

Entwicklung eines Experiments zur Untersuchung optischer Fenster in Tritiumumgebung und Bewertung der ersten Untersuchungen

Diplomarbeit
von

Kerstin Schöning

An der Fakultät für Physik
Institut für experimentelle Kernphysik

Erstgutachter:	Prof. Dr. Guido Drexlin
Zweitgutachter:	Prof. Dr. Helmut H. Telle
Betreuender Mitarbeiter:	Sebastian Fischer

Bearbeitungszeit: 15. November 2010 - 14. November 2011

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, die vorliegende Arbeit selbständig angefertigt, alle dem Wortlaut oder Sinn nach entnommenen Inhalte anderer Werke an den entsprechenden Stellen unter Angabe der Quellen kenntlich gemacht und keine weiteren Hilfsmittel verwendet zu haben.

Kerstin Schönung
Karlsruhe, den 14. November 2011

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Motivation dieser Arbeit	1
2	Überblick über das KATRIN-Experiment	9
2.1	Auswirkung der Neutrinomasse auf das Tritiumbetaspektrum	9
2.2	Überblick über das KATRIN-Experiment	11
2.2.1	Funktionsweise eines MAC-E-Filters	11
2.2.2	Überblick über die Komponenten des KATRIN-Experiments	12
2.2.3	Funktionsweise und Aufbau der Tritiumquelle	14
2.3	Einfluss der isotopischen Reinheit auf die systematischen Unsicherheiten der Tritiumquelle	16
2.4	Überwachung der isotopischen Reinheit mit Hilfe eines Laser-Raman-Systems	18
2.4.1	Funktionsweise und Aufbau des Laser-Raman-Systems	18
2.4.2	Bisherige Erfahrungen mit dem Laser-Raman-System	21
2.5	Beschädigung an optischen Fenstern in Tritiumumgebung	23
3	Mögliche Beschädigungsmechanismen der optischen Fenster	27
3.1	Identifizierung der für das KATRIN-Experiment unverzichtbaren optischen Eigenschaften der LARA-Fenster	27
3.2	Überblick über den gegenwärtigen Forschungsstand zu KATRIN-spezifischen Beschädigungsmechanismen	30
3.2.1	Generell beim Umgang mit optischen Fenstern auftretende Beschä- digungsmechanismen	31
3.2.2	Beschädigung durch Grobvakuumumgebung	35
3.2.3	Beschädigung durch ionisierende Strahlung	37
3.2.4	Beschädigung durch Wasserstoffumgebung	39
3.3	Notwendigkeit einer experimentellen Untersuchung	40

4 Entwicklung eines Experiments zur Untersuchung optischer Fenster in Tritiumumgebung	41
4.1 Überblick über das Experiment	41
4.2 Auswahl der optischen Fenster	43
4.2.1 Kriterien zur Auswahl der optischen Fenster	43
4.2.2 Nicht eingeschweißte Fenster mit Probebeschichtungen	44
4.2.3 In CF16-Flansch eingeschweißte Fenster	55
4.3 Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung von optischen Fenstern mit Tritium	57
4.3.1 Probenbehälter mit Vorrichtung zur Fensteraufnahme	57
4.3.2 Die CAPER-Anlage zur Beaufschlagung der optischen Fenster mit Tritium	59
4.4 Methoden zur Überwachung der Eigenschaften optischer Fenster	63
4.4.1 Überblick über mögliche Überwachungsmethoden	63
4.4.2 Auswahl der geeigneten Überwachungsmethoden für dieses Experiment	72
4.5 Versuchseinrichtung zur Untersuchung der Schäden an den optischen Fenstern	74
4.5.1 Differentialinterferenzkontrastmessung am Fusionsmateriallabor . . .	74
4.5.2 Optisches Mikroskop zur Oberflächenuntersuchung	74
4.5.3 Laseraufbau zur Transmissions-Reflexions-Messung	76
4.5.4 Handschuhbox zur Unterbringung des Mikroskops und des Laseraufbaus	82
4.6 Transport der Proben zwischen den verschiedenen Versuchseinrichtungen . .	83
4.7 Messprinzip und Verfahren zur Auswertung und Interpretation der Messdaten	85
4.8 Inbetriebnahme der im Tritiumlabor Karlsruhe verwendeten Versuchseinrichtungen und deren Einbau in die Handschuhbox	88
4.8.1 Inbetriebnahme der Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften außerhalb der Omegatron-Handschuhbox . . .	88
4.8.2 Einbau der Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften in die Omegatron-Handschuhbox und deren Inbetriebnahme	92
4.8.3 Einbau der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben mit Tritium in die CAPER A-Handschuhbox und deren Inbetriebnahme	95
4.9 Zusammenfassung des Messablaufs in einem Messplan	96

5	Erste Untersuchungen an mit Tritium beaufschlagten Proben	99
5.1	Voruntersuchung der bereits beschädigten, eingeschweißten Fenster	99
5.2	Die Beaufschlagung der Proben mit Tritium	102
5.3	Ergebnisse der ersten Untersuchungen beaufschlagter Proben	102
5.3.1	Überblick über die Ergebnisse	104
5.3.2	Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Magnetronspattern beschichteten Probe I1	106
5.3.3	Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Ionenstrahlgestützter Deposition beschichteten Probe I2	106
5.3.4	Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Ionenstrahlspattern beschichteten Probe I3	108
5.3.5	Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Elektronenstrahldeposition beschichteten Probe I4	110
5.3.6	Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Sol-Gel-Verfahren beschichteten Probe I5	112
5.3.7	Messergebnisse der beaufschlagten, unbeschichteten Probe I6	114
5.4	Zusammenfassung und Bewertung der Ergebnisse im Rahmen des KATRIN-Experiments	115
6	Zusammenfassung und Ausblick	117
A	Vereinfachte Berechnung der Dosis auf die LARA-Fenster	121
B	Vergleich der Eigenschaften der verwendeten Beschichtungen	125
B.1	Beschreibung der ausgewählten Eigenschaften	125
B.2	Vergleich der physikalischen Eigenschaften	126
B.3	Vergleich der optischen Eigenschaften	127
C	Transmissions- und Reflexionsspektren der verwendeten Fenster von LASEROPTIK	131
C.1	Transmissionsspektren der nicht eingeschweißten Fenster	131
C.2	Reflexionsspektren der eingeschweißten Fenster	134
D	Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox	135
D.1	Allgemeines zu Wischtests innerhalb einer Handschuhbox	135
D.2	Äußerliche Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox . . .	136
D.3	Innerliche Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox . . .	138

E	Kontamination der Boxenluft nach der Öffnung eines Probenbehälters	145
E.1	Untersuchung des Anstiegs der Kontamination der Boxenluft ohne Spülung	145
E.2	Untersuchung des Anstiegs der Kontamination der Boxenluft mit Spülung	148
F	Schleusen des Transportbehälters über einen Handschuhdeckel	151
G	Detaillierte Darstellung der Kalibrationen für den TR-Aufbau	153
G.1	Kalibration der Thermistoren	153
G.2	Kalibration der Photodioden	154
H	Mittelwerte der aus den TR-Messungen gewonnenen Messdaten	157
I	Vergleich der optischen Eigenschaften innerhalb eines Probentyps	163
J	Diagramme der ersten TR- Messungen beaufschlagter Proben	169
	Literaturverzeichnis	169

Abbildungsverzeichnis

1.1	Verdeutlichung der unterschiedlichen Massenszenarien	4
1.2	Auswirkung der Neutrinomasse auf die Neutrinodichte des Universums . . .	5
2.1	Auswirkung der Neutrinomasse auf das Energiespektrum von β -Elektronen	10
2.2	Schematische Darstellung des Funktionsprinzips eines MAC-E-Filters	12
2.3	Schematische Darstellung des Aufbaus des KATRIN-Experiments	13
2.4	Profil der Säulendichte entlang der WGTS	15
2.5	Vereinfachtes Fließbild des Inner Loops und der WGTS	15
2.6	Rotations-, Schwingungs- und Rotationsschwingungsanregung	19
2.7	Quantenmechanische Beschreibung der Ramanstreuung	20
2.8	Theoretisches Spektrum für alle Wasserstoffisotopologe	20
2.9	Fotografie des geöffneten LARA 1-Aufbaus	21
2.10	Fotografie des LARA-Aufbaus, des Appendix und der LARA-Zelle	22
2.11	Fotografie eines beschädigten LARA-Fensters	24
3.1	Aufbau eines beschichteten optischen Fensters	31
3.2	Schematische Darstellung eines SiO ₂ -Ringes	32
3.3	Verformung beschichteter Fenster unter Stress	33
3.4	Punktdefekte im SiO ₂ -Gefüge	34
3.5	Interstitiell neutraler Sauerstoff und Peroxy-Radikal	36
3.6	Veränderungen am SiO ₂ -Gefüge durch Verdichtung	37
3.7	Entstehung von Punktdefekten durch γ -Strahlung	38
3.8	Verringerung des Sauerstoffgehalts durch ionisierende Strahlung	39
4.1	Fotografie der Probenhalterung und eines zugehörigen Sicherungsringes . .	43
4.2	Herstellung einer Beschichtung mittels EBD	46
4.3	Fotografie einer mittels EBD beschichteten Probe	47

4.4	Herstellung einer Beschichtung mittels IAD	48
4.5	Fotografie einer mittels IAD beschichteten Probe	49
4.6	Herstellung einer Beschichtung mittels IBS	50
4.7	Fotografie einer mittels IBS beschichteten Probe	51
4.8	Herstellung einer Beschichtung mittels MS	52
4.9	Fotografie einer mittels MS beschichteten Probe	53
4.10	Herstellung einer Beschichtung mittels Sol-Gel-Verfahren	54
4.11	Fotografie einer mittels Sol-Gel-Verfahren beschichteten Probe	54
4.12	Fotografie einer unbeschichteten Probe	55
4.13	Fotografie eingeschweißter Laser- und Raman-Fenster	56
4.14	Fotografie bereits beschädigter, eingefasster Fenster	57
4.15	Fotografie der beiden Probenhalterungen	59
4.16	CAD-Zeichnung des Gestänges	60
4.17	Fotografie eines Gestänges vor und nach Einbau in den Probenbehälter . . .	60
4.18	Schematische Darstellung der Quecksilberporosimetrie	66
4.19	Strahlengang eines optischen Mikroskops	67
4.20	Aufbau eines Transmissionselektronenmikroskops	68
4.21	Funktionsweise eines DIC-Mikroskops	69
4.22	Aufbau eines Rasterelektronenmikroskops	71
4.23	Schematische Darstellung einer Transmissions-Reflexions-Messung	72
4.24	Fotografie des verwendeten DIC-Mikroskops	75
4.25	Fotografie des verwendeten optischen Mikroskops	75
4.26	Fotografie des geöffneten TR-Aufbaus	77
4.27	Fotografie des Strahlengangs des TR-Aufbaus	77
4.28	Fotografie der Laserdiode 3	79
4.29	Schematischer Ablauf eines Messzyklus	84
4.30	Diagramm zur Darstellung der Position der Messpunkte der TR-Messung .	87
4.31	Diagramme der gemessenen relativen Standardabweichung	89
4.32	Vergleich zweier hintereinander ausgeführter Messungen	90
4.33	Vergleich zweier Messungen einer Drehung um 90°	91
4.34	Fotografie des Interventionsbereiches an der Omegatron-Handschuhbox . . .	94
4.35	Fotografie der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben	95
4.36	Arbeitsschritte während eines Messblocks und dessen Ablauf	97

4.37	Messplan zur Untersuchung optischer Fenster in Tritiumumgebung	98
5.1	Mittels DIC-Mikroskop aufgenommene Bilder bereits beschädigter Proben	101
5.2	Aufnahmen des DIC-Mikroskops von den beaufschlagten Proben I6 und I5 .	105
5.3	Diagramme zu den Messwerten der beaufschlagten Probe I1	106
5.4	Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I2	107
5.5	Darstellung der Messdaten der Probe I2 nach der Beaufschlagung	107
5.6	Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I3	108
5.7	Darstellung der Reflexion von Probe I3 vor und nach der Beaufschlagung .	108
5.8	Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I4	109
5.9	Darstellung der Transmission von Probe I4 vor und nach der Beaufschlagung	110
5.10	Aufnahmen des DIC-Mikroskops von der beaufschlagten Probe I4	111
5.11	Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I5	112
5.12	Darstellung der Reflexion von Probe I5 vor und nach der Beaufschlagung .	113
5.13	Aufnahmen des DIC-Mikroskops von der beaufschlagten Probe I5	113
5.14	Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I6	114
6.1	Prinzip des Brewster-Fensters	120
A.1	Darstellung der zur Dosisberechnung angewandten Approximationen	123
C.1	Transmissionsspektrum der mittels IAD beschichteten Proben	131
C.2	Transmissionsspektrum der mittels MS beschichteten Proben	132
C.3	Transmissionsspektrum der mittels IBS beschichteten Proben	132
C.4	Transmissionsspektrum der mittels EBD beschichteten Proben	133
C.5	Reflexionsspektrum der Laser-Fenster	134
C.6	Reflexionsspektrum der Raman-Fenster	134
D.1	Fotografie gestanzter Wischtests in einem Plastikbeutel	136
D.2	Beschriftete, schematische Zeichnung der Omegatron-Handschuhbox	137
D.3	Darstellung der Wischtest-Ergebnisse an der Omegatron-Handschuhbox . .	143
E.1	Zeitlicher Verlauf der Aktivität der Boxenluft der CAPER A-Box	146
G.1	Diagramm zur Kalibration des Thermistors an Laserdiode 1	154
G.2	Darstellung des Messaufbaus zur Kalibration der Photodioden	155

I.1	Vergleich der graphischen Darstellungen der Messwerte von Probenotyp 6 . .	166
I.2	Vergleich der graphischen Darstellungen der Messwerte von Probenotyp 6 . .	167
J.1	Darstellung der Messdaten von Probe I1 vor und nach der Beaufschlagung .	170
J.2	Darstellung der Reflexion von Probe I2 vor und nach der Beaufschlagung .	171
J.3	Darstellung der Transmission von Probe I3 vor und nach der Beaufschlagung	171
J.4	Darstellung der Reflexion von Probe I4 vor und nach der Beaufschlagung .	172
J.5	Darstellung der Messdaten von Probe I5 vor und nach der Beaufschlagung .	173
J.6	Darst. der Messdaten von Probe I6 vor und nach der Beaufschlagung, 532 nm	174
J.7	Darst. der Messdaten von Probe I6 vor und nach der Beaufschlagung, 593 nm	175

Tabellenverzeichnis

1.1	Eigenschaften von Leptonen im Standardmodell	2
4.1	Auflistung der im Experiment verwendeten Proben	45
4.2	Zusammenfassung der Kennzeichnung von Probenbehälter und Proben . . .	61
4.3	Zuordnung von Probenart zu verwendeter Laserdiode	78
4.4	Eigenschaften der verwendeten Laserdioden	78
5.1	Tritiumdruck und -reinheit bei der Beaufschlagung der Probenbehälter . . .	103
5.2	Zusammensetzung des Gases für Behälter III und IV und aus Behälter I . .	103
5.3	Zusammenfassung der Ergebnisse beaufschlagter Proben	115
A.1	Eindringtiefen von T_2 in unterschiedliche Materialien	123
A.2	Ergebnisse für bestrahlte Masse, Dosisrate und Dosis	124
A.3	Zusammenfassung der in Kapitel 3 vorkommenden Strahlendosen	124
B.1	Übersicht über ausgewählte physikalische Eigenschaften	128
B.2	Übersicht über ausgewählte optische Eigenschaften	129
D.1	Ergebnisse der äußerlichen Kontaminationskontrolle	139
D.2	Ergebnisse der äußerlichen Kontaminationskontrolle - Fortsetzung	140
D.3	Ergebnisse der innerlichen Kontaminationskontrolle	141
D.4	Ergebnisse der innerlichen Kontaminationskontrolle - Fortsetzung	142
E.1	Ablauf des Tests zum Kontaminationsanstieg ohne Spülung	147
E.2	Ablauf des Tests zum Kontaminationsanstieg mit Spülung	149
H.1	Mittelwerte zur Referenzmessung der nicht eingeschweißten Proben - I . . .	158
H.2	Mittelwerte zur Referenzmessung der nicht eingeschweißten Proben - II . .	159
H.3	Mittelwerte zur Referenzmessung der eingeschweißten Proben	160

H.4	Mittelwerte der ersten Messung beaufschlagter Proben	161
I.1	Mittelwerte und maximale Abweichungen aller Proben	164
I.2	Mittelwerte und Standardabweichungen zu den sechs Probentypen	168

Kapitel 1

Einleitung und Motivation dieser Arbeit

Die vorliegende Arbeit untersucht die Eignung unterschiedlicher optischer Fenster für die Laser-Raman-Spektroskopie im Rahmen des Karlsruhe Tritium Neutrino (KATRIN) Experiments. Ziel des KATRIN-Experiments ist die Bestimmung der Neutrinomasse mit einer Sensitivität von $0,2 \text{ eV}/c^2$ (90 % C.L.). Aus diesem Grund wird zunächst ein Überblick über Neutrinos und die Möglichkeiten zu deren Massenbestimmung gegeben.

Die Erforschung des Neutrinos und seiner Eigenschaften begann mit dem Postulat der Existenz des damals noch als Neutron bezeichneten Neutrinos¹ durch Pauli im Jahre 1930 [Pau30]. Das Postulat erfolgte aufgrund der beobachteten kontinuierlichen Energieverteilung des β -Zerfalls.

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z+1} Y + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.1)$$

Eine solche Verteilung ist aufgrund der Energieerhaltung nur dann möglich, wenn neben dem Elektron und dem Proton noch ein weiteres Teilchen entsteht. Um zudem die Ladungs- und Drehimpulserhaltung zu berücksichtigen, muss das Neutrino elektrisch neutral sein und einen Spin von $\frac{1}{2}$ besitzen. Pauli ging weiter davon aus, dass die Masse des Neutrinos etwa von der Größenordnung der Elektronenmasse ist.

Der Nachweis des ersten Neutrinos, nämlich des Elektronantineutrinos, erfolgte 1956 durch F. Reines und C.L. Cowan [Cow56]. Als Quelle nutzten die Forscher hierfür den Neutrinofluss der neutronreichen Spaltprodukte in Kernreaktoren. Zur Detektion diente der inverse β -Zerfall

$$\bar{\nu}_e + p^+ \rightarrow e^+ + n. \quad (1.2)$$

Neutrinos als Teil des Standardmodells

Das Standardmodell verbindet die Theorie der elektroschwachen Wechselwirkung und der Quantenchromodynamik zu einem Modell [Pov09]. In diesem Modell gibt es drei Arten von fundamentalen Teilchen: die Austauschbosonen, die Quarks und die Leptonen. Zu letzteren zählen neben den Elektronen, Myonen und Tauonen auch die jeweiligen Neutrinos und Antiteilchen. Abhängig von ihrem Flavour (e, μ, τ) werden diese 12 Leptonen in 3 Familien eingeteilt. Die Eigenschaften der Leptonen sind in Tabelle 1.1 zusammengefasst. Innerhalb des Standardmodells haben die Neutrinos keine Masse. Zudem sind alle Neutrinos linkshändig und alle Antineutrinos rechtshändig.

¹Die Umbenennung erfolgte 1934 durch E. Fermi

Tabelle 1.1: Eigenschaften von Leptonen und Antileptonen im Standardmodell. Den Leptonen und den zugehörigen Antiteilchen wird im Standardmodell eine Ladung Q , ein Spin S , eine Leptonzahl L und ein schwacher Isospin zugeordnet. Letzterer ist unterschiedlich für linkshändige und rechtshändige Leptonen. Wechselwirkungen (WW) mit anderen Teilchen können laut Standardmodell nur unter Erhaltung von Q , S und L stattfinden. Alle Leptonen können schwach (s), e^- , μ^- , τ^- und ihre Antiteilchen zudem elektromagnetisch (em) wechselwirken [Pov09].

Familie			schwacher Isospin				L	WW
1	2	3	Q	S	linkshdg.	rechsthdg.		
ν_e	ν_μ	ν_τ	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	-	+1	s
e^-	μ^-	τ^-	-1	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0	+1	s, em
$\bar{\nu}_e$	$\bar{\nu}_\mu$	$\bar{\nu}_\tau$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	-	-1	s
e^+	μ^+	τ^+	+1	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	0	-1	s, em

Das Rätsel der Sonnenneutrinos und die Neutrinooszillation

Die Sonne stellt durch die in ihrem Inneren ablaufenden Fusionsreaktionen der pp-Kette und des CNO-Zyklus eine erhebliche Neutrinoquelle mit einem Neutrinofluss von mehr als $6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ dar. Theoretisch beschrieben wird dieser Fluss im Standardsonnenmodell [Bah06]. R. Davis strebte den experimentellen Nachweis dieses Modells mit dem Homestake-Experiment an. Die Detektion der solaren Neutrinos, genauer des Elektronenneutrinos, erfolgte hierbei radiochemisch über die Detektion des im inversen β -Zerfall



gebildeten radioaktiven ${}^{37}\text{Ar}$. Der dabei gemessene Fluss der durch das Experiment detektierbaren Elektronenneutrinos war jedoch gegenüber dem Standardsonnenmodell um den Faktor drei geringer [Dav68]. Dieses Ergebnis ist später durch das GALLEX-Experiment [Ham99] sowie die Kamiokande-Experimente [Fuk99] bestätigt worden.

Die Erklärung für dieses Defizit liefert die Neutrinooszillation. Wird ein Neutrino durch die schwache Wechselwirkung erzeugt, so geschieht dies mit einem definierten Flavour-eigenzustand $|\nu_\alpha\rangle$ ($\alpha = e, \mu, \tau$). Die Propagation der Neutrinos findet jedoch in ihren Masseneigenzuständen $|\nu_i\rangle$ ($i = 1, 2, 3$) statt. Aus diesem Grund wechseln Neutrinos bei der Propagation ihren Flavourzustand [Pov09]. Die beiden Eigenzustände werden über eine unitäre Transformation miteinander verknüpft [Sch97]

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i} |\nu_i\rangle \quad (1.4)$$

$$|\nu_i\rangle = \sum_\alpha U_{\alpha i}^* |\nu_\alpha\rangle, \quad (1.5)$$

$U_{\alpha i}$ sind hier die Elemente der leptonischen Mischungsmatrix. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Neutrino der Energie E vom Flavourzustand α nach einer Strecke L im Zustand β detektiert wird, ist somit gegeben durch:

$$P(\alpha \rightarrow \beta; L, E) = \left| \sum_k U_{\alpha k} U_{\beta k}^* e^{-i \frac{m_k^2}{2} \frac{L}{E}} \right|^2 \quad (1.6)$$

$$P(\alpha \rightarrow \beta; L, E) = \sum_{kl} U_{\alpha k} U_{\beta l}^* U_{\beta k}^* U_{\alpha l} e^{-i\Delta_{kl}(LE)}, \quad (1.7)$$

wobei $\Delta_{kl}(LE) = \frac{m_{\nu_k}^2 - m_{\nu_l}^2}{2} \frac{L}{E}$. Damit ist die Wahrscheinlichkeit für den Wechsel des Flavourzustandes von der Differenz der Massenquadrate der Neutrinos abhängig. Das bedeutet, dass mit dem experimentellen Nachweis der Neutrinooszillation impliziert wird, dass Neutrinos eine Masse besitzen.

Diesen experimentellen Beweis im Bereich solarer Neutrinos erbrachte das SNO-Experiment, das 1000 t schweres Wasser D_2O als Detektor verwendete [Bog00]. Wie das Vorgängerexperiment von R. Davis nutzte auch das SNO-Experiment geladene schwache Ströme:

$$\bar{\nu}_e + D \rightarrow e^- + p + p. \quad (1.8)$$

Zusätzlich wurde auch die dominant über geladene schwache Ströme vermittelte Elektron-Neutrino-Streuung genutzt:

$$e^- + \nu \rightarrow e^- + \nu. \quad (1.9)$$

Auf diese Weise konnte das Defizit in der Rate der Sonnenelektronneutrinos erneut bestätigt werden [Ahm02]. Im Gegensatz zu vorherigen Experimenten wurden beim SNO-Experiment erstmals auch neutrale Ströme zur Detektion genutzt:

$$\nu + D \rightarrow \nu + p + n. \quad (1.10)$$

Hier ist die Reaktion unabhängig vom Neutrino-Flavourzustand. Der auf diese Weise ermittelte Neutrino-Fluss aller Flavourzustände stimmt mit den Vorhersagen des Standardsonnenmodells überein [Ahm02]. Damit ist gezeigt, dass das Defizit an ν_e durch die Oszillation in einen anderen Flavourzustand hervorgerufen wird.

Die nicht verschwindende Neutrinomasse und ihre Auswirkung auf bestehende Modelle

Mit der Lösung des Rätsels um die Sonnenneutrinos ist nachgewiesen, dass Neutrinos eine von Null verschiedene Masse haben. Die Mischungswinkel θ_{ij} zwischen den Masseneigenzuständen sind Teil der leptonenischen Mischungsmatrixelemente und können durch dezidierte Experimente, beispielsweise durch das MINOS-Experiment [Amb98, Ada11], gemessen werden. Parallel hierzu kann die Differenz der Massenquadrate

$$\Delta m^2 = |m_i^2 - m_j^2| \quad (1.11)$$

bestimmt werden. Die aktuellen Werte hierfür sind [Nak10a]:

$$\Delta m_{\text{solar}}^2 = m_{21}^2 \cong 7,6 \cdot 10^{-5} \text{eV}/c^2 \quad (1.12)$$

$$\Delta m_{\text{atm}}^2 = m_{31}^2 \cong 2,4 \cdot 10^{-3} \text{eV}/c^2 \quad (1.13)$$

Es ist dabei jedoch zu beachten, dass durch die Differenz der Massenquadrate die fundamentale Massenskala von Neutrinos nicht eindeutig definiert ist (siehe Abbildung 1.1).

Eine nicht verschwindende Neutrinomasse ist im Standardmodell nicht vorgesehen. In diesem erhalten Teilchen ihre Masse über eine Yukawa-Kopplung an das Higgs-Boson, die nur im Falle der Existenz eines rechtshändigen Singulett² möglich ist. Eine solche Yukawa-Kopplung wäre im Vergleich zu Kopplungen des Higgs-Bosons an andere Fermionen um

²für Antiteilchen muss ein linkshändiges Singulett existieren

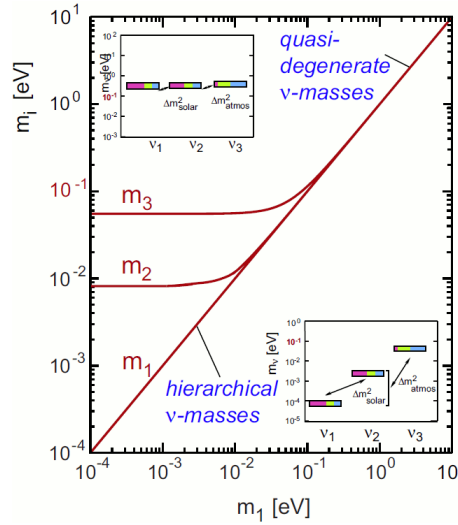


Abbildung 1.1: Verdeutlichung der unterschiedlichen Massenszenarien. Durch die Differenz der Massenquadrate ist zwar der Unterschied zwischen den Massen definiert, nicht aber die Massenskala. Daher gibt es zwei unterschiedliche Massenszenarien, das hierarchische und das quasi-degenerierte. Bei ersterem sind die Massen der drei Masseneigenzustände deutlich voneinander zu unterscheiden, da die Massen in einem ähnlichen Größenordnungsbereich wie die Differenzen liegen. Es gilt $m_1 \ll m_2 \ll m_3$. Für letzteres Massenszenario sind die Massen deutlich größer als die Differenzen und damit etwa gleich groß. In diesem Fall gilt $m_1 \approx m_2 \approx m_3$ [KAT04].

sechs Größenordnungen kleiner [Ott08]. Zur Lösung dieses 'fine-tuning' Problems wurden viele experimentell noch unbestätigte, theoretische Massengenerierungsmodelle erstellt, zum Beispiel der See-Saw-Mechanismus [KK97]. Diese Modelle sagen unterschiedliche absolute Werte der Neutrinomasse und damit unterschiedliche Massenszenarien voraus. Aus diesem Grund kann eine Massenbestimmung des Neutrinos zu einem besseren Verständnis der Mechanismen, über die Fermionen eine Masse erhalten, führen. Es wird damit ein Blick auf neue Physik jenseits des Standardmodells ermöglicht.

Auch auf die Modelle der Kosmologie wirkt sich die Neutrinomasse aus. Dies wird insbesondere durch die Tatsache deutlich, dass die Zahl der primordialen Neutrinos die der Baryonen um einen Faktor 10^9 übersteigt [Wei09]. Diese Neutrinos sind durch elektroschwache Reaktionen kurz nach dem Urknall entstanden. Zum Zeitpunkt $t=1$ s entkoppeln die Neutrinos von der restlichen Materie, da ab diesem Zeitpunkt die Reaktionsrate der Neutrinos mit anderen Teilchen kleiner ist als der Hubbleparameter $H(t)$ und somit keine Wechselwirkung mehr mit anderen Teilchen möglich ist [Sch97].

Aufgrund der Tatsache, dass die Neutrinos relativistisch entkoppeln, können sie den Gravitationspotenzialen der Kalten Dunklen Materie und der Baryonen entkommen. Auf diese Weise sind Neutrinos für das Verschmieren von Strukturen im frühen Universum verantwortlich. Damit beeinflussen die Neutrinos die Verteilung der Materie im frühen Universum, abhängig von ihrer Ruhemasse. Da die Neutrinodichte Ω_ν im heutigen Universum [Les06]

$$\Omega_\nu h^2 = \sum m_i / 93,14 h^2 \text{ eV} \quad (1.14)$$

von der Summe der Neutrinomassenzustände m_i abhängig ist (siehe auch Abbildung 1.2), ermöglicht die Bestimmung der Neutrinomasse ein genaueres Bild der Vorgänge bei der Strukturbildung des Universums.

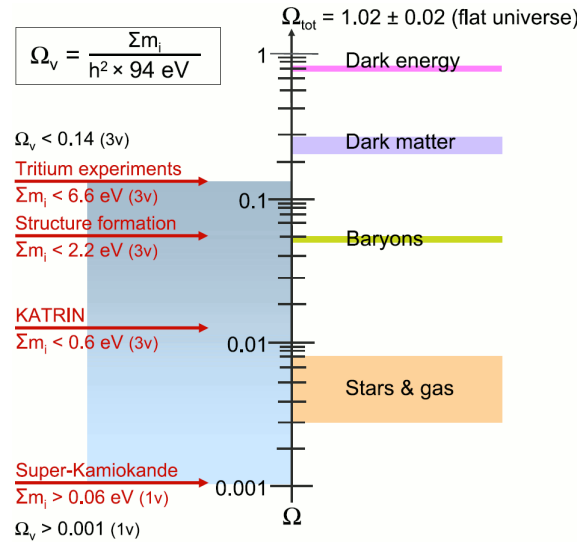


Abbildung 1.2: Auswirkung der Neutrinomasse auf die Neutrinodichte des Universums. Die Neutrinodichte des Universums ist von der Neutrinomasse abhängig. Aufgrund bisheriger Experimente umfasst der für die Neutrinodichte mögliche Wertebereich mehr als zwei Größenordnungen. Eine genauere Kenntnis über die Dichte ermöglicht ein besseres Verständnis der Strukturbildung im frühen Universum. Das KATRIN-Experiment, das im weiteren Verlauf der Arbeit noch näher beschrieben wird, ermöglicht eine deutliche Eingrenzung des für die Neutrinodichte möglichen Bereichs [KAT04].

Da die fundamentale Massenskala von Neutrinos Auswirkungen sowohl auf die Modelle der Teilchenphysik als auch auf die Modelle der Kosmologie hat, ist die Bestimmung der Neutrinomasse von fundamentaler Bedeutung für die Astroteilchenphysik. Experimentell kann die Bestimmung von m_ν über direkte und indirekte Methoden erfolgen, die im Folgenden näher erläutert werden.

Indirekte Bestimmung der Neutrinomasse

- **kosmologische Abschätzungen:** Die Untersuchung der kosmischen Hintergrundstrahlung bei $T_{\text{CMB}} = 2,7 \text{ K}$ [Fix99] mit WMAP [Lim03] zeigt kleine Temperaturfluktuationen um diesen Temperaturwert. Diese Fluktuationen korrelieren mit Materiefluktuationen. Da die Materieverteilung durch die Neutrinomasse beeinflusst wird, kann aus den Temperaturfluktuationen in Verbindung mit Daten zur Verteilung großräumiger Strukturen im Universum auf die Masse der Neutrinos geschlossen werden. Dabei ist zu beachten, dass die Ergebnisse stark modellabhängig sind. Die aus den in sieben Jahren von WMAP gesammelten Daten bestimmte Obergrenze für die Neutrinomasse ergibt sich zu [Lar11]

$$\sum m_i < 1,3 \text{ eV}/c^2 \text{ (95 \% C.L.)} \quad (1.15)$$

Werden für die Bestimmung der Neutrinomasse zusätzlich aktuelle astrophysikalische Beobachtungen, wie zum Beispiel die Hubblekonstante und baryonische akustische Oszillationen, herangezogen, kann die Obergrenze weiter eingeschränkt werden [Kom11]

$$\sum m_i < 0,58 \text{ eV}/c^2 \text{ (95 \% C.L.)} \quad (1.16)$$

Es sei hervorgehoben, dass diese Grenzen nur für ein bestimmtes kosmologisches Modell (Λ CDM) Gültigkeit aufweisen.

- **Neutrinoloser Doppel- β -Zerfall:** Beim $\beta^+\beta^+$ -Zerfall zerfällt ein Kern der Massenzahl A und der Kernladungszahl Z in zwei Positronen und zwei ν_e und im Falle des $\beta^-\beta^-$ -Zerfalls in zwei Elektronen und zwei $\bar{\nu}_e$. Die zu letzterem Zerfall gehörige Reaktionsgleichung lautet

$${}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z+2} Y + 2e^- + 2\bar{\nu}_e. \quad (1.17)$$

Der neutrinobehaftete Doppel- β -Zerfall $2\nu\beta\beta$ wurde erstmals 1987 von S.R. Elliott et al. beobachtet [Ell87]. Ist das Neutrino jedoch ein Majoranateilchen, also sein eigenes Antiteilchen, so ist zusätzlich ein zweistufiger Doppel- β -Zerfall möglich, bei dem kein Neutrino emittiert wird ($0\nu\beta\beta$). Beim neutrinolosen $\beta^-\beta^-$ -Zerfall zerfällt zunächst ein Neutron unter Aussendung eines rechtshändigen $\bar{\nu}_e$

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e, \quad (1.18)$$

welches wieder als linkshändiges ν_e von einem Neutron absorbiert wird

$$\nu_e + n \rightarrow p + e^-. \quad (1.19)$$

Um den Wechsel der Helizität des Neutrinos zu ermöglichen, müssen Neutrinos eine Masse besitzen, so dass die linkshändigen Neutrinos einen Anteil an rechtshändiger Helizität besitzen [Sch97]. Da außerdem zwei Elektronen ohne die Bildung von Antileptonen emittiert werden, ist die Leptonzahl um $\Delta L = 2$ verletzt [Ott08]. Das Elektronenspektrum ist beim neutrinolosen Doppel- β -Zerfall $0\nu\beta\beta$ nicht kontinuierlich, sondern monoenergetisch. Da die Halbwertszeit des Zerfalls von der Neutrinomasse abhängig ist, kann im Falle bekannter Kernmatrixelemente aus der Beobachtung von $0\nu\beta\beta$ Ereignissen auf die Majorana-Masse des Neutrinos geschlossen werden. Für den Fall, dass der Zerfall nicht beobachtet wird, kann analog eine Obergrenze für die Neutrinomasse abgeleitet werden. Erste Ergebnisse hierzu lieferte das Heidelberg-Moskau-Experiment, das eine Obergrenze für die Neutrinomasse von

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle < 0,32 \text{eV}/c^2 \quad (1.20)$$

mit einer 6σ Signifikanz gefunden hat [KK06]. Dieses bisher unbestätigte Ergebnis zu überprüfen ist Ziel von zahlreichen Nachfolgeexperimenten wie GERDA [Ur11] oder EXO-200 [Gor09].

Bei der Massenbestimmung des Neutrinos über die Suche nach einem $0\nu\beta\beta$ Ereignis wird nicht die eigentliche Masse eines Neutrinos gemessen, sondern eine effektive Majorana-Neutrinomasse $m_{\beta\beta}$, die über

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle = \sum_i U_{ei}^2 m_i \quad (1.21)$$

definiert ist [Sch97].

Direkte Bestimmung der Neutrinomasse

- **Flugzeitmessung:** Bei einer (Kernkollaps-)Supernova des Typs II werden etwa 99 % der freigesetzten Gravitationsenergie durch bis zu 10^{57} [Sch97] Neutrinos getragen. Dies erfolgt sowohl über den Prozess der Deleptonisierung

$$e^- + p \rightarrow n + \nu_e \quad (1.22)$$

als auch über den dominanten Prozess der thermischen Neutrinopaarerzeugung

$$e^+ + e^- \rightarrow \nu_\alpha + \bar{\nu}_\alpha, \quad \alpha = e, \mu, \tau \quad (1.23)$$

innerhalb eines Zeitintervalls von etwa 0,1 - 10 s nach dem Kollaps des eisenreichen Kerns. Unter Zuhilfenahme der Energie-Impuls-Beziehung

$$E^2 = p^2 c^2 + m^2 c^4 \quad (1.24)$$

kann über eine Messung der Energie und Flugzeit der ausgesandten Supernova-Neutrinos deren Masse bestimmt werden. Dabei ist zu beachten, dass die Zeitmessungen mit nicht vernachlässigbaren Unsicherheiten behaftet sind. So ist beispielsweise nicht genau bekannt, wie lange die Neutrinos benötigen, um den Kern des kollabierenden Sterns zu verlassen, da deren freie Weglänge aufgrund der hohen Dichte des Kerns von $\rho \approx 10^{14} \frac{g}{cm^3}$ auf bis zu einen Meter reduziert werden kann [Sch97]. Für die Flugzeitbestimmung der Neutrinos aus der Supernova SN1987A ist die Annahme einer gleichzeitigen Freisetzung aller Neutrinos getroffen worden. Die hieraus resultierende Neutrinomassenobergrenze ist [Pag10]

$$m_{\nu_e} < 5,7 \text{ eV}/c^2 \quad (95 \% \text{ C.L.}). \quad (1.25)$$

Neue Analysemethoden sollen im Falle der nächsten Detektion von Neutrinos einer Supernova eine Sensitivität von bis zu 0,8 eV/c² (95 % C.L.) ermöglichen [Lor02].

- **Untersuchung der Kinematik schwacher Zerfälle:** Bei dieser Methode zur Neutrinomassenbestimmung werden die geladenen Produkte aus schwachen Zerfällen von Kernen untersucht. Man kann hierbei zwischen zwei Arten von Experimenten unterscheiden. Bei den ersten entspricht die Quelle gleichzeitig dem Detektor. Zur Detektion werden hier kryogene Bolometer beispielsweise aus ¹³⁷Re verwendet, die die Zerfallswärme detektieren. Ein Beispiel für ein solches Experiment ist das Milano-Experiment. Dieses konnte eine Obergrenze für die Neutrinomasse von

$$m_{\nu_e} < 15 \text{ eV}/c^2 \quad (90 \% \text{ C.L.}) \quad (1.26)$$

bestimmen [Sis04]. Das im Aufbau befindliche Nachfolgeexperiment MARE I soll die Neutrinomasse mit einer Sensitivität von 2 eV/c² messen können [And07].

Bei der zweiten Möglichkeit die Kinematik von schwachen Zerfällen zur Massenbestimmung zu nutzen, sind Quelle und Detektor unterschiedliche Komponenten des Experiments. Als besonders geeignet für solche Experimente hat sich die Untersuchung des β -Zerfalls von Tritium

$$^3\text{H} \rightarrow ^3\text{He}^+ + e^- + \bar{\nu}_e. \quad (1.27)$$

erwiesen. Die Kombination der Ergebnisse der Tritiumzerfallsexperimente in Mainz [Wei99] und Troitsk liefert eine Obergrenze für die Neutrinomasse von [Nak10b]

$$m_{\nu_e} < 2 \text{ eV}/c^2. \quad (1.28)$$

Das grundlegende Ziel des KATRIN-Experiments ist es, die bei diesen Experimenten erreichte Sensitivität um eine Größenordnung auf 0,2 eV/c² zu verbessern [KAT04]. Da hierzu die experimentelle Sensitivität auf die Observable $(m_{\nu_e})^2$ um zwei Größenordnungen gesteigert werden muss, werden an die systematischen Fehler besondere Anforderungen gestellt. Daher wird eine gasförmige fensterlose Tritiumquelle

verwendet, die eine hohe Aktivität bei geringen statistischen und systematischen Fehlern erlaubt (siehe Kapitel 2). Aus diesem Grund ist eine ständige Überwachung der fundamentalen Quellparameter, wie zum Beispiel der Reinheit des Tritiumgases, unverzichtbar. Die Überwachung wird durch Laser-Raman-Spektroskopie des Gasgemisches gewährleistet.

Nach einem ersten dreimonatigen Testbetrieb des Laser-Raman-Aufbaus mit Tritium wurde ein Schaden mit bisher ungeklärter Ursache an beschichteten, optischen Fenstern festgestellt. Diese Beschädigung gefährdet die kontinuierliche Überwachung der Gaszusammensetzung. Aus diesem Grund wird im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Tauglichkeit von unterschiedlichen optischen Beschichtungen sowie eines unbeschichteten Fensters für das KATRIN-Experiment untersucht. Hierfür musste zunächst eine neue Versuchseinrichtung konzipiert und gebaut werden, die einen Umgang mit kontaminierten Proben erlaubt, bevor die eigentlichen Messungen durchgeführt werden können.

Zum besseren Verständnis der Notwendigkeit des im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experiments wird das KATRIN-Experiment und die Laser-Raman-Spektroskopie in Kapitel 2 noch genauer beschrieben. Da die Ursache der Beschädigung bisher noch ungeklärt ist, werden in Kapitel 3 die möglichen Beschädigungsmechanismen vorgestellt. Kapitel 4 beschäftigt sich mit dem Aufbau der für das Experiment notwendigen Versuchseinrichtungen. In den ersten vier Abschnitten dieses Kapitels stehen die Proben sowie die Konzipierung der Versuchseinrichtungen im Vordergrund. Dabei sind neben den durch das KATRIN-Experiment vorgegebenen Rahmenbedingungen auch sicherheitstechnische Aspekte aufgrund der Handhabung von radioaktivem Tritium zu berücksichtigen. Die letzten drei Abschnitte beschreiben die Umsetzung des erarbeiteten Konzepts und die Inbetriebnahme der Versuchseinrichtungen. Die Ergebnisse der ersten Messungen werden in Kapitel 5 vorgestellt. Das letzte Kapitel fasst die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zusammen und gibt einen Ausblick auf den weiteren Fortgang des Experiments.

Kapitel 2

Überblick über das KATRIN-Experiment

In diesem Kapitel soll ein Überblick über das Tritiumzerfallsexperiment KATRIN (Karlsruhe Tritium Neutrino) gegeben werden. Hierfür wird in Abschnitt 2.1 zunächst die Auswirkung der Neutrinomasse auf das Betaspektrum des Tritiumzerfalls erläutert, bevor in Abschnitt 2.2 genauer auf den Aufbau und die Komponenten des KATRIN-Experiments eingegangen wird. In Abschnitt 2.3 werden systematische Fehlerquellen näher betrachtet und die Notwendigkeit der Überwachung der isotopischen Reinheit mit Hilfe eines LARA-Systems (Laser-Raman-System), welches noch genauer in Abschnitt 2.4 beschrieben ist, gezeigt. Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird ein an den Fenstern der LARA-Zelle aufgetretener Schaden beschrieben, der im Rahmen des KATRIN-Experiments nicht tolerierbar ist und somit die Motivation für die vorliegende Arbeit liefert.

2.1 Auswirkung der Neutrinomasse auf das Tritiumbeta-spektrum

Die Untersuchung des Verlaufs des Energiespektrums beim β -Zerfall entstehender Elektronen ermöglicht eine modellunabhängige, direkte Bestimmung der Masse von Elektronantineutrinos. Im Falle des KATRIN-Experiments wird der β -Zerfall von überschwerem Wasserstoff, also von Tritium, genutzt



Besonders geeignet ist Tritium aufgrund seiner geringen Endpunktsenergie von 18,6 eV [KAT04], da somit der auf die Neutrinomasse sensitive Bereich des Spektrums nahe dem Endpunkt relativ groß ist, verglichen mit dem gesamten Spektrum (siehe hierzu auch Abbildung 2.1). Tritium zeichnet sich zudem durch eine hohe spezifische Aktivität aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von 12,32 Jahren aus [Luc00] und der Tatsache, dass Tritium übererlaubt zerfällt und das hadronische Übergangsmatrixelement somit konstant ist. Zudem sind Störeffekte der produzierten Elektronen innerhalb der Quelle durch die kleine Protonzahl von Tritium nur sehr gering. Aus diesen Eigenschaften resultiert eine hohe Aktivität bei geringen systematischen Fehlern [KAT04].

Die einfache Elektronenkonfiguration von ${}^3\text{H}$ und ${}^3\text{He}^+$ macht weiterhin eine Berechnung des Spektrums möglich. Mit Fermi's Goldener Regel ergibt sich das β -Spektrum nach [Wei03] (ergänzt durch die Lichtgeschwindigkeit) zu:

$$\frac{d^2N}{dt dE} = A \cdot F(E, Z+1) p(E + m_e c^2) (E_0 - E) \sqrt{(E_0 - E)^2 - m_\nu^2 c^4} \Theta(E_0 - E - m_\nu c^2) \quad (2.2)$$

E : kinetische Energie des Elektrons;

m_e : Masse des Elektrons;

m_ν : Masse des Elektronantineutrinos;

W_i : Wahrscheinlichkeit angeregte Elektronen im Endzustand zu erzeugen;

E_i : Endpunktsenergie für Zerfälle mit angeregtem Endzustand.

