

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit

Im Studiengang Physik

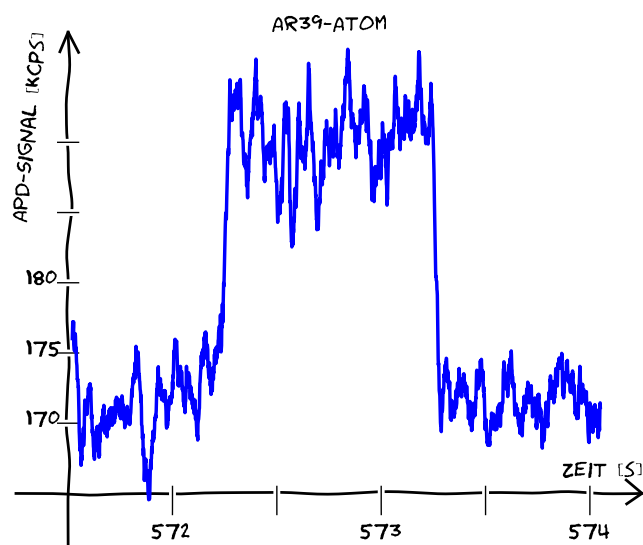
vorgelegt von

Sven Ebser

geboren in Bad Mergentheim

2012

Optimierung und Stabilisierung von ^{39}Ar -ATTA
bis hin zur erstmaligen Anwendung auf die
Datierung natürlicher Wasserproben



Die Diplomarbeit wurde von Sven Ebser

ausgeführt am

Kirchhoff-Institut für Physik

unter der Betreuung von

Herrn Prof. Dr. M. K. Oberthaler

Optimierung und Stabilisierung von ^{39}Ar -ATTA bis hin zur erstmaligen Anwendung auf die Datierung natürlicher Wasserproben

Atom Trap Trace Analysis (ATTA) für ^{39}Ar am Kirchhoff-Institut für Physik in Heidelberg ist eine auf Laser-Kühlung basierende Zählmethode für das seltene Argon-Isotop ^{39}Ar mit einer atmosphärischen relativen Häufigkeit von 8.1×10^{-16} . Aufgrund seiner Halbwertszeit von 269 a ist es ideal zur Datierung von Wasser- und Eisproben im Bereich von 50 bis 1000 Jahren geeignet.

Diese Diplomarbeit fasst die Aktivitäten am ATTA-Experiment im Jahr 2012 zusammen. Neben einer umfangreichen Analyse des Atomstrahls wurden Werkzeuge zur dauerhaften Charakterisierung und Überwachung der Apparatur entwickelt. Mit deren Hilfe konnte durch Optimierung der transversalen und longitudinalen Kühlung sowie der magneto-optischen Falle (MOT) eine Steigerung der ^{39}Ar -Zählrate einer atmosphärischen Probe um einen Faktor 7 auf 4.1(3) Atome/h erzielt werden. Ein Beitrag zur Zählrate aufgrund von Kontamination durch Messungen mit angereicherten Proben konnte auf unter 0.3 Atome/h eingeschränkt werden. Zudem wurden erhebliche Fortschritte in der Stabilität der Zählrate erreicht. In einer Langzeitmessung über 12 h konnte eine Poisson-Verteilung für eine angereicherte Probe gezeigt werden. Eine atmosphärische Referenzmessung über insgesamt 48 h verteilt über 2 Wochen zur Kalibrierung des modernen Standards folgte ebenfalls einer Poisson-Verteilung. Abschließend wurde erstmals erfolgreich ATTA für ^{39}Ar angewendet, indem zwei natürliche Wasserproben auf 377(66) und 360(68) Jahre datiert wurden.

Optimisation and stabilisation of ^{39}Ar -ATTA up to and including the first application to dating natural water samples

Atom Trap Trace Analysis (ATTA) of ^{39}Ar at the Kirchhoff-Institute for Physics in Heidelberg is a laser-based counting method for the rare argon isotope ^{39}Ar with an atmospheric abundance of 8.1×10^{-16} . Due to its half-life of 269 a it is ideal for dating water and ice samples within the range from 50 to 1000 years.

This diploma thesis summarises the activities at the ATTA-experiment in 2012. Besides an extensive analysis of the atomic beam, tools for permanent characterisation and monitoring of the apparatus were developed. By optimising the transversal and longitudinal cooling as well as the magneto-optical trap (MOT) an increase of the ^{39}Ar -counting rate for an atmospheric sample by a factor of 7 up to 4.1(3) atoms/h was possible. A contribution to the counting rate based on contamination by measurements with enriched samples could be limited to 0.3 atoms/h. Furthermore, the stability of the counting rate was significantly improved. A long-term measurement over 12 h showed a Poissonian behaviour for an enriched sample. The statistics of an atmospheric reference measurement over in total 48 h spread over 2 weeks for calibrating the modern standard could also be demonstrated to follow a Poisson distribution. Finally, ATTA for ^{39}Ar was the first time used successfully by dating two natural water samples to 377(66) and 360(68) years.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	9
2	Grundlagen	13
2.1	Eigenschaften von Argon	13
2.2	Experimenteller Aufbau	16
3	Atomstrahl-Diagnostik	25
3.1	Grundlegendes zur Methodik	25
3.2	Geschwindigkeitsverteilungen direkt hinter der Quelle	27
3.2.1	Transversale Geschwindigkeitsverteilung	28
3.2.2	Longitudinale Geschwindigkeitsverteilung	29
3.3	Absorptions-Monitoring	31
3.4	Transversale Geschwindigkeitsverteilungen nach der Kollimation	33
3.5	Atomstrahl-Analyse-Tool	40
3.6	MOT-Fluoreszenz-Tool	42
3.6.1	MOT-Fluoreszenz und MOT-Laderate	44
3.6.2	Abkühlprozess der Quelle	47
3.6.3	Optimierung der ZSL-Parameter	47
4	Statistik der ^{39}Ar-Zählrate	53
4.1	Statistik I: Poisson-Verteilung	54
4.2	Rückpumper	58
4.3	Optimierung der MOT	61
4.4	Dynamischer Bereich der ^{39}Ar -Zählrate	63
4.5	Statistik II: Zeitliche Schwankungen	65
4.5.1	Allan-Varianz	67
4.5.2	Simulation und Interpretation der Allan-Varianz	69
4.6	Langzeitmessung	74
4.7	Kontamination und Nullmessung	77
5	Erstmalige Datierung einer natürlichen Wasserprobe mit ^{39}Ar-ATTA	83
6	Zusammenfassung und Ausblick	87
A	Anhang	91
A.1	Detailliertes Übergangsschema für ^{40}Ar	91
A.2	Frequenzen des Laser-Systems	92

B Danksagungen	93
C Literaturverzeichnis	95

1 Einleitung

Wasser, das Leben spendende Element auf unserem blauen Planeten, bedeckt mehr als $2/3$ der Erdoberfläche. Der Mensch nutzt es industriell und in der Landwirtschaft in einem gewaltigen Ausmaß und greift so stark in die Umwelt ein. In Zeiten immer knapper werdender Wasserressourcen spielt das Wissen über Süßwasserkreisläufe sowie Süßwasserreservoirs und den anthropogenen Umwelteinfluss auf diese bei der Wasserversorgung eine wichtige Rolle. Darüber hinaus ist das Verständnis von Wasserkreisläufen in den Ozeanen entscheidend für die Erforschung und Vorhersage des Klimawandels. Hierfür müssen realistische Modelle für die komplexen Transport- und Mischungsprozesse in der Umwelt entwickelt werden. Eis- und Wasserarchive können als Quelle für Klimadaten der Vergangenheit genutzt werden. Eine bisher nur schwer bis gar nicht zu ermittelnde Information ist dabei das Alter der Probe. Ein sehr wichtiges Werkzeug der Umweltphysik und besonders der Paläoklimatologie ist die Analyse von Radioisotopen zur Datierung unterschiedlichster Proben. Solange die Probe in Kontakt mit der Atmosphäre ist, stellt sich ein konstantes Isotopenverhältnis ein. Sobald sie von der Atmosphäre abgeschlossen wird, zerfallen die instabilen Isotope exponentiell mit der Zeit und das Verhältnis zu den stabilen Isotopen verändert sich. Durch Analyse dieser Verhältnisse kann der Zeitpunkt des letzten Kontakts mit der Atmosphäre bestimmt werden. Dabei legt die Halbwertszeit des analysierten Isotops das zugängliche Zeitfenster fest. Es erstreckt sich von ca. $0.1 T_{1/2}$ bis $4 T_{1/2}$. Die meisten Zeiträume werden durch ein oder mehrere Tracer abgedeckt (Abb. 1.1), jedoch gibt es zwischen 50 und 1000 Jahren in der Vergangenheit eine Lücke, die von den bisher üblichen Isotopen nicht abgedeckt wird. Mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 269 \text{ a}$ [1] schließt ^{39}Ar perfekt diese Lücke zwischen den beiden routinemäßig gemessenen Isotopen ^3H und ^{14}C .

Als Edelgas und damit reaktionsträges chemisches Element geht Argon keine chemischen Verbindungen ein und ist somit nur physikalisch in Wasser gelöst, wodurch es zu einem idealen Isotop für die Datierung von Wasser wird. Der mit Abstand größte Anteil an ^{39}Ar befindet sich in der Atmosphäre und wird dort hauptsächlich in der Stratosphäre im $^{40}\text{Ar}(n, 2n)^{39}\text{Ar}$ -Prozess produziert [3]. Die Zeitskalen, in denen Vermischung in den verschiedenen Schichten der Atmosphäre stattfindet, sind verglichen mit der Halbwertszeit von ^{39}Ar kurz, so dass ^{39}Ar gleichmäßig in der Atmosphäre verteilt vorliegt. Einflüsse durch den Menschen sind zu vernachlässigen und Variationen in der Konzentration über die letzten 1000 Jahren liegen bei maximal 7% [4]. Im Gegensatz zu vielen anderen Datierungsmethoden, werden für ^{39}Ar daher keine Korrekturen aus Modellen benötigt. Alle Eigenschaften, die ^{39}Ar zu einem perfekten Tracer in der Isotopen-Hydrologie machen, wäre da nicht das Problem mit der relativen Häufigkeit von ^{39}Ar von nur 8.1×10^{-16} [5]. Eine Liter modernes

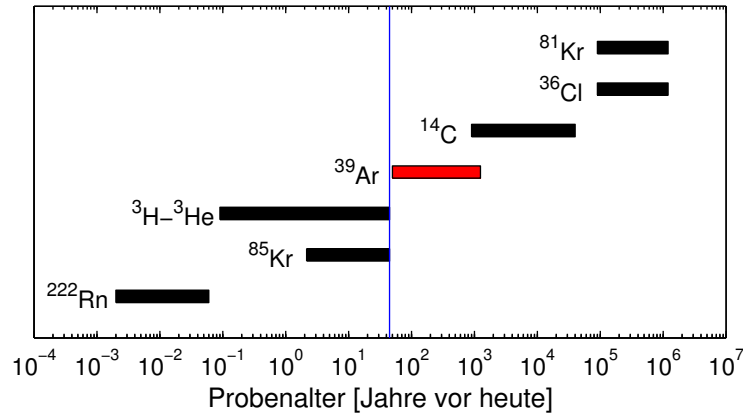


Abbildung 1.1: Zugänglicher Datierungsbereich für die wichtigsten in der radiometrischen Datierung eingesetzten Isotope. Die senkrechte Linie markiert den Bombenpeak (Angepasst aus [2]).

Wasser enthält gerade mal $\sim 10\,000$ ^{39}Ar -Atome¹. Ein ^{39}Ar unter 1.2×10^{15} Argon-Atomen in einer atmosphärischen Probe zu finden, entspricht nahezu dem Problem, einen Euro-Cent versteckt in den Staatsschulden der USA von aktuell 16 Billionen US-Dollar, ausgezahlt in US-Cent, wiederzufinden. Ein unvorstellbarer Geldhaufen aus 5.6×10^8 m³ Zink, der gleichmäßig verteilt über die Landfläche dieser Erde noch fast 11 Münzen pro Quadratmeter ergeben würde oder aufeinandergestapelt fast 6500-mal zum Mond reichen würde.

Für die Analyse von Isotopenverhältnissen auf dem Level solch geringer relativer Häufigkeiten wurden verschiedene Methoden entwickelt:

Beim **Low Level Counting (LLC)** werden direkt die β -Zerfälle gezählt. Für Argon führt die aus 3000 l modernem Wasser extrahierte Gasmenge gerade einmal zu 9 Zerfällen pro Stunde. Zudem muss ein enormer Aufwand betrieben werden, um Hintergrundstrahlung zu minimieren, und über Zeitspannen von Wochen gemessen werden. Low Level Counting war die erste Methode, um Wasserproben mittels ^{39}Ar zu datieren. Es sind aber keine weiteren Verbesserungen in Hinblick auf Messdauer und Probengröße zu erwarten. Das LLC Untergrundlabor an der Universität in Bern ist aktuell das einzige Labor, an dem ^{39}Ar zur Datierung von Wasserproben gemessen wird.

Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS) macht sich den Massenunterschied zwischen ^{40}Ar und ^{39}Ar zu Nutze und kommt dabei mit deutlich kürzeren Messzeiten (~ 9 h) und deutlich kleineren Probengrößen (~ 81) aus [7]. Ein hoher ^{39}K -Untergrund und die Tatsache, dass Argon keine negativen Ionen bildet, fordern hohe Beschleuniger-Energien und einen hohen technischen Aufwand, so dass AMS für ^{39}Ar sehr kostspielig ist und sich bisher auf wenige Demonstrationsmessungen beschränkt.

¹Lässt sich aus der relativen Häufigkeit und der Löslichkeit von Argon in Wasser berechnen [6].

ATTA gehört zu den **laserbasierten Methoden**. Hierbei werden Unterschiede in der Resonanzfrequenz für die Isotopen-Selektion ausgenutzt. Bei einem Frequenzunterschied zwischen zwei Isotopen von Δ_{Isotop} und einer natürlichen Linienbreite von $\Delta\nu_n$ skaliert die Selektivität exponentiell mit der Anzahl N_{Photon} der optischen Anregungen:

$$\propto \left(\frac{\Delta_{\text{Isotop}}}{\Delta\nu_n} \right)^{N_{\text{Photon}}} \quad (1.1)$$

Der Frequenzunterschied zwischen ^{40}Ar und ^{39}Ar ist 84-mal größer als die natürliche Linienbreite des verwendeten Übergangs. Dennoch genügt eine einzelne Anregung nicht, um die benötigte Selektivität zu erreichen. **Resonante Ionisation Massenspektroskopie (RIMS)** kombiniert die Selektivität einer optischen Anregung mit der eines Massenspektrometers. Dennoch stellte sich heraus, dass RIMS für solche äußerst geringen Konzentrationen bisher nicht praktikabel ist [7].

Die Selektivität steigt exponentiell mit der Anzahl an gestreuten Photonen und genau an diesem Punkt setzt das ATTA-Experiment an. Ein in der MOT gefangenes Atom wird $\sim 10^6$ -mal optisch angeregt und kann damit eindeutig von allen anderen Isotopen unterschieden werden. ATTA wurde erstmalig 1999 für die Isotope ^{85}Kr und ^{81}Kr am Argonne National Laboratory umgesetzt [8] und wird dort inzwischen als Standardmessverfahren für Krypton eingesetzt [9]. Darüber hinaus wurde ATTA bereits für ^{41}Ca versucht [10, 11]. Die prinzipielle Funktionsweise wurde in [12] auch für ^{39}Ar gezeigt, jedoch lag die erreichte Zählrate bei nur 0.21 Atomen/h basierend auf 12 detektierten Atomen in 57 h.

Bei der Entwicklung einer ATTA-Apparatur steht die Zählrate im Mittelpunkt aller Bemühungen, da sie die Messzeit und entscheidend die erreichbare Genauigkeit bestimmt. Darüber hinaus rückte in Hinblick auf die ersten natürlichen Wasserproben die Stabilität der Zählrate während einer Messung und über verschiedene Messungen hinweg in den Fokus. Um die Zählrate einer modernen Probe als Referenz verwenden zu können, muss gewährleistet werden, dass für beide Messungen über Tage hinweg die komplexe Apparatur mit derselben konstanten Effizienz läuft.

Diese Arbeit dokumentiert die Aktivitäten am ATTA-Experiment im Jahr 2012, die in ihrer Gesamtheit zur ersten erfolgreichen Datierung einer Wasserprobe mit Hilfe des Isotops ^{39}Ar an einem ATTA-Experiment geführt haben. Im zweiten Kapitel finden sich ein Überblick über die wichtigsten Grundlagen, die zum Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Zudem wird der aktuelle Stand des experimentellen Aufbaus beschrieben. Dieses Kapitel wurde bewusst kurz gehalten, da in vorherigen Arbeiten dieses Projektes [13, 14, 15, 16, 17, 2] ausführlich auf die physikalischen Grundlagen sowie auf die einzelnen Komponenten der Apparatur eingegangen wird.

Das dritte und vierte Kapitel bilden den Hauptteil dieser Arbeit. Ersteres dokumentiert die Atomstrahl-Diagnostik und charakterisiert das Atomstrahl-Analyse-Tool sowie das MOT-Fluoreszenz-Tool. Sie ermöglichen eine Optimierung und eine schnelle Überprüfung der korrekten Funktionalität der gesamten Apparatur. Mit ihrer Hilfe wurden der ZSL, der Kollimator sowie die MOT optimiert. Darüber hinaus wird

ergänzend zu [18] auf die Überwachung der metastabilen Argon-Quelle eingegangen. Der Schwerpunkt des vierten Kapitels liegt auf dem Zählen einzelner ^{39}Ar -Atome. Neben den theoretischen Grundlagen zur Poisson-Statistik geht es hier hauptsächlich um die Optimierung der MOT und die Analyse der Rückpumper mittels angereicherter Proben. Die zweite Hälfte beschäftigt sich mit der Frage der Stabilität der Apparatur während der gesamten Messzeit. Hierfür wird das Konzept der Allan-Varianz eingeführt und eine Langzeitmessung durchgeführt. Darüber hinaus wird in einer Nullmessung der Beitrag zur Zählrate durch Kontamination mit einer Wahrscheinlichkeit von 90 % auf unter 0.3 Atome/h eingeschränkt. Die im dritten und vierten Kapitel beschriebenen Fortschritte führten zu den ersten erfolgreiche Datierungen einer Wasserprobe mittels ^{39}Ar an einem ATTA-Experiment. Diese Messungen sind Inhalt des fünften Kapitels.

Das sechste und letzte Kapitel fasst die Ergebnisse dieser Arbeit zusammen und zeigt gleichzeitig Potential für die weitere Entwicklung des Experiments auf.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden einleitend die wichtigsten Grundlagen zusammengefasst, die für das Verständnis dieser Arbeit erforderlich sind. Dieses Kapitel wurde bewusst sehr kurz gehalten. Für eine detailliertere Darstellung soll an dieser Stelle auf die vorangehenden Arbeiten [2, 17, 14, 16] sowie die Standardliteratur [19, 20] hingewiesen werden. Werden für die Erklärung eines Phänomens oder Messergebnisses weitere Grundlagen benötigt, so werden diese direkt im entsprechenden Abschnitt behandelt.

2.1 Eigenschaften von Argon

Argon stellt mit knapp 1 % nach Stickstoff und Sauerstoff den drittgrößten Anteil in der Zusammensetzung der Luft. Als Edelgas geht es bei Raumtemperatur keine bekannten Verbindungen ein. Großtechnisch wird es durch Luftverflüssigung gewonnen und industriell beim Schweißen als Schutzgas in großen Mengen eingesetzt. Die langlebigsten Isotope sind [21]:

Isotop	Halbwertszeit	Häufigkeit [%]	Kernspin I
^{40}Ar	stabil	99.600	0
^{36}Ar	stabil	0.337	0
^{38}Ar	stabil	0.063	0
^{39}Ar	269 a	8.1×10^{-16}	7/2
^{42}Ar	32.9 a	-	0
^{37}Ar	35.0 d	-	3/2
^{41}Ar	1.8 h	-	7/2

Energieschema von Argon

Argon steht im Periodensystem der Elemente in der dritten Periode an 18. Stelle in der Spalte der Edelgase und besitzt im Grundzustand eine abgeschlossene Elektronenschale in der Elektronenkonfiguration $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6$. Aufgrund der abgeschlossenen Schalen sind Übergänge aus dem Grundzustand in einen angeregten Zustand im Vakuum-UV. Für diese Wellenlängen um die 100 nm gibt es bisher noch keine kommerziellen Laser, so dass für die Laserkühlung der Übergang aus dem metastabilen Zustand $1s_5 (J = 2)$ nach $2p_9 (J = 3)$ genutzt wird¹. Der metastabile Zustand

¹In der gesamten Arbeit wird die Paschen-Notation verwendet.

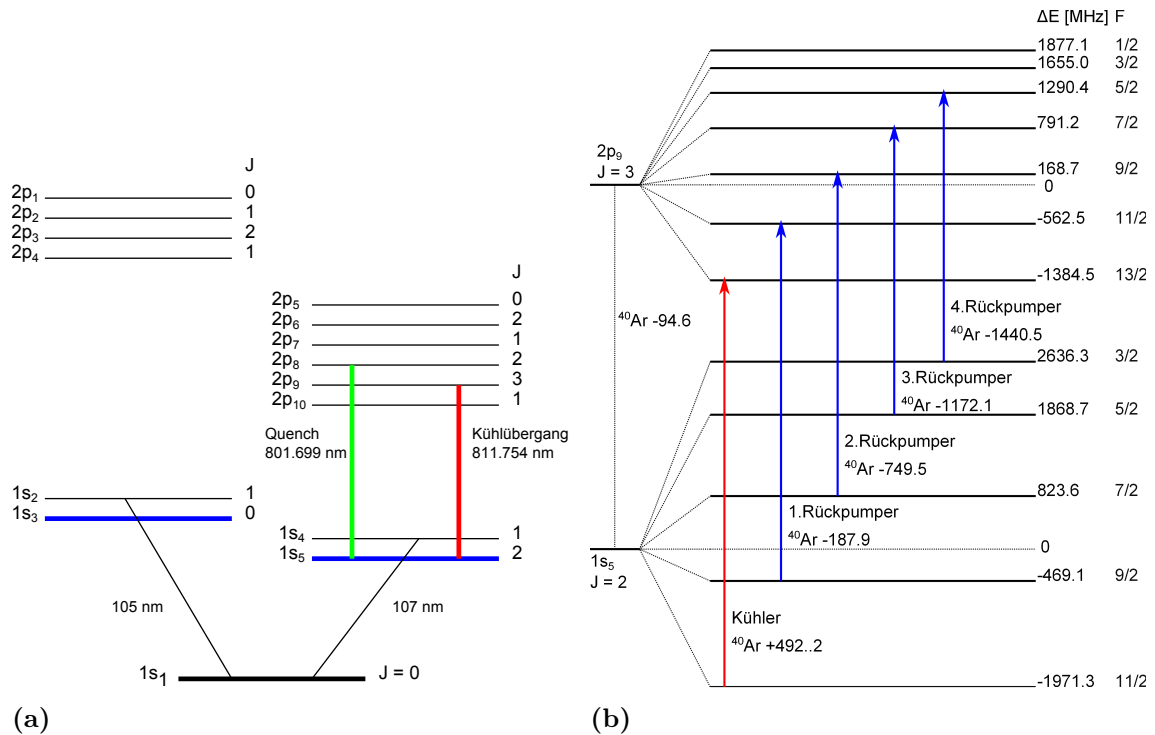


Abbildung 2.1: a) Vereinfachtes Übergangsschema von ^{40}Ar b) ^{39}Ar -Hyperfeinstruktur von $1s_5$ ($J=2$) und $2p_9$ ($J=3$) (Werte übernommen aus [2])

hat dabei eine Lebensdauer von 38 s und lebt damit mehr als eine Größenordnung länger, als für die Laserkühlung und die Detektion in der magnetisch optischen Falle benötigt wird. Eine vereinfachte Übersicht über das Energieschema und die relevanten Übergänge ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Ein detailliertes Übergangsschema mit allen Wellenlängen ist im Anhang A.1 zu finden.

Alle stabilen Isotope besitzen einen Kernspin von $I = 0$, zeigen somit keine Hyperfeinaufspaltung und verhalten sich sehr ähnlich. Der Übergang $1s_5$ ($J=2$) \rightarrow $2p_9$ ($J=3$) ist aufgrund der Auswahlregel $\Delta J = 0, \pm 1$ geschlossen. Hingegen für ^{39}Ar mit $I = 7/2$ spalten die Niveaus $1s_5$ ($J=2$) und $2p_9$ ($J=3$) in 5 bzw. 7 Hyperfeinniveaus auf (Abb. 2.1). Der Übergang $F_2 = 11/2 \rightarrow F_3 = 13/2$ ist in Hinblick auf die Auswahlregel $\Delta F = 0, \pm 1$ weiterhin ein geschlossener Übergang. Durch off-resonante Anregung gelangt jedoch ein geringer Bruchteil der Atome in das $F_3 = 11/2$ -Niveau, zerfällt von dort aus teilweise in den $F_2 = 9/2$ -Zustand und ist dann für eine weitere Laserkühlung verloren. Abhilfe schaffen weitere Laserfrequenzen, die sogenannten Rückpumper, welche die Atome wieder zurück in den Kühlzyklus führen. Auf sie wird genauer in Abschnitt 4.2 eingegangen.

Atom-Licht-Wechselwirkung

Die Gleichgewichtslösung der Optischen-Bloch-Gleichung beschreibt die Streurrate eines Zwei-Niveau Systems getrieben durch das Lichtfeld eines Lasers [19]:

$$\gamma_s = \pi \Delta\nu_n \frac{s}{1 + s + \left(\frac{2\delta}{\Delta\nu_n}\right)^2} \quad (2.1)$$

Dabei ist $\Delta\nu_n$ die natürliche Linienbreite² des atomaren Übergangs, $\delta = \nu_l - \nu_0$ die Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanzfrequenz ν_0 , $s = I/I_s$ der Sättigungsparameter mit der Laserintensität I und der Sättigungsintensität I_s . Durch die Absorption eines Photons aus dem Lichtfeld wird ein Impuls von $h\mathbf{k}$ auf das Atom in Richtung des Lasers übertragen. Die Emission erfolgt jedoch im Mittel ungerichtet, so dass sich der mittlere Impuls der emittierten Photonen aufhebt und auf das Atom eine Kraft in Laserrichtung wirkt:

$$\mathbf{F} = h\mathbf{k} \cdot \gamma_s \quad (2.2)$$

Bewegt sich das Atom mit einer Geschwindigkeit \mathbf{v} , so führt der Dopplereffekt zu einer Frequenzverschiebung:

$$\delta_D = -\frac{\mathbf{k}}{2\pi} \cdot \mathbf{v} \quad (2.3)$$

Ein Abbremsen der Atome hat eine Abnahme der Doppler-Verschiebung δ_D zur Folge. Damit die Atome dennoch über die gesamte Kühlstrecke resonant mit der Laserfrequenz bleiben, muss der Dopplereffekt kompensiert werden. Hier für gibt es unter anderem folgende Möglichkeiten:

- Eine zeitliche Variation der Laserfrequenz: Atome können dann jedoch nur in Paketen abgebremst werden und nicht in einem kontinuierlichen Atomstrahl.
- Eine räumliche Variation des Winkels zwischen Laser- und Atomstrahl führt durch das Skalarprodukt in Gleichung 2.3 zu einer Veränderung der Doppler-Verschiebung. Diese Technik wird für die transversale Kühlung im Kollimator eingesetzt [14].
- Die Doppler-Verschiebung wird durch die Zeeman-Aufspaltung in einem externen Magnetfeld kompensiert:

$$\begin{aligned} \delta_{Ze} &= \frac{g_J \mu_B M_J}{h} B, \text{ für } I = 0 \\ \delta_{Ze} &= \frac{g_F \mu_B M_F}{h} B, \text{ für } I > 0 \end{aligned} \quad (2.4)$$

Dieses Verfahren findet Anwendung im Zeeman-Kühler für die longitudinale Kühlung. Inhomogene Magnetfelder führen auch in der magneto-optischen Linse und in der magneto-optischen Falle zu einem Potential, das die Atome fokussiert bzw. einfängt [2].

²Alle Ausdrücke werden in Hz angegeben.

2.2 Experimenteller Aufbau

In der schematischen Abbildung 2.3 sind die wichtigsten Komponenten des experimentellen Aufbaus abgebildet. Ein Blick ins Labor ist auf Photo 2.2 zu sehen. Da die meisten Komponenten bereits in vorherigen Diplomarbeiten sehr detailliert beschrieben wurden, sollen hier nur kurz ihre Aufgaben zusammengefasst werden. Dennoch wurde Wert darauf gelegt, einen Überblick der wichtigsten Daten der Apparatur zum Zeitpunkt der Abgabe dieser Arbeit festzuhalten.

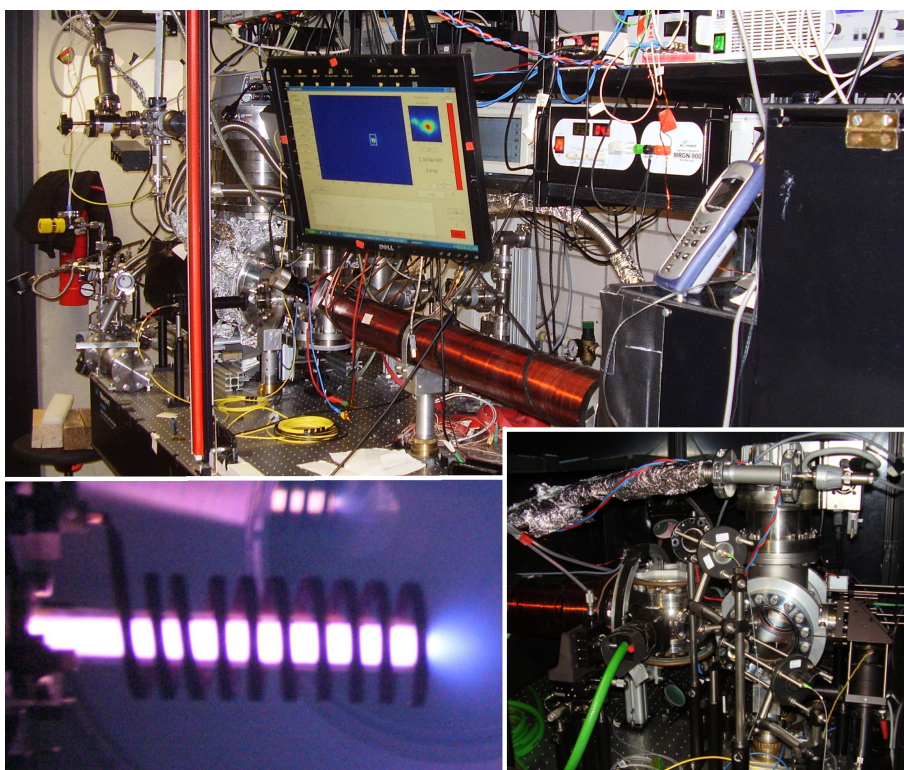


Abbildung 2.2: Photo des experimentellen Aufbaus: Rechts in der schwarzen Box befindet sich vor Staub und Streulicht geschützt die MOT. Links unten ist ein Bild der Quelle dargestellt sowie rechts unten ein Blick auf die MOT.

Flüssigstickstoff-gekühlte metastabile Argon-Quelle In der metastabilen Argon-Quelle werden die Argon-Atome durch Stöße mit Elektronen und Ionen teilweise in das metastabile Niveau $1s_5(J = 2)$ angeregt, welches das untere Level des verwendeten geschlossenen Übergangs ist. Dies geschieht in einem 50 mm langen Röhrchen aus Alumina mit einem Innendurchmesser von 10 mm, das innerhalb einer Kupferspule montiert ist. Die Spule erzeugt ein starkes RF-Feld mit 132 MHz, so dass innerhalb des Röhrchens ein Plasma brennt. Diese Technik wird in der Literatur als ICP (inductively-coupled-plasma) bezeichnet. Zunächst werden die Atome innerhalb des Plasmas zufällig in eine Vielzahl von

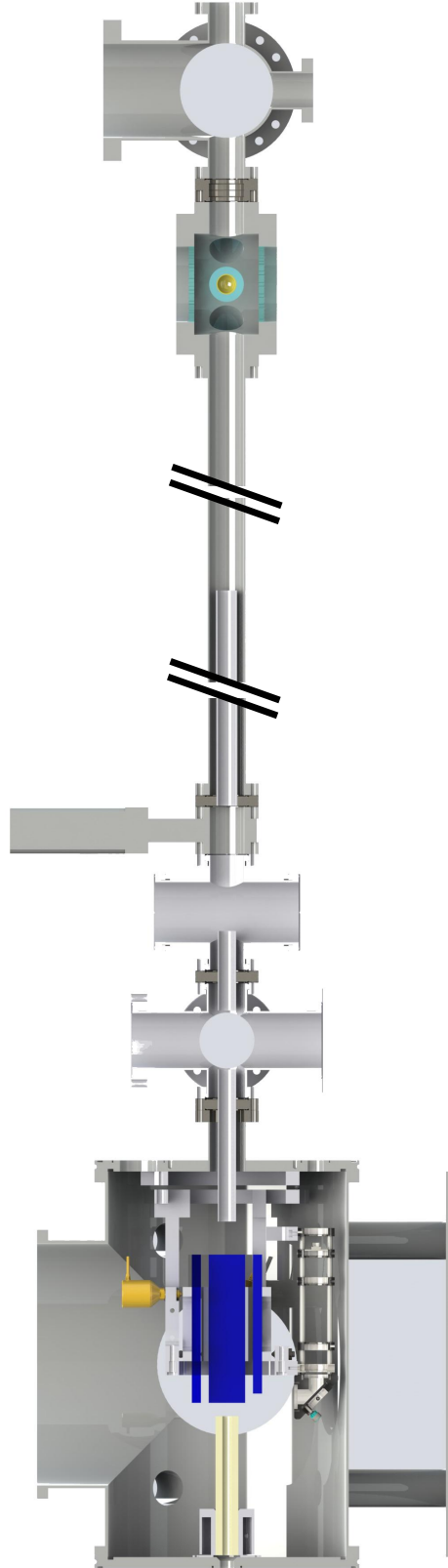
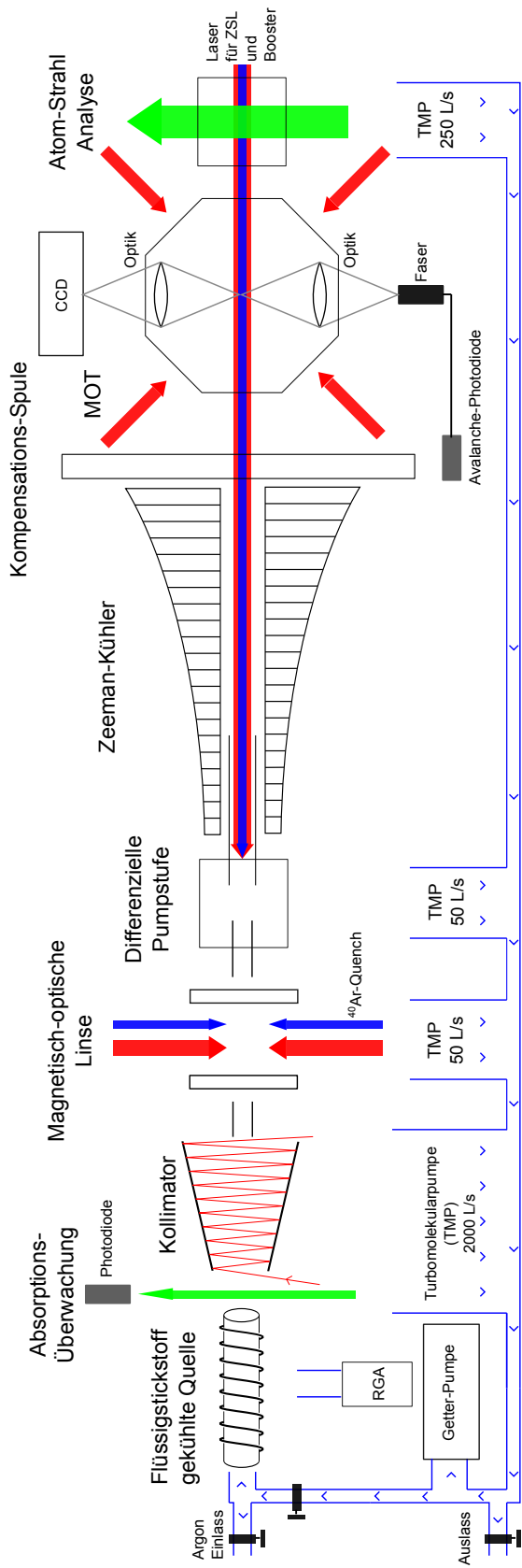


Abbildung 2.3: Oben: Schematische Zeichnung mit den wichtigsten Komponenten des experimentellen Aufbaus (nicht maßstabgetreu). Für eine Beschreibung der Komponenten siehe Text. Unten: Maßstabgetreue Konstruktionszeichnung, der ZSL wurde an den markierten Stellen in der Zeichnung gekürzt.

unterschiedlichen Zuständen angeregt, von denen die meisten schnell wieder zerfallen. Jedoch enden einige in dem metastabilen Zustand $1s_5(J = 2)$ und stehen für eine weitere Manipulation durch Laser zur Verfügung. Die Anregungseffizienz der RF-Entladung beträgt gerade mal $\sim 2 \times 10^{-4}$. Mit einem gesamten Argonfluss von 1.6×10^{17} Atome/s steht damit ein Fluss an metastabilen Atomen von 3.5×10^{13} Atome/s zur Verfügung. Die Quelle wurde in [2, 14, 17] genauer charakterisiert, ist aber im Allgemeinen noch nicht besonders gut verstanden und bietet viel Potenzial für weitere Untersuchungen und Verbesserungen auch in Hinblick auf ihre Haltbarkeit.

Eine Kühlung der Quelle mit Flüssigstickstoff bei 77K erhöht die Anregungseffizienz um einen Faktor ~ 2.6 und verringert die mittlere longitudinale Geschwindigkeit von ~ 500 m/s auf 290 m/s, so dass mehr Atome im Empfangsbereich des Zeeman-Kühlers liegen. Die transversale Geschwindigkeit bleibt hingegen unverändert. Die Zählraten verdoppeln sich durch diese Effekte. Zur Kühlung der Quelle werden derzeit um die 5l Flüssigstickstoff pro Stunde benötigt.

Absorptive Atomflussüberwachung Da der Fluss an metastabilen Atomen von vielen Faktoren abhängt, wie den Druckverhältnissen in der Quelle und dem Modus, in dem die Quelle brennt, wurden immer wieder starke Schwankungen beobachtet. Da der Atomfluss ganz entscheidend die Zählrate mitbestimmt, wurde ihm Rahmen der Bachelorarbeit [18] eine Atomfluss-Überwachung aufgebaut. Ein unabhängiger Laser verläuft transversal durch den Atomstrahl direkt vor dem Quellröhrchen und vermisst das Absorptionsspektrum, aus dessen Tiefe, bei Kenntnis des longitudinalen Geschwindigkeitsprofils, der Fluss an metastabilen Atomen berechnet werden kann. So können während längeren Messungen Schwankungen im Fluss erkannt und bei der Altersbestimmung berücksichtigt werden.

Kollimator Der Kollimator bildet die erste transversale Kühlstufe. Atome mit maximal 40 m/s der anfänglich sehr breiten transversalen Geschwindigkeitsverteilung mit $\sigma_t = 80$ m/s werden auf $\sigma_v = 3$ m/s abgebremst. Das Laserlicht wird zwischen zwei verkippten Spiegeln so hin und her reflektiert, dass sich der Winkel zwischen Laser und Atomstrahl in der Weise ändert, dass jener immer resonant mit den Atomen ist. Durch das transversale Kühlen erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, dass ein Atom die MOT erreicht, deutlich. Nach der Quelle sind zunächst die ^{39}Ar -Atome auf alle Hyperfeinniveaus verteilt. Daher werden alle vier Rückpumper in den Kollimator eingestrahlt und so alle Atome in den $F = 11/2$ Zustand befördert. Insgesamt wird eine Verstärkung der ^{39}Ar -Zählrate durch den Kollimator um einen Faktor 200 beobachtet. Der Kollimator wird hauptsächlich in [14] beschrieben, besitzt jedoch inzwischen zwei weitere Freiheitsgrade, indem er auf einer Spiegelhalter-vergleichbaren Konstruktion montiert wurde. Dies ermöglicht eine Ausrichtung des Atomstrahls.

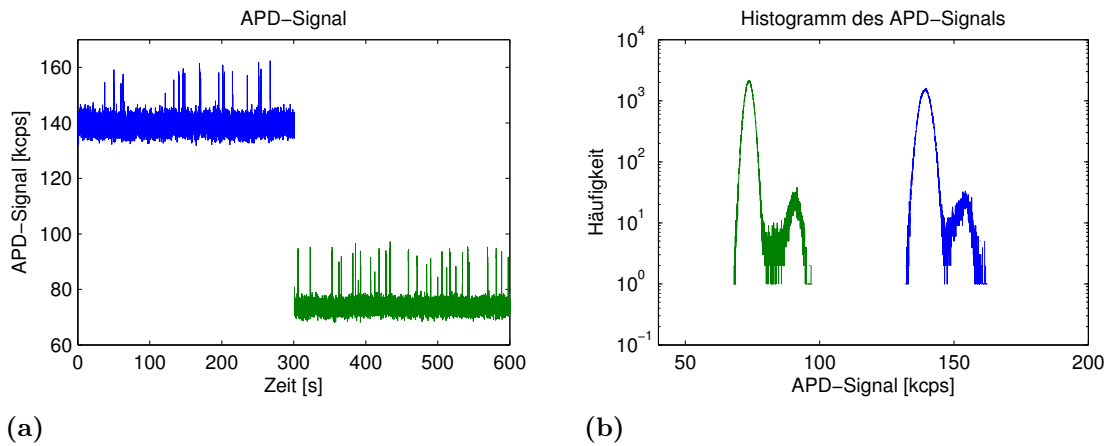


Abbildung 2.4: a) APD-Signal links (blau) ohne Quench, rechts (grün) mit Quench
 b) Korrespondierendes Histogramm: Der Quench halbiert den Untergrund, indem er ^{40}Ar aus dem metastabilen Niveau entfernt.

Magneto-optische Linse (MOL) In einer zweiten Stufe der transversalen Kühlungen werden in einer zweidimensionalen MOT die Argon-Atome auf das Zentrum der MOT fokussiert. Um eine fokussierende Kraft auf die Atome auszuüben, wird ein räumlich variierendes Magnetfeld benötigt, so dass die Argon-Atome eine vom Ort abhängende Zeeman-Verschiebung erfahren und somit unterschiedlich resonant mit dem Laser sind. Die MOL erhöht die Zählrate abhängig von der Effizienz des Kollimators um ca. 25%. Kollimator und MOL ergänzen sich gegenseitig und eine nicht optimale Justierung des Kollimators wird teilweise durch die MOL kompensiert. Am aktuellen experimentellen Aufbau werden für die MOL dieselben Laserfrequenzen wie für die MOT verwendet, was eine unabhängige Justierung deutlich erschwert und experimentell einige Einschränkungen mit sich bringt. Im Unterschied zu vorangehenden Arbeiten wurde im Rahmen eines größeren Umbaus das Spulenpaar um 90° gedreht und entlang der Strahlachse ausgerichtet, so dass in horizontaler und vertikaler Richtung der Magnetfeldgradient identisch ist.

^{40}Ar -Quench In der MOT tragen ^{40}Ar -Atome im metastabilen Zustand bei der Einzelatom-Detektion von ^{39}Ar trotz eines Unterschieds in den Laserfrequenzen von 492 MHz mit einem erheblichen Anteil am Hintergrund durch Fluoreszenz bei. Um dies zu unterdrücken, wird in der MOL eine zusätzliche Laserfrequenz eingestrahlt, die resonant zum $1s_5(J=2) \rightarrow 2p_8(J=2)$ Übergang in ^{40}Ar ist. Dadurch werden nahezu alle ^{40}Ar -Atome in den Zustand $2p_8(J=2)$ gepumpt, von wo aus sie in den Grundzustand zerfallen. Der ^{40}Ar -Quench halbiert nahezu den Untergrund in der MOT und erhöht damit das Signal-Rausch-Verhältnis der Einzelatom-Detektion (Abb. 2.4).

Differenzielle Pumpstufen Auf der einen Seite ist für eine hohe Zählrate ein möglichst hoher Probedurchsatz notwendig. Dies führt in der Quellkammer zu einem Druck von $\sim 10^{-5}$ mbar. Auf der anderen Seite sinkt die Lebensdauer der Atome in der MOT stark mit steigendem Druck. Um einzelne Atome zuverlässig vom Untergrund zu unterscheiden, ist im Mittel eine Lebensdauer von einigen 100 ms notwendig. Dies erfordert in der MOT-Kammer einen Druck von ca. 10^{-8} mbar. Dieses hohe Druckgefälle wird durch differenzielle Pumpstufen erreicht. Drei Röhrchen mit Durchmessern von 18 mm und 20 mm und Längen zwischen 86 mm und 500 mm verringern den Leitwert zwischen den Pumpstufen.

Zeeman-Kühler (ZSL) und Booster Aufgabe des 1.8 m langen Zeeman-Kühlers ist es, die Atome in longitudinaler Richtung abzubremsen. Ein räumlich ansteigendes Magnetfeld gleicht dabei über die Zeeman-Aufspaltung die sich ändernde Doppler-Verschiebung aus, so dass der Laser an jedem Ort entlang des ZSLs mit einer anderen Geschwindigkeitsklasse resonant ist. Eine Besonderheit dabei ist, dass die Atome zunächst nicht bis auf die Einfanggeschwindigkeit der MOT abgebremst werden, sondern bewusst nur bis zu einer Restgeschwindigkeit von ~ 50 m/s. Der Booster, eine zusätzliche Laser-Frequenz im ZSL-Strahl, bremst dabei die Atome erst direkt hinter dem Zentrum der MOT vollständig ab. Aufgrund der höheren longitudinalen Geschwindigkeit verringert sich deutlich die Wahrscheinlichkeit, dass ein Atom wegen seiner transversalen Restgeschwindigkeit mit der Vakuumwand kollidiert. Zudem wird verhindert, dass Atome bereits im ZSL soweit abgebremst werden, dass sie vor der MOT umkehren. Durch den Booster wird die Zählrate in etwa verdoppelt. Der ZSL wird genauer in [17, 2] erörtert.

Eine Kompensationsspule gleicht das starke Magnetfeld am Ende des ZSLs aus, damit sich im Zentrum der MOT ein Nullpunkt des Magnetfelds befindet. Die Position des MOT-Zentrums hängt stark vom Magnetfeld der Kompensationsspule ab. Das Magnetfeld der Kompensationsspule kann daher auch genutzt werden, um die Position der MOT zu justieren.

Magneto-optische Falle (MOT) Die magneto-optische Falle stellt das Herzstück der ATTA-Apparatur dar. Hier werden mit Hilfe von Laserkühlung die Atome in allen sechs Raumrichtungen abgebremst, durch eine zusätzliche räumliche Zentralkraft in der Mitte der Falle gefangen und anschließend detektiert. Die MOT ist durch drei retro-reflektierte Laserstrahlen mit einem Durchmesser von 25 mm realisiert. Die maximale Einfanggeschwindigkeit der MOT zusammen mit dem Booster beträgt ca. 50 m/s. Eine allgemeine Beschreibung magneto-optischer Fallen findet man in der Standardliteratur wie [19] und eine detaillierte Beschreibung und Systematik der hier implementierten Falle in [2].

Einzelatom-Detektion Das Fluoreszenzlicht einzelner gefangener Atome wird über eine 200 μ m Faser auf eine APD (Avalanche Photodiode) geleitet, welche einzelne Photonen in elektrische Pulse verwandelt. Eine Zählkarte am PC zählt

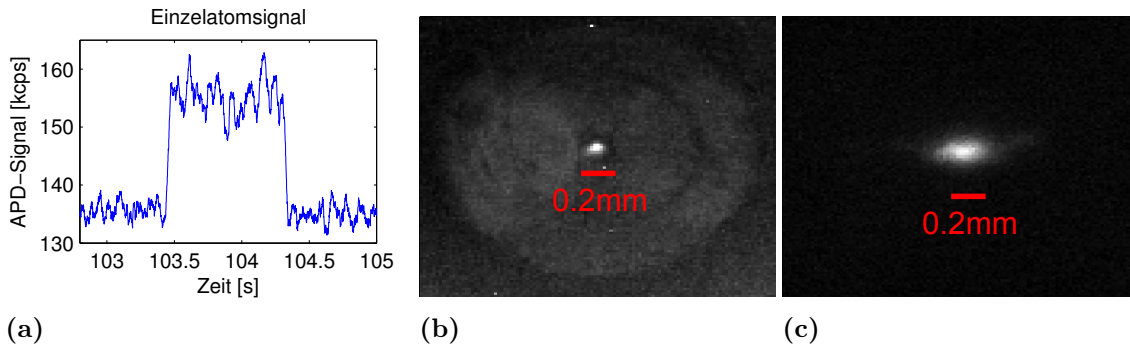


Abbildung 2.5: Einzelatomsignale: a) Einzelnes ^{39}Ar -Atom auf der APD
 b) ^{38}Ar -Atom auf der Kamera: Im Zentrum ist als schwarzer Kreis der Faserkern umgeben vom Fasermantel sichtbar. c) ^{39}Ar -MOT bei einer ^{39}Ar -Konzentration von 10^{-9} (gegenüber b) kürzere Belichtungszeit)

jene und speichert die Daten für eine weitere Analyse. Das typische Signal eines einzelnen Atoms ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Direkt gegenüber des Faserkopfes ist zusätzlich eine Kamera installiert. Wegen der 1:1 Abbildungsgeometrie von der Faser auf die Kamera kann sie zur Justierung, z.B. zum Ausrichten der Faser gegenüber dem Fallenzentrum, und zur Überwachung der gesamten zentralen MOT-Region genutzt werden. In Zukunft soll sie ergänzend zur APD auch für die Einzel-Atom-Detektion eingesetzt werden. Die Einzel-Atom-Detektion wird in [17] weiterführend behandelt.

Atomstrahl-Analyse Ein zum Atomstrahl senkrecht ausgerichtetes „sheet of light“ dient zur schnellen zweidimensionalen Analyse des ^{40}Ar -Atomstrahls. Dabei ist das „sheet of light“ um 45° gegen die horizontale Ebene verkippt und die Fluoreszenz wird über eine Kamera von unten beobachtet. Dadurch sind eine Darstellung und eine Analyse des Atomstrahls im Querschnitt realisiert, welche eine schnelle Justage des Kollimators und der MOL ermöglichen. Darüber hinaus stellt es ein sehr sensitives Werkzeug für die Optimierung des gesamten Atomflusses dar. Die Atomstrahlanalyse wird ausführlich im Abschnitt 3.5 beschrieben und charakterisiert.

Vakuum-System Insgesamt fünf Turbomolekularpumpen (TMP) sorgen für einen hinreichend geringen Druck von ca. 10^{-8} mbar in der MOT-Kammer bei einem gleichzeitig hohen Probanddurchsatz. Im Rezyklier-Modus wird das Gas am Ausgang der TMPs wieder zurück zur Quelle geleitet und zirkuliert dabei ca. 2000-mal pro Stunde. Ein und dasselbe Argon-Atom kann folglich mehrfach gezählt werden. Da schlussendlich nur Zählraten für die Altersbestimmung verglichen werden, stellt dies kein Problem dar. Die für eine Messung benötigte Probenmenge kann im Rezyklier-Modus auf unter $0.04 \text{ mbar} \cdot \text{l}$ reduziert werden, was ungefähr der Gasmenge aus einem Liter Wasser bzw. der extrahierten Gasmenge aus 200 g Eis entspricht. Eine Getter-Pumpe verhin-

dert einen Druckanstieg durch ein Ausgasen aus der Apparatur. Sie pumpt alles bis auf Methan und Edelgase, so dass die Argonprobe weiterhin in der Apparatur verweilt. Aktuell verhindert eine Kontamination mit ^{39}Ar aufgrund von Messungen mit angereicherten Proben den Betrieb im Rezyklier-Modus. Dadurch dass die Probe lange in der Apparatur verweilt, wird sie durch das ausgasende ^{39}Ar angereichert. Eine mit der Zeit dramatisch steigende Zählrate ist die Folge. Ein in das Vakuum integrierter Restgas-Analysator (RGA) dient zur schnellen Analyse der Gaszusammensetzung in der Kammer und ist gleichzeitig sehr praktisch als Lecksucher bei Vakuum-Umbauten.

Laser-System Eine aktuelle Skizze des Laser-Aufbaus ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Zudem sind im Anhang A.2 die aktuell verwendeten Frequenzen aufgelistet. Insgesamt benötigen Kollimator, ZSL und MOT einschließlich ihrer Rückpumper 10 verschiedene Frequenzen. Hierfür wird ein extern stabilisierter Dioden-Laser (ECDL) über eine Doppler-freie ^{40}Ar -Spektroskopie auf den optischen Übergang $1s_5(J = 2) \rightarrow 2p_9(J = 3)$ stabilisiert. Es liegt daher nahe, Frequenzen anderer Argon-Isotope auch relativ zu dieser Master-Frequenz anzugeben. Zwei kommerzielle Tapered Amplifiers (TAs) werden anschließend über ein Beat-Signal mit einem Offset relativ zu der Master-Frequenz stabilisiert. Aus ihrem Licht werden anschließend mit Hilfe von akustooptischen Modulatoren alle benötigten Frequenzen erzeugt. Abschließend werden alle Frequenzen in drei Selbstbau-TAs für MOL und MOT, Kollimator und ZSL auf bis zu 500 mW verstärkt und über Fasern zum Experiment geleitet. Die Beat-Lock-Technik ermöglicht es, schnell von Hand zwischen den Frequenzen der unterschiedlichen Argon-Isotope zu wechseln. Dies ist äußerst hilfreich, da häufig beim Justieren und zur schnellen Kontrolle der Funktionalität ^{40}Ar und ^{38}Ar aufgrund ihrer höheren Konzentrationen verwendet werden. Details zum Laser-System sind in [16] zu finden.

Für den ^{40}Ar -Quench und die absorptive Atomflussüberwachung stehen zwei weitere unabhängige Laser zur Verfügung. Für die Atomstrahl-Analyse wird über einen Klappspiegel direkt das Licht aus einem der beiden kommerziellen TAs umgeleitet.

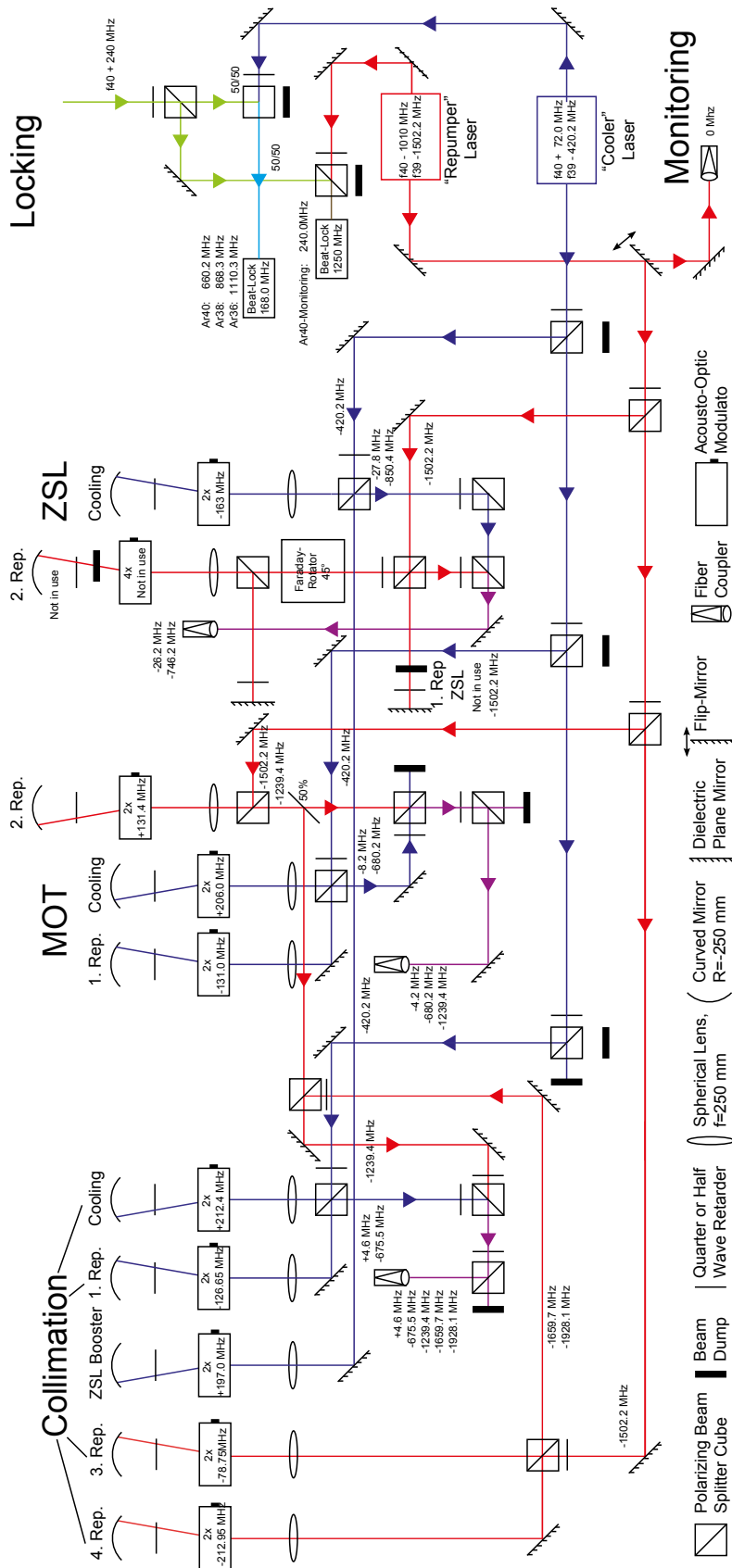


Abbildung 2.6: Optischer Aufbau, korrigierte und aktualisierte Version basierend auf [2]

3 Atomstrahl-Diagnostik

Um die grundlegenden Parameter des Atomstrahls für weitere Optimierungen zu ermitteln, wurde der Atomstrahl an verschiedenen Stellen der Apparatur analysiert. Aus den Erfahrungen und der entwickelten Software der Atomstrahlanalyse sind drei Justage- bzw. Überwachungs-Tools hervorgegangen: Das Absorptions-Monitoring zur Atomfluss-Überwachung, das Atomstrahl-Analyse-Tool am Ende der Apparatur hinter der MOT und das MOT-Fluoreszenz-Tool. Letztere beiden werden in diesem Kapitel vorgestellt sowie ihre Anwendung bei der Optimierung einzelner Baugruppen der Apparatur. Die Atomfluss-Überwachung wird in [18] ausführlich diskutiert, daher sollen hier nur ergänzende Informationen aufgeführt werden. Generell wurde in fast jeder vorangegangenen Arbeit der Atomstrahl in irgendeiner Weise analysiert. Daher soll hier nicht so sehr auf die Methodik und die Herleitung aller nötigen Formeln eingegangen, sondern vielmehr aktuelle Parameter festgehalten werden. Neu in dieser Arbeit sind neben der dauerhaften Möglichkeit, den Atomstrahl mit Hilfe der Tools zu analysieren, auch die über den Querschnitt räumlich aufgelöste Analyse des Atomstrahls.

3.1 Grundlegendes zur Methodik

Um die Geschwindigkeit der Atome zu messen, werden jene mit einem Laser der Intensität I und Frequenz ν_l bzw. Wellenvektor \mathbf{k} zur Fluoreszenz angeregt. Dabei ist der Laser um $\delta = \nu_l - \nu_0$ gegenüber der Resonanzfrequenz ν_0 verstimmt. Ein Atom der Geschwindigkeit \mathbf{v} erfährt dabei aufgrund des Dopplereffekts eine weitere Frequenzverschiebung von:

$$\delta_D = -\frac{\mathbf{k}}{2\pi} \cdot \mathbf{v} = -\nu_l \frac{v}{c} \cos \alpha \approx -\nu_0 \frac{v}{c} \cos \alpha \quad (3.1)$$

Dabei ist α der Winkel zwischen Laser und Atomstrahl. Im Folgenden wird immer eine Laserrichtung gewählt, die parallel zur zu bestimmenden Geschwindigkeitskomponente verläuft. Die Winkelabhängigkeit wird daher nicht weiter in den Formeln explizit mitgeführt. Die Näherung ergibt sich aus der Tatsache, dass $\delta \ll \nu_0$ gilt. Die Streurate eines einzelnen Atoms ergibt sich dann aus Gleichung 2.1 zu:

$$\begin{aligned} \gamma_s(\nu, v) &= \pi \Delta \nu_n \frac{s}{1 + s + \frac{4(\nu - \nu_0(1 + \frac{v}{c}))^2}{\Delta \nu_n^2}} \\ &= \pi \Delta \nu_n \frac{s}{1 + s + \frac{4(\delta - \nu_0 \frac{v}{c})^2}{\Delta \nu_n^2}} \end{aligned} \quad (3.2)$$

Im Atomstrahl sei die Geschwindigkeitsverteilung durch $p(v)$ gegeben¹. Die mittlere Streurrate ergibt sich dann als Faltung mit dem Lorenz-Linienprofil:

$$\overline{\gamma_s(\nu, v)} = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma_s \left(\nu - \nu_0 \frac{v}{c} \right) p(v) dv \quad (3.3)$$

Für eine normalverteilte Geschwindigkeitsverteilung um einen Mittelwert v_0 und mit einer Standardabweichung von σ_v beträgt die Halbwertsbreite $f_g = \sqrt{8 \ln 2} \sigma_v$:

$$p(v) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_v} e^{-\frac{v^2}{2\sigma_v^2}} \quad (3.4)$$

Die Faltung 3.3 ist dann ein sogenanntes Voigt-Profil und ist analytisch nicht mehr lösbar. Ihre Halbwertsbreite f_{voigt} lässt sich jedoch aus der Halbwertsbreite der Geschwindigkeitsverteilung f_g und der Halbwertsbreite des sättigungsverbreiterten Linienprofils $f_l = \Delta\nu_n \sqrt{1+s}$ approximieren [22]:

$$f_{voigt} \approx 0.5346 f_l + \sqrt{0.2166 f_l^2 + f_g^2} \quad (3.5)$$

Für eine sehr breite Geschwindigkeitsverteilung im Vergleich zum sättigungsverbreiterten Linienprofil, $\Delta\nu_n \sqrt{1+s} \ll \sigma_D := \nu_0 \frac{\sigma_v}{c}$, kann das Voigt-Profil durch ein gaußförmiges Linienprofil mit σ_D angenähert werden. Dies ist jedoch nur für die Geschwindigkeitsverteilung direkt hinter der Quelle adäquat. Sobald der Atomstrahl durch Kollimator und MOL transversal gekühlt wird, liegt seine Geschwindigkeit im Bereich der natürlichen Linienbreite. Diese beträgt für den betrachteten Übergang im Argon $\Delta\nu_n = 5.85 \text{ MHz} \triangleq 4.74 \text{ m/s}$. Zudem hat in diesem Geschwindigkeitsbereich die Sättigungsverbreiterung einen starken Einfluss. Abbildung 3.1 zeigt für Sättigungsparameter von $s = 0.1$ bis $s = 100$ das Voigt-Linienprofil einer Geschwindigkeitsverteilung mit $\sigma_v = 3 \text{ m/s}$. Sehr deutlich ist die Verbreiterung mit steigendem Sättigungsparameter s zu erkennen.

Die Intensität des Fluoreszenzlichts wird nun in Abhängigkeit der Laserfrequenzen mit einer Photodiode, einem Photomultiplier oder räumlich aufgelöst mit einer Kamera gemessen. Gerade bei räumlich aufgelösten Messungen wird eine hohe Laserintensität benötigt, so dass der Sättigungsparameter im Bereich $s = 0.1$ bis $s = 10$ liegt und damit stark das gemessene Profil beeinflusst. Bei einer Absorptionsmessung wird hingegen der Intensitätsverlust des Lasers nach dem Durchgang durch den Atomstrahl gemessen. Hier sind nur sehr geringe Laserintensitäten nötig, so dass die Sättigungsverbreiterung keine tragende Rolle spielt.

Noch zwei allgemeine Anmerkungen zum Schluss dieser theoretischen Einleitung:

- Um die gemessenen Linien- und die daraus bestimmten Geschwindigkeitsprofile im selben Diagramm darstellen zu können, werden die Laser-Frequenzen ν_l

¹Im Allgemeinen handelt es sich um eine zweidimensionale Verteilung über die longitudinale und transversale Geschwindigkeit $p(v_l, v_t)$. Im Weiteren wird jedoch angenommen, dass v_t und v_l unabhängig voneinander sind und damit $p(v_l, v_t) = p(v_l)p(v_t)$ faktorisiert.

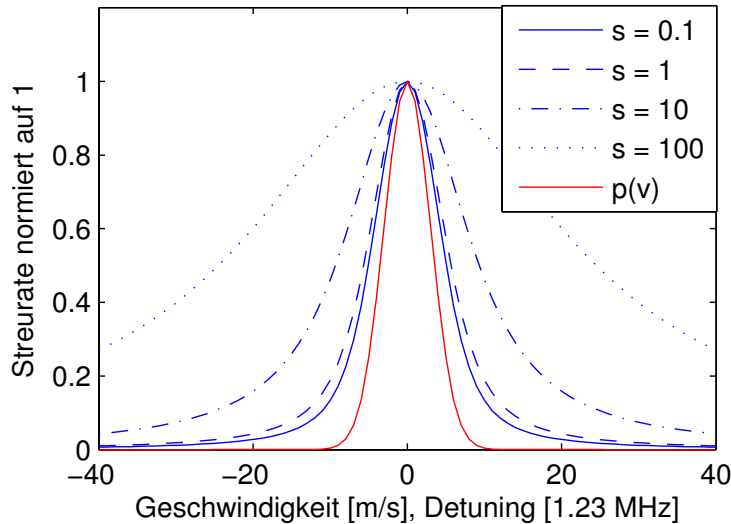


Abbildung 3.1: Voigt-Linienprofile für unterschiedliche Sättigungsparameter und die zugrunde liegende Geschwindigkeitsverteilung mit $\sigma_v = 3$ m/s. Zur Vergleichbarkeit wurden die Profile am Maximum auf 1 normiert.

über die Doppler-Verschiebung mit $\nu_l \cdot \frac{c}{\nu_0}$ in eine korrespondierende Geschwindigkeit umgerechnet. Es gilt: $1 \text{ MHz} \triangleq 0.812 \text{ m/s}$ bzw. $1 \text{ m/s} \triangleq 1.23 \text{ MHz}$.

- Häufig zeigen die gemessenen transversalen Geschwindigkeitsprofile eine deutlich von Null verschiedene offset-Geschwindigkeit v_0 . Eine mögliche Erklärung ist ein nicht perfekt senkrecht zum Atomstrahl ausgerichteter Laserstrahl. Ist jener um den Winkel α verkippt, so ergibt das Skalarprodukt in Gleichung 3.1 folgende Zerlegung in transversale und longitudinale Geschwindigkeit:

$$\begin{aligned} \delta_D &\approx -\nu_0 \frac{v_l}{c} \sin \alpha - \nu_0 \frac{v_t}{c} \cos \alpha \\ &\approx -\nu_0 \frac{v_l}{c} \alpha - \nu_0 \frac{v_t}{c} (1 - \alpha^2) \end{aligned} \quad (3.6)$$

Da die mittlere longitudinale Geschwindigkeit in der Größenordnung von 300 m/s liegt und damit fast zwei Größenordnungen über der transversalen, führt eine Verkipfung von 10 mrad bereits zu $v_0 = 3$ m/s.

3.2 Geschwindigkeitsverteilungen direkt hinter der Quelle

Zentral für weitere Optimierungen ist die Kenntnis der Ausgangsgeschwindigkeit in longitudinaler und transversaler Richtung direkt hinter der Quelle. Diese beiden Größen werden an verschiedenen Stellen auch in weitere Berechnungen eingehen.

3.2.1 Transversale Geschwindigkeitsverteilung

Das transversale Geschwindigkeitsprofil $p(v_t)$ direkt hinter der Quelle wurde mittels Absorption bestimmt (Abb. 3.2). Ein Laserstrahl durchquert unmittelbar vor der Quelle den Atomstrahl und trifft danach auf eine Photodiode.

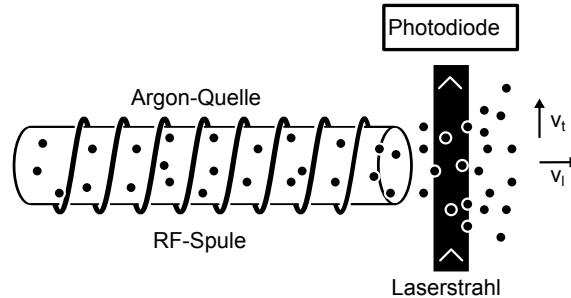


Abbildung 3.2: Absorptive Messung der transversalen Geschwindigkeitsverteilung $p(v_t)$ direkt hinter der Quelle

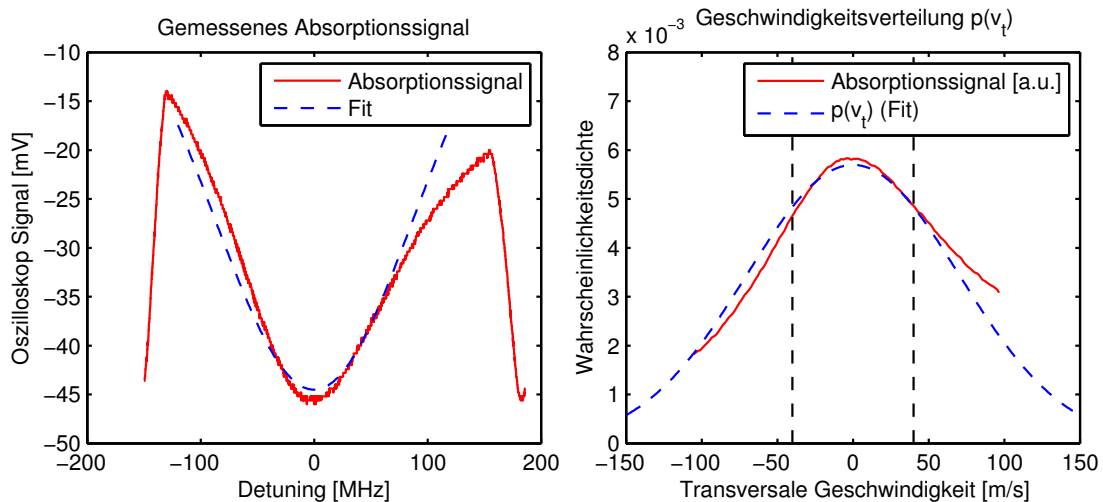


Abbildung 3.3: Transversale Geschwindigkeit hinter der Quelle: Gemessenes Absorptionssignal (links) und korrespondierende Geschwindigkeitsverteilung mit $\sigma_{v_t} = 70$ m/s (rechts). Die beiden senkrechten Striche markieren die maximale Einfanggeschwindigkeit des Kollimators von ca. 40 m/s [2].

Das gemessene Absorptionssignal (Abb. 3.3) enthält einen überlagerten frequenzabhängigen Abfall der Laserintensität aufgrund einer frequenzabhängigen Effizienz des AOMs, mit dem die Frequenz moduliert wird. Zudem kann die Kopplungseffizienz der Faser ebenfalls eine Frequenzabhängigkeit aufweisen. Als Konsequenz wurde im Rahmen von [18] ein Referenzstrahl direkt vor dem Eintritt in die Vakuumapparatur abgezweigt, so dass eine Frequenzabhängigkeit der Laserintensität bei der Analyse der Daten korrigiert werden kann. Mit derselben Technik arbeitet

auch das Absorptions-Monitoring. Basierend auf einer gaußförmigen Geschwindigkeitsverteilung (Gleichung 3.4) in transversaler Richtung, ergibt die Auswertung der Absorptionsdaten ein Breite von $\sigma_{v_t} = 70$ m/s. Die genaueren Messungen in [18] ergaben, erstaunlicherweise unabhängig davon ob mit Stickstoff gekühlt wird oder nicht, eine Breite von $\sigma_{v_t} \approx 85$ m/s.

3.2.2 Longitudinale Geschwindigkeitsverteilung

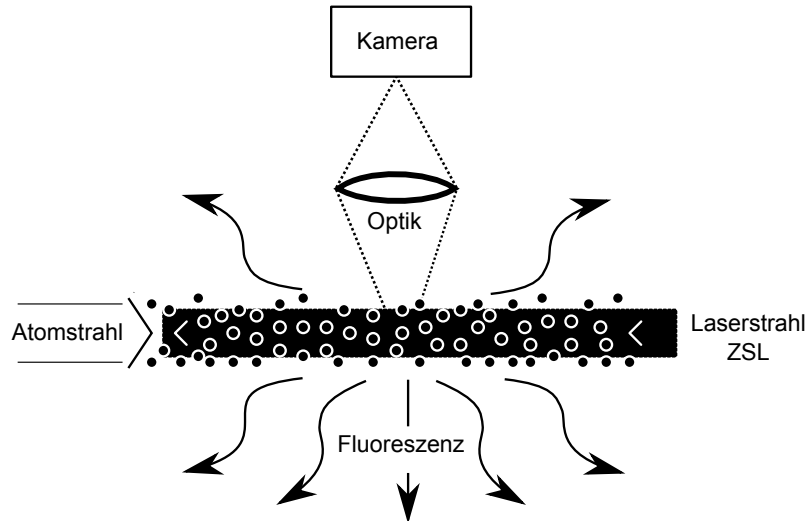


Abbildung 3.4: Fluoreszenz-Messung der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung

Die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung wurde mit Hilfe von Fluoreszenz wie in Abbildung 3.4 skizziert gemessen. Zur Analyse wurde der ZSL-Laserstrahl eingesetzt und mit Hilfe eines offset-locks über den Bereich von ca. 1 GHz durchgestimmt. Als Detektor diente eine Kamera, die von unten die Fluoreszenz im Abstand von 25 cm zur Quelle in der MOL-Kammer beobachtete. Dabei wurde für verschiedene Laserfrequenzen ein Kamerabild aufgenommen und anschließend über das gesamte Bild integriert. Die Ergebnisse einer solchen Messung zeigt Abbildung 3.5. Die gemessene longitudinale Geschwindigkeitsverteilung kann gut durch eine dreidimensionale Maxwell-Boltzmann-Verteilung beschrieben werden:

$$p(v) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{\hat{v}^3} e^{-\frac{v^2}{\hat{v}^2}} \quad (3.7)$$

Dabei ist \hat{v} die wahrscheinlichste Geschwindigkeit und die mittlere Geschwindigkeit ist gegeben durch $\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \hat{v}$. Bei der Auswertung der Daten ist zu berücksichtigen, dass die Geschwindigkeit 25 cm hinter der Quelle gemessen wurde und somit aufgrund der Geometrie transversal schnelle und longitudinal langsame Atome mit der Wand des Strahlrohrs kollidieren. Abbildung 3.5 enthält die auf die Position der

Quelle korrigierten Geschwindigkeitsprofile. Deutlich zu erkennen ist der Effekt der Flüssigstickstoffkühlung. Fast die vollständige Geschwindigkeitsverteilung wird wesentlich unter die Einfanggeschwindigkeit des ZSL von 600 m/s verschoben. In der Tabelle 3.1 sind die Ergebnisse zur longitudinalen Geschwindigkeit zusammengefasst. Die Werte mit einer Stickstoffkühlung stimmen sehr gut mit einer ähnlichen Messung in [18] überein. Hingegen sind die Werte für eine nicht gekühlte Quelle um ca. 100 m/s geringer, was an den leicht unterschiedlichen Quellparametern liegen kann.

Tabelle 3.1: Longitudinale Geschwindigkeiten direkt nach der Quelle

	\hat{v}	\bar{v}	Entsprechende Temperatur
Ohne Stickstoffkühlung	429 m/s	485 m/s	442 K
Mit Stickstoffkühlung	255 m/s	287 m/s	156 K

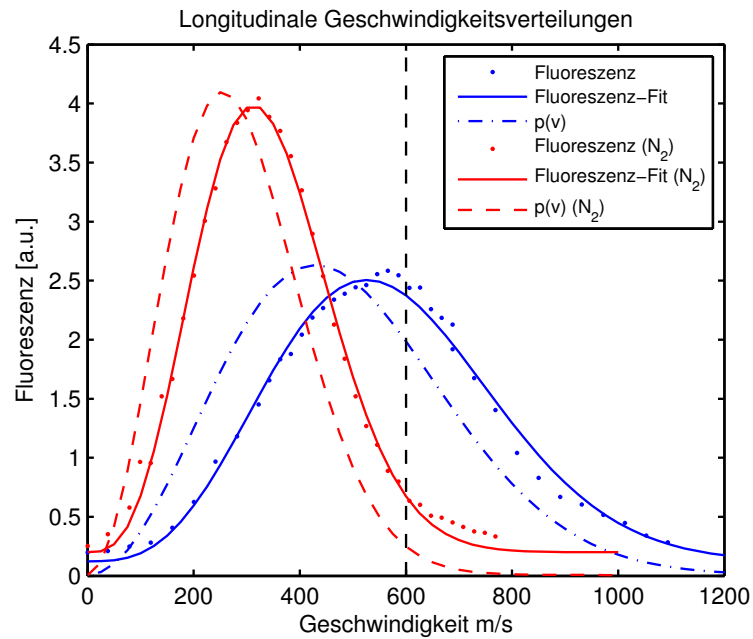


Abbildung 3.5: Longitudinale Geschwindigkeitsverteilung ohne (blau) und mit Stickstoffkühlung der Quelle (rot). Die gestrichelten Linien stellen die auf die Position der Quelle korrigierten Geschwindigkeiten dar. Der senkrechte Strich markiert die maximale Einfanggeschwindigkeit des ZSL von 600 m/s.

3.3 Absorptions-Monitoring

Aus den Erfahrungen der Absorptionsmessungen wurde zur dauerhaften Überwachung des gesamten Flusses an metastabilen Atomen ein Absorptions-Monitoring hinter der Quelle in den experimentellen Aufbau integriert. Es ist Inhalt der Bachelorarbeit [18]. Daher soll hier nur ergänzend die Druckabhängigkeit des Flusses erörtert werden. Abbildung 3.6 zeigt auf der linken Seite die Druckabhängigkeit der Absorption sowie im Vergleich die ^{40}Ar -Fluoreszenz, gemessen 2.8 m entfernt mit dem Atomstrahl-Analyse-Tool hinter der MOT. Die rechte Seite enthält die Druckabhängigkeit der Zählrate einer Probe mit einer ^{39}Ar -Konzentration von 10^{-12} , gemessen über 10 min unterteilt in 5 Einheiten à 2 min.

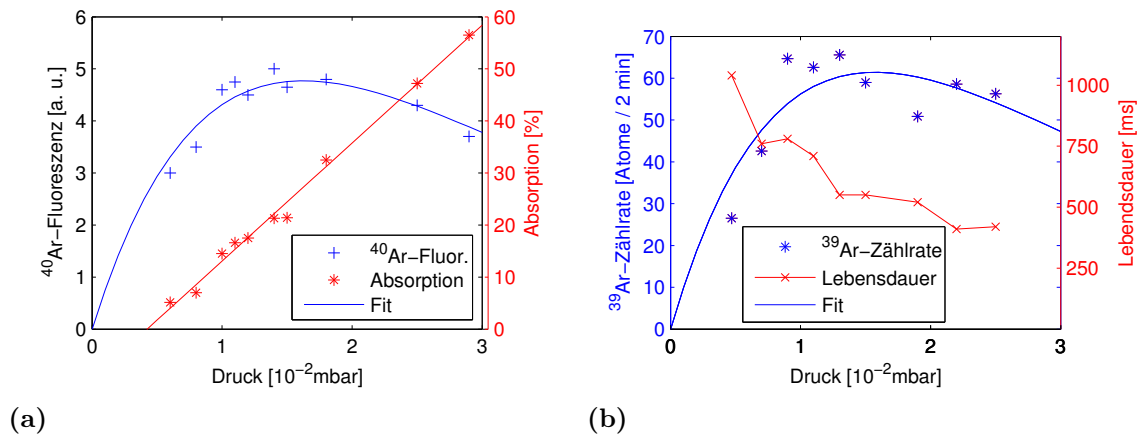


Abbildung 3.6: Abhängigkeiten vom Druck vor der Quelle: a) Absorption direkt hinter der Quelle und ^{40}Ar -Fluoreszenz in 2.8 m Entfernung am Ende der Apparatur, b) Gezählte ^{39}Ar -Atome in 2 min und Lebensdauer in der MOT. Alle Messungen wurden mit einer gekühlten Quelle durchgeführt.

Die gemessene Absorption und damit der gesamte Fluss an metastabilen Atomen \dot{N} steigt über den gesamten zugänglichen Druckbereich nahezu linear an. Hingegen steigen die ^{40}Ar -Fluoreszenz und die ^{39}Ar -Zählrate bis 1.0×10^{-2} mbar steil an, sind dann bis 1.8×10^{-2} mbar nahezu konstant und fallen oberhalb wieder ab. Die Lebensdauer in der MOT nimmt mit steigendem Druck durch eine Zunahme der Kollisionen mit dem Restgas stetig ab.

Der gesamte Fluss an metastabilen Atomen steigt in einem Bereich, in dem die Anregungseffizienz nahezu konstant ist, linear mit dem Druck, da sich die Gasmenge, die durch die Quelle in die Apparatur einströmt, proportional zum Druck erhöht. Jedoch steigt damit auch der Druck in der Quellkammer, in der sich der Kollimator noch vor der ersten Pumpstufe befindet. Der Atomstrahl durchquert daher auf seinen ersten 18 cm ein Gebiet mit einem Druck von ca. 4×10^{-5} mbar. In der ersten Pumpstufe fällt der Druck sehr schnell ab und erreicht schließlich 10^{-8} mbar in der MOT. In diesen ersten 18 cm spielen jedoch Stöße zwischen metastabilen Atomen

und Argon-Atomen im Grundzustand eine entscheidende Rolle. Der Wirkungsquerschnitt dafür beträgt $\sigma = 300 \text{ \AA}^2$ [2]. Legt man ein ideales Gas und eine Temperatur von 160 K (Tab.3.1) zu Grunde, ergibt sich für die mittlere freie Weglänge bei einer Teilchendichte n bzw. beim Druck p :

$$\Lambda(p) = \frac{1}{\sigma n(p)} = \frac{7.4 \text{ \mu m}}{p/\text{mbar}} \quad (3.8)$$

Der Fluss \dot{N}_0 direkt hinter der Quelle nimmt auf der Strecke z in der Quellkammer durch Kollisionen exponentiell ab:

$$\dot{N}(z) = \dot{N}_0 e^{-\frac{z}{\Lambda}} = \dot{N}_0 e^{-\frac{z \cdot p/\text{mbar}}{7.4 \text{ \mu m}}} \quad (3.9)$$

Unter Berücksichtigung dieser Druckabhängigkeit ergeben sich die beiden Fits in den Graphen 3.6. Dabei wurde ein linearer Zusammenhang zwischen dem Quelldruck und dem Druck in der Quellkammer angenommen. Beide Fits liefern eine Proportionalitätskonstante von 400, d.h. ein Vordruck von 10^{-2} mbar entspricht einem Druck von 2.5×10^{-5} mbar in der Quellkammer. Dies ist konsistent mit den Druckwerten im RGA, welcher direkt mit der Quellkammer verbunden ist. Tendenziell wird der lokale Druck in einem gerichteten Atomstrahl höher sein als der Hintergrunddruck. Für alle weiteren Messungen wurde ein Quelldruck um die 1.1×10^{-2} mbar gewählt. In diesem Bereich ist die Zählrate nahezu konstant, so dass kleine Druckschwankungen nach unten noch zu keinem Verlust der Zählrate führen. Im Prinzip ist es vorteilhaft, den Druck möglichst gering zu halten, da dies zu einer kleineren benötigten Probenmenge sowie zu einer längeren Lebensdauer in der MOT und damit zu einer zuverlässigeren Detektion der Atome führt. Bei 1.1×10^{-2} mbar liegt die benötigte Gasmenge für eine Messung im Durchfluss bei $24 \text{ mbar} \cdot \text{l/h} = 0.4 \text{ mbar} \cdot \text{l/min}$.

Aus der Absorption bei Resonanz kann auch eine absolute Größe für den Fluss an metastabilen Atomen \dot{N}_0 bestimmt werden. Für eine Herleitung vergleiche [14]:

$$\dot{N} \approx 2.3 \frac{\bar{v} r \Delta\nu_D}{\lambda^2 \Delta\nu_n} \ln \left(\frac{I_0}{I_{min}} \right) \quad (3.10)$$

Dabei sind r der Radius des Atomstrahls, hier gleich dem Radius des Quellröhrchens $r = 5 \text{ mm}$, $\bar{v} = 287 \text{ m/s}$ die mittlere longitudinale Geschwindigkeit (Tab. 3.1), $\lambda = 811.754 \text{ nm}$ und $\Delta\nu_n = 5.86 \text{ MHz}$ Wellenlänge und natürliche Linienbreite des Übergangs, $\Delta\nu_D = \sqrt{8 \ln(2)} \sigma_D = \sqrt{8 \ln(2)} \nu_0 \frac{\sigma_v}{c} = 250 \text{ MHz}$ die Halbwertsbreite des Doppler-Profiles, I_0 die eingestrahlte Laserintensität und I_{min} die Intensität am Absorptionsminimum. Für das aktuelle Quellen-Design ergeben sich damit folgende Parameter für einen Quelldruck im Bereich von 0.8×10^{-2} mbar bis 2.2×10^{-2} mbar, die auch für alle weiteren Betrachtungen dieser Arbeit als Grundlage dienen:

$$\begin{aligned}\dot{N}_0(p) &\approx (-3.5 + 6.5 \cdot p/10^{-2} \text{ mbar}) 10^{13} \text{ Atome/s} \\ \dot{N}_0(1.1 \times 10^{-2} \text{ mbar}) &= 3.5 \times 10^{13} \text{ Atome/s (Fluss direkt hinter Quelle)} \\ \dot{N}(1.1 \times 10^{-2} \text{ mbar}, 180 \text{ mm}) &= 1.75 \times 10^{13} \text{ Atome/s (Fluss in 18 cm Abstand)}\end{aligned}$$

Der Verlust aufgrund von Kollisionen auf den ersten 18 cm beträgt bei 1.1×10^{-2} mbar bereits über 30%. Bei einer Probenmenge von 0.4 mbar·l/min folgt für die Quelle eine Anregungseffizienz von 2.3×10^{-4} . Mit einer atmosphärischen Zählrate von 2.7 Atome/h werden schlussendlich ca. 2.5% aller ursprünglich angeregten ^{39}Ar -Atome gefangen.

3.4 Transversale Geschwindigkeitsverteilungen nach der Kollimation

Im Rahmen eines Umbaus an den Pumpstufen und der Vakuumanlage bestand die Möglichkeit, den Atomstrahl hinter dem Kollimator in der MOL-Kammer frontal von vorne mittels Fluoreszenz zu analysieren (Abb. 3.7 a)). Eine frontale Beobachtung hat den Vorteil, dass ein vollständiger zweidimensionaler Querschnitt durch den Atomstrahl möglich ist und somit Asymmetrien in der Ausrichtung sichtbar werden. Experimentell besteht jedoch die Schwierigkeit, dass die Kamera auch direkt in die Quelle schaut. Folglich ist der Hintergrund im Vergleich zum Signal sehr hoch und schwankt stark. Diese Probleme führen trotz einer automatisierten abwechselnden Aufnahme von Untergrund und Daten und langen Beobachtungszeiten von bis zu 1 h, zu keinen verwertbaren Ergebnissen. Die Erfahrungen führten jedoch zu der verbesserten Methode mittels eines um 45° verkippten „sheet of light“, wie es beim Atomstrahl-Analyse-Tool (vgl. Abschnitt 3.5) eingesetzt wird.

Alternativ betrachtet eine Kamera von oben das Fluoreszenzlicht (Abb. 3.7 a)). Dabei verliert man die Information über die vertikale Richtung. In horizontaler Richtung kann jedoch weiterhin das Strahlprofil aufgelöst werden. Abbildung 3.8 zeigt die allgemeine Vorgehensweise.

Ergebnisse einer solchen transversalen Geschwindigkeitsmessung in der MOL-Kammer sind in Abb. 3.10 für die vier Fälle mit und ohne Kollimator sowie mit und ohne Stickstoff-Kühlung zusammengefasst. Aufgrund geometrischer Beschränkungen erreichen nur Atome bis zu einem maximalen Verhältnis aus transversaler und longitudinaler Geschwindigkeit den Bereich der Fluoreszenz-Messung in der MOL. Diese geometrische Kollimation führt dazu, dass ohne Kollimator eine geringere Breite der Geschwindigkeitsverteilung gemessen wird als direkt hinter der Quelle, wo unabhängig von der Kühlung $\sigma_{v_t} = 70 \text{ m/s}$ beträgt. Dieser Effekt der geometrischen Kollimation ist mit einer gekühlten Quelle wegen der geringeren longitudinalen Geschwindigkeit deutlich stärker und damit die Geschwindigkeitsverteilung schmaler. Der Kollimator reduziert die transversale Geschwindigkeit ohne Kühlung auf $\sigma_{v_t} = 4.6 \text{ m/s}$. Bei einer längeren Wechselwirkungszeit durch eine reduzierte

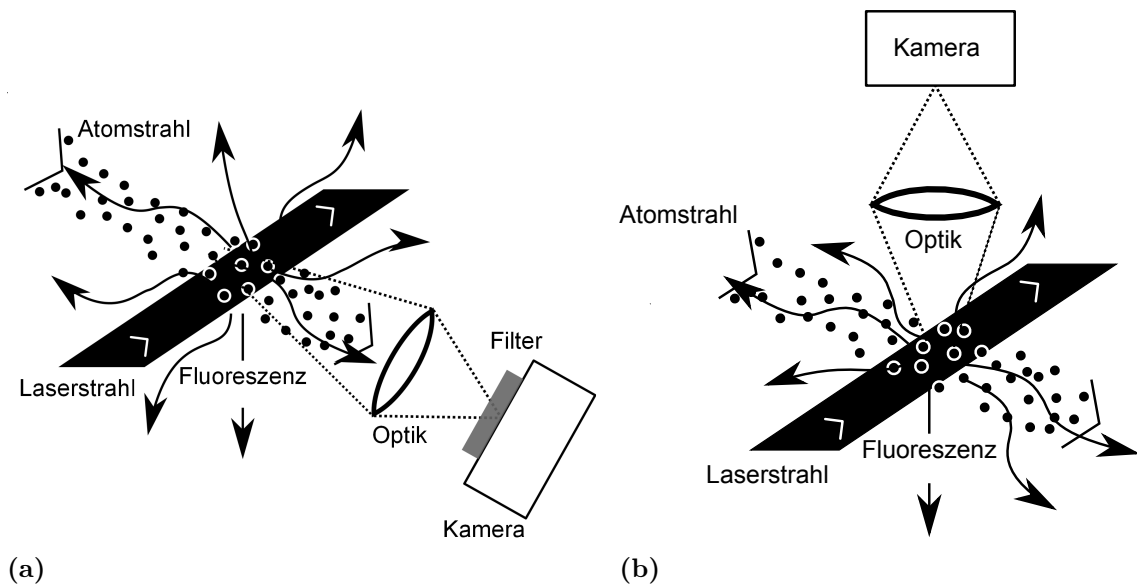


Abbildung 3.7: Skizze zur Bestimmung der transversalen Geschwindigkeiten mittels Fluoreszenz: a) Beobachtungsrichtung frontal von vorne b) Beobachtung von oben

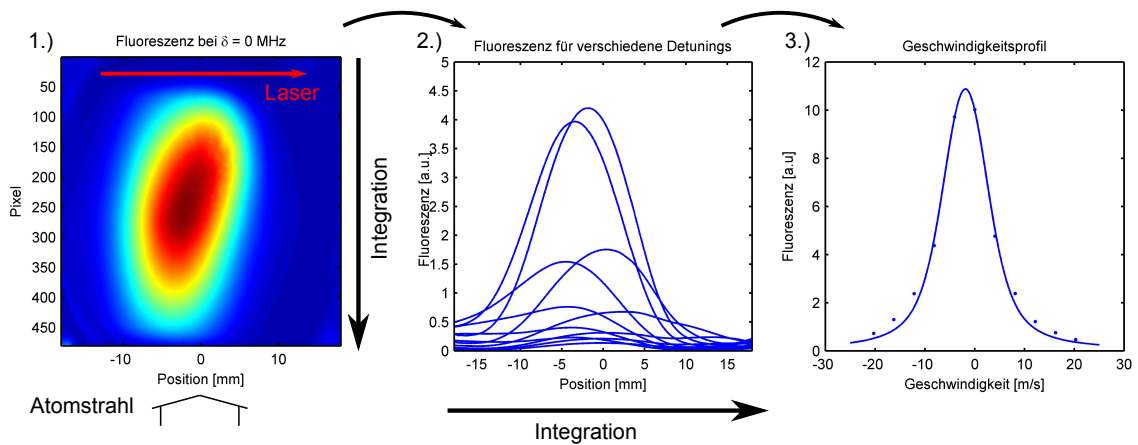


Abbildung 3.8: Methodik zur Bestimmung eines transversalen Geschwindigkeitsprofils: 1.) Für verschiedene Laserfrequenzen werden Bilder der Fluoreszenz aufgenommen. 2.) Durch Integration über die Längsachse ergibt sich ein eindimensionales Profil über die horizontale Achse für die der Laserfrequenz entsprechenden Geschwindigkeiten. 3.) Integration über die horizontale Achse für alle Laserfrequenzen liefert ein über den gesamten Querschnitt gemittelt dopplerverbreitertes Linienprofil. Ein Fit einer Voigt-Funktion ergibt die transversale Geschwindigkeitsverteilung der Atome.

longitudinale Geschwindigkeit mit einer gekühlten Quelle wird eine noch geringere transversale Endgeschwindigkeit von $\sigma_{v_t} = 3.1 \text{ m/s}$ erreicht.

Das Auftreten eines Geschwindigkeits-offset kann, wie in Gleichung 3.6 erläutert, durch einen zum Atomstrahl verkippten Laserstrahl erklärt werden. Um einen zur Hauptachse der Apparatur verkippten Atomstrahl zu erkennen, wurde die Längsachse durch den ZSL-Strahl definiert (Abb. 3.9). Der resonante waagrechte Laserstrahl macht wie bisher das Profil des Atomstrahls sichtbar. Es ist eine deutliche Abweichung von 5 mm zur Längsachse, die durch den ZSL-Laser markiert ist, sichtbar. Um dieses Problem genauer zu untersuchen, wurde das Atomstrahl-Analyse-Tool aufgebaut (vgl. Abschnitt 3.5). Dort wird nochmals näher auf einen verschobenen Atomstrahl eingegangen.

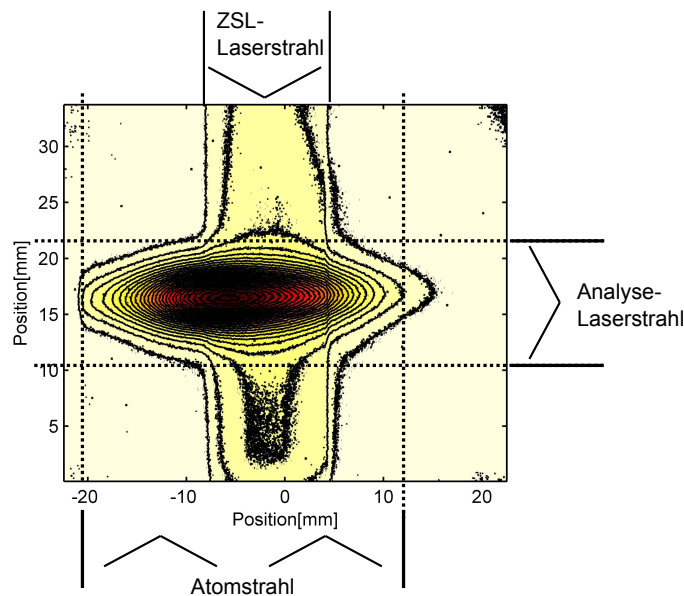


Abbildung 3.9: Fluoreszenz von ZSL (senkrecht) markiert die Längsachse der Apparatur und durch den Analyse-Laser (waagrecht) wird das Atomstrahlprofil sichtbar. Es ist eine deutliche Verschiebung des Atomstrahls von über 5 mm erkennbar.

Bisher wurde noch nicht ausgenutzt, dass bei hinreichender Qualität der Daten, ein Dichte-Profil und ein Geschwindigkeitsprofil über die horizontale Richtung erstellt werden kann. Dies ist für die Konstruktion der Pumpröhrchen interessant. In Abbildung 3.11 sind solche Profile mit und ohne Kollimation dargestellt.

²Der Wert $I_s = 34.4 \text{ W/m}^2$ stammt aus einer früheren Messung in einer ähnlichen Anordnung.

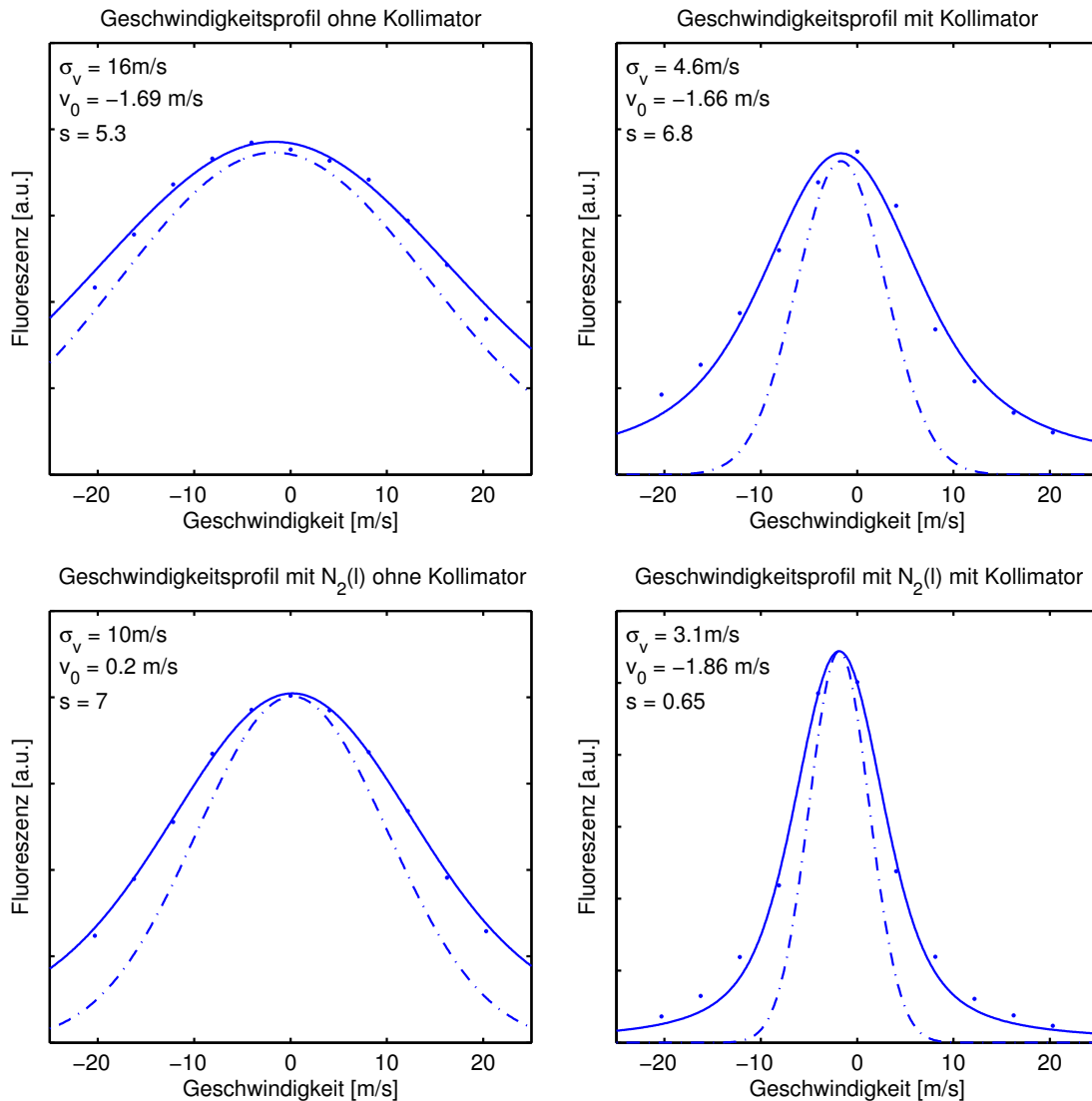


Abbildung 3.10: Transversale Geschwindigkeitsprofile: Durchgezogene Linie Fit mit Voigt-Linienprofil, gestrichelte Linie resultierendes Geschwindigkeitsprofil. Für die Berechnung des Sättigungsparameter wurde $I_s = 34.4\text{ W/m}^2$ verwendet². Die Ergebnisse der Fits stehen jeweils links oben.

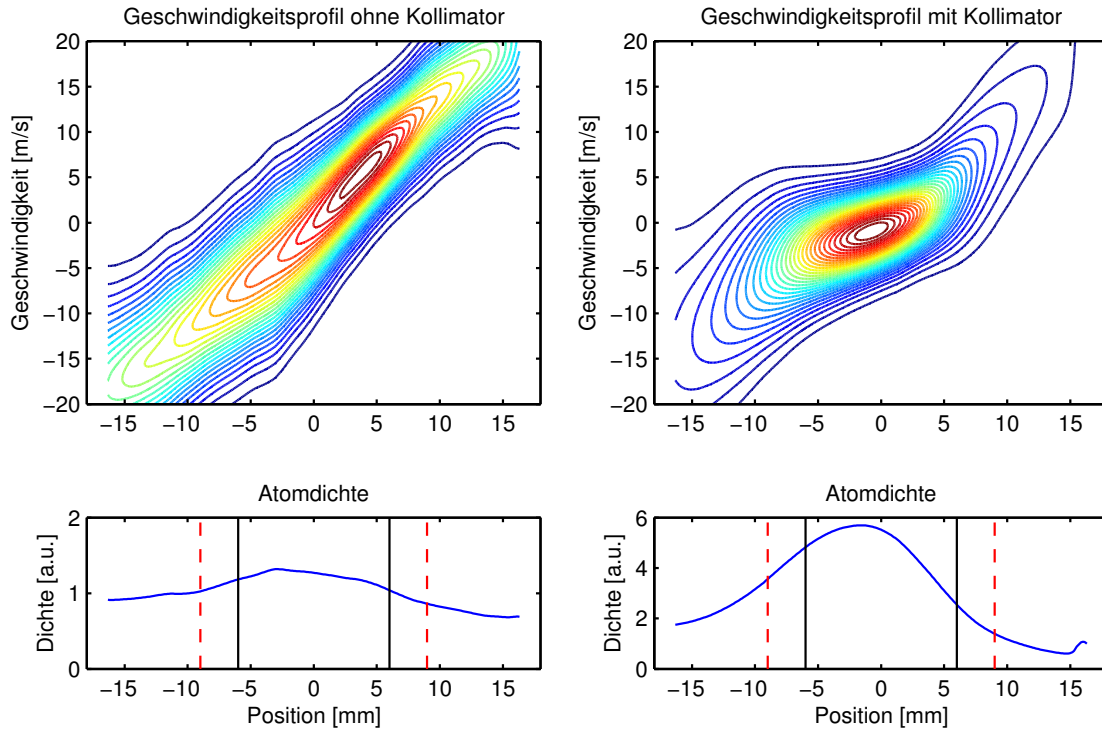


Abbildung 3.11: Dichte- und Geschwindigkeitsprofil aufgetragen über die Position entlang der transversalen Achse. Die oberen beiden Konturen zeigen in y -Richtung die Geschwindigkeitsverteilung am Punkt x . Ohne Kollimation separieren sich die Atome nach ihren Geschwindigkeiten, transversal schnellere Atome bewegen sich bei gleicher longitudinaler Geschwindigkeit weiter nach außen. Die mittlere Geschwindigkeit und der Ort hängen folglich linear zusammen. Der Kollimator kühlt die Atome innerhalb seines Empfangsbereichs. In einem Bereich von ca. 16 mm um das Zentrum des Atomstrahls herum hat das Profil nun eine mittlere Geschwindigkeit von fast 0 m/s. Die meisten Atome außerhalb sind transversal zu schnell für eine Kollimation und das Profil ähnelt hier dem ohne Kollimator. Die senkrechten Linien markieren die Ausdehnung des 1. Pumpröhrchens (durchgezogen: vor der Optimierung, gestrichelt: aktuell).

Versuch einer genaueren Messung der Geschwindigkeitsverteilungen

Problematisch bei der Messung transversaler Geschwindigkeitsprofile im Bereich von einigen Metern pro Sekunde ist, dass die sättigungsverbreiterte Linienbreite $\Delta\nu_n\sqrt{1+s}$ und die Doppler-Verbreiterung $\sigma_D := \nu_0\frac{\sigma_v}{c}$ in derselben Größenordnung liegen. Zudem ist für ein hinreichend starkes Fluoreszenz-Signal auch genügend Laserpower nötig, so dass der Sättigungsparameter $s = \frac{I}{I_s}$ bis zu 10 betragen kann. Seine Kenntnis ist daher für eine genaue Bestimmung der transversalen Geschwindigkeit entscheidend. Die Leistung I lässt sich im Laser noch genau messen, jedoch hängt I_s auch von der Polarisation der Atome und der Versuchsanordnung ab und wird daher über dem theoretischen Wert für ein Zwei-Niveau-System von $I_s = 14.4 \text{ W/m}^2$ liegen.

Eine Möglichkeit, die Werte für die Geschwindigkeitsbreiten zu überprüfen, besteht darin, das Geschwindigkeitsprofil über einen großen Bereich von s zu messen. Wurde ein korrektes I_s für die Auswertung herangezogen, so sollte die berechnete Breite der Geschwindigkeitsverteilung keine Abhängigkeit vom Sättigungsparameter zeigen. I_s als freien Fitparameter einzuführen und über alle Linienprofile aller Sättigungsparameter zu optimieren, ist mit einem angemessenen Rechenaufwand nicht möglich bzw. numerisch zu instabil. Die Linienprofile einer solchen Messung für Sättigungsparameter von 0.02 bis 5 sind in Abbildung 3.12 zu sehen. Aus einer solchen Messung ergibt sich eine der Kurven in Abbildung 3.13. Dort sind die berechneten Breiten der Geschwindigkeitsverteilungen σ_{v_t} in Abhängigkeit des Sättigungsparameters s für die vier Konfigurationen, mit und ohne Kühlung der Quelle sowie jeweils mit und ohne MOL, aufgetragen. Der Kollimator ist bei jeder der Messungen in Betrieb. Erfolgt die Berechnung der Breiten der Geschwindigkeitsverteilungen mit $I_s = 34.4 \text{ W/m}^2$, so zeigen die beiden Kurven mit einer gekühlten Quelle keine eindeutige Abhängigkeit von s . Für die beiden Kurven ohne Kühlung fällt σ_{v_t} hingegen mit kleinerem s . Im Prinzip sollten die Kurven für $s \rightarrow 0$ gegen die tatsächliche Breite der Geschwindigkeitsverteilung konvergieren. Jedoch wird für kleinere s die Fluoreszenz so schwach, dass der Voigt-Fit des Linienprofils sehr ungenau wird und damit eine Extrapolation zu $s = 0$ nicht möglich ist.

Der Effekt der Stickstoffkühlung und vor allem der Effekt der MOL lässt sich aus den Messungen dennoch abschätzen. Die Tendenz für $s \rightarrow 0$ zeigt, dass die Stickstoffkühlung die transversale Geschwindigkeit aufgrund einer effektiveren Kollimation nahezu halbiert. Zusätzlich reduziert die MOL die Geschwindigkeit weiter. Auch sie ist effektiver, sobald die Quelle gekühlt wird. Die geringe longitudinale Geschwindigkeit bewirkt dabei eine längere Wechselwirkungszeit in der MOL. So können die Atome transversal unter $\sigma_{v_t} = 1 \text{ m/s}$ gekühlt werden.

Ein Nachteil dieser Messmethode liegt darin, dass eine große Anzahl von Messpunkten aufgenommen werden muss, da für jeden Sättigungsparameter ein vollständiges Linienprofil gemessen wird, wofür wiederum ca. 10 Datenpunkte bei unterschiedlichen Laserfrequenzen nötig sind. Zudem wird die I_s -Problematik auch hierbei nicht vollständig gelöst.

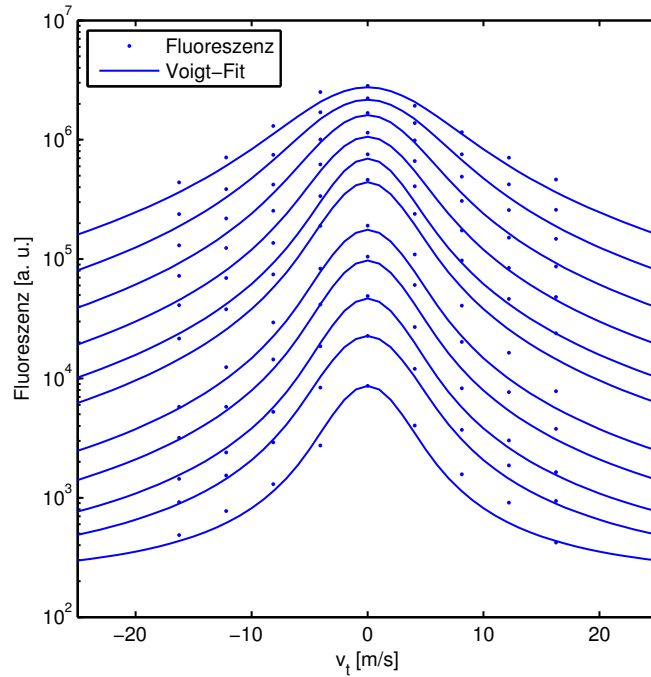


Abbildung 3.12: Linienprofile gemessen für Sättigungsparameter von 0.02 bis 5

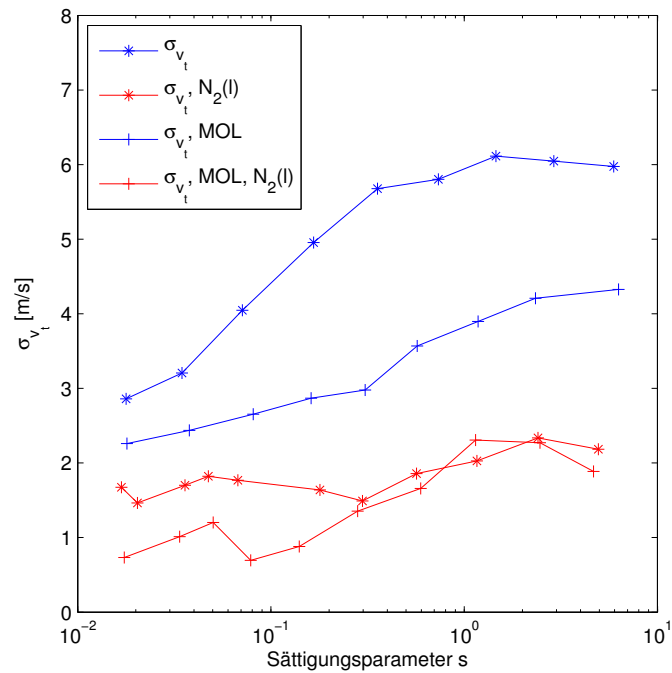


Abbildung 3.13: Aus der Fluoreszenz berechnete Breite der Geschwindigkeitsverteilung σ_{v_t} in Abhängigkeit des Sättigungsparameters s , jeweils mit Kollimator für die vier Fälle: Mit und ohne MOL und jeweils mit und ohne Stickstoffkühlung

3.5 Atomstrahl-Analyse-Tool

Mit den Erfahrungen aus der Strahl-Charakterisierung wurde ein permanenter Aufbau zur zweidimensionalen Atomstrahl-Analyse hinter der MOT entwickelt. Die Atome werden in einem um 45° zur horizontalen Ebene verkippten „sheet of light“ zur Fluoreszenz angeregt. Bei einer Beobachtung mit einer Kamera von unten wird auf diese Weise ein unverzerrtes zweidimensionales Bild des Atomstrahl-Querschnittes gemessen. Die genaue Geometrie ist in Bild 3.14 zu sehen. Zweidimensionale Bilder sind nur für ^{40}Ar und große Laserleistung sichtbar. Daher wird für das „sheet of light“ der TA für die ^{39}Ar -Rückpumper mit einem 500 mW-Chip verwendet. Sein Licht kann über einen Klappspiegel während der Atomstrahl-Analyse umgelenkt werden und gelangt über eine optische Faser vom optischen Tisch an die Vakuumapparatur. Das „sheet of light“ muss eine homogene Intensitätsverteilung aufweisen. Die Optik hierfür ist in Abbildung 3.14 skizziert. Der Klappspiegel, über den das Laserlicht in die Faser eingekoppelt wird, muss gelegentlich nachjustiert werden, zudem schwankt die TA-Power mit der Zeit. Um dennoch die Messungen miteinander vergleichen zu können, sammelt eine Photodiode etwas Streulicht am Rand der Zylinderlinse auf. Ihre Spannung dient als Referenz für die Laser-Power und zum Koppeln der Faser. Im Prinzip kann darüber auch die TA-Power stabilisiert werden. Streulicht wird softwareseitig durch Subtraktion von Hintergrundbildern berücksichtigt, zudem wird für ein stärkeres Signal über 5 bis 10 Bilder integriert.

Das Atomstrahl-Analyse-Tool ist aufgrund seiner Entfernung von über 2 m zum Kollimator und zur MOL sehr sensitiv auf die Ausrichtung des Atomstrahls. Der Atomstrahl zeigte eine deutliche Abweichung von der Mittelachse. Eine flexible Montage des Quellröhrchen ergab nur einen geringen Einfluss der Ausrichtung des Quellröhrchen auf die Ausrichtung des Atomstrahls. Vielmehr definieren die Spiegelwinkel des Kollimators die Achse des Atomstrahls. Bei der ursprünglichen Version des Kollimators war für jede Achse nur einer der beiden Spiegel variabel, über einen Schrittmotor einstellbar, montiert. Der jeweils gegenüberliegende Spiegel hingegen war fixiert. Die beiden Schrittmotoren dienen zur Optimierung der räumlichen Änderung des Laserwinkels zum Atomstrahl im Kollimator. Eine variable Ausrichtung der Kollimator-Achse zur Vakuumapparatur war nicht vorgesehen. Um die Ausrichtung der Kollimator-Achse einstellen zu können, wurde jener auf eine Art riesigen Spiegelhalter montiert (Abb. 3.15). Durch diese Lösung wird der Kollimator im Ganzen verkippt, der Winkel zwischen den beiden Spiegel bleibt hingegen erhalten.

Um die beiden neuen Freiheitsgrade justieren zu können, werden die Laser der MOL blockiert, damit die Wirkung des Kollimators ohne eine Überlagerung der MOL beobachtet wird. Zunächst wird über die Schrittmotoren für jede Achse der Spiegelwinkel zueinander optimiert. Hier erwies sich das Atomstrahl-Analyse-Tool als äußerst sensitiv, so dass bereits 10prad zur einer deutlichen Veränderung im Fluoreszenz-Signal führen. Anschließend wird der gesamte Kollimator so ausgerichtet, dass der Atomstrahl mittig die Apparatur passiert. In einem zweiten Schritt wird zusätzlich die MOL justiert. Da ihre Laser-Frequenz nicht unabhängig von der MOT eingestellt werden kann, stehen hier für eine Justierung nur die Winkel zwischen Laser

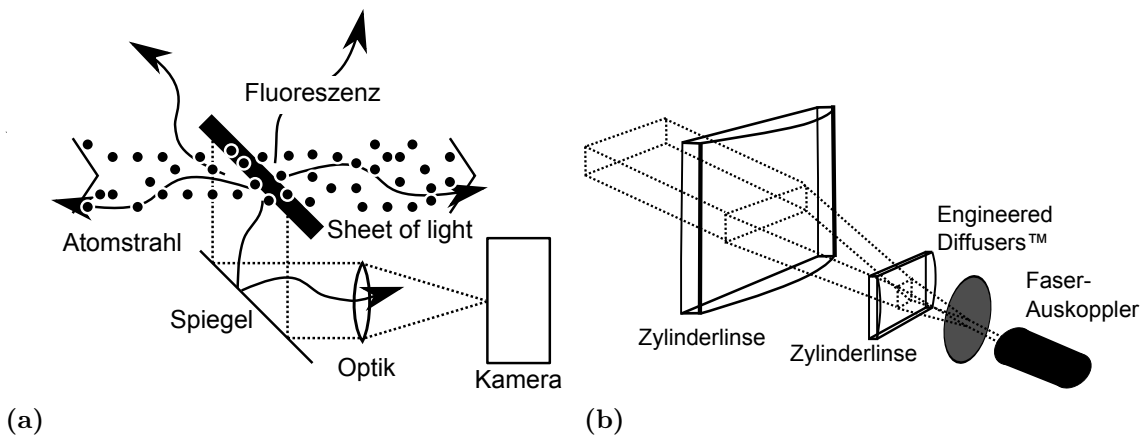


Abbildung 3.14: Atomstrahl-Analyse-Tool: a) Geometrie der Abbildung: Ein „sheet of light“, welches um 45° zur horizontalen Ebene verkippt ist, regt die Atome in einer Ebene senkrecht zum Atomstrahl zur Fluoreszenz an. Eine Kamera, mit einer Auflösung von 480 auf 680 Pixel, schaut über einen ebenfalls um 45° verkippten Spiegel auf die Ebene der Fluoreszenz. Dadurch erhält man ein unverzerrtes Bild des Atomstrahl-Querschnittes. b) Optik zur Erzeugung eines homogenen „sheet of light“: In einem Engineered Diffuser von RPC Photonics [23] mit einer Transmission von 90% wird aus dem kollimierten Strahl mit einem gaußförmigen Intensitätsprofil zunächst ein homogenes rechteckiges Profil mit einem Öffnungswinkel von 100° erzeugt. Zwei Zylinderlinsen kollimieren anschließend den Strahl in jede Richtung, so dass sich ein 2 mm auf 50 mm großes „sheet of light“ ergibt.

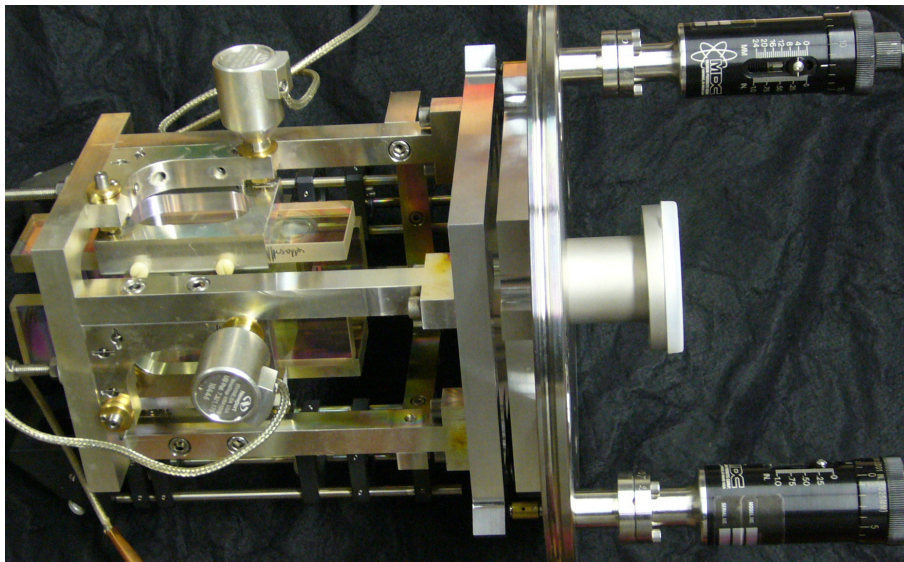


Abbildung 3.15: Kollimator: Für eine variable Ausrichtung der Kollimator-Achse wurde jener auf eine Art riesigen Spiegelhalter montiert, der über mechanische Vakuumdurchführungen bedient wird.

und Atomstrahl zur Verfügung sowie die Polarisation des Laserlichts. Es gibt Bemühungen für die MOL, einen weiteren unabhängigen Laserstrahl aufzubauen. Abbildung 3.16 zeigt sechs Beispiele für unterschiedliche Atomstrahlmanipulationen. Neben dem Kamerabild sind auch die über Breite bzw. Höhe integrierten Intensitäten dargestellt. In den beiden Profilen der obersten Zeile war jeweils nur eine Kollimator-Achse in Betrieb. Es ist deutlich sichtbar, wie der Strahl in einer Richtung komprimiert wird, in der anderen weiterhin stark divergent ist. In der mittleren Zeile sind im linken Bild beide Kollimator-Achsen eingeschaltet. Im rechten Bild kommt die Linse hinzu, die eine weitere Fokussierung des Atomstrahls bewirkt. Links unten ist zusätzlich der ZSL an. Die Atome weichen in die rechte obere und etwas in die linke untere Ecke aus, was auf eine Asymmetrie in der Apparatur bzw. fehlerhafte Justage hinweist. Die Intensität steigt stark an, da die Atome durch den ZSL in longitudinaler Richtung abgebremst werden und damit länger im „sheet of light“ verweilen. Das letzte Bild zeigt die Fluoreszenz ohne jegliche Kollimation. Die Intensität ist weit über eine Größenordnung gegenüber dem Maximalwert geringer. Die Stärke des Atomstrahl-Analyse-Tool liegt im Ausrichten des Atomstrahls, da es eine zweidimensionale Analyse des Atomstrahls ermöglicht. Jedoch gibt es keinen Aufschluss über die Laderate in der MOT. ZSL und MOT können damit folglich nicht optimiert werden. Da für das Atomstrahl-Analyse-Tool nur ^{40}Ar in Frage kommt, versagt es auch bei allen Fragen, die Rückpumper betreffen. Hierfür wurde ein MOT-Fluoreszenz-Tool entwickelt, welches Inhalt des nächsten Abschnittes ist.

3.6 MOT-Fluoreszenz-Tool

Das MOT-Fluoreszenz-Tool ist eine grafische Oberfläche, die für eine einfache Bedienung der Kamera zur Beobachtung der MOT und zur Echtzeitanalyse der MOT-Fluoreszenz entwickelt wurde. Es dient zur Ausrichtung der Faser, die für die Einzelatom-Detektion genutzt wird, in Bezug auf die MOT Position. Zudem können die Polarisation der MOT-Strahlen sowie die Kompensationsspule justiert werden. Durch Integration über Teilbereiche des Bildes ergibt sich die gesamte MOT-Fluoreszenz, die als Indikator für die Laderate der MOT dient. Somit können, im Gegensatz zum Atomstrahl-Analyse-Tool, auch der ZSL und die MOT selbst optimiert bzw. schnell auf ihre korrekte Funktion getestet werden. Stärke des MOT-Fluoreszenz-Tools ist ein über 6 Größenordnungen sich erstreckender Messbereich, von einer ^{39}Ar -MOT bei einer ^{39}Ar -Konzentration von 10^{-9} mit ca. 200 Atomen (Abbildung 2.5) bis hin zur einer ^{38}Ar -MOT mit mehr als 10^6 Atomen. Bei Belichtungszeiten von 100 ms sind auf den Kamerabildern einzelne Argon-Atome sichtbar. Eine ^{40}Ar -MOT hingegen eignet sich nicht mehr, da hier die Kamera selbst bei minimaler Belichtungszeit von $10\ \mu\text{s}$ in Sättigung ist. Eine Optimierung mit einer ^{39}Ar -MOT hat den entscheidenden Vorteil, dass damit auch alle Rückpumper sowie ^{39}Ar -spezifische Unterschiede in der Wechselwirkung mit Magnetfeldern analysiert werden können.

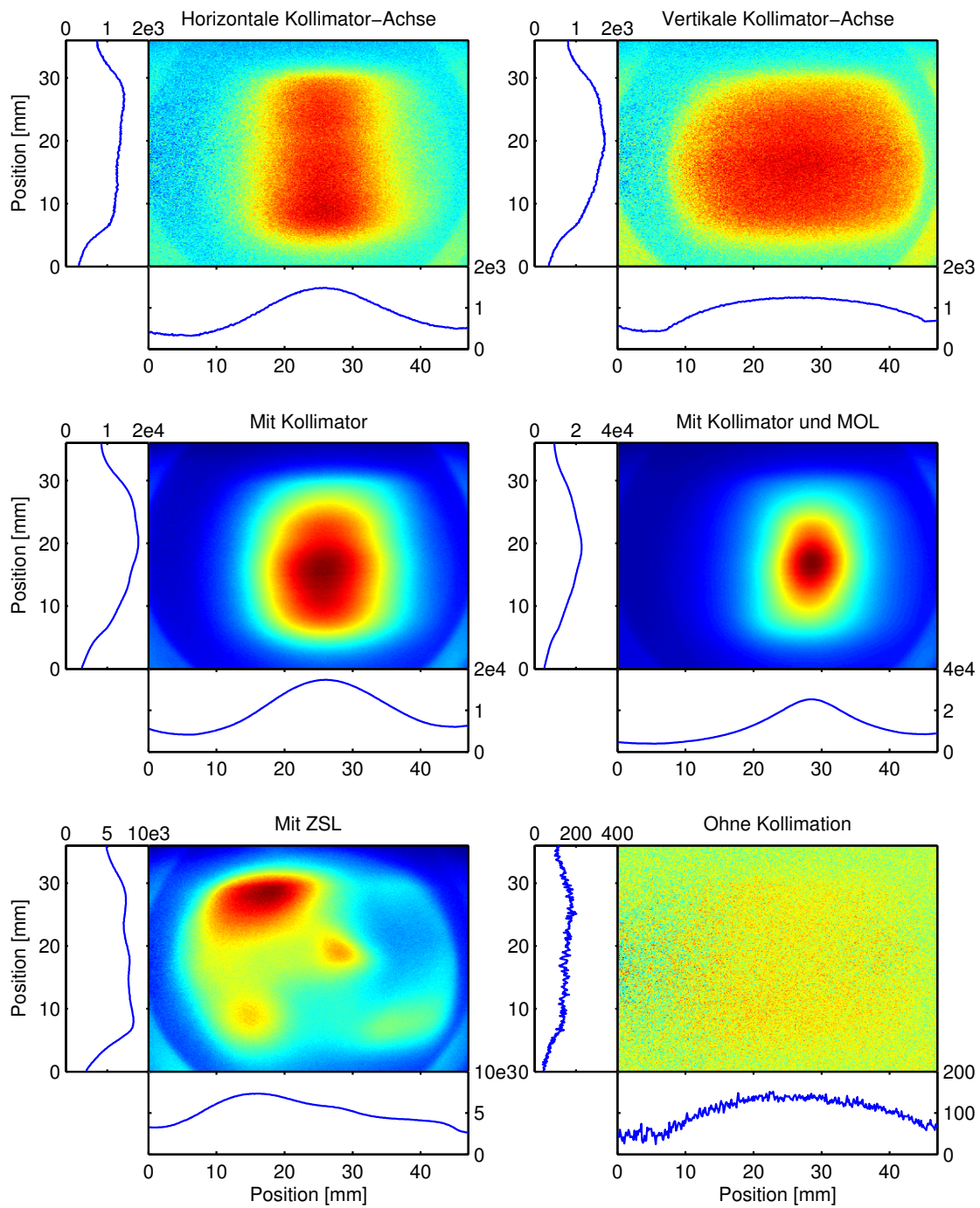


Abbildung 3.16: Aufnahmen des Atomstrahlprofils sowie die über die Breite bzw. Höhe integrierte Intensität für unterschiedliche Konfigurationen. Für eine detaillierte Beschreibung siehe Text.

3.6.1 MOT-Fluoreszenz und MOT-Laderate

Generell spielen drei Größen bei der Optimierung der MOT in Hinblick auf das Zählen einzelner Atome eine entscheidende Rolle. Die Laderate R , d.h. die Anzahl an Atomen, die pro Sekunde durch die MOT eingefangen werden, spiegelt direkt die ^{39}Ar -Zählrate bei atmosphärischen oder Wasserproben wieder. Um die Messzeit in einem akzeptablen Rahmen zu halten, ist es daher erstes Ziel, jene auf ein möglichst hohes und stabiles Niveau zu bringen. Dabei dürfen zwei Parameter nicht außer Acht gelassen werden, die für die Detektion einzelner Atome wichtig sind: Die Lebensdauer τ und die Photonen Streurrate γ_p eines einzelnen Atoms bzw. die Photonenzählrate eines einzelnen Atoms cr auf der APD. Für eine sichere Detektion müssen $\tau > 100$ ms und $cr > 15$ kcps sein. Häufig steht eine hohe Zählrate in Konkurrenz mit dem Einzelatomsignal und der Lebensdauer.

Das integrierte Kamerabild, das Fluoreszenzlicht in der Kamera aller gefangenen Atome, im Folgendem mit Φ bezeichnet, ist jedoch proportional zur Anzahl der Atome in der MOT N und zur Streurrate γ_p eines einzelnen Atoms: $\Phi = \eta \cdot \gamma_p \cdot N$. Dabei ist η die Effizienz der optischen Abbildung einschließlich der Quanteneffizienz der Kamera. Die zeitliche Entwicklung der gefangenen Atome N ist bis zur quadratischen Ordnung über eine gewöhnliche Differentialgleichung gegeben [24, 17, 25]:

$$\frac{dN}{dt} = R - \alpha N - \beta N^2 \quad (3.11)$$

Der lineare Verlust-Term wird durch den Koeffizienten α charakterisiert und enthält Ein-Körper-Verluste durch Kollisionen mit dem Hintergrundgas und für ^{39}Ar spezifische Verluste über die Hyperfeinstruktur. Der quadratische Term repräsentiert Stöße der gefangenen Atome untereinander und wird durch den Koeffizienten β beschrieben. Für das Laderaten-Tool sind zwei Grenzfälle von Bedeutung:

Stationärer Zustand Der stationäre Zustand ergibt sich aus der Bedingung $\frac{dN}{dt} = 0$ und spiegelt experimentell die Situation wieder, dass die MOT kontinuierlich geladen wird. Laderate und Verluste heben sich gegenseitig auf. In diesem Fall folgt aus Gleichung 3.11:

$$N = \frac{\alpha - \sqrt{\alpha^2 + 4\beta R}}{-2\beta} \quad (3.12)$$

Der quadratische Term führt dazu, dass die gemessene Fluoreszenz im stationären Fall nicht linear mit der Laderate ansteigt, sondern abflacht. Typischerweise ist die MOT nach 10 ms in einem stationären Zustand.

Direkte Messung der Laderate Für eine direkte Messung der Laderate hingegen muss die Ladekurve zu Beginn des Ladevorgangs, nach einer Zeit $t \ll 10$ ms, gemessen werden, solange die Verlustterme aufgrund der geringen Atomanzahl nur eine untergeordnete Rolle spielen. Dort ergibt sich näherungsweise ein linearer Anstieg mit der Zählrate: $N = R \cdot t$. Experimentell bedeutet dies, dass

die MOT für eine kurze Zeit ausgeschaltet wird, damit sie sich vollständig entleert und anschließend wieder zu einem definierten Zeitpunkt angeschaltet wird. Ideal eignet sich hierfür ein AOM, der ein sehr schnelles Schalten des Laserstrahls erlaubt. Da im aktuellen Lasersystem MOT und MOL mit derselben Frequenz über denselben TA gespeist werden, ist dies nur ohne MOL möglich, denn Atome, die durch die MOL fokussiert werden, erreichen erst nach ca. 15 ms den Einfangbereich der MOT. Ein Schalten nur der MOT-Strahlen über ein Chopper oder Shutter ist bei einer Repetitionsrate von 10 Hz, die durch die maximale Bildrate der Kamera gegeben ist, nicht möglich. Aufgrund der Ausdehnung des Laserstrahls ist bei dieser Variante der Zeitpunkt des Anschaltens nicht präzise definiert. Eine weitere Möglichkeit, die ^{38}Ar -MOT zu leeren und ab einem definierten Zeitpunkt zu befüllen, besteht in einem ^{38}Ar -Quench. Solange jener in die MOT eingestrahlt wird, werden alle ^{38}Ar -Atome im metastabilen Zustand abgeregt und können somit nicht mehr in der MOT gefangen werden. Wird er abgeschaltet, beginnt sich die MOT zu füllen.

In Abbildung 3.17 sind in der linken Hälfte gemessene Ladekurven für zwei unterschiedliche Kollimator-Laserleistungen, d.h. für zwei unterschiedliche Kollimator-Effizienten, dargestellt. Bis 3 ms steigt die Fluoreszenz linear an. Danach nehmen die Verluste zu und die Ladekurve sättigt. Ab ca. 7 ms ist ein Gleichgewicht erreicht. In der rechten Hälfte ist zusätzlich die MOL aktiv. Deutlich ist ein zweiter Anstieg nach 15 ms zu erkennen, denn erst dann erreichen die durch die MOL manipulierten Atome die MOT. Alle Ladekurven zeigen einen zeitlichen offset von ca. 1 ms. Eine plausible Erklärung liegt im Zusammenspiel zwischen ZSL, Booster und MOT. Die Endgeschwindigkeit des ZSL liegt über der Einfanggeschwindigkeit der MOT, um das transversale Auseinanderfließen des Atomstrahls auf den letzten Zentimetern vor der MOT zu minimieren. Die Atome passieren folglich das Zentrum der MOT, erfahren hier bereits eine transversale Kühlung, und werden danach erst durch den Booster unter die Einfanggeschwindigkeit abgebremst und durch die MOT-Strahlen in das Zentrum gedrückt und dort gefangen. Folglich dauert es nach dem Anschalten der MOT noch ca. 1 ms, bis sich die Atome vom Punkt, an dem sie mit dem Booster wechselwirken, zurück ins Zentrum der MOT bewegt haben. Dieser Effekt kann auch auf der Kamera beobachtet werden. Die MOT füllt sich vom Apparaturende her mit Atomen.

Um den Unterschied zwischen der Laderate und der MOT-Fluoreszenz, dem Gleichgewichtszustand, deutlich zu machen, kann mit der Laserintensität im Kollimator die Laderate über mehr als zwei Größenordnungen variiert werden (siehe Abb. 3.18). Eindeutig ist zu erkennen, dass ab 30 mW die MOT-Fluoreszenz als Folge des quadratischen Beitrags in Gleichung 3.11 abflacht und nicht mehr linear zur Laderate ist. Dies äußert sich auch im gesamten Verstärkungsfaktor des Kollimators (Tab. 3.2).

Der Faktor 205 des Kollimators in der Laderate und in der ^{39}Ar -Zählrate ergibt in der ^{38}Ar -MOT-Fluoreszenz nur einen Faktor 65. Zum groben Optimieren ist die ^{38}Ar -MOT geeignet, um jedoch absolute Verstärkungsfaktoren zu messen, muss di-

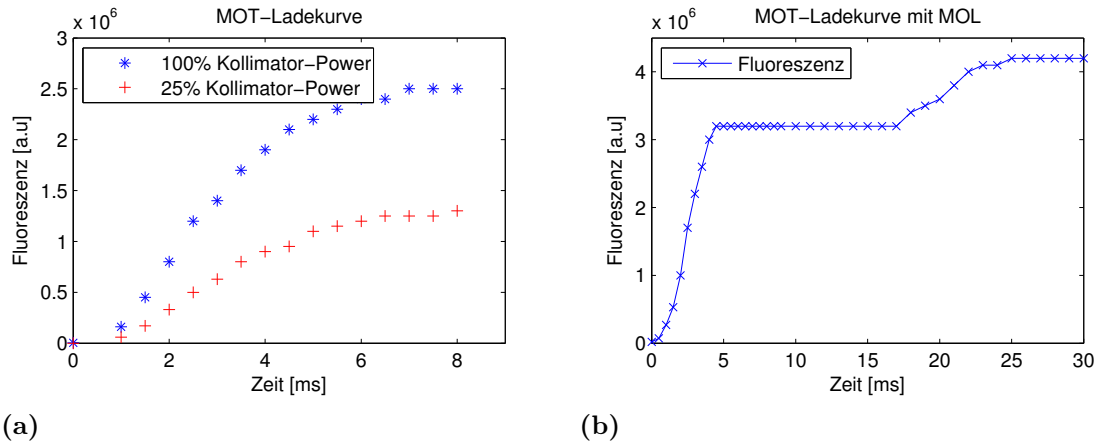


Abbildung 3.17: Ladekurven der MOT a) ohne MOL b) mit MOL: Deutlich ist ein zweiter Anstieg der Fluoreszenz nach 15 ms zu sehen.

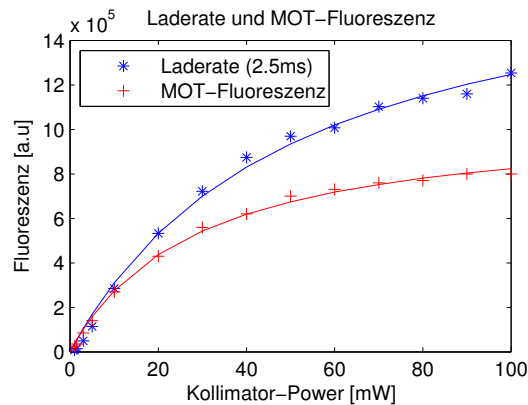


Abbildung 3.18: MOT-Laderate und MOT-Fluoreszenz im Vergleich aufgetragen über die Kollimator-Power. Für die Laderate wurde die Fluoreszenz nach 2.5 ms gemessen. Die Kurven sind so skaliert, dass ihr linearer Anfang übereinstimmt. Dadurch wird das vorzeitige Sättigen der MOT-Fluoreszenz deutlich.

Tabelle 3.2: Effizienz des Kollimators gemessen mit vier unterschiedlichen Methoden

Methode	ohne Kollimator	mit Kollimator	Faktor
^{40}Ar -Fluoreszenz	2.8×10^4 a.u.	3.7×10^6 a.u.	132
^{38}Ar -MOT	2.0×10^4 a.u.	1.3×10^6 a.u.	65
^{38}Ar -Laderate	2.0×10^4 a.u.	4.1×10^6 a.u.	205
^{39}Ar -Zählrate (inkl. Rückpumper)	0.15 Atome/min	30 Atome/min	200

rekt auf die Laderate zurückgegriffen werden. Wie bereits erwähnt ist dies bisher wegen bautechnischer Besonderheit nicht mit der MOL möglich. Bei ^{39}Ar kommt zum Effekt des transversalen Kühlens im Kollimator auch noch ein Effekt durch das Umpumpen der Hyperfeinstruktur hinzu. Dies wird im Kapitel 4.2 genauer untersucht.

3.6.2 Abkühlprozess der Quelle

Zum Abschluss dieses Kapitels sollen noch zwei Beispiele der Anwendung dieser Tools dargestellt werden. Zunächst der Abkühlprozess der Quelle und im nächsten Abschnitt die Optimierung des ZSLs. Beim Abkühlen der Quelle mit flüssigem Stickstoff hat sich das Laderaten-Tool mit ^{38}Ar als sehr praktisch herausgestellt. In der Abbildung 3.19 sind im Vergleich Messungen während des Abkühlens mit dem Laderaten-Tool, mit dem Atomstrahl-Analyse-Tool und mit der ^{39}Ar -Zählrate bei einer Anreicherung auf 10^{-12} dargestellt. Die ^{38}Ar - MOT, aber auch die ^{40}Ar -Fluoreszenz zeigen, wann die Kurven ihr Endniveau erreichen haben und damit die Quelle vollständig abgekühlt ist. Zudem bieten die Endwerte einen schnellen Check, ob die nicht- ^{39}Ar -spezifischen Komponenten der Apparatur korrekt funktionieren. Durch das Abkühlen steigt zwar die Absorption um einen Faktor vier an. Um die 60 % der Steigerung sind jedoch auf eine reduzierte longitudinale Geschwindigkeit zurückzuführen. Dennoch erhöht die flüssig Stickstoffkühlung den Fluss an metastabilen Atomen um einen Faktor ~ 2.6 . Dies ist auf eine höhere Anregungseffizienz zurückzuführen oder auf geringere Verluste durch Stöße.

3.6.3 Optimierung der ZSL-Parameter

Eine Steigerung der Zählrate von $\sim 70\%$ konnte durch die Optimierung der Parameter für ZSL und Booster erreicht werden. Hierfür spielen neben dem B-Feld des ZSLs, auch das B-Feld der Kompensationsspule, die Laserfrequenzen von ZSL und Booster, die Gesamtlaserleistung sowie die Verteilung auf Booster und ZSL eine entscheidende Rolle. Im Prinzip müssten alle diese Parameter gleichzeitig optimiert werden, was jedoch durch Zählen von ^{39}Ar -Atomen mit Messzeiten pro Datenpunkt im Bereich von 10 Minuten illusorisch ist. Das Laderaten-Tool mit ^{38}Ar bzw. mit einer auf 10^{-9} angereicherten ^{39}Ar -Probe zeigt hingegen sofort nach der Änderung der Parameter den Einfluss auf die MOT-Fluoreszenz an. Für die Optimierung des ZSL wurde zunächst das B-Feld geändert und die Kompensationsspule angepasst. Anschließend wurden für die neuen B-Felder die Frequenzen von ZSL und Booster optimiert. Die Ergebnisse einer solchen Messung sind in der Grafik 3.20 zusammengefasst.

Die optimale Booster-Frequenz ist oberhalb von 11 A für ^{38}Ar unabhängig und für ^{39}Ar nur minimal vom B-Feld abhängig. Hingegen ist die optimale ZSL-Frequenz sehr deutlich vom Magnetfeld abhängig. Bisher wurde der ZSL mit 13.34 A betrieben und als neuer optimierter Strom wurde 11.5 A gewählt. Der nicht lineare Verlustterm in

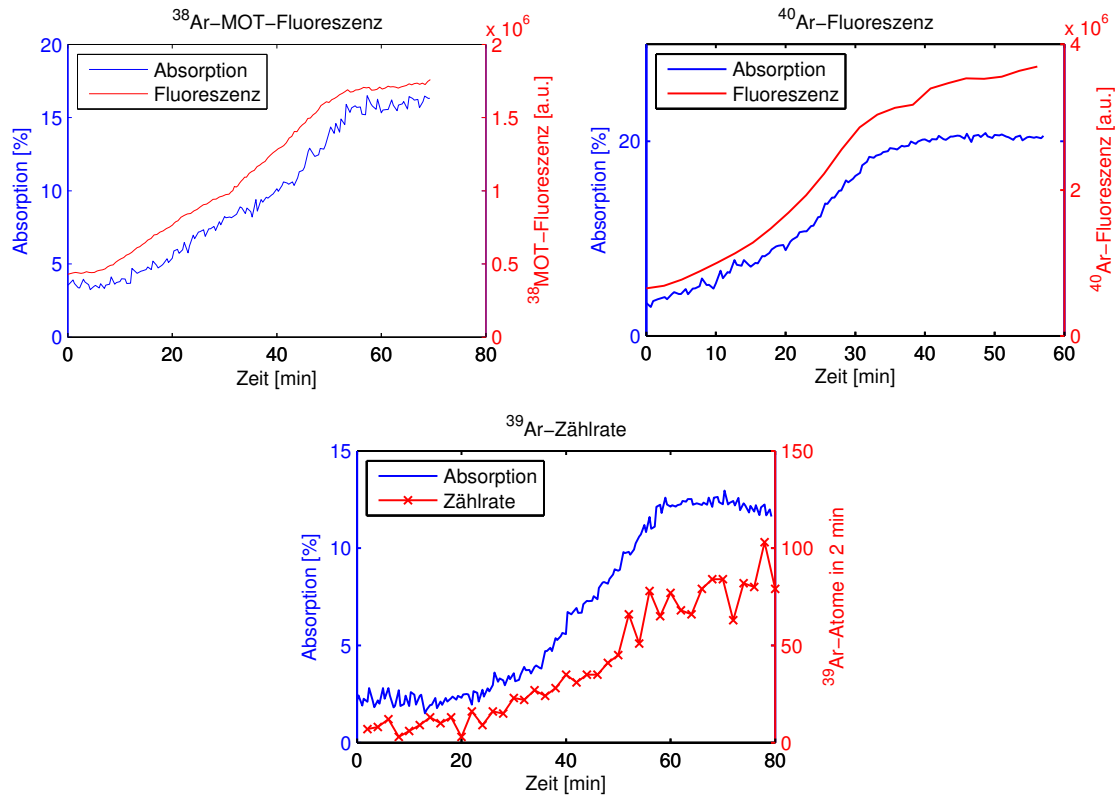


Abbildung 3.19: Abkühlvorgang gemessen mit ^{38}Ar -MOT-Fluoreszenz, ^{40}Ar -Fluoreszenz und ^{39}Ar -Zählrate bei einer ^{39}Ar -Konzentration von 10^{-12} . Als Referenz wurde die Absorption direkt hinter der Quelle aufgezeichnet. Der weitere Anstieg nach ca. 40 min in der ^{40}Ar -Fluoreszenz kommt durch ein Justieren an den Lasern zustande. Alle drei Grafiken sind an unterschiedlichen Tagen aufgenommen worden, da ein gleichzeitiges Messen dieser Kurven nicht möglich ist.

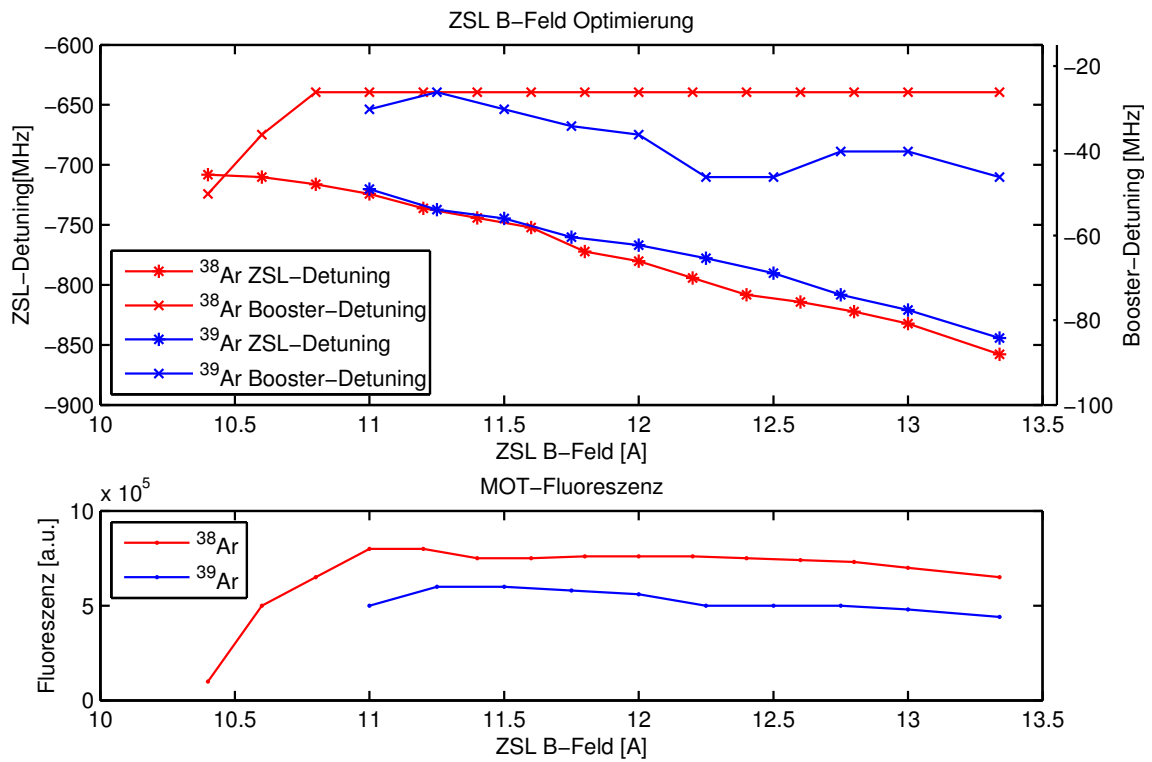


Abbildung 3.20: Abhängigkeiten vom ZSL B-Feld. Oben: Optimale Frequenzen für ZSL und Booster. Unten: Dabei erreichte MOT-Fluoreszenz

Gleichung 3.11 führt dazu, dass der Anstieg in der MOT-Fluoreszenz wesentlich kleiner ausfällt, als der tatsächliche Gewinn in der ^{39}Ar -Zählrate:

Tabelle 3.3: Alte (13.34 A) und optimierte ZSL-Einstellung (11.5 A) im direkten Vergleich

ZSL B-Feld	Atome	Mittlere Atomanzahl ³	Einzelatomsignal
13.36 A	198	0.19	16.4 kcps
11.5 A	340	0.36	16.4 kcps

Für eine Erklärung dieses Zuwachses in der Zählrate sind in Tabelle 3.4 die wichtigsten Parameter für das alte und neue B-Feld aufgelistet.

Tabelle 3.4: Einfang- und Endgeschwindigkeiten des ZSLs

$I_{ZSL}[A]$	max. B-Feld [Gauss]	Detuning ZSL [MHz]		$v_{\text{Einfang}}[\text{m/s}]$		$v_{\text{Ende}}[\text{m/s}]$	
		^{38}Ar	^{39}Ar	^{38}Ar	^{39}Ar	^{38}Ar	^{39}Ar
13.34	568	-857.8	-844.2	697	685	51.4	40.3
11.50	489	-748.2	-744.6	608	605	51.4	48.5

Die Booster-Frequenz bestimmt im Zusammenspiel mit der MOT die maximale Einfanggeschwindigkeit der MOT. Die optimalen Parameter hierfür sind nahezu unabhängig vom ZSL. Jedoch ist umgekehrt mit der maximalen Einfanggeschwindigkeit der MOT auch die optimale Endgeschwindigkeit der Atome im ZSL vorgegeben. Die optimale ZSL-Endgeschwindigkeit ist daher ebenfalls unabhängig vom ZSL B-Feld und beträgt ca. 50 m/s. Die Endgeschwindigkeit im ZSL ergibt sich aus dem maximalen B-Feld am Ende des ZSL und der ZSL-Frequenz. Für die optimalen Parameter ist somit bei einem gegebenen B-Feld auch die ZSL-Frequenz festgelegt. Diese wiederum entspricht direkt der maximalen Einfanggeschwindigkeit des ZSLs.

Für das optimale B-Feld hingegen spielen zwei Effekte eine Rolle:

- Die Zeeman-Aufspaltung zwischen Anfang und Ende des ZSLs und damit das maximale B-Feld bestimmen die Differenz zwischen maximaler Einfang- und Endgeschwindigkeit. Da die optimale Endgeschwindigkeit durch Booster und MOT festgelegt ist, führt ein größeres B-Feld zunächst zu einem höheren ZSL-Detuning und somit zu einer größeren Einfanggeschwindigkeit. Dadurch kann potenziell ein größerer Teil der Geschwindigkeitsverteilung abgebremst werden. In Abbildung 3.5 ist jedoch deutlich zu erkennen, dass für eine gekühlte Quelle ein Absenken der Einfanggeschwindigkeit von 700 m/s auf 600 m/s nur zu einem geringen Verlust führt. Bei einer ungekühlten Quelle hingegen ist dieser Unterschied bedeutend.

³Die mittlere Atomanzahl beschreibt, wie viele Atome sich im Mittel gleichzeitig in der MOT befinden.

- Das B-Feld des ZSL steigt sehr stark zum Ende hin an (Abb. 3.21). Damit die Atome stets in Resonanz bleiben, darf ein maximaler B-Feld Gradient nicht überschritten werden [2]:

$$\left| \frac{dB}{dz} \right| \leq \frac{\hbar k}{\mu'} a \frac{1}{v(z)} \quad (3.13)$$

Dabei ist a eine erreichbare maximale Beschleunigung ($a \approx 1 \times 10^5 \text{ m/s}^2$) und $\mu' = (m_e g_e - m_g g_g) \mu_B$ das effektive Kernmoment (für den betrachteten Übergang nahezu unabhängig vom Isotop $\mu' = 1.00 \mu_B$). Einsetzen aller Zahlen ergibt Werte im Bereich von 1800 Gauss/m am Ende des ZSLs. Basierend auf [2] ergibt sich für 13.36 A ein gemessener und simulierter maximaler Gradient von 1400 Gauss/m im ZSL. Dieser liegt damit im Bereich der theoretischen Grenze. Die diskreten Windungen der ZSL-Spule führen lokal zu größeren Gradienten und Inhomogenitäten im Laserstrahl senken lokal die maximale Beschleunigung. Ein ZSL-Strom von 13.36 A führt daher bereits zu deutlichen Verlusten aufgrund eines zu großen maximalen B-Feld-Gradienten. Der geringere Gradient bei 11.5 A verringert diese Verluste erheblich, so dass eine geringere Einfanggeschwindigkeit mehr als kompensiert wird. Unterhalb von 11 A ist dies nicht mehr der Fall. Hier überwiegt der Effekt der geringeren Einfanggeschwindigkeit und die MOT-Fluoreszenz fällt stark ab.

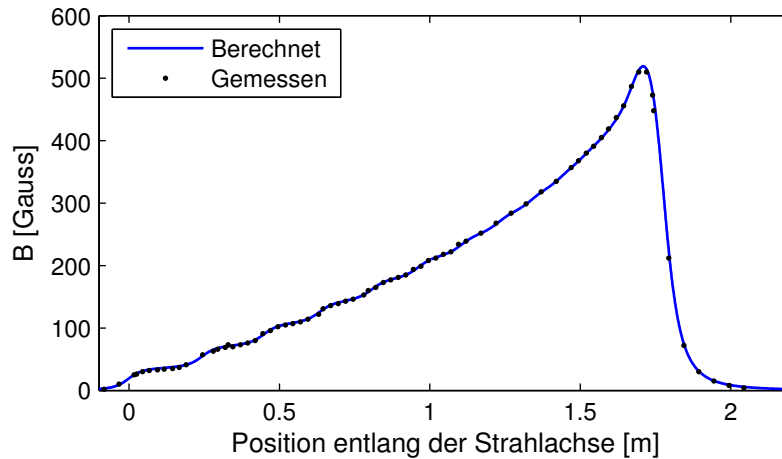


Abbildung 3.21: Gemessenes und berechnetes ZSL-B-Feld, übernommen aus [2]

4 Statistik der ^{39}Ar -Zählrate

Die Methoden des letzten Kapitels sind sehr gut geeignet, um die Quelle und die Ausrichtung der Apparatur zu justieren. Der entscheidende Vorteil ist, dass die eigentliche Messung nur wenige Sekunden dauert. Es können daher viele Datenpunkte erfasst werden. Im Hinblick auf die vielen Abhängigkeiten der Parameter untereinander und der Tatsache, dass aufgrund von Schwankungen im Bereich von Stunden Messungen möglichst schnell erfolgen müssen, ist dies daher meist der einzig gangbare Weg.

Dennoch, bei allen Parametern, welche auch die Lebensdauer und das Einzelatomsignal beeinflussen, d.h. bei allen Einstellungen der MOT und bei Druckabhängigkeiten, führt kein Weg an einer tatsächlichen Messung der ^{39}Ar -Zählrate vorbei. Wurde mit den Analyse-Tools ein neuer Satz an optimierten Parametern gefunden, so kann über die ^{39}Ar -Zählrate der tatsächliche Gewinn gemessen werden. Nicht selten stellt sich dabei heraus, dass auf andere Effekte optimiert wurde und die neuen Einstellungen keinen positiven Effekt auf die Zählrate haben.

Um Effekte im 5 %-Bereich zu sehen, müssen bereits 400 Atome gezählt werden. Hinreichend hohe Zählraten können nur mit angereicherten Proben erzielt werden. Um jedoch noch eindeutig jedes einzelne Atom zu erkennen, sollte zu einem Zeitpunkt nur ein Atom in der MOT sein. Dies ist bereits bei sehr niedrigen Konzentrationen nicht immer gewährleistet. Bis zu maximal 3 Atomen in der MOT können die einzelnen Atome in der Regel noch eindeutig erkannt werden. Darüber hinaus ist es, gerade bei einem nicht perfekten Einzelatomsignal, nicht mehr eindeutig möglich und statt der gezählten Atome ist die mittlere Atomzahl in der MOT die bessere Kenngröße. Sie ist jedoch von der Lebensdauer abhängig. Als gute Laderate, bei der ein fehlerfreies Zählen noch möglich ist, hat sich 40 Atome/min ergeben, womit Messzeiten von 10 min für eine Genauigkeit von 5 % folgen. Diese Zählrate entspricht aktuell einer ^{39}Ar -Konzentration von 10^{-12} . Für diese Konzentration ist in Abbildung 4.1 das APD-Signal über 2 min dargestellt. Einzelatomsignal und Lebensdauer können bei dieser Zählrate ebenfalls analysiert werden.

Die Anzahl der gezählten Atome in einem festen Zeitintervall folgt im idealen Fall einer Poisson-Verteilung, auf die in diesem Kapitel ausführlich eingegangen werden soll. Unterliegt jedoch die Effizienz der Apparatur und damit die Zählrate Schwankungen, so wird die Statistik von der eines idealen Poisson-Prozesses abweichen. In der zweiten Hälfte des Kapitels werden daher mit der Allan-Varianz statistische Methoden zur Untersuchung der Stabilität der Zählrate vorgestellt.

Der Umgang mit angereicherten Proben hat den entscheidenden Nachteil, dass die Apparatur kontaminiert wird. Eine atmosphärische Messung im Rezyklier-Modus ist daher momentan nicht mehr möglich. Um bei einer Messung im Durchfluss einen

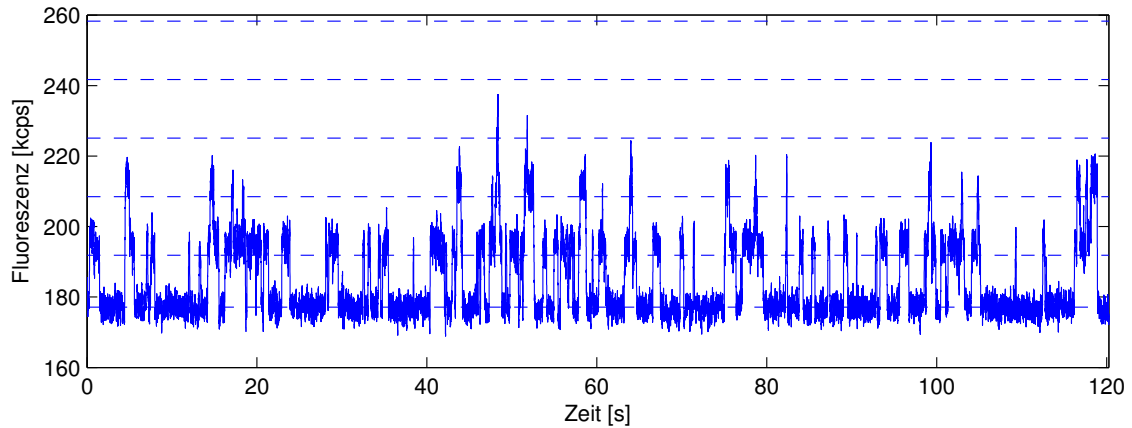


Abbildung 4.1: Über 40 ms geglättetes APD-Signal bei einer Konzentration von 10^{-12} mit einer Zählrate von 42 Atome/min. Die waagrechten Linien entsprechen den Schwellenwerten für 0,1,2 usw. Atomen in der MOT.

signifikanten Beitrag an der Zählrate durch Kontamination auszuschließen, wurde eine Nullmessung mit einer ^{39}Ar -toten Probe, d.h. mit einer Probe ohne ^{39}Ar , durchgeführt.

Der Vergleich von Zählraten einzelner Messungen untereinander ist in diesem Kapitel nur schwer möglich, da im Zeitraum dieser Arbeit die ^{39}Ar -Zählrate um mehr als einen Faktor 50 gesteigert wurde. Zudem ist die genaue Konzentration der angereicherten Proben nicht bekannt.

4.1 Statistik I: Poisson-Verteilung

In diesem Abschnitt geht es um die Frage, mit welcher Wahrscheinlichkeit $p_k(\Delta t)$ bei einer stationären Zählrate λ in einem Zeitintervall der Länge Δt genau k Atome gezählt werden. Dabei kann das Zählen von seltenen Ereignissen als Abfolge von sehr vielen Bernoulli-Experimenten aufgefasst werden. Jedes Bernoulli-Experiment hat dabei nur zwei mögliche Ausgänge: 1 Erfolg (es wird ein Atom gezählt) und 0 Misserfolg (kein Atom wird in der MOT gefangen). Die Poisson-Verteilung¹ ergibt sich dabei aus dem Grenzübergang zu einer kontinuierlichen Beobachtung, indem gedanklich die Messung in viele kleine Zeitintervalle $[t, t + dt]$ unterteilt wird, in denen in den meisten Fällen nichts passiert und hin und wieder ein Ereignis geschieht, d.h. $\lambda dt \ll 1$. Daher wird die Poisson-Verteilung auch als „Verteilung der seltenen Ereignisse“ bezeichnet. Sie kann entweder als Approximation der Binomialverteilung für eine häufige Wiederholung eines Bernoulli-Experiments (vergleiche dazu [26]) oder aus folgenden drei Voraussetzungen direkt abgeleitet werden [27, 28]:

¹Benannt nach Siméon Denis Poisson 1781 - 1840

1. Stationarität: Die Wahrscheinlichkeit für ein Ereignis im Zeitintervall $[t, t + dt]$ ist nicht von t abhängig, sondern nur von der Intervalllänge: $p_1(dt) = \lambda dt$ bzw. $p_0(dt) = 1 - \lambda dt$.
2. Nachwirkungsfreiheit: Das Eintreten eines Ereignis in $[t, t + dt]$ beeinflusst nicht die Wahrscheinlichkeit späterer Ereignisse.
3. Ordinarität: Im Intervall $[t, t + dt]$ tritt höchstens 1 Ereignis auf, falls dt hinreichend klein ist.

Sind diese Bedingungen erfüllt, so spricht man von einem Poisson-Prozess. Aus den obigen Voraussetzungen folgt:

$$p_0(t + dt) = p_0(t) \cdot p_0(dt) = p_0(t) \cdot (1 - \lambda dt) \quad (4.1)$$

$$p_k(t + dt) = p_{k-1}(t) \cdot p_1(dt) + p_k(t) \cdot p_0(dt), \text{ falls } k \neq 0 \quad (4.2)$$

$$= p_{k-1}(t) \cdot \lambda dt + p_k(t) \cdot (1 - \lambda dt) \quad (4.3)$$

Für die zweite Gleichung geht insbesondere ein, dass im Intervall $[t, t + dt]$ höchstens ein Ereignis eintritt. Subtrahieren von $p_0(t)$ bzw. $p_k(t)$ und Division durch dt sowie der Grenzübergang $dt \rightarrow 0$ ergibt folgende gewöhnlichen Differenzialgleichungen:

$$p'_0(t) = -\lambda \cdot p_0(t) \quad (4.4)$$

$$p'_k(t) = p_{k-1}(t) \cdot \lambda - p_k(t) \cdot \lambda, \text{ falls } k \neq 0 \quad (4.5)$$

Mit den Randbedingungen:

$$p_k(0) = \delta_{k0} = \begin{cases} 1, & \text{falls } k = 0 \\ 0, & \text{falls } k > 0 \end{cases} \quad (4.6)$$

Gleichung 4.4 ist allgemein bekannt und leicht zu lösen:

$$p_0(t) = e^{-\lambda t} \quad (4.7)$$

Gleichung 4.5 kann mittels Induktion gelöst werden [28]. Ihre Lösung ist die Poisson-Verteilung mit nur einem Parameter $\mu = \lambda t$:

$$p_k(t) = \frac{(\lambda t)^k}{k!} e^{-\lambda t} \quad (4.8)$$

Für den späteren Gebrauch ist es angemessener, ein festes Zeitintervall Δt und eine feste Zählrate λ zu betrachten und k , die Anzahl an Atomen in der Zeitspanne Δt , als Variable. Die Wahrscheinlichkeit wird daher im Folgenden mit $\mu = \lambda \Delta t$ indiziert:

$$p_\mu(k) = p_{\lambda \Delta t}(k) = \frac{(\lambda \Delta t)^k}{k!} e^{-\lambda \Delta t} \quad (4.9)$$

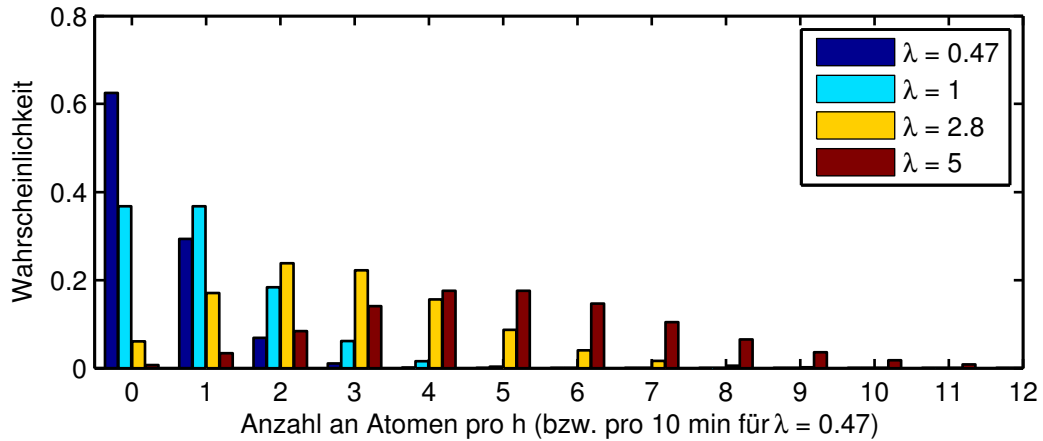


Abbildung 4.2: Poisson-Verteilung für typische Zählraten λ : $\lambda = 2.8$ Atome/h entspricht der zu diesem Zeitpunkt aktuellen atmosphärischen Zählrate. In einer typischen Dateneinheit von 10 min ist dies $\lambda = 0.47$ Atome/10min.

In Abbildung 4.2 ist die Poisson-Verteilung für typische Zählraten veranschaulicht. Wichtig an der Poisson-Verteilung ist, dass sie eine diskrete Verteilung ist, jedoch im Gegensatz zur Binominal-Verteilung einen kontinuierlichen Prozess beschreibt. Sie ist allein und einzig durch einen reellen Parameter $\mu = \lambda\Delta t > 0$ vollständig charakterisiert. Für ihren Erwartungswert und ihre Varianz gelten:

$$\langle k \rangle = \sum_{\tilde{k}=0}^{\infty} \tilde{k} \cdot p_{\mu}(\tilde{k}) = \mu = \lambda\Delta t \quad (4.10)$$

$$\sigma^2 = \sum_{\tilde{k}=0}^{\infty} (\tilde{k} - \langle k \rangle)^2 \cdot p_{\mu}(\tilde{k}) = \mu = \lambda\Delta t \quad (4.11)$$

Liegt ein idealer Poisson-Prozess vor, ist somit die Varianz bzw. die Standardabweichung σ und der Mittelwert allein und einzig durch μ bestimmt.

Beim Auswerten von Messdaten der ATTA-Apparatur gibt es typischerweise zwei Situationen:

1. In einer längeren Zeitspanne T werden insgesamt N Atome detektiert. Nach der Maximum-Likelihood-Methode wird der Parameter angenommen, der das Messergebnis am plausibelsten erklärt: $\lambda = \frac{N}{T}$. Liegt ein Poisson-Prozess zu Grunde, beträgt die Unsicherheit $\sigma_N = \sqrt{N}$ bzw. $\sigma_{\lambda} = \sqrt{N}/T = \sqrt{\lambda/T}$. Um ein Ergebnis folglich auf 10% genau zu ermitteln, müssen bereits 100 Atome gezählt werden. Eine genauere statistische Analyse ist auf Grund der geringen Anzahl an Ereignissen nicht möglich.
2. Bei angereicherten Proben bzw. bei sehr langen Messungen erfolgt die Messung bereits unterteilt in M gleichlange Zeitintervalle der Länge τ , bzw. es

können nachträglich bei der Auswertung die Daten in beliebige Zeitintervalle unterteilt werden. Die Anzahl an Atomen im i -ten Zeitintervall wird mit k_i bezeichnet und $N = \sum_{i=1}^M k_i$ ist wie bisher die gesamte Anzahl an Atomen. Nun besteht der entscheidende Vorteil, dass Statistik über die einzelnen Zeitintervalle betrieben werden kann. Dabei sind Mittelwert und Stichprobenvarianz² wie üblich definiert als³:

$$\bar{k} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M k_i = \frac{N}{M} \quad (4.12)$$

$$V(k) = \frac{1}{M-1} \sum_{i=1}^M (k_i - \bar{k})^2 \quad (4.13)$$

Unter der Annahme einer Poisson-Verteilung mit konstanter Zählrate λ gilt für jedes Teilintervall $\sigma_i^2 = k_i$ und für die gesamte Messung $\sigma^2 = \sum_{i=1}^M \sigma_i^2 = N$. Das ist nicht besonders überraschend, denn es darf bei einer konstanten Zählrate λ keine Rolle spielen, ob die Daten unterteilt werden oder als Gesamtes analysiert werden. Auf der anderen Seite kann aber auch \bar{k} mit einer Stichprobenvarianz von $V(k)$ betrachtet werden. Aus $N = M\bar{k}$ folgt damit für die Varianz unter der Annahme eines stationären Poisson-Prozesses:

$$M \cdot V(k) = M\bar{k} = N = \sigma^2 \quad (4.14)$$

Nicht selten gibt es hier jedoch deutliche Abweichungen. Dann ist $V(k)$ wesentlich höher, als es eine Anzahl von \bar{k} Atomen erwarten lässt. Dies kann jedoch nur dann der Fall sein, wenn die Stationarität der Poisson-Bedingungen verletzt ist, die Apparatur und damit die Zählrate für die einzelnen Stichproben Schwankungen unterliegt. Ein Vergleich von $M \cdot V(k)$ mit σ^2 bietet folglich einen schnellen Test, ob die Stabilität der Apparatur während der Messung gewährleistet ist. Jedoch kann so noch nichts über die Quelle der Schwankungen herausgefunden werden. Dies wird Thema des zweiten Abschnitts über Statistik sein.

Im Zusammenhang des ATTA-Experiments gibt es zwei weitere Punkte, bei denen die Poisson-Verteilung eine Rolle spielt.

- Das Eintreffen der Photonen auf der APD, allgemein auf einem beliebigen Detektor, ist ein weiterer Poisson-Prozess. Hier sind jedoch die Zählraten so hoch, dass an dieser Stelle die Poisson-Verteilung durch eine Normalverteilung mit $\sigma = \sqrt{N}$ und $\mu = N$ approximiert werden kann.

²Um Verwechslungen vorzubeugen, wird in dieser Arbeit die Stichprobenvarianz immer mit V bezeichnet, hingegen die intrinsische Varianz des Poisson-Prozesses mit σ^2 .

³Die -1 im Nenner der Stichprobenvarianz gebührt der Tatsache, dass der Mittelwert selbst auch geschätzt wird.

- Der radioaktive Zerfall unterliegt auch einer Poisson-Statistik und damit die Anzahl an ^{39}Ar -Atomen in den Proben. Modernes Wasser enthält ca. 10 000 ^{39}Ar -Atome. Bei aktuellen Probengrößen im Durchfluss spielt das noch keine Rolle, jedoch ist dadurch für den Rezyklier-Modus eine physikalische untere Grenze von ca. einem Liter Wasser gegeben, wenn der Fehler nicht deutlich über 1 % liegen soll. Rein technisch kann hingegen der Rezyklier-Modus in seiner momentanen Form mit einem Zehntel dieser Gasmenge betrieben werden. Durch ein größeres Vakuumvolumen kann die Apparatur an die Probengröße angepasst werden.

Nach dieser theoretischen Einführung über die Poisson-Verteilung sollen im Folgenden die Rückpumper sowie die Optimierung der MOT vorgestellt werden. Wie bereits erwähnt, können diese Messungen nur mit ^{39}Ar durchgeführt werden. Die statistischen Fehler werden nicht jedes Mal mit angegeben. Sie betragen immer \sqrt{N} , falls N Atome gezählt wurden.

4.2 Rückpumper

Aufgrund des Kernspins von $I = 7/2$ von ^{39}Ar spalten die Zustände $1s_5(J = 2)$ und $2p_9(J = 3)$ in 5 bzw. 7 Hyperfeinniveaus auf 2.1. Wie bereits erwähnt, ist der Übergang $F_2 = 11/2 \rightarrow F_3 = 13/2$ in Hinblick auf die Auswahlregel $\Delta F = 0, \pm 1$ ein geschlossener Übergang. Off-resonante Anregungen führen jedoch dazu, dass ein geringer Bruchteil auch in das $F_3 = 11/2$ Niveau angeregt wird und von dort aus zum Teil in den $F_2 = 9/2$ -Zustand zerfällt. Diese Atome wären für eine weitere Laserkühlung verloren. Daher pumpt eine zusätzliche Laserfrequenz, der 1. Rückpumper, die Atome zurück auf das $F_3 = 11/2$ -Niveau, von wo aus sie wieder in den Kühlzyklus zurückkehren können. Jedoch kann auch der 1. Rückpumper dabei aufgrund von off-resonanter Anregung Atome in das $F_3 = 9/2$ -Level anregen, die dann nach $F_2 = 7/2$ verloren gehen können. Ein 2. Rückpumper schafft hierfür wieder Abhilfe. Im Prinzip können dabei auch erneut Atome über $F_3 = 7/2$ in das $F_2 = 5/2$ -Niveau verloren gehen. Jedoch ist ihr Anteil so gering, dass die ersten beiden Rückpumper ausreichend sind. Die Frequenzen der Rückpumper in Bezug auf den Kühlzyklus betragen [2]:

Rückpumper	Frequenz [MHz]
1.	-680.1
2.	-1241.7
3.	-1664.3
4.	-1932.7

Da es sich bei der Aufspaltung in Hyperfeinniveaus um einen Effekt des nicht verschwindenden Kernspin handelt, kann das Verhalten der Rückpumper nur direkt mit ^{39}Ar und nicht mit den stabilen Argon-Isotopen untersucht werden.

Kollimator-Rückpumper

Neben dem Zurückführen in den Kühlzyklus haben im Kollimator die Rückpumper einen zusätzlichen Effekt: Nach der Anregung in der Quelle sind alle Atome im metastabilen $1s_5(J = 2)$ -Level auf alle 5 Hyperfeinniveaus, gewichtet mit deren Entartung $(2F + 1)$, verteilt. Durch die Verwendung aller vier Rückpumper im Kollimator wird diese Ausgangsverteilung zunächst in den Kühlzyklus umgepumpt. In Tabelle 4.1 sind die Ergebnisse einer Untersuchung der Rückpumper zusammengefasst. Die Faktoren geben die Verstärkung im Vergleich zum darüberstehenden Wert an. Die theoretischen Werte ergeben sich aus dem Anteil der insgesamt 40 magnetischen Unterniveaus, der durch die jeweiligen Rückpumper erreicht werden kann. Dem Effekt des Umpumpens ist zusätzlich der oben beschriebene Verlust aus dem Kühlzyklus überlagert, so dass die experimentellen Werte über den theoretischen liegen sollten.

Tabelle 4.1: Verstärkung durch die Kollimator-Rückpumper. Gemessen über 4 min. Neben den gemessenen Werten sind auch die theoretischen Werte, die sich aus der Anzahl der zugänglichen Unterniveaus ergeben, tabelliert.

Rückpumper	Atome	Faktor	Unterniveaus	Theoretischer Faktor
Kein RP.	384	-	12/40	-
1. RP.	465	1.21	22/40	1.83
1. und 2. RP	781	1.68	30/40	1.36
1. bis 3. RP	911	1.17	36/40	1.2
Alle RP.	934	1.03	40/40	1.11

Der 1. Rückpumper hat einen deutlich geringeren Effekt als erwartet. Er wird zum Teil durch den ZSL ersetzt, der nur 66 MHz entfernt ist. Der 2. Rückpumper hingegen hat einen deutlich höheren Einfluss. Er bewirkt sowohl ein Umpumpen der Ausgangsverteilung als auch ein Zurückführen in den Kühlzyklus. Die Verluste beim Kühlen machen für den 3. Rückpumper keinen gravierenden Effekt mehr. Der Gewinn wird alleine durch das Umpumpen erreicht. Der 4. Rückpumper erreicht nur ein Drittel von dem, was er bewirken sollte.

ZSL-Rückpumper

Sobald eine eindeutige Quantisierungsachse der Atome durch ein externes Magnetfeld vorliegt, muss zusätzlich die Polarisation des Laserlichtes berücksichtigt werden. Ein perfekt polarisiertes σ^- bzw. σ^+ -Licht kann nur Übergänge mit $\Delta M_F = -1$ bzw. mit $\Delta M_F = +1$ treiben, so dass die Übergänge $1s_5(F_2 = 11/2, M_F = \mp 11/2)$ nach $2p_9(F_3 = 13/2, M_F = \mp 13/2)$ geschlossen sind (Abb. 4.3), da keine weiteren Hyperfeinniveaus mit $F = \mp 13/2$ existieren. Im ZSL kommt σ^- polarisiertes Licht zum Einsatz, so dass theoretisch die Rückpumper überflüssig sein sollten. Dies bestätigt

auch eine Messung, deren Ergebnisse in 4.2 tabelliert sind. Sie zeigt jedoch das Gegenteil einer Messung aus [17], mit der gezeigt wurde, dass ohne 1. Rückpumper nahezu keine Atome in der MOT und ohne 2. Rückpumper bereits 25 % weniger Atome gefangen werden. Ursache hierfür könnte eine nicht perfekte Polarisation des ZSL-Lasers gewesen sein. Zudem wurde zwischen den beiden Messungen das Spulenpaar der MOL um 90° gedreht, so dass dieses aktuell in Strahlrichtung orientiert ist. Dadurch verdoppelt sich der Gradient in longitudinaler Richtung und es ist möglich, dass so zwischen MOL und Beginn des ZSLs eine definierte Quantisierungsachse geschaffen wurde. Sie bewirkt, dass das σ^- -polarisierte Licht des ZSLs auch vor dem ZSL nur den geschlossenen Übergang $M_F = -11/2$ nach $M_F = -13/2$ anregt.

Tabelle 4.2: Effekte der ZSL Rückpumper

1.RP	2.RP	Anzahl Atome
an	an	301
an	aus	333
aus	an	302
aus	aus	303

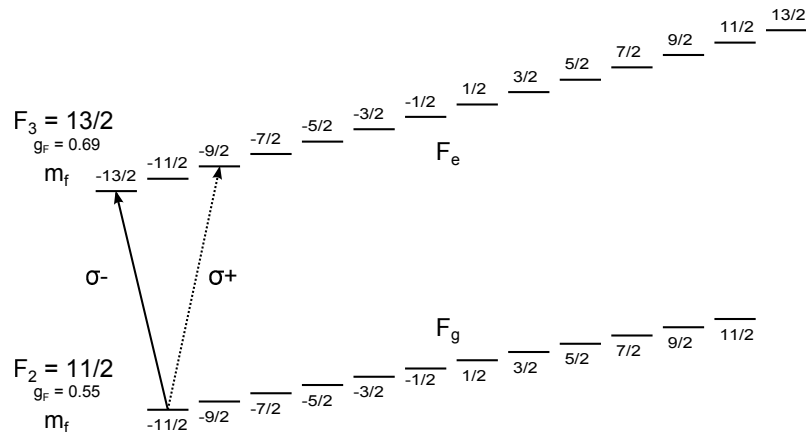


Abbildung 4.3: Aufspaltung der Hyperfeinniveaus in magnetische Unterzustände.

MOT-Rückpumper

Sehr anschaulich kann der Effekt der Rückpumper in der MOT demonstriert werden (Abb. 4.4). Ohne Rückpumper werden keine Atome gefangen. Fehlt jedoch nur der 2. Rückpumper, so zeigt das Signal eines einzelnen Atoms deutliche Zacken. Aufgrund des fehlenden 2. Rückpumpers verlässt das Atom zeitweise den Kühlzyklus und wird nicht mehr im Zentrum der MOT und damit im Fokus der Optik gehalten. Ein Abfall im APD-Signal ist die Folge. Wahrscheinlich wird der 2. Rückpumper mit einer sehr

geringen Streurrate von 2 kHz durch die ZSL-Frequenz ersetzt, so dass ein kompletter Verlust der Atome ausbleibt. Die Lebensdauer der Atome in der MOT ändert sich daher nicht wesentlich, jedoch das Einzelatomsignal. Auch in den Histogrammen sind die einzelnen Peaks nicht mehr so deutlich voneinander getrennt.

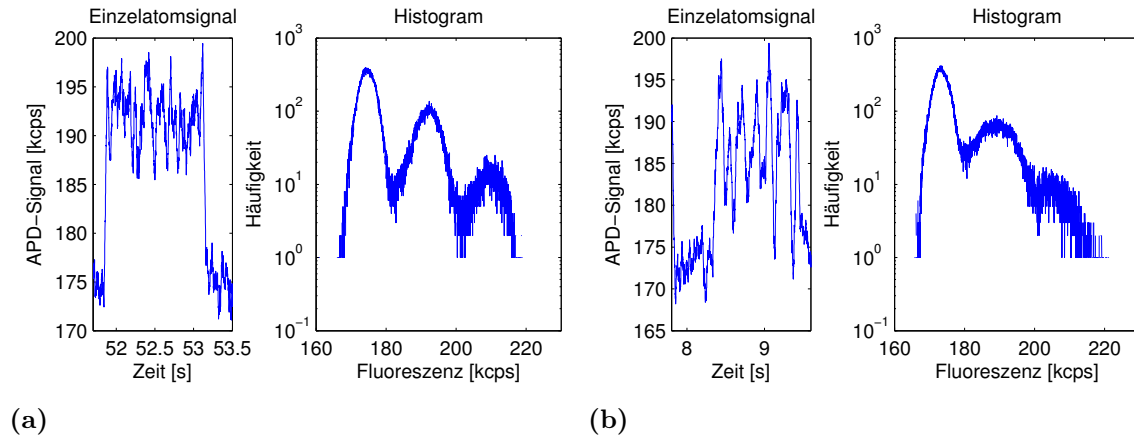


Abbildung 4.4: Typisches Einzelatomsignal und Histogramm aus 120 s a) Mit 1. und 2. Rückpumper b) ohne den 2. Rückpumper verlässt das Atom zeitweise den Kühlzyklus und kann solange nicht im Zentrum der MOT gehalten werden.

4.3 Optimierung der MOT

Das B-Feld und die Frequenz der MOT beeinflussen sehr stark auch das Einzelatomsignal und die Lebensdauer, so dass diese beiden Parameter nur direkt über die Zählrate optimiert werden können. Tabelle 4.3 zeigt die in 2 min gezählten Atome für unterschiedliche B-Felder und Laserfrequenzen. Daneben ist auch die mittlere Atomzahl n in der MOT und das Einzelatomsignal cr aufgeführt. Aufgrund der hohen Anzahl an Atomen bei gleichzeitig einem geringen Einzelatomsignal ist ein eindeutiges Zählen nicht mehr möglich, so dass die mittlere Atomanzahl ein besserer Vergleichswert ist.

Für die Optimierung der MOT muss ein Kompromiss zwischen Zählrate und eindeutiger Detektion der Atome gefunden werden. Sind die Laser resonanter, so steigt die Streurrate und damit das Einzelatomsignal, jedoch werden weniger Atome eingefangen. Die Kraft, die auf die Atome in der MOT wirkt, kann näherungsweise beschrieben werden durch [19]:

Tabelle 4.3: Optimierung von MOT-Frequenz und B-Feld (Detuning δ , Anzahl an Atomen N , mittlere Anzahl in der MOT n , Einzelatomsignal cr)

B-Feld [A]	13.4			12.0			11.0		
δ [MHz]	N	n	cr	N	n	cr	N	n	cr
-4.2	187	0.47	20.75	231	0.77	21.33	281	0.94	19.88
-8.2	272	0.99	18.72	343	1.26	17.72	405	1.51	17.22
-12.2	331	1.26	12.93	373	1.45	13.22	476	1.69	12.00
-16.2	419	1.39	9.25	498	1.90	7.80	513	1.83	8.45
-18.2	380	1.52	6.32	408	1.07	4.23			
	10.0			9.0			8.0		
-4.2	354	1.16	14.63	584	1.4	13.62	753	1	15.6
-8.2	580	1.63	14.58	597	1.8	14.0			
-12.2	794	1.80	10.07	636	1.76	10.4			

$$\begin{aligned}
 \mathbf{F} &= -\beta\mathbf{v} - \kappa\mathbf{r} \\
 \beta &= 8 \frac{\hbar k^2 \delta}{\Delta\nu_n} \cdot \frac{s}{\left(1 + s + \left(\frac{2\delta}{\Delta\nu_n}\right)^2\right)^2} \\
 \kappa &= \frac{\mu' \left|\frac{dB}{dr}\right|}{\hbar k} \beta
 \end{aligned} \tag{4.15}$$

Diese Kraft entspricht der einer gedämpften Schwingung mit Dämpfungskoeffizienten β und Federkonstante κ . Sowohl ein geringerer B-Feld-Gradient als auch ein größeres Detuning δ führen zu einem flacheren Fallpotential.

Als neuer Kompromiss wurde ein Spulenstrom von 11.0 A und ein Detuning von -8.2 MHz gewählt, so dass gegenüber den bisherigen Einstellung (13.4 A, -4.2 MHz) mehr als eine Verdopplung der Zählrate erzielt werden konnte. Gelingt es, das Einzelatomsignal zu verbessern, so können durch eine weitere Reduktion des Magnetfeldes nochmals ca. 20 % gewonnen werden. Dies kann möglicherweise durch eine weitere Frequenz in der MOT erreicht werden, so dass sowohl eine resonante Frequenz für ein hohes Einzelatomsignal als auch eine verstimmte Frequenz für eine hohe Zählrate sorgen. Erste Tests mit zwei Frequenzen zeigten vielversprechende Ergebnisse, jedoch steht momentan für zwei Frequenzen noch nicht genügend Laserleistung in der MOT zur Verfügung.

4.4 Dynamischer Bereich der ^{39}Ar -Zählrate

Um den großen dynamischen Bereich des ATTA-Experiments zu demonstrieren, kann die ^{39}Ar -Zählrate über einen weiten Bereich der ^{39}Ar -Konzentration gemessen werden. Für 5 Größenordnungen wurde eine solche Messung realisiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.4 zusammen gefasst und grafisch in einem doppellogarithmischen Plot in 4.5 dargestellt.

Tabelle 4.4: Zählrate in Abhängigkeit der ^{39}Ar -Konzentration (c Konzentration, N gesamte Anzahl an Atomen, t Gesamtzeit, M Anzahl an Datenfenstern, \bar{k} mittlere Anzahl pro Datenfenster, $V(k)$ Stichprobenvarianz, λ Zählrate, σ_λ Sandartabweichung mit Poisson, $\sqrt{V(\lambda)}$ Standardabweichung aufgrund der Stichproben)

c	N	t [min]	Δt [min]	M	\bar{k}	$V(k)$	λ [1/h]	σ_λ [1/h]	$\sqrt{V(\lambda)}$ [1/h]
10^{-10}	12983	62	2	31	419	24.5	12564	110	132
10^{-11}	1403	56	2	28	50	7.09	1503	40.1	40.2
10^{-12}	174	65	5	13	13.4	5.39	161	12.2	17.9
10^{-13}	46	300	10	30	1.5	1.31	9.2	1.36	1.44
10^{-14}	12	600	60	10	1.2	1.51	1.2	0.35	0.48

Die doppellogarithmische Darstellung täuscht eine Genauigkeit der Linearität vor, die nicht wirklich gegeben ist. Eine genauere Betrachtung der tatsächlichen Werte in der Tabelle zeigt, dass die Zählrate für 10^{-13} um ca. 30% geringer ist, als dies der Messwert für 10^{-12} erwarten lässt. Zudem sind die Standardabweichungen aufgrund der Stichproben $\sqrt{V(\lambda)}$ für die drei unteren Konzentrationen deutlich höher als die theoretische untere Schranke einer Poisson-Verteilung σ_λ . Dies weist deutlich darauf hin, dass die Apparatur während der Messung nicht auf einem stabilen Niveau operierte. Dies wird auch in einem Streudiagramm deutlich, in dem $k_{i+1} - \bar{k}$ über $k_i - \bar{k}$ aufgetragen wird. Abbildung 4.6 zeigt ein solches Diagramm für die Daten der Konzentration 10^{-12} . Deutlich ist im Vergleich zu den simulierten Daten mit identischen Parametern eines stationären Poisson-Prozesses zu erkennen, wie die realen Messdaten wesentlich stärker streuen.

Experimentell ist es einfacher, wenn eine hohe Konzentration jeweils um einen Faktor 10 verdünnt wird. Jedoch stellte sich bei anderen Messungen heraus, dass bei dieser Vorgehensweise bereits bei Konzentration über 10^{-12} Kontamination durch die vorherigen Probe eine entscheidende Rolle spielt. Auch dies könnte die Abweichungen von einem linearen Zusammenhang teilweise erklären.

Auch wenn mit dieser Messung somit die Linearität zwischen Zählrate und Konzentration noch nicht zufriedenstellend gezeigt werden konnte, war sie gerade deshalb Auslöser für eine Vielzahl von Maßnahmen, die schlussendlich enorme Verbesserungen erbrachten. Einerseits wurde die Stabilität, vor allem des Laser-Systems, optimiert. Darüber hinaus wurde ein Überwachungssystem implementiert, in das

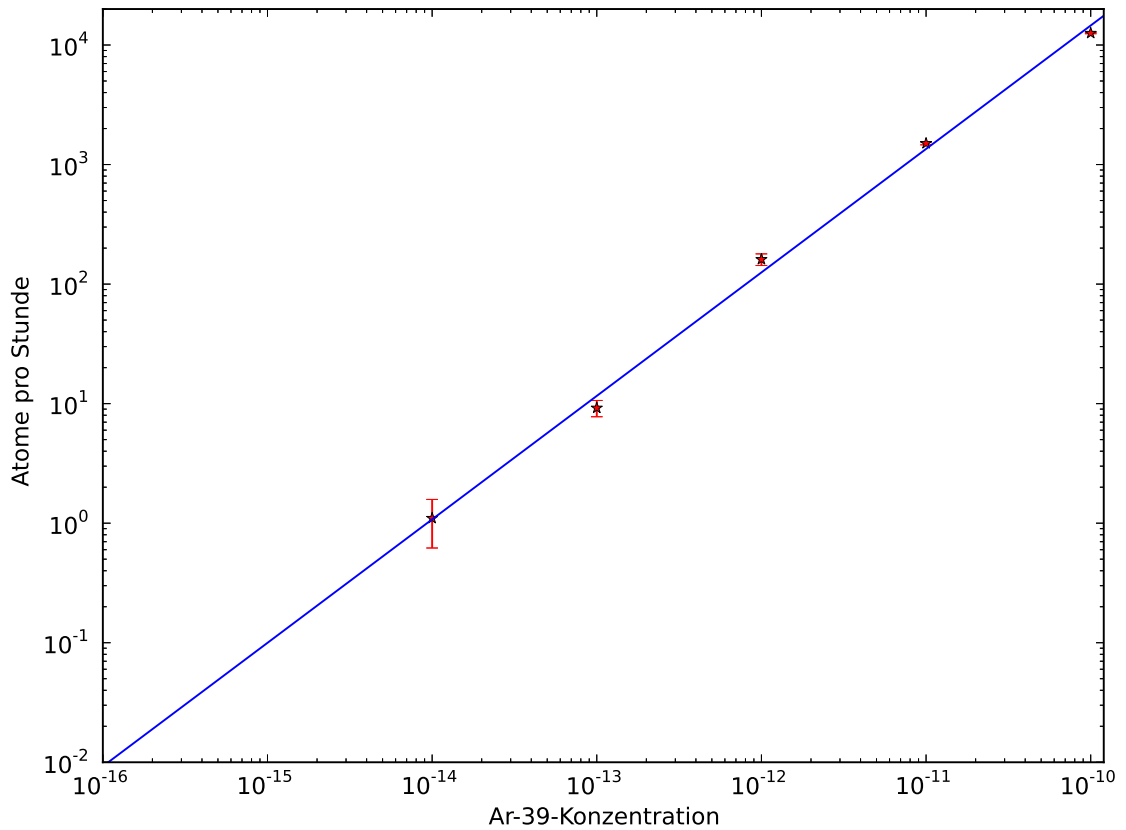


Abbildung 4.5: Zählrate für verschiedene ^{39}Ar Konzentrationen in einer doppellogarithmischen Darstellung

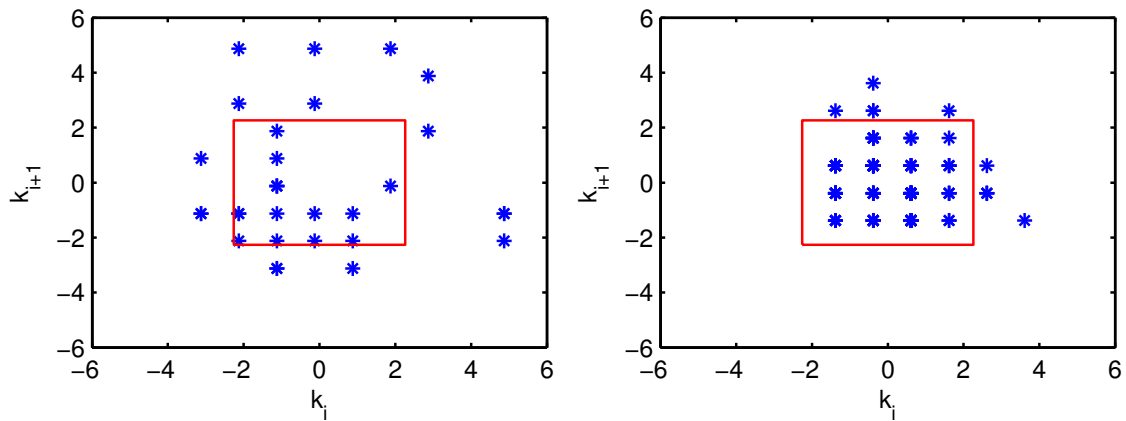


Abbildung 4.6: Links: Streudiagramm für die Daten für 10^{-12} aus Tabelle 4.4 mit $\tau = 30\text{s}$. Rechts: Simulierte Daten für einen stationären Poisson-Prozess mit denselben Parametern: $\lambda = 161\text{Atome/h}$ und $t = 65\text{min}$. Die roten Rechtecke zeigen eine Standardabweichung σ_λ an. Die realen Messwerte streuen gegenüber den simulierten wesentlich weiter.

auch das Absorptions-Monitoring 3.3 integriert ist, so dass Schwankungen und idealerweise ihre Ursachen schnell erkannt werden können. Im Rahmen einer Langzeitmessung von 12 h, die neben einer theoretischen Betrachtung von Schwankungen Bestandteil des nächsten Abschnittes ist, wurde nahezu eine Poisson-Statistik beobachtet, was für eine sehr gute Stabilität des Experiments spricht. Daher wäre es interessant erneut die Abhängigkeit der Zählrate von der Konzentration zu messen. Mit einer um einen Faktor 15 gesteigerten Zählrate ist nun auch die atmosphärische Konzentration von 8.1×10^{-16} zugänglich und sogar Konzentrationen darunter bis 10^{-16} . Die atmosphärische Konzentration würde bei einer erneuten Messung einen sehr präzisen Standard darstellen. Hin zu Konzentrationen über 10^{-13} müsste jedoch inzwischen auf die Laderate umgestiegen werden und diese auf die Zählrate geeicht werden. Damit wäre der Weg bis hin zu Konzentrationen von 10^{-3} frei und damit insgesamt über 11 Größenordnungen. Für Anwendungen in der Umweltphysik sind die Konzentrationen unterhalb einer modernen atmosphärischen Probe von Bedeutung.

4.5 Statistik II: Zeitliche Schwankungen

In Abschnitt 4.1 wurde für alle Überlegungen eine zeitlich konstante Zählrate λ zu Grunde gelegt. Wird ein und dieselbe Messung der Länge τ wiederholt, so sind die Ergebnisse Poisson-verteilt und streuen um λ mit $\sigma_\lambda^2 = \frac{\lambda}{\tau}$. Eine längere Messzeit wird somit immer zu einem genaueren Wert führen. Experimentell unterliegt die Zählrate jedoch Schwankungen. Typische Ursachen hierfür sind Drifts in den Laserfrequenzen, der Laserintensität und in der Polarisation aufgrund von Temperatur- und Luftfeuchtigkeitsschwankungen. Darüber hinaus wurden häufig Schwankungen der Anregungseffizienz der Quelle beobachtet. Teilweise sind sie zurückzuführen auf Druckschwankungen sowie eine erhöhten Stickstoffkonzentration im Vakuum. Zum Teil sind die Ursachen für die Schwankungen der Quelle jedoch ungeklärt. In diesem Abschnitt wird eine zeitlich variierende Zählrate $\lambda(t)$ betrachtet (Abb. 4.7). Wichtig ist dabei, dass $\lambda(t)$ nicht aufgrund der Poisson-Statistik der Messung schwankt. $\lambda(t)$ ist vielmehr die für ein zum Zeitpunkt t stattfindendes Poisson-Experiment zu Grunde liegende Zählrate. Experimentell wird jedoch bereits bei der Messung über ein Intervall $[t_i, t_i + \tau]$ der Länge τ in der Größenordnung von Minuten gemittelt:

$$\bar{\lambda}_i^\tau = \frac{1}{\tau} \int_{t_i}^{t_i+\tau} \lambda(t) dt \quad (4.16)$$

Eine gesamte Messung der Länge T wird in $M = \frac{T}{\tau}$ Intervalle unterteilt. Sie kann dann als Abfolge von M Poisson-Experimenten mit jeweils $\bar{\lambda}_i^\tau$ aufgefasst werden. Für jedes Intervall $[t_i, t_i + \tau]$ wird $\bar{\lambda}_i^\tau$ durch die Atomanzahl k_i durch $\widehat{\lambda}_i^\tau = \frac{k_i}{\tau}$ geschätzt. Aufgrund der Reproduktivität⁴ der Poisson-Verteilung ergibt sich $\widehat{\lambda}_i^\tau$ aus

⁴Die Summe zweier unabhängiger Poisson-verteilter Zufallsvariablen mit λ_1 und λ_2 ist wieder Poisson verteilt mit $\lambda = \lambda_1 + \lambda_2$.

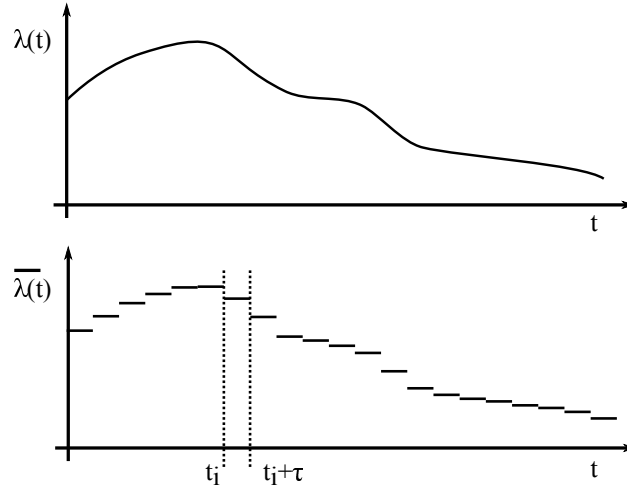


Abbildung 4.7: Exemplarischer Verlauf der Zählrate $\lambda(t)$ und daraus resultierende gemittelte Zählraten $\bar{\lambda}_i$.

einem Poisson-Experiment mit $\bar{\lambda}_i^\tau$ und $\sigma_{\hat{\lambda}_i^\tau}^2 = \frac{\bar{\lambda}_i^\tau}{\tau}$.

Der genaue Verlauf von $\lambda(t)$ im betrachteten Zeitintervall $[t_i, t_i + \tau]$ hat für den Ausgang des einzelnen Poisson-Experiments keine Bedeutung. Betrachtet man hingegen die Stichprobenvarianz aller M geschätzter $\hat{\lambda}_i^\tau = \frac{k_i}{\tau}$ Zählraten, so gilt:

$$\begin{aligned}
 \overline{\hat{\lambda}_i^\tau} &= \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M \hat{\lambda}_i^\tau \xrightarrow{T \rightarrow \infty} \overline{\lambda(T)} =: \lambda_0 \\
 V(\hat{\lambda}_i^\tau) &= \frac{1}{M-1} \sum_{i=1}^M (\hat{\lambda}_i^\tau - \overline{\hat{\lambda}_i^\tau})^2 \\
 &= \frac{1}{M-1} \sum_{i=1}^M (\hat{\lambda}_i^\tau - \bar{\lambda}_i^\tau + \bar{\lambda}_i^\tau - \overline{\hat{\lambda}_i^\tau})^2 \\
 &= \frac{1}{M-1} \sum_{i=1}^M \left[\underbrace{(\hat{\lambda}_i^\tau - \bar{\lambda}_i^\tau)^2}_{\xrightarrow{T \rightarrow \infty} \sigma_{\hat{\lambda}(\tau)}^2 = \frac{\lambda_0}{\tau} = \sigma_{\text{Poisson}}^2} + 2 \underbrace{(\hat{\lambda}_i^\tau - \bar{\lambda}_i^\tau)(\bar{\lambda}_i^\tau - \overline{\hat{\lambda}_i^\tau})}_{\xrightarrow{T \rightarrow \infty} 0} + \underbrace{(\bar{\lambda}_i^\tau - \overline{\hat{\lambda}_i^\tau})^2}_{\xrightarrow{T \rightarrow \infty} \sigma_{\bar{\lambda}^\tau}^2 = \sigma_{\text{Instabilität}}^2} \right] \\
 &\xrightarrow{T \rightarrow \infty} \sigma_{\text{Poisson}}^2 + \sigma_{\text{Instabilität}}^2 = \sigma_{\lambda_0}^2 + \sigma_{\bar{\lambda}^\tau}^2
 \end{aligned} \tag{4.17}$$

Im Mittel verschwinden die gemischten Terme in 4.17, da $\bar{\lambda}_i^\tau$ zwar den Mittelwert, aber nicht den genauen Ausgang $\bar{\lambda}_i^\tau$ des zu Grunde liegenden Poisson-Experimentes

bestimmt. Die Stichprobenvarianz (Glg. 4.17) ist die Summe aus der Varianz der Poisson-Verteilung und der Varianz der Schwankungen. Die Formel zeigt auch, dass Schwankungen immer zu einer größeren Streuung der Messwerte führen werden. Ein Streudiagramm ist eine Möglichkeit, dies zu visualisieren (Abb. 4.8). Auf der linken Seite ist ein stationärer Poisson-Prozess, auf der rechten Seite hingegen wurde ein plötzlicher Abfall der Zählrate um 30% nach der Hälfte der Zeit simuliert. Deutlich ist im Vergleich zu sehen, dass die Datenpunkte nach rechts oben und links unten streuen. Vor dem Abfall sind sowohl k_i und k_{i+1} im Mittel größer als der Durchschnitt. Folglich werden die Daten nach rechts oben verschoben liegen. Analoges gilt für die Daten nach dem Abfall für die linke untere Ecke.

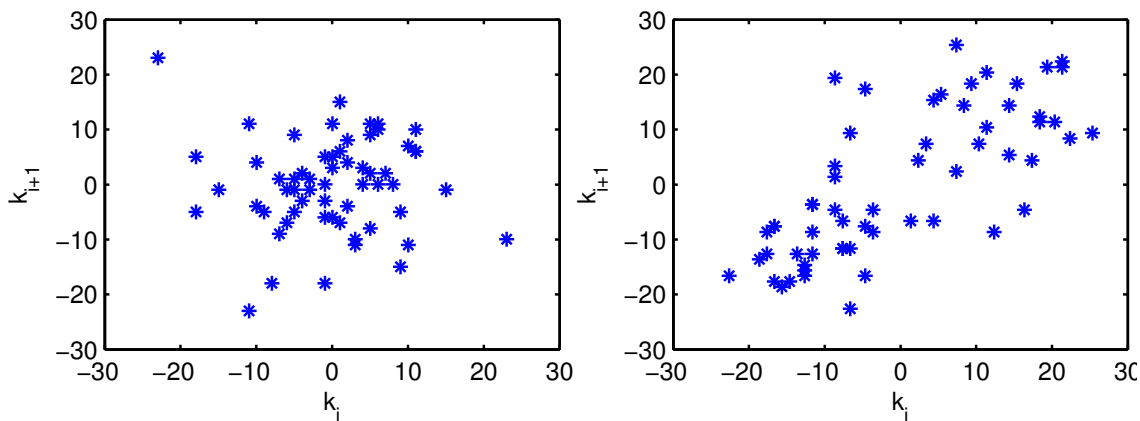


Abbildung 4.8: Simuliertes Streudiagramm mit $t = 1$ h und $\tau = 60$ s: Links: Stationäre Poisson-Verteilung mit $\lambda = 3600$ Atome/h. Rechts: Plötzlicher Abfall der Zählrate nach 30 min um 30%

4.5.1 Allan-Varianz

Die Allan-Varianz wurde ursprünglich für die statistische Analyse der Stabilität von Atomuhren und anderen Oszillatoren entwickelt [29] und soll im Folgenden auf das Zählen weniger einzelner Atome übertragen werden. Dabei sind jedoch zwei deutliche Unterschiede zu beachten. Der zeitliche Bereich, in dem Instabilitäten untersucht werden, ist beim Zählen einzelner Atome deutlich kleiner. Bei Oszillatoren spielen hochfrequente Rauschquellen ebenso eine Rolle wie langfristige Drifts. Im konkreten Fall hingegen erstreckt sich die zugängliche Zeitskala von ca. 15 s bis 100 h. Auch bei angereicherten Proben sind die Ereignisse noch so selten, dass eine deutlich kürzere Mittlung nicht sinnvoll ist. Der zweite Unterschied ist, dass allen Schwankungen zusätzlich noch die Poisson-Verteilung mit einer relativ breiten aber bekannten und alleine von der Zählrate abhängenden Varianz überlagert ist.

Die Allan-Varianz ist definiert als Erwartungswert der Stichproben-Varianz für jeweils zwei aufeinanderfolgende Stichproben [29]:

$$\sigma_{\lambda}^2(\tau) = \left\langle \sum_{i=1}^2 \left(\widehat{\lambda}_i^{\tau} - \frac{1}{2} \sum_{j=1}^2 \widehat{\lambda}_j^{\tau} \right)^2 \right\rangle = \frac{1}{2} \left\langle \left(\widehat{\lambda}_2^{\tau} - \widehat{\lambda}_1^{\tau} \right)^2 \right\rangle \quad (4.18)$$

Ein einziger Wert der Allan-Varianz ist noch nicht besonders anschaulich, daher wird die Allan-Varianz in einem doppellogarithmischen Graphen, dem sogenannten Allan-Plot, über einen weiten Zeitbereich τ dargestellt. Sinnvoll ist dabei eine Darstellung bis $\tau = T/10$. Darüber hinaus ist die Statistik aufgrund der geringen Anzahl an Stichproben nicht mehr besonders aussagekräftig. Praktisch wird die Allan-Varianz berechnet, indem die Messung in M kleinste Einheiten der Länge τ_0 unterteilt wird. Für alle weiteren Intervallbreiten werden Vielfache davon gewählt: $\tau = n\tau_0$. Der Erwartungswert der Allan-Varianz wird dann über den Mittelwert der $m_1 = \lfloor \frac{M}{n} \rfloor - 1$ Daten $\widehat{\lambda}_i^{\tau}$ geschätzt:

$$\widehat{\lambda}_i^{\tau} = \frac{1}{n} \sum_{j=n(i-1)+1}^{ni} \widehat{\lambda}_j^{\tau_0} \quad (4.19)$$

$$\sigma_{\lambda}^2(\tau) = \frac{1}{2} \left\langle \left(\widehat{\lambda}_2^{\tau} - \widehat{\lambda}_1^{\tau} \right)^2 \right\rangle \approx \frac{1}{2m_1} \sum_{j=1}^{m_1} \left(\widehat{\lambda}_{j+1}^{\tau} - \widehat{\lambda}_j^{\tau} \right)^2$$

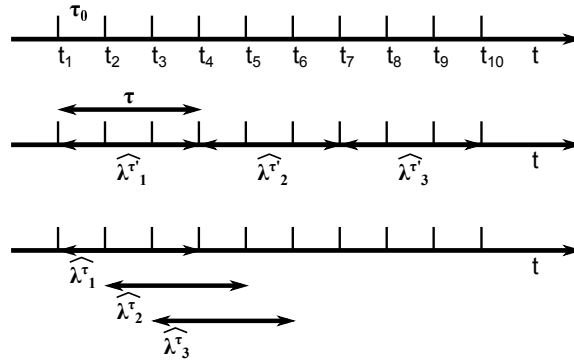


Abbildung 4.9: Unterteilung der Messzeit zur Berechnung der Allan Varianz: Unterteilung in kleinste Einheiten, Aufteilen ohne und mit Überlapp

Knapp n -mal mehr Datenpunkte können durch ein Überlappen der Intervalle erzielt werden (Abb. 4.9). Analog zur Gleichung 4.19 gilt damit für die Schätzung der Allan-Varianz:

$$\begin{aligned}
m_2 &= M - 2n + 1 \\
\widehat{\lambda}_i^\tau &= \frac{1}{n} \sum_{j=i}^{i+n-1} \widehat{\lambda}_j^{\tau_0} \\
\sigma_\lambda^2(\tau) &= \frac{1}{2} \left\langle \left(\widehat{\lambda}_{n+1}^\tau - \widehat{\lambda}_1^\tau \right)^2 \right\rangle \approx \frac{1}{2m_2} \sum_{j=1}^{m_2} \left(\widehat{\lambda}_{j+n}^\tau - \widehat{\lambda}_j^\tau \right)^2
\end{aligned} \tag{4.20}$$

4.5.2 Simulation und Interpretation der Allan-Varianz

Im Folgenden wird die Auswirkung typischer Schwankungen auf die Allan-Varianz in Hinblick auf eine Langzeitmessung analysiert. Hierfür wurde die Allan-Varianz (Glg. 4.20) für verschiedene Szenarien mit realistischen Parametern einer Langzeitmessung simuliert:

$$\begin{aligned}
T &= 12 \text{ h} \\
\lambda_0 &= 2500 \text{ Atome/h} \\
\tau_0 &= 15 \text{ s}
\end{aligned} \tag{4.21}$$

Um die Schwankungen unabhängig vom Mittelwert λ_0 zu definieren, wird folgende Zerlegung verwendet:

$$\lambda(t) = \lambda_0 b(t) \quad \text{mit} \quad \frac{1}{T} \int_0^T b(t) dt = 1 \tag{4.22}$$

Parallel zur Allan-Varianz wird auch die Stichproben-Varianz betrachtet. Falls τ deutlich kleiner als die typische Zeitskala der Schwankungen ist, kann sie mit Hilfe von Gleichung 4.17 approximiert werden durch:

$$\begin{aligned}
V \left(\widehat{\lambda}_i^\tau \right) &= \sigma_{\text{Poisson}}^2 + \sigma_{\text{Instabilität}}^2 \\
\sigma_{\text{Poisson}}^2 &= \frac{\lambda_0}{\tau} \\
\sigma_{\text{Instabilität}}^2 &\approx \frac{1}{T} \int_0^T (b(t) - 1)^2 dt
\end{aligned} \tag{4.23}$$

Reine Poisson-Verteilung

Zunächst der idealistische Fall einer reinen Poisson-Verteilung, wie sie in Abschnitt 4.1 behandelt wurde mit λ zeitlich konstant ($b(t) = 1$). Aus den Gleichungen 4.18 bzw. 4.23 folgt für die Allan-Varianz und die Stichproben-Varianz in diesem Fall:

$$\begin{aligned}
\sigma_\lambda^2(\tau) &= \frac{\lambda_0}{\tau} \\
V \left(\widehat{\lambda}_i^\tau \right) &= \frac{\lambda_0}{\tau}
\end{aligned} \tag{4.24}$$

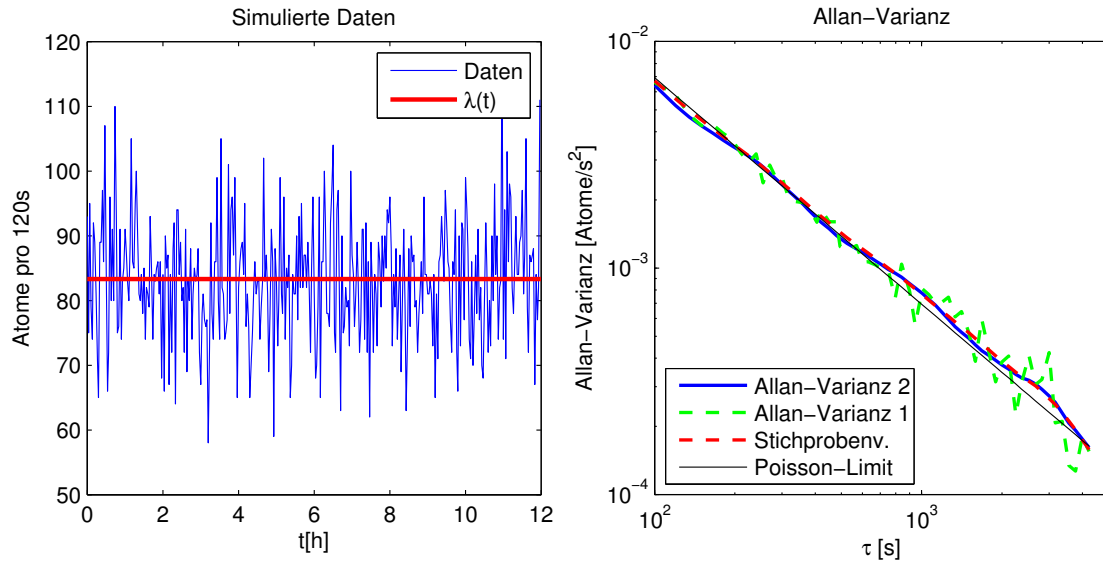


Abbildung 4.10: Links: Simulierte Daten für einen reinen Poisson-Prozess mit $\lambda(t) = \lambda_0$. Rechts: Allan-Varianz berechnet nach 4.20 und 4.19 (rot) sowie Stichproben-Varianz $V\left(\widehat{\lambda}_i^\tau\right)$. Die schwarze Linie gibt den theoretischen Wert von $\frac{\lambda_0}{\tau}$ an.

Abbildung 4.10 zeigt einen Ausschnitt ab $\tau = 100$ s des Allan-Plots für den stationären Fall. Dabei wurde die Allan-Varianz sowohl nach der einfachen Methode (4.19) und verbesserten (4.20) berechnet. Die verbesserte Variante zeigt deutlich weniger Schwankungen und wird daher auch im Folgenden immer verwendet. Sowohl die Allan-Varianz als auch die Stichproben-Varianz stimmen sehr gut mit $\frac{\lambda_0}{\tau}$ überein. Dieses ideale Verhalten ist zu erwarten, wenn die Apparatur über die gesamte Messzeit hinweg stabil ist.

Zufällige Schwankungen

Als erster nicht stationärer Fall soll $\lambda(t)$ statistischen Schwankungen folgen, die mit einer Normalverteilung beschrieben werden können. $b(t)$ muss hierfür in diskreten Zeitschritten τ_0 betrachtet werden und ist normalverteilt mit $\mu = 1$ und σ_b^2/τ_0 . Wieder verhalten sich theoretisch Allan-Varianz und die Stichproben-Varianz identisch:

$$\begin{aligned}\sigma_\lambda^2(\tau) &= \frac{\lambda_0}{\tau} + \lambda_0 \frac{\sigma_b^2}{\tau} \\ V\left(\widehat{\lambda}_i^\tau\right) &= \frac{\lambda_0}{\tau} + \lambda_0 \frac{\sigma_b^2}{\tau}\end{aligned}\tag{4.25}$$

Im Allan-Plot 4.11 ergeben sich zwei um $\lambda_0 \frac{\sigma_b^2}{\tau}$ zum Poisson-Limit verschobene Geraden, so dass umgekehrt durch die Analyse des Allan-Plots die Varianz der Schwankungen ermittelt werden kann.

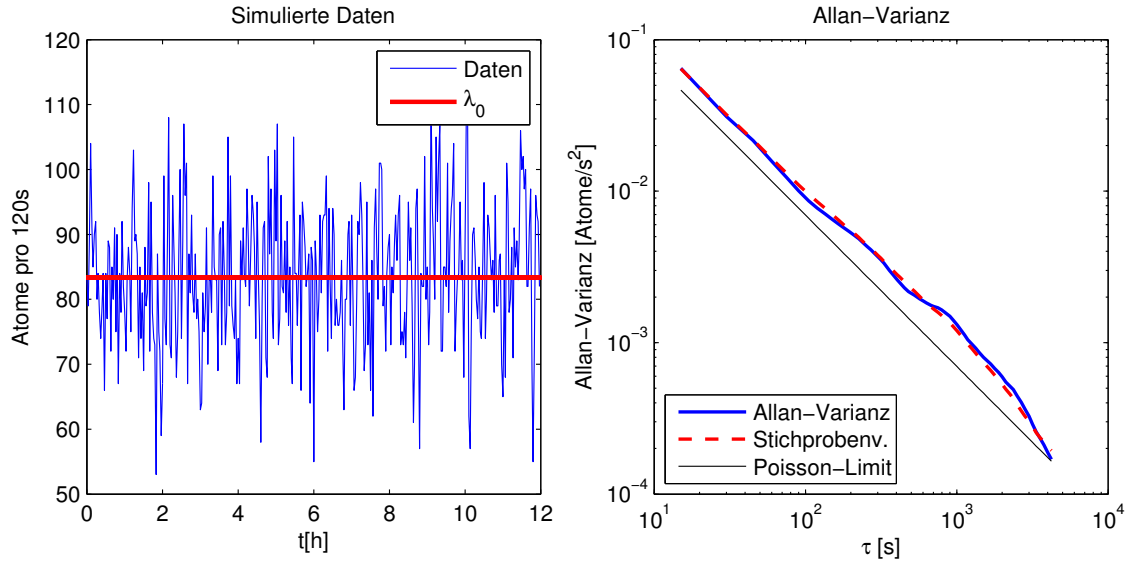


Abbildung 4.11: Links: Simulierte Daten für eine normalverteilte Schwankung mit $\frac{\sigma_b^2}{\tau_0} = \frac{0.04}{s}$. Rechts: Berechnete Allan-Varianz und Stichprobenvarianz. Die schwarze Linie gibt das theoretische Poisson-Limit an.

Linearer Drift

Lineare Drifts werden häufig auf experimentellen Daten beobachtet. Typische Ursachen für solche Schwankungen über größere Zeitskalen können Temperaturänderungen sein, die Änderungen der Laser-Frequenzen oder der Polarisation mit sich bringen. Zudem kann die Quelle einen Alterungsprozess aufweisen, der die Anregungseffizienz langsam verändert. Ein linearer Drift lässt sich beschreiben durch:

$$b(t) = 1 - \frac{a}{2T} + \frac{a}{T}t \quad (4.26)$$

Die Allan-Varianz und die Stichproben-Varianz berechnen sich zu:

$$\begin{aligned} \sigma_\lambda^2(\tau) &= \frac{\lambda_0}{\tau} + \frac{1}{2} \left(\frac{\lambda_0 a}{T} \right)^2 \tau^2 \\ V(\widehat{\lambda}_i^\tau) &= \frac{\lambda_0}{\tau} + \frac{(\lambda_0 a)^2}{12} \end{aligned} \quad (4.27)$$

Abbildung 4.12 zeigt das Ergebnis für $a = 0.5$, was einem Drift von 50% über die Gesamtzeit T entspricht. Diese ist, um die Effekte deutlicher hervorzuheben, in diesem Fall für $T = 120$ h simuliert. Sehr deutlich ist die Übereinstimmung zwischen den berechneten und simulierten Werten. Aus dem Zeitpunkt, an dem die Allan-Varianz abknickt (hier bei ca. $\tau = 1.2 \times 10^4$ s), lässt sich die Steigung a bestimmen. Zuvor zeigt die Allan-Varianz kaum Abweichungen von der idealen Kurve, so dass dieser Zeitpunkt auch die ideale Zeitdauer einer Messung angibt. Bei längeren Messungen

überwiegen die Effekte der Schwankungen. Die Stichproben-Varianz weicht viel früher bereits vom Poisson-Limit ab und ist danach konstant. Da, im Unterschied zur Allan-Varianz, nicht nur benachbarte Stichproben berücksichtigt werden, ist sie ein sehr sensibler Indikator für lineare Drifts.

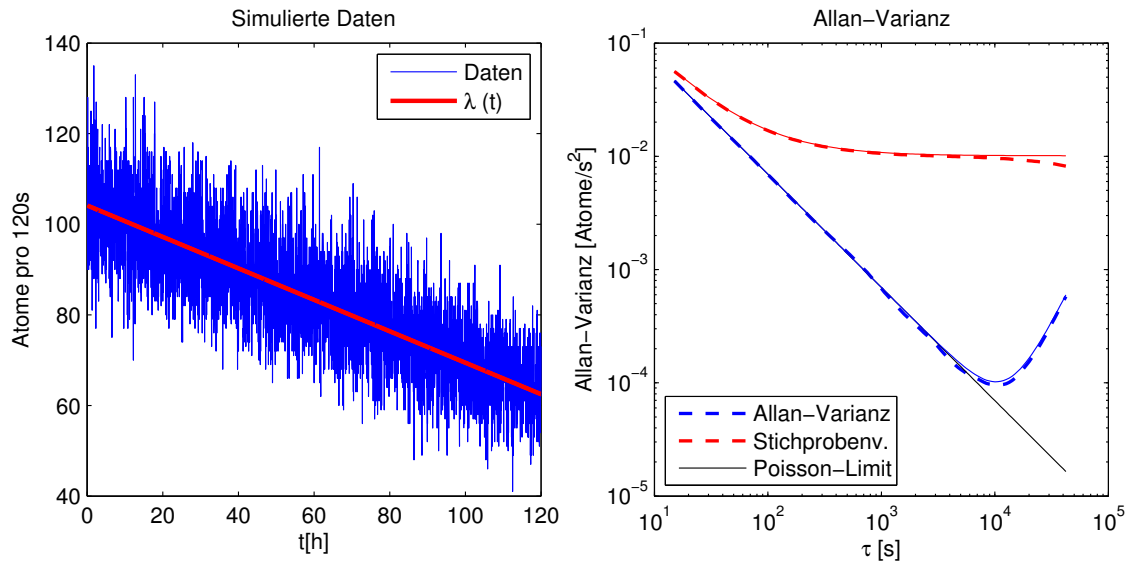


Abbildung 4.12: Links: Simulierte Daten für einen linearen Drift mit $a = -0.5$. Rechts: Berechnete Allan-Varianz und Stichprobenvarianz. Die durchgezogenen Linien zeigen den theoretischen Verlauf und das Poisson-Limit an.

Sprunghafte Änderung

Die Quelle kann in unterschiedlichen Zuständen brennen, was typischerweise eine sprunghafte Änderung der Zählrate bewirkt. Solche sprunghaften Änderungen zum Zeitpunkt t_0 um einen relativen Anteil a lassen sich parametrisieren durch:

$$b(x) = \begin{cases} 1 + a \frac{T-t_0}{T} & \text{für } t \leq t_0 \\ 1 - a \frac{t_0}{T} & \text{für } t > t_0 \end{cases} \quad (4.28)$$

Für die berechnete Allan-Varianz und die Stichproben-Varianz gilt in diesem Fall:

$$\begin{aligned} \sigma_\lambda^2(\tau) &= \frac{\lambda_0}{\tau} + \frac{4}{3}(\lambda_0 a)^2 \frac{\tau}{T} \\ V\left(\widehat{\lambda}_i^\tau\right) &= \frac{\lambda_0}{\tau} + (\lambda_0 a)^2 \end{aligned} \quad (4.29)$$

Für die Simulation wurde wiederum $T = 120$ h gewählt sowie $a = 0.1$. Dies entspricht einem Sprung um 20%. Die Stichproben-Varianz unterscheidet sich nur im Vorfaktor von der eines linearen Drifts und ist daher wiederum sehr sensitiv auf eine solche Schwankung (Abb. 4.13). Die Allan-Varianz hingegen unterscheidet sich.

Sie skaliert nur einfach mit τ . Wieder lässt sich aus der Höhe des Plateaus der Stichprobenvarianz bzw. aus dem Knick im Verlauf der Allan-Varianz a bestimmen.

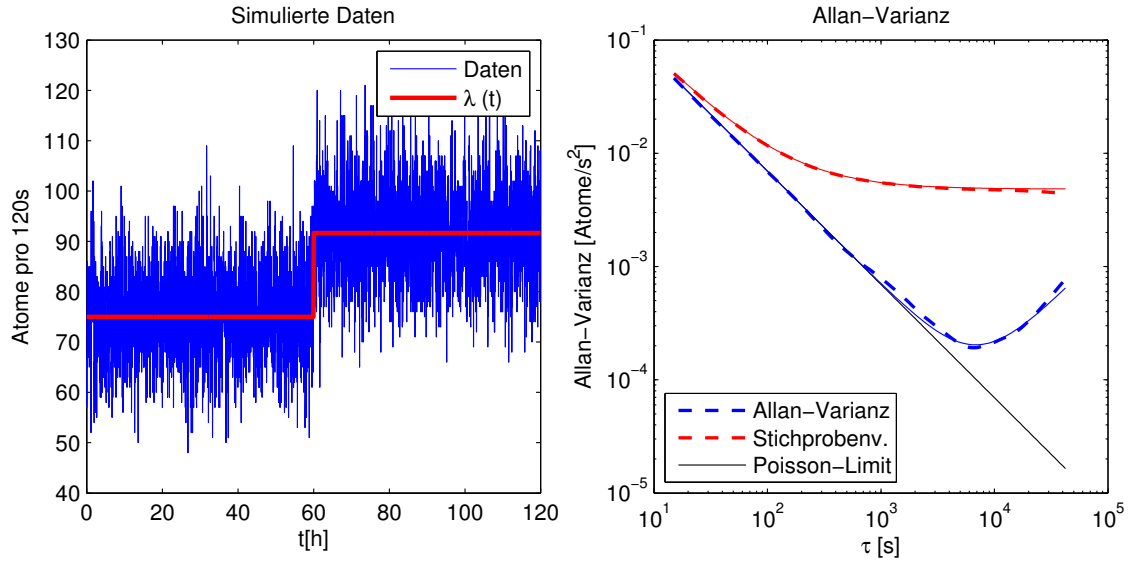


Abbildung 4.13: Links: Simulierte Daten für einen Sprung der Laderate nach $t_0 = 6h$ und mit $a = 0.1$. Rechts: Berechnete Allan-Varianz und Stichprobenvarianz. Die durchgezogenen Linien zeigen den theoretischen Verlauf und das Poisson-Limit an.

Periodische Schwankungen

Als letzte Klasse sollen periodische Schwankungen betrachtet werden. Zum Beispiel wurden mehrfach Schwankungen mit einer Periodendauer in der Größenordnung von $T_S = 20$ min beobachtet. Auch hierfür können Temperaturänderungen der Auslöser sein, die zu Schwankungen im Lasersystem führen. Im Folgenden sind sie charakterisiert durch:

$$b(t) = 1 + a \sin\left(2\pi \frac{t}{T_S}\right) \quad (4.30)$$

Die Stichproben-Varianz lässt sich in diesem Fall nicht mit Gleichung 4.23 approximieren, da das periodische Verhalten für die Stichproben eine von τ abhängige Mittelung erfordert. Für die Allan-Varianz kann hingegen eine analytische Lösung angegeben werden [29]:

$$\sigma_\lambda^2(\tau) = \frac{\lambda_0}{\tau} + (a\lambda_0)^2 \left(\frac{T_S}{\pi\tau}\right)^2 \sin^4\left(\pi \frac{\tau}{T_S}\right) \quad (4.31)$$

Die Oszillationen wurden mit $T_S = 20$ min und $a = 0.1$ simuliert. Das Ergebnis (Abb. 4.14) zeigt ebenfalls eine periodische Struktur mit einer Periode von $\frac{T_S}{2}$, deren Amplitude stark mit $\frac{1}{\tau^2}$ abnimmt. Periodische Schwankungen können somit leicht

im Allan-Plot identifiziert werden. Die Stichproben-Varianz hingegen zeigt zwar eine deutliche Abweichung vom Poisson-Limit. Eine periodische Struktur ist jedoch, besonders für kleinere τ , nicht so ausgeprägt.

In der Regel werden sich reale Schwankungen aus obigen zusammensetzen und damit ist eine eindeutige Interpretation des Allan-Plots nicht unbedingt möglich. Die Stichprobenvarianz zeigt bei Schwankungen früher und in der Regel deutlichere Abweichungen vom Poisson-Limit, da für ihre Berechnung Daten der gesamten Messungen miteinander verglichen werden und nicht nur benachbarte. Sie eignet sich daher besonders, um zu erkennen, ob eine Messung stabil war. Die Allan-Varianz hingegen bietet mehr Rückschlüsse auf die Art der Schwankung.

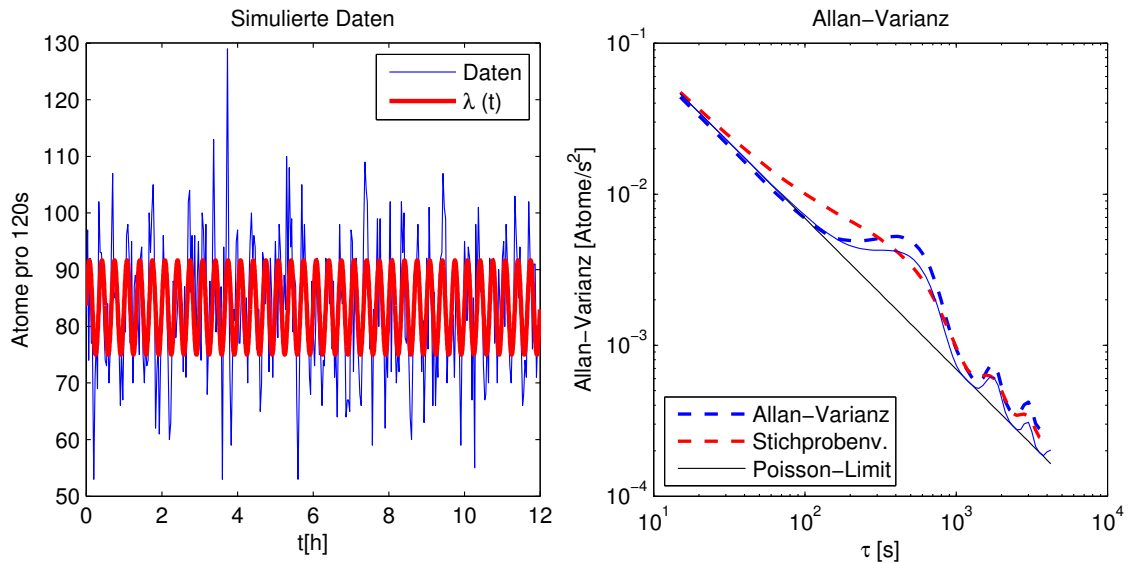


Abbildung 4.14: Links: Simulierte Daten für eine Oszillation der Laderate mit $T_s = 20$ min und $a = 0.1$. Rechts: Berechnete Allan-Varianz und Stichprobenvarianz. Die durchgezogenen Linien zeigen den theoretischen Verlauf der Allan-Varianz und das Poisson-Limit an.

4.6 Langzeitmessung

Die Stabilität der Zählrate wurde mit einer Langzeitmessung einer angereicherten Probe der Konzentration 10^{-12} analysiert. Bei einer höheren Konzentration sind häufig bereits mehr als drei Atome gleichzeitig in der MOT, was ein eindeutiges Zählen aller Atome nicht mehr möglich macht. Bei einer Konzentration von $\sim 10^{-12}$ hat im Rezyklier-Modus eine Anreicherung der Probe mit der Zeit durch Kontamination der Apparatur einen zu großen Einfluss auf die Zählrate. Daher wurde diese Messung im Durchfluss realisiert, was jedoch den experimentellen Aufwand deutlich erhöht. Insgesamt wurde an zwei Tagen über eine Gesamtzeit von knapp $T = 12$ h gemessen (Tab. 4.5).

Tabelle 4.5: Langzeitmessung bei einer Konzentration von 10^{-12}

Datum	T [min]	N	σ_N	\bar{k} mit $\tau = 120$ s	$V(k)$
21.11.12	250.6	10446	102.1	83.37	89.5
22.11.12	465.8	19042	137.7	81.75	92.1
Gesamt	716.4	29488	171.7	82.32	84.6

Die Werte der Stichprobenvarianz $V(k)$ weichen nur minimal von \bar{k} , der Varianz einer Poisson-Verteilung, ab. Dies ist bereits ein Indiz dafür, dass die Zählrate während der Messung konstant war. Eine genauere Analyse durch die Allan-Varianz (Abb. 4.15) zeigt bis ca. $\tau = 1000$ s nur minimale Abweichungen vom Poisson-Limit. Danach steigt sie minimal an, was möglicherweise auf einen minimalen linearen Drift oder eine zu geringe Stichprobenanzahl zurückzuführen ist. Für eine genauere Analyse ist jedoch die gesamte Messzeit zu kurz. Das Histogramm der Atomanzahl in Intervallen mit $\tau = 120$ s (Abb. 4.16) zeigt ebenfalls eine sehr gute Übereinstimmung mit der Poisson-Verteilung.

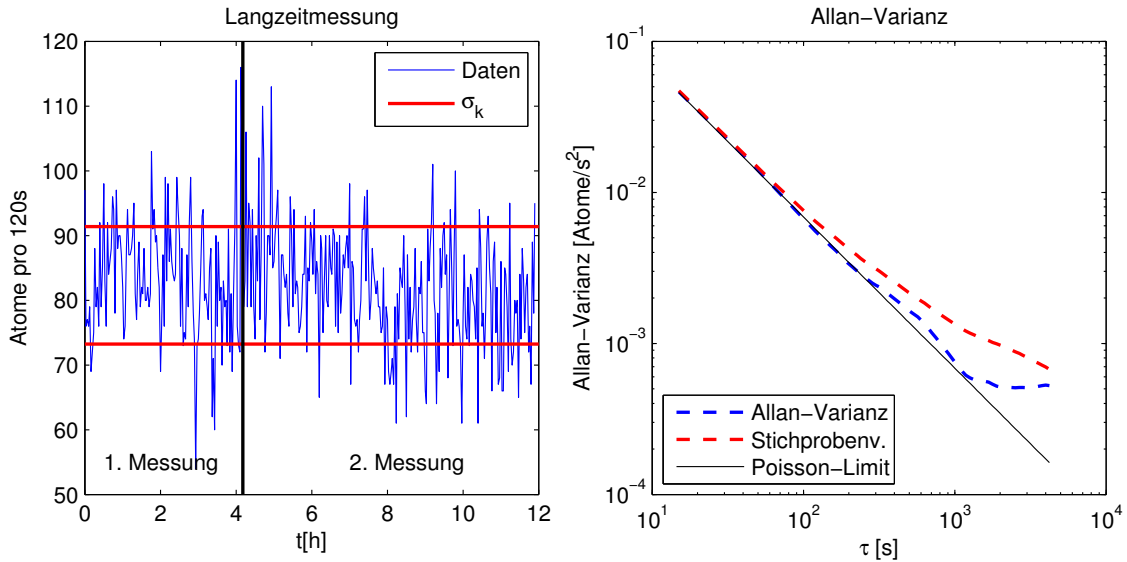


Abbildung 4.15: Links: Zeitliche Entwicklung der Zählrate über 12 h bei einer Konzentration von 10^{-12} . Die beiden waagrechten Linien deuten jeweils eine Standardabweichung an, der senkrechte Strich zeigt die Grenze zwischen erster und zweiter Messung. Rechts: Allan-Varianz und Stichprobenvarianz.

Neben der eigentlichen ^{39}Ar -Zählrate kann auch die Lebensdauer einzelner Atome in der MOT analysiert werden. Dabei ist jedoch wichtig, dass, sobald zwei oder mehr Atome gleichzeitig in der MOT sind, das Ende (Abfall im APD-Signal) nicht mehr eindeutig einem Atom zugeordnet werden kann. Es kann dann nur noch eine middle-

re Lebensdauer angegeben werden. Werden nur alle Atome betrachtet, die über die gesamte Zeit allein in der MOT waren, führt dies jedoch zu einer deutlich geringeren mittleren Lebensdauer von 520 ms, statt 620 ms über alle Atome gemittelt. Es ist deutlich wahrscheinlicher, dass zwei langlebige Atome gleichzeitig in der MOT sind, als dies für kurzlebige der Fall ist. Die Verteilung der Lebensdauern aller Atome die alleine in der MOT waren, ist in Abbildung 4.16 dargestellt. Theoretisch lässt sie sich bei einer mittleren Lebensdauer von \bar{t} durch eine exponentielle Wahrscheinlichkeitsverteilung beschreiben:

$$p(t) = \frac{1}{\bar{t}} e^{-\frac{t}{\bar{t}}} \quad (4.32)$$

Diese theoretische Verteilung stimmt sehr gut mit der tatsächlichen Verteilung überein. Unter 20 ms Lebensdauer können Atome nicht detektiert werden, da die APD-Daten über 40 ms gemittelt werden. Dadurch werden ca. 5 % aller in der MOT gefangenen Atome nicht erkannt. Um dies zu verbessern, müsste das Streulicht weiter reduziert werden, so dass ein besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis und damit eine kürzere Integrationszeit erzielt werden können. Zudem gibt es noch kleine Abweichungen für Lebensdauern über 1 s. Dies ist auf den bereits beschriebenen Effekt zurückzuführen, dass langlebige Atome häufiger zu zweit in der MOT anzutreffen sind und ihnen damit keine eindeutige Lebensdauer zugeordnet werden kann.

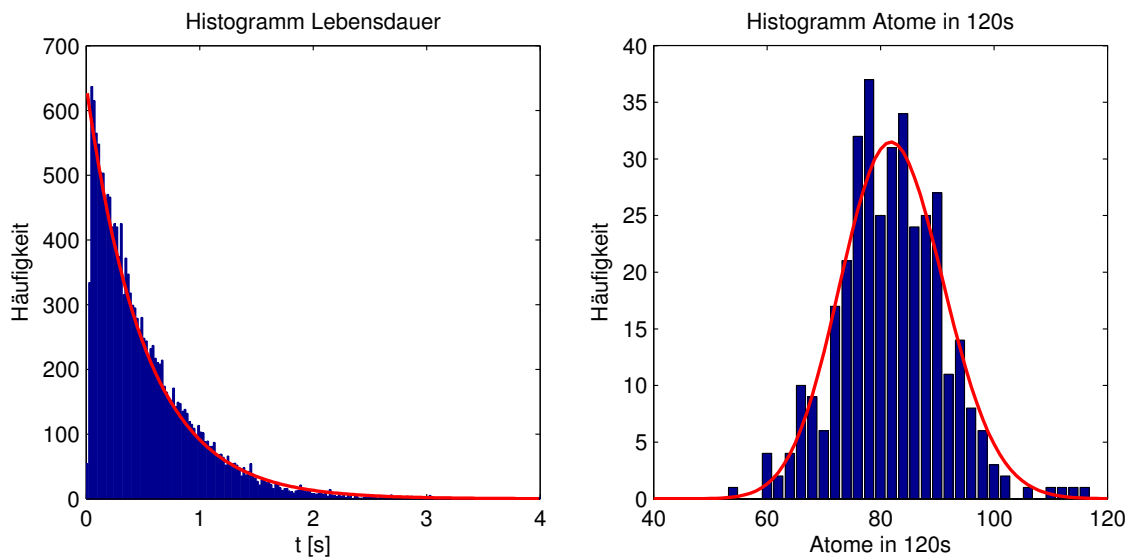


Abbildung 4.16: Links: Histogramm der Lebensdauer in der MOT für alle Atome die alleine in der MOT waren. Die durchgezogene Linie zeigt, die theoretisch erwartete exponentielle Verteilung mit $\bar{t} = 520$ ms. Rechts: Histogramm der Langzeitmessung unterteilt in Intervalle à 120 s. Die durchgezogene Linie zeigt eine Poisson-Verteilung mit $\lambda = 82.3$ Atome/(2min)).

Ein Nebeneffekt der Langzeitmessung ist eine auf unter 1% genau bestimmte Zählrate für eine Konzentration von 10^{-12} von 2470 Atome/h. Eine nach dem gleichen Verfahren präparierte Probe wird daher in Zukunft als standardisierte Referenz für weitere Optimierungen dienen können.

4.7 Kontamination und Nullmessung

Der Umgang mit angereicherten Proben ist die einzige realistische Möglichkeit eine ^{39}Ar -ATTA-Apparatur zu optimieren, jedoch nicht ohne Folgen. Besonders in der Quelle brennt ein Plasma, in dem eine große Anzahl an Ionen produziert wird, die in das umgebende Material implantiert werden können. Aber auch minimale Mengen an Restgas führen zu einer Kontamination der Apparatur. Wird eine Probe im Rezyklier-Modus länger in der Apparatur gehalten, so reichert sich ^{39}Ar in ihr an und die Zählrate steigt mit der Zeit. Für die Messung der Kontaminationsrate wird die Steigung der Zählrate mit der Zeit bestimmt (Abb. 4.17). Typische Werte liegen im Bereich von $200\text{ }^{39}\text{Ar}\text{-Atome/h}^2$. Ein Abtrennen der Getter-Pumpe und des RGAs vom Vakuum bewirkte keine Reduktion. Ein Rezyklieren hingegen, bei dem die Quelle und die Messung erst nach einer 1 h angeschaltet wurden, zeigte nicht den erwarteten Untergrund von 200 Atome/h, sondern begann auch nahezu bei 0. Die Quelle, jedoch nur im Betrieb, liefert mit Abstand den größten Beitrag zur Kontamination. Wegen technischer Schwierigkeiten konnten für diese Rate nur zwei Punkte aufgenommen werden.

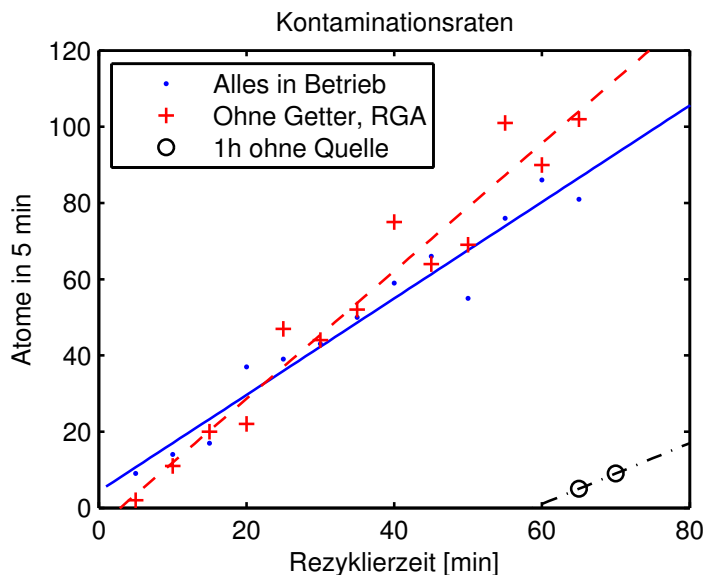


Abbildung 4.17: Bestimmung der Kontaminationsraten aus den linearen Fits: Getter und RGA spielen gegenüber der Quelle nur eine untergeordnete Rolle. Die Kontamination nach 1 h Rezyklieren ohne eingeschaltete Quelle ist nicht wesentlich gestiegen.

Mit Kontaminationsraten von 200 Atome/h² ist ein Messen im Rezyklier-Modus von atmosphärischen Proben mit Zählraten von 3 Atome/h ausgeschlossen. Eine Probe zirkuliert beim Rezyklieren ca. 2000 mal pro Stunde. Damit ist im Durchfluss die Kontamination mindestens um diesen Faktor unterdrückt. Jedoch werden mit dieser Abschätzung keine Effekte berücksichtigt, die die Probe vor dem Eintritt in die Apparatur verunreinigen. Um sicher zu gehen, dass es keinen signifikanten Beitrag der Kontamination zur Zählrate gibt, wurde eine Nullmessung mit einer ³⁹Ar-freien Probe durchgeführt.

Die Wahrscheinlichkeit α , mit der ein Beitrag zur Zählrate größer als λ_{Kon} ausgeschlossen werden kann, ergibt sich bei einer Messzeit T , in der N Atome gezählt werden, zu:

$$\alpha = 1 - \sum_{k=0}^N \frac{(\lambda_{Kon}T)^k}{k!} e^{-(\lambda_{Kon}T)} \quad (4.33)$$

Für das Auslegen der Dauer T einer Nullmessung wird jedoch ein α und ein λ_{Kon} vorgegeben. Für diese Fragestellung ist Gleichung 4.33 nur für den Fall $N = 0$ analytisch lösbar:

$$T = -\frac{\ln(1 - \alpha)}{\lambda_{Kon}} \quad (4.34)$$

Abbildung 4.18 zeigt in Abhängigkeit von λ_{Kon} und α die benötigte Messzeit für die drei Fälle $N = 0$, $N = 1$ und $N = 2$.

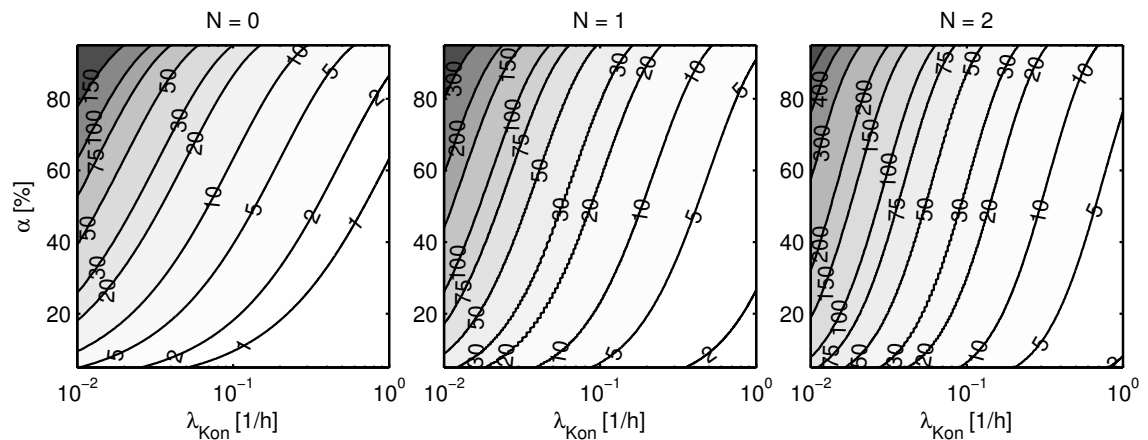


Abbildung 4.18: Benötigte Messzeit in [h], um eine durch Kontamination bedingte Zählrate λ_{Kon} mit einer Sicherheit von α auszuschließen.

Eine Nullmessung ist experimentell schwierig, da während der gesamten Messzeit sichergestellt werden muss, dass die Apparatur in der Lage ist, im Prinzip Atome zu zählen, auch wenn keine ³⁹Ar-Atome in der Probe sind. Hierfür ist das Überwachungssystem äußerst wichtig und wird daher an dieser Stelle kurz vorgestellt. Neben den eigentlichen Messdaten der APD in der ersten Zeile, die aktuell noch

nicht in Echtzeit zu Verfügung stehen, enthält Abbildung 4.19 auch die wichtigsten durch die Überwachung mit aufgezeichneten Daten. Dies sind von oben nach unten:

- Beatlock-Frequenzen für Kühler- und Rückpumper-TA: Sie beeinflussen alle Frequenzen und müssen daher auf unter 0.5 MHz genau eingestellt sein.
- Absorptionssignal der Quellenüberwachung sowie Position des Doppler-Tals. Das Absorptionssignal ist ein Indikator für den Fluss an metastabilen Atome und zeigt daher auch Druck- und Temperaturschwankungen der Quelle an. Die Position des Doppler-Tals wird zu Überwachung des Absorptionslaser benötigt.
- Power des ZSL und des Kühler-TAs. Es werden wesentlich mehr Laserpower mit Photodioden aufgezeichnet. Diese beiden sind für die Zählrate jedoch sehr kritisch.
- Die nächsten beiden Graphen zeigen die Überwachungssignale des Master-Lasers. Es werden die Mittelwerte und die Spitze-Spitze-Werte des Fehlersignals gespeichert. Störungen auf Letzteren sind ein Anzeichen für hochfrequente Oszillationen auf den Locksignalen, die meistens ein Aus-dem-Lock-Fallen ankündigen.
- Die nächsten beiden Graphen zeigen die äquivalenten Daten für die beiden Beat-Locks.
- Die unterste Zeile enthält die Überwachungsdaten des Quench-Lasers. Tritt hier ein Problem auf, so können die Messdaten meistens dennoch verwendet werden.

Die für die Nullmessung verwendete Probe stammte aus dem Great Artesian Basin in Australien und wurde am Physikalischen Institut der Universität Bern bereits durch Low Level Counting vermessen. Die ^{39}Ar -Konzentration lag unter der Nachweisgrenze von 10 % einer modernen Probe. Für das Messen mittels Low Level Counting muss jedoch die Probe mit ca. 6 % Methan versetzt werden. Die Messung wurde um 8 Uhr gestartet und um 14 Uhr nach 6 Stunden zeigte die Quelle einen deutlichen Leistungsabfall, bis sie schließlich komplett erlosch. Nach einem kurzen Abschalten der Quelle konnten wieder die alten Leistungswerte erreicht werden, jedoch traten nach einer Stunde wieder Probleme auf, die bei einer direkt anschließenden Messung mit reinem Argon nicht zu beobachten waren. Somit kann das anomale Verhalten der Quelle auf die hohe Methankonzentration zurückgeführt werden. Hierfür gibt es zwei mögliche Erklärungen: Der Siedepunkt von Methan liegt bei 111 K und damit 35 K über der Temperatur von flüssigem Stickstoff, so dass das Methan an besonders kalten Stellen flüssig werden könnte. Das Methan wird in der Quelle in Wasserstoff und Kohlenstoff aufgespalten, im RGA hingegen wurde jede Menge Wasserstoff detektiert, jedoch kaum Kohlenstoff. Eine zweite Erklärung ist daher, dass sich der Kohlenstoff in der Quelle und auf der Spule abgesetzt und damit diese beeinträchtigt hat.

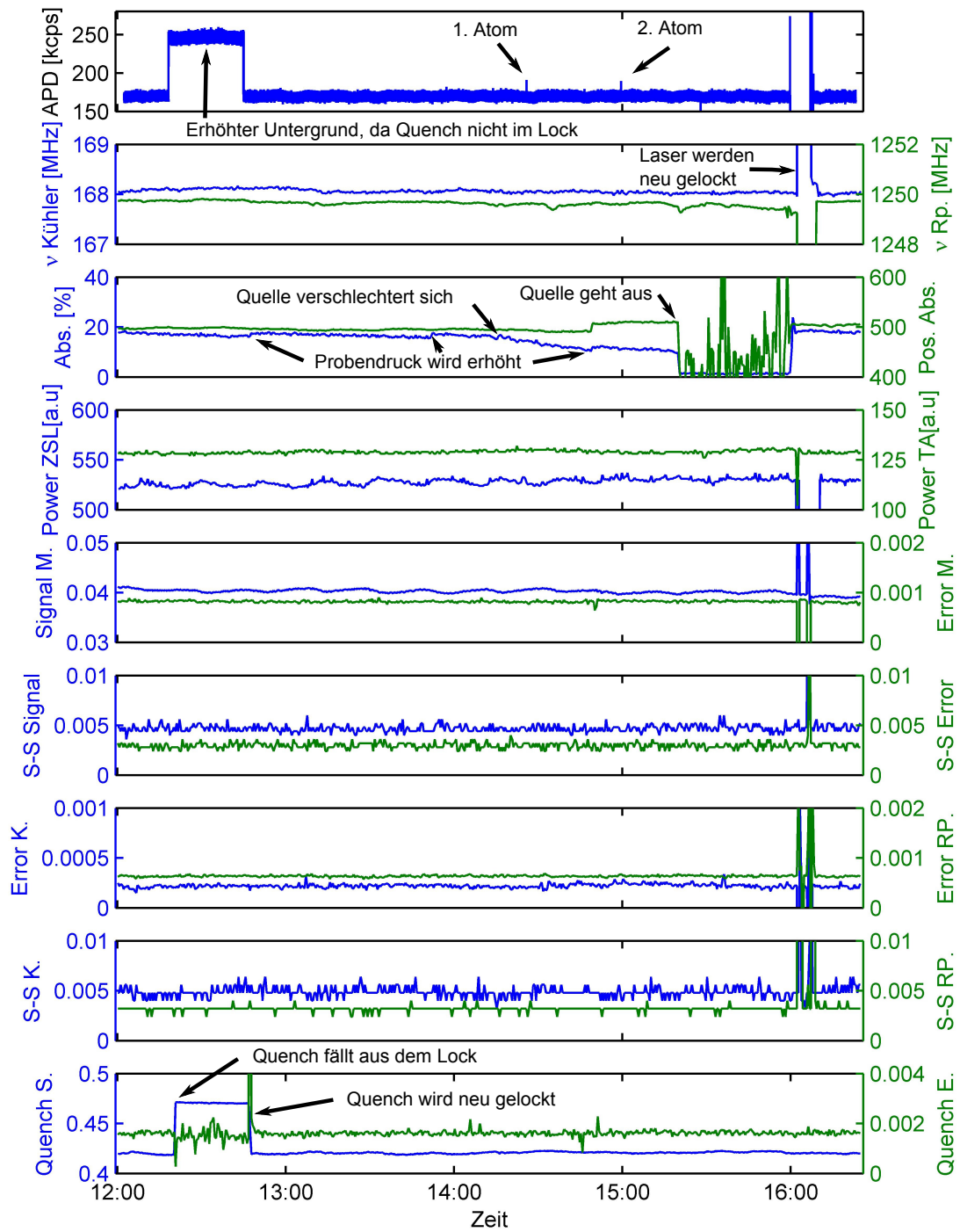


Abbildung 4.19: 4 der 8 Stunden der Nullmessung: APD-Signal und ein Teil der mit aufgezeichneten Überwachungsdaten

In den ersten 6 Stunden wurde kein Atom gezählt, jedoch zwei in der Stunde, in der die Quelle an Effizienz verlor und anschließend erlosch. Es besteht daher der Verdacht, dass die RF-Energie nicht mehr in das Plasma deponiert wurde, sondern sich andere Komponenten erwärmten und damit verstärkt ^{39}Ar ausgastete. Werden nur die ersten 6 Stunden, in denen alles einwandfrei funktionierte, herangezogen, so kann mit $\alpha = 90\%$ ein Beitrag zur Zählrate durch Kontamination größer als $\lambda_{Kon} = 0.38 \text{ Atome/h}$ ausgeschlossen werden. Es muss jedoch auch beachtet werden, dass die Probe eventuell doch einen geringen Anteil ^{39}Ar enthält. Bereits 5% einer modernen Probe führen im Mittel zu einem Atom in 7 Stunden.

Aufgrund der Schwierigkeiten während der Messung und der insgesamt zu geringen Messzeit wurde diese Messung kurz vor dem Abgabetermin, nachdem die Probe durch die Kollaborationspartner Thomas Reichel und Arne Kersting in der Gruppe von Werner Aeschbach-Hertig am Heidelberger Institut für Umweltphysik von Methan gereinigt worden war, wiederholt. Diese Wiederholung ergab 1 Atom in knapp 7 Stunden, so dass insgesamt 1 Atom in 13 Stunden gemessen wurde. Damit kann ein Beitrag durch Kontamination von $\lambda_{Kon} = 0.3 \text{ Atome/h}$ mit $\alpha = 90\%$ ausgeschlossen werden.

5 Erstmalige Datierung einer natürlichen Wasserprobe mit ^{39}Ar -ATTA

Die Optimierungen der beiden vorangegangenen Kapitel führten zu einer Steigerung der atmosphärischen ^{39}Ar -Zählrate auf 4.1 Atome/h. Zudem konnten erhebliche Fortschritte in der Stabilität der Zählrate über Wochen hinweg erzielt werden. Diese Verbesserungen führten abschließend zu den ersten beiden erfolgreichen Messungen natürlicher Wasserproben, die in diesem Kapitel vorgestellt werden. Solange eine Wasserprobe mit der Atmosphäre in Kontakt steht, ist die ^{39}Ar -Konzentration dieselbe wie in der Atmosphäre. Sobald die Probe von der Atmosphäre abgeschlossen wird, zerfällt das instabile ^{39}Ar -Isotop exponentiell mit der Zeit:

$$c(t) = c_0 \cdot e^{-\frac{\ln(2)t}{T_{1/2}}} \quad (5.1)$$

Bei bekannter Anfangskonzentration c_0 kann durch Bestimmung der Konzentration $c(t) = c_{Probe}$ der Zeitpunkt des letzten Kontaktes mit der Atmosphäre rekonstruiert werden:

$$t = \tau \ln \frac{c_0}{c_{Probe}} = \tau \ln \frac{\lambda_0}{\lambda_{Probe}} \quad (5.2)$$

Dabei wurde die mittlere Lebensdauer von ^{39}Ar $\tau = T_{1/2} / \ln 2 = 388$ a eingeführt. An Stelle des Verhältnisses der Konzentrationen kann auch direkt die Zählrate der Probe $\lambda_{Probe} = N_{Probe} / T_{Probe}$ mit der atmosphärischen Zählrate $\lambda_0 = N_0 / T_0$ verglichen werden. Um den modernen Standard direkt über die atmosphärische Zählrate definieren zu können, muss jedoch gewährleistet werden, dass die Apparatur bei allen Messungen stabil und gleich effizient ist. Die Überwachungs-Werkzeuge ermöglichen dabei eine schnelle Identifikation von Schwankungen während einer Messung sowie einen Vergleich der wichtigsten Kenngrößen zwischen den unterschiedlichen Messungen. Darüber hinaus wurde die atmosphärische Zählrate vor und nach jeder Probe über insgesamt 48.2 h gemessen und betrug $\lambda_0 = 4.1(3)$ Atome/h¹. Die Messwerte in Abbildung 5.1 reproduzieren nahezu die theoretisch zu erwartende Poisson-Verteilung der Zählrate bzw. die exponentielle Verteilung der Zeiten zwischen zwei detektierten Atomen. Dies deutet sehr stark darauf hin, dass die Zählrate über die zwei Wochen der Messung hinweg stabil war. Eine genauere Analyse mittels Allan-Varianz (vgl. Kapitel 4.5.1) ist jedoch wegen der geringen Anzahl an Ereignissen von 198 Atomen nicht möglich.

¹Die Unsicherheiten der Messungen werden hier mit einer Standardabweichung σ angegeben.

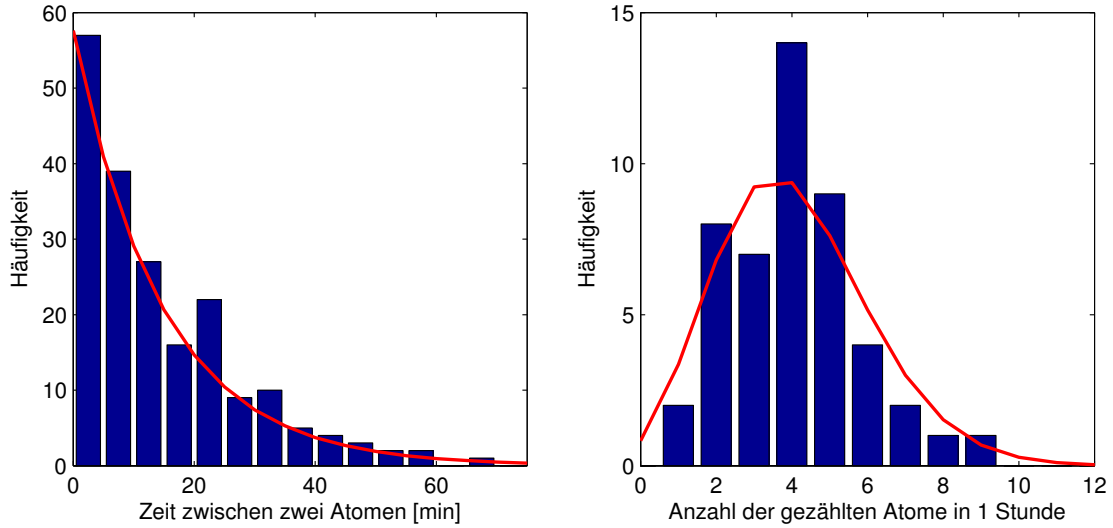


Abbildung 5.1: Atmosphärische Messung mit 198 Atomen in 48.2 h. Links: Histogramm der Zeiten zwischen zwei Atomen. Die theoretische exponentielle Verteilung ergibt sich aus einem Poisson-Prozess. Rechts: Histogramm der Anzahl an Atomen in 1 h. Die Kurve zeigt die theoretische Poisson-Verteilung.

Die Zählraten sind mit einem statistischen Fehler $\Delta\lambda_{stat} = \sqrt{N}/T$ aufgrund der Poisson-Verteilung behaftet. Werden darüber hinaus systematische Unsicherheiten $\Delta\lambda_{syst}$ berücksichtigt, gilt für den absoluten Fehler der Altersbestimmung:

$$\begin{aligned}
 \Delta t &= \sqrt{\left| \frac{\partial t}{\partial \lambda_0} \right|^2 (\Delta^2 \lambda_{0,stat} + \Delta^2 \lambda_{0,syst}) + \left| \frac{\partial t}{\partial \lambda_{Probe}} \right|^2 (\Delta^2 \lambda_{Probe,stat} + \Delta^2 \lambda_{Probe,syst})} \\
 &= \sqrt{\left| \frac{\partial t}{\partial N_0} \right|^2 (\Delta^2 N_{0,stat} + \Delta^2 N_{0,syst}) + \left| \frac{\partial t}{\partial N_{Probe}} \right|^2 (\Delta^2 N_{Probe,stat} + \Delta^2 N_{Probe,syst})} \\
 &= \tau \sqrt{\frac{1}{N_0} + \frac{1}{N_{Probe}} + \left(\frac{\Delta N_{0,syst}}{N_0} \right)^2 + \left(\frac{\Delta N_{Probe,syst}}{N_{Probe}} \right)^2}
 \end{aligned} \tag{5.3}$$

Das nahezu Poisson'sche Verhalten der atmosphärischen ^{39}Ar -Zählrate, die über den gesamten Zeitraum der Messungen verteilt ermittelt wurde, legt nahe, dass die statistischen Fehler gegenüber den systematischen dominieren. Gleichung 5.3 vereinfacht sich dann zu:

$$\Delta t = \tau \sqrt{\frac{1}{N_0} + \frac{1}{N_{Probe}}} \tag{5.4}$$

Die ersten beiden Wasserproben wurden im Schwetzingen Hardt bei Heidelberg aus bestehenden Brunnen für die Trinkwasserversorgung genommen. Die gelösten Gase

Tabelle 5.1: Übersicht über die Daten der Wasserproben F10/3 und GOE15/2 aus dem Schwetzingen Hardt sowie die Ergebnisse der Datierung mittels ^{39}Ar -ATTA

Probe	Mittlere Tiefe [m]	^3H [TU]	^{14}C [pmC]	N [Atome]	T [h]	^{39}Ar [% modern]	Alter [a]
F10/3	120	0.004	70.2	42	27	38(6)	377(66)
GOE15/2	50	0.009	68.9	39	24	40(7)	360(68)

wurden vor Ort aus ca. 3000l Wasser extrahiert. Anschließend wurde am Institut für Umweltphysik in Heidelberg in der Gruppe von Werner Aeschbach-Hertig an der eigens für ^{39}Ar -ATTA entwickelten Extraktionsanlage das Argon separiert. Tritium wurde in den Laboren des Institutes für Umweltphysik an der Universität in Bremen gemessen, die ^{14}C -Häufigkeit hingegen am Klaus-Tschira-Labor für physikalische Altersbestimmung in Mannheim. Diese Proben wurden für die ersten Messungen ausgewählt, da die sehr geringe ^3H -Konzentration ($T_{1/2} = 12.32$ a) (vgl. Tab. 5.1) zeigt, dass sie auf jeden Fall älter als 50 a sind und auch keine signifikante Vermischung mit jüngerem Wasser stattgefunden hat. Das Vorhandensein von ^{14}C ($T_{1/2} = 5730$ a) in der Größenordnung von 70 pmC hingegen schließt ein Alter von über 2000 a aus. Das Alter der Proben sollte damit in einem für ^{39}Ar -ATTA zugänglichen Bereich liegen. Eine genauere Altersbestimmung mit der ^{14}C -Methode ist bei Wasserproben problematisch, da es im Untergrund zu einem Austausch von Kohlenstoff kommen kann. So lässt z.B. gelöster Kalk das Wasser älter erscheinen. Der zusätzliche Beitrag solcher Kohlenstoffquellen muss für die ^{14}C -Datierung abgeschätzt werden. Des Weiteren wurden die Proben ausgewählt, da sie aus 120 m bzw. 50 m Tiefe und damit vielleicht aus unterschiedlichen wasserführenden Schichten stammen. Ein Unterschied im Alter schien dabei möglich.

Die Datierung mittels ^{39}Ar -ATTA ergab ein Alter von 377(66) a für die Probe aus 120 m Tiefe (F10/3) sowie ein Alter von 360(68) a für die Probe aus 50 m Tiefe (GOE15/2). Im Rahmen der Messfehler haben somit beide Proben ein identisches Alter. Dieses Ergebnis legt nahe, dass es zu einer Vermischung zwischen diesen wasserführenden Schichten kommt. Der absolute Fehler von über 60 a wird überwiegend durch den statistischen Fehler der geringen Anzahl gezählter Atome für die beiden Proben bestimmt. Für eine genauere Messung müssten daher die Messzeiten für die Proben erhöht werden. Da momentan auf Grund von Kontamination nicht im Rezyklier-Modus gemessen werden kann, ist hierfür jedoch eine größere Probenmenge nötig.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Abschließend werden in diesem Kapitel die wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit in einer Abschätzung der gesamten Zählrate zusammengefasst und dabei Potential für weitere Verbesserungen aufgezeigt.

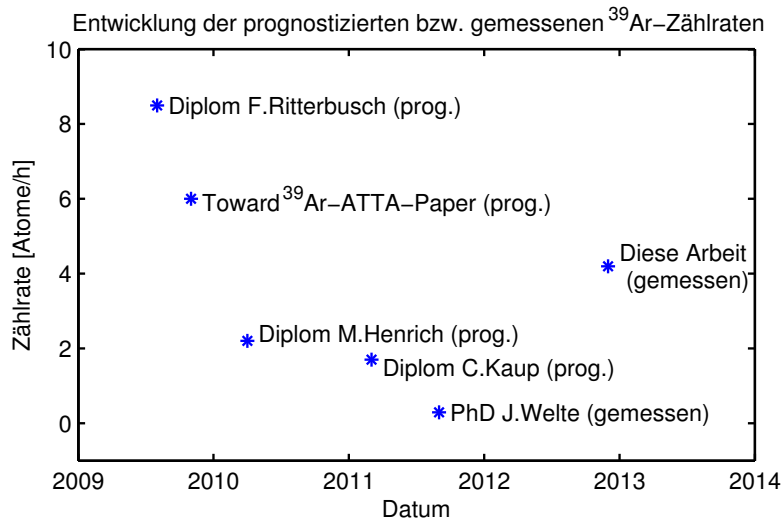


Abbildung 6.1: Entwicklung der atmosphärischen ^{39}Ar -Zählraten-Abschätzung im Laufe des ^{39}Ar -ATTA-Projekts. Die beiden letzten Datenpunkte beruhen auf einer Messung der atmosphärischen Zählrate [14, 30, 16, 17, 2].

Abschätzung der atmosphärischen ^{39}Ar -Zählrate

Die ^{39}Ar -Zählrate λ in der MOT ergibt sich aus dem gesamten Argonfluss durch die Quelle \dot{N}_{tot} mit Hilfe einer Vielzahl an Faktoren:

$$\lambda = \dot{N}_{tot} \cdot \eta_{exc} \cdot c \cdot \eta_p \cdot \eta_{geom} \cdot \eta_{HFS} \cdot \eta_{Kol,trans} \cdot \eta_{Kol,HFS} \cdot \eta_{MOL} \cdot \eta_{ZSL} \cdot \eta_{MOT} \quad (6.1)$$

Gesamtfluss an metastabilen Atomen $\dot{N}_{tot} \cdot \eta_{exc}$ Durch die Quelle strömen $\dot{N}_{tot} = \sim 6 \times 10^{20}$ Atome/h. Wie in Abschnitt 3.3 mittels Absorption gemessen, beträgt die Anregungseffizienz $\eta_{exc} \sim 2.3 \times 10^{-4}$, so dass ein Gesamtfluss metastabiler Atome von $\sim 1.3 \times 10^{17}$ Atome/h zur Verfügung steht. Wie ebenfalls gezeigt wurde, ist dieser Fluss stark druckabhängig.

^{39}Ar -Konzentration c Die relative Häufigkeit von ^{39}Ar in einer modernen atmosphärischen Probe beträgt $c_0 = 8.1 \times 10^{-16}$ und für eine alte Probe gilt $c(t) = c_0 e^{-\frac{\ln 2}{269\text{a}} t}$. Bei einer Messung mit atmosphärischem Argon verlassen 100 bis 150 metastabile ^{39}Ar -Atome pro Stunde die Quelle.

Verlust durch Kollisionen η_p Kollisionen der metastabilen Argon-Atome mit dem Restgas in der Quellkammer führen zu einem Verlust von ca. 30% ($\eta_p = 0.7$) auf den ersten 18 cm. Bei höheren Drücken steigen diese Verluste stark an (Abschnitt 3.3).

Geometrische Verluste η_{geom} Die direkt hinter der Quelle gemessenen Geschwindigkeitsverteilungen (Abschnitt 3.2) für die transversale und longitudinale Geschwindigkeit ergeben, dass ohne weitere Kollimation nur $\eta_{geom} = \sim 3 \times 10^{-4}$ der Atome die MOT erreichen.

Verluste durch ^{39}Ar -Hyperfeinstruktur η_{HFS} In der Quelle werden die ^{39}Ar -Atome auf alle Hyperfeinniveaus des metastabilen Zustands verteilt, gewichtet mit deren Entartung, angeregt. Ohne zusätzliche Laserfrequenzen (Rückpumper) sind nur $\eta_{HFS} = 0.3$ aller Atome im Zustand $F = 11/2$ und damit resonant mit den Laserfrequenzen der Laser-Kühlung.

Verstärkung durch Kollimator $\eta_{Kol,trans}$ und $\eta_{Kol,HFS}$ Für ^{39}Ar können die Verstärkung durch die transversale Kühlung im Kollimator und der Effekt des Umpumpens der Ausgangsverteilung auf alle Hyperfeinniveaus nicht unabhängig voneinander gemessen werden (Abschnitt 4.2). Für die gesamte Verstärkung gilt: $\eta_{Kol,trans} \cdot \eta_{Kol,HFS} \sim 200$ (Tab.3.2). Unter der Annahme, dass durch alle vier Rückpumper im Kollimator die Verluste durch die ^{39}Ar -Hyperfeinstruktur vollständig kompensiert werden können, folgt $\eta_{Kol,HFS} = 3.3$ und damit für die Effizienz der transversalen Kühlung $\eta_{Kol,trans} = \sim 60$. Die Kollimation ist im Vergleich zu ^{40}Ar und ^{38}Ar für ^{39}Ar wesentlich ineffizienter (vgl. Tab. 3.2). Jedoch ist zu beachten, dass die für ^{39}Ar gemessene Verstärkung auf einer geringen Anzahl an Atomen beruht und damit eine große statistische Unsicherheit beinhaltet.

Verstärkung durch MOL η_{MOL} Die MOL bewirkt durch eine Fokussierung des Atomstrahls auf das Zentrum der MOT und durch eine weitere transversale Kühlung eine Verstärkung von $\eta_{MOL} = 1.4$.

ZSL-Effizienz η_{ZSL} Bei einer mittleren longitudinalen Geschwindigkeit von 287 m/s (Tab. 3.1) und einer maximalen Einfanggeschwindigkeit des ZSL von 600 m/s (Abb. 3.5), kann der ZSL theoretisch nahezu alle Atome einfangen: $\eta_{ZSL} = 0.99$

MOT-Effizienz η_{MOT} Wie viele der Atome, die durch den ZSL abgebremst werden und die MOT erreichen, tatsächlich eingefangen werden, lässt sich nur schwer abschätzen. Die Messung im Abschnitt 4.3 zeigt Potential für eine weitere Steigerung um ca. 20%. Jedoch wurde durch eine Optimierung der Laserleistung

nach dieser Messung bereits eine Verbesserung der Zählrate in dieser Größenordnung erzielt. Es wird daher im Folgenden davon ausgegangen, dass die MOT nahezu alle durch den ZSL abgebremsten Atome auch einfängt. Jedoch sind nach Abschnitt 4.6 um die 5% der gefangenen Atome zu kurz in der MOT, um detektiert zu werden: $\eta_{MOT} \sim 0.95$

Alle Faktoren zusammen ergeben eine Zählrate von $\lambda = 1.8$ Atome/h. Die Messungen für obige Abschätzungen entstanden über den gesamten Zeitraum der Diplomarbeit verteilt. Die meisten Größen stammen aus einer Zeit, in der die Zählrate ca. $\lambda = 2.7$ Atome/h betrug. Dennoch fällt die Abschätzung zu gering aus. Eine Möglichkeit ist, dass der tatsächliche Fluss an metastabilen Atomen größer ist, als durch die Absorption gemessen wird, da beispielsweise ein Teil der Atome erst hinter dem Absorptionsstrahl in das metastabile Niveau angeregt wird. Denkbar ist auch, dass die longitudinale und transversale Geschwindigkeitsverteilung nicht unabhängig voneinander sind und der Atomstrahl stärker als angenommen nach vorne gerichtet ist. Zudem wurden die Geschwindigkeitsverteilungen für eine etwas andere Quelle ermittelt. Die Geschwindigkeitsverteilungen und die Annahme, dass jene unabhängig voneinander sind, gehen stark in die Berechnung der geometrischen Verluste η_{geom} ein. Abbildung 6.1 zeigt die Entwicklung der ^{39}Ar -Zählraten-Abschätzungen im Laufe des ^{39}Ar -ATTA-Projekts.

Abbildung 6.2 verdeutlicht die Verluste des metastabilen ^{39}Ar -Flusses. Eine Verstärkung durch den Kollimator und die MOL aufgrund transversaler Kühlung und Fokussierung von ca. 100 darf nicht über die Tatsache hinwegtäuschen, dass 96% aller Atome transversal nicht eingefangen werden!

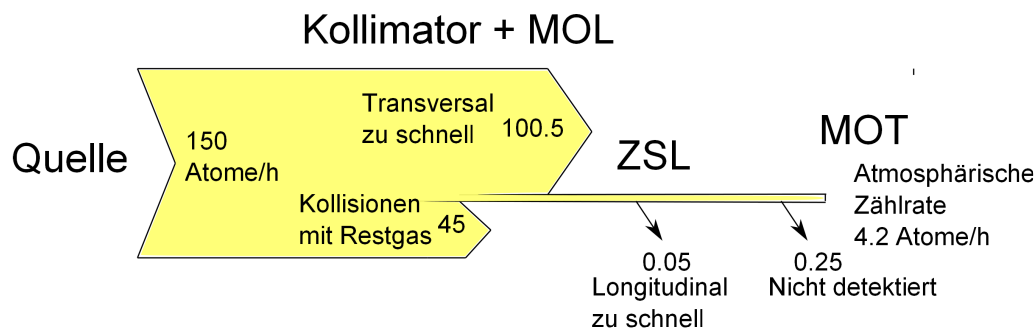


Abbildung 6.2: Verluste des metastabilen ^{39}Ar -Flusses. Durch die Quelle werden ca. 150 ^{39}Ar -Atome pro Stunde angeregt, von denen jedoch schlussendlich nur 4.2 Atome/h detektiert werden.

Auch in Zukunft wird eine Steigerung der Zählrate im Fokus der Bemühungen stehen, um die Statistik der Messungen zu verbessern und gleichzeitig die benötigte Messzeit zu reduzieren. Das größte Potential liegt dabei auf den ersten 20 cm. Mögliche Optimierungen sind:

- Die verhältnismäßig geringe Verstärkung des Kollimators für ^{39}Ar auf der einen Seite und relativ hohe Verstärkung der MOL auf der anderen Seite deuten

darauf hin, dass der Kollimator noch nicht optimal für ^{39}Ar eingestellt ist. Eine Optimierung mit einer sehr stark angereicherten Probe, wie sie für ZSL und MOT im Rahmen dieser Arbeit vorgenommen wurden, könnten eine weitere Verbesserung bringen.

- Angedacht ist auch ein Prä-Kollimator, der auf wenigen Zentimetern vor dem jetzigen Kollimator die transversalen sehr schnellen Atome in den Einfangbereich des Kollimators abbremst. Eine mögliche Realisierung könnte auf bichromatischem Kühlen basieren. Mit dieser Technik können wesentlich höhere Kräfte erreicht werden, als dies für dissipatives Laser-Kühlen der Fall ist.
- In diesem Zusammenhang könnte auch versucht werden, den Gasdruck im Kollimator zu minimieren und damit den Verlust aufgrund von Kollisionen mit dem Restgas zu reduzieren.
- Das größte Potential liegt voraussichtlich noch in der Quelle. Neben der eigentlichen Anregungseffizienz können hier auch der Verbrauch an flüssigem Stickstoff für die Kühlung und die Haltbarkeit optimiert werden. Um parallel zu den Arbeiten an der Quelle ein Messen an der ATTA-Apparatur zu ermöglichen, wäre ein separater Aufbau für die Optimierung der Quelle sinnvoll.

Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die erste erfolgreiche Anwendung der ^{39}Ar -ATTA-Apparatur an einer realen Wasserprobe gezeigt werden, womit ein weiterer Meilenstein in der Entwicklung des ^{39}Ar -ATTA-Projekts erreicht worden ist. Gerade die rasante Entwicklung der letzten Monate durch den erfolgreichen Einsatz der Optimierungs- und Überwachungswerkzeuge lässt hoffen, dass in naher Zukunft noch weitere große Schritte gelingen, so dass sich ATTA für ^{39}Ar zu dem Standardverfahren der Wasserdatierung im Zeitraum von 50 bis 1000 Jahren etablieren kann. Im Gegensatz zu Low Level Counting, das durch den radioaktiven Zerfall bei einer modernen Probe aus 3000 Litern Wasser physikalisch auf ca. 9 Ereignisse in der Stunde limitiert ist, sind momentan für ^{39}Ar -ATTA noch keine physikalischen Grenzen erreicht. Die momentan wegen Kontamination recht große benötigte Probenmenge von $\sim 600 \text{ mbar}\cdot\text{l}$ (3000 l Wasser) kann prinzipiell im Rezyklier-Modus auf 1 Liter Wasser reduziert werden, so dass die Datierung mittels ^{39}Ar -ATTA auch für Eisproben eingesetzt werden kann. In Zukunft wird es nun für die Anwendung auch darum gehen, umweltpysikalisch und hydrologisch interessante aquatische und glaziologische Systeme zu finden, um das reine Alter einer Wasser- oder Eisprobe mit anderen physikalisch interessanten Größen wie z.B. der Temperatur zu kombinieren.

A Anhang

A.1 Detailliertes Übergangsschema für ^{40}Ar

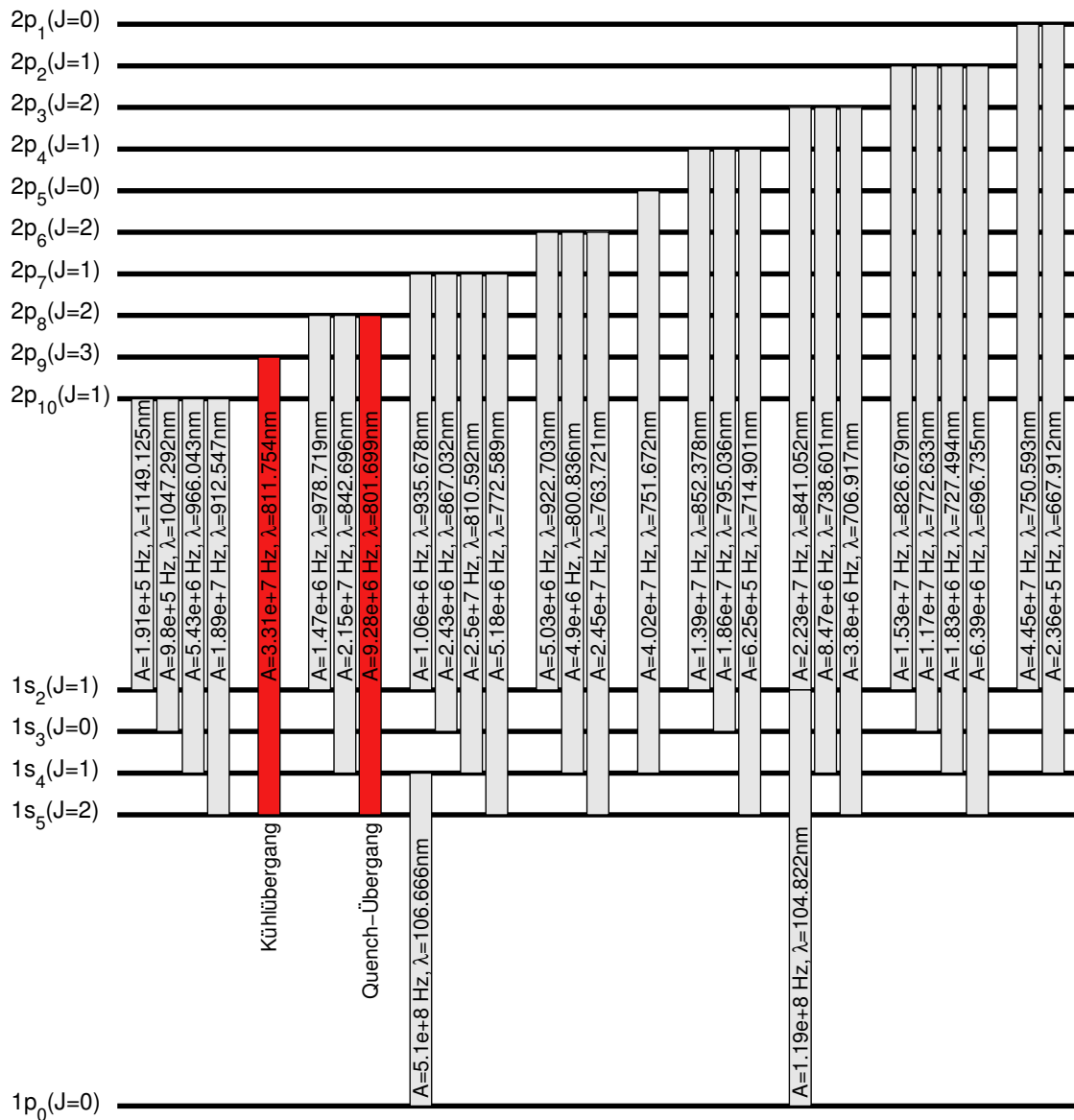


Abbildung A.1: ^{40}Ar -Übergänge der s- und p- Multipletts: Als Kühlübergang wird der $1s_5 - 2p_9$ Übergang genutzt, für den Quench der $1s_5 - 2p_8$ Übergang.

A.2 Frequenzen des Laser-Systems

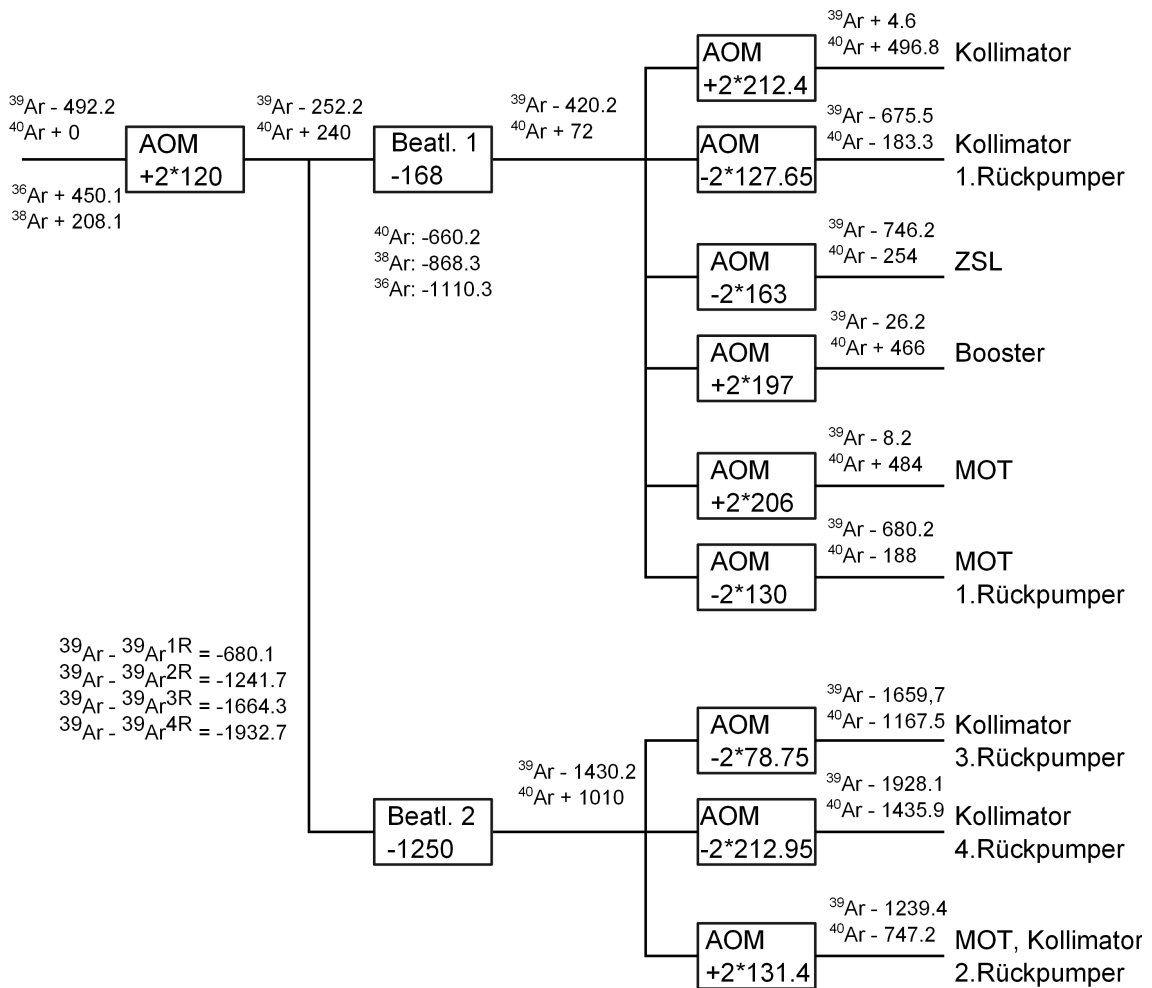


Abbildung A.2: Überblick über die aktuellen Frequenzen des Laser-Systems (alle Frequenzen in MHz)

B Danksagungen

Viele Menschen haben mich während meines Physikstudiums begleitet und unterstützt und so zum Gelingen dieser Arbeit ganz entscheidend beigetragen. Ganz besonders möchte ich mich herzlich bedanken bei:

- Markus Oberthaler für die enge Betreuung dieser Arbeit, für die gewinnbringenden Diskussionen und seine motivierende Unterstützung, wenn gerade mal wieder nichts klappte, sowie für das Inslebenrufen dieses Projektes
- Werner Aeschbach-Hertig für das Bewerten dieser Arbeit sowie die Kooperation mit der Umweltphysik und die Mitgründung des Projekts
- Florian Ritterbusch, der ganz wesentlich zu den Ergebnissen in dieser Arbeit beigetragen hat, viele sehr konstruktive Korrekturvorschläge eingebracht hat und mich besonders in den letzten Wochen stark unterstützt hat, darüber hinaus mich mehrfach spät am Abend noch kulinarisch mit mehrgängigen Menüs in der ATTA-Kantine versorgt und fit gehalten hat.
- Thomas Reichel und Arne Kersting für das Aufbereiten der Proben aus Bern, die Probennahme und Extraktion sowie eine enge Zusammenarbeit mit dem Institut für Umweltphysik
- Den anderen beiden Argonauten Fabian Bergermann und Philippe Bräuning für das kommunistische Teilen der Laborausstattung
- Allen anderen Matterwavers
- Matthias Kümmerer für die spannenden Diskussionen beim Mittagessen über Statistik und Gott und die Welt
- Joachim Welte für die inspirierende Diskussion über den ZSL
- Jürgen Schöllers für die Unterstützung in Elektronikfragen
- Christiane und Dagmar für die perfekte Unterstützung bei allen Formalitäten
- Der gesamten KIP-Werkstatt für die Konstruktion des Kollimator-Upgrades und einiger anderer Bauteile
- Roland Purtschert und Christoph Gerber für die bereits vermessenen Wasserproben und die interessante Laborführung durch die Untergrundlabore an der Universität Bern

- Gisela Vötisch-Ebser für das sprachliche Korrekturlesen dieser Arbeit in letzter Sekunde
- Meinen Eltern und meinen drei Geschwistern Jan, Nicole und Saskia

C Literaturverzeichnis

- [1] R. W. Stoenner, O. A. Schaeffer, and S. Katcoff. Half-lives of argon-37, argon-39, and argon-42. *Science*, 148(3675):1325–1328, 1965.
- [2] J. Welte. *Atom Trap Trace Analysis of ^{39}Ar* . PhD thesis, Faculty of Physics and Astronomy, University of Heidelberg, 2011, www.matterwave.de, 2011.
- [3] H.H. Loosli. A dating method with ^{39}Ar . *Earth and Planetary Science Letters*, 63(1):51 – 62, 1983.
- [4] H.Oeschger et al. Argon39-dating of groundwater. *Proc. Conf. Isotope Techniques in Groundwater Hydrology , Vienna, IAEA*, pages 179–90, 1974.
- [5] H.H. Loosli and H. Oeschger. Detection of ^{39}Ar in atmospheric argon. *Earth and Planetary Science Letters*, 5:191 – 198, 1968.
- [6] T. J. Morrison and N. B. Johnstone. Solubilities of the inert gases in water. *J. Chem. Soc.*, pages 3441–3446, 1954.
- [7] P. Collon, W. Kutschera, and Z.-T. Lu. Tracing noble gas radionuclides in the environment. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, 54(1):39–67, 2004.
- [8] C. Y. Chen, Y. M. Li, K. Bailey, T. P. O’Connor, L. Young, and Z.-T. Lu. Ultrasensitive isotope trace analyses with a magneto-optical trap. *Science*, 286(5442):1139–1141, 1999.
- [9] W. Jiang, K. Bailey, Z.-T. Lu, P. Mueller, T.P. O’Connor, C.-F. Cheng, S.-M. Hu, R. Purtschert, N.C. Sturchio, Y.R. Sun, W.D. Williams, and G.-M. Yang. An atom counter for measuring ^{81}Kr and ^{85}Kr in environmental samples. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 91(0):1 – 6, 2012.
- [10] I. D. Moore, K. Bailey, J. Greene, Z.-T. Lu, P. Müller, T. P. O’Connor, Ch. Geppert, K. D. A. Wendt, and L. Young. Counting individual ca41 atoms with a magneto-optical trap. *Phys. Rev. Lett.*, 92(15):153002, 2004.
- [11] S. Hoekstra, A. K. Mollema, R. Morgenstern, H. W. Wilschut, and R. Hoekstra. Single-atom detection of calcium isotopes by atom-trap trace analysis. *Phys. Rev. A*, 71(2):023409, Feb 2005.

- [12] W. Jiang, W. Williams, K. Bailey, A. M. Davis, S.-M. Hu, Z.-T. Lu, T. P. O'Connor, R. Purtschert, N. C. Sturchio, Y. R. Sun, and P. Mueller. ^{39}Ar detection at the 10^{-16} isotopic abundance level with atom trap trace analysis. *Phys. Rev. Lett.*, 106:103001, Mar 2011.
- [13] J. Welte. Single atom detection by fluorescence. Master's thesis, Faculty of Physics and Astronomy, University of Heidelberg, 2007, www.matterwave.de, 2007.
- [14] F. Ritterbusch. Realization of a collimated beam of metastable atoms for atta of argon 39. Master's thesis, Faculty of Physics and Astronomy, University of Heidelberg, 2009, www.matterwave.de, 2009.
- [15] I. Steinke. Hyperfine spectroscopy of the $1s_5 - 2p_9$ transition in ^{39}Ar . Master's thesis, Faculty of Physics and Astronomy, University of Heidelberg, 2009, www.matterwave.de, 2009.
- [16] M. Henrich. Design and realization of a laser system for atta of argon 39. Master's thesis, Faculty of Physics and Astronomy, University of Heidelberg, 2010, www.matterwave.de, 2009.
- [17] C. Kaup. Single-atom detection of ^{39}Ar . Master's thesis, Faculty of Physics and Astronomy, University of Heidelberg, 2011, www.matterwave.de, 2011.
- [18] Z. Feng. Implementierung einer Atomflussüberwachung für ^{39}Ar ATTA. Bachelor thesis, 2012.
- [19] Harold J. Metcalf and Peter van Straten. *Laser cooling and trapping*. Springer, New York ; Berlin ; Heidelberg [u.a.], 1999.
- [20] Christopher J. Foot. *Atomic physics*. Number 7 : Atomic, optical, and laser physics in Oxford master series in physics. Oxford University Press, Oxford, 1. publ. edition, 2005.
- [21] R.B. Firestone and L.P. Ekström. LBNL Isotopes Project. <http://ie.lbl.gov/toi/index.asp>, 2004.
- [22] J. J. Olivero and R. L Longbothum. Empirical fits to the voigt line width: A brief review. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 17:233–236, 1977.
- [23] RCP Photonics. Webpage RCP Photonics. <http://www.rpcphotonics.com/engineered.asp/>, Nov 2012.
- [24] M. Prentiss, A. Cable, J. E. Bjorkholm, Steven Chu, E. L. Raab, and D. E. Pritchard. Atomic-density-dependent losses in an optical trap. *Opt. Lett.*, 13:452–454, 1988.

- [25] Jürgen Stuhler. *Kontinuierliches Laden einer Magnetfalle mit lasergekühlten Chromatomen*. PhD thesis, Universität Konstanz, 2001.
- [26] Rainer Dahlhaus. Vorlesungsskript: Grundvorlesung Statistik, 2008.
- [27] Horst Rinne. *Taschenbuch der Statistik*. Verlag Harri Deutsch, 2008.
- [28] Geoffrey R. Grimmett and David R. Stirzaker. *Probability and Random Processes*. Oxford University Press, 3 edition, 2001.
- [29] Fritz Riehle. *Frequency Standards*. Wiley-VCH, 1 edition, 2004.
- [30] J. Welte, F. Ritterbusch, I. Steinke, M. Henrich, W. Aeschbach-Hertig, and M. K. Oberthaler. Toward the realization of atom trap trace analysis for argon-39. *New Journal of Physics*, 2010.

Erklärung:

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst habe und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 21.12 .2012

.....