Applied Mathematical Sciences. New York: Springer-Verlag, 1988 (zitiert auf den Seiten 14, 17).
- [CRU06] Saptarishi Chaudhuri, Sanjukta Roy und C. S. Unnikrishnan. “Realization of an intense cold Rb atomic beam based on a two-dimensional magneto-optical trap: Experiments and comparison with simulations”. In: *Physical Review A* 74.2 (Aug. 2006), S. 023406 (zitiert auf den Seiten 4, 87).

- [Che+01] C. Y. Chen, K. Bailey, Y. M. Li et al. “Beam of metastable krypton atoms extracted from a rf-driven discharge”. In: *Review of Scientific Instruments* 72.1 (Jan. 2001), S. 271–272 (zitiert auf Seite 3).
- [Che+99] C. Y. Chen, Y. M. Li, K. Bailey et al. “Ultrasensitive Isotope Trace Analyses with a Magneto-Optical Trap”. en. In: *Science* 286.5442 (Nov. 1999). Publisher: American Association for the Advancement of Science Section: Report, S. 1139–1141 (zitiert auf Seite 2).
- [Che+10] C.-F. Cheng, W. Jiang, G.-M. Yang et al. “An efficient magneto-optical trap of metastable krypton atoms”. In: *Review of Scientific Instruments* 81.12 (Dez. 2010), S. 123106 (zitiert auf den Seiten 3, 117).
- [Cla30] P. Clausing. “Über die Strahlformung bei der Molekularströmung”. de. In: *Zeitschrift für Physik* 66.7 (Juli 1930), S. 471–476 (zitiert auf Seite 16).
- [Cla32] P. Clausing. “Über die Strömung sehr verdünnter Gase durch Röhren von beliebiger Länge”. en. In: *Annalen der Physik* 404.8 (1932), S. 961–989 (zitiert auf Seite 14).
- [CKL04] Philippe Collon, Walter Kutschera und Zheng-Tian Lu. “Tracing Noble Gas Radionuclides in the Environment”. In: *Annual Review of Nuclear and Particle Science* 54.1 (2004). _eprint: <https://doi.org/10.1146/annurev.nucl.53.041002.110622>, S. 39–67 (zitiert auf Seite 94).
- [Dae11] Heiner Daerr. “Optische Systeme und Konzeptionen für die Ultraspurenanalyse von Krypton-Isotopen”. Phd Thesis. University of Hamburg, 2011 (zitiert auf Seite 96).
- [Dae+11] Heiner Daerr, Markus Kohler, Peter Sahling et al. “A novel vacuum ultra violet lamp for metastable rare gas experiments”. en. In: *Review of Scientific Instruments* 82.7 (Juli 2011), S. 073106 (zitiert auf Seite 3).
- [Dak+18] M. A. Dakka, G. Tsiminis, R. D. Glover et al. “Laser-Based Metastable Krypton Generation”. en. In: *Physical Review Letters* 121.9 (Aug. 2018) (zitiert auf Seite 3).
- [DeM57] W. C. DeMarcus. *THE PROBLEM OF KNUDSEN FLOW. PART III. SOLUTIONS FOR ONE-DIMENSIONAL SYSTEMS. (Addendum)*. English. Techn. Ber. K-1302(Pt. 3(Add.)) Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Tenn., Sep. 1957 (zitiert auf Seite 18).
- [Dem11] Wolfgang Demtröder. *Laserspektroskopie 1 Grundlagen*. de. 6., aktualisierte Aufl. OCLC: 756371794. Berlin: Springer, 2011 (zitiert auf Seite 95).
- [Dem13] Wolfgang Demtröder. *Laserspektroskopie 2 Experimentelle Techniken*. de. 6., neu bearbeitete und aktualisierte Auflage. OCLC: 840900613. Berlin Heidelberg: Springer Spektrum, 2013 (zitiert auf Seite 66).
- [Die+98] K. Dieckmann, R. J. C. Spreeuw, M. Weidemüller und J. T. M. Walraven. “Two-dimensional magneto-optical trap as a source of slow atoms”. In: *Physical Review A* 58.5 (Nov. 1998), S. 3891–3895 (zitiert auf Seite 4).

- [Dör+13] Sören Dörscher, Alexander Thobe, Bastian Hundt et al. “Creation of quantum-degenerate gases of ytterbium in a compact 2D-/3D-magneto-optical trap setup”. en. In: *Review of Scientific Instruments* 84.4 (Apr. 2013), S. 043109 (zitiert auf Seite 4).
- [Dre+17] G. Drexlin, F. Harms, A. Jansen et al. “Calculations and TPMC simulations of the reduction of radioactive decays of a noble gas by cryo-panels”. en. In: *Vacuum* 138 (Apr. 2017), S. 165–172 (zitiert auf Seite 76).
- [Ebs+18] Sven Ebser, Arne Kersting, Tim Stöven et al. “³⁹Ar dating with small samples provides new key constraints on ocean ventilation”. en. In: *Nature Communications* 9.1 (Nov. 2018), S. 5046 (zitiert auf Seite 2).
- [GW60] J. A. Giordmaine und T. C. Wang. “Molecular Beam Formation by Long Parallel Tubes”. In: *Journal of Applied Physics* 31.3 (März 1960), S. 463–471 (zitiert auf Seite 18).
- [Jia+12] W. Jiang, K. Bailey, Z. -T. Lu et al. “An atom counter for measuring ⁸¹Kr and ⁸⁵Kr in environmental samples”. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 91 (Aug. 2012), S. 1–6 (zitiert auf den Seiten 2, 3).
- [Jia+20] Wei Jiang, Shui-Ming Hu, Zheng-Tian Lu, Florian Ritterbusch und Guo-min Yang. “Latest development of radiokrypton dating – A tool to find and study paleogroundwater”. en. In: *Quaternary International*. Groundwater and global paleoclimate signals 547 (Mai 2020), S. 166–171 (zitiert auf Seite 2).
- [Jou18] Karl Jousten, Hrsg. *Handbuch Vakuumtechnik*. de. 12., neu bearbeitete Auflage. Springer Reference Technik. OCLC: 1041473004. Wiesbaden: Springer Vieweg, 2018 (zitiert auf den Seiten 9, 10, 18, 20, 50, 54, 55, 87).
- [KNS05] Katsumi Katoh, Nobuo Nishimiya und Masao Suzuki. “Analysis of hyperfine structures and isotope shifts of Kr by saturated Absorption spectroscopy.” In: (2005) (zitiert auf Seite 94).
- [Knu09] Martin Knudsen. “Die Gesetze der Molekularströmung und der inneren Reibungsströmung der Gase durch Röhren”. en. In: *Annalen der Physik* 333.1 (1909), S. 75–130 (zitiert auf den Seiten 14, 18).
- [Koh11] Markus Kohler. “Vakuum-Ultra-Violette-Lichtquelle und Konzeptionen für die Ultrapurenanalyse von seltenen Kryptonisotopen”. Phd Thesis. University of Hamburg, 2011 (zitiert auf den Seiten 3, 68, 72, 97).
- [KT95] D. E. Kuhl und R. G. Tobin. “On the design of capillary and effusive gas dosers for surface science”. en. In: *Review of Scientific Instruments* 66.4 (Apr. 1995), S. 3016–3020 (zitiert auf Seite 50).
- [Li+19] Chao Li, Xiao Chai, Bochao Wei et al. “Cascaded collimator for atomic beams traveling in planar silicon devices”. en. In: *Nature Communications* 10.1 (Dez. 2019), S. 1831 (zitiert auf Seite 117).
- [Li+20] Chao Li, Bochao Wei, Xiao Chai et al. “Robust characterization of microfabricated atomic beams on a six-month time scale”. en. In: *Physical Review Research* 2.2 (Mai 2020), S. 023239 (zitiert auf Seite 117).

- [LS66] R. M. Logan und R. E. Stickney. “Simple Classical Model for the Scattering of Gas Atoms from a Solid Surface”. en. In: *The Journal of Chemical Physics* 44.1 (Jan. 1966), S. 195–201 (zitiert auf den Seiten 54, 55).
- [Loo+86] H. H. Loosli, M. Möll, H. Oeschger und U. Schotterer. “Ten years low-level counting in the underground laboratory in Bern, Switzerland”. en. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 17.5 (Nov. 1986), S. 402–405 (zitiert auf Seite 1).
- [LP05] H.H. Loosli und R. Purtschert. “Rare Gases”. en. In: *Isotopes in the Water Cycle: Past, Present and Future of a Developing Science*. Hrsg. von Pradeep K. Aggarwal, Joel R. Gat und Klaus F.O. Froehlich. Dordrecht: Springer Netherlands, 2005, S. 91–96 (zitiert auf Seite 1).
- [Lu+14] Z. -T. Lu, P. Schlosser, W. M. Smethie et al. “Tracer applications of noble gas radionuclides in the geosciences”. In: *Earth-Science Reviews* 138 (Nov. 2014), S. 196–214 (zitiert auf den Seiten 1, 2).
- [Luc13] Cyril Bernard Lucas. *Atomic and Molecular Beams: Production and Collimation*. en. CRC Press, Dez. 2013 (zitiert auf den Seiten 9, 11, 14, 15, 17, 18, 42, 43, 49, 59).
- [LL95] A. I. Ludin und B. E. Lehmann. “High-resolution diode-laser spectroscopy on a fast beam of metastable atoms for detecting very rare krypton isotopes”. en. In: *Applied Physics B Lasers and Optics* 61.5 (Nov. 1995), S. 461–465 (zitiert auf Seite 94).
- [Mal07] Oleg B. Malyshev. “Characterisation of a turbo-molecular pumps by a minimum of parameters”. en. In: *Vacuum. Proceedings of the European Vacuum Conference (EVC-9)* 81.6 (Feb. 2007), S. 752–758 (zitiert auf Seite 76).
- [Mal20] Oleg B. Malyshev. *Vacuum in Particle Accelerators: Modelling, Design and Operation of Beam Vacuum Systems*. en. John Wiley & Sons, Feb. 2020 (zitiert auf den Seiten 20, 28).
- [Met01] Harold J. Metcalf. *Laser Cooling and Trapping*. Englisch. 1st ed. 1999. Corr. 2nd printing 2001. New York: Springer, 2001 (zitiert auf den Seiten 3, 96).
- [MTL07] Amitabh Mohan, Robert V. Thompson und Sudarshan K. Loyalka. “Efficient numerical solution of the Clausing problem”. In: *Journal of Vacuum Science & Technology A* 25.4 (Juni 2007), S. 758–762 (zitiert auf den Seiten 17, 36, 37).
- [OK70] Donald R. Olander und Valerie Kruger. “Molecular Beam Sources Fabricated from Multichannel Arrays. III. The Exit Density Problem”. en. In: *Journal of Applied Physics* 41.7 (Juni 1970), S. 2769–2776 (zitiert auf den Seiten 15, 16, 18, 42).
- [PBW02] D. Porcelli, C. J. Ballentine und R. Wieler. “An Overview of Noble Gas Geochemistry and Cosmochemistry”. en. In: *Reviews in Mineralogy and Geochemistry* 47.1 (Jan. 2002). Publisher: GeoScienceWorld, S. 1–19 (zitiert auf Seite 1).

- [Pur+21] R. Purtschert, R. Yokochi, W. Jiang et al. “Underground production of ^{81}Kr detected in subsurface fluids”. en. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 295 (Feb. 2021), S. 65–79 (zitiert auf Seite 1).
- [RTT05] D Rader, W Trott und J Torczynski. *Measurements of Thermal Accommodation Coefficients*. 2005 (zitiert auf den Seiten 54, 55).
- [Rit14] Florian Ritterbusch. “Dating of groundwater with atom trace of analysis of ^{39}Ar ”. English. Phd Thesis. Heidelberg, Univ., Diss., 2014, 2014 (zitiert auf Seite 66).
- [Rug+00] F Rugamas, D Roundy, G Mikaelian et al. “Angular profiles of molecular beams from effusive tube sources: I. Experiment”. en. In: *Measurement Science and Technology* 11.12 (Dez. 2000), S. 1750–1765 (zitiert auf den Seiten 47–50, 54, 61, 63).
- [San86] Donald J. Santeler. “New concepts in molecular gas flow”. In: *Journal of Vacuum Science & Technology A* 4.3 (Mai 1986). Publisher: American Vacuum Society, S. 338–343 (zitiert auf Seite 18).
- [SBS01] Oleg V. Sazhin, Sergei F. Borisov und Felix Sharipov. “Accommodation coefficient of tangential momentum on atomically clean and contaminated surfaces”. In: *Journal of Vacuum Science & Technology A* 19.5 (Sep. 2001), S. 2499–2503 (zitiert auf Seite 55).
- [Sch18] Michael Schoeppner. “Detecting Clandestine Reprocessing Activities in the Middle East”. In: *Science & Global Security* 26.1 (Jan. 2018), S. 3–19 (zitiert auf Seite 1).
- [Sen+15] Ruwan Senaratne, Shankari V. Rajagopal, Zachary A. Geiger et al. “Effusive atomic oven nozzle design using an aligned microcapillary array”. In: *Review of Scientific Instruments* 86.2 (Feb. 2015), S. 023105 (zitiert auf Seite 59).
- [Smo10] M. v Smoluchowski. “Zur kinetischen Theorie der Transpiration und Diffusion verdünnter Gase”. In: *Annalen der Physik* 338.16 (Jan. 1910), S. 1559–1570 (zitiert auf Seite 16).
- [Sue96] Yusuke Suetsugu. “Application of the Monte Carlo method to pressure calculation”. en. In: *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films* 14.1 (Jan. 1996), S. 245–250 (zitiert auf Seite 28).
- [Tie+09] T. G. Tiecke, S. D. Gensemer, A. Ludewig und J. T. M. Walraven. “High-flux two-dimensional magneto-optical-trap source for cold lithium atoms”. en. In: *Physical Review A* 80.1 (Juli 2009) (zitiert auf Seite 4).
- [Vas+12] Wim Null Vassen, Claude Cohen-Tannoudji, Michèle Leduc et al. “Cold and trapped metastable noble gases”. en. In: *Reviews of Modern Physics* 84.1 (Feb. 2012). arXiv: 1110.1361, S. 175–210 (zitiert auf Seite 39).
- [Wel+10] J. Welte, F. Ritterbusch, I. Steinke et al. “Towards the realization of atom trap trace analysis for ^{39}Ar ”. en. In: *New Journal of Physics* 12.6 (2010), S. 065031 (zitiert auf Seite 2).

- [Woe+19] Pablo Woelk, Carsten Sieveke, Ergin Simsek und Markus Kohler. “A 2D-MOT with metastable Krypton: An evaluation”. In: 83. *Frühjahrstagung der DPG*. Rostock, März 2019 (zitiert auf Seite 4).
- [YTH06] Kyoji Yamamoto, Hideki Takeuchi und Toru Hyakutake. “Characteristics of reflected gas molecules at a solid surface”. In: *Physics of Fluids* 18.4 (Apr. 2006), S. 046103 (zitiert auf Seite 55).
- [Yan+13] G.-M. Yang, C.-F. Cheng, W. Jiang et al. “Analysis of ^{85}Kr : a comparison at the 10^{-14} level using micro-liter samples”. en. In: *Scientific Reports* 3 (Apr. 2013), S. 1596 (zitiert auf Seite 1).
- [YYD02] L Young, D Yang und R W Dunford. “Optical production of metastable krypton”. en. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 35.13 (Juli 2002), S. 2985–2992 (zitiert auf den Seiten 39, 87).
- [Zap+20] J. C. Zappala, D. Baggenstos, C. Gerber et al. “Atmospheric ^{81}Kr as an Integrator of Cosmic-Ray Flux on the Hundred-Thousand-Year Time Scale”. en. In: *Geophysical Research Letters* 47.3 (2020), e2019GL086381 (zitiert auf den Seiten 1, 2).
- [Zug66] Zugenmaier. “Zur Theorie der Molekularstrahlerzeugung mit Hilfe zylindrischer Rohre”. In: *Zeitschrift für angewandte Physik* 20.2 (1966), S. 184–188 (zitiert auf Seite 18).

Eidesstattliche Versicherung / Declaration on oath

Hiermit versichere ich an Eides statt, die vorliegende Dissertationsschrift selbst verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel und Quellen benutzt zu haben.

Die eingereichte schriftliche Fassung entspricht der auf dem elektronischen Speichermedium.

Die Dissertation wurde in der vorgelegten oder einer ähnlichen Form nicht schon einmal in einem früheren Promotionsverfahren angenommen oder als ungenügend beurteilt.

Hamburg, den 4. September 2021

Unterschrift der Doktorandin / des Doktoranden