Die Konstante A ist gegeben durch:

$$A = \frac{G_F^2}{2\pi^3 \hbar^7 c^5} \cos^2 \theta_C |M_{\text{had}}^2| \quad (2.3)$$

G_F : Fermikonstante;

θ_C : Cabibbowinkel;

M_{had} : hadronisches Übergangsmatrixelement, das aufgrund des übererlaubten Zerfalls von Tritium energieunabhängig und damit konstant ist.

$F(E, Z+1)$ ist die Fermifunktion, die die Coulombwechselwirkung der Elektronen im Endzustand berücksichtigt. Mit der Stufenfunktion $\Theta(E_0 - E - m_\nu)$ wird berücksichtigt, dass nur dann ein Neutrino entstehen kann, wenn mindestens seine Ruhemasse an Energie zur Verfügung steht.

Da weder $F(E, Z+1)$ noch M_{had} von der Masse des Elektronantineutrinos abhängig sind, enthält lediglich der Ausdruck unter der Wurzel die gesuchte Größe m_ν . Die Masse des

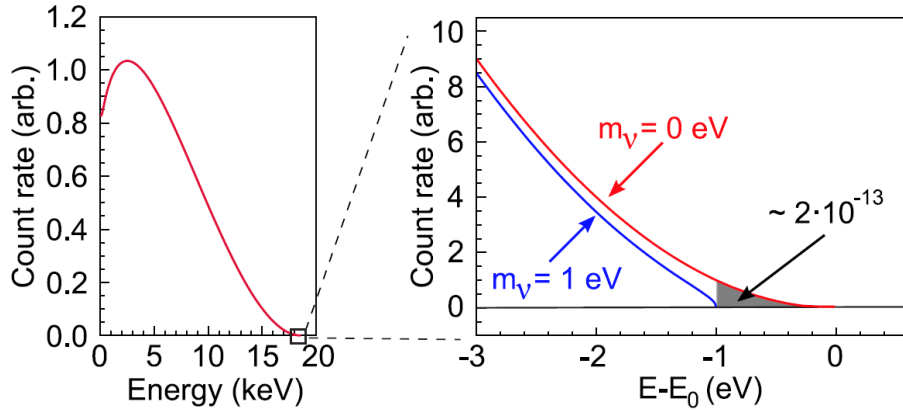


Abbildung 2.1: Auswirkung der Elektronantineutrinomasse auf das Energiespektrum der β -Elektronen aus Tritiumzerfällen. Links: Das Diagramm zeigt das gesamte Energiespektrum der β -Elektronen, die bei Zerfall des Tritiums entstehen. Die Auftragung erfolgt hier über die Elektronenenergie. Rechts: Hier ist der Energiebereich nahe der Endpunktsenergie E_0 vergrößert gezeigt. Die Auftragung erfolgt über der Differenz von Elektronenenergie und Endpunktsenergie und ist daher negativ. Die rote (obere) Linie zeigt den Verlauf des Spektrums für eine verschwindende Neutrinomasse. Das blau dargestellte Spektrum (unten) zeigt den Verlauf des Elektronenspektrums unter der Voraussetzung, dass die Elektronantineutrinomasse $1\text{ eV}/c^2$ beträgt. Ein Vergleich der beiden Spektren macht deutlich, dass sich eine nichtverschwindende Neutrinomasse nahe am Endpunkt auf die Form des Spektrums auswirkt [Stu10a].

Neutrinos wirkt sich jedoch nur nahe dem Endpunkt $E \approx E_0$ auf die Form des Spektrums aus. Dies ist in Abbildung 2.1 dargestellt.

Die Anzahl der Zerfälle nahe dem Endpunkt des β -Elektronenspektrums ist sehr gering. So finden lediglich etwa $2 \cdot 10^{-13}$ aller Zerfälle im Bereich von 1 eV unterhalb der Endpunktsenergie statt [KAT04]. Dies macht eine starke Tritiumquelle und ein Spektrometer mit hoher Auflösung nötig. Beides bietet das KATRIN-Experiment. Die Beschreibung der Komponenten dieses Experiments stellt daher den nächsten Abschnitt des Kapitels dar. Besonders eingegangen wird dabei auf die Tritiumquelle, die eine um Faktor 100 höhere Quellstärke als die ihrer Vorgängerexperimente besitzt [KAT04].

2.2 Überblick über das KATRIN-Experiment

In diesem Abschnitt wird zunächst das Grundprinzip, auf dem das KATRIN-Experiment beruht, nämlich der MAC-E-Filter, erklärt. Hierauf folgt ein Überblick über die Komponenten des KATRIN-Experiments. Dabei werden die einzelnen Komponenten kurz beschrieben, die in Abbildung 2.3 zu sehen sind. Auf die Tritiumquelle wird in Abschnitt 2.2.3 noch genauer eingegangen.

2.2.1 Funktionsweise eines MAC-E-Filters

Das KATRIN-Experiment basiert auf dem Prinzip des Magnetic Adiabatic Collimation with an Electrostatic Filter, also dem Prinzip des sogenannten MAC-E-Filters. Dies ist ein integrierender Energiehochpassfilter, den nur in der Quelle generierte Elektronen mit ausreichender Energie überqueren können. MAC-E-Filter zeichnen sich durch eine Raumwinkelakzeptanz von nahezu 2π und eine hohe Energieauflösung aus [Kru83, Lob85, Bon99]. Das Funktionsprinzip eines solchen Filters wird im Folgenden erläutert.

Mit Hilfe zweier Magnete wird ein inhomogenes Führungsmagnetfeld erzeugt, um dessen magnetische Flusslinien sich die Elektronen in Zyklotronbahnen bewegen. Da in der Mitte des Spektrometers, in der sogenannten Analysierebene, ein deutlich vermindertes Magnetfeld herrscht (beim KATRIN-Experiment ein um einen Faktor 20 000 kleineres Feld), wirkt auf die Elektronen eine Gradientenkraft. Durch diese Kraft wird die Zyklotronenergie $E_\perp$ in eine longitudinale Bewegung umgewandelt. Dies geschieht adiabatisch, da lediglich eine kleine Änderung des Magnetfeldes je Zyklotronumlauf stattfindet. Damit bewegen sich die Elektronen in der Analysierebene beinahe parallel zu den magnetischen Flusslinien (siehe Abbildung 2.2). Durch ein paralleles elektrisches Gegenfeld, erzeugt von zylindrischen Elektroden, werden alle Elektronen bis zu einer bestimmten Energie vom Potentialberg reflektiert. Die Schärfe des Filters $\Delta E/E$ ist gegeben durch:

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{B_{\min}}{B_{\max}} \quad (2.4)$$

Aus der Schärfe des Filters ergibt sich die Energieauflösung ΔE eines MAC-E-Filters. Das integrale Energiespektrum wird durch Variation des elektrischen Feldes aufgenommen. Es bietet sich hierfür entweder die Möglichkeit, das Spektrometerpotenzial bei konstantem Quellpotenzial oder das Quellpotenzial bei konstantem Spektrometerpotenzial zu ändern.

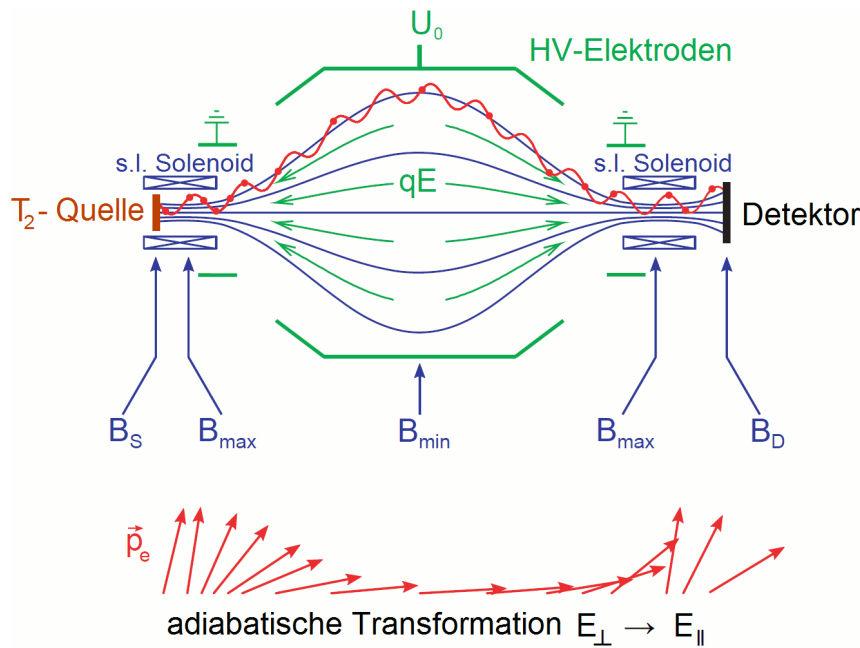


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung des Funktionsprinzips eines MAC-E-Filters. Oben: Die von der Quelle ausgesandten Elektronen werden durch das anliegende Magnetfeld auf Schraubenbahnen durch das Spektrometer geführt. Da sich das Magnetfeld innerhalb des Spektrometers um mehrere Größenordnungen ändert, bewegen sich die Elektronen in der Analysierebene, die sich im Bereich der kleinsten magnetischen Feldstärke befindet, nahezu parallel zu den Flusslinien. Somit werden die isotrop von der Quelle emittierten Elektronen zu einem breiten Strahlenbündel umgewandelt, in dem sich die Elektronen beinahe parallel zueinander bewegen. Haben die Elektronen genügend Energie, um das elektrische Feld der Elektroden zu überwinden, werden sie wieder auf ihre ursprüngliche Energie beschleunigt. Unten: Hier ist die adiabatische Änderung des Impulsvektors der Elektronen beim Durchlaufen des Spektrometers gezeigt.

2.2.2 Überblick über die Komponenten des KATRIN-Experiments

Im Folgenden wird ein Überblick über die Komponenten des KATRIN-Experiments gegeben. Dabei wird sowohl auf grundlegende Funktionsweisen als auch auf den groben Aufbau der Komponenten eingegangen.

Tritiumquelle (WGTS)

Die Tritiumquelle ist aufgrund der geforderten hohen Quellstärke und geringen systematischen Unsicherheit (näheres hierzu in Abschnitt 2.3) eine fensterlose, gasförmige Quelle (Windowless Gaseous Tritium Source, daher WGTS). Fensterlos bedeutet dabei, dass die Elektronen direkt aus der Quelle in das Transportsystem gelangen, ohne eine physikalische Trennung zwischen diesen beiden Komponenten durchqueren zu müssen. Das Tritiumgas, das in die Mitte der Quelle eingelassen wird, wird an beiden Enden abgepumpt. Hierdurch wird innerhalb der Quelle ein zeitlich konstantes Dichteprofil an Tritiummolekülen erzeugt. Eine genauere Beschreibung der WGTS ist in Abschnitt 2.2.3 zu finden.

Spektrometersystem

Das Spektrometersystem ist aus zwei Spektrometern aufgebaut, dem Vor- und dem Hauptspektrometer. Beide basieren auf dem MAC-E-Filterprinzip.

Die Aufgabe des Vorspektrometers ist die Vorfilterung der Elektronen von 10^{10} s^{-1} auf

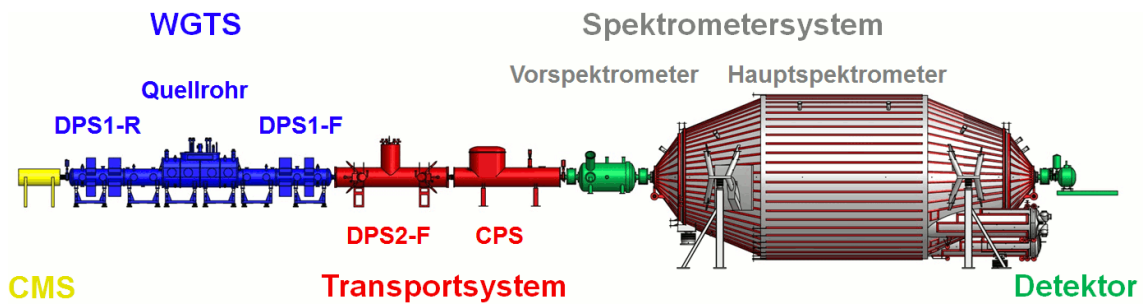


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung des Aufbaus des KATRIN-Experiments. Das Tritiumgas wird in die WGTS bestehend aus Quellrohr, Differential Pumping Section 1-Rear (DPS1-R), Differential Pumping Section 1-Front (DPS1-F) eingespeist. Den rückwärtigen Abschluss der Quelle bildet das Calibration and Monitoring System (CMS). An die Vorderseite der Quelle schließt sich das Transportsystem (Differential Pumping Section 2-Front, DPS2-F, und Cryogenic Pumping Section, CPS) an. Die bisher beschriebenen Komponenten gehören zum sogenannten Quell- und Transportsystem (STS). Sie befinden sich alle im Tritiumlabor Karlsruhe, da die Komponenten tritiumführend sind. Das Spektrometersystem besteht aus Vor- und Hauptspektrometer. Den vorderen Abschluss des Experiments bildet der Detektor.

10^4 s^{-1} [KAT04]. Es ist realisiert als ein 3,38 m langer Zylinder mit einem Durchmesser von 1,7 m. Die Tankwände liegen auf einem Potenzial von etwa -18,3 kV. Im Innern des Tanks sind Gitterelektroden angebracht, die auf einem negativeren Potenzial liegen und somit das Retardierungspotenzial erzeugen. Um Ionisationsprozesse zu unterdrücken und den Untergrund zu minimieren, herrscht ein Druck von $p < 10^{-11}$ mbar innerhalb des Spektrometers.

Auch im 23,3 m langen und im Durchmesser 10 m breiten Hauptspektrometer herrscht ein Druck von $p < 10^{-11}$ mbar. Der Tank liegt auf einem variablen Potenzial von -18,5 bis -18,7 kV. Ähnlich wie das Vor- besitzt auch das Hauptspektrometer im Innern Drahtelektroden, die durch ein negativeres Potenzial als die Tankwände zur Minimierung des Untergrunds beitragen [Geb07]. Die supraleitenden Magnete des Spektrometers erzeugen ein asymmetrisches Magnetfeld. So besitzt das magnetische Feld des Spektrometers am quell-nahen Ende eine Stärke von 4,5 T, in der Analysierebene von $3 \cdot 10^{-4}$ T und auf der dem Detektor zugewandten Seite von 6 T [Wan09]. Um die Auswirkungen des Erdmagnetfelds auf das gewünschte Magnetfeld zu kompensieren, wird das sogenannte Earth's Magnetic Field Compensation System (EMCS) installiert. Es besteht aus Luftspulen, die das Spektrometer umgeben [Rei09]. Aus den genannten Werten für elektrisches und magnetisches Feld ergibt sich aus Formel 2.4 eine Energieauflösung von $\Delta E = 0,93 \text{ eV}$ [KAT04].

Transportsystem

Die Aufgabe des Transportsystems ist es, die Elektronen adiabatisch, das heißt ohne mit der Umgebung wechselzuwirken, zum Spektrometer zu führen und gleichzeitig den Tritiumfluss um 14 Größenordnungen zu reduzieren (bereits in der WGTS wird der Fluss um 2 Größenordnungen verringert) [KAT04]. Diese Reduktion erfolgt in zwei Schritten. Zunächst wird der Fluss um einen Faktor von mehr als 10^5 durch die differentiell angeordneten Turbomolekularpumpen der DPS2-F vermindert. Die CPS reduziert den Fluss schließlich um einen weiteren Faktor $> 10^7$ [Eic06]. Die auf 4,5 K gekühlte CPS nutzt hierfür eine Argonfrostschrift, auf der die Tritiummoleküle aus der Gasphase kryosorbieren. Da hier nur so viele Tritiumteilchen abgeschieden werden dürfen, dass das Inventar 1 Ci nicht übersteigt, muss die CPS etwa alle zwei Monate regeneriert werden.

Detektor

Der zur Aufnahme des Spektrums verwendete Detektor ist eine segmentierte PIN-Diode mit 148-Pixeln [Doe08]. Sein Untergrund beträgt nur wenige mHz und er kann Zählraten von bis zu 1 MHz verarbeiten [Doe08].

CMS

Das CMS bildet den rückwärtigen physikalischen und elektrostatischen Abschluss der Tritiumquelle. Es besteht hauptsächlich aus drei Komponenten, der Rear Wall, dem Rear Detektor und der Elektronenkanone. Erstere hat die Aufgabe, Elektronen, die vom Spektrometer wegfliegen, aufzunehmen und elektrisch abzuführen. Zudem definiert die Rear Wall, zusammen mit WGTS und DPS2-F, das Potential der Quellsektion. Der Rear Detektor überwacht zu jeder Zeit die Aktivität der Quelle. Die verwendete Elektronenkanone misst in regelmäßigen Abständen die Säulendichte¹ der Quelle. Nähere Informationen zu den Komponenten können in [Bab10] nachgelesen werden.

Da die Funktionsweise und der Aufbau der Tritiumquelle in Bezug auf das Thema dieser Arbeit von besonderem Interesse sind, wird auf die Quelle im folgenden Abschnitt noch genauer eingegangen.

2.2.3 Funktionsweise und Aufbau der Tritiumquelle

Wie bereits erwähnt enthält die WGTS die Komponenten DPS1-R und DPS1-F, die sich je zu einer Seite an das Quellrohr anschließen. In das 10 m lange Quellrohr mit einem Durchmesser von 90 mm wird kontinuierlich über eine Kapillare gasförmiges Tritium eingespeist. Das Gas wird über die an die DPS1-R und DPS1-F angebrachten Turbomolekularpumpen wieder abgepumpt. Die entstehenden Elektronen werden hierdurch nicht behindert, da sie adiabatisch über magnetische Flussschläuche in Richtung Spektrometer geführt werden. Es entsteht ein zeitlich konstantes Dichteprofil an Tritiummolekülen in der WGTS, das in Abbildung 2.4 dargestellt ist.

Um die gewünschte hohe Aktivität von 10^{11} Elektronen pro Sekunde bei gleichzeitig geringen systematischen Unsicherheiten zu realisieren, werden einige Anforderungen an die Quelle gestellt. So muss die Säulendichte ρd von $5 \cdot 10^{17}$ Moleküle/cm² auf 0,1% stabil sein [KAT04]. Um dies zu erreichen, muss zum einen die Einlassrate von $1,853 \text{ mbar} \cdot \text{l/s}$ auf 0,1% stabilisiert werden. Zum anderen muss die Temperatur des Quellrohrs von 30 K auf $\pm 30 \text{ mK}$ stabil sein [Gro11].

Die Kühlung ist notwendig, um die Viskosität des Tritiumgases zu reduzieren und so die Menge an Tritium innerhalb des Quellrohres zu erhöhen, damit die benötigte Aktivität erreicht werden kann. Zudem wird durch die Kühlung die Dopplerverbreiterung durch die Bewegung der Moleküle minimiert. Weiteres Abkühlen hätte jedoch eine Bildung von Clustern, also räumlich begrenzter Anhäufungen von Tritium innerhalb des Gases, und einen erhöhten Energieverlust der Elektronen aufgrund vermehrter Stöße zur Folge.

Die stabilisierte Kühlung des Strahlrohrs wird durch Zwei-Phasen-Neon gewährleistet [Gro09]. Beides wird von einem supraleitenden Magneten umgeben, der ein Führungsmagnetfeld für die Elektronen mit einer Stärke von 3,6 T [KAT04] erzeugt. Das Gasprozessierungssystem ist an geschlossene Tritiumkreisläufe, nämlich den sogenannten Inner Loop und Outer Loop, angeschlossen (siehe Abbildung 2.5).

¹zur Erläuterung des Begriffs der Säulendichte siehe 2.2.2

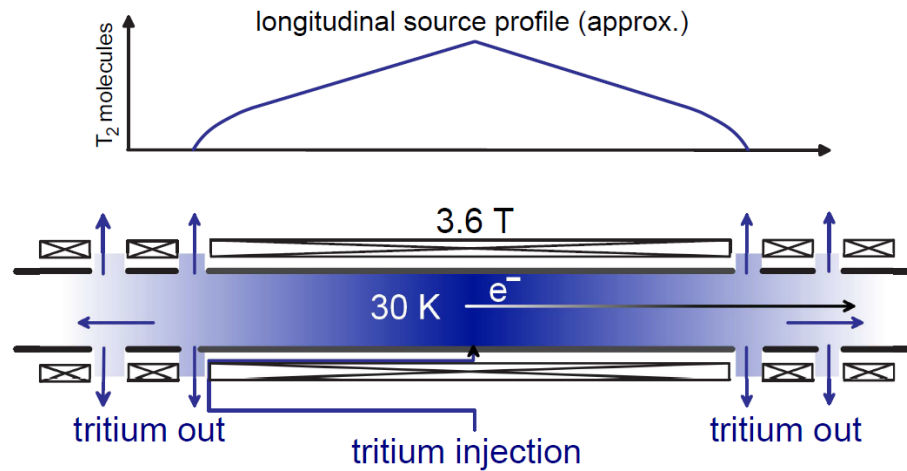


Abbildung 2.4: Profil der Säulendichte entlang der WGTS. Unten: Die WGTS ist hier stark vereinfacht dargestellt. In der Mitte des Quellrohrs wird das Gas injiziert und an beiden Enden über Turbomolekularpumpen abgepumpt. Oben: Das Profil der Säulendichte in Abhängigkeit von der horizontalen Position innerhalb der WGTS ist gezeigt. Die Dichte an Tritiummolekülen ist an jedem Ort zeitlich stabil [KAT04].

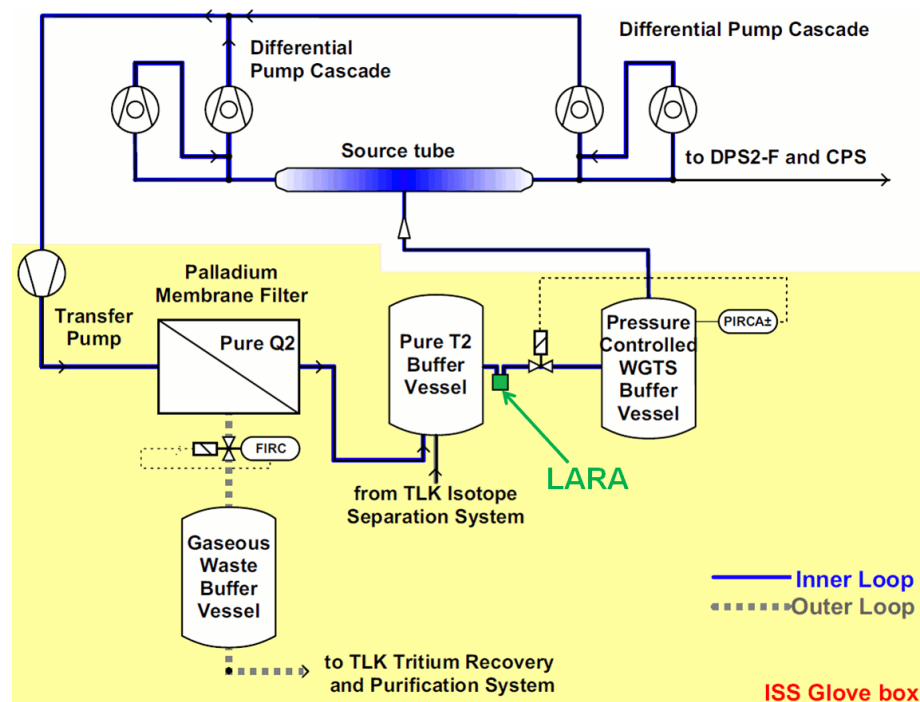


Abbildung 2.5: Vereinfachtes Fließbild des Inner Loops und der WGTS. Der Inner Loop sowie der Outer Loop befinden sich innerhalb der sogenannten ISS-Handschuhbox. Quellrohr, DPS1-R und DPS1-F befinden sich dagegen außerhalb einer Handschuhbox.

Auch die Stabilisierung der Einlassrate wird durch den Inner Loop geleistet [Stu10a]. Der Inner Loop sorgt durch einen druck- und temperaturstabilisierten Einlassbehälter für die geforderte Stabilität der Einlassrate. Ein vereinfachtes Fließbild ist in Abbildung 2.5 gezeigt. Das abgepumpte Gasgemisch wird über einen Palladium/Silber-Membran-Filter² gefiltert. Dieser ist nur für Wasserstoffisotope, also Atome, die aus einem Proton und unterschiedlich vielen Neutronen zusammengesetzt sind (H, D, T), durchlässig. Hierdurch wird sichergestellt, dass das Gas weniger als 1 ppm Verunreinigungen enthält [Stu10a], beispielsweise durch Methan von den Edelstahlwänden oder Helium durch den β -Zerfall.

Da Verunreinigungen den Membran-Filter nicht durchdringen können, setzen sie sich vor dem Filter ab. Aus diesem Grund wird das Gas an dieser Stelle in den Outer Loop eingespeist. Der Outer Loop dient der Bereitstellung von Tritiumgas mit der geforderten Reinheit. Er umfasst die gesamte Infrastruktur des Tritiumlabors Karlsruhe, nämlich Tritiumlager [Bes02], Tritiumrückgewinnung [Bor05] und Wasserstoffisotopentrennung [Doe01]. Gas mit einer Reinheit von bis zu 99% kann so in den Vorratsbehälter eingespeist werden. Im Vorratsbehälter wird das zum Outer Loop abgegebene Gas mit dem Gas des Inner Loops wieder zusammengeführt.

Schließlich wird das Gas über ein Laser-Raman-System (LARA-System), das die Reinheit des Gases ermittelt, wieder in den Einlassbehälter geleitet. Notwendig ist dieses LARA-System aufgrund der geforderten Reinheit des Gasgemischs ε_T von mindestens 95% [KAT04]. Der relative Anteil an Tritiumatomen in allen Wasserstoffisotopologen, also allen Wasserstoffmolekülen, deren Atome aus einem Proton, aber einer unterschiedlichen Anzahl an Neutronen aufgebaut sind (H_2 , HT, D_2 , DT, HD, T_2), muss somit diesem Prozentsatz entsprechen. Die Überwachung des Wertes wird durch das LARA-System ermöglicht.

Bevor in Abschnitt 2.4 näher auf die Funktionsweise und den Aufbau des LARA-Systems eingegangen wird, wird die Notwendigkeit der Überwachung der Reinheit des Gases aufgrund der hohen Anforderungen an die systematischen Fehler bei der Messung der Neutrinomasse dargelegt.

2.3 Einfluss der isotopischen Reinheit auf die systematischen Unsicherheiten der Tritiumquelle

Die absolute systematische Unsicherheit des KATRIN-Experiments soll

$$\sigma_{\text{syst}} \leq 0,017 \text{ eV}^2/c^4 \quad (2.5)$$

betragen. Dadurch wird gewährleistet, dass nach drei Jahren Messzeit systematische und statistische Fehler etwa gleich groß sind und somit eine Neutrinomasse von

$$m_\nu = 0,35 \text{ eV}/c^2 \text{ mit } 5\sigma \text{ Entdeckungspotenzial} \quad (2.6)$$

nachgewiesen werden kann [KAT04].

Im Folgenden werden systematische Effekte erläutert, die das Elektronenspektrum ähnlich wie eine nichtverschwindende Elektronantineutrinomasse verändern [Hö09]. Es werden jedoch nur Effekte betrachtet, die quellspezifisch sind.

²auch Permeator genannt

- **Kernrückstoß:**

Die Rückstoßenergie des beim Zerfall entstandenen Moleküls mit der Masse m_{mol} ist nach [KAT04] gegeben durch:

$$\Delta E \approx E \cdot \frac{m_e}{m_{\text{mol}}} \quad (2.7)$$

Für das Tochtermolekül ${}^3\text{HeT}^+$ beträgt die Rückstoßenergie am Endpunkt des Spektrums $E_{3\text{HeT}^+, \text{rück}} = 1,72 \text{ eV}/c^2$ [SA00]. Um diesen Energiebetrag wird der Endpunkt des Energiespektrums zu niedrigeren Energien hin verschoben. Da die Rückstoßenergien von HeH^+ und HeD^+ nicht mit der von HeT^+ identisch sind, ist aufgrund deren Vorkommens im Tritiumgasgemisch von einer Überlagerung der Spektren auszugehen.

- **Endzustände:**

Da der niedrigste angeregte, elektronische Zustand von ${}^3\text{HeT}^+$ 27 eV [SA00] beträgt, wirken sich die elektronischen Anregungen kaum auf den Bereich nahe dem Endpunkt des Elektronenspektrums aus. Entscheidender sind Rotations-Vibrations-Zustände, die im Mittel eine Energie von 1,89 eV besitzen [SA00].

- **Energieverlust durch elastische Stöße:**

Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron auf seinem Weg zum Detektor an einem Molekül elastisch streut, ist abhängig von der Säulendichte. Der Energieverlust der Elektronen kann mit Hilfe folgender Formel bestimmt werden [KAT04]:

$$\Delta E = 2 \frac{m_e}{m_{\text{mol}}} E (1 - \cos \theta) \quad (2.8)$$

Dabei ist θ der Streuwinkel. Da dieser im Mittel lediglich 3° beträgt, ist der mittlere Energieverlust der Elektronen im Falle eines elastischen Stoßes an T_2 16 meV [KAT04]. Findet der Stoß dagegen mit einem anderen Wasserstoffisotopolog statt, fällt der Energieverlust aufgrund des kleineren m_{mol} größer aus. Die elastische Streuwahrscheinlichkeit hängt von der Säulendichte ab.

- **Energieverlust durch inelastische Stöße:**

Nach [Ase00] beträgt der minimale Energieverlust des Elektrons bei einem inelastischen Stoß mit einem T_2 -Molekül 12,6 eV. Dabei ist zu beachten, dass nicht jedes Elektron auf seinem Weg zum Detektor inelastisch gestoßen hat. Auch die inelastische Streuwahrscheinlichkeit hängt von der Säulendichte ab.

Zusätzlich zu den beschriebenen Effekten ruft eine Änderung der Quellstärke eine Änderung der Zählrate N am Detektor hervor. Eine solche Änderung würde die Form des Spektrums verändern, wodurch eine Bestimmung der Neutrinomasse mit der geforderten Sensitivität nicht mehr möglich wäre. N hängt sowohl von der Säulendichte ϱd als auch von der Tritiumreinheit ε_t ab, die beide auf 0,1% stabilisiert werden müssen:

$$N \sim \varrho d \cdot \varepsilon_t. \quad (2.9)$$

ϱd ist wiederum abhängig von der Temperatur des Quellrohrs, der Einlassrate und dem Druck an den Pumpstutzen. Die geschlossenen Tritiumkreisläufe sollen die geforderte Stabilität gewährleisten.

Es wurde durch [Pri10] und [Stu10a] bereits gezeigt, dass die Einlassrate in die WGTS mit nichtradioaktivem Gas über den gewünschten Wert auf 0,02% stabilisiert werden kann.

Auch die Temperaturstabilisierung des Quellrohrs ist erfolgreich am sogenannten Demonstrator, dem Quellrohr mit Vakuum- und Kryosystem, realisiert worden [Gro11]. Somit kann die Säulendichte mit der geforderten Stabilität gewährleistet werden.

Von ε_T ist die Quellaktivität abhängig, da je nach Art und Häufigkeit der Moleküle in der Quelle Energieverluste durch Stöße, Endzustandsenergien und Kernrückstoßenergien variieren. Daher ist eine Überwachung der Gaszusammensetzung mit einer Präzision von 0,1% in 250s, der Messdauer eines typischen Messintervalls pro Messpunkt während des KATRIN-Experiments, nötig. Realisiert wird dies durch das LARA-System. Die Überwachung der Gaszusammensetzung und damit von ε_T mit dem LARA-System wird im nächsten Abschnitt näher erläutert.

2.4 Überwachung der isotopischen Reinheit mit Hilfe eines Laser-Raman-Systems

Wie im letzten Abschnitt deutlich geworden ist, ist die Überwachung der Reinheit des Tritiumgases von großer Bedeutung für die systematische Unsicherheit des KATRIN-Experiments. Die Überwachung erfolgt ohne Probennahme und damit in-line innerhalb des Inner Loops. Da ein Messintervall 250s beträgt, kann beinahe von einer Echtzeitmessung ausgegangen werden.

Das KATRIN-Experiment fordert von dem LARA-System eine Nachweisgrenze von weniger als 0,1 mbar bei einem Gesamtdruck von 100-200 mbar in 250s, um kleinste Verunreinigungen in jedem Messintervall von KATRIN messen zu können. Die Messungen müssen zudem eine Präzision von 0,1% erreichen. Um diese Anforderungen zu erfüllen, wird ein speziell entwickeltes LARA-System verwendet, dessen Funktionsweise und Aufbau in Abschnitt 2.4.1 erläutert wird. In Abschnitt 2.4.2 werden die bisherigen Erfahrungen mit diesem System beschrieben, besonders in Bezug auf die eben geschilderten Anforderungen.

2.4.1 Funktionsweise und Aufbau des Laser-Raman-Systems

In diesem Abschnitt wird zunächst auf die theoretischen Grundlagen der Laser-Raman-Spektroskopie eingegangen. Danach wird die Umsetzung in dem für das KATRIN-Experiment entwickelten LARA-System beschrieben.

Die Raman-Spektroskopie beruht auf der inelastischen Streuung von Lichtphotonen an Molekülen [Ram29]. Da die Moleküle durch den Streuvorgang Rotations- und/oder Schwingungsanregungen erfahren, die in Abbildung 2.6 schematisch gezeigt sind, ändert sich auch die Wellenlänge des Photons. Dies ist in Abbildung 2.7 dargestellt.

Da die Anregungszustände für alle Wasserstoffisotopologe verschieden sind, zeigt das entstehende Spektrum charakteristische Linien (siehe Abbildung 2.8). Zur Überwachung der Wasserstoffisotopologe eignen sich vor allem die Q_1 -Zweige, also die Stokes-Raman-Rotations-Schwingungsübergänge, da alle Wasserstoffisotopologe hier deutlich voneinander getrennt erkennbar sind. Mit Hilfe der Linienintensität und der Übergangswahrscheinlichkeit kann eine Aussage über die Zusammensetzung des bestrahlten Gases getroffen werden. Nähere Informationen zur Theorie der Raman-Streuung können in [Lon02] nachgelesen werden.

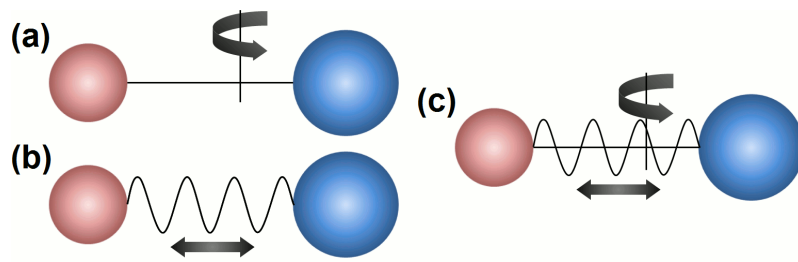


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung von Rotations-, Schwingungs- und Rotationsschwingungsanregung zweiatomiger Moleküle. (a) Bei Rotationsanregungen wird ein zweiatomiges Molekül, dessen Atome starr gekoppelt sind, zu Rotationen um die Schwerpunktschwerachse angeregt. (b) Bei Schwingungsanregungen können die Atome in einfacher Näherung als durch eine Feder gekoppelt angesehen werden. Die Anregung bewirkt eine Schwingung entlang der Verbindungslinie. (c) Rotationsschwingungsanregungen sind eine Überlagerung der beiden bereits beschriebenen Anregungsarten.

Der Aufbau des LARA-Systems lässt sich in drei Komponenten aufteilen: den optischen Aufbau mit Laser und Spektrometer (LARA-Aufbau), die LARA-Zelle, die von dem in die WGTS eingespeisten Gas durchströmt wird, und den Appendix, der die beiden anderen Komponenten verbindet (siehe Abbildung 2.10). Auf jede der drei Komponenten wird im Folgenden eingegangen.

LARA-Aufbau:

Der LARA-Aufbau befindet sich außerhalb der Handschuhbox und folgt prinzipiell dem von Lewis in [Lew07] beschriebenen Aufbau. Alle optischen Komponenten sind auf einem optischen Tisch montiert und von einem lichtdichten Gehäuse umgeben. Als Laserquelle für den in Abbildung 2.9 gezeigten Aufbau dient ein 5 W Laser der Wellenlänge 532 nm. Der Laser ermöglicht einen stabilen und zuverlässigen Langzeitbetrieb der LARA-Messungen. Das Streulicht aus der LARA-Zelle wird mit Hilfe einer Glasfaser mit 48-linear angeordneten Fasern über einen Wellenlängenfilter, der elastisch gestreutes Licht unterdrückt, zum Spektrometer geführt. Das Spektrometer zerlegt das Streulicht in seine spektralen Anteile, so dass die Aufnahme des Spektrums mit Hilfe einer CCD möglich ist. Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus kann in [Sch09, Fis10, Mir11] gefunden werden.

LARA-Zelle:

Die LARA-Zelle wird von dem gesamten Tritiumgas durchströmt, das in die WGTS eingelassen wird. Das bedeutet, dass täglich etwa 40 g Tritium durch die Zelle strömen. Daher muss die LARA-Zelle tritiumkompatibel gefertigt sein und in einer Handschuhbox aufbewahrt werden. Deshalb wird sie in den Appendix eingebaut. Die LARA-Zelle ist die einzige Komponente des LARA-Aufbaus, die direkt mit Tritium in Berührung kommt.

Das Zellen-Design beruht auf der Arbeit von U. Engelmann, ist jedoch verkleinert ausgeführt worden [Eng92]. Die Zelle besteht aus einem ganzmetallischen Grundkörper, der mit zwei Faltenbalkventilen an der Oberseite der Zelle an den Inner Loop angeschlossen werden kann. An den vier Seitenwänden sind Flanschen angebracht, in die UHV-dichte Quarzglas-Fenster eingeschweißt worden sind. Die Fenster verfügen zudem über eine Antireflexionsbeschichtung. Die Beschichtung der beiden Fenster, durch die der direkte Laserstrahl tritt, ist auf 532 nm optimiert; die beiden anderen Fenster besitzen eine Breitbandentspiegelung von 450 - 750 nm (für nähere Informationen zu den Fenstern siehe Kapitel 4.2.3).

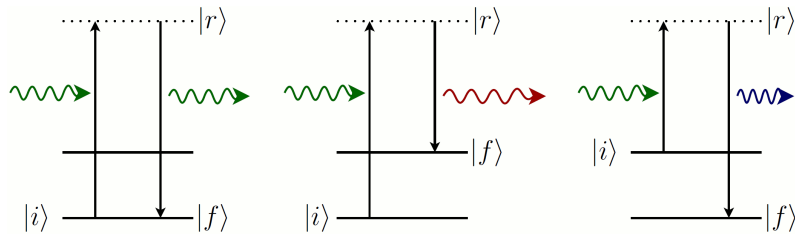


Abbildung 2.7: Quantenmechanische Beschreibung der Ramanstreuung. In allen drei gezeigten Bildern entspricht $|i\rangle$ dem Anfangszustand, $|r\rangle$ einem virtuellen Zwischenlevel und $|f\rangle$ dem Endzustand des Moleküls. Links: Gezeigt ist die Rayleighstreuung, bei der sich die Wellenlänge des Lichtes vor und nach der Streuung nicht ändert. Mitte: Die Energie des Photons ist nach der Streuung geringer als zuvor, weshalb die Wellenlänge größer ist. Dieser Vorgang wird Stokes-Raman-Streuung genannt. Rechts: Ist die Energie des Photons nach der Streuung größer als zuvor, die Wellenlänge dagegen kleiner, so spricht man von der Anti-Stokes-Raman-Streuung (nach [Lon02]).

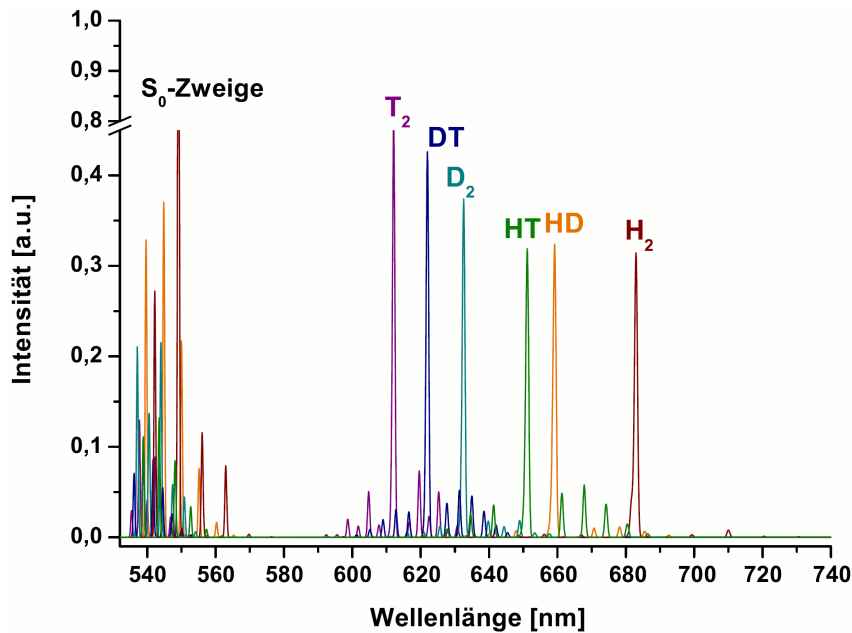


Abbildung 2.8: Theoretisches Spektrum für alle Wasserstoffisotopologe. Das gezeigte Raman-Spektrum zeigt die theoretisch berechnete Position der Zweige der sechs Wasserstoffisotopologe für eine Anregung mit einem 532 nm Laser. Der Rayleigh-Peak bei 532 nm ist nicht dargestellt. Im Bereich von etwa 532 bis 570 nm sind die S_0 -Zweige zu finden. Ab etwa 610 nm sind die deutlich von den anderen Zweigen hervorgehoben und voneinander getrennten Q_1 -Zweige der Wasserstoffisotopologe zu erkennen. Die Intensitätsbreiten zwischen den Zweigen sind mit einer Abweichung von bis zu 4 % dargestellt [Stu10a].

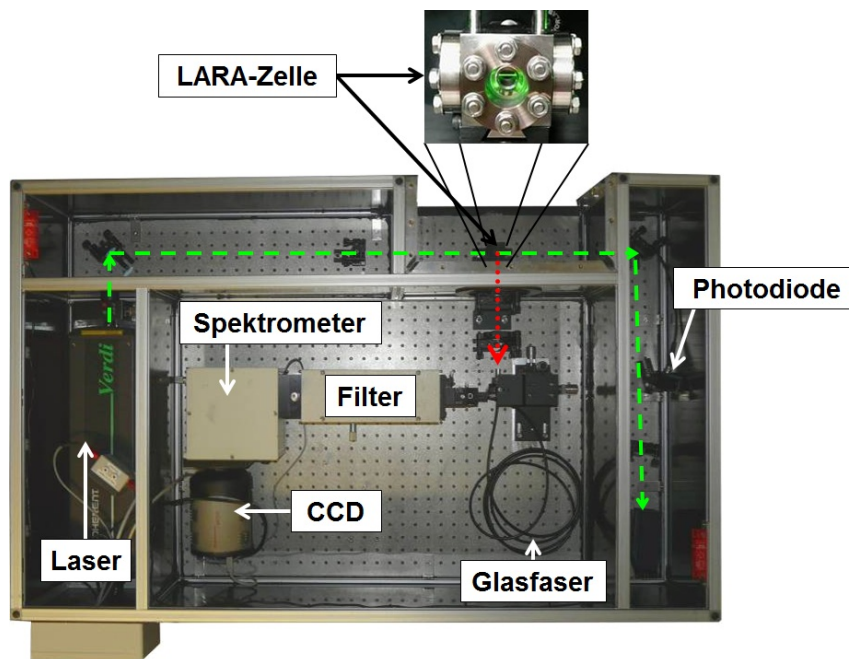


Abbildung 2.9: Fotografie des geöffneten LARA 1-Aufbaus. Das vom Laser ausgesandte Licht wird über optische Komponenten auf die LARA-Zelle gelenkt und nach der Zelle aufgefangen (grüne, gestrichelte Linie). Die Photodiode dient der Überwachung der Laserleistung. Die rote, gepunktete Linie deutet das gestreute Licht an, das über eine Glasfaser zunächst in einen Filter und dann in das Spektrometer gelangt. Die an das Spektrometer angeschlossene CCD nimmt schließlich das Spektrum auf.

Appendix:

Der Appendix bildet die Schnittstelle zwischen dem Inner Loop und dem optischen Aufbau. Er dient der LARA-Zelle als zweite Hülle, um einen sicheren Umgang mit der einzigen Komponente des LARA-Systems, die mit Tritium in Berührung kommt, zu gewährleisten. Die Zelle ist hierbei von den Schwingungen, die in der Handschuhbox herrschen, entkoppelt. Die beiden Seiten, durch die das Laserlicht scheint, sowie die Seite, durch die das Streulicht die Handschuhbox verlässt, sind mit Laserfenstern ausgestattet.

Die mit dem beschriebenen System gemachten Erfahrungen werden im nächsten Abschnitt vorgestellt.

2.4.2 Bisherige Erfahrungen mit dem Laser-Raman-System

Mit Hilfe des LARA-Systems ist eine Überwachung der Anteile aller sechs Wasserstoffisotopologe in einer Gasprobe in-line und nahezu in Echtzeit möglich. Am Tritiumlabor Karlsruhe sind insgesamt drei solcher Systeme betriebsbereit. Alle enthalten 532 nm DPSS-Laser³. Der genaue Aufbau von LARA 1 kann in [Sch09], der von LARA 2 in [Fis10] nachgelesen werden. LARA 3 ist der Aufbau, der im Regelfall die Überwachung der Tritiumreinheit für das KATRIN-Experiment leisten wird. Im Falle eines Schadens kann er aber durch die beiden anderen LARA-Systeme ersetzt werden. In den Aufbau von LARA 3 sind die Erfahrungen der beiden Vorgängermodelle eingegangen, eine genaue Beschreibung des Systems ist in [Mir11] gegeben.

³Diodengepumpte Festkörperlaser

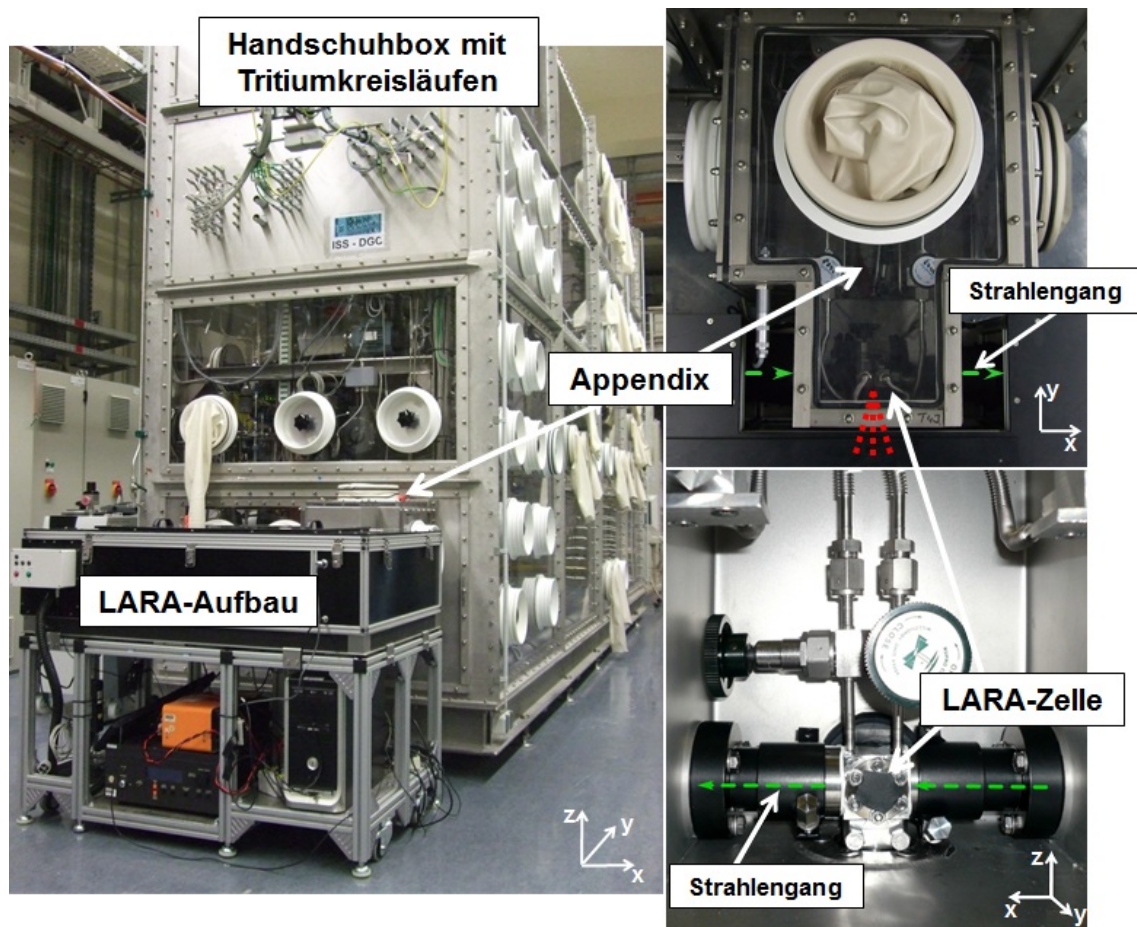


Abbildung 2.10: Fotografie des LARA-Aufbaus, des Appendix und der LARA-Zelle. Links: Der LARA-Aufbau ist an den Appendix angebaut. Dieser ist Teil der sogenannten ISS-Handschuhbox, in der auch der Inner Loop aufgebaut ist. Rechts oben: Blick von oben auf den Appendix. Mitte unten: Blick auf die in den Appendix eingebaute LARA-Zelle (Darstellung nach [Stu10a, Fis10]).

Mit den LARA-Systemen sind statische Messungen an Gasproben mit unterschiedlicher Zusammensetzung und unterschiedlichen Drücken durchgeführt worden [Stu10b]. Auch Proben, die die LARA-Zelle in einem geschlossenen Kreislauf durchströmen, sind gemessen worden [Fis11]. Dabei sind folgende Beobachtungen gemacht bzw. Ziele erreicht worden:

- Die Temperatur der Laborluft [Fis10] und der optischen Komponenten [Fis10, Mir11] beeinflusst die Messung auf zwei Arten. Zum einen sinkt die Laserleistung mit steigender Temperatur. Dieser Effekt kann durch eine aktive Kühlung des Lasers, wie sie im LARA 3 Aufbau Verwendung findet, minimiert werden. Zum anderen ist die Strahlposition abhängig von der Temperatur. So ist eine Variation der Temperatur der optischen Komponenten, wie beispielsweise der Spiegel, für eine Änderung der Strahlposition verantwortlich. Dieser Effekt ist in [Mir11] näher untersucht worden. Die gewonnenen Erkenntnisse sind im Aufbau von LARA 3 umgesetzt worden.
- Es sind Depolarisationsmessungen durchgeführt worden. Diese dienen der Verbesserung der theoretischen Modellierung der Spektren. Hierdurch wird ebenfalls eine Verbesserung der Bestimmung der Gaszusammensetzung in WGTS erreicht [Fis10].

- Die Kalibration eines LARA-Systems ist in den Arbeiten von P. Herwig [Her11] und H. Seitz [Sei11] durchgeführt worden.
- Die erreichte Detektionsgrenze liegt momentan bei einem Partialdruck von 3 mbar in einer Messzeit von 1 s [Sch11]. Die geforderte Präzision von 0,1% ist mit relativen Intensitäten erreicht worden. So ist eine Präzision von 0,1% für den T₂-Q₁-Zweig einer Probe, die 183 mbar Tritiumpartialdruck zu Beginn der Messung enthielt und durch die LARA-Zelle geleitet worden ist, über einen Zeitraum von mehr als 500 Stunden hinweg erreicht worden. Die Messintervalle betragen dabei 250 s [Stu10a, Fis11]. Dadurch konnte auch die Langzeitstabilität der Messungen demonstriert werden.
- Die im Spektrum deutlich sichtbare Produktion von Kohlenwasserstoffen konnte im geschlossenen Kreislauf von LOOPINO nachgewiesen werden [Fis11].

Auch eine Degradation der Laserfenster der LARA-Zelle konnte bei den bisherigen Messungen beobachtet werden. Hierfür sind zwei voneinander unabhängige Effekte verantwortlich. Zum einen wird der spektrale Hintergrund durch die Fluoreszenz von sogenannten Color Centern erhöht [Lon03]. Eine detaillierte Beschreibung dieses Effekts wird in Kapitel 3.2.1 gegeben. Zum anderen ist nach drei Monaten Betrieb der LARA-Zelle mit Tritiumgas eine Beschädigung der LARA-Fenster eingetreten [Fis11, Stu10a]. Auf diese Beschädigung wird im nächsten Abschnitt noch genauer eingegangen.

Da die erwähnte Beschädigung des Fensters eine deutliche Auswirkung auf das durch die LARA-Fenster transmittierte Licht hat, kann dieser Schaden die erreichte Präzision gefährden. Aus diesem Grund wird sich im nächsten Abschnitt näher mit der Thematik befasst.

2.5 Beschädigung an optischen Fenstern in Tritiumumgebung

Nach drei Monaten, in denen die LARA-Zelle und damit auch die LARA-Fenster einem Tritiumpartialdruck von 183 mbar ausgesetzt gewesen sind, ist die in Abbildung 2.11 gezeigte Beschädigung aufgetreten. Durch die Beschädigung reduziert sich die Laserintensität in der LARA-Zelle. Da alle vier LARA-Fenster von der Beschädigung betroffen sind, wird auch die Intensität des gestreuten Lichtes verringert.

Die Ursache des Schadens ist bisher noch ungeklärt, mehrere Auslöser sind jedoch denkbar. So kann die Beschädigung durch Kohlenwasserstoffe hervorgerufen werden, die durch Reaktionen des Tritiumgases mit den Edelstahlwänden des LOOPINO-Kreislaufs gebildet worden sind [Fis11]. Sollte dies der Fall sein, kann der in den Inner Loop integrierte Permator eine Beschädigung verhindern. Da das permeierte Gasgemisch jedoch vor dem Durchströmen der LARA-Zelle in einem Vorratsbehälter aus Edelstahl gesammelt wird, kann eine erneute Bildung von Kohlenwasserstoffen nicht ausgeschlossen werden.

Es besteht weiterhin die Möglichkeit, dass die ionisierende Strahlung aus dem Zerfall des Tritiums die Beschädigung verursacht hat. Dabei ist zu beachten, dass weitere LARA-Zellen mit geringen Tritiumpartialdrücken über mehrere Monate hinweg gelagert worden sind, ohne eine solche Beschädigung aufzuweisen. Somit kann die erhöhte Aktivität, die durch die Reinheit des verwendeten Gases von mehr als 98% und den Partialdruck von 183 mbar entsteht, Grund für die Beschädigung sein.



Abbildung 2.11: Fotografie eines beschädigten LARA-Fensters. Gezeigt ist ein Fenster, durch das das gestreute Licht aus der Zelle entnommen wird. Die Beschädigung ist mit dem bloßen Auge erkennbar. Sie zeigt sich in Form dunkler Flecken auf der Oberfläche der Innenseite der Fenster.

Es wird deutlich, dass die Ursache der Beschädigung bisher nicht genauer bestimmt werden konnte. Zudem kann die Beschädigung aufgrund der hohen Präzisionsanforderungen nicht geduldet werden. Daher ist die Entwicklung eines Experimentes zur Untersuchung der Beschädigung nötig. Die Bedingungen sollten dabei, soweit möglich, mit den während des KATRIN-Experiments herrschenden Bedingungen vergleichbar sein. Die Entwicklung eines solchen Experiments und dessen erste Messergebnisse werden in dieser Arbeit ausführlich beschrieben und diskutiert.

Zunächst ist dafür eine nähere Auseinandersetzung mit den möglichen Beschädigungsmechanismen nötig. Aufgrund der Randbedingungen, die das KATRIN-Experiment an das LARA-System stellt, muss eine Eingrenzung auf die wahrscheinlichsten Mechanismen stattfinden, um einen Überblick über die erforderlichen Messbedingungen zu erhalten. Diese Eingrenzung erfolgt in Kapitel 3. Auch die Auswahl der Proben für ein solches Experiment wird durch die möglichen Beschädigungsmechanismen beeinflusst (siehe Kapitel 4.2).

Weiterhin muss im Rahmen des Experiments eine Beaufschlagung der Proben, also das In-Kontakt-Bringen der Proben mit Tritium, geleistet werden. Aufgrund der Radioaktivität des Tritiums müssen dabei besondere Sicherheitsaspekte beachtet werden. Die Entwicklung sowie der Aufbau und die Inbetriebnahme einer Versuchseinrichtung, die dies ermöglicht, sind in Kapitel 4.3 beschrieben.

Durch das KATRIN-Experiment werden in Bezug auf die Überwachung der als Proben verwendeten Fenster bereits unverzichtbare Eigenschaften vorgegeben, die nicht beeinträchtigt werden dürfen (siehe Abschnitt 3.1). Eine Veränderung dieser Eigenschaften muss mit einer Versuchseinrichtung zur Überwachung der Proben detektierbar sein. Auch hier stellt die Kontamination der Proben mit Tritium eine Herausforderung für die Konzeptionierung der Versuchseinrichtung dar. Die Auswahl der Untersuchungsmethoden und deren Realisierung im Rahmen des Experiments wird in den Kapiteln 4.4 und 4.5 beschrieben. In Kapitel 5 werden die Ergebnisse der ersten Messungen an Proben, die in Tritium gelagert worden sind, vorgestellt und diskutiert.

In diesem Kapitel ist das KATRIN-Experiment näher vorgestellt worden. Dabei zeigt sich die Notwendigkeit einer Überwachung der Reinheit des Tritiumgases mit einer Präzision von 0,1% in 250 s Messzeit. Diese Überwachung wird mit dem speziell entwickelten LARA-System ermöglicht. Dass dieses System die geforderte Präzision leisten kann, ist bereits gezeigt worden. Jedoch ist aus bisher noch ungeklärten Gründen eine Beschädigung der LARA-Fenster drei Monate nach der Befüllung der Zelle mit einem Tritiumpartialdruck von 183 mbar und einer Reinheit von mehr als 98% aufgetreten. Dieser Schaden gefährdet die Messung der Gaszusammensetzung mit der geforderten Präzision für das KATRIN-Experiment. Daher sind weitere Untersuchungen der Beschädigung unverzichtbar. Dies erfolgt innerhalb eines Experiments, das Thema dieser Arbeit ist. Hierfür wird im folgenden Kapitel zunächst ein Überblick über mögliche Beschädigungsmechanismen gegeben.

Kapitel 3

Mögliche Beschädigungsmechanismen der optischen Fenster

Um die beobachtete Beschädigung der LARA-Fenster zu verstehen und eine Aussage über die Tauglichkeit der Fenster im Rahmen des KATRIN-Experiments treffen zu können, müssen die möglichen Beschädigungsmechanismen während der Nutzung verstanden sein. Dafür werden zu Beginn dieses Kapitels in Abschnitt 3.1 zunächst die für das KATRIN-Experiment unverzichtbaren optischen Eigenschaften der Fenster herausgearbeitet. In Abschnitt 3.2 kann so eine zielgerichtete Betrachtung der möglichen Ursachen des Schadens vor allem in Bezug auf diese Eigenschaften erfolgen. Der letzte Abschnitt fasst die wichtigsten Aussagen nochmals zusammen und begründet die Notwendigkeit für das in den nächsten Kapiteln beschriebene Experiment.

3.1 Identifizierung der für das KATRIN-Experiment unverzichtbaren optischen Eigenschaften der LARA-Fenster

Das KATRIN-Experiment hat das Ziel, die Masse des Elektronantineutrinos mit einer Sensitivität von $0,2 \text{ eV}/c^2$ zu bestimmen [KAT04], wobei systematische und statistische Fehler etwa gleich groß sein werden. Wie in Kapitel 2 erläutert, werden daher besondere Anforderungen an die LARA-Messungen in Bezug auf deren Fehler gestellt. Wichtige Größen bei der Bestimmung des Fehlers sind (siehe [Sch11]):

Präzision

Die Präzision ist ein Maß für die Reproduzierbarkeit der Einzelmessungen. Sie ist besonders von dem Signal-zu-Rauschen-Verhältnis der Raman-Linien im Spektrum abhängig, das wiederum von der Laserstabilität und der Laserleistung bestimmt wird. Auch eine hohe Quanteneffizienz der CCD, also der Wahrscheinlichkeit in der CCD ein Elektron aus einem einfallenden Photon zu generieren, ist nötig, um das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu maximieren, genauso wie ein möglichst geringer Untergrund, der sich aus dem Rauschen der CCD und dem spektralen Hintergrund der Zelle durch Raman-Streuung an den Fenstern und Fluoreszenz der Fenster zusammensetzt.

Sensitivität

Die Sensitivität beschreibt die erwartete Nachweisgrenze für die Wasserstoffisotopologie bezogen auf eine bestimmte Messzeit. Sie ist abhängig von dem Wirkungsquerschnitt der inelastischen Streuung von Licht an Molekülen, der nur etwa 10^{-29} cm^{-2} [For73] beträgt. Daher sind die zu erwartenden Intensitäten des gestreuten Lichtes im Vergleich zum Laserlicht nur sehr gering. Infolgedessen sind das Rauschen der CCD und der spektrale Hintergrund der Zelle die limitierenden Faktoren der Sensitivität. Deshalb ist eine hohe Laserleistung und eine effiziente Ausnutzung des vorhandenen Lichtes nötig, um das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu maximieren und die vom KATRIN-Experiment geforderte Nachweisgrenze in der Größenordnung von 0,1 mbar bei 100 - 200 mbar Partialdruck und 250s Messzeit zu erreichen. Diese Nachweisgrenze erlaubt auch den Nachweis von kleinsten Verunreinigungen im Tritiumgasgemisch.

Richtigkeit

Die Richtigkeit beschreibt die Abweichung der Mittelwerte der Messwerte von den wahren Werten. Dieser Anteil am systematischen Fehler kann durch Kalibration minimiert werden. Trotzdem haben Größen wie unbekannte Gaskonstituenten des Gasgemisches und Strahlposition großen Einfluss auf die Richtigkeit [Mir11].

Die wichtigsten Faktoren in Bezug auf die Fehler der LARA-Messungen lassen sich hieraus folgendermaßen zusammenfassen:

- Quanteneffizienz und Rauschen der CCD
- Fehler der Wirkungsquerschnitte der unelastischen Streuung
- Spektraler Hintergrund der LARA-Zelle
- Laserstabilität
- Strahlposition
- Laserleistung

Um die durch das KATRIN-Experiment vorgegebenen Fehlergrenzen einhalten zu können, sind die meisten der genannten Faktoren bereits untersucht und so weit wie möglich verbessert worden [Sch09, Fis10].

Die Quanteneffizienz der verwendeten CCD liegt im Bereich der Q_1 -Zweige der Raman-Spektren bereits bei einem hohen Wert von 95% [Fis10]. Um die Auswirkungen des spektralen Hintergrunds durch das Laserlicht, die Raman-Streuung an den Fenstern und deren Fluoreszenz zu minimieren, wird ein Bereich des Spektrums betrachtet, in dem die Auswirkungen des Hintergrundes so gering wie möglich sind, nämlich die Q_1 -Zweige der Wasserstoffisotopologie [Fis11]. Aktuelle Untersuchungen und Ergebnisse zur Laserstabilität und der Strahlposition können in den Bachelorarbeiten von S. Mirz und S. Kudella [Mir11, Kud11] nachgelesen werden.

Die Laserleistung kann nicht über die durch den Laser vorgegebene Grenze von 5 W erhöht werden. Daher ist es nötig, die vorhandene Leistung so effizient wie möglich zu nutzen und die Intensität des Lichtes, das die LARA-Zelle durchdringt, nicht noch zusätzlich zu reduzieren. Eine Möglichkeit zur Maximierung der Intensität bietet der sogenannte Double-Pass, der das Licht nach einem ersten Passieren der Zelle in diese zurück reflektiert und

so das zur unelastischen Streuung nutzbare Laserlicht beinahe verdoppelt. Die experimentelle Umsetzung des Double-Pass ist in der Arbeit von S. Mirz beschrieben. Eine weitere Option zur Maximierung der Laserintensität, die von Anfang an genutzt worden ist, ist die Beschichtung der Fenster der LARA-Zelle mit wellenlängenspezifischen Antireflexionsbeschichtungen. Diese vermindern die Reflexion an jeder optischen Oberfläche von etwa 4 % auf 0,5 % [Sch11].

Beim Auftreten des Schadens an den LARA-Fenstern ist jedoch eine deutliche Verminderung der Laserintensität festgestellt worden. Dieser Rückgang kann möglicherweise auf gesteigerte Reflexion, Absorption und Streuung zurückgeführt werden. Auch eine Veränderung der Brechungsindices der Schichten, die innerhalb der als Multilayer gefertigten Beschichtung¹ zur Erzielung spezieller optischer Eigenschaften genau aufeinander abgestimmt sind, kann eine solche Reduktion verursachen. Damit verändert die Beschädigung der beschichteten Fenster eine der zu optimierenden Eigenschaften des LARA-Systems hin zum Negativen. Da die Reduktion der Intensität sowohl beim Laserstrahl nach dem Passieren der Zelle als auch beim gestreuten Licht festgestellt werden kann, werden nun die Folgen dieser Verminderung für beide Fälle aufgezeigt:

Die sinkende Transmission hat eine reduzierte Laserleistung in der Zelle zur Folge. Wie bereits beschrieben, führt eine solche Reduktion zu einer Abnahme des Signal-zu-Rauschen-Verhältnisses. Dies wiederum bewirkt eine schlechtere Präzision, wodurch der statistische Fehler der Messung ansteigt.

Beim gestreuten Licht hingegen wirkt sich der Schaden nicht nur über den eben beschriebenen Effekt auf die statistische Unsicherheit, sondern auch über die Richtigkeit der Messung auf den systematischen Fehler aus. Die Beschädigung kann eine von der Wellenlänge abhängige Veränderung im Spektrum hervorrufen, wodurch die einzelnen Linien des Spektrums in ihrer Intensität zueinander verschoben werden. Wird die Lumineszenz der Fenster durch die Beschädigung verstärkt, kann dies zudem eine Auswirkung auf die Sensitivität haben, da der Untergrund vergrößert wird.

Es lassen sich somit folgende unverzichtbare optische Eigenschaften bestimmen, die bei einer Beschädigung der LARA-Fenster nicht beeinträchtigt werden dürfen:

Streuung

Die Streuung an den Fensteroberflächen darf nicht so weit zunehmen, dass der Strahldurchmesser das beobachtende Volumen der Glasfaser von 100 μm übersteigt. Da der Laserstrahl bereits ohne zusätzliche Verbreiterung eine minimale Höhe von 60 μm [Sch09] besitzt, darf die Streuung durch die Beschädigung der Fenster maximal eine Vergrößerung der Strahlhöhe um 40 μm bewirken.

Absorption, Reflexion und Transmission

Reflexion, Transmission und Absorption beeinflussen direkt die Intensität des Laserlichtes in der Zelle. Da die Präzision proportional zur Wurzel der Laserintensität ist, wird somit auch die Präzision der Messung zusammen mit den genannten optischen Eigenschaften verändert. Nimmt beispielsweise die Laserintensität durch gesteigerte Absorption oder Reflexion um 1 % von 5 auf 4,95 W ab, so verschlechtert sich die Präzision der Messung um etwa 0,8 bis 1 % [SFK11]. Zusätzlich muss die Reflexion des Laserstrahls noch unter sicherheitstechnischen Aspekten betrachtet werden. Verursacht der Schaden an den Fenstern ein Ansteigen der Reflexion auf 1 %, wird eine Leistung von 50 mW in eine unbekannte

¹Für eine genaue Erklärung zum Aufbau der Beschichtung siehe Abschnitt 3.2.1 und besonders Abbildung 3.1, Seite 31

Richtung abgestrahlt. Dies entspricht einem Laser der Klasse 3b, der zweithöchsten Laserklasse. Daher kann es durch das Streulicht zu einer Beschädigung des Aufbaus oder zu einer Verletzung von Personen kommen. Aus diesem Grund ist ein Anstieg der Reflexion zu vermeiden.

Lumineszenz im Bereich von etwa 532 - 700 nm

Steigt die Lumineszenz der Fenster an, so ist mit einem deutlichen Anstieg des Untergrunds zu rechnen.

Änderung der Brechungsindices der Schichten

Werden die Brechungsindices der unterschiedlichen Schichten der beschichteten Fenster beeinflusst, kann eine deutliche Veränderung der optischen Eigenschaften der Fenster eintreten. Damit sich keine Beeinträchtigung der Transmission des Laserlichts aufgrund der Änderung der Brechungsindices einstellt, dürfen die Brechungsindices nur in einem sehr geringen Bereich von maximal 0,1 % durch die Bedingungen, die während des KATRIN-Experiments herrschen, variiert werden.

Weiterhin ist zu beachten, dass während der LARA-Messungen für das KATRIN-Experiment besondere Bedingungen in Bezug auf die Umgebung, in der die Fenster verwendet werden, herrschen: Da die Zelle von T_2 mit einem Partialdruck von 150 - 200 mbar durchströmt wird, herrscht innerhalb der Zelle ein Grobvakuum. Zudem besteht das Gasgemisch nicht aus reinem T_2 , weshalb Diffusionsmechanismen aller Wasserstoffisotopologe eine Rolle spielen. Ein weiterer sehr wichtiger Aspekt ist der, dass T_2 ein β -Strahler ist, wodurch die LARA-Fenster ständig ionisierender Strahlung ausgesetzt sind. Zusammenfassend sind damit mögliche Ursachen der Beschädigung:

1. Die Grobvakuumumgebung
2. Die Aussetzung ionisierender Strahlung
3. Die Wasserstoffumgebung

In Abschnitt 3.2 werden nun aktuelle Forschungsergebnisse zu optischen Fenstern unter Berücksichtigung der herausgearbeiteten, unverzichtbaren Eigenschaften dargestellt. Zunächst wird dabei auf allgemeine Beschädigungsmechanismen wie die Veränderung der Temperatur oder den mechanischen Stress in den Beschichtungen eingegangen. Danach werden solche Forschungsergebnisse noch genauer betrachtet, die die besonderen Bedingungen während des KATRIN-Experimentes abbilden.

3.2 Überblick über den gegenwärtigen Forschungsstand zu KATRIN-spezifischen Beschädigungsmechanismen

In diesem Abschnitt wird auf mögliche Beschädigungsmechanismen der optischen Fenster eingegangen. Abschnitt 3.2.1 liefert hierbei einen Überblick sowohl über den Aufbau der beschichteten Fenster als auch über allgemein bei Beschichtungen vorhandene Beschädigungsmechanismen. In den darauf folgenden Abschnitten wird auf die durch Grobvakuum (3.2.2), ionisierende Strahlung (3.2.3) und eine Wasserstoffumgebung (3.2.4) hervorgerufenen Mechanismen genauer eingegangen, da dies wesentliche Eigenschaften der Betriebsbedingungen in einer LARA-Zelle sind.

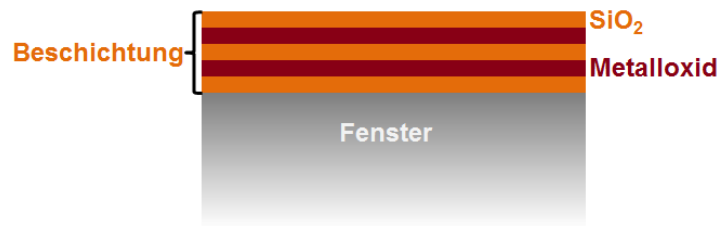


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Aufbaus eines beschichteten, optischen Fensters. Auf das Fenster werden alternierende Schichten von SiO_2 und Metalloxiden aufgebracht. Da die einzelnen Schichten für eine Antireflexionsbeschichtung in Bezug auf ihren Brechungsindex aufeinander abgestimmt sein müssen und SiO_2 niedrigbrechend ist, muss das zweite Material hochbrechend sein. Eine genaue Abstimmung der Brechungsindices aufeinander sorgt für die gewünschten Eigenschaften der Beschichtung (eigene Darstellung nach [Bau04]).

3.2.1 Generell beim Umgang mit optischen Fenstern auftretende Beschädigungsmechanismen

Um die Mechanismen, die zur aufgetretenen Beschädigung der Fenster der LARA-Zelle geführt haben, zu verstehen, muss man sich zunächst den Aufbau eines solchen Fensters vergegenwärtigen. Der prinzipielle Aufbau wird in [Bau04, Low11, LOK11] beschrieben und ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt. Auf das Substrat, das gerade bei Laseranwendungen häufig aus synthetischem Quarzglas besteht, wird ein Multilayer aufgetragen. Dieser besteht aus alternierenden Schichten von SiO_2 und anderen Metalloxiden. Da die oberste Schicht des Multilayers immer aus SiO_2 besteht, liegt der Fokus bei der Betrachtung der Beschädigungsmechanismen auf diesem Material. Aus diesem Grund wird im Folgenden anhand von [Dev94] näher auf die Struktur von SiO_2 eingegangen.

SiO_2 weist eine amorphe Struktur auf, die sich aus SiO_4 -Tetraedern zusammensetzt. Diese bilden Ringe, in denen sich Silizium und Sauerstoff-Atome abwechseln. Der kleinstmögliche Ring setzt sich aus 3 Silizium- und 3 Sauerstoffatomen zusammen. Der Winkel zwischen O-Si-O beträgt immer $109,5^\circ$, wohingegen der Winkel zwischen den einzelnen Si-O-Si-Ketten variabel ist. Er kann Werte zwischen 120° und 180° annehmen, ohne dass die Energie der Bindung allzu stark von seinem Minimalwert bei 145° abweicht (siehe Abbildung 3.2). Hieraus ergeben sich zwei Merkmale eines SiO_2 -Gitters: Zum einen werden Ringe aus mindestens vier Sauerstoff- und vier Siliziumatomen energetisch begünstigt, da erst ab dieser Anzahl die Winkel innerhalb eines planaren Rings größer als 145° ² sind und somit eine Minimierung der Bindungsenergie durch Verkleinerung der Winkel möglich ist. Zum anderen sind die Ringe nicht immer planar, da eine solche Winkelverkleinerung nicht in planaren Ringen möglich ist.

Zusätzlich zu Silizium- und Sauerstoffatomen enthält SiO_2 immer auch Verunreinigungen, zum Beispiel durch Fremdatome, und Defekte, die unter anderem bei der Produktion entstehen können. Diese bestimmen maßgeblich die Beschädigungsmechanismen und Beschädigungsarten [Leo09]. Im Folgenden wird auf drei Beschädigungsmechanismen, die bei

²Ein Ring aus drei Silizium- und drei Sauerstoffatomen bildet ein Sechseck, in dem die Summe der Innenwinkel 720° beträgt. Da die O-Si-O-Winkel immer 109° betragen, ist der mittlere Winkel zwischen Si-O-Si 131° . Da die Summe der Innenwinkel im Falle von vier Silizium- und Sauerstoffatomen 1080° beträgt, ist der mittlere Winkel zwischen Si-O-Si hier 161° .

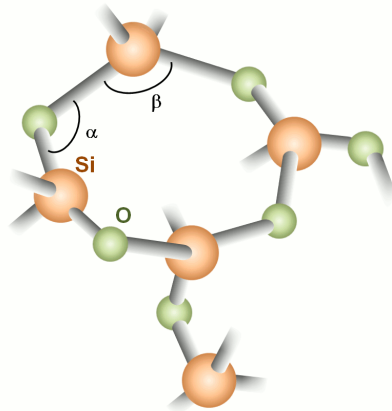


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung eines SiO_2 -Ringes. Der Winkel α beträgt zwischen 120° und 180° , der Winkel β $109,5^\circ$ (eigene Darstellung nach [Dev94]).

der Laser-Raman-Spektroskopie unvermeidbar sind, eingegangen, nämlich mechanischer Stress, Temperatur und Laserbestrahlung.

Durch den Produktionsprozess bedingt, stehen beschichtete, optische Fenster zu jeder Zeit unter **mechanischem Stress**. Dies kann zu Beschädigungen wie Rissen und Delamination, also dem Ablösen der Beschichtung vom Fenster, führen. Man unterscheidet je nach Entstehungsursache zwischen thermischem und intrinsischem Stress [Cas77].

Thermischer Stress wird durch die unterschiedlichen Expansionskoeffizienten von Fenster und Beschichtungsmaterialien hervorgerufen. Während der meisten Depositionsverfahren werden die optischen Fenster und damit auch die Beschichtung erwärmt. Ist der Prozess abgeschlossen, kühlen beide Komponenten ab und ziehen sich unterschiedlich stark zusammen. Aber auch wenn die Deposition nicht bei erhöhten Temperaturen stattfindet, kann das Fenster durch auftreffende Atome erhitzt und so thermischer Stress ausgelöst werden. Ungleichmäßige Erwärmung des beschichteten Fensters während der Nutzung kann den thermischen Stress noch verstärken.

Intrinsischer Stress wird nicht durch Temperaturänderungen, sondern durch das Wachstum der Beschichtung auf dem Fenster erzeugt. Die Struktur der ersten Atomlagen des Beschichtungsmaterials wird von den Keimbildungszentren, also den Orten, an denen die Kristallbildung einsetzt, bestimmt. Mit wachsender Dicke der Schicht setzt sich immer mehr die Struktur des Beschichtungsmaterials durch. Diese unterschiedlichen Strukturen erzeugen in der Beschichtung Stress. Je nach Beschaffenheit der Beschichtung kann intrinsischer Stress nochmals unterteilt werden. So ist in porösen Beschichtungen Zugstress, in dicht gepackten Beschichtungen Druckstress vorherrschend. Zugstress kann eine konkave Verformung des Fensters verursachen (siehe Abbildung 3.3). Sollte der Zugstress die Bindungskräfte zwischen den Atomen, die sogenannte Kohäsion, übersteigen, so sind feine Risse in der Beschichtung die Folge, die bei einer Antireflexionsbeschichtung zu unerwünschtem Streulicht führen. Druckstress hingegen kann die optische Komponente konvex verbiegen und im schlimmsten Fall zu Delamination führen. Dies tritt ein, wenn die Kräfte durch den Druckstress die der Adhäsion, also der Bindungskraft zwischen zwei unterschiedlichen Phasen, übersteigen.

Werden in dem Multilayer sowohl Materialien verwendet, die zu Druckstress neigen, als

auch solche, die zu Zugstress neigen, kann der Gesamtstress minimiert werden. Die häufige Verwendung von SiO_2 in Multilayern liegt z.T. darin begründet, dass dieses meist Druckstress aufbaut und somit den Zugstress anderer Materialien ausgleichen kann [Pul79, Cas77, Hu91, Ran96].

Ein weiterer Mechanismus, der zur Beschädigung beschichteter Fenster führen kann, ist die Änderung der **Temperatur**. Neben den bereits diskutierten Beschädigungen durch thermischen Stress kann diese auch zu reversiblen Veränderungen in der Beschichtung, wie zum Beispiel zur Änderung des Brechungsindex, führen. Geschieht diese Änderung durch die punktuelle Erwärmung aufgrund von Laserbestrahlung, spricht man vom sogenannten "Thermal lensing"[Pas08]. Auch irreversible Veränderungen werden beobachtet. So kann die Packungsdichte ansteigen, sich eine kristalline Struktur im amorphen Gefüge bilden oder sich das Fenster verzerren, was eine Änderung der Oberfläche und damit der optischen Eigenschaften zur Folge hat [Pul79, Ran96].

Des Weiteren setzt mit Erwärmung des Fensters ein Ausgasen von Wasserdampf ein. Das verdampfte Wasser stammt dabei vor allem aus Poren, die sich bei der Herstellung der Beschichtungen gebildet haben. Dies kann vielfältige Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften der Beschichtung haben. So wird beispielsweise der von der Wellenlänge abhängige Reflexionskoeffizient zu kleineren Wellenlängen hin verschoben. Dem entgegen wirkt jedoch, dass der Brechungsindex der meisten Halbleiter und damit auch von Silizium mit steigender Temperatur ansteigt. Dies hat einen Anstieg des Reflexionskoeffizienten hin zu größeren Wellenlängen zur Folge [Bau04].

Laserstrahlung kann ebenfalls Schäden in den optischen Fenstern erzeugen. Waren zu Beginn der Forschung auf diesem Gebiet noch Einschlüsse und Defekte des Fensters Hauptursache für die Beschädigung, so gelten heute Schäden der Beschichtung als maßgeblich [Ris09]. Besonders erwähnenswert sind dabei stabile Defekte, wie sogenannte E' -Zentren und nicht brückenbildende Sauerstoffatome (NBO), die in Abbildung 3.4 dargestellt sind. Diese Punktdefekte erzeugen ihrerseits eine gesteigerte Absorption und den Effekt der Coloration, die beide im Folgenden näher betrachtet werden [Nat04].

Coloration, also die Verdunklung eines Glases und die damit einhergehende geringere Transmission, entsteht bei Bestrahlung und wird von J.B. Lonzaga et al. in Kalk-Natron-Glas näher betrachtet [Lon03]. Hier werden als Ursachen für die Coloration zum einen Elektron- und zum anderen Lochstörstellen genannt. Letztere erzeugen breite Absorptionslinien von Licht bei etwa 460 nm und 620 nm. Erstere werden durch NBO und Alkali-Ionen des Kalk-Natron-Glases in Clustern angesammelt. So bilden an den NBO lokalisierte

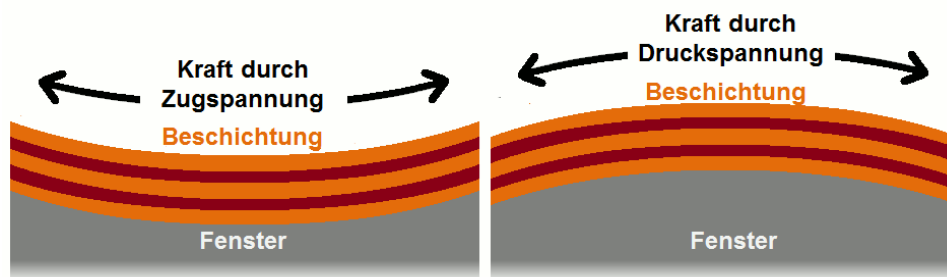


Abbildung 3.3: Verformung beschichteter Fenster unter Stress. Links: konkave Verbiegung unter Zugspannung. Rechts: konvexe Verbiegung unter Druckspannung [Cas77].

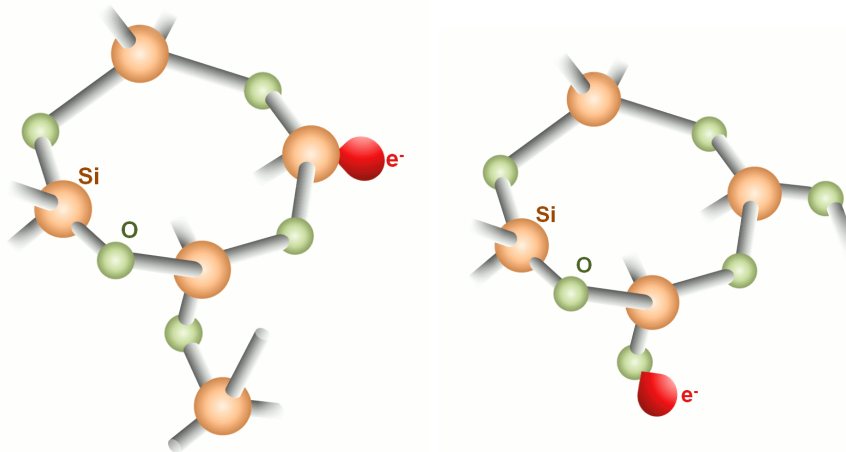


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung von Punktdefekten im SiO₂-Gefüge.

Links: Der E'-Defekt ist eine spezielle Form der Sauerstoffvakanz, also dem Fehlen eines Sauerstoffatoms im Gefüge. Die Fehlstelle wird hier nicht mit einem anderen Atom aufgefüllt, sodass ein ungebundenes Elektron entsteht (rot dargestellt). Rechts: Bei dem NBO-Defekt weist ein Sauerstoffatom eine fehlende Bindung auf. Auch hierbei wird ein ungebundenes Elektron gebildet. Beide Effekte treten häufig gemeinsam auf (eigene Darstellungen nach [Bus10, Bus09, Gri91]).

Elektronen die obere Grenze des Valenzbandes und nicht lokalisierte Elektronen der Ionen die untere Grenze des Leitungsbandes. Das bedeutet, dass eine schnelle Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren möglich ist und somit Licht sehr einfach absorbiert werden kann. Der umgekehrte Prozess der Rekombination ist ebenfalls sehr viel einfacher möglich als ohne Bestrahlung, weshalb eine erhöhte Fluoreszenz auftritt, also ein spinerlaubter Übergang von einem angeregten in einen Zustand niedriger Energie, bei dem ein Photon ausgesandt wird. Auch die Temperaturabhängigkeit der Coloration kann mit einer verkleinerten Bandlücke durch steigende Temperaturen erklärt werden. Weiterhin wird beobachtet, dass Elektronen und Löcher in unterschiedlichen Defekten gleichzeitig eingefangen werden und es so zu einer Separation der Ladung kommt. Dies führt zur Verdunkelung des Glases [Lon03].

Der dominante Mechanismus für Schäden durch Laserbestrahlung ist jedoch die Absorption. Sie wird zum einen durch Defekte und Unreinheiten verursacht, die ihre Ursache im Polieren vor der Beschichtung oder im Beschichtungsprozess selbst haben. So werden bei Niedertemperaturverfahren häufig knotenartige Defekte erzeugt, die eine zusätzliche Fokussierung des Laserlichts auf den Defekt zur Folge haben [Ris09]. Zum anderen sorgen Punktdefekte wie E'-Zentren und NBO für eine gesteigerte Absorption bei 210 nm bzw. 260 nm [Nat04]. Dieser Effekt ist bei wasserstoffreichen Gläsern und Beschichtungen deutlich schwächer ausgeprägt, da hier die Defekte mit dem enthaltenen Wasserstoff relaxieren. Dies bewirkt eine Wasserstoffanhäufung und damit eine Verschiebung der Absorptionsbande hin zu größeren Wellenlängen.

In beiden Fällen erhitzen sich die Absorptionszentren punktuell. Dies kann entweder zu einem Aufrauen der Oberfläche, zu einer Rekristallisation oder zu thermischer Expansion führen. Bei letzterem wird wie bereits erwähnt der Stress im Fenster erhöht, weshalb es im schlimmsten Fall zur Delamination kommen kann. Die beschriebenen Wasserstoffanhäufungen haben zudem eine Auswirkung auf den Brechungsindex und damit auf die Transmission des Fensters [Nat04, Ris09].

Die bisher genannten Mechanismen sind mit Ausnahme des Laserschadens in jedem beschichteten Fenster unabhängig von dessen Verwendungszweck vorhanden. Daher wird nicht vermutet, dass diese für den beobachteten Schaden an den LARA-Fenstern verantwortlich sind. Dies wird dadurch belegt, dass bisher noch an keinem gleichartigen Fenster, das mit nicht radioaktiven Gasen in Berührung gekommen und mit dem Laser bestrahlt worden ist, ein solcher Schaden aufgetreten ist. Auch ein Laserschaden allein als Auslöser ist eher unwahrscheinlich, da bereits mehrere Zellen mit gleicher Laserleistung über mehrere Jahre hinweg bestrahlt worden sind, ohne dass eine Veränderung beobachtet werden konnte.

Weitere Beschädigungen können jedoch durch die Verwendung der beschichteten Fenster in einer Vakuum- oder Wasserstoffumgebung induziert werden. Auch Effekte durch Ionen-, γ - und Elektronenstrahlung beeinflussen die Eigenschaften der Fenster. Diese Mechanismen werden in den folgenden Abschnitten behandelt.

3.2.2 Beschädigung durch Grobvakuumumgebung

Untersuchungen der Auswirkungen einer Vakuumumgebung auf die optischen Eigenschaften von Fenstern konnten nur bis zu maximalen Drücken von etwa 1 mbar gefunden werden. Zudem gehen die in der Literatur dokumentierten Experimente mit gleichzeitiger Laserbestrahlung einher, so dass immer von einem Zusammenspiel der bereits beschriebenen Mechanismen durch Laserstrahlung und Vakuumumgebung ausgegangen werden muss.

A.K. Burnham et al. [Bur00] stellen an Fenstern mit einer mittels Sol-Gel-Verfahren hergestellten Antireflexionsbeschichtung, die in Kapitel 4.2.2 noch näher beschrieben wird, nach der Bestrahlung mit einem gepulsten UV-Laser ein beschleunigtes Wachstum und eine erhöhte Dichte an Punktdefekten im Glas fest. Diese führen an der Oberfläche des Fensters zur Bildung einer absorbierenden substöchiometrischen SiO_x -Schicht mit einem Wert x im Bereich von 1 bis 2 (also einer an Sauerstoff verarmten SiO_2 -Schicht). Diese Schicht führt ihrerseits zu einer größeren Empfindlichkeit in Bezug auf Schäden durch Laserbestrahlung. Hierdurch wird ein Transmissionsverlust von 99,4 % auf 98,4 % bzw. von 100 % auf 99,0 % und eine Reflexionserhöhung von 0,5 % auf 1,1 % beobachtet. Auch eine erhöhte Absorption kann beobachtet werden. Zu ähnlichen Ergebnissen kommt auch die Forschergruppe um Xu Shi-Zhen [SZ08], die synthetisches Quarzglas mit einem 355 nm Nd:YAG-Laser in einer Umgebung mit 10^{-5} mbar Normaldruck bestrahlen. In den Proben, die der Vakuumumgebung ausgesetzt sind, bilden sich vermehrt NBO-Defekte, Peroxy-Radikale und interstitiell neutraler Sauerstoff (siehe Abbildung 3.5), wodurch die Photolumineszenz, die Aussendung von Photonen beim Übergang von einem angeregten in einen niederenergetischen Zustand, gesteigert, die Oberfläche der Probe aufgeraut und das O/Si-Verhältnis vermindert wird.

Die Einflüsse von Drücken mit Maximalwerten von etwa 1 mbar werden von T.M. Stephan et al. [Ste93] untersucht. Hierfür nutzen sie einen Ar-Ion-Laser, dessen Leistung in einer Vakuumkammer mit Hilfe von beschichteten SiO_2 -Fenstern verstärkt wird. Der größte Teil der Laserleistung wird im Bereich von 488 nm bis 514 nm ausgesandt, es gibt aber immer auch einen UV-Anteil. Im Experiment werden die Fenster mit dem Laser bestrahlt, während die Vakuumkammer evakuiert wird. Sobald der Druck weniger als 1,3 mbar beträgt, wird zunächst ein Anstieg der Transmission von etwa 10 % beobachtet. Hierauf folgt ein Einbruch auf etwa 50 % der ursprünglichen Transmission. Steigt der Druck in der Kammer wieder über 1,3 mbar an, so regeneriert sich das Fenster auf etwa 80 % der anfänglichen

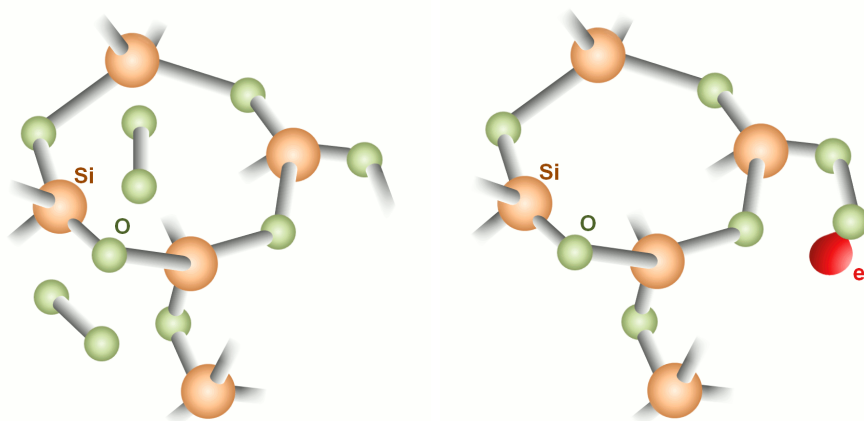


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung von interstitiell neutralem Sauerstoff und Peroxy-Radikal Links: interstitieller neutraler Sauerstoff, der in Form von O₂-Molekülen im Gefüge vorhanden ist. Rechts: Ein Peroxy-Radikal, das aus der Verbindung eines Siliziumatoms mit zwei Sauerstoffatomen besteht, von denen das zweite eine nicht geschlossene Bindung besitzt (eigene Darstellungen nach [Gri91]).

Transmission. Werden die Fenster erst in die Vakuumkammer eingebracht und später mit dem Laser bestrahlt, so ist der anfängliche Anstieg nicht mehr vorhanden. Wird verhindert, dass entweder die UV-Strahlung oder der sichtbare Anteil die Fenster erreicht, ist keine Degradation der Eigenschaften mehr erkennbar. Zusätzlich zur verminderten Transmission wird verstärkte Streuung und gesteigerte Fluoreszenz im Bereich von 620 bis 700 nm beobachtet. Die Kontamination der Fenster mit einer Kohlenwasserstoffschicht gilt als mögliche Ursache für diese Effekte.

Das Ausgasen von Kohlenwasserstoffen wie Methan aus den Wänden im Vakuum ist kein unbekanntes Phänomen. So beobachteten R.L.Hines und R.Arndt [Hin60] ebenfalls die Bildung eines dünnen Kohlenwasserstofffilms auf Gläsern, durch die die Transmission behindert und der Reflexionskoeffizient verändert wird.

Die gefundenen Ergebnisse deuten darauf hin, dass eine Vakuumumgebung eine erhöhte Absorption, gesteigerte Photolumineszenz sowie Transmissionsverluste hervorruft. Besonders die Bildung von Kohlenwasserstoffen ist von besonderem Interesse, da diese bereits beim LOOPINO-Experiment nachgewiesen werden konnten [Fis11]. Die Kohlenwasserstoffe sind dabei durch Reaktionen des Tritiumgases mit den Edelstahlwänden des Experiments gebildet worden (siehe hierzu auch [Mor77]). Zwar ist in den Inner-Loop ein Permeator eingebaut, dessen Aufgabe es ist, Kohlenwasserstoff aus dem Gasgemisch herauszufiltern, doch wird das Gas nach diesem durch einen Pufferbehälter geleitet, bevor es die LARA-Zelle durchströmt. Es ist daher nicht bekannt, ob und wie viel Kohlenwasserstoffe in dem Gasgemisch enthalten sein werden. Zudem können die beschriebenen Effekte durch eine Vakuumumgebung nicht ohne weiteres auf die Bedingungen in der LARA-Zelle übertragen werden, da der Druck in dieser um etwa 2 Größenordnungen größer ist als in den hier beschriebenen Experimenten.

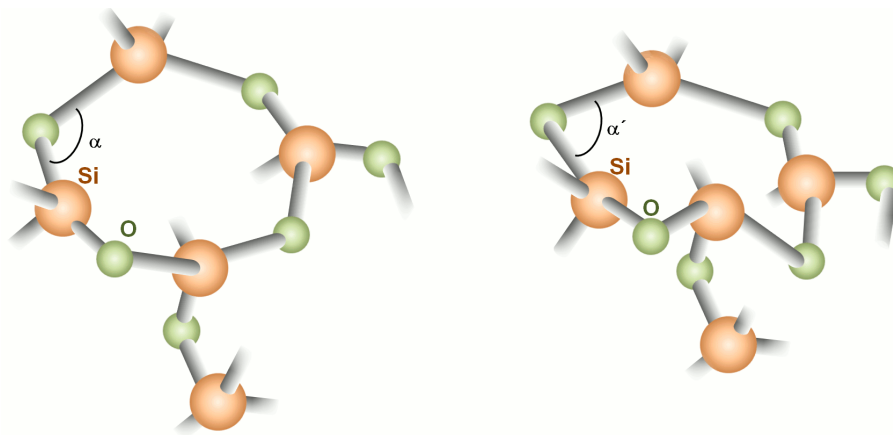


Abbildung 3.6: Veränderungen am SiO₂-Gefüge durch Verdichtung. Links: unbestrahltes Gefüge. Der Winkel α beträgt zwischen 120° und 180°. Rechts: bestrahltes, verdichtetes Gefüge. Der Winkel α' ist um etwa 10° gegenüber α vermindert und die Bindungslänge zwischen den Atomen hat zugenommen (eigene Darstellung nach [Boi03, Dev94, Bus10, Bus09]).

3.2.3 Beschädigung durch ionisierende Strahlung

R.A.B. Devine beschreibt in seiner Arbeit [Dev94] den Einfluss von ionisierender Strahlung auf amorphes SiO₂. Dabei setzt ab einer Dosis von $6 \cdot 10^{26}$ eV/cm³ eine Verdichtung des amorphen SiO₂ um bis zu 3 % ein³. Als Ursache hierfür werden 2 Effekte verantwortlich gemacht: Zum einen eine atomare Verschiebung innerhalb der Struktur, zum anderen belastete Si-O-Bindungen. Beides führt zu einer Reorganisation des Gefüges. Charakteristisch hierfür ist ein gestiegener Anteil an Ringen mit wenigen Silizium- und Sauerstoffatomen und eine Abnahme des Si-O-Si-Winkels um bis zu 10° [Dev94]. Eine derartige Verdichtung wird auch von B. Boizot et al. ab einer Dosis von 10⁹ Gy beobachtet [Boi03]. Zusätzlich wird hier die Verlängerung der Si-O-Bindungslänge und die Entstehung eines fluoreszierenden Hintergrundes bei Wellenlängen kleiner 7 μ m für Bestrahlung mit 2,5 MeV Elektronen erwähnt.

Eine mathematische Beschreibung der Verdichtung von amorphem SiO₂ bei Raumtemperatur durch Elektronenstrahlung mit 2,5 MeV und Dosen bis zu 10⁹ Gy liefern G. Buscarion et al. [Bus10, Bus09]. Sie unterscheiden dabei zwischen mikroskopischen Effekten, wie der Bildung von E'-Punktdefekten, und makroskopischen. Letztere umfassen die Bildung einer metamikten Phase, also einem Gefüge, dem dauerhaft Atome ausgeschlagen worden sind, und die heterogene Keimbildung, die zu kristallinen Bereichen führt.

Von besonderem Interesse sind auch die Ergebnisse von C.B. Norris und E.P. Eernisse, da sie die Wirkung von niederenergetischen Elektronen im Bereich von 2,2 bis 18 keV untersuchen. Dies ist der Energiebereich, in dem auch die Elektronen des beim KATRIN-Experiment genutzten β -Zerfalls von T₂ mit einer Energie von 0 bis 18,6 keV liegen. Die Untersuchung zeigt, dass die Verdichtung auch bei geringeren Energien einsetzt. Zudem kann nicht per se von einem Zusammenhang zwischen Dosisrate und Verdichtung ausgegangen werden [Nor74].

³ Zum Vergleich: Auf die LARA-Fenster wirkt unter Annahme einer Dichte von 2,2 g/cm³ eine Dosis von mindestens $5 \cdot 10^{24}$ eV/cm³ bzw. höchstens $7 \cdot 10^{29}$ eV/cm³ ein, abhängig von der Eindringtiefe des T₂ in die Fenster. In Anhang A ist die Berechnung der Strahlungsdosis auf die LARA-Fenster durchgeführt worden.

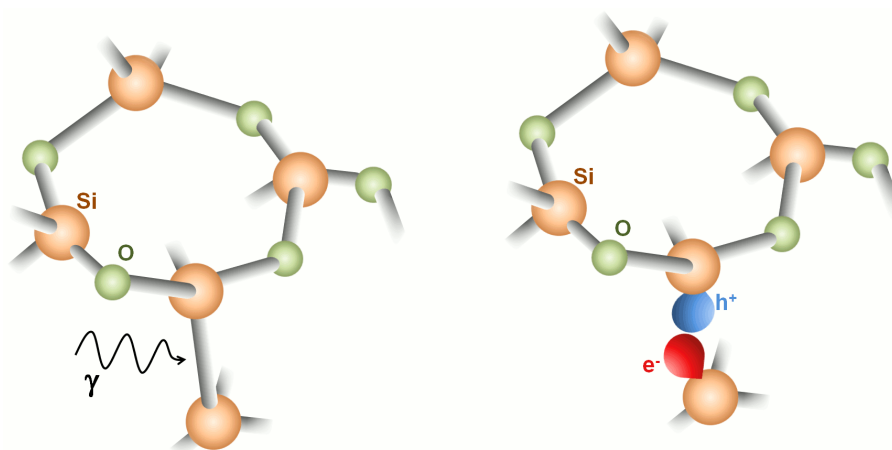


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der Entstehung von Punktdefekten durch γ -Strahlung. Durch das Aufbrechen der Bindungen entstehen Punktdefekte wie beispielsweise E'-Zentren (rot dargestellt), die die Absorption erhöhen (eigene Darstellung nach [Mar97]).

Als Folge der Verdichtung wird eine Abweichung des Brechungsindex um bis zu 1 % von seinem eigentlichen Wert festgestellt [Dev94]. Dadurch kann eine deutliche Änderung der optischen Eigenschaften der als Multilayer gefertigten Beschichtung eintreten, da die Brechungsindizes der unterschiedlichen Schichten genau für den jeweiligen Zweck aufeinander abgestimmt sind. Auch das Auftreten zusätzlichen mechanischen Stresses in den Fenstern wird beobachtet. Im Besonderen gilt dies, wenn die Eindringtiefe nicht die gesamte Probendicke umfasst [Nor74]. Dieser Stress kann zur Zerstörung der Fenster oder zur Delamination von Beschichtungen führen.

Die Bestrahlung unterschiedlicher SiO₂-Proben mit γ -Strahlung im Dosisbereich von 10 kGy bis 12 MGy bei 27°C durch M. León et al. zeigt eine erhöhte Anzahl an Punktdefekten wie beispielsweise E'-Zentren (siehe Abbildung 3.7). Diese rufen eine erhöhte optische Absorption hervor, die mit der Strahlungsdosis ansteigt. Zusätzlich verstärkt wird die Absorption, wenn in den Proben viele Einschlüsse enthalten sind [Leo09].

Ein weiterer Beschädigungsmechanismus, der durch ionisierende Strahlung entsteht, wird von M. Decretion et al. an Quarzgläsern für Fusionsreaktoren untersucht. Durch die Bildung von Sauerstoffvakanzan wird die Absorption der Gläser im Bereich 200-400 nm erhöht und eine strahlungsinduzierte Lumineszenz, also die Emission eines Photons beim Übergang von einem angeregten in einen Zustand niedriger Energie, hervorgerufen. Weiterhin sind die Gläser deutlich anfälliger für Beschädigungen durch den Laser, wenn sie gleichzeitig ionisierender Strahlung ausgesetzt werden [Dec04]. Ähnliche Beobachtungen machen auch J.R. Pitts und A.W. Czandern für die Bestrahlung von SiO₂-Proben mit Elektronen im Energiebereich von 0,25 keV bis 8 keV und mit He⁺ mit einer Energie von 2 keV. Eine deutliche Reduktion des Sauerstoffgehalts der Proben führt zur Bildung von substöchiometrischem SiO_x [Pit86]. Wie bereits in Abschnitt 3.3.1 erwähnt, sorgt ein solches Gefüge für verstärkte Absorption.

Insgesamt kann festgestellt werden, dass die in den zitierten Arbeiten beschriebenen Strahlungsdosen im Bereich derer des KATRIN-Experiments liegen (vergleiche Anhang A). Daher kann davon ausgegangen werden, dass ähnliche Beschädigungsmechanismen bei den beschichteten LARA-Fenstern auftreten werden. Der radioaktive Zerfall des im Gasgemisch

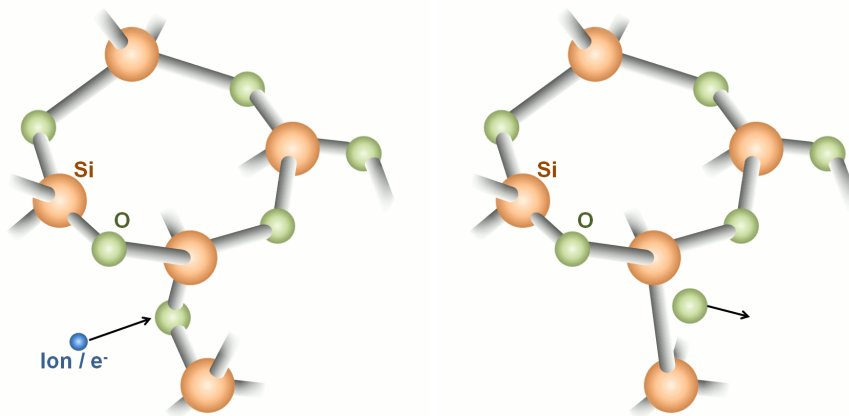


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Verringerung des O-Gehalts durch ionisierende Strahlung. Es werden durch die ionisierende Strahlung Sauerstoffatome aus dem Gefüge herausgeschlagen und durch Si-Si-Bindungen ersetzt. (eigene Darstellung nach [Mar97])

enthaltenen Tritiums wird daher eine erhöhte Absorption und eine strahlungsinduzierte Lumineszenz der Fenster der LARA-Zelle bedingen. Auch die Änderung des Brechungsindex kann unerwünschte Folgen haben, da die Brechungsindizes der einzelnen Schichten der Beschichtung genau aufeinander abgestimmt sind, um eine möglichst geringe Reflexion zu erhalten. Des Weiteren darf nicht außer Acht gelassen werden, dass ionisierende Strahlung Effekte durch mechanischen Stress und Laserbestrahlung verstärkt.

3.2.4 Beschädigung durch Wasserstoffumgebung

Ein weiterer Aspekt, der die optischen Eigenschaften von beschichteten Fenstern beeinflussen kann, ist die Wasserstoffatmosphäre. A. Ibarra et al. zeigen, dass Deuterium, das in natürliche Quarzgläser mit geringem OH-Gehalt implantiert wird, bei Raumtemperatur nicht aus der Probe heraus diffundieren kann. Werden die Gläser jedoch ionisierender Strahlung ausgesetzt, so entweicht das Deuterium auch bei Raumtemperatur. Die Diffusion findet dabei hauptsächlich molekular statt [Iba07].

Ebenfalls durch Implantation von Atomen in einkristalline, gesinterte und pudrige Proben von Al_2O_3 und BeO wird die Diffusion von T_2 von J.D. Fowler et al. untersucht. Dabei wird festgestellt, dass Verunreinigungen in den Proben den Diffusionskoeffizienten um bis zu 5 Größenordnungen erhöhen. Dies legt eine Diffusion über Punktdefekte nahe. Weiterhin wird gezeigt, dass Strahlungsschäden keinen Einfluss auf die Diffusion zeigen [Fow77]. Dies ist ein klarer Widerspruch zu den Ergebnissen der Forschungsgruppe von A. Ibarra.

Anhand der Untersuchung anderer Forschungsgruppen kann nicht geklärt werden, ob die Wasserstoffumgebung und im Speziellen die Tritiumumgebung Auswirkungen auf die unverzichtbaren Eigenschaften der LARA-Fenster hat. Zwar sind keine Beobachtungen zum Einfluss der Diffusion von Tritium und Deuterium auf die optischen Eigenschaften gemacht worden, aber es ist doch denkbar, dass die beschriebenen Schäden durch ionisierende Strahlung verstärkt werden, wenn der radioaktive Zerfall des Tritiums innerhalb der Probe stattfindet.

3.3 Notwendigkeit einer experimentellen Untersuchung

In den vorhergehenden Abschnitten sind eine Vielzahl von möglichen Beschädigungsmechanismen erläutert worden, die für die beobachtete Zerstörung der LARA-Fenster verantwortlich sein können. Bei den in Abschnitt 3.2 beschriebenen Effekten ist besonders auf die Eigenschaften eingegangen worden, die während des KATRIN-Experiments nicht beeinträchtigt werden dürfen.

Es ist dabei deutlich geworden, dass es bisher noch keine Experimente gibt, die die Bedingungen, in denen die LARA-Zelle verwendet wird, abbilden. So finden Drücke im Bereich des Grobvakuum in Experimenten zur Degradation optischer Fenster bisher keine Beachtung. Auch über das Zusammenspiel von mehr als zwei Mechanismen gleichzeitig ist nichts bekannt. Es werden beispielsweise Vakuumeffekte oder Effekte durch ionisierende Strahlung unter Laserbestrahlung untersucht, nicht jedoch von ionisierender Strahlung und Vakuumeffekten oder gar allen erwähnten Mechanismen zusammen. Auch die Auswirkung der Diffusion von T_2 auf die optischen Eigenschaften ist bisher nicht untersucht worden und zu der Diffusion von D_2 gibt es widersprüchliche Aussagen. Zudem ist die Frage, ob im Falle von beschichteten Fenstern nur die Beschichtung oder auch das Fenster selbst beschädigt wird, noch ungeklärt.

Daher ist ein Experiment notwendig, das die Bedingungen des KATRIN-Experiments so genau wie möglich abbildet: 150 - 200 mbar Q_2 -Partialdruck, wobei möglichst 95% aller im Gasgemisch enthaltenen Atome Tritiumatome sein sollten. Das Ziel eines solchen Experiments soll jedoch nicht in der Entwicklung einer neuartigen Beschichtung liegen. Vielmehr sollen bereits kommerziell erhältliche Beschichtungen auf ihre Tauglichkeit im Rahmen des KATRIN-Experiments hin untersucht werden. Dabei ist es wichtig, dass sich die Transmissions- und Absorptionseigenschaften der Proben durch das Gasgemisch nicht ändern. Es soll außerdem geklärt werden, ob der sichtbare Schaden in direktem Zusammenhang mit einer Abnahme des Transmissionskoeffizienten bzw. einer Zunahme der Streuung steht oder ob sie zu unterschiedlichen Zeiten eintreten. Letzteres wäre ein Indiz dafür, dass beide Effekte auf unterschiedliche Ursachen zurückgeführt werden können.

Kapitel 4

Entwicklung eines Experiments zur Untersuchung optischer Fenster in Tritiumumgebung

Wie in Kapitel 3 deutlich geworden ist, ist die Untersuchung der optischen Fenster in Tritiumumgebung von großer Bedeutung für das KATRIN-Experiment. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Experiment für eine solche Untersuchung entwickelt und aufgebaut. Beides wird in diesem Kapitel beschrieben. Dabei wird in Abschnitt 4.1 zunächst auf Ziele und offene Fragen eingegangen, um einen Überblick über das Experiment zu geben. Danach werden unter 4.2 unterschiedliche Beschichtungsmethoden und die damit hergestellten optischen Fenster beschrieben, die im Experiment als Proben dienen werden. In Abschnitt 4.3 werden mögliche Methoden vorgestellt, mit denen die Proben untersucht werden können, und die daraus für das Experiment getroffene Auswahl begründet. Die folgenden vier Abschnitte beschreiben die praktische Umsetzung des Experiments. So wird in 4.4 erläutert, wie die Beaufschlagung der Proben mit Tritium, also das In-Kontakt-Bringen mit einer Tritiumatmosphäre, sicher durchgeführt werden kann. Die nach der Beaufschlagung folgende Untersuchung mit unterschiedlichen Untersuchungsmethoden wird in Abschnitt 4.5 beschrieben. Da die Beaufschlagung und die Untersuchung der Proben jedoch nicht innerhalb der gleichen Handschuhbox stattfinden und auch Untersuchungen an einem anderen Institut des KIT Campus Nord durchgeführt werden, wird in Abschnitt 4.6 der Transport zwischen den einzelnen Versuchseinrichtungen geschildert. Die Sicherheitsvorkehrungen, die bei diesem Transport aufgrund der Radioaktivität des Tritiums getroffen werden müssen, werden ebenfalls beschrieben. In Abschnitt 4.7 wird schließlich der eigentliche Einbau sowie die Inbetriebnahme der Versuchseinrichtungen in die ausgewählten Handschuhboxen dargestellt.

4.1 Überblick über das Experiment

Mit dem Experiment soll geklärt werden, ob die Beschädigung der LARA-Fenster reproduzierbar ist. Dies ist der Fall, wenn die Beschädigung während des hier beschriebenen Experiments erneut auftritt. Andernfalls wären bisher noch nicht bekannte Effekte während des Testexperiments LOOPINO für den Schaden verantwortlich. Da LOOPINO die Gegebenheiten im Inner Loop von KATRIN bereits sehr genau abbildet, ist eine erneute

Beschädigung der optischen Fenster im Falle eines reproduzierbaren Schadens sehr wahrscheinlich. Sollte der Schaden reproduzierbar sein, so müssen alternative Antireflexionsbeschichtungen gefunden werden, die die gegebenen Bedingungen ohne Beschädigung überstehen. Daher muss ein zweites Ziel des Experiments sein, weitere Beschichtungen auf ihre Tauglichkeit für das KATRIN-Experiment hin zu überprüfen. Die Beschichtungen werden jedoch nicht eigens für das Experiment entwickelt, sondern sind entweder bereits kommerziell bei der Firma LASEROPTIK¹ erhältlich oder sind für den Nova-Laser der National Ignition Facility (NIF), einer Einrichtung des Lawrence Livermore National Laboratory zur Untersuchung von Fusionsprozessen, entwickelt worden [Mos08]. Die Beschichtungen unterscheiden sich aufgrund der Herstellungsprozesse in ihren optischen Eigenschaften, ihrer Oberflächenrauigkeit, also der Abweichung der realen Form von der idealen, und ihrer Packungsdichte, dem Verhältnis der Atome in einer Elementarzelle zum Gesamtvolumen einer solchen. Da bisher die Mechanismen, die zur Beschädigung führen, nicht bekannt sind, lässt sich im Voraus nur schwer eine Aussage darüber treffen, welche Eigenschaften die entscheidenden in Bezug auf die Tauglichkeit in einer Tritiumumgebung im Grobvakuum sind. Laut [LOK11] sind Materialien mit höherer Packungsdichte weniger anfällig für einen Schaden. Dem widerspricht, dass die am LLNL entwickelten Beschichtungen für die Fusion diejenigen mit der geringsten Packungsdichte aller verwendeten Proben sind (siehe Abschnitt 4.2.2), da die Fenster speziell für die Verwendung in einer Tritiumatmosphäre entwickelt worden sind. Allerdings sind diese für einen geringeren Tritiumpartialdruck konzipiert.

Insgesamt besteht das Experiment aus zwei Teilen: Zum einen der Beaufschlagung der Proben mit Tritium, zum anderen der Untersuchung der Proben auf Beschädigung und Veränderung der optischen Eigenschaften. An beide Versuchseinrichtungen ergeben sich durch die Handhabung von Tritium besondere Anforderungen, da sie in Bezug auf die Sicherheit hohe Standards erfüllen und innerhalb einer Handschuhbox handhabbar sein müssen. Auch beim Transport der Proben zwischen den einzelnen Versuchseinrichtungen sind besondere Sicherheitsmaßnahmen aufgrund der Beaufschlagung mit Tritium zu treffen.

Aus diesem Grund ergeben sich einige Fragen, die im Laufe dieses Kapitels geklärt werden: In welcher Handschuhbox kann eine Beaufschlagung der Proben mit Tritium durchgeführt werden und wie genau kann diese vonstatten gehen? Welche Untersuchungsmethoden sind in einer Handschuhbox handhabbar und in einem Zeitrahmen von etwa einem Jahr realisierbar? In welcher Handschuhbox kann die Versuchseinrichtung zur Untersuchung der Proben untergebracht werden? Welche Eigenschaften können mit diesen Untersuchungsmethoden überwacht werden? Wie ist ein Einbau der Versuchseinrichtungen in eine bereits bestehende Handschuhbox möglich und wie können die Proben sicher zwischen den Versuchseinrichtungen transportiert werden? Welche Möglichkeiten zur Auswertung und Interpretation der Messdaten bieten die Untersuchungsmethoden? Die letzte zu klärende Frage ist, wie die Arbeiten in einem gemeinsamen Messplan koordiniert werden können. Bevor diese Fragen geklärt werden, wird im folgenden Abschnitt zunächst genauer auf die verwendeten Proben eingegangen.

¹LASEROPTIK GmbH, Gneisenaustr. 14, D-30826 Garbsen



Abbildung 4.1: Fotografie der Probenhalterung und eines zugehörigen Sicherungsringes. Auf der linken Seite ist ein Sicherungsring zu sehen, auf der rechten die Probenhalterung. Beide Komponenten verfügen über ein Feingewinde, welches eine sichere Einfassung der Proben in die Probenhalterung ermöglicht. Die Probe wird mit je einem Sicherungsring auf jeder Seite in die Probenhalterung eingefasst.

4.2 Auswahl der optischen Fenster

In diesem Abschnitt werden zunächst die Auswahlkriterien für die im Experiment benutzten Fenster beschrieben. Danach werden die einzelnen im Experiment verwendeten Proben vorgestellt und, sofern eine Beschichtung vorhanden ist, der Herstellungsprozess der jeweiligen Beschichtung dargestellt.

4.2.1 Kriterien zur Auswahl der optischen Fenster

Bevor speziell auf die einzelnen Proben eingegangen wird, werden nun die Gründe beschrieben, die zur Auswahl der optischen Fenster für das Experiment geführt haben. Hierfür muss zwischen zwei Probentypen unterschieden werden. Zum einen dienen die bereits für die LARA-Zelle produzierten, fest in einen CF16-Flansch eingeschweißten² Fenster als Proben. Diese haben entweder eine Breitband- oder eine auf 532 nm optimierte Antireflexionsbeschichtung. Zum anderen werden unbeschichtete und von der Firma LASEROPTIK bzw. am LLNL beschichtete 1-Zoll-Optiken verwendet. Diese Proben werden im Folgenden als nicht eingeschweißte Proben bezeichnet, da sie aus der Probenhalterung, in der sie über zwei Sicherungsringe mit Feingewinde eingebaut sind, entnommen werden können (siehe Abbildung 4.1).

Die nicht eingeschweißten Optiken mit Beschichtung von LASEROPTIK werden aufgrund ihrer unterschiedlichen Herstellungsprozesse untersucht. Da die Optiken sich in grundlegenden Eigenschaften wie Packungsdichte oder Art und Anteil an Verunreinigungen unterscheiden, ist es möglich, dass nicht alle durch die Tritiumumgebung beschädigt werden. Dabei ist es möglich, dass sich eine ansteigende Packungsdichte in Bezug auf die Tauglichkeit innerhalb einer Tritiumumgebung als besser erweist, da die Wasserstoffisotopologe in einer dichteren Beschichtung weniger gut diffundieren können [LOK11]. Des Weiteren ist zu beachten, dass LASEROPTIK die Proben für das Experiment zur Verfügung gestellt hat. Daher weisen sie sehr unterschiedliche Charakteristika in Bezug auf ihr Transmissions- und Reflexionsverhalten auf (siehe Tabelle 4.1). Als Fenster dient jeweils Q2 von SICO³ [SIC11].

²Die Methode, mit der die Fenster mit dem Flansch verbunden werden, wird im Englischen mit diffusion bonding bezeichnet. Im Deutschen unterscheidet man hierbei jedoch zwischen Diffusionsschweißen und Diffusionslötten. Bei ersterem liegen die zu verbindenden Materialien immer in fester Form vor, bei letzterem wird eines der Materialien verflüssigt. Da nicht bekannt ist, welche der beiden Methoden für die LARA-Fenster verwendet worden ist, werden die Proben im Folgenden als eingeschweißt bezeichnet.

³SICO Technology GmbH, 9531 Bleiberg-Kreuth, Bleiberg-Nötsch 176, Österreich

Ein weiterer Faktor, der die Auswahl der nicht eingeschweißten Proben beeinflusst hat, sind Erfahrungen aus der Fusionsforschung. Die Proben, die am LLNL beschichtet worden sind, sind für die Fusion von Tritium und Deuterium entwickelt worden. Da die NIF Kernfusion untersucht, die mit Hilfe eines Lasers gezündet wird, ist die Beschichtung sowohl in Hinsicht auf Laserbestrahlung als auch in Hinsicht auf eine Tritiumumgebung konzipiert worden, jedoch auf einen geringeren Tritiumpartialdruck. Aufgrund dessen, dass die Beschichtung beim Gebrauch an der NIF bisher keinen Schaden aufgewiesen hat, ist es zumindest wahrscheinlich, dass die Beschichtung auch die Bedingungen in der LARA-Zelle übersteht.

Um zu klären, ob nur die Beschichtung selbst oder auch die Fenster darunter beschädigt werden, werden zusätzlich unbeschichtete Fenster von THORLABS⁴ untersucht. Hierbei ist zu erwähnen, dass diese Fenster auch als Trägermaterial zur Beschichtung durch das LLNL dienen.

Des Weiteren werden insgesamt sechs in CF16-eingeschweißte Proben verwendet. Davon sind vier Proben noch unbenutzt und zwei Proben bereits beschädigt. Jeweils die eine Hälfte der Proben ist mit einer Breitbandentspiegelung, die andere mit einer auf 532 nm optimierten Antireflexionsbeschichtung versehen. Die noch unbenutzten Proben werden verwendet, um zu überprüfen, ob der aufgetretene Schaden reproduzierbar ist.

Die beschädigten Proben dienen dazu, den Verlauf des bereits eingetretenen Schadens weiter zu verfolgen. Dabei kann die Frage geklärt werden, ob die dunklen Flecken auf der Oberfläche durch die Tritiumumgebung anwachsen oder sich nur neue solcher Flecken bilden. Zudem kann durch die Verwendung der beschädigten Fenster eine Aussage darüber getroffen werden, in welchem Maße sich die optischen Eigenschaften bei einem bereits eingetretenen Schaden innerhalb einer Zeitspanne von 60 Tagen verschlechtern.

In Tabelle 4.1 werden alle verwendeten Proben nochmals zusammen mit ihren optischen Eigenschaften aufgeführt.

Im nächsten Abschnitt werden nun zunächst die nicht eingeschweißten Proben betrachtet, da anhand von diesen die Methoden zur Herstellung aller verwendeten Proben beschrieben werden können.

4.2.2 Nicht eingeschweißte Fenster mit Probebeschichtungen

Insgesamt werden sechs verschiedene, nicht eingeschweißte Proben verwendet. Davon sind fünf Proben beschichtet, vier von LASEROPTIK und eins vom LLNL. Die Proben von LASEROPTIK sind mittels Elektronenstrahldeposition (EBD), Ionenstrahlgestützter Deposition (IAD), Ionenstrahlputtern (IBS) und Magnetronputtern (MS) beschichtet worden. Diese Verfahren beruhen alle auf der Verdampfung des Beschichtungsmaterials in einer Vakuumumgebung. Im Gegensatz dazu ist die Beschichtung des LLNL mittels des sogenannten Sol-Gel-Verfahrens hergestellt worden, eines Prozesses, der auf einer Hydrolyse und späteren Destillation beruht. Die sechste Probe ist ein unbeschichtetes Fenster von THORLABS. Jede der sechs Proben ist insgesamt dreimal vorhanden.

Dieser Abschnitt gibt nun einen Überblick über die verwendeten nicht eingeschweißten Proben. Dabei wird zunächst auf die Beschichtungsprozesse und die damit einhergehenden physikalischen und optischen Eigenschaften eingegangen. Danach werden die Eigenschaften der verwendeten Proben selbst dargestellt.

⁴Thorlabs GmbH, Hans-Boeckler-Str. 6, 85221 Dachau/Munich, Germany

Tabelle 4.1: Auflistung der im Experiment verwendeten Proben und ihrer optischen Eigenschaften. R = Reflexion, HR = höchste Reflexion, HT = höchste Transmission, OC = teilweise Reflexion, AR = Antireflexionsbeschichtung, T = Transmission

Hersteller	eingeschweißt	optische Eigenschaften	beschädigt	Probenanzahl
LASEROPTIK	nein	R > 80 % für 580 - 680 nm und HR für 900 - 1070 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe, HT für 1520 - 1640 nm bei Lichteinfall mit 45° zur Normalen der Probe	nein	3
	nein	OC für 580 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe	nein	3
	nein	HT für 930 - 980 nm und HR für 1030 - 1100 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe, HT für 1520 - 1640 nm bei Lichteinfall mit 45° zur Normalen der Probe	nein	3
	nein	HR für 1064 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe	nein	3
	ja	R < 0,5 % für 532 nm	nein	2
	ja	R < 1 % für 450 - 700 nm	nein	2
	ja	R < 0,5 % für 532 nm	ja	1
	ja	R < 1 % für 450 - 700 nm	ja	1
LLNL	nein	AR für 580 nm	nein	3
THORLABS	nein	T > 90 % für 300 - 1300 nm	nein	3

Mit Elektronenstrahldeposition (EBD) beschichtete Fenster

Die EBD ist in Abbildung 4.2 schematisch dargestellt. Sie beruht auf der Verdampfung des Beschichtungsmaterials, des sogenannten Target-Materials, mit Hilfe einer Elektronenkanone. Die von der Kanone emittierten Elektronen haben eine Energie von 2 bis 10 keV [Low11] und bilden einen Emissionsstrom von bis zu 500 mA [Nat09]. Sie werden durch ein magnetisches Querfeld vertikal abgelenkt und so auf das gekühlte Target-Material geführt. Dadurch wird das Target-Material auf etwa 2000°C erwärmt und verdampft. Die verdampften Atome haben eine Energie von nur etwa 0,1 eV [Hil04], damit sie keine Strahlungsschäden an den Fenstern hervorrufen.

Da der Prozess in einer Vakuumkammer stattfindet, steigt das Target-Material in einer Wolke in Richtung der zu beschichtenden Fenster auf. Diese sind an der sogenannten Katolte angebracht, die sich während des Prozesses dreht, um eine gleichmäßige Beschichtung zu erzeugen. Hier kondensiert das Beschichtungsmaterial meist spaltenförmig mit vielen

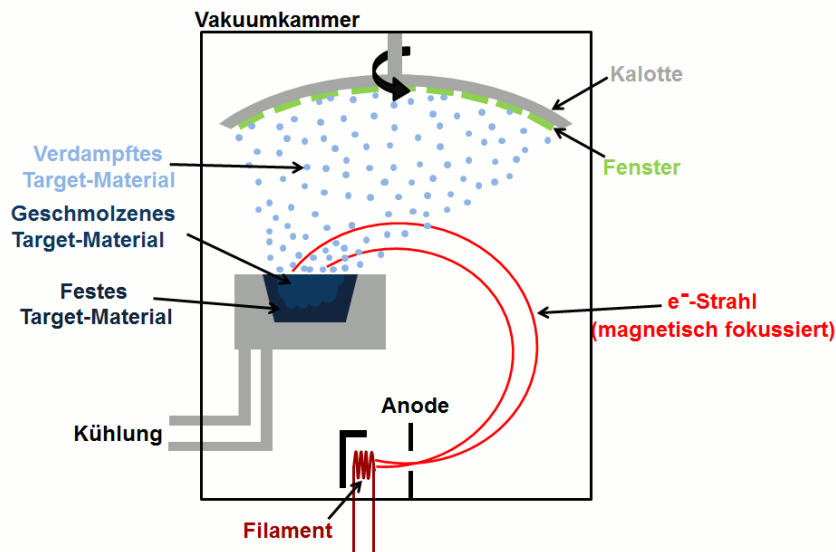


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Herstellung einer Beschichtung mittels EBD. Im Filament, dem Glühfaden einer Glühkathode, werden Elektronen erzeugt, die zur Anode hin beschleunigt und durch ein magnetisches Feld auf das Target-Material gelenkt werden. Das Target-Material wird durch die Elektronen verdampft und steigt zur sich drehenden Kalotte auf, an der die Fenster befestigt sind. Der Beschichtungsprozess findet innerhalb einer Vakuummkammer statt, in der Temperaturen von mehr als 250°C herrschen [Low11] (eigene Darstellung nach [Low11, Hil04, Tra07, Nat09]).

Leerräumen zwischen den einzelnen Spalten, weshalb die Dichte bei diesem Verfahren relativ gering ist, verglichen mit dem später erklärten IBS. Auch der Einbau von Feuchtigkeit kann durch diese Art von Wachstum gefördert werden [Tra07].

Während des gesamten Prozesses wird die optische Dicke, also die Eigenschaft, wie gut das Licht die Beschichtung passieren kann, über Transmissions- und Reflexionsmessungen kontrolliert. Die physikalische Dicke wird über einen Schwingquarz, der seine Frequenz abhängig von der auf ihm abgeschiedenen Menge an Beschichtungsmaterial ändert, gemessen.

Um der Zersetzung von Oxiden während der Verdampfung entgegenzuwirken, wird deren Deposition meist in einer Sauerstoffatmosphäre durchgeführt, die einige 10^{-4} mbar beträgt. Durch die Zugabe eines Inertgases, eines reaktionsträgen Gases wie beispielsweise Argon, können die Eigenschaften der späteren Beschichtung ebenfalls verändert werden [Nat09].

In Anhang B sind einige physikalische (siehe Tabelle B.1) und optische Eigenschaften (siehe Tabelle B.2) für unterschiedlich hergestellte SiO₂-Beschichtungen, wie sie im Experiment vorkommen, zusammengetragen. Bei einem Vergleich der Daten der Beschichtungen fällt auf, dass mittels EBD hergestellte Proben die geringste Packungsdichte der von LASER-OPTIK bereitgestellten Proben aufweisen. Dies könnte nach Kapitel 4.2.1 auf eine höhere Schadensanfälligkeit hindeuten. Zudem wurde für diese Art von Beschichtung die geringste Laserschadensschwelle von nur etwa 2,5 bis 5 J/cm² bei 355 nm gefunden. Insgesamt kann sich die EBD in keiner der ausgewählten optischen Eigenschaften gegenüber den anderen Beschichtungsverfahren hervorheben. Damit sind mittels EBD hergestellte Beschichtungen wahrscheinlich am wenigsten für die Verwendung im KATRIN-Experiment geeignet.

Die mit EBD beschichteten, nicht eingeschweißten Proben werden mit der arabischen Ziffer

4 gekennzeichnet. Eine Fotografie einer solchen Probe ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Sie weisen folgende Eigenschaften auf:

- Optisches Verhalten: $R > 80\%$ für 580 - 680 nm und HR für 900 - 1070 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe, HT für 1520 - 1640 nm bei Lichteinfall mit 45° zur Normalen der Probe
- Anzahl beschichteter Seiten: eine Seite (Rückseite mit Antireflexionsbeschichtung)
- Probenmaße: $\varnothing$ 25 mm, 1 mm Dicke
- Fenstermaterial: Q2 von SICO [SIC11]
- Gesamtschichtdicke aller Schichten : 6042 nm
- Gesamtschichtdicke der niedrigbrechenden Schichten: 3709 nm
- Gesamtschichtdicke der hochbrechenden Schichten: 2333 nm
- hochbrechendes Material: Nb_2O_5 mit $n = 2,33$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnschicht) [Ric01]
- niedrigbrechendes Material: SiO_2 mit $n = 1,48$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnschicht) [Ric01]



Abbildung 4.3: Fotografie einer von der Firma LASEROPTIK mittels EBD beschichteten Probe. Die gezeigte Probe ist in die Probenhalterung eingefasst. Die Strukturen innerhalb des Fensters rühren von der Unterlage her, auf der die Probe während des Fotografierens lag.

Mit Ionenstrahlgestützter Deposition (IAD) beschichtete Fenster

Die IAD basiert auf der EBD, es wird jedoch zusätzlich eine Ionenquelle eingesetzt (siehe Abbildung 4.4) und die Temperaturen liegen weitaus höher, nämlich bei mehr als 400°C [Poo06]. Die Ionenquelle besteht aus einer geheizten Kathode und einer Anode. Aufgrund der Potenzialdifferenz zwischen Anode und Kathode findet zwischen diesen eine Gasentladung statt. Diese Entladung erzeugt ein Plasma (also ein Gas, dessen Atome in Ionen und Elektronen aufgespalten worden sind) aus Argon- und Sauerstoffionen, die eine Energie von mehreren 10 eV bis zu einigen 100 eV besitzen [Tra07]. Mit den so erzeugten Ionen wird die Oberfläche der wachsenden Beschichtung kontrolliert beschossen, wobei ein starker Energie- und Impulsaustausch zwischen den Ionen und den Targetatomen stattfindet.

Auf diese Weise können eine bessere Oxidation und eine dichtere Struktur der Beschichtung erzeugt werden [Low11]. Aufgrund der dichteren Struktur kann weniger Wasser in die

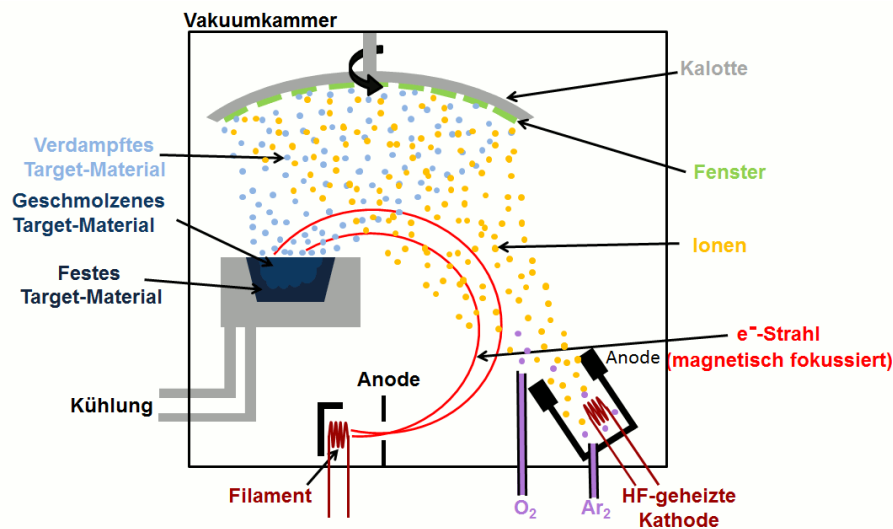


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Herstellung einer Beschichtung mittels IAD. Vergleicht man diese Abbildung mit Abbildung 4.2 so wird deutlich, dass nur eine Plasmaquelle im Gegensatz zur EBD hinzugekommen ist. Diese sorgt für einen kontrollierten Beschuss der heranwachsenden Beschichtung mit Ionen (eigene Darstellung nach [Low11, Poo06, Tra07, Pau06]).

Beschichtung eingebaut werden. Hieraus resultiert ein geringerer thermischer Drift, also eine geringere Veränderung der optischen Eigenschaften aufgrund von Temperaturänderungen. Ist die Energie der Ionen jedoch deutlich höher als einige 100 eV, können Defekte in die Struktur der Beschichtung eingearbeitet werden [Tra07].

Auch die physikalischen und optischen Eigenschaften mittels IAD hergestellter Beschichtungen sind in Anhang B enthalten. Besonders auffällig ist bei dieser Art der Beschichtung der geringe OH-Anteil. Dies könnte zu einer geringeren Verdichtung der Beschichtung aufgrund von ionisierender Strahlung führen (siehe [Bus10]). Zudem zeichnen sich die mittels IAD hergestellten SiO₂-Beschichtungen durch den im Vergleich zu den anderen Beschichtungen größten Brechungsindex aus.

Proben, die mittels IAD beschichtet worden sind, werden mit Hilfe der arabischen Ziffer 1 gekennzeichnet. Eine dieser Proben ist in Abbildung 4.5 gezeigt. Sie weisen folgende Eigenschaften auf:

- Optisches Verhalten: Output Coupler (OC) für 580 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe
- Anzahl beschichteter Seiten: eine Seite
- Probenmaße: $\varnothing$ 25 mm, 1 mm Dicke
- Fenstermaterial: Q2 von SICO [SIC11]
- Gesamtschichtdicke aller Schichten : 1195 nm
- Gesamtschichtdicke der niedrigbrechenden Schichten: 699 nm
- Gesamtschichtdicke der hochbrechenden Schichten: 496 nm

- hochbrechendes Material: HfO_2 mit $n = 2,09$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnschicht) [Ric01]
- niedrigbrechendes Material: SiO_2 mit $n = 1,48$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnschicht) [Ric01]

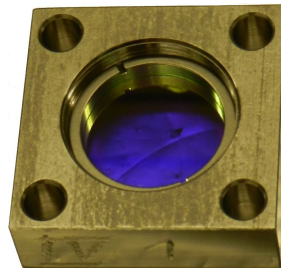


Abbildung 4.5: Fotografie einer mittels IAD beschichteten Probe. Die Fotografie zeigt die in die Probenhalterung eingefasste Probe. Hinter der Probe ist die Ablagefläche zu erkennen.

Mit Ionenstrahlsputtern (IBS) beschichtete Fenster

Das IBS ist im Gegensatz zu den beiden bereits beschriebenen Beschichtungsverfahren ein Sputterprozess. Das bedeutet, dass die Beschichtungsatome mit Hilfe von hochenergetischen Ionen aus dem Target-Material herausgeschlagen werden. Zur Erzeugung der Ionen dient eine Hochfrequenz-Ionenkanone, in der in die Kanone eingelassene Argonatome ionisiert werden. Durch die Umpolung des elektrischen Feldes werden die erzeugten Argonionen und Elektronen abwechselnd zu beiden Seiten hin beschleunigt. Da das Verhältnis der Ladung zur Masse der Argonionen deutlich geringer ist, als das der Elektronen, sind die Ionen deutlich träger und können dem elektrischen Feld ab einer bestimmten Frequenz nicht mehr folgen. Die Elektronen hingegen oszillieren weiterhin im elektrischen Feld und stoßen dabei mit den Argonionen zusammen [Mat10]. Letztere erreichen so Energien im Bereich von 1,5 keV [Tra07]. Treffen diese Ionen auf das Target-Material, werden Atome aus diesem herausgeschlagen. Die Target-Atome haben dabei eine Energie von bis zu 100 eV [Tra07]. Da auch das IBS innerhalb einer Vakuumkammer stattfindet, in der lediglich Drücke von etwa 10^{-4} mbar [Tra07] herrschen, steigen die ausgeschlagenen Target-Atome in einer Wolke auf und bilden auf den Fenstern eine Beschichtung.

Innerhalb der Vakuumkammer herrschen Temperaturen von unter 100°C. Dies ermöglicht die Erzeugung von Schichten, die einen sehr geringen mechanischen Stress aufweisen. Das IBS zeichnet sich zudem durch eine fast defektfreie Mikrostruktur und geringe Einlagerungen von Fremdatomen aus [Low11].

Zur Erzeugung von Oxidschichten sowie nicht absorbierenden Schichten wird eine zweite Ionenquelle eingesetzt, die Sauerstoffionen liefert. Wird eine solche zweite Ionenquelle verwendet, so spricht man im Allgemeinen von "dual ion beam sputtering" (DIBS). Das Verfahren des DIBS ist schematisch in Abbildung 4.6 dargestellt. Von der Firma LASER-OPTIK wird jedoch nicht zwischen IBS und DIBS unterschieden.

Vergleicht man die physikalischen Eigenschaften der mittels IBS hergestellten Beschichtungen mit denen der anderen Beschichtungsverfahren, fällt der relativ große Druckstress von etwa 400 MPa auf [KS04]. Weiterhin weisen die mit IBS aufgetragenen Schichten die

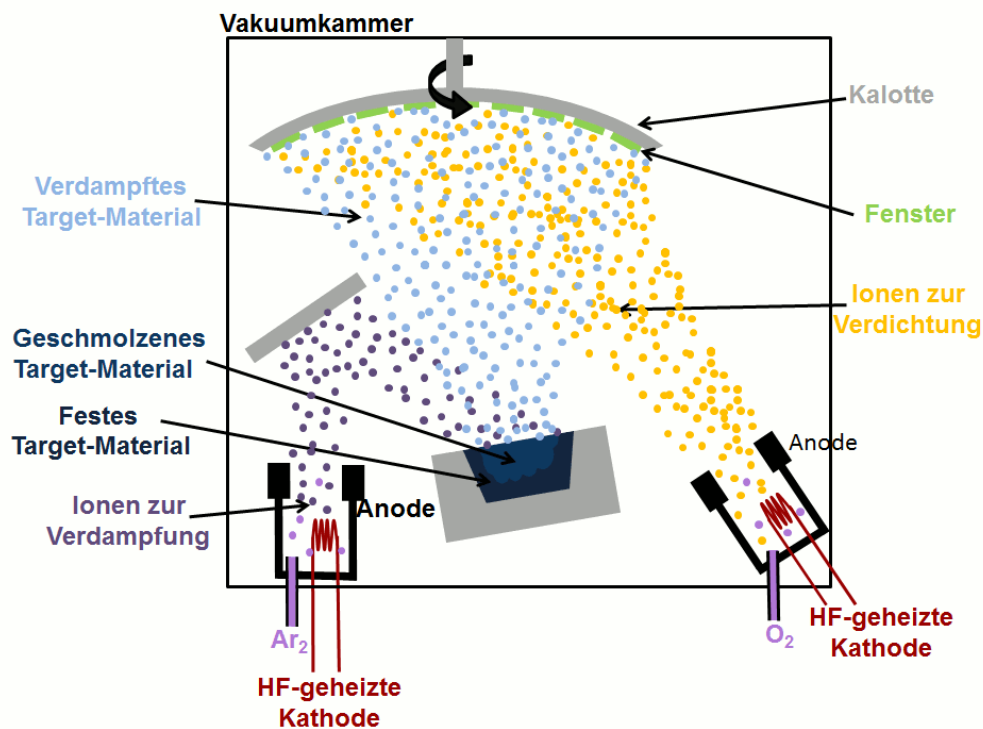


Abbildung 4.6: Schematische Darstellung der Herstellung einer Beschichtung mittels DIBS. Die Verdampfung des Target-Materials findet hier durch hochenergetische Ionen statt, die in einer Hochfrequenz-Ionenkanone erzeugt werden. Mit Hilfe der zweiten Ionenkanone werden Sauerstoffionen produziert, mit denen die Oberfläche der heranwachsenden Beschichtung beschossen wird. Bei dem DIBS muss daher zwischen den Sputterionen, also den Argonionen, die lila (dunkel) dargestellt sind, und den Sauerstoffionen, die der Oxidation dienen und gelb (hell) dargestellt sind, unterschieden werden (eigene Darstellung nach [Low11, Tra07, Pau06]).

geringste Oberflächenrauigkeit der in diesem Experiment verwendeten Beschichtungen auf. Auch in Bezug auf die optischen Eigenschaften kann sich dieser Schichttyp hervortun. So erreichen die Beschichtungen sowohl bei der Transmission als auch beim Extinktionskoeffizienten, einem Maß für die Abschwächung von Licht innerhalb eines Mediums, die besten Werte. Daher wird vermutet, dass die mit IBS beschichteten Proben die geforderten optischen Eigenschaften für LARA zumindest vor der Beaufschlagung bei weitem erfüllen. Die Zahlenwerte zu den eben genannten Eigenschaften sowie die zugehörigen Quellenangaben können in Anhang B nachgelesen werden.

Durch die Firma LASEROPTIK werden dem Experiment optische Fenster zur Verfügung gestellt, die mit IBS beschichtet worden sind und deren Probenhalterungen mit der arabischen Ziffer 3 gekennzeichnet werden. Eine so eingefasste Probe ist in Abbildung 4.7 zu sehen. Die Beschichtungen haben folgende Eigenschaften:

- Optisches Verhalten: HT für 930 - 980 nm und HR für 1030 - 1100 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe, HT für 1520 - 1640 nm bei Lichteinfall mit 45° zur Normalen der Probe
- Anzahl beschichteter Seiten: eine Seite

- Probenmaße: $\varnothing$ 25 mm, 1 mm Dicke
- Fenstermaterial: Q2 von SICO [SIC11]
- Gesamtschichtdicke aller Schichten : 6314 nm
- Gesamtschichtdicke der niedrigbrechenden Schichten: 3591 nm
- Gesamtschichtdicke der hochbrechenden Schichten: 2723 nm
- hochbrechendes Material: Ta_2O_5 mit $n = 2,15$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnschicht) [Ric01]
- niedrigbrechendes Material: SiO_2 mit $n = 1,48$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnschicht) [Ric01]

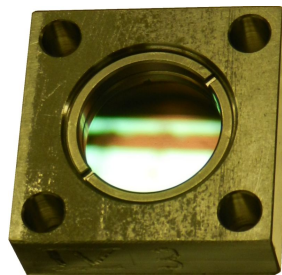


Abbildung 4.7: Fotografie einer mittels IBS beschichteten Probe. Die Fotografie zeigt die in die Probenhalterung eingefasste Probe. Hinter der Probe ist die Ablagefläche zu erkennen.

Mit Magnetronspattern (MS) beschichtete Fenster

Das MS beruht auf einer Kathodenkonstruktion, die so angeordnete Magnete enthält, dass sich das magnetische und das elektrische Feld kreuzen. In Abbildung 4.8 kann man erkennen, dass hierfür Magnete auf der Oberseite der Kathode angebracht sind. Auf der Unterseite hingegen befindet sich das Target-Material. Umgeben ist die Anordnung von einer Vakuumkammer, die mit einem Inertgas wie beispielsweise Argon gefüllt ist [Low11].

An der Kathodenunterseite kommt es aufgrund des magnetischen Feldes zu einer Anhäufung von Elektronen. Diese bewegen sich gemeinsam mit den bereits vorhandenen Argonionen auf Schraubenbahnen auf das Target-Material zu. Da die Elektronen jedoch einen kleineren Radius in ihrer Flugbahn beschreiben als die Ionen, stoßen sie immer wieder mit Argonatomen, die ebenfalls ionisiert werden, zusammen. Auf diese Weise erhöht sich die Anzahl an Sputterionen und die Abtragung des Target-Materials deutlich [Nat09]. Dieser Effekt wird weiterhin verstärkt durch Sekundärelektronen, die beim Auftreffen der Ionen auf das Target-Material entstehen.

Vor dem Target-Material bildet sich auf diese Weise ein Plasma aus Argonionen, das zum Target hin beschleunigt wird und dort Atome ausschlägt. Innerhalb der Vakuumkammer, in der ein Druck von etwa 10^{-3} mbar und eine Temperatur von unter 100°C herrscht, gelangt das verdampfte Target-Material zur sich drehenden Kalotte, auf der die Fenster montiert sind. Zur Herstellung einer Oxidschicht werden auch beim MS Sauerstoffatome zur Atmosphäre der Vakuumkammer hinzugefügt.

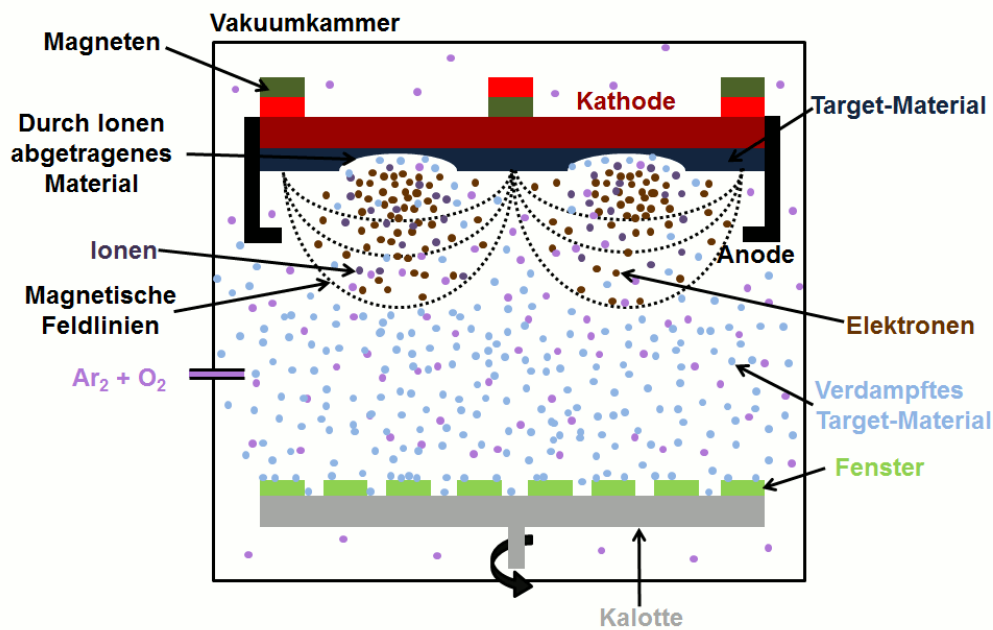


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der Herstellung einer Beschichtung mittels MS. Nachdem die Beschichtungsatome aus dem Target-Material herausgeschlagen worden sind, werden sie durch das elektrische Feld hin zu den Fenstern beschleunigt (eigene Darstellung nach [Low11, Tra07, Cuo89, Nat09, Ebe10]).

Vorteile dieses Beschichtungsverfahrens sind vor allem eine hohe Qualität der Schichten, da die Fenster und das Plasma räumlich getrennt sind. Zudem zeichnen sich die Beschichtungen durch eine hohe Kratz- und Haftfestigkeit sowie die Tatsache aus, dass sie beinahe keinen Temperaturdrift der optischen Eigenschaften aufweisen [Low11]. Weitere Eigenschaften können dem Anhang B entnommen werden. Hier ist besonders hervorzuheben, dass die Packungsdichte einer mittels MS aufgetragenen Beschichtung mit einem Wert von nahezu 1 [Ebe10] die höchste Packungsdichte aller verwendeten Beschichtungen ist. Daher könnte eine solche Beschichtung die am besten geeignete der in diesem Experiment untersuchten Beschichtungen für die Bedingungen des KATRIN-Experiments sein. Allerdings darf nicht außer Acht gelassen werden, dass die Schichten auch den kleinsten Extinktionskoeffizienten besitzen, was auf eine hohe Absorption hindeutet.

Die Halterungen der mit MS hergestellten Proben werden mit der arabischen Ziffer 2 gekennzeichnet (siehe Abbildung 4.9) und haben folgende Charakteristika:

- Optisches Verhalten: HR für 1064 nm bei senkrechtem Lichteinfall auf Probe
- Anzahl beschichteter Seiten: eine Seite
- Probenmaße: $\varnothing$ 25 mm, 1 mm Dicke
- Fenstermaterial: Q2 von SICO [SIC11]
- Gesamtschichtdicke aller Schichten : 10182 nm
- Gesamtschichtdicke der niedrigbrechenden Schichten: 5505 nm
- Gesamtschichtdicke der hochbrechenden Schichten: 4677 nm

- hochbrechendes Material: Al_2O_3 mit $n = 1,62$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnsfilm) [Ric01]
- niedrigbrechendes Material: SiO_2 mit $n = 1,48$ bei 492 nm (für gesputterten Dünnsfilm) [Ric01]

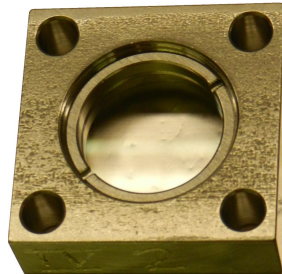


Abbildung 4.9: Fotografie einer mittels MS beschichteten Probe. Die Fotografie zeigt die in die Probenhalterung eingefasste Probe. Hinter der Probe ist die Ablagefläche zu erkennen.

Mit Sol-Gel-Verfahren beschichtete Fenster

Das vom LLNL zur Beschichtung verwendete Sol-Gel-Verfahren beruht im Gegensatz zu den bisher beschriebenen Verfahren nicht auf der Verdampfung bzw. dem Herausschlagen von Atomen aus einem massiven Material, sondern auf Hydrolyse und späterer Destillation, deren Abläufe von dem jeweiligen Beschichtungsmaterial abhängen. Im Folgenden wird die Herstellung einer Beschichtung aus SiO_2 beschrieben, die in Abbildung 4.10 verbildlicht wird.

Als Ausgangsmaterial für die Hydrolyse dient $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$, eine Flüssigkeit, die in Wasser verdünnt wird. Hierdurch bildet sich das Sol, eine Flüssigkeit aus Wasser und Ethanol in der $\text{Si}(\text{OH})_4$ verteilt ist.

Gibt man hierzu eine Lauge als Katalysator, findet innerhalb kürzester Zeit und bei Raumtemperatur die Umwandlung des Sol zum Lyogel statt [Sep08]. Letzteres ist eine Suspension, also eine Flüssigkeit in der ein Feststoff, in diesem Fall SiO_2 , fein verteilt ist. Das besondere an dem enthaltenen Feststoff ist, dass dieser keine organischen Reststoffe mehr enthält. Zudem bildet er ein Netzwerk innerhalb der Flüssigkeit aus.

Im Destillationsprozess wird dieses Lyogel nun per Rotations- oder Tauchbeschichtungsprozess auf ein Fenster aufgetragen (für nähere Informationen zu diesen Beschichtungsverfahren siehe [Bac97]). Nach einer gewissen Zeit ist die gesamte Flüssigkeit verdampft und es bleibt eine poröse Beschichtung aus dem zuvor im Lyogel geformten Netzwerk zurück, das sogenannte Xerogel. Da die Güte der Beschichtung in hohem Maße von der Güte der Oberfläche des Fensters abhängt, sind oft mehrere Beschichtungsvorgänge nötig um ein gutes Ergebnis zu erzielen [Fel10].

Mittels Sol-Gel-Verfahren hergestellte Beschichtungen haben nur eine geringe Packungsdichte von 0,5 [Tho86]. Sollte eine geringe Packungsdichte Auswirkungen auf den Schaden und dessen Entstehung haben, müsste bei diesen Proben ein Schaden besonders schnell eintreten. Dagegen kann sich der relativ hohe OH- und H-Anteil in den Schichten in Bezug auf eine Verdichtung aufgrund von ionisierender Strahlung positiv auswirken. So wird in

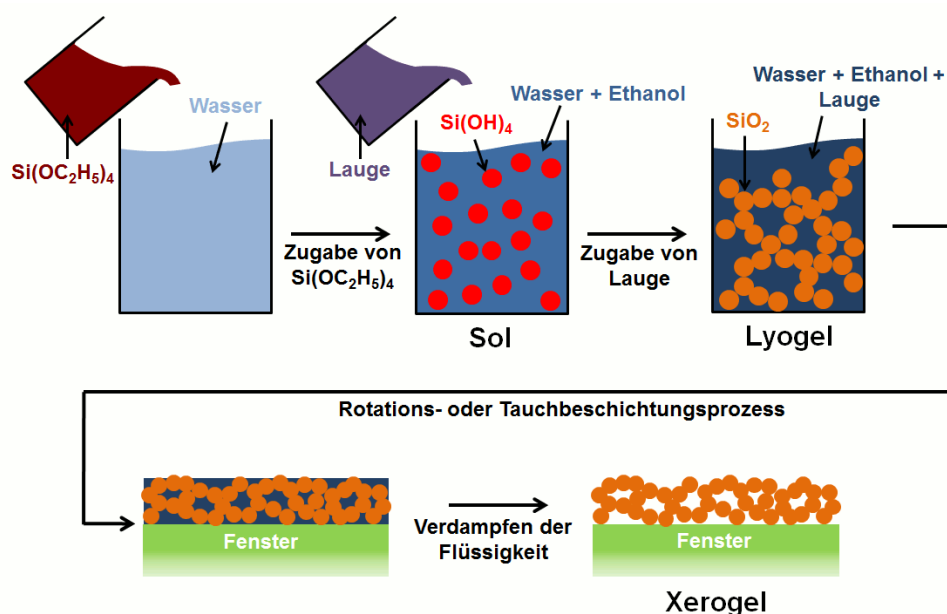


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung der Herstellung einer Beschichtung mittels Sol-Gel-Verfahren Die einzelnen Bearbeitungsschritte einer Sol-Gel Beschichtung mit den Zwischenstationen Sol, Lyogel und Xerogel sind von oben links nach unten rechts dargestellt (eigene Darstellung nach [Tho86, Sep08, Fel10]).

[Bus10] eine geringere Verdichtung bei höherem OH-Gehalt des SiO_2 beobachtet. Weiterhin zeichnen sich die Sol-Gel-Schichten dadurch aus, dass sie die einzigen SiO_2 -Schichten im Experiment sind, in denen Zugstress herrscht. Diese Angaben können in Anhang B, Tabelle B.1, nochmals nachgelesen werden. Zudem sind hier die ausgewählten optischen Eigenschaften in Tabelle B.2 aufgeführt. Hier weist die Sol-Gel-Beschichtung mit einem Minimalwert von 1,42 den kleinsten Brechungsindex auf [Bac97].

Die vom LLNL beschichteten Proben sind auf Fenster der Firma THORLABS aufgetragen. Diese Fenster werden im Experiment auch als unbeschichtete Proben verwendet. Die Probenhalterungen der mittels Sol-Gel-Verfahren beschichteten Fenster werden mit der arabischen Ziffer 5 gekennzeichnet (siehe Abbildung 4.11).

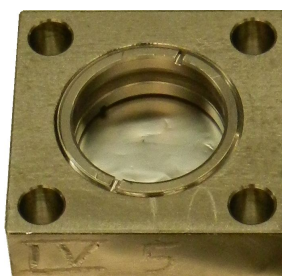


Abbildung 4.11: Fotografie einer mittels Sol-Gel-Verfahren beschichteten Probe. Die Fotografie zeigt die in die Probenhalterung eingefasste Probe. Hinter der Probe ist die Ablagefläche zu erkennen.

Unbeschichtete Fenster

Die unbeschichteten Fenster sind WG41050 von THORLABS und bestehen aus synthetischem Quarzglas. Eine Fotografie einer solchen unbeschichteten Probe ist in Abbildung 4.12 gezeigt. Ihre Probenhalterungen werden während des Experiments mit der arabischen Ziffer 6 gekennzeichnet. Einige Eigenschaften der Fenster sind im folgenden zusammengefasst:

- Optisches Verhalten: $T > 90\%$ für 300 - 1300 nm
- Anzahl beschichteter Seiten: keine Seite
- Probenmaße: $\varnothing$ 25 mm, 5 mm Dicke
- Fenstermaterial: WG41050 von THORLABS
- Oberflächenebenheit: $\lambda/10$ bei 633 nm, also 63,3 nm

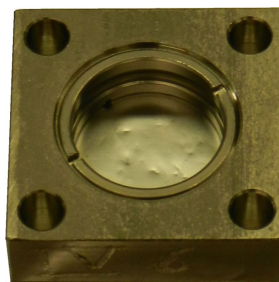


Abbildung 4.12: Fotografie einer unbeschichteten Probe. Die Fotografie zeigt die in die Probenhalterung eingefasste Probe. Hinter der Probe ist die Ablagefläche zu erkennen.

Da nun alle nicht eingeschweißten Proben und ihre Beschichtungen beschrieben worden sind, werden im nächsten Abschnitt die eingeschweißten Proben vorgestellt.

4.2.3 In CF16-Flansch eingeschweißte Fenster

Wie bereits in Abschnitt 4.2.1 erläutert, werden in dem Experiment in einen CF16-Flansch eingeschweißte Fenster verwendet, um die Reproduzierbarkeit und den Verlauf der aufgetretenen Beschädigung zu untersuchen.

Der Herstellungsprozess bei den in diesem Abschnitt beschriebenen Fenstern ist folgender: Zunächst werden die Fenster aus synthetischem Quarzglas per Diffusionsschweißen von der United Kingdom Atomic Energy Authority (UKEAE)⁵ in den Flansch eingefasst. Danach werden sie von LASEROPTIK mit auf den Anwendungszweck optimierten Beschichtungen mittels EBD versehen, deren Reflexionsspektren in Anhang C eingesehen werden können. Da der Vorgang des Diffusionsschweißens für alle eingeschweißten Proben der gleiche ist, wird dieser nun kurz erklärt, bevor in den folgenden Abschnitten auf die verschiedenen Proben selbst eingegangen wird.

⁵United Kingdom Atomic Energy Authority, Culham Science Centre, Abingdon Oxfordshire, OX14 3DB, United Kingdom



Abbildung 4.13: Fotografie eingeschweißter Laser- und Raman-Fenster. Links: Laser-Fenster. Rechts: Raman-Fenster. Beide Fenster sind so fotografiert, dass man die der LARA-Zelle zugewandte Seite sehen kann. Weiterhin wird deutlich, dass die Fenster nicht komplett sichtbar sind, sondern der Rand der konischen Einfassung diese zum Teil bedeckt. Aufgrund dieser Einfassung können die Fenster nicht gleichmäßig bis zum Rand hin beschichtet werden. Die Einfassung wirkt sich zudem in Bezug auf die Untersuchungsmethoden aus (siehe 4.5).

Das Diffusionsschweißen bietet die Möglichkeit, Gläser mit Metallen haftfest zu verbinden, für den Fall dass die Materialien mindestens teilweise miteinander mischbar sind und eine hohe Oberflächenqualität aufweisen. Während des unter Umständen mehrere Stunden dauernden Prozesses werden die Materialien Druck und Temperaturen im Bereich von 80 % bis 90 % der Schmelztemperatur desjenigen Materials, das die niedrigere Schmelztemperatur aufweist, ausgesetzt [Bor05]. Hierdurch bildet sich eine adhäsive Bindung, also eine Bindung die auf der molekularen Wechselwirkung der Materialien beruht. Diese ermöglicht die Diffusion zwischen den beiden Materialien wodurch eine Verbindung geschaffen wird. Beim Diffusionsschweißen der LARA-Fenster im Speziellen war eine zusätzliche Zwischenschicht aus Tantal nötig, um die unterschiedlichen Expansionskoeffizienten der Fenster und der Flansche auszugleichen [UKK97].

Weiterhin gilt für alle Proben, dass die Antireflexionsbeschichtungen nicht vollkommen bis zum Rand der Einfassung reichen, da die Fenster bereits eingeschweißt waren, als sie beschichtet wurden.

Neue Fenster mit auf 532 nm optimierter Antireflexionsbeschichtung

Die Fenster der LARA-Zelle, durch die der Laserstrahl in die Zelle hinein und wieder heraus gelangt, sind mit einer auf die Wellenlänge des Lasers optimierten Antireflexionsbeschichtung versehen. Daher zeigen die Proben bei 532 nm eine Reflexion, die nahe 0% liegt (siehe Anhang C, Abbildung C.5). In Abbildung 4.13 ist exemplarisch ein solches eingeschweißtes Fenster, von denen insgesamt zwei im Experiment verwendet werden, gezeigt. Dieser Probentyp wird im Folgenden als Laser-Fenster bezeichnet.

Neue Fenster mit Breitbandantireflexionsbeschichtung

Die eingeschweißten Fenster, durch die das gestreute Licht aus der LARA-Zelle heraus gelangt, ist mit einer Breitbandentspiegelung versehen. Sie weist im Bereich von 450 nm bis 700 nm eine Reflexion kleiner 1 % auf (siehe Anhang C, Abbildung C.6). Auch hier steht die Abbildung 4.13 nur exemplarisch für die beiden im Experiment verwendeten Proben, die im Folgenden als Raman-Fenster bezeichnet werden.

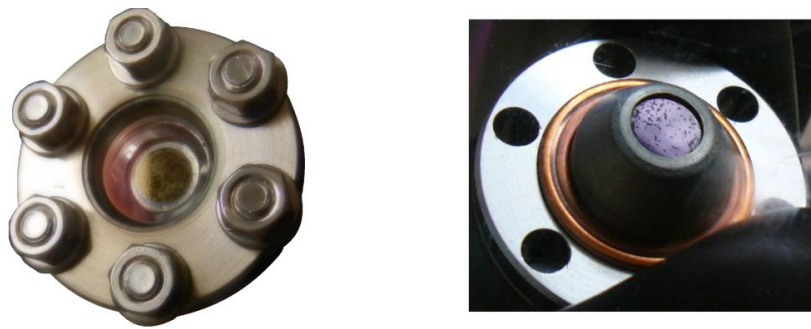


Abbildung 4.14: Fotografie bereits beschädigter, eingefasster Fenster Links: Das Foto des beschädigten Laser-Fensters ist direkt an der Zelle entstanden, weshalb die Schrauben montiert sind und die der Zelle abgewandte Seite gezeigt ist. Die Beschädigung hebt sich gegenüber dem dunkleren Fenster grüngelb ab. Rechts: Abgebildet ist ein beschädigtes Raman-Fenster, dessen Vorderseite in die Zelle gezeigt hat. Der orangefarbene Ring, der um den Konus zu erkennen ist, ist die Kupferdichtung des Flansches. Hier setzt sich der Schaden ebenfalls dunkler von den unbeschädigten Teilen des Fensters ab.

Bereits beschädigte Fenster der LARA-Zelle

Zusätzlich zu den vier neuen, eingeschweißten Proben werden zwei bereits beschädigte Proben verwendet, je eines von jeder Beschichtungsart. In Abbildung 4.14 sind die beiden beschädigten Fenster der LARA-Zelle, die nicht im Experiment verwendet werden, abgebildet.

In diesem Kapitel sind beide Arten von Proben, die nicht eingeschweißten und die eingeschweißten, beschrieben worden. Dabei ist auf jede verwendete Beschichtung näher eingegangen worden.

Nun stellt sich die Frage, wie eine Beaufschlagung der Proben mit Tritium sicher realisiert werden kann. Die Antwort hierzu wird im folgenden Kapitel gegeben.

4.3 Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung von optischen Fenstern mit Tritium

Dieser Abschnitt befasst sich mit der Beaufschlagung der Proben, also dem Umgeben der Proben mit einem Tritiumgasgemisch. Dabei wird zunächst auf die Behälter eingegangen, in denen die Proben sicher in dem Tritiumgasgemisch gelagert werden. Danach wird die Anlage betrachtet, die die Beaufschlagung vornimmt und alle damit verbundenen Arbeitsschritte leistet.

4.3.1 Probenbehälter mit Vorrichtung zur Fensteraufnahme

Zunächst werden Vorkehrungen diskutiert, die getroffen werden müssen, um die Proben sicher mit Tritium zu beaufschlagen. Damit ist zum einen gemeint, dass bei der Beaufschlagung kein radioaktives Gas entweichen darf, zum anderen dass die Proben gegen Zerstörung gesichert werden müssen. Natürlich stellt die Zerstörung der Proben auch ein Sicherheitsrisiko im Sinne des ersten Punktes dar. Sollte eine der Proben während des

Experiments zerbrechen, so stellt dies eine potenzielle Gefahr dar, da die entstehenden Scherben einen Boxenhandschuh zerstören können. Dies bedeutet eine ungewollte Öffnung der sogenannten zweiten Hülle. Sie dient dem Experimentator als Schutz vor aus einer Versuchsanlage austretendem radioaktivem Gas und der potenziell kontaminierten Boxenluft.

Um das Austreten eines tritiumhaltigen Gasgemisches während der Beaufschlagung der Proben zu verhindern, werden sogenannte Probenbehälter genutzt. In den Probenbehältern werden die Proben somit in einem Tritiumgasgemisch gelagert. Bei der Fertigung dieser sind die Bestimmungen der "Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen" (TLA) des Tritiumlabors Karlsruhe zu beachten. Diese besagen unter anderem, dass die Probenbehälter aus Edelstahl gefertigt sein müssen. Zudem muss zu jedem Bauteil ein Materialzeugnis nach der DIN EN 10204 vorhanden sein. Die Leckrate jedes Probenbehälters darf $1 \cdot 10^{-9}$ mbar l/s und die integrale Leckrate $1 \cdot 10^{-8}$ mbar l/s nicht überschreiten. Der Lecktest, mit dem die erforderlichen Leckraten nachgewiesen werden, erfolgt kurz vor Einbau der Messvorrichtung in die Handschuhbox. Des Weiteren muss die Ausführung der Probenbehälter derart sein, dass metallische Dichtungen, wie zum Beispiel VCR⁶- und CF⁷-Dichtungen, verwendet werden können. Aufgrund dieser Rahmenbedingungen werden die Probenbehälter aus Vakuumbauteilen der Firma VACOM⁸ gefertigt.

Da von jeder nicht eingeschweißten Probe insgesamt drei gleichartig beschichtete Proben und zusätzlich sechs eingeschweißte Proben vorhanden sind, werden insgesamt vier Probenbehälter benötigt, die jeweils sechs Proben aufnehmen. Drei der Probenbehälter werden nur nicht eingeschweißte Proben enthalten. Dabei kommt keine der Proben doppelt in einem Behälter vor, damit zu jedem Messzeitpunkt Information zu jedem Probentyp vorliegen. Der vierte Probenbehälter enthält nur eingeschweißte Proben.

Des Weiteren werden zwei Ausführungen von Probenbehältern genutzt. Beide sind in Abbildung 4.15 dargestellt. In den Probenbehältern mit Fenstern werden nur nicht eingeschweißte Fenster gelagert. Der Grund für die Verwendung von Probenbehältern mit Fenstern ist der, dass eine plötzlich eintretende Beschädigung bemerkt werden kann und so ein gezieltes Öffnen des Behälters außerhalb des eigentlichen Messplans möglich ist.

Die Befüllung der Probenbehälter mit dem Tritiumgasgemisch geschieht über ein VCR-Handventil. Um dieses an den Probenbehälter anbringen zu können, wird ein sonderangefertigter Reduzierflansch von CF auf VCR zum Verschließen des Behälters genutzt. Die VCR-Verbindung des Ventils wird zusätzlich über eine Swagelok-Sperrvorrichtung (siehe Abbildung 4.35, Seite 95) gegen versehentliches Aufdrehen gesichert.

Um die Proben in den Probenbehältern gegen Zerbrechen zu schützen, werden sie auf das sogenannte Gestänge aufgefädelt, das in Abbildung 4.16 dargestellt ist. Insgesamt gibt es drei Arten von Gestängen. In dem ersten werden nicht eingeschweißte Proben aufgenommen und im zweiten eingeschweißte. Die dritte Art von Gestänge ermöglicht es eine der nicht eingeschweißten Proben in dem Probenbehälter mit Fenster direkt zu betrachten. Hierfür wird diese Probe im 90° Winkel zu den anderen Proben in das Gestänge eingebracht (siehe Abbildung 4.17).

Bei der Fertigung der Teile für das Gestänge müssen drei Dinge beachtet werden. Zum einen dürfen keine scharfen Kanten mehr vorhanden sein, mit denen man die Handschuhe

⁶Markenname einer metallischen Dichtung der Firma SWAGELOK, Swagelok Company, 31400 Aurora Road, Solon, Ohio, 44139, USA

⁷ConFlat-kompatibler Standard für Flansche nach ISO3669 Norm

⁸VACOM, Vakuum Komponenten & Messtechnik GmbH, Gabelsbergerstraße 9, 07749 Jena



Abbildung 4.15: Fotografie der beiden Probenhalterungen. An beiden abgebildeten Probenbehältern ist noch kein Handventil angebracht. Links: Probenbehälter, der aus einem CF63-Rohrstück gebaut worden ist. Die untere Rohrseite ist zugeschweißt worden, um Gewicht zu sparen. Rechts: Probenbehälter, der aus einem CF63-Kreuzstück gefertigt worden ist. Auch hier ist der Boden zur Gewichtsreduktion verschweißt worden. An den kleineren CF40-Rohren sind Titan-Saphir-Fenster verbaut. Die Probenentnahme geschieht bei beiden Behältern über den an der Oberseite sichtbaren Flansch.

beschädigen kann. Zum anderen müssen Komponenten wie die Abstandshalter zwischen den Proben angebohrt werden um Bereiche die nicht gut evakuiert werden können zu vermeiden. Drittens müssen alle Teile des Gestänges nach der TLA im Ultraschallbad gereinigt werden, um später Verunreinigungen des Tritiumgasgemischs zu reduzieren. Alle Gestänge verfügen über einen Griff, der auch mit den Handschuhen einer Handschuhbox ein einfaches Entnehmen und Einbringen der Proben in den Probenbehälter ermöglicht.

Eine Übersicht über die in den vier Probenbehältern gelagerten Proben ist in Tabelle 4.2 zusammengestellt.

Mit den Probenbehältern und den Gestängen kann ein sicherer Umgang mit den mit Tritium beaufschlagten Proben gewährleistet werden. Weiterhin ungeklärt ist jedoch die Frage in welcher Handschuhbox die Beaufschlagung vorgenommen werden kann. Die Beantwortung wird im nächsten Abschnitt geleistet.

4.3.2 Die CAPER-Anlage zur Beaufschlagung der optischen Fenster mit Tritium

Die Handschuhbox, in die die Versuchseinrichtung zum Beaufschlagen der Proben mit Tritium eingebaut wird, muss einige Randbedingungen erfüllen. So sollen die Probenbehälter innerhalb der gleichen Handschuhbox mit Tritiumgas in der gewünschten Reinheit befüllt und wieder evakuiert werden können. Auch eine Lagerung aller Probenbehälter sollte aus Sicherheitsgründen in der Handschuhbox möglich sein, um Transporte der Probenbehälter, die mit einem Aktivitätsinventar von 10^{13} Bq gefüllt sind, zu vermeiden. Da die Probenbehälter in der Handschuhbox ebenfalls geöffnet werden, ist mit einem deutlichen Anstieg der Aktivität der Boxenluft zu rechnen (siehe Anhang E). Dieser Anstieg ist schneller abbaubar und deutlich besser handhabbar in einer inertisierten Box. Eine solche Box hat



Abbildung 4.16: CAD-Zeichnung zweier unterschiedlicher Gestänge. Links: Hier ist die Art von Gestänge abgebildet, in dem alle nicht eingeschweißten Proben parallel zueinander aufgefädelt sind. Es wird im Probenbehälter I verwendet. Rechts: Man erkennt in diesem Gestänge die um 90° gegenüber den anderen Proben gedrehte Probe. Diese Art von Gestänge wird in Probenbehälter III und IV verwendet.



Abbildung 4.17: Fotografie eines Gestänges vor und nach Einbau in den Probenbehälter. Links: Hier ist eine Fotografie eines Gestänges mit einer um 90° gedrehten Probe gezeigt. Rechts: Wird dieses Gestänge in einen Probenbehälter mit Fenster eingebaut, hat man durch die Fenster des Probenbehälters einen guten Blick auf die um 90° gedrehte Probe.

Tabelle 4.2: Zusammenfassung der Kennzeichnung von Probenbehälter und Proben. P = fensterloser Probenbehälter, PF = Probenbehälter mit Fenster

Probenbehälterziffer	Probenziffer	Probenbehältertyp	Beschichtung
I	1	P	mit IAD produziert
I	2	P	mit MS produziert
I	3	P	mit IBS produziert
I	4	P	mit EBD produziert
I	5	P	mit Sol-Gel-Verfahren produziert
I	6	P	keine Beschichtung
II	I	P	neues Laser-Fenster
II	II	P	neues Laser-Fenster
II	III	P	neues Raman-Fenster
II	III	P	neues Raman-Fenster
II	keine	P	beschädigtes Raman-Fenster
II	keine	P	beschädigtes Laser-Fenster
III	1	PF	mit IAD produziert
III	2	PF	mit MS produziert
III	3	PF	mit IBS produziert
III	4	PF	mit EBD produziert
III	5	PF	mit Sol-Gel-Verfahren produziert
III	6	PF	keine Beschichtung
IV	1	PF	mit IAD produziert
IV	2	PF	mit MS produziert
IV	3	PF	mit IBS produziert
IV	4	PF	mit EBD produziert
IV	5	PF	mit Sol-Gel-Verfahren produziert
IV	6	PF	keine Beschichtung

einen gegenüber der Raumluft deutlich erhöhten Stickstoff- und einen reduzierten Sauerstoffanteil. Die Konzentration an Sauerstoff innerhalb der Handschuhbox beträgt weniger als 4%. Damit fehlt dem Tritium der Sauerstoff um zu tritiiertem Wasser zu reagieren. Er liegt deshalb weiterhin gasförmig vor und kann so aus der Atmosphäre entzogen werden. Daher ist die Inertisierung eine weitere Randbedingung, die die Handschuhbox zur

Unterbringung der Versuchseinrichtung für die Beaufschlagung der Proben erfüllen muss.

Die Anlage, die sowohl das Befüllen als auch das Evakuieren der Probenbehälter leisten kann, inertisiert ist und zudem noch die Möglichkeit zur Lagerung der Probenbehälter bietet, ist die CAPRICE PERMCAT-Anlage. Die CAPER-Anlage ist eine Weiterentwicklung der CAPRICE-Anlage zur Reinigung und Dekontamination von Plasmaabgasen in Fusionsreaktoren in einem dreistufigen Prozess [GEM11]. Sie besteht insgesamt aus drei Handschuhboxen, CAPER A bis C, wobei die für die Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben interessante Handschuhbox CAPER A darstellt. Näheres zur Funktionsweise der CAPER-Anlage kann in [GEM11] nachgelesen werden.

Die CAPER-Anlage bietet jedoch noch weitere Vorteile die im Folgenden benannt werden:

Bereitstellung des Gasgemischs in gewünschter Reinheit

Die CAPER-Anlage kann den für das Experiment nötigen Tritiumanteil des Gases von etwa 95 % liefern.

Reinigung des Gases von Kohlenwasserstoffen vor der Befüllung

Da das Tritiumgas jedoch zuvor in einem Sammelbehälter aufbewahrt wird, bilden sich in dem Gas tritiierte Kohlenwasserstoffe [Mor77]. Diese können negative Auswirkungen auf die Proben haben, wie in Kapitel 3 dargestellt worden ist. Durch die CAPER-Anlage kann eine Reinigung des Gases geleistet werden, so dass das Gas zum Zeitpunkt des Befüllens keine Kohlenwasserstoffe mehr enthält.

Kaum Notwendigkeit zur Änderungen der bestehenden Anlage

Ein weiterer, sehr offensichtlicher Vorteil, den die CAPER-Anlage bietet, ist derjenige, dass sie bereits eine bestehende Anlage ist. Sie muss nahezu nicht verändert werden, um die Probenbehälter mit Tritium befüllen zu können. Lediglich eine zusätzliche Verbindungsleitung zu den Probenbehältern muss in die Anlage integriert werden. Über diese neue Verbindungsleitung können die Probenbehälter nicht nur befüllt sondern auch evakuiert werden. Um die Handhabung der Probenbehälter so einfach und die Lagerung so sicher wie möglich zu gestalten, wird eine speziell angefertigte Bodenplatte verwendet. Diese hat fünf aufgesetzte Metallrohre, in denen die Probenbehälter aufrecht gelagert werden können.

Wiederaufbereitung des Gasgemischs aus den Probenbehältern

Nach der Entleerung der Probenbehälter geht das Tritiumgasgemisch nicht verloren, sondern kann durch die Anlage erneut aufgearbeitet werden.

Analyse der Gaszusammensetzung mittels Gaschromatograph

Bei Bedarf können Untersuchungen der Gaszusammensetzung mit Hilfe eines Gaschromatographen [RL03] vorgenommen werden. So kann beispielsweise die Zusammensetzung des Gases vor dem Befüllen bestimmt werden. Aber auch eine Analyse des aus den Probenbehältern abgepumpten Gases ist möglich. Auf diese Weise können Informationen über die Bildung von tritiierten Kohlenwasserstoffen im Probenbehälter gesammelt werden.

Tritiumfreisetzung

Abgesehen davon, dass die CAPER-Anlage inertisiert ist, bietet sie bei der Öffnung der Probenbehälter einen weiteren Vorteil. In der Handschuhbox wird regelmäßig mit Tritium gearbeitet. Daher wird keine bis dahin noch saubere Handschuhbox beim Öffnen der Behälter und der Entnahme des Gestänges Tritium ausgesetzt.

Spülung des Probenbehälters mit Deuterium vor der Öffnung

Wie bereits erwähnt, steigt die Kontamination der Boxenluft durch das Öffnen eines Probenbehälters deutlich an. Dies wurde im Vorfeld mit einem Versuch getestet: einer der

Probenbehälter wurde mit einem Gasgemisch gefüllt, nach kurzer Zeit wieder evakuiert und dann geöffnet. Die genauen Bedingungen dieses Tests sind in Anhang E beschrieben. Die Aktivität in der Handschuhbox war nach dem Öffnen eines Behälters, der ursprünglich mit 200 mbar Partialdruck Tritium gefüllt war, auf mehr als 370 MBq/m^3 angestiegen. Wurde jedoch vor einer Öffnung des Probenbehälters mehrmals Deuterium eingelassen und wieder abgepumpt, wurde der Behälter also mit Deuterium gespült, so stieg die Aktivität der Boxenluft nicht einmal auf 10 MBq/m^3 an. Erklärt werden kann der geringere Anstieg durch Wandeffekte und den Isotopenaustausch [Fis11]. Auch eine solche Spülung mit Deuterium ist in der CAPER A-Handschuhbox möglich.

Ein Nachteil bei der Befüllung der Probenbehälter in der CAPER A-Handschuhbox ist jedoch, dass die Steuerung des Druckes im Probenbehälter nur über ein Handventil geregelt werden kann. Daher ist eine geringe Reproduzierbarkeit des Tritiumpartialdrucks von etwa $\pm 10 \text{ mbar}$ in den Probenbehältern zu erwarten. Trotz dieses Nachteils überwiegen die Vorteile, die die CAPER A-Handschuhbox als Standort für das Experiment mit sich bringt. Daher wird die Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben hier integriert werden.

Damit ist die Frage geklärt, in welcher Handschuhbox eine Beaufschlagung der Proben stattfinden kann. Unbekannt ist bisher, mit welchen Untersuchungsmethoden die beaufschlagten Proben auf die Änderung ihrer optischen Eigenschaften hin untersucht werden können. Hierbei stellt sich die Frage, welche Untersuchungsmethoden in einer Handschuhbox realisierbar sind. Zudem müssen weitere Rahmenbedingungen eingehalten werden, was die Auswahl an möglichen Untersuchungsmethoden einschränkt. Der nächste Abschnitt setzt sich mit dieser Thematik auseinander.

4.4 Methoden zur Überwachung der Eigenschaften optischer Fenster

Um die Frage zu klären, welche Überwachungsmöglichkeiten geeignet sind, um zum einen eine Beschädigung möglichst frühzeitig zu erkennen und zum anderen die optischen Eigenschaften zu überwachen, wird in Abschnitt 4.4.1 zunächst ein Überblick über mögliche Untersuchungsmethoden gegeben. Dabei werden Methoden, die aufgrund bestimmter Rahmenbedingungen gewisse Vorteile bieten, ausführlicher beschrieben. Den Abschluss des Kapitels bildet die Begründung der Entscheidung für die später verwendeten Überwachungsmethoden.

4.4.1 Überblick über mögliche Überwachungsmethoden

Zur Überwachung der Proben in Bezug auf Beschädigung und ihre optischen Eigenschaften bieten sich eine Vielzahl an Möglichkeiten. Sie werden nun im Folgenden kurz beschrieben, bevor auf ihre Eignung in diesem Experiment eingegangen wird.

Augerelektronenmikroskopie (AES)

Die AES beruht auf der Anregung und Emission von Auger-Elektronen durch einen Elektronenstrahl. Die Auger-Elektronen werden also bei einem strahlungsfreien Übergang in

der Elektronenschale freigesetzt. Die AES bietet die Möglichkeit mit einer lateralen Auflösung von 100 nm ein quantitatives Elementenprofil der Oberfläche darzustellen, wobei Wasserstoff und Helium jedoch nicht detektiert werden können [IFM11].

Quecksilberporosimetrie

Da Quecksilber nicht in Poren einer Oberfläche eindringt, ohne dass ein Druck ausgeübt wird, kann über die Bestimmung des aufgenommenen Quecksilbervolumens in Abhängigkeit vom angewandten Druck eine Aussage über Porengröße und -verteilung einer Probe getroffen werden [Sib88].

Streulichtmessung

Bei der Messung der Oberflächenrauigkeit mit einer Streulichtmessung unterscheidet man zwischen winkelauflösender, totaler und integraler Streulichtmessung. Bei ersterer wird die Probe mit einem Laser bestrahlt und das Streulicht mit einem Detektor in verschiedenen Winkeln zur Probe gemessen. Mit dieser Methode können Rauheiten kleiner 0,1 nm detektiert werden. Die totale Streulichtmessung misst die Streulichtleistung im Reflexions- oder Transmissionshalbraum mit einer Coblentz-Kugel, einer hochreflektierenden Halbkugel, die das Streulicht auf einen Detektor fokussiert. Die gemessene Streulichtleistung wird auf die einfallende Leistung normiert. Die integrale Streulichtmessung folgt dem gleichen Prinzip, hier wird jedoch nur der Reflexionshalbraum betrachtet und auf den Reflexionsgrad normiert [Dup07, Til97].

Transmissions-Reflexions-Messung (TR-Messung)

Eine TR-Messung untersucht wie viel Licht eines einfallenden Laserstrahls in Strahlrichtung transmittiert bzw. entgegengesetzt reflektiert wird und normiert dies auf die einfallende Leistung. Diese Messung macht eine direkte Aussage über die Veränderung der optischen Eigenschaften, nämlich über den Transmissions- und Reflexionskoeffizienten möglich.

Optische Mikroskopie

Das optische Mikroskop ist eine auf einem einfachen Linsensystem beruhende Methode um eine Oberfläche im Zweidimensionalen mit einer höheren Auflösung als es das bloße Auge erlaubt zu untersuchen [Dem08, Ber04].

Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)

Die TEM durchstrahlt eine Probe mit einem Elektronenstrahl. Da unterschiedlich dichte Materialien die Elektronen unterschiedlich stark ablenken, entsteht ein kontrastreiches zweidimensionales Bild der Oberfläche einer Probe. Die TEM liefert dabei mit 0,4 nm Auflösung eine bis zu 500 mal höhere Auflösung als ein optisches Mikroskop [Hei03].

Rasterkraftmikroskopie (AFM⁹)

Bei der AFM wird mit einer Messspitze über die Oberfläche einer Probe gerastert. Die Messspitze wird dabei zu hochfrequenten Schwingungen angeregt, an deren Umkehrpunkt die Spitze die Probenoberfläche berührt. Eine Änderung der Topografie der Oberfläche führt somit zu einer Änderung der Frequenz. Die Auflösung bei der AFM beträgt lateral wenige nm und vertikal weniger als 0,1 nm [Dup07].

Differentialinterferenzkontrastmikroskopie (DIC)

Die DIC nutzt aus, dass zwei kohärente Lichtstrahlen beim Durchgang durch unterschiedliche Materialien der gleichen Dicke bzw. durch gleiches Material mit unterschiedlicher Dicke einen Gangunterschied aufweisen und somit miteinander interferieren. Es entstehen Bilder, die eine Tiefeninformation enthalten [Til97, Lan68].

⁹atomic force microscopy

Rasterelektronenmikroskopie (REM)

Die REM rastert die Oberfläche einer Probe mit einem Elektronenstrahl ab. Dabei werden Rückstreuelektronen aus tiefer gelegenen Bereichen der Probe sowie Sekundärelektronen des Oberflächenbereichs detektiert. Hierdurch entsteht ein Bild mit bis zu 20 mal besserer Vergrößerung als beim optischen Mikroskop, das eine Tiefeninformation enthält [Hei03].

Die eben beschriebenen Messmethoden sind zwar grundsätzlich alle zur Untersuchung der optischen Fenster geeignet, jedoch gibt es wichtige Rahmenbedingungen, die erfüllt werden müssen. Diese resultieren zum einen aus der Radioaktivität von T₂. So müssen die Überwachungsmethoden einfach in ihrer Handhabung sein, da eine Nutzung innerhalb einer Handschuhbox möglich sein muss. Auch zu kostenintensive Methoden werden hierdurch ausgeschlossen, da die Apparaturen nach einer Beendigung des Experiments in der Handschuhbox verbleiben müssen und somit nur für Proben verwendet werden können, die bereits mit T₂ in Berührung gekommen sind. Ein weiterer Aspekt ist der Zeitaufwand für die Installation der Überwachungseinrichtung in eine Handschuhbox. Hierbei wird der zeitliche Rahmen durch die vorliegende Arbeit gegeben. Die Messungen sollten daher innerhalb eines Jahres begonnen und zum Teil ausgeführt werden können.

In Bezug auf Zeitaufwand, Kostenintensität und Möglichkeit zum Einbau in eine Handschuhbox stellt die Zusammenarbeit mit dem Fusionsmateriallabor (FML) des Institut für Angewandte Materialien - Werkstoff- und Biomechanik, einem weiteren Institut des KIT Campus Nord, eine interessante Möglichkeit dar.

Im Folgenden wird auf die Untersuchungsmethoden, die die Rahmenbedingungen erfüllen, nochmals detaillierter eingegangen. Von den vorgestellten Methoden finden dabei drei keine weitere Erwähnung: die AES und die AFM, da sie kostenintensiv sind, sowie die Streulichtmessung aufgrund ihrer schlechten Handhabbarkeit innerhalb einer Handschuhbox. Bei den verbleibenden sechs Methoden wird zunächst auf die Funktionsweise eingegangen, bevor Vor- und Nachteile der jeweiligen Methoden aufgelistet werden.

Porositätsmessung mittels Quecksilberporosimetrie

Quecksilber zeichnet sich durch einen großen Kontaktwinkel aus. Der Kontaktwinkel ist der Winkel zwischen der Oberfläche eines Quecksilbertropfens und einer Fläche, auf der dieser Tropfen sitzt. Daher dringt Quecksilber nicht ohne zusätzlichen Druck in Poren ein. Mit steigendem Druck werden jedoch immer kleinere Poren mit Quecksilber aufgefüllt. Dies ist auch in Abbildung 4.18 dargestellt. Über das aufgenommene Quecksilbervolumen kann eine Aussage über die mittlere Porengröße, die Porengrößeverteilung sowie die Dichte nicht kompressibler Materialien getroffen werden. Die kleinsten Porengrößen, die noch detektiert werden können, liegen im Nanometerbereich [UDE11, Sib88].

Vorteile:

Die Quecksilberporosimetrie liefert eine Aussage über die Dichte der Proben. Dies ist besonders in Bezug auf eine mögliche Verdichtung durch ionisierende Strahlung, wie in Kapitel 3 beschrieben, von großem Interesse.

Ein Quecksilberporosimeter ist bereits am FML in einer Handschuhbox vorhanden.

Nachteile:

Die Proben dürfen nicht aus einem zerbrechlichen Material bestehen, da sie ansonsten aufgrund des erhöhten Druckes zerbrechen können.

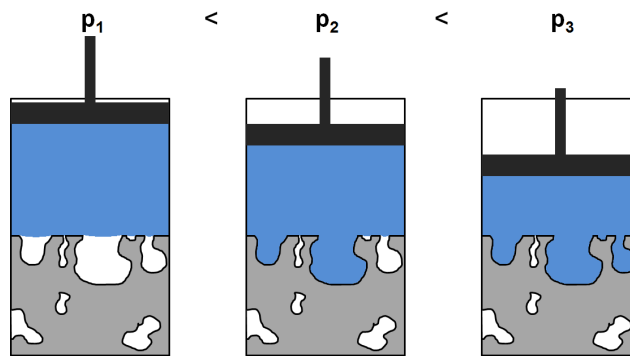


Abbildung 4.18: Schematische Darstellung der Quecksilberporosimetrie.

Links: Hier ist der Ausgangszustand einer Quecksilberporosimetriemessung dargestellt. Der Druck p_1 reicht nicht aus, damit das blau dargestellte Quecksilber in die Poren des Materials eindringt. Mitte: Nachdem der Druck auf den Wert p_2 angestiegen ist, werden Poren mit verhältnismäßig großem Öffnungsdurchmesser mit Quecksilber gefüllt. Rechts: Ab einem gewissen Druck p_3 sind alle von der Oberfläche her zugänglichen Poren mit Quecksilber aufgefüllt (eigene Darstellung nach [Sib88]).

Die in diesem Experiment verwendeten Proben sind zu groß für die Anlage am FML. Das bedeutet, dass die Proben verkleinert und damit zerstört werden müssen, um eine Untersuchung zu ermöglichen.

Die Tatsache, dass die Untersuchungen mit einem Quecksilberporosimeter am FML stattfinden, macht einen Transport der kontaminierten Proben nötig.

Oberflächenuntersuchung mittels optischen Mikroskops

Die einfachste Ausführung eines optischen Mikroskops besteht aus einem zweistufigen abbildenden Linsensystem aus Objektiv und Okular, wie es in Abbildung 4.19 dargestellt ist. Das Objektiv erzeugt von der Probe ein vergrößertes reelles Bild in der Bildebene des Okulars. Dieses Bild wird durch das Okular nochmals vergrößert, wobei ein stark vergrößertes, virtuelles Bild der Probe entsteht. Da die Strahlen eines jeden Punktes der Probe den Betrachter, der sich in der hinteren Bildebene des Okulars befindet, parallel zueinander erreichen, scheint das Bild im Unendlichen zu liegen.

Die Vergrößerung eines optischen Mikroskops wird durch die Brennweiten von Objektiv und Okular bestimmt. Das maximale Auflösungsvermögen beträgt jedoch die halbe Wellenlänge des verwendeten Lichtes [Dem08, Ber04].

Anwendung findet das Mikroskop beispielsweise bei der Untersuchung homogener Phasenbezirke und Kristallbaufehlern. So können mit einem Durchlichtmikroskop, bei dem die Probe von Licht durchdrungen wird, die kristallinen Anteile einer Probe bestimmt werden, sofern diese größer als die Auflösungsgrenze sind. Auflichtmikroskope, bei denen das von der Probe reflektierte Licht zur Untersuchung genutzt wird, werden hauptsächlich für undurchsichtige Proben verwendet [Hor09].

Vorteile:

Optische Mikroskope sind relativ preiswert mit Kosten unter 1000 €.

Eine zusätzliche Kamera im Mikroskopkopf sowie die Einfachheit des Aufbaus eines Mikroskops sorgen für eine gute Handhabbarkeit innerhalb der Handschuhbox.

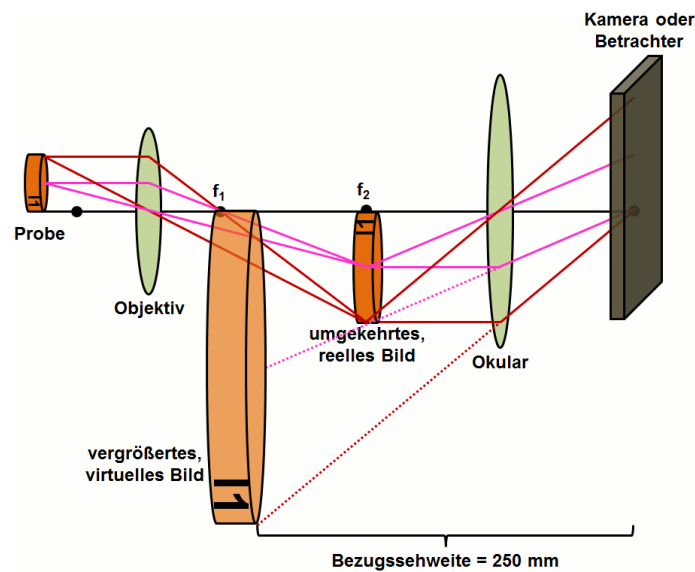


Abbildung 4.19: Schematische Darstellung des Strahlengangs eines optischen Mikroskops. Durch das Objektiv wird ein umgekehrtes reelles Bild erzeugt, das vom Okular weiter vergrößert wird zu einem aufrechten virtuellen Bild. Da die vom Okular erzeugten Strahlen parallel zueinander verlaufen, scheint der Gegenstand für einen Betrachter im Unendlichen zu liegen. Daher ist das virtuelle Bild bei der Bezugssehweite, also dem minimalen Abstand, für den ein menschliches Auge einen Gegenstand noch scharf abbilden kann, eingezeichnet (eigene Darstellung nach [Dem08, Ber04]).

Nachteile:

Im Vergleich zu anderen Untersuchungsmöglichkeiten wie TEM, REM oder DIC bietet das optische Mikroskop nur eine sehr geringe Vergrößerung.

Oberflächenuntersuchung mittels Transmissionselektronenmikroskopie

Das Transmissionselektronenmikroskop ähnelt im grundsätzlichen Aufbau (siehe Abbildung 4.20) dem eines Lichtmikroskops, jedoch wird anstelle von Licht ein Elektronenstrahl verwendet. Ein weiterer Unterschied besteht darin, dass als Linsen inhomogene rotationssymmetrische Magnetfelder verwendet werden. In diesen Feldern wirkt in Folge des Magnetfelds die Lorentzkraft auf die Elektronen, wodurch die Elektronen von ihrer ursprünglichen Flugbahn abgelenkt und auf einen bestimmten Punkt fokussiert werden. Um Stöße der Elektronen mit Restgasatomen zu verhindern, befindet sich der Strahlengang in einem Vakuum mit einem Druck kleiner 10^{-5} mbar [Oet11].

Das Bild der Probe entsteht aufgrund der Durchdringung der Probe mit Elektronen. Daher dürfen die Proben nur etwa eine Dicke im Bereich von 100 nm bis $1 \mu\text{m}$ [Oet11] aufweisen, was beispielsweise durch die Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen erreicht wird. Der Kontrast des Bildes entsteht, da die Elektronen unterschiedliche Materialien bzw. unterschiedliche Materialdicken verschieden gut durchdringen. Auf diese Weise können Vergrößerungen bis zu 500 000:1 erreicht werden [Hei03], wodurch sogar Punktdefekte in der Struktur der Probe nachgewiesen werden können.

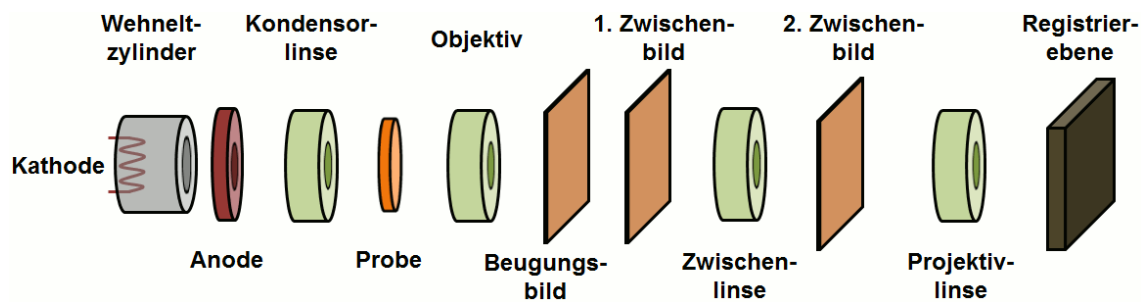


Abbildung 4.20: Schematische Darstellung des Aufbaus eines Transmissions-elektronenmikroskops. Die Elektronen werden mit Hilfe einer Kathode erzeugt, durch einen Wehneltzylinder (eine Steuerelektrode) fokussiert und zur ringförmigen Anode hin beschleunigt. Die darauffolgende, sogenannte Kondensorlinse lenkt die Elektronen schließlich auf die Probe. Da sich die Probe in der Brennebene des Objektivs befindet, entsteht hinter dem Objektiv das sogenannte Beugungsbild und ein objektähnliches Zwischenbild, das erste Zwischenbild. Abhängig von der durch den Spulenstrom eingestellten Brennweite der Zwischenlinse wird das Beugungsbild oder das erste Zwischenbild zum zweiten Zwischenbild vergrößert. Die Projektivlinse bildet das zweite Zwischenbild schließlich nochmals vergrößert in der Registrierebene ab, wo sich der Detektor befindet (eigene Darstellung nach [Oet11]).

Vorteile:

Die TEM bietet mit 0,4 nm die höchste Auflösung der vorgestellten Untersuchungsmethoden [Hei03].

Die hohe Auflösung sorgt dafür, dass sogar Punktdefekte in den Proben, die beispielsweise durch die ionisierende Strahlung entstehen können, nachweisbar sind. Damit können mögliche Veränderungen in den Proben durch die KATRIN-spezifischen Bedingungen untersucht werden.

Ein Transmissionselektronenmikroskop steht am FML zur Verfügung.

Nachteile:

Die maximal untersuchbare Probendicke beträgt lediglich 1 μm , weshalb die Proben für eine Untersuchung zerstört werden müssen. Zudem befindet sich das TEM nicht innerhalb einer Handschuhbox, wodurch die Proben ungeschützt gehandhabt werden müssen.

Die Tatsache, dass die Untersuchungen mit einem TEM am FML stattfinden, macht einen Transport der kontaminierten Proben nötig.

Oberflächenuntersuchung mit Tiefeninformation mittels Differentialinterferenzkontrastmikroskopie

Es gibt zwei unterschiedliche Ausführungen von Differentialinterferenzkontrastmikroskopen (DIC-Mikroskopen). Sie beruhen beide auf dem gleichen Prinzip, verwenden jedoch unterschiedliche Bauteile, zum einen das Wollaston-, zum anderen das Nomarski-Prisma. Sie bestehen jeweils aus zwei miteinander verbundenen Prismen. In Abbildung 4.21 ist beispielhaft die Ausführung mit zwei Wollaston-Prismen gezeigt. Trifft ein Lichtstrahl auf ein solches Wollaston-Prisma, wird der Strahl beim Eintritt in das erste Prisma zunächst in zwei senkrecht zueinander, linear polarisierte Strahlen aufgeteilt. Am Übergang vom ersten zum zweiten Prisma, dessen optische Achse um 90° gegenüber dem ersten gedreht ist, werden die Strahlen räumlich getrennt.

Das Detektionsprinzip der DIC beruht auf der Interferenz der wieder zusammengeführten

Strahlen, die auf ihren unterschiedlichen Wegen durch die Probe unterschiedlich stark gestreut worden sind. Auf diese Weise können Höhen- und Phasenunterschiede bis zu wenigen Zehntel eines Nanometers aufgelöst werden [Til97].

Bei der Variante mit Wollaston-Prismen ist die Vergrößerung stark begrenzt, da die Prismen in den Brennebenen des Okulars und des Objektivs liegen müssen, diese aber bei hohen Vergrößerungen noch innerhalb der Linsen selbst liegen. Beim Nomarski-Prisma liegen die beiden optischen Achsen nicht mehr senkrecht bzw. parallel zu den Außenseiten des Prismas. Hierdurch wird eine Brennebene außerhalb des Prismas erzeugt, sodass das Prisma in größerer Entfernung vom Objektiv eingebaut werden kann und somit höhere Vergrößerungen erzielt werden.

Vorteile:

Das DIC-Mikroskop erzeugt ein Bild mit einer dem optischen Mikroskop vergleichbaren Auflösung.

Es liefert Tiefeninformationen, wodurch eine mögliche Delamination der Beschichtung infolge einer Beschädigung untersucht werden kann.

Ein in eine Handschuhbox eingebautes DIC-Mikroskop ist am FML vorhanden.

Nachteil:

Die Tatsache, dass die Untersuchungen mit einem DIC-Mikroskop am FML stattfinden, macht einen Transport der radioaktiven Proben nötig.

Es ist zu beachten, dass nur Proben mit maximaler Auflösung untersucht werden können, die direkt auf dem Mikroskop aufliegen. Daher kann die bestmögliche Auflösung bei den eingeschweißten Proben aufgrund der Einfassung des Fensters nicht genutzt werden.

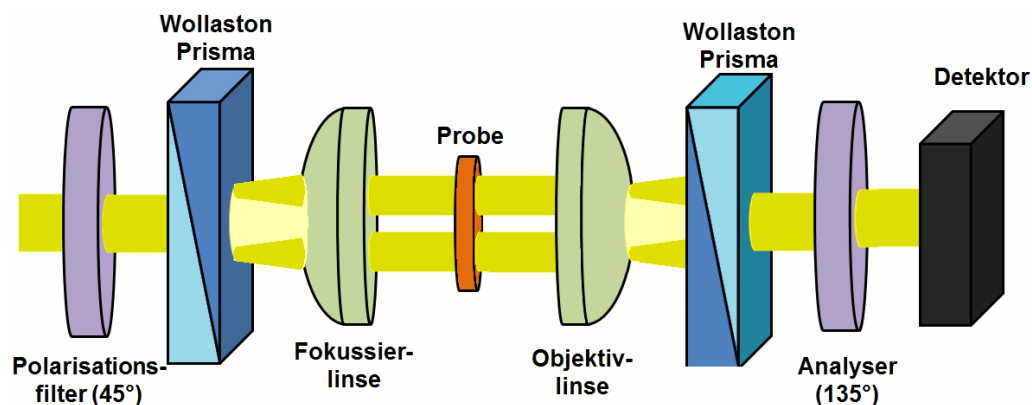


Abbildung 4.21: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines DIC-Mikroskops mit zwei Wollaston-Prismen. Das zunächst unpolarisierte Licht wird mit einem Polarisationsfilter linear polarisiert. Dieses Licht trifft auf das erste Wollaston-Prisma, wodurch zwei mit 90° zueinander polarisierte Lichtstrahlen entstehen. Liegt die Mittelebene des Prismas in der Brennebene der Fokussierlinse, so werden die beiden Teilstrahlen parallelisiert. Die parallelen Strahlen treffen nun auf die Probe. Da die beiden Strahlen die Proben auf unterschiedlichen Wegen durchdringen, entsteht ein Gangunterschied zwischen den Strahlen. Die Objektivlinse fokussiert die Strahlen auf die Mittelebene des zweiten Wollaston-Prismas. Dieses Prisma rekombiniert die beiden Strahlen örtlich. Der Lichtstrahl besitzt aber weiterhin zwei linear und im rechten Winkel zueinander polarisierte Komponenten. Aufgrund der unterschiedlichen Polarisation der Strahlkomponenten ist eine Interferenz nicht möglich. Daher wird ein Analyser verwendet, um eine einzelne Polarisationskomponente zu betrachten. Das Interferenzbild kann nun mit Hilfe eines Detektors beobachtet werden (eigene Darstellung nach [Lan68]).

Oberflächenuntersuchung mit Tiefeninformation mittels Rasterelektronenmikroskopie (REM)

Die REM beruht auf dem Rastern der Oberfläche der Probe mit einem Elektronenstrahl. Der Aufbau eines Rasterelektronenmikroskops ist in Abbildung 4.22 dargestellt. Genau wie bei der TEM muss der Aufbau in eine Vakuumkammer mit weniger $5 \cdot 10^{-5}$ mbar integriert sein, um Stöße mit Restgasatomen zu vermeiden [Hei03].

Es gibt zwei Möglichkeiten, wie ein Bild bei der REM entstehen kann. Zum einen können die sogenannten Rückstreuелеktronen verwendet werden. Diese stammen aus Bereichen unterhalb der direkten Oberfläche der Probe. Mit ihnen können Tiefeninformationen über die Probe bis in eine Tiefe von etwa $4 \mu\text{m}$ gesammelt werden. Die erreichbare Auflösung ist jedoch um einen Faktor 2 geringer als bei einer Abbildung durch Sekundärelektronen, die ebenfalls für die Bildgebung genutzt werden können. Sekundärelektronen werden in einem Bereich von maximal 5 nm unter der Oberfläche generiert [Hei03]. Daher haben sie nur eine Energie von etwa 50 eV.

Da die in diesem Experiment verwendeten Proben nicht leitend sind, müsste eine dünne Schicht von etwa 20 nm aus Kohlenstoff oder Gold auf die Proben gesputtert werden, um plötzliche Entladungen zu vermeiden. Zudem dürfen die Proben einen maximalen Durchmesser von 25 mm nicht überschreiten [Hei03].

Vorteile:

REM bietet mit einer Auflösung von bis zu 10 nm die 20-fache Auflösung eines optischen Mikroskops.

Es kann eine Tiefeninformation gewonnen werden, die besonders im Falle einer Delamination der Beschichtung von großem Interesse ist.

Am FML ist ein Rasterelektronenmikroskop vorhanden.

Nachteile:

Ein Besputtern der Proben mit Gold oder Kohlenstoff ist nötig, wodurch die Probe in ihren optischen Eigenschaften deutlich verändert wird. Außerdem kann das Experiment an einer besputterten Probe nicht fortgesetzt werden.

Die Proben müssen unter Umständen verkleinert und damit zerstört werden.

Da sich das Rasterelektronenmikroskop am FML befindet, ist ein Transport der Proben zu diesem nötig.

Untersuchung der Transmissions- und Reflexionseigenschaften mittels Laserdioden

Ein möglicher Transmissions-Reflexions-Aufbau (TR-Aufbau) zur TR-Messung ist in Abbildung 4.23 gezeigt. Die drei verwendeten Photodioden machen eine Messung der Transmissions- und Reflexionseigenschaften der Proben möglich. Dabei wird immer nur das Verhältnis der Monitor- zu einer der beiden anderen Photodioden betrachtet, um eine von Intensitätsschwankungen der Laserdioden unabhängige Aussage über die optischen Eigenschaften der Proben treffen zu können.

Damit die Messung nicht durch andere Lichtquellen verfälscht wird, ist der Aufbau innerhalb eines geschlossenen Gehäuses zu handhaben. Dieses schützt die Experimentatoren zudem vor dem Laserstrahl, der eine Leistung von etwa 1 bis 10 mW besitzt.

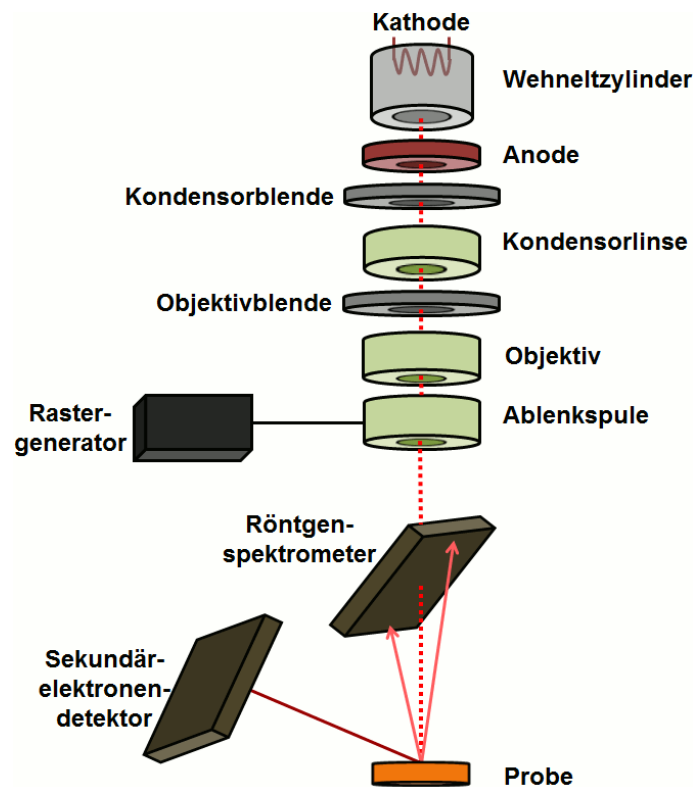


Abbildung 4.22: Schematische Darstellung des Aufbaus eines Rasterelektronenmikroskops. Mit Hilfe einer Glühkathode werden Elektronen erzeugt, die durch einen Wehneltzylinder fokussiert werden und auf die ringförmige Anode hin beschleunigt werden. Von hier ab ist der Strahlengang dem eines optischen Mikroskops sehr ähnlich. Durch die Kondensorblende und -linse sowie Objektivblende und -linse werden die Elektronen auf die Probe fokussiert. Die Ablenkspule sorgt für ein Ablenken des Elektronenstrahls, damit die Probe mit diesem gerastert werden kann. Mit zwei unterschiedlichen Detektoren werden schließlich die Rückstreu- und die Sekundärelektronen detektiert (eigene Darstellung nach [Hei03]).

Vorteile:

Ein TR-Aufbau ist für unter 5 000 € relativ kostengünstig realisierbar.

Der Aufbau muss selbst aufgebaut werden, wodurch dieser individuell gestaltet werden kann, besonders in Hinsicht auf die Handhabbarkeit innerhalb einer Handschuhbox. Zudem kann die Auswahl der Laserdioden an die Proben angepasst werden.

Eine einfache Handhabung der Messung innerhalb einer Handschuhbox ist durch Motorisierung der verfahrbaren Bühne möglich.

Mit einer TR-Messung werden direkt die optischen Eigenschaften untersucht, die für das KATRIN-Experiment unverzichtbar sind.

Nachteile:

Mit dem eigenen Aufbau der Messeinrichtung geht ein großer Zeitaufwand einher.

Hiermit sind alle möglichen Untersuchungsmethoden vorgestellt. Im nächsten Abschnitt wird nun die Auswahl der Untersuchungsmethoden beschrieben, die im Experiment Verwendung finden.

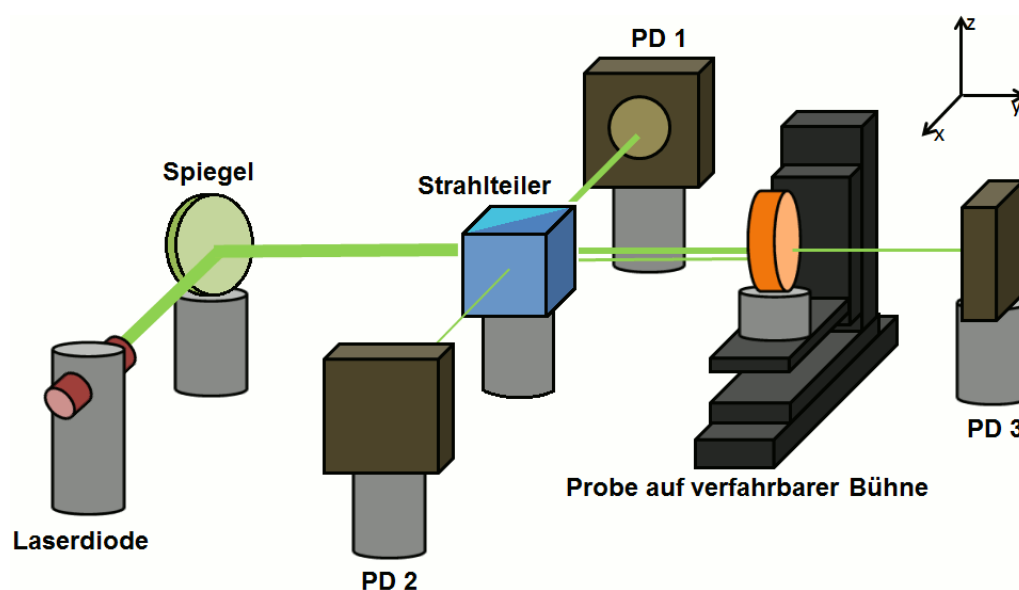


Abbildung 4.23: Schematische Darstellung des möglichen Aufbaus einer Transmissions-Reflexions-Messung. Der von der Laserdiode ausgesandte Laserstrahl wird über einen Spiegel auf einen Strahlteiler gelenkt. Der Strahlteiler teilt den Strahl in zwei Strahlen gleicher Intensität. Der um 90° gegenüber der ursprünglichen Ausbreitungsrichtung des Lichtes abgelenkte Strahl trifft auf die sogenannte Monitorphotodiode (PD 1), die zur Kontrolle der Ausgangsleistung der Laserdiode dient. Der zweite Strahl trifft auf die Probe, die auf einer in x- und z-Richtung verfahrbaren Bühne steht. Die Bühne ermöglicht ein reproduzierbares Rastern der Probe. Der durch die Probe transmittierte Anteil des Lichtes wird durch die Transmissionphotodiode (PD 3) detektiert. Das reflektierte Licht trifft erneut auf den Strahlteiler, der die Hälfte des reflektierten Lichtes auf die Reflexionsphotodiode (PD 2) umlenkt. Um von Schwankungen in der Laserleistung unabhängige Werte zu erhalten, wird das Verhältnis des Monitor- zum Reflexions- bzw. Transmissionsphotodiodensignal betrachtet.

4.4.2 Auswahl der geeigneten Überwachungsmethoden für dieses Experiment

Nachdem die möglichen Untersuchungsmethoden im letzten Abschnitt vorgestellt wurden, soll nun die Auswahl der Methoden, die im späteren Experiment Verwendung finden, begründet werden.

Während der Beschreibung der einzelnen Untersuchungsmethoden wird deutlich, dass einige Methoden aufgrund der maximal untersuchbaren Probengrößen nicht verwendet werden können. So müssen die Proben zur Untersuchung mittels REM und Quecksilberporosimetrie zerkleinert und damit zerstört werden. Dieser Nachteil wiegt deutlich schwerer als die Vorteile, die die Untersuchungsmethoden mit sich bringen können. Zudem müsste bei einer REM ein Besputtern der Oberfläche stattfinden, was eine Veränderung der Probe und ihrer optischen Eigenschaften für den weiteren Verlauf des Experiments bedeuten würde. Die Quecksilberporosimetrie wird ebenfalls durch zwei weitere Aspekte ausgeschlossen. Zum einen wird die Probe durch das Eindringen des Quecksilbers in die Poren verändert, zum anderen können zerbrechliche Proben mit dieser Methode nicht untersucht werden. Auch eine TEM ist nicht als Untersuchungsmethode geeignet, da sie nur kleine Proben aufnehmen kann. Zudem ist eine Handhabung der Proben außerhalb einer Handschuhbox nicht empfehlenswert.

Damit verbleiben nur noch drei der im letzten Abschnitt beschriebenen Untersuchungsmethoden: Das optische Mikroskop, das DIC-Mikroskop und der TR-Aufbau. Das optische Mikroskop zeichnet sich hierbei durch seine einfache Handhabung und die geringen Kosten aus. Es ermöglicht eine genauere Betrachtung eines eingetretenen Schadens als mit dem bloßen Auge. Zudem ist durch die Einfachheit der Apparatur nicht mit einem Ausfall zu rechnen. Dies ist von großem Vorteil, da eine Reparatur innerhalb einer Handschuhbox nur mit sehr großem Aufwand und unter stark erschwerten Bedingungen möglich ist. Aus diesen Gründen wird das optische Mikroskop trotz seiner, im Vergleich zu anderen Methoden, geringen Auflösung als Untersuchungsmethode verwendet werden.

Der beim optischen Mikroskop letztgenannte Punkt der Einfachheit ist für den TR-Aufbau nicht zutreffend. Er besteht aus vielen Komponenten, die beschädigt werden können. Zudem stellt die Justierung des Strahlengangs eine Herausforderung dar. Zwar kann die Justierung bereits außerhalb der Handschuhbox vorgenommen werden, aber es kann während der Nutzung zu einer Veränderung der Einstellungen kommen, was eine erneute Strahljustierung innerhalb der Handschuhbox zur Folge hätte. Vor- und Nachteile bietet die Tatsache, dass der TR-Aufbau selbst aufgebaut wird. So ist dies mit einem großen Zeitaufwand verbunden, dafür kann der Aufbau aber speziell auf die Gegebenheiten in einer Handschuhbox angepasst werden. Ein weiterer Vorteil der TR-Messung ist, dass die Messung selbst mit einer motorisierten verfahrbaren Bühne automatisiert durchgeführt wird. Der entscheidende Faktor bei dieser Untersuchungsmethode ist jedoch, dass die Transmission und Reflexion, die im Rahmen des KATRIN-Experiments auf keinen Fall durch die Bedingungen im Inner Loop verändert werden dürfen, gemessen werden. Auf diese Weise kann direkt eine Aussage über die Tauglichkeit der einzelnen Beschichtungen getroffen werden. Aus diesen Gründen wird die TR-Messung ebenfalls im Experiment Verwendung finden.

Das DIC-Mikroskop, das sich am FML befindet, bietet den Vorteil, dass die Apparatur bereits in eine Handschuhbox eingebaut ist. Zudem sind die Mitarbeiter, die das Mikroskop im Rahmen des Experiments steuern würden, sehr gut mit der Bedienung vertraut. Auch die höhere Auflösung gegenüber dem optischen Mikroskop und die zusätzliche Tiefeninformation, die ein DIC-Mikroskop liefern kann, könnte bei einer Delamination oder einer stärkeren Beschädigung von großem Vorteil sein. Dem entgegen steht jedoch die Tatsache, dass die eingeschweißten Proben nicht mit der maximal möglichen Auflösung betrachtet werden können. Auch die nicht eingeschweißten Fenster können nur untersucht werden, wenn sie aus ihrer schützenden Halterung entnommen werden und ohne diese direkt in den Strahlengang des Mikroskops eingebracht werden. Dies birgt das Risiko, dass die Proben zerkratzt werden oder im schlimmsten Fall sogar zerbrechen. Auch der Aufwand, den ein Transport radioaktiven Materials verursacht, spricht eher gegen eine Untersuchung am FML. Trotzdem wird die Untersuchungsmethode im Experiment verwendet, da der zusätzliche Informationsgewinn die Nachteile überwiegt.

Damit ist die Frage nach den möglichen Untersuchungsmethoden und ihrer Handhabbarkeit innerhalb einer Handschuhbox geklärt. Es sind drei Methoden identifiziert worden, die in Bezug auf die zu Beginn dieses Abschnittes genannten Rahmenbedingungen eine Untersuchung der optischen Fenster auf ihre Tauglichkeit für das KATRIN-Experiment ermöglichen: ein optisches Mikroskop, ein DIC-Mikroskop und eine TR-Messung. Die beiden Mikroskope erlauben eine Aussage darüber, ob nur die Beschichtung oder auch das Fenster selbst von der Beschädigung betroffen sind. Durch die Messung der Transmission und der Reflexion kann festgestellt werden, ob die Proben durch die Beaufschlagung mit T_2 Einbußen in Bezug auf ihre unverzichtbaren optischen Eigenschaften erleiden, die in

Kapitel 3 beschrieben wurden.

Da die in Abschnitt 4.3.2 beschriebene CAPER A-Handschuhbox nicht genügend Platz bietet um die Untersuchungsapparaturen aufzunehmen, muss hierfür eine zweite Handschuhbox gefunden werden. Die genaue Realisierung der Versuchseinrichtungen zur Überwachung der Proben ist somit noch ungeklärt. Diese Frage wird im nächsten Kapitel behandelt.

4.5 Versuchseinrichtung zur Untersuchung der Schäden an den optischen Fenstern

In diesem Kapitel wird unter anderem die Frage geklärt, wie die Versuchseinrichtung zur Untersuchung der optischen Fenster realisiert werden kann. Dabei wird zunächst auf die drei Untersuchungsmethoden eingegangen. Zudem wird die Handschuhbox identifiziert, in die die Messapparaturen eingebaut werden.

4.5.1 Differentialinterferenzkontrastmessung am Fusionsmateriallabor

Das verwendete DIC-Mikroskop des FML ist eine bereits bestehende Messapparatur innerhalb einer Handschuhbox. Es ist bereits im Jahre 2003 in die heutige Handschuhbox eingebaut worden. Abbildung 4.24 zeigt das Mikroskop innerhalb der Handschuhbox. Es ist aus Nomarski-Prismen aufgebaut und erreicht eine Vergrößerung von 1000.

Die Bedienung des Mikroskops wird nicht durch Personal des Tritiumlabors geleistet werden, da diesem aus strahlenschutztechnischen Gründen nicht gestattet ist, an den Handschuhboxen des FML tätig zu werden. Zu beachten ist, dass die Proben für die Untersuchungen mittels DIC-Mikroskop aus ihrer Probenhalterung entnommen werden müssen.

4.5.2 Optisches Mikroskop zur Oberflächenuntersuchung

Als optisches Mikroskop ist das Stereo-Zoom-Mikroskop Expert-DN der Groß- und Einzelhandel Müller GmbH ausgewählt worden, das in Abbildung 4.25 gezeigt ist. Die Gründe hierfür liegen in dem geringen Preis von etwa 750 €, der Einfachheit des Mikroskops, welche die Notwendigkeit einer Reparatur innerhalb der Handschuhbox beinahe ausschließt, und der einfachen Handhabbarkeit. So sind alle zur Bedienung des Mikroskops nötigen Drehräder ausreichend groß gefertigt. Auch die standardmäßige Integration einer 1/2" CMOS-Kamera mit 3,1 Megapixel in den Mikroskopkopf ist ein Vorteil des Gerätes.

Das Mikroskop ist mit zwei getrennt dimmbaren LEDs zur Lichtversorgung ausgestattet, die sowohl eine Auflicht- als auch eine Durchlichtbeleuchtung ermöglichen. Die möglichen Faktoren der Vergrößerung betragen zwischen 7 und 180 [GEM11].

Um die Kamera, die sich innerhalb der Handschuhbox befinden wird, mit dem Messrechner zu verbinden, muss ein spezielles USB-Kabel gefertigt werden, das in der Mitte eine sogenannte Durchführung besitzt. Durchführungen sind Stecker, die einen luftdichten Einbau von Kabeln in eine Handschuhbox ermöglichen. Um sicherzustellen, dass dieses so modifizierte Kabel funktioniert, ist es vor dem Einbau in die Handschuhbox getestet worden. Die Stromversorgung kann über eine Steckdose innerhalb der Handschuhbox geleistet werden.

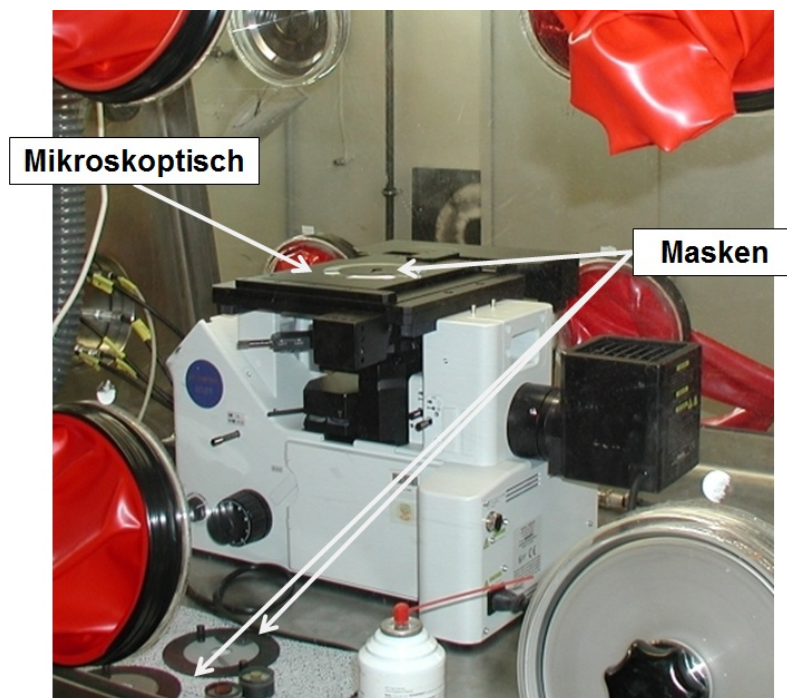


Abbildung 4.24: Fotografie des verwendeten DIC-Mikroskops innerhalb der Handschuhbox. Man sieht in der Fotografie den Mikroskoptisch, in den unterschiedliche Masken eingebracht werden können. Auf diese Masken werden die Proben zur Analyse aufgelegt.



Abbildung 4.25: Fotografie des zur Untersuchung der Proben verwendeten optischen Mikroskops. Das Mikroskop ist so ausgewählt worden, dass es möglichst einfach innerhalb einer Handschuhbox bedient werden kann. Zudem kann das Mikroskop nicht nur zur Untersuchung von durchsichtigen Optiken genutzt werden, da sowohl Auflicht- als auch Durchlicht-Lichtquellen zur Verfügung stehen.

4.5.3 Laseraufbau zur Transmissions-Reflexions-Messung

Der verwendete Laseraufbau zur Messung der Transmission und Reflexion der optischen Fenster ist im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und aufgebaut worden. Abbildung 4.26 zeigt eine Fotografie des Aufbaus. Im Wesentlichen ist der Beschreibung des Strahlengangs von Abschnitt 4.3.1.6 gefolgt worden (siehe Abbildung 4.27).

Der Aufbau zur TR-Messung besteht hauptsächlich aus Standardteilen von THORLABS, die auch für den LARA-Aufbau verwendet werden. Sofern möglich, sind die Komponenten aus schwarzem eloxiertem Aluminium gefertigt, um die unkontrollierte Reflexion des Laserlichtes weitgehend zu vermeiden. Im Folgenden werden die Komponenten des Aufbaus näher beschrieben.

Gehäuse

Das Gehäuse umgibt den Aufbau lichtdicht. Auf diese Weise wird das Untergrundsignal der Photodioden durch störende Lichtquellen wie beispielsweise die Boxenbeleuchtung reduziert. Zudem schützt das Gehäuse den Experimentator vor Laserstrahlung. Um eine Stoßdämpfung zu realisieren, sind an den vier Füßen des Gehäuses Gummifüße angebracht, die Stöße abfedern. Am oberen Rand des Gehäuses sind Haken vorhanden, an denen die für eine Messung nicht benötigten Komponenten aufgehängt werden können.

Das “Breadboard”

Das sogenannte Breadboard dient als Grundgerüst für den Aufbau. Auf ihm werden alle optischen Komponenten festgeschraubt. Insgesamt hat das Breadboard eine Länge von 50 cm sowie eine Breite von 20 cm. Es besteht aus zwei gleich großen Teilen, den MB2025/M, die in der Mitte mit Hilfe zweier H-förmiger Optikhalterungen (BA1/M) auf der Unterseite verbunden sind. Auch das Breadboard steht zur Stoßdämpfung auf Gummifüßen.

Die Lichtquellen

Aufgrund der unterschiedlichen Beschichtungen, werden insgesamt drei Lichtquellen der Firma ROITHNER¹⁰ verwendet. In Tabelle 4.3 sind den Probenziffern und damit den Beschichtungen der jeweiligen Proben die zur Untersuchung verwendeten Lichtquellen zugeordnet. Tabelle 4.4 gibt einen Überblick über die Spezifikationen der drei Laserdioden. Ein Wechsel der Laserdioden ohne erneute Justage des Strahlengangs des TR-Aufbaus wird durch einen magnetischen Fuß erreicht. Dieser bietet eine laterale Positionsreproduzierung von weniger als 10 μm in alle drei Raumrichtungen und eine Winkelreproduzierbarkeit von 1 μrad [THO11].

Um eine möglichst gute Temperaturstabilisierung der Laserdioden im Betrieb zu gewährleisten, sind die Laserdioden in einen Abstandshalter aus Kupfer eingebaut. Auf der Oberseite des Kupferblocks ist ein Peltierelement angebracht, welches eine Temperaturdifferenz zwischen seiner Ober- und Unterseite abhängig vom angelegten Strom erzeugt. Die kalte Seite wird zur Kühlung der Laserdiode verwendet. Um von der warmen Seite des Peltierelements die Wärme abzuführen, wird auf diesem zusätzlich ein aktiver Kühlkörper angebracht. Alle Komponenten sind mit Wärmeleitkleber verbunden um eine möglichst gute Wärmeleitung zu ermöglichen. Der Abstandshalter ist in zwei Teile geteilt, die durch ein etwa einen Zentimeter dickes Stück glasfaserverstärkten Kunststoff thermisch entkoppelt sind. Dadurch wird verhindert, dass die Kühlung den gesamten Aufbau kühlen muss. Ein Foto einer Laserdiode ist in Abbildung 4.28 gezeigt.

¹⁰Roithner Lasertechnik GmbH, Wiedner Hauptstraße 76, A-1040 Vienna, Österreich

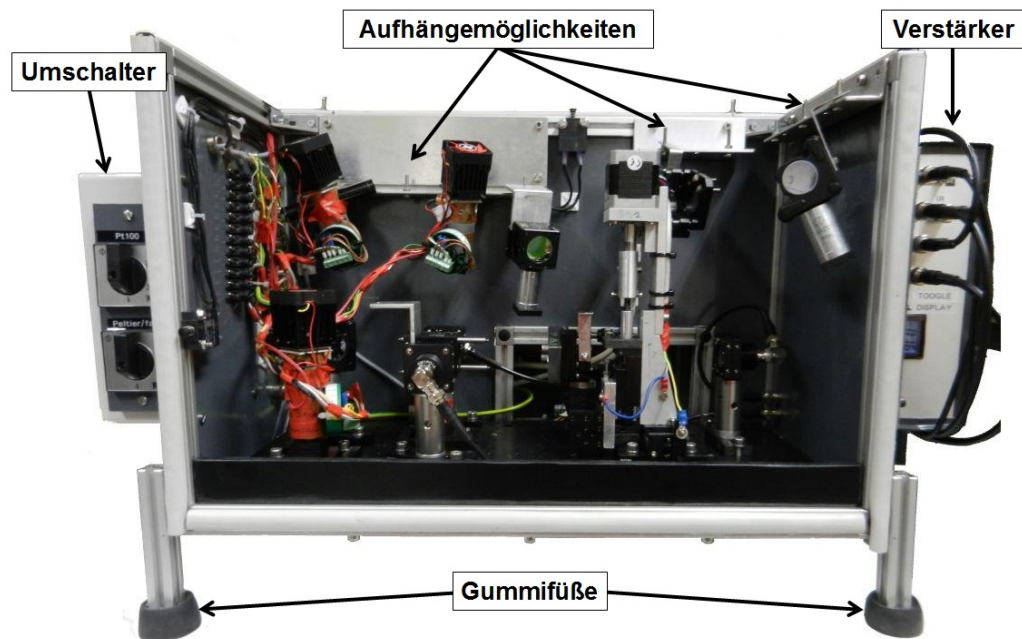


Abbildung 4.26: Fotografie des geöffneten TR-Aufbaus. Mit dem Umschalter kann zwischen den Peltierelementen und Lüftern der Laserdioden sowie davon unabhängig zwischen den Temperatursensoren gewechselt werden.

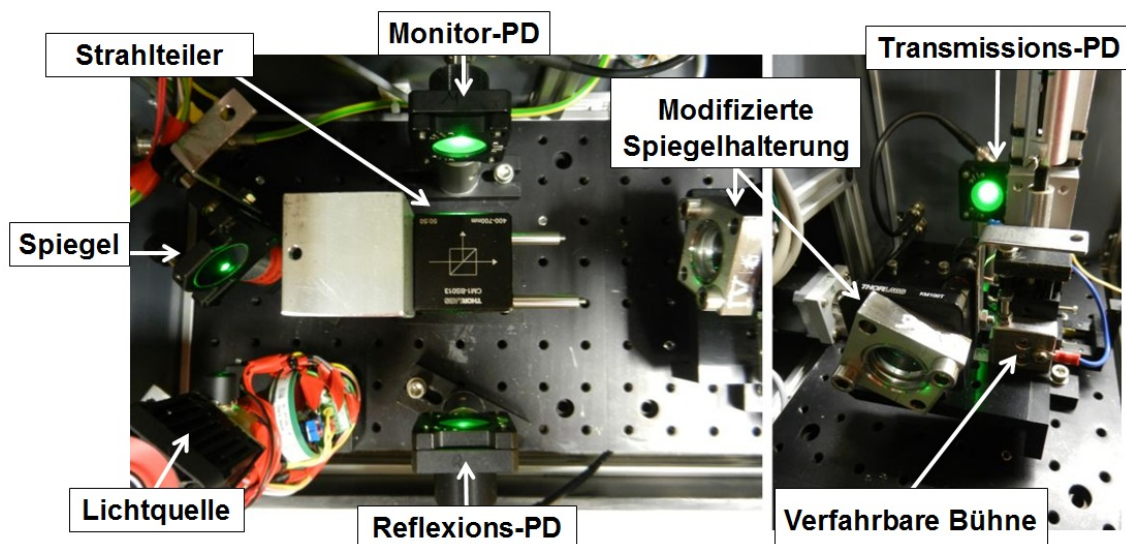


Abbildung 4.27: Fotografie des Strahlengangs des TR-Aufbaus. Das Bild zeigt den Strahlengang unter Verwendung der Laserdiode 1. In den Strahlengang eingebracht ist eine nicht eingeschweißte Probe.

Tabelle 4.3: Zuordnung von Probenart zu verwendeter Laserdiode

Probenziffer	Wellenlänge in nm	Nummer der Laserdiode
1	593	2
2	1064	3
3	1064	3
4	1064	3
4	593	2
5	593	2
6	593	2
6	532	1
I	532	1
II	532	1
III	532	1
III	532	1
beschädigtes Raman-Fenster	532	1
beschädigtes Laser-Fenster	532	1

Tabelle 4.4: Übersicht über die Eigenschaften der verwendeten Laserdioden.
DPSS = diodengepumpter Festkörperlaser

	LD1	LD2	LD3
Laserart	DPSS	DPSS	DPSS
Wellenlänge in nm	532	593,5	1064
Leistung in mW	< 5	0,6 - 2	5
Laserklasse	3R	3R	3B
Strahldurchmesser in mm	verstellbar	1,5	1,5
Strahldivergenz in mrad	-	< 1,5	1,5
verwendete Lasermode	TEM ₀₀	nahe TEM ₀₀	
Einsatztemperatur in °C	20 - 30	25 ± 2	20 - 30
Größe des Gehäuses in mm	12 x 36	15 x 90	12 x 40
Quelle	[Roi10a]	[Roi10c]	[Roi10b]

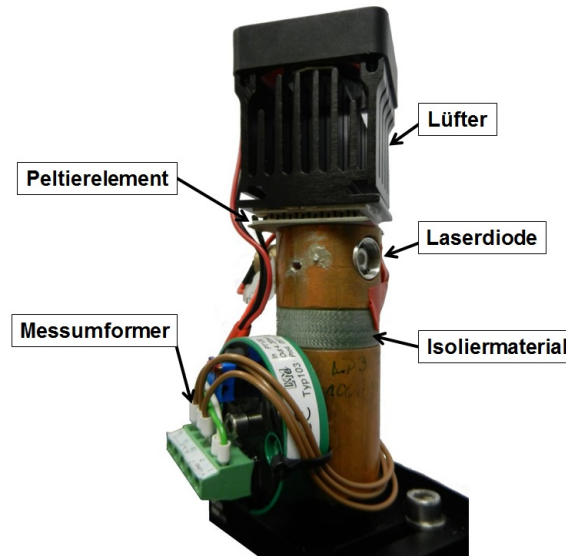


Abbildung 4.28: Fotografie der Laserdiode 3. Neben dem im Text beschriebenen Peltierelement und Kühler, ist am oberen Teil des Abstandshalters ein Pt100-Temperaturfühler angebracht. Auch der Messumformer ist direkt am Abstandshalter befestigt.

Die Regelung der Peltierelemente wird über einen Temperaturcontroller geleistet, der als momentanes Temperatursignal den Widerstandswert von an den Lichtquellen angebrachten Thermistoren erhält. Die Kalibration dieser Thermistoren wird mit Hilfe eines nach DIN EN 60751 genormten Pt100-Messwiderstands, der am oberen Teil des Kupferblocks angebracht wird, durchgeführt (eine genauere Beschreibung der Kalibration der Photodioden kann in Anhang G gefunden werden). Die mittels Multimeter gemessenen Widerstandswerte R_{Pt} des Pt100 können mit den Widerstandswerten der Thermistoren R_T in folgende Relation gesetzt werden:

$$R_{Pt}(R_T) = m \cdot R_T + b. \quad (4.1)$$

Alle verwendeten Thermistoren sind typgleiche 200 k Ω NTC-Temperatursensoren, bei deren Auswahl auf einen maximal um ± 2 k Ω abweichenden Widerstandswert bei Raumtemperatur geachtet worden ist. Aus diesem Grund ist davon auszugehen, dass sich die verwendeten Temperatursensoren in Bezug auf ihr Temperaturverhalten gleichen. Aus der Formel

$$T(R_T) = -100 \cdot A + \frac{\sqrt{100^2 \cdot A^2 - 4 \cdot (100 - (m \cdot R_T + b)) \cdot 100 \cdot B}}{2 \cdot 100 \cdot B} \quad (4.2)$$

und aufgenommenen Messwerten kann somit für den bei allen späteren Messungen eingestellten Widerstandswert von 95,8 k Ω eine Temperatur von 23,7°C bestimmt werden.

Temperaturcontroller

Zur Regelung der Peltierelemente wird der TTC001 Temperaturcontroller von THORLABS genutzt. Als Eingangssignal dient diesem der Widerstand der an den Laserdioden eingebauten Temperatursensoren.

Spiegel

Es werden zwei Spiegel für die unterschiedlichen Wellenlängen der Laserdioden benötigt. Für LD1 und LD2 wird der Spiegel BB1-E02 von THORLABS verwendet. Dieser ist für

Licht im Bereich von 400 bis 750 nm geeignet. Für LD3 wird das Modell BB1-E03 verwendet, das auf Wellenlängen im Bereich von 750 bis 1100 nm optimiert ist. Beide Spiegel sind in eine KM100-Spiegelhalterung eingefasst, die eine Einstellung der Spiegelausrichtung erlaubt. Diese ist über einen Abstandshalter aus Aluminium auf einem magnetischen Fuß befestigt, damit der Strahlengang nach dem Wechseln des Spiegels nicht neu ausgerichtet werden muss.

Photodioden

Monitor-, Transmissions- und Reflexionsphotodiode sind vom Typ SM1PD1A von THORLABS. Dieses spezielle Modell ist deshalb ausgewählt worden, da mit ihm bereits im LARA-Aufbau Erfahrungen gesammelt werden konnten. Hier wird die SM1PD1A-Photodiode zur Überwachung der Laserintensität genutzt. Im TR-Aufbau sind die Photodioden in eine CP02/M-Halterung eingefasst, die wiederum auf einem Abstandshalter aus Aluminium befestigt ist. Direkt vor ihnen wird ein Mattglasdiffuser an der Halterung angebracht, um das Licht zu zerstreuen. Hierdurch werden durch Interferenz auftretende Effekte vermindert.

Eine Kalibration der Photodioden kann über die detektierte Lichtintensität stattfinden (eine genauere Beschreibung der Kalibration der Photodioden ist in Anhang G gegeben). Die Lichtintensität I_x (x beschreibt die Position der Monitor-, Reflexions- oder Transmissionsphotodiode) hängt von der Intensität der Laserdioden, von einem Faktor R_x , der den Einfluss des Aufbaus auf die Intensität beschreibt, und von der Sensitivität S_i (i beschreibt die jeweilige Photodiode) ab:

$$I_x = I_0 \cdot R_x \cdot S_i. \quad (4.3)$$

Wird jeweils die Intensität an zwei Photodioden gemessen und danach deren Position getauscht, kann ein von den Größen R_x und S_i unabhängiges Verhältnis V_j gebildet werden. Wird dies für zwei unterschiedliche Kombinationen an Photodioden durchgeführt, können folgende Sensitivitäten berechnet werden.

$$S_1^2 = \frac{V_1}{V_2} S_2^2 = 0,987 \cdot S_2^2 \quad (4.4)$$

$$S_3^2 = \frac{V_1}{V_2} S_2^2 = 0,979 \cdot S_2^2 \quad (4.5)$$

Diese Sensitivitäten sind in allen in dieser Arbeit gezeigten Messdaten bereits berücksichtigt.

Strahlteiler

Auch der Strahlteiler wird in zwei Varianten verwendet. Für LD1 und LD2 wird der auf die Wellenlängen 400 bis 700 nm optimierte CM1-BS013 und für LD3 der auf 700 bis 1100 nm optimierte CM1-BS014 verwendet. Zum einfachen Auswechseln sind die Abstandshalter, auf denen die Strahlteiler angebracht sind, wiederum auf magnetische Füße montiert. In beiden Fällen teilt der Strahlteiler den ankommenden Lichtstrahl etwa zu gleichen Teilen in einen in ursprünglicher Richtung verlaufenden und einen um 90° dazu abgewinkelten Strahl.

Verfahrbare Bühne

Die verfahrbare Bühne ist aus zwei um jeweils 20 mm verstellbaren Verschiebetischen der Firma EKSMA¹¹ zusammengebaut. Sie ermöglicht eine Bewegung in x- und z-Richtung, den beiden Richtungen senkrecht zum Laserstrahl. Um eine Automatisierung der Messung

¹¹EKSMA OPTICS, c/o Optolita UAB, Mokslininku str. 11, LT-08412, Vilnius, Litauen

zu erreichen, wurden die Mikrometerschrauben durch Wellen für Schrittmotoren der Firma BRALL¹² ersetzt. Die Schrittmotoren können über LabVIEW angesteuert werden. Zusätzlich erhöhen die Schrittmotoren die Reproduzierbarkeit der Messung deutlich. So wird die verfahrbare Bühne durch jeden Schritt eines Motors genau um $2,5\text{ }\mu\text{m}$ bewegt. Fehler, die durch die Richtungsänderung der Motoren verursacht werden, werden bestmöglich über eine Software kompensiert. Daher kann von einer Reproduzierbarkeit der angefahrenen Punkte von etwa $\pm 2,5\text{ }\mu\text{m}$ ausgegangen werden. Zu Beginn einer jeden Messung wird zudem eine Kalibrierung der Position der Bühne über Endschalter vorgenommen.

Modifizierte Spiegelhalterung zur Probenaufnahme

Über einen magnetischen Fuß werden die beiden modifizierten KM100T-Spiegelhalterungen zur Probenaufnahme auf der verfahrbaren Bühne befestigt. Sowohl für eingeschweißte Fenster als auch für nicht eingeschweißte Fenster steht eine solche Spiegelhalterung zur Verfügung. Um die nicht eingeschweißten Fenster auf der Spiegelhalterung zu fixieren, sind zwei Gewinde (M5) so in die Spiegelhalterung geschnitten worden, dass sich die Probe nach der Fixierung mit Schrauben im Mittelpunkt der Öffnung der Spiegelhalterung befindet (siehe Abbildung 4.27). Die Spiegelhalterung für die eingeschweißten Proben ist durch drei eingeklebte Schrauben (M3) erweitert worden, auf die die Proben aufgefädelt werden können.

Verstärker

Der Transimpedanzverstärker wandelt das Stromsignal der Photodioden in ein verstärktes Spannungssignal um. Der Strom der Monitorphotodiode erfährt an diesem eine feste Verstärkung um den Faktor 2000. Auch der Strom entweder der Transmissions- oder der Reflexionsphotodiode kann verstärkt werden. Hier kann jedoch zwischen einer Verstärkung von 5 000 und 100 000 gewählt werden. Der Verstärker befindet sich an der rechten Seite des Gehäuses.

Interlock-Schaltung

Der Interlock ist eine Sicherheitseinrichtung. Am Gehäuse sind zwei Druckschalter montiert, die durch das Öffnen des Deckels ebenfalls geöffnet werden. Hierdurch wird der Schaltkreis, in den die Laserdioden integriert sind, geöffnet. Somit werden die Laserdioden automatisch ausgeschaltet, wenn der Deckel geöffnet wird, wodurch eine versehentliche Gefährdung von Personen ausgeschlossen wird.

Temperaturfühler

Zur Überwachung der Temperatur innerhalb des Gehäuses ist unterhalb des Breadboards ein Pt100-Temperaturfühler angebracht.

Umschalter

Über die an der linken Seite des Gehäuses angebrachten Umschalter (siehe Abbildung 4.26, Seite 77) kann zwischen den Peltierelementen und den zugehörigen Lüftern sowie den an den Laserdioden angebrachten Temperatursensoren gewählt werden.

Messrechner

Auf dem Messrechner ist die Datennahme-Software installiert, mit der sowohl die Schrittmotoren angesteuert als auch die Messwerte der Photodioden und Temperaturfühler aufgezeichnet werden.

¹²Brall Software GmbH, Postfach 1162, 36200 Sontra, Deutschland

Analog-Digital-Wandler (ADC)

Dem ADC dienen als Eingangssignale die Spannungen der Signale des Boxenluft-Temperaturfühlers und eines Temperaturfühlers, der die Temperatur der Lichtquelle misst sowie der verstärkten Signale von Monitorphotodiode und einer zweiten Photodiode. Über ein USB-Kabel können die Ausgangssignale vom Messrechner verarbeitet werden.

Schaltkasten

Der Schaltkasten enthält alle zur Versorgung der Komponenten nötigen Netzteile, sowie die Platine zur Ansteuerung der Schrittmotoren, den Temperaturcontroller und den ADC.

Auch beim TR-Aufbau müssen alle Kabel, die von innerhalb der Handschuhbox nach außen gelangen, mit einer Durchführung versehen werden. Der gesamte Aufbau und damit auch die Durchführungen sind vor einem Einbau in die Handschuhbox auf Funktion getestet worden.

Damit ist geklärt, wie eine Realisierung der Messmethoden für die Nutzung in einer Handschuhbox aussehen kann. Im nächsten Abschnitt wird nun die Frage geklärt, welche Handschuhbox zur Aufnahme der Messapparaturen geeignet ist.

4.5.4 Handschuhbox zur Unterbringung des Mikroskops und des Laseraufbaus

Um die im letzten Abschnitt beschriebenen Messmethoden für die Proben verwenden zu können, muss eine Handschuhbox gefunden werden, in die diese eingebaut werden können. Für die Auswahl gibt es vor allem zwei Kriterien.

Zum einen muss genügend Platz in der Handschuhbox vorhanden sein, um den TR-Aufbau und das optische Mikroskop unterzubringen. Danach muss noch bequem mit den Proben hantiert werden können.

Zum anderen müssen die Messapparaturen in die Handschuhbox eingebaut werden. Dies ist nur über eine sogenannte Intervention möglich, bei der eine der Scheiben von der Handschuhbox entfernt wird. Das Entfernen einer Scheibe ist jedoch nur dann möglich, wenn die Kontamination der Boxenluft einen Wert von 1 MBq/m^3 nicht überschreitet.

Im Tritiumlabor Karlsruhe kommen aufgrund dieser Kriterien nur zwei Handschuhboxen in Frage. Die eine ist die sogenannte EBX-, die andere die Omegatron-Handschuhbox. Da die EBX-Handschuhbox zur Aufbewahrung von Gassammelrohren verwendet wird, die häufiger innerhalb des Tritiumlabors transportiert werden müssen, soll in dieser Handschuhbox nicht mehr als unbedingt nötig mit Tritium gearbeitet werden. Aus diesem Grund wird die Omegatron-Handschuhbox für die Messapparaturen des Experiments dienen.

Ein Vorteil der Omegatron-Handschuhbox besteht darin, dass sie über zwei Schleusen verfügt, eine große mit einem Innendurchmesser von etwa 40 cm und einer Tiefe von knappen 40 cm sowie eine kleine mit einem Innendurchmesser von 15 cm und einer Tiefe von 40 cm. Kleine Schleusen bieten den Vorteil, dass die vor dem Öffnen der Schleuse nötige Evakuierung deutlich schneller als bei einer Schleuse mit größerem Volumen möglich ist. Somit können kleine Gegenstände innerhalb weniger Minuten durch die kleine Schleuse geschleust werden. Trotzdem besteht die Möglichkeit des Schleusens sperriger Gegenstände über die große Schleuse.

Ein Nachteil der Omegatron-Handschuhbox ist, dass sie nicht inertisiert ist. Es muss daher bei jeder Untersuchung der Proben mit einem deutlichen Anstieg der Kontamination der Boxenluft gerechnet werden.

Damit ist auch der Standort der Versuchseinrichtung zur Untersuchung der optischen Eigenschaften der Proben gefunden. Insgesamt werden die Proben innerhalb von drei Handschuhboxen gehandhabt werden, zwei im Tritiumlabor Karlsruhe und eine im FML. Daher stellt sich die Frage, wie die Proben zwischen den Standorten sicher transportiert werden können. Diese Frage wird im nächsten Kapitel beantwortet.

4.6 Transport der Proben zwischen den verschiedenen Versuchseinrichtungen

Da sich die Versuchseinrichtungen des Experiments an insgesamt drei unterschiedlichen Standorten befinden, stellt sich die Frage, wie ein Transport zwischen diesen Standorten sicher realisiert werden kann.

Um die Proben nicht nur durch das Gestänge gesichert zu transportieren, wird ein sogenannter Transportbehälter verwendet. Dieser ist typgleich zu den Probenbehältern I und II gefertigt worden. Daher passen alle Arten von Gestängen auch in den Transportbehälter. Der einzige Unterschied zwischen den Proben- und dem Transportbehälter ist, dass letzterer mit einem Blindflansch verschlossen wird. Da auch der Transportbehälter nach den TLA des Tritiumlabors Karlsruhe gefertigt worden ist, zeichnet er sich durch eine Leckrate kleiner $1 \cdot 10^{-9}$ mbar $\cdot$ l/s aus. Der Transportbehälter ermöglicht somit eine für die Proben und den Transporteur sicheren Transport zwischen den Handschuhboxen.

Aufgrund der Tatsache, dass die CAPER A-Handschuhbox nur sehr wenig Platz bietet und sich die Schleuse am anderen Ende der etwa 6 Meter langen Handschuhbox befindet, ist neben der sehr zeitaufwändigen Möglichkeit, den Probenbehälter mit Hilfe mehrerer Personen innerhalb der Handschuhbox zur Schleuse zu bringen, ein zweiter möglicher Weg zum Ausschleusen erarbeitet worden. Dieser sieht vor, den Transportbehälter durch einen Handschuhdeckel zu schleusen. Eine genaue Beschreibung dieses Vorgangs kann in Anhang F gefunden werden. Diese Methode ist mit deutlich weniger Zeitaufwand verbunden. Es muss allerdings bedacht werden, dass der Vorgang eine Intervention darstellt, bei der die zweite Hülle der CAPER A-Handschuhbox kurzzeitig geöffnet wird. Diese Art von Schleusvorgang darf nur durchgeführt werden, wenn die Kontamination der Boxenluft unter 5 MBq/m^3 liegt. Es ist jedoch damit zu rechnen, dass direkt nach der Öffnung des Probenbehälters die Aktivität innerhalb der Handschuhbox über diesen Wert ansteigen wird. Da weder der Anstieg der Aktivität noch deren Reduktion nach dem Anstieg vorhergesagt werden kann, muss in einer zeitlichen Planung von einem Schleusvorgang über die Schleuse ausgegangen werden. Dies ist vor allem deshalb sinnvoll, da diese Variante immer, unabhängig von der Kontamination der Boxenluft, durchgeführt werden kann. Ein Ausschleusvorgang ist insgesamt mit einem Zeitaufwand von mindestens einer Stunde verbunden.

Wenn der Behälter nach den Untersuchungen in die CAPER-A-Handschuhbox zurück transportiert wird, muss dieser erneut geschleust werden. Auch hier bieten sich die Möglichkeiten des Schleusens über die Schleuse und über den Handschuhdeckel. Jedoch ist anzunehmen, dass die Kontamination der Boxenluft geeigneter für die Variante über den Handschuhdeckel ist als dies beim Ausschleusvorgang der Fall war, da zuvor kein Probenbehälter geöffnet worden ist. Auch hierfür kann ein zeitlicher Aufwand von etwa einer Stunde veranschlagt werden.

Für den Transport zwischen Tritiumlabor und FML müssen zusätzlich die Bestimmungen der "Transportordnung für den internen Transport radioaktiver Stoffe auf dem Gelände des Forschungszentrums Karlsruhe" [Tec09] erfüllt werden. Diese Ordnung besagt, dass bei Regeltransporten ein für den Transport von radioaktiven Gegenständen autorisierter Behälter verwendet werden muss. Der Transportbehälter ist daher zusätzlich in einen solchen Behälter einzubringen. Zudem darf die festhaftende Kontamination an der Außenseite des autorisierten Behälters bei β -Strahlern einen Wert von 1 Bq/m^3 nicht übersteigen. Auch müssen Transportpapiere für jeden Transport zum FML und zurück zum Tritiumlabor ausgefüllt werden. Für den Transport zwischen den Laboren werden daher Mitarbeiter des

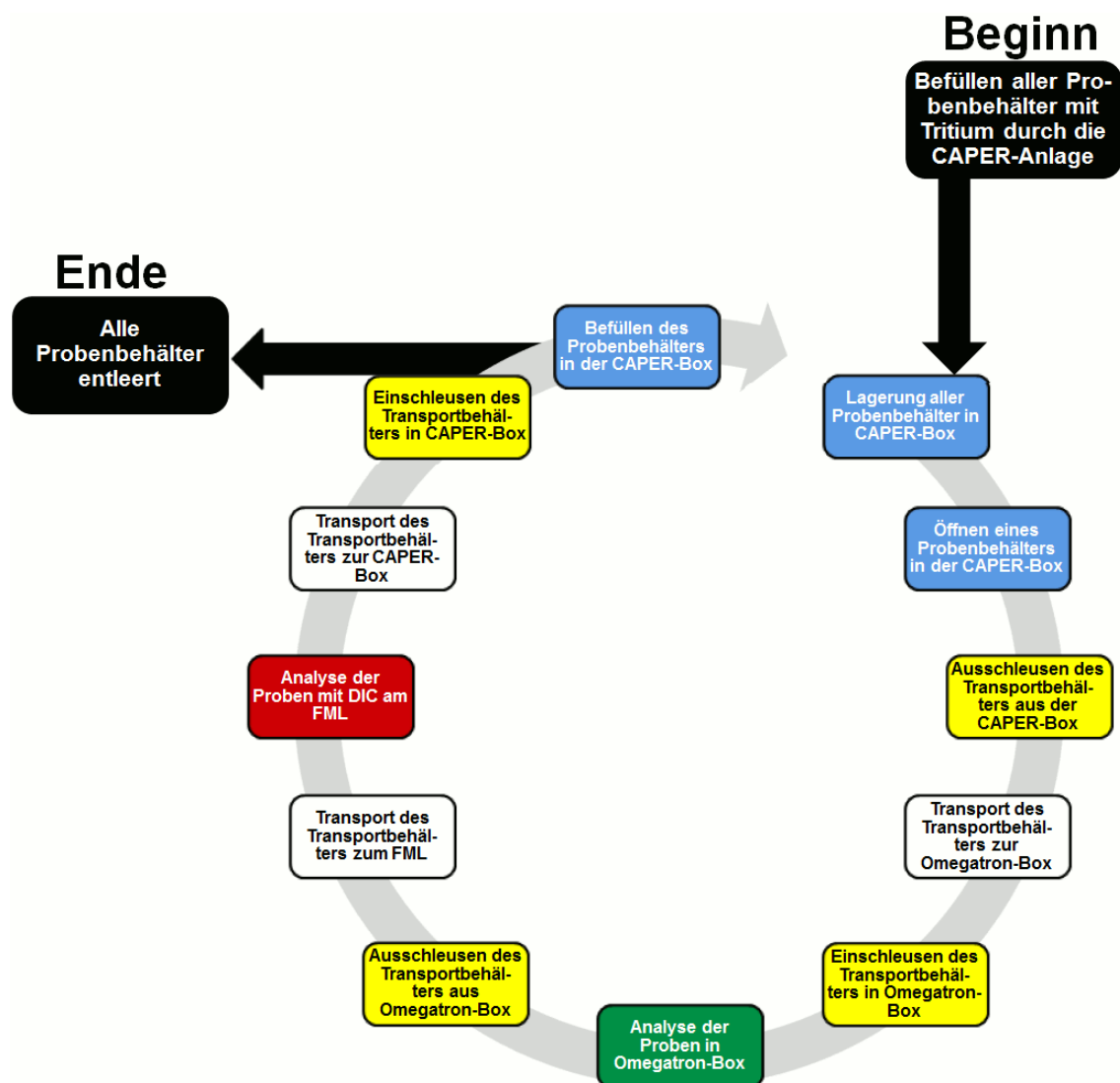


Abbildung 4.29: Schematischer Ablauf eines Messzyklus. Beginn und Ende des Experiments, das Befüllen und Evakuieren aller vier Probenbehälter, sind in der Abbildung schwarz dargestellt. Arbeitsschritte, die innerhalb der CAPER A-Handschuhbox stattfinden, haben die Farbe blau. Die Analyse in der Omegatron-Handschuhbox ist grün, die am FML rot eingefärbt. Ein gelber Hintergrund markiert Schleusvorgänge an den Handschuhboxen und Felder, die keine Hintergrundfarbe aufweisen, signalisieren einen Transport zwischen den drei Standorten des Experiments. Ein genauerer Ablauf kann Abbildung 4.36 auf Seite 97 entnommen werden.

Strahlenschutzes und die zuständigen Strahlenschutzbeauftragten beider Labore benötigt. Insgesamt muss damit gerechnet werden, dass diese Transporte je etwa einen halben Tag in Anspruch nehmen.

Um die Notwendigkeit der Transporte innerhalb eines Messzyklus eines Probenbehälters zu verdeutlichen, ist der Ablauf der Arbeiten zur Untersuchung der Proben eines Probenbehälters in Abbildung 4.29 grob skizziert. Nachdem ein Probenbehälter evakuiert und geöffnet worden ist, wird das Gestänge mitsamt Proben aus diesem entnommen, in den Transportbehälter eingebracht und dieser verschlossen. Als zusätzlichen Schutz vor an der Oberfläche des Transportbehälters anhaftender Kontamination wird der Transportbehälter nach dem Schleusvorgang in einen Plastikbeutel verpackt und auf schnellstem Wege zur Omegatron-Handschuhbox transportiert und hier eingeschleust. Zudem wird mit regelmäßigen Wischtests eine mögliche Kontamination der an den Schleusvorgängen zwischen den Versuchseinrichtungen beteiligten Komponenten überwacht.

In der Omegatron-Handschuhbox finden die Untersuchungen mittels optischen Mikroskops und TR-Aufbaus statt. Danach werden an den Proben Wischtests durchgeführt, um für den Transport zum FML eine Aussage über die Aktivität der Proben treffen zu können. Die Proben werden nun wieder in den Transportbehälter eingebracht, aus der Omegatron-Handschuhbox ausgeschleust und in dem autorisierten Behälter verstaut. Dabei wird der Transportbehälter wiederum in eine Plastikfolie eingepackt, um sicherzustellen, dass die Innenseite des autorisierten Behälters nicht kontaminiert wird.

Nach den Untersuchungen am FML und dem Rücktransport des autorisierten Behälters, wird aus diesem der Transportbehälter entnommen und in die CAPER A-Handschuhbox eingeschleust. Ist das Gestänge wieder in den jeweiligen Probenbehälter eingebaut, wird dieser verschlossen und erneut mit einem Tritiumgasgemisch befüllt.

Damit ist auch die Frage geklärt, wie die Proben zwischen den verschiedenen Standorten der Versuchseinrichtungen transportiert werden können. Im folgenden Abschnitt wird nun das Messprinzip sowie die Auswertung und Interpretation der gewonnenen Daten beschrieben.

4.7 Messprinzip und Verfahren zur Auswertung und Interpretation der Messdaten

In diesem Abschnitt werden die Verfahren vorgestellt, mit denen eine Auswertung und spätere Interpretation der Messdaten möglich ist. Besonders eingegangen wird dabei auf die Auswertung der Messdaten der TR-Messung.

Um eine Aussage darüber treffen zu können, ob sich die Eigenschaften der Beschichtungen im Laufe der Messung verändern, werden Referenzmessungen noch außerhalb der Handschuhbox durchgeführt. Mit diesen Ergebnissen können die späteren Ergebnisse verglichen werden. Besonders im Falle des optischen Mikroskops sind diese Referenzmessungen von großer Bedeutung, da hier die Auswertung einzig auf dem Vergleich der Bilder vor und nach der Beaufschlagung mit Tritium besteht. Um eine Unterscheidung zwischen Staubpartikeln und Beschädigungen zu ermöglichen, werden sowohl Auf- als auch Durchlicht Bilder aufgenommen. Staubpartikel, die auf der Oberfläche der untersuchten Probenseite anhaften, erscheinen im Durchlicht dunkel, im Auflicht jedoch hell. Eine Beschädigung

könnte aufgrund gesteigerter Absorption dazu führen, dass Beschädigungen in beiden Fällen als dunkle Flecken wahrnehmbar sind. Zudem müssen für jede der nicht eingeschweißten Proben jeweils ein Bild für den oberen und ein Bild für den unteren Bereich der Probe aufgenommen werden.

Für das DIC-Mikroskop stellt sich die Bedeutung der Referenzmessungen etwas anders dar. So wird durchaus ein Vergleich zwischen anfänglichen und späteren Messungen durchgeführt; doch können mit dem DIC-Mikroskop auch Strukturen von etwa $10\text{ }\mu\text{m}$ aufgelöst werden. Dies ermöglicht eine gezielte Suche nach Beschädigungen. Zudem wird ein großer Teil der Interpretation durch die Mitarbeiter des FML geleistet, da schon bei der Aufnahme der Bilder eine Wertung erfolgt. Dabei kann auf eine langjährige Erfahrung bei der Nutzung des DIC-Mikroskops und der Interpretation der auftretenden Phänomene zurückgegriffen werden.

Auch bei der TR-Messung müssen Vergleiche mit vor der Beaufschlagung durchgeführten Referenzmessungen zur Interpretation herangezogen werden. Hierfür wird zunächst betrachtet, wie die Daten aufgenommen werden: Um eine von Schwankungen der Laserdiodenleistung unabhängige Messung zu erzielen, wird jeweils das Verhältnis aus Monitor- und Reflexions- bzw. Transmissionsphotodiode gebildet. Dies bewirkt, dass sich eine höhere Reflexion in einem geringeren Zahlenwert widerspiegelt. Wenn daher im Folgenden von einer gesteigerten Reflexion gesprochen wird, ist der gemessene Wert gesunken. Um die optischen Eigenschaften über beinahe die gesamte Oberfläche der Probe analysieren zu können, werden die Proben abgerastert. Für die nicht eingeschweißten Proben werden 113 Messpunkte eines parametrisierten Kreises mit dem Radius 9 mm angefahren. Die Messpunkte sind jeweils 1,5 mm voneinander entfernt. Da der Strahldurchmesser der Laserdioden ebenfalls mindestens 1,5 mm beträgt, wird auf diese Weise beinahe die gesamte Fläche des Kreises während der Messungen beleuchtet.

In Abbildung 4.30 sind die Messpunkte der nicht eingeschweißten Proben in das später zur Darstellung der Messwerte verwendete Koordinatensystem eingezeichnet. Ebenfalls zu sehen sind in dieser Abbildung die Messpunkte für die eingeschweißten Proben. Der Abstand der Messpunkte beträgt bei diesem Probetyp 1 mm. Es wird ein Rechteck von 4 mal 2 mm abgerastert, was 15 Messpunkten entspricht.

Bei beiden Probentypen wird die Probe nicht bis zum Rand hin ausgeleuchtet, um zu verhindern, dass durch eine minimale Dejustage des Strahlengangs der Laserstrahl den Rand der Einfassung bzw. des Sicherungsrings trifft. Dies hätte eine Verfälschung der Messdaten zur Folge, da sich die Lichtintensität auf den Photodioden verändern würde.

Die Messzeit an jedem der oben beschriebenen Messpunkte beträgt, wie in Abschnitt 4.8.1 noch näher erläutert wird, jeweils 10 s. Für jeden Messpunkt und jede Sekunde werden 1000 Messwerte für die Monitor- und Transmissions- bzw. Reflexionsphotodiode aufgenommen. Aus diesen Messwerten werden die Mittelwerte und die zugehörigen Standardabweichungen für die beiden Photodioden bestimmt. Diese auf eine Sekunde Messzeit bezogenen Mittelwerte werden genutzt, um das Verhältnis aus Monitor- und zweitem Photodiodensignal zu bestimmen. Die zehn so errechneten Verhältnisse werden schließlich für einen gewichteten Mittelwert des Verhältnisses und dessen Standardabweichung für jeden Messpunkt genutzt. Um eine Charakterisierung der gesamten Oberfläche zu erreichen, wird ein Mittelwert über alle gewichteten Mittelwerte der Messpunkte berechnet. Sofern mehrere Messungen an einer Probe durchgeführt worden sind, werden die Mittelwerte, die die gesamte Oberfläche beschreiben, zur Berechnung eines Mittelwerts der Probe und dessen

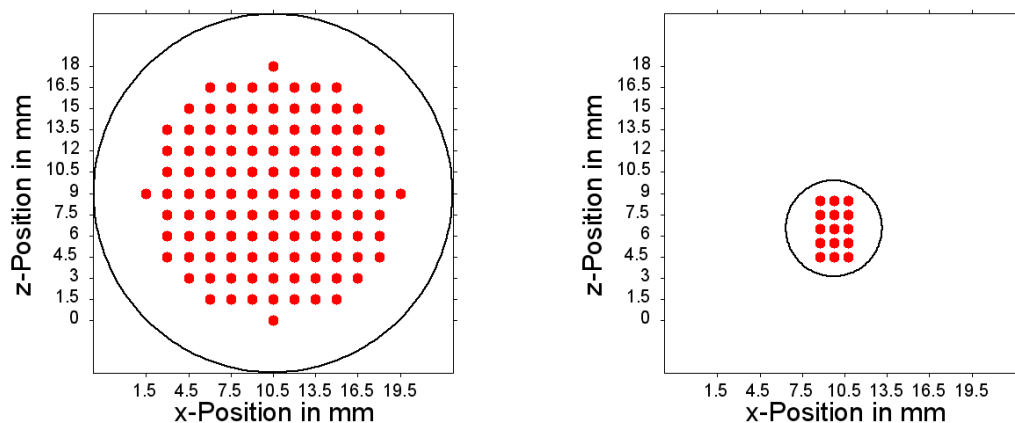


Abbildung 4.30: Diagramm zur Darstellung der Position der Messpunkte der TR-Messung für beide verwendete Probentypen. Links: Die Messpunkte sind zusammen mit dem Umriss der Probenfläche (durchgezogene Linie) dargestellt. Die Achsenbeschriftung ist die gleiche, wie sie in den folgenden Diagrammen verwendet wird. Rechts: Hier sind die Messpunkte der eingeschweißten Proben in das Diagramm eingezeichnet. Auch hier ist der Umriss der Fenster mit in das Diagramm eingezeichnet. Um die Größenunterschiede zwischen den Messpunkten und die dichtere Anordnung der Messpunkte zu verdeutlichen, sind diese in das gleiche Koordinatensystem wie die Messpunkte der nicht eingeschweißten Proben eingetragen.

Standardabweichung genutzt. Auf diese Weise kann ein als Größenordnung zu betrachtender Wert für das Reflexions- und Transmissionsverhalten angegeben werden.

Bei einem Vergleich der Werte für Reflexions- und Transmissionsmessung muss immer beachtet werden, dass maximal die Hälfte des reflektierten Lichtes auf die Reflexionsphotodiode trifft, da das Licht ein zweites Mal durch den Strahlteiler geführt wird. Diesen Effekt aus den Daten herauszurechnen ist nur schwer möglich, da nicht genau bekannt ist, welchen Prozentanteil an Licht der Strahlteiler bei den unterschiedlichen Wellenlängen ablenkt.

Bevor diese Daten jedoch untereinander verglichen werden können, müssen die Sensitivitäten der Photodioden und der Verstärkungsfaktor zwischen dem Signal der Monitorphotodiode und der zweiten verwendeten Photodiode (siehe jeweils Abschnitt 4.5.3 und Anhang G.2) in die Daten eingerechnet werden. Alle in dieser Arbeit gezeigten Werte enthalten diese Faktoren bereits. In Anhang H werden die Mittelwerte der gemessenen Verhältnisse der Monitorphotodiode zur Reflexions- bzw. Transmissionsphotodiode gezeigt. Eine graphische Auftragung zu den im Anhang gezeigten Messdaten ist für jede der Proben im Kapitel 5 vorhanden.

Die Darstellung der Daten erfolgt über eine Farbskala, aufgetragen in einem Koordinatensystem, das die x- und z-Position der Messpunkte angibt. Jedem Messpunkt werden vier Farbpixel zugeordnet, die zu den Nachbarpixeln hin geglättet werden. Durch diese Glättung kann es allerdings im Randbereich zu Fehlstellen von Pixeln und zusätzlichen Pixeln kommen. Beim Vergleich zweier Darstellungen muss beachtet werden, dass die Proben durch eine geänderte Befestigung an der modifizierten Spiegelhalterung um einen Winkel von 90° , 180° oder 270° gegenüber den Referenzmessungen gedreht sein können. Zudem müssen die Proben für die Untersuchung mittels DIC-Mikroskop aus ihrer Probenhalterung entnommen werden. Sie werden daher nach einer Untersuchung mittels DIC-Mikroskop immer um einen bestimmten Winkel gegenüber vorherigen Messungen gedreht sein.

Zusammenfassend werden zur Interpretation der Messdaten der TR-Messung zum einen der Mittelwert und die Standardabweichung der Messung über die gesamte Oberfläche der einzelnen Proben zur Verfügung stehen. Zum anderen wird eine grafische Darstellung der Messdaten der einzelnen Messpunkte eine ortsbezogene Interpretation ermöglichen, sofern für den Mittelwert Veränderungen erkennbar sind. Es ist jedoch zu beachten, dass bisher noch keine Erfahrungen mit TR-Messungen vorhanden sind. Daher können an dieser Stelle keine genauen Kriterien definiert werden, mit deren Hilfe eine Beschädigung identifiziert werden kann. Es wird jedoch davon ausgegangen, dass sich sowohl Reflexions- als auch Transmissionskoeffizient im Falle einer Beschädigung ändern.

Somit ist auch die Frage nach den Auswertungs- und Interpretationsmethoden für die unterschiedlichen Versuchseinrichtungen zur Überwachung der optischen Eigenschaften geklärt. Dieses Wissen kann nun in der Inbetriebnahme des TR-Aufbaus außerhalb der Handschuhbox, die im folgenden Abschnitt beschrieben wird, genutzt werden. Zudem wird im nächsten Abschnitt geklärt, wie der Einbau einer Versuchseinrichtung in eine bereits bestehende Handschuhbox vonstatten gehen kann.

4.8 Inbetriebnahme der im Tritiumlabor Karlsruhe verwendeten Versuchseinrichtungen und deren Einbau in die Handschuhbox

Nachdem die im Tritiumlabor Karlsruhe zu verwendenden Versuchseinrichtungen identifiziert und realisiert worden sind, müssen diese nun in die dafür vorgesehenen Handschuhboxen eingebaut werden. Da jedoch aufgrund einer deutlich erschwerten Handhabung des TR-Aufbaus innerhalb der Handschuhbox eine Inbetriebnahme schon außerhalb der Handschuhbox nötig wird, wird diese zunächst in Abschnitt 4.8.1 beschrieben. Die durchgeführten Messungen dienen zudem einem besseren Verständnis der mittels TR-Aufbau gewonnenen Daten.

Im Anschluss daran folgt in Abschnitt 4.8.2 die Beantwortung der Frage, wie eine Versuchseinrichtung in eine bereits bestehende Handschuhbox eingebaut werden kann. Grundlegend ist für den Einbau der Versuchseinrichtungen in die Handschuhboxen ein Öffnen der zweiten Hülle nötig. Aus diesem Grund müssen spezielle Sicherheitsregeln beachtet werden. In Abschnitt 4.8.3 wird auf die Inbetriebnahme der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben in der CAPER A-Handschuhbox eingegangen.

4.8.1 Inbetriebnahme der Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften außerhalb der Omegatron-Handschuhbox

Im Folgenden wird die Inbetriebnahme des TR-Aufbaus außerhalb der Handschuhbox beschrieben. Dabei werden zunächst die statistischen Fehler der Messdaten in Abhängigkeit von der Messzeit betrachtet. Auf diese Weise kann ein Kompromiss zwischen einer langen Messzeit und einem großen statistischen Fehler gefunden werden. Zudem wird die Vergleichbarkeit zweier Messungen an der gleichen Probe untersucht.

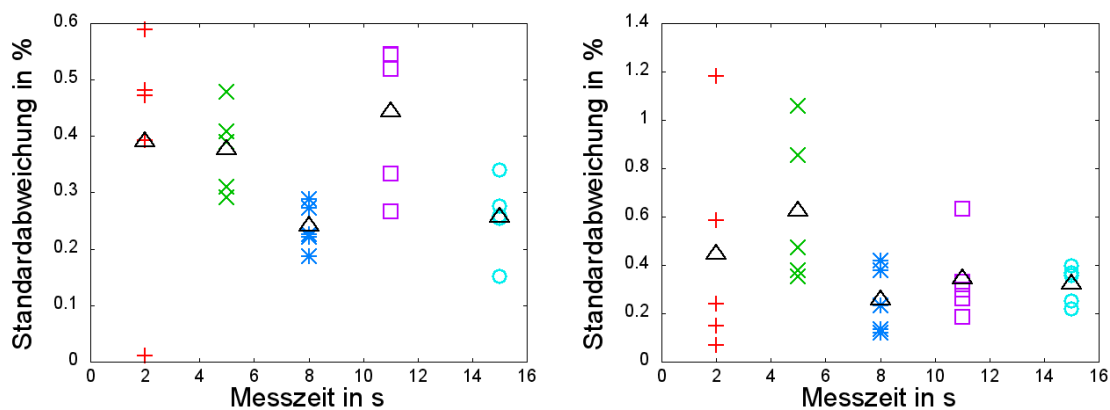


Abbildung 4.31: Diagramme der relativen Standardabweichung bei der Reflexions- und bei der Transmissionsmessung. Da bei der Auswertung der Ergebnisse das Verhältnis des Signals von Monitor- zu Reflexions bzw. Transmissionsphotodiode betrachtet wird, wird in den Diagrammen die Standardabweichung in Einheiten des Mittelwertes gezeigt. Verwendet wird in beiden Diagrammen die Probe I4. Die Diagramme stehen exemplarisch für die Messungen, die mit allen Proben durchgeführt worden sind. Links: Hier sind die relativen Standardabweichungen des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal mit unterschiedlicher Messdauer zu sehen. Mit schwarzen Dreiecken sind Mittelwerte der Standardabweichungen für jede Messzeit eingetragen. Rechts: Hier ist das gleiche Diagramm für den Quotienten aus Monitor- und Transmissionsphotodiodensignal gezeigt.

Untersuchung der statistischen Fehler der Messdaten in Abhängigkeit von der Messzeit

Um zu ermitteln, welche Messzeit am besten geeignet ist, um einen möglichst geringen statistischen Fehler mit einer angemessenen Gesamtmessdauer zu verbinden, werden für unterschiedliche Messzeiten die Standardabweichungen der Verhältnisse von Monitorphotodiode zu Reflexions- bzw. Transmissionsphotodiode über alle Messpunkte verglichen. Zu beachten ist, dass die Standardabweichung im Folgenden auch als der statistische Fehler der Messung bezeichnet wird.

In Abbildung 4.31 sind exemplarisch die Messdaten für die Probe I4 gezeigt, die mit der 593 nm Laserdiode bestrahlt wird. Die untersuchten Messzeiten sind 2 s, 5 s, 8 s, 11 s, und 15 s. Jede Messung wird fünf Mal wiederholt. Es zeigt sich anhand der Daten, dass sowohl für 2 s als auch 5 s Messzeit die Fehler sehr unterschiedlich sind. Jedoch sind in diesen Messzeiten immer vergleichsweise hohe Standardabweichungen zu finden. Die größten Fehler liegen im Bereich von etwa 1 bis 2 % des jeweils gemessenen Verhältnisses.

Mit zunehmender Messzeit nehmen die statistischen Fehler wie erwartet tendenziell ab. Es ist zu vermuten, dass mit noch weiter steigender Messzeit die Fehler weiter abnehmen werden. Die Diagramme zeigen zudem bei allen Proben und Messzeiten plötzliche Anstiege, wie sie im linken der beiden Diagramme von Abbildung 4.31 bei 11 s Messzeit zu sehen sind.

Da ein Kompromiss zwischen einem möglichst geringen Fehler und einer kurzen Messzeit gefunden werden muss, werden alle folgenden Messungen mit einer Messzeit von 10 s durchgeführt. Dadurch sollte der statistische Fehler im Mittel weniger als 1 % betragen. Die gesamte Messzeit einer Messung beträgt etwa 30 Minuten für nicht eingeschweißte

Fenster. Die Dauer der gesamten Messungen aller Proben eines Probenbehälters benötigt daher mindestens 8 Stunden.

Untersuchung der Vergleichbarkeit hintereinander ausgeführter Messungen

Um die Reproduzierbarkeit der Daten zu untersuchen, werden zunächst zwei gleiche TR-Messungen ohne einen Ausbau und erneuten Einbau der Proben direkt hintereinander ausgeführt. Exemplarische Darstellungen der Ergebnisse hierzu sind in Abbildung 4.32 gezeigt.

Anhand der Diagramme wird deutlich, dass eine Reproduzierbarkeit nur bedingt gegeben ist. Jedoch muss hervorgehoben werden, dass in der Mehrzahl der Fälle zweier hinterein-

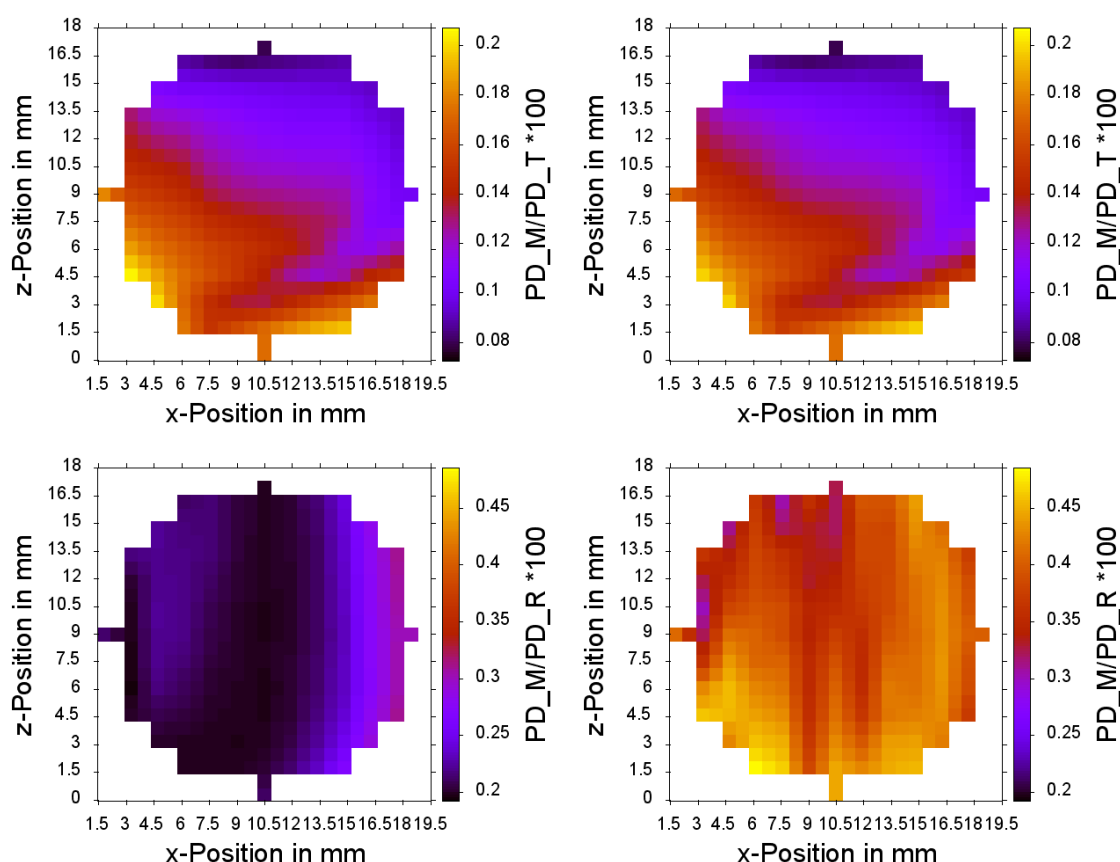


Abbildung 4.32: Vergleich zweier hintereinander ausgeführter Messungen zur Untersuchung der Reproduzierbarkeit der TR-Messungen. Um eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten, sind die zueinander gehörigen Diagramme mit der gleichen Farbskala gezeigt. Es wird hier sowohl ein Beispiel gezeigt, in dem die beiden Diagramme ein sehr ähnliches Verhalten zeigen, als auch ein Beispiel bei dem dies nicht der Fall ist. Oben: Hier sind die Diagramme zum Signalverhältnis Monitor-/Transmissionsphotodiode von Probe III4 abgebildet, die mit Laserdiode 3 bestrahlt wird. Links ist das Diagramm zu den ersten Messdaten, rechts das zu den zweiten Messdaten gezeigt. Die beiden Bilder stimmen überein. Unten: Hier sind die Diagramme zum Verhältnis der Signale von Monitor- und Reflexionsphotodiode der Probe IV6, bestrahlt mit Laserdiode 2, gezeigt. Aus der unterschiedlichen Einfärbung der Diagramme kann direkt abgelesen werden, dass die Messdaten nicht übereinstimmen.

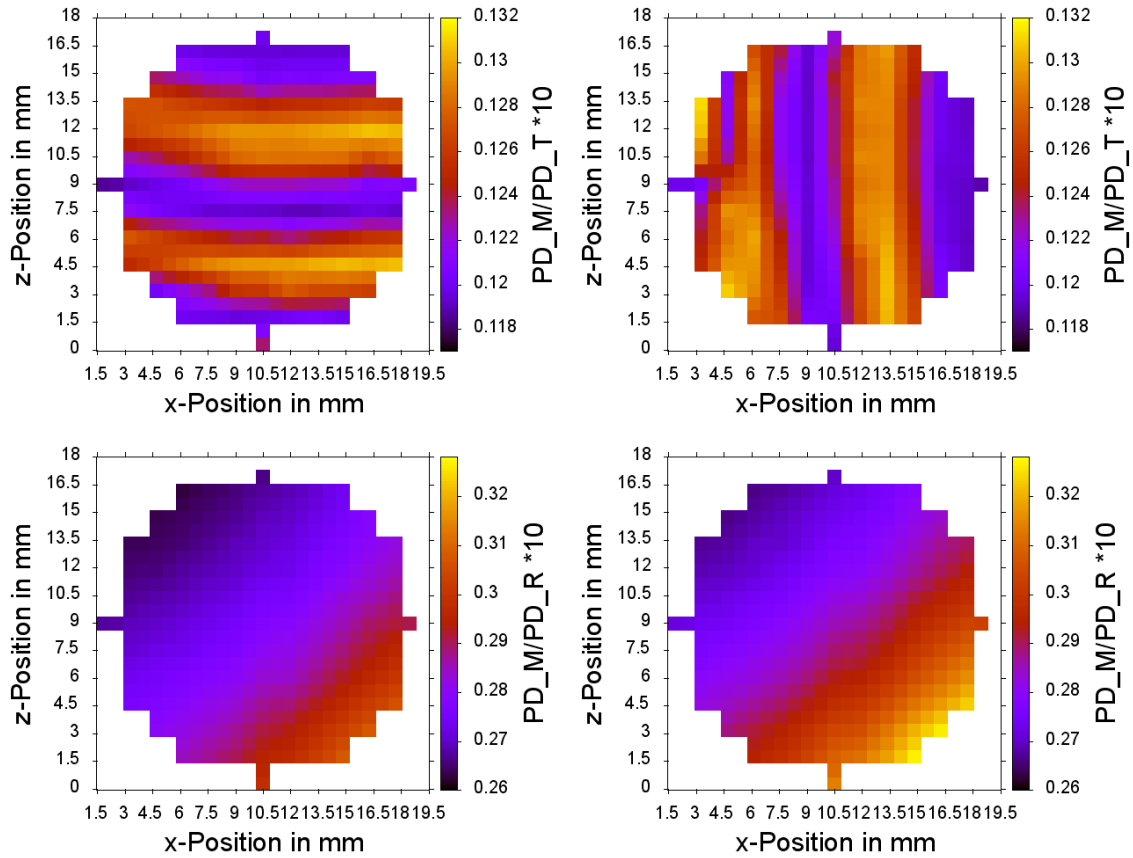


Abbildung 4.33: Vergleich zweier Messungen nach einer Drehung der Probe um 90° zur Untersuchung der Reproduzierbarkeit der TR-Messungen. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die zu vergleichenden Diagramme mit der gleichen Farbskala dargestellt. Genau wie in Abbildung 4.32 sind auch hier je ein Beispiel sowohl für als auch gegen die Vergleichbarkeit zweier Messungen gezeigt. Oben: Die Diagramme zeigen die Messdaten des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal der mit Laserdiode 2 bestrahlten Probe III6. Auf der linken Seite ist die Darstellung der ersten Messung zu sehen. Zwei horizontale Bereiche geringerer Transmission zeichnen sich ober- und unterhalb der Mitte ab. Im rechten Bild sieht man, dass nach der Drehung der Probe um 90° diese Bereiche ebenfalls gedreht sind. Unten: Die Diagramme stellen die Messdaten des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal der mit Laserdiode 3 bestrahlten Probe IV3 dar. Links ist ein deutlicher Verlauf der Reflexion von hohen Werten oben links zu niedrigen Werten unten rechts zu sehen. Nach dem Drehen ist der Verlauf unverändert.

ander ausgeführter Messungen ein grundlegend gleiches Bild der Probe in Bezug auf ihre optischen Eigenschaften gezeichnet wird. Dabei sind die Signale zwar zum Teil in ihrem Wert leicht unterschiedlich¹³, aber die grundsätzliche Information einer beispielsweise gegenüber einem anderen Bereich gesteigerten Reflexion bleibt erhalten. Dies zeigt auch der untere Teil von Abbildung 4.32. In beiden Bildern ist in der Mitte ein vertikaler Bereich mit gesteigerter Reflexion erkennbar.

¹³Mit Ausnahme einer Messung zeigt der Mittelwert über alle Messpunkte der zweiten Messung nicht mehr als etwa 3% Abweichung von dem der ersten Messung

Um zu untersuchen, ob die Reproduzierbarkeit der Bereiche gleicher optischer Eigenschaften auch dann noch gegeben ist, wenn die Proben ein zweites Mal an der modifizierten Spiegelhalterung befestigt werden, werden die Proben nach der ersten Messung um 90° gedreht eingebaut. Exemplarische Ergebnisse sind in Abbildung 4.33 gezeigt.

Anhand der in Abbildung 4.33 gezeigten Diagramme wird deutlich, dass auch die Ergebnisse des Drehens der Probe nicht eindeutig sind. Da jedoch die in Abbildung 4.33 gezeigte Probe I3 die einzige ist, die einen derart gleichmäßigen Verlauf vor und nach der Drehung zeigt, könnten hier Effekte wie die Erhitzung der Probe eine Rolle spielen. Insgesamt sind auch bei dem Vergleich der Messungen der gedrehten und nicht gedrehten Proben die Bereiche, in denen die gemessene optische Eigenschaft groß bzw. klein ist, etwa an vergleichbaren Positionen auf der Probe.

Zusammenfassend kann also davon ausgegangen werden, dass zwei unabhängige Messungen einer Probe vielleicht nicht im genauen Zahlenwert, aber doch in den grundlegenden optischen Eigenschaften übereinstimmen. So konnte nur für fünf der 48 hintereinander ausgeführten Messungen¹⁴ eine Abweichung von mehr als 10 % gegenüber der ersten Messung festgestellt werden. Der Zahlenwert kann somit als Orientierung für die Größenordnung der Transmission bzw. Reflexion dienen, wobei eine Abweichung von mehr als 50 % als Indiz für eine Beschädigung jedoch nicht als Beleg gelten kann. In Anhang I wird gezeigt, dass die Proben eines Probentyps ebenfalls vergleichbare optische Eigenschaften besitzen. Daher kann zusätzlich der Mittelwert aller Messungen eines Probentyps bei einer Untersuchung der Probe auf Beschädigung genutzt werden, sofern sie vergleichbaren Bedingungen ausgesetzt sind (siehe Tabelle I.2, Anhang I).

Nachdem in diesem Abschnitt die Inbetriebnahme der TR-Messung außerhalb der Handschuhbox beschrieben worden ist, wird im nächsten Abschnitt der Einbau in die Omegatron-Handschuhbox erläutert. Auch die Inbetriebnahme innerhalb der Handschuhbox ist Teil des nächsten Abschnittes.

4.8.2 Einbau der Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften in die Omegatron-Handschuhbox und deren Inbetriebnahme

Anhand des Einbaus der Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften in die Omegatron-Handschuhbox wird im Folgenden die Frage geklärt, wie ein Einbau in eine bereits bestehende Handschuhbox möglich ist.

Da die Omegatron-Handschuhbox in den letzten Jahren kaum genutzt worden ist, ist unbekannt, in welchem Maße diese mit Tritium in Berührung gekommen ist. Daher müssen zur Bestimmung der Oberflächenkontamination zunächst Wischtests innerhalb der Handschuhbox genommen werden. Der Ablauf und die detaillierten Ergebnisse dieser Wischtests können in Anhang D nachgelesen werden. Mit Hilfe der Wischtestergebnisse kann gezeigt werden, dass die höchste Oberflächenkontamination innerhalb der Handschuhbox unter 20 Bq/cm^2 liegt¹⁵. Damit steht von Seiten der Oberflächenkontamination einem Öffnen der Handschuhbox nichts entgegen.

¹⁴In den 48 Messungen sind sowohl ungedrehte als auch um 90° gedrehte hintereinander ausgeführte Messungen inbegriffen.

¹⁵Zum Vergleich: Die Freigrenze, also der Wert an Kontamination, ab dem besondere Maßnahmen nach der Strahlenschutzverordnung vom 20.07.2001 vorgeschrieben sind, liegt für T_2 außerhalb des Labors bei 100 Bq/cm^2 und innerhalb sogar bei 1000 Bq/cm^2 .

Bevor mit der eigentlichen Intervention begonnen werden kann, müssen folgende Schritte durchgeführt werden:

- Ausfüllen der “Arbeitserlaubnis Strahlenschutz” (AE), in der ein Arbeitsplan aller Arbeitsschritte, eine Abschätzung über das maximale Aktivitätsinventar sowie die vom Strahlenschutz vorgeschriebenen Sicherheitsvorkehrungen enthalten sind.
- Einrichten des Interventionsbereiches. Hierfür wird im Bereich der Scheibe, die geöffnet wird, der Boden und falls nötig die Wände mit Folie ausgelegt. Zudem wird der Bereich über Ketten vom restlichen Labor abgegrenzt (siehe Abbildung 4.34). Auch ein Tisch, der mit Plastikfolie abgedeckt ist, muss bereitgestellt werden.
- Bereitlegen von Overalls und Handschuhen in den benötigten Größen, Plastiküberschuhen, Tüchern sowie Abfallsäcken und für die Intervention benötigtem Werkzeug auf dem mit Plastikfolie abgedeckten Tisch.
- Vorbereiten der mobilen Absaugung. Diese wird während der Intervention benötigt, um einen gerichteten Luftstrom innerhalb der geöffneten Handschuhbox, weg von der offenen Scheibe, zu erzeugen.
- Aufräumen innerhalb der Handschuhbox. Alle aus der Handschuhbox zu entfernen- den Gegenstände werden in die Bereiche Abfall, Weiterverwendung innerhalb einer anderen Handschuhbox und sonstige weitere Aufbewahrung eingeteilt und in Plastikbeutel verstaut.
- Anschließen einer mobilen Ionisationskammer sowie eines Proportionalzählers an die Handschuhbox. Sollte der von der Ionisationskammer angezeigte Wert für die Kontamination der Boxenluft höher als 1 MBq/m^3 sein, darf die zweite Hülle nach vorheriger Absprache mit dem Strahlenschutzbeauftragten geöffnet werden.

Nachdem alle Vorbereitungen getroffen sind, kann die Scheibe der Omegatron-Handschuhbox nach “Arbeitsanweisung 0.2” [AAW04] geöffnet werden. Hierfür müssen zunächst Unterdruckhaltung und Tritiumrückhaltesystem abgeschaltet werden. Als Ersatz wird die mobile Absaugung über den Elefantenrüssel an die Handschuhbox angeschlossen. Danach wird die nördliche Scheibe der Ostseite abgenommen und mit der Arbeit innerhalb der Box begonnen. Es werden folgende Arbeitsschritte ausgeführt.

1. Um Platz für die Messeinrichtungen zu schaffen, werden in der Handschuhbox nicht mehr benötigte Gegenstände aus dieser entfernt. Die in Plastikbeutel eingepackten Gegenstände werden außerhalb der Handschuhbox in einen zweiten Plastikbeutel eingepackt und schnellstmöglich von nicht im Interventionsbereich arbeitendem Personal an ihren neuen Standort gebracht.
2. Die Kabeldurchführungen werden eingebaut. Dies geschieht, indem blindgeflanschte Löcher an der Nordseite der Handschuhbox geöffnet werden. Danach werden die Durchführungen an dieser Stelle eingebaut.
3. Das optische Mikroskop wird in die Handschuhbox gehoben und an seinen späteren Verwendungsort gestellt. Danach wird die Stromversorgung über die Steckdose sichergestellt.

4. Der TR-Aufbau wird in die Handschuhbox gehoben und an seinen späteren Verwendungsort gestellt. Alle Kabel werden in den unteren Teil der Handschuhbox geführt, wo sich die Durchführungen befinden. Die Innenstecker der Durchführungen werden eingesteckt und die Kabel verlegt.

Nun kann die Handschuhbox wieder geschlossen werden. Dabei ist darauf zu achten, dass zuvor ein Handschuhdeckel geöffnet werden muss, da ansonsten der Unterdruck innerhalb der Handschuhbox aufgrund des Anschlusses der mobilen Absaugung zu groß wird.

Nachdem alle Kabel außerhalb der Handschuhbox mit dem Messrechner bzw. dem Schaltkasten verbunden und sauber verlegt worden sind, kann die Inbetriebnahme der Versuchseinrichtung durchgeführt werden. Dabei sind alle Komponenten auf ihre Funktion hin zu testen. Nun ist die Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften der Fenster betriebsbereit.

Der folgende Abschnitt befasst sich hauptsächlich mit der Inbetriebnahme der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben mit Tritium, da der Ablauf des Einbaus vergleichbar ist.

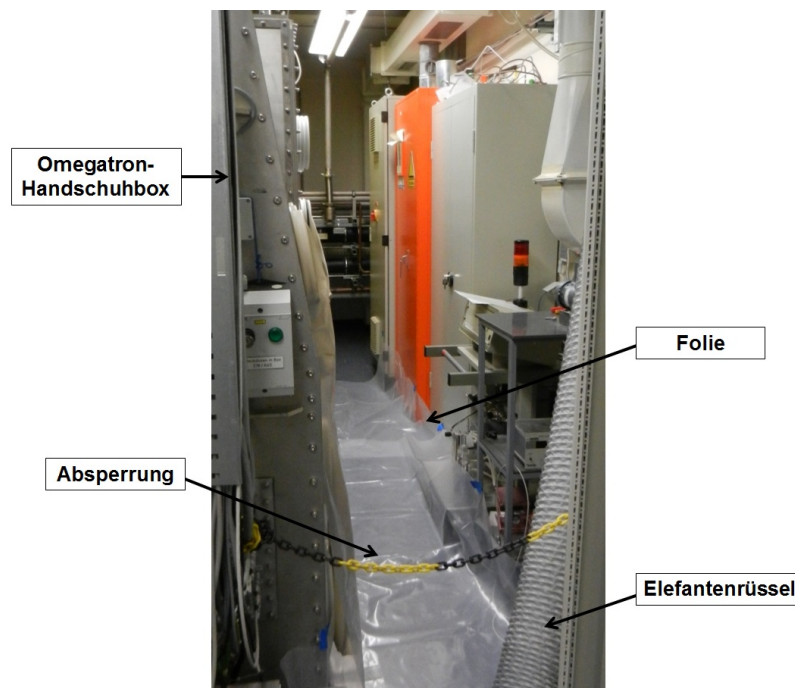


Abbildung 4.34: Fotografie des Interventionsbereiches an der Omegatron-Handschuhbox. Das Foto zeigt die Ostseite der Omegatron-Handschuhbox. Die Folie ist hier nicht nur auf dem Boden ausgelegt worden, sondern auch an der Handschuhbox selbst bis etwa auf deren halbe Höhe. Dies ist notwendig, da aufgrund des geringen Platzangebots die geöffnete Scheibe hier abgestellt werden muss.

4.8.3 Einbau der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben mit Tritium in die CAPER A-Handschuhbox und deren Inbetriebnahme

Zum Zeitpunkt des Einbaus der Versuchseinrichtung in die CAPER A-Handschuhbox sind lediglich die Probenbehälter I und II für einen Einbau vorbereitet. Bei Probenbehälter I wird nach dem Einbau des Gestänges mitsamt Proben ein Lecktest durchgeführt. Hierdurch kann die in der TLA geforderte Leckrate von weniger als $1 \cdot 10^{-9}$ mbar · l/s nachgewiesen werden. Da in Probenbehälter II auch die bereits beschädigten Proben eingebaut werden müssen, die nicht außerhalb einer Handschuhbox gehandhabt werden können, kann dieser erst innerhalb der Handschuhbox verschlossen werden.

Weil der Einbau in die CAPER A-Handschuhbox dem in die Omegatron-Handschuhbox sehr ähnlich ist und vom Personal der CAPER-Anlage durchgeführt wurde, wird an dieser Stelle auf eine genauere Beschreibung verzichtet. Abbildung 4.35 zeigt einen Blick in die CAPER A-Handschuhbox nach dem Einbau der Versuchseinrichtung.

Nachdem die Intervention abgeschlossen ist, werden die bereits beschädigten, eingeschweißten Proben in Probenbehälter II eingebracht und dieser verschlossen. Durch ein Anschließen an die CAPER-Anlage über die Verbindungsleitung kann auch dieser Behälter auf Leckagen getestet werden. Hierfür wird der Behälter bei geöffnetem Handventil evakuiert und einige Zeit gewartet. Kann keine Erhöhung des Drucks festgestellt werden, so ist der Probenbehälter dicht. Auf diese Weise werden auch später alle Probenbehälter vor einer Befüllung mit dem Tritiumgasgemisch auf Dichtheit geprüft.

Nach der Dichtheitsprüfung wird Probenbehälter II über die Verbindungsleitung mit dem vorbereiteten Gasgemisch befüllt. Nachdem das Handventil des Behälters verschlossen ist und die Verbindungsleitung evakuiert ist, wird Probenbehälter I befüllt. Bei beiden Befüllungen kann der Wert von 200 mbar sehr genau reproduziert werden. So herrscht in Probenbehälter I nach Befüllung ein Druck von 199 mbar und in Probenbehälter II von

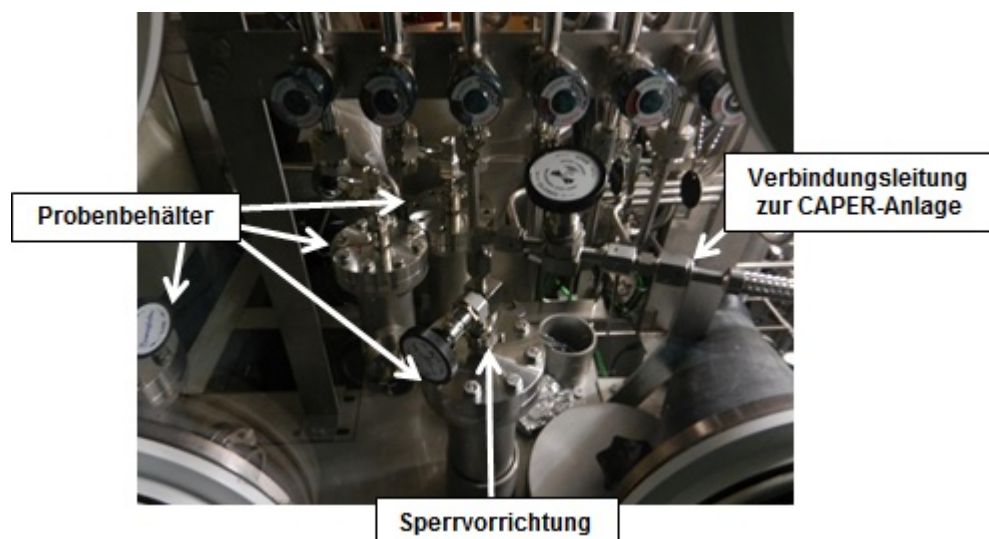


Abbildung 4.35: Fotografie der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben. Das Foto zeigt einen Blick in die CAPER A-Handschuhbox. Hinter dem im Vordergrund stehenden Probenbehälter sind Teile der restlichen CAPER-Anlage zu sehen.

201 mbar. Damit ist auch die Funktionsfähigkeit der Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben nachgewiesen.

Damit ist die einzige Frage, die in Abschnitt 4.1 formuliert und noch nicht beantwortet worden ist, wie die in diesem Kapitel erläuterten Arbeiten an den Versuchseinrichtungen zu einem Messplan zusammengefasst werden können. Die Beantwortung dieser Frage wird der nächste Abschnitt liefern.

4.9 Zusammenfassung des Messablaufs in einem Messplan

Im Rahmen der Messungen wird die Mitarbeit einer Vielzahl an Personen benötigt. Die CAPER-Mitarbeiter müssen beispielsweise die Bedienung der CAPER-Anlage leisten. Der Strahlenschutz und der jeweils zuständige Strahlenschutzbeauftragte werden für die Schleusvorgänge und die Transporte zum FML und wieder zurück zum Tritiumlabor benötigt. Außerdem müssen die Mitarbeiter des FML die Arbeiten in ihrem Labor übernehmen. Um die Untersuchungen zu organisieren und einen reibungslosen Verlauf der Messungen zu gewährleisten, ist daher die Erstellung eines Messplans erforderlich. Hierzu werden alle Arbeitsschritte, die zur Untersuchung eines Probenbehälters nötig sind, in einem Messblock zusammengefügt. Aus den Messblöcken aller Probenbehälter kann dann ein Messplan entworfen werden.

In Abbildung 4.36 ist der detaillierte Ablauf eines solchen Messblocks dargestellt. Die Messungen beginnen und enden innerhalb der CAPER A-Handschuhbox, in der sich die Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben befindet. Hier müssen die mit Tritium gefüllten Probenbehälter evakuiert, mehrfach mit Deuterium gespült und danach geöffnet werden.

Sollte bei der Öffnung die Kontamination der Boxenluft den Grenzwert von 100 MBq/m^3 übersteigen, müssen die Arbeiten zunächst unterbrochen werden und Rücksprache mit dem zuständigen Strahlenschutzbeauftragten gehalten werden. Wenn die Arbeiten fortgesetzt werden können, wird das Gestänge aus dem Probenbehälter entnommen, in den Transportbehälter eingebracht und letzterer verschlossen. Diese Arbeiten können, falls die Kontamination der Boxenluft nicht über 100 MBq/m^3 ansteigt, innerhalb einer Stunde erledigt werden. Sollte die Kontamination den Grenzwert jedoch überschreiten, ist eine zeitliche Abschätzung nur schwer möglich, jedoch wird von einem maximalen Aufwand von etwa einem halben Tag ausgegangen.

Der zeitliche Aufwand für den hierauf folgenden Ausschleusvorgang des Transportbehälters, wie der spätere Einschleusvorgang, ist bereits in Abschnitt 4.6 diskutiert und der hierfür nötige Zeitaufwand mit mindestens einer Stunde abgeschätzt worden.

Um eine erste Aussage über mögliche Beschädigungen treffen zu können, werden die Proben zunächst in der Omegatron-Handschuhbox untersucht. Die Ergebnisse dieser Messungen ermöglichen eine zielgerichtetere Untersuchung der Proben mittels DIC-Mikroskop. Der Zeitaufwand für die TR-Messungen ist bereits in Abschnitt 4.8.1 auf mindestens acht Stunden beziffert worden. Da die Messungen mit dem optischen Mikroskop unabhängig von den TR-Messungen und damit zeitgleich mit diesen durchgeführt werden können, entsteht durch diese Untersuchungen kein zusätzlicher zeitlicher Aufwand. Im Gegensatz dazu muss für die Untersuchungen der Proben mittels DIC-Mikroskop am FML etwa ein bis eineinhalb Tage veranschlagt werden. Dabei muss beachtet werden, dass zusätzlich,

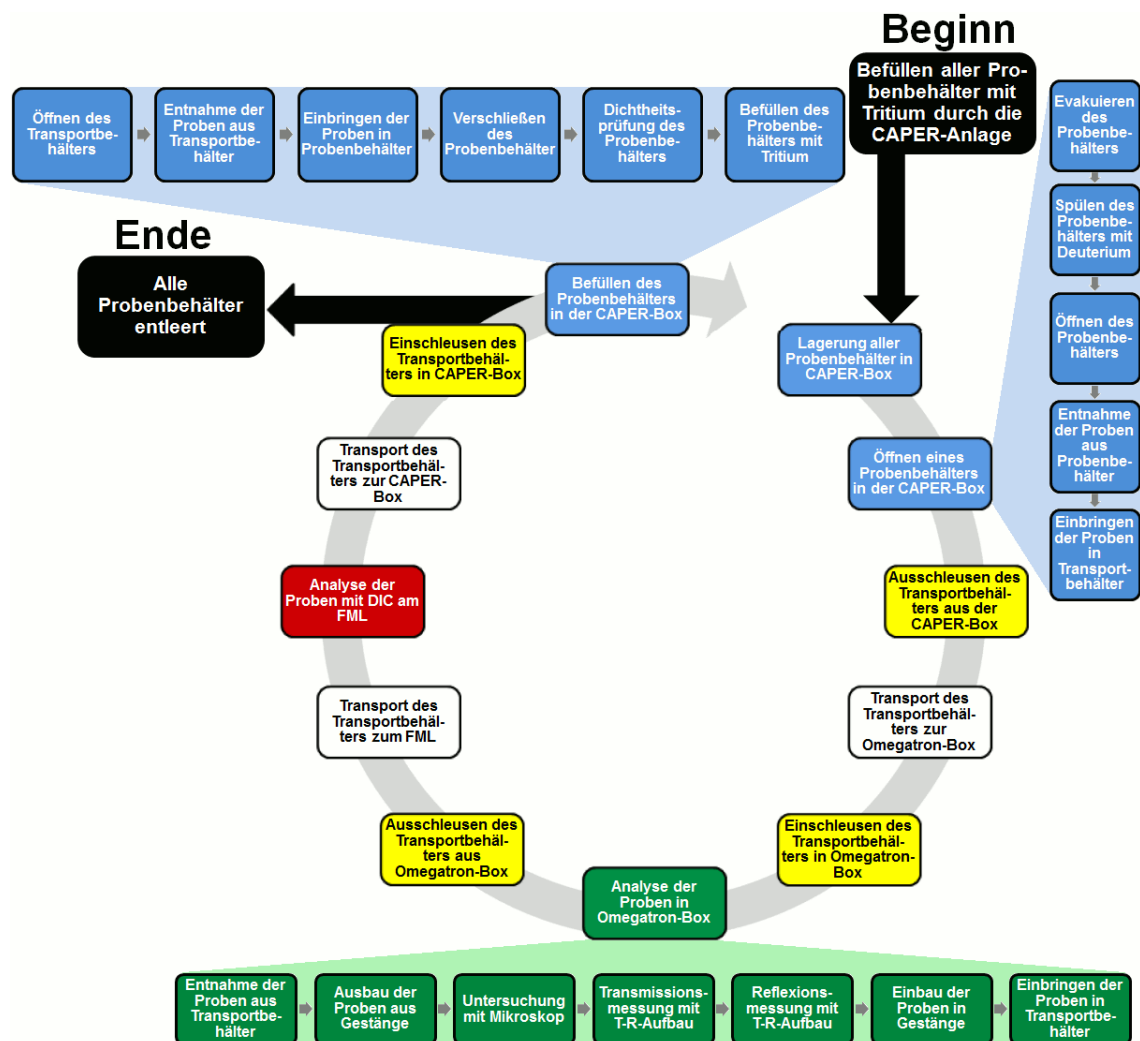


Abbildung 4.36: Arbeitsschritte während eines Messblocks und dessen Ablauf. In diesem schematischen Kreislauf werden die Arbeitsschritte an den einzelnen Stationen der beiden Versuchseinrichtungen gezeigt. Dabei sind Arbeiten innerhalb der CAPER A-Handschuhbox blau dargestellt. Sie umfassen alle Arbeiten, die mit dem Öffnen der Probenbehälter einhergehen, sowie die für die Befüllung der Probenbehälter nötigen Arbeitsschritte. Arbeiten in der Omegatron-Handschuhbox sind grün hinterlegt und umfassen die Arbeiten am Mikroskop, am TR-Aufbau sowie die hierfür nötigen vor- und nachbereitenden Arbeiten. Die Untersuchung am FML ist mit einem roten Kästchen dargestellt. Zudem signalisieren gelbe Kästchen Schleusvorgänge und weiße Kästchen Transporte zwischen den einzelnen Stationen der Messung.

wie in Abschnitt 4.6 beschrieben, für die Transporte zum FML und wieder zurück zum Tritiumlabor mindestens ein halber Tag benötigt wird.

Befindet sich der Transportbehälter mit den Proben nach allen Untersuchungen wieder in der CAPER-Anlage, wird aus diesem das Gestänge entnommen und in den Probenbehälter eingebracht. Ist der Probenbehälter verschlossen, wird er an die CAPER-Anlage angeschlossen und auf seine Dichtigkeit hin geprüft. Dies geschieht, indem der Probenbehälter evakuiert wird. Steigt der Innendruck innerhalb einer Zeit von etwa 5 bis 10 Minuten nicht an, so ist der Probenbehälter dicht. Nun ist eine erneute Befüllung des Probenbehälters mit Tritiumgas möglich. Der Zeitaufwand für diese Arbeitsschritte beläuft sich etwa

auf einen halben Tag.

Insgesamt kann für einen Messblock, in dem alle zur Untersuchung eines Probenbehälters nötigen Arbeitsschritte enthalten sind, ein Zeitaufwand von etwa einer Woche festgestellt werden. Damit wird deutlich, dass innerhalb einer Woche lediglich ein Probenbehälter geöffnet, die Proben untersucht und der Probenbehälter wieder verschlossen werden kann. Aufgrund dieser Einschränkung und der Kenntnis über den zeitlichen Ablauf der Untersuchungsmethoden untereinander, kann nun ein Messplan erstellt werden, wie er in Abbildung 4.37 dargestellt ist.

In dem Zeitplan werden in der ersten und zweiten Woche nur die Probenbehälter I und II gezeigt, da die beiden anderen Probenbehälter erst mit zwei Wochen Verzögerung in die CAPER A-Handschuhbox eingebracht worden sind. In der dritten Woche werden die Untersuchungen mit Probenbehälter I begonnen. Um einen der beiden später befüllten Behälter nicht bereits nach einer Woche öffnen zu müssen, wird in der vierten Woche Behälter II untersucht. Auf diese Weise ist es außerdem möglich, dass Behälter III nach zwei Wochen in Tritiumgas untersucht wird, genau wie es bei Behälter I der Fall ist. Somit werden immer zwei Probenbehälter nach einem ähnlichen Zeitraum in Tritium gemessen, wodurch ein Vergleich der Ergebnisse ermöglicht wird. Der Messplan geht nach der sechsten Woche weiter wie in der dritten Woche und wiederholt sich von da an.

Mit diesem Abschnitt ist die letzte, noch unbeantwortete Frage aus Abschnitt 4.1, nämlich die Frage wie die Arbeitsschritte in einem Messplan koordiniert werden können, beantwortet. Zudem stehen nun sowohl eine funktionsfähige Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben mit Tritium als auch eine Versuchseinrichtung zur Überwachung der optischen Eigenschaften der Proben zur Verfügung. Daher kann mit den Messungen, die das Thema des nächsten Kapitels sind, begonnen werden.

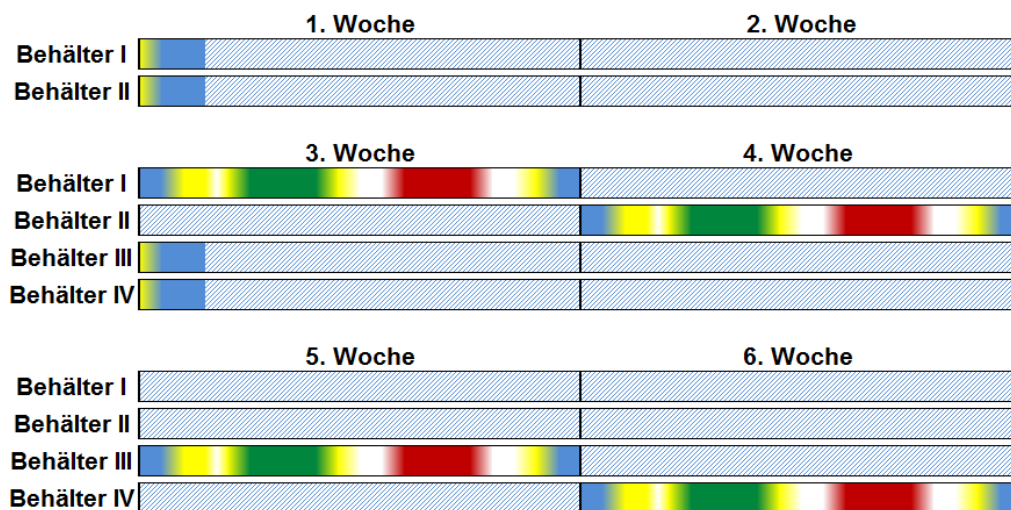


Abbildung 4.37: Messplan zur Untersuchung optischer Fenster in Tritiumumgebung. Die Darstellung zeigt in Form von Balken, die jeweils eine Woche (also fünf Arbeitstage) darstellen, die Anordnung der Messblöcke zu einem Messplan. Die Farbkodierung ist wie in Abbildung 4.36 gewählt. Zusätzlich wird die Zeit, in der die Probenbehälter mit Tritiumgas gefüllt in der CAPER A-Handschuhbox gelagert werden blau gestreift dargestellt. Die Übergänge zwischen den Farbsegmenten sind aufgrund der nur schwer möglichen genauen Abschätzung des Zeitaufwands ineinander übergehend gezeichnet.

Kapitel 5

Erste Untersuchungen an mit Tritium beaufschlagten Proben

In diesem Kapitel werden die ersten Untersuchungen der Proben aus Probenbehälter I vorgestellt, die 17 Tage in einer Tritiumumgebung gelagert worden sind. Das Ziel dieser Untersuchungen ist der Vergleich der unterschiedlichen Proben in Bezug auf ihre Tauglichkeit für die Bedingungen, die während der Nutzung für das KATRIN-Experiment herrschen. Dabei ist zu beachten, dass die Fenster der LARA-Zelle über 5 Jahre hinweg nahezu kontinuierlich Tritium ausgesetzt werden. Die einzelnen Messkampagnen werden ca. 60 Tage dauern. Das ist etwa das Dreifache des hier untersuchten Zeitrahmens. Somit kann eine Beschichtung, die bereits zu diesem Zeitpunkt eine Beschädigung aufweist, als ungeeignet für das KATRIN-Experiment gelten. Andererseits kann zu Proben, die noch keine Beschädigung zeigen, erst nach weiteren Messungen, die den zeitlichen Rahmen dieser Arbeit übersteigen würden, eine definitive Aussage getroffen werden.

Da für die Untersuchung der Proben auf Beschädigung die Kenntnis über das charakteristische Aussehen des Schadens nötig ist, werden in Abschnitt 5.1 die Ergebnisse von Untersuchungen an bereits beschädigten eingeschweißten Proben vorgestellt. Wichtig für die Untersuchungen ist weiterhin die Kenntnis über die Bedingungen, denen die Proben während der Beaufschlagung ausgesetzt waren. Daher werden diese in Abschnitt 5.2 zusammengefasst. In Abschnitt 5.3 werden die eigentlichen Untersuchungsergebnisse der nicht eingeschweißten Proben aus Probenbehälter I vorgestellt. Der letzte Abschnitt dieses Kapitels liefert schließlich eine Zusammenfassung der Ergebnisse und bewertet diese in Hinblick auf die Tauglichkeit für das KATRIN-Experiment.

5.1 Voruntersuchung der bereits beschädigten, eingeschweißten Fenster

Die Untersuchung der Proben per Mikroskop basiert auf der Betrachtung der Oberfläche der Proben und der Identifikation der Beschädigung durch den Operateur. Daher ist eine Kenntnis über das Aussehen der Beschädigung notwendig. Aus diesem Grund sind zwei bereits beschädigte, eingeschweißte Proben schon im Vorfeld der eigentlichen Messreihen am FML mit dem DIC-Mikroskop untersucht worden. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen werden im Folgenden vorgestellt.

Die zu untersuchenden Proben sind zwei Fenster derjenigen LARA-Zelle, bei der die Beschädigung zum ersten Mal aufgetreten ist. Es wird ein Laser- und ein Raman-Fenster untersucht. Das Laser-Fenster, das eine auf 532 nm optimierte Antireflexionsbeschichtung besitzt, wird in Probenbehälter II weiterhin als Probe für das Experiment verwendet. Das Raman-Fenster, das mit einer Breitbandantireflexionsbeschichtung versehen ist, ist im Vorfeld mit einem Wattestäbchen und Aceton gereinigt worden. Da dies die späteren Untersuchungen verfälschen könnte, wird das Fenster nicht mehr als Probe verwendet.

Aufgrund der Höhe der Einfassung der Fenster kann bei beiden Proben nicht die größtmögliche Vergrößerung des DIC-Mikroskops genutzt werden. Im Falle des Raman-Fensters konnten dennoch zusätzlich zu Übersichtsbildern, die aus vier Einzelbildern zusammengesetzt sind, Detailaufnahmen gemacht werden. Da die Einfassung des Laser-Fensters jedoch minimal höher ist, entstand von dieser Probe nur ein Übersichtsbild. Beispiele der aufgenommenen Bilder sind in Abbildung 5.1 gezeigt.

Anhand der Voruntersuchungen mittels DIC-Aufnahmen können folgende Aussagen über die Beschichtung und deren Beschädigung getroffen werden:

- Die Beschichtung der eingefassten Fenster zeigt eine Veränderung zum Rand der Einfassung hin. Dies zeigt sich in den Aufnahmen durch einen andersfarbigen, äußeren Randbereich der Fenster. Die wahrscheinlichste Erklärung hierfür ist, dass die Beschichtung zum Rand hin dünner wird.
- Die Ränder der Fenster werden scheinbar stärker von der Beschädigung betroffen.
- In der Mitte der Beschädigungen kann ein heller Punkt beobachtet werden.
- Nach außen hin zeigen die Beschädigungen einen Farbverlauf, der unterschiedlich stark ausgeprägt ist.
- Die Beschädigungen haben eine runde Form, solange sie nicht von Kratzern durchzogen werden. Ist dies der Fall, scheinen sie an diesen entlang zu wachsen.
- Die größte einzelne Beschädigung, die aufgetreten ist, ist etwa $250\text{ }\mu\text{m}$ groß. Eine Aussage über die kleinste Beschädigung ist nicht möglich. Zwar sind auf den Proben sehr kleine dunkle Punkte sichtbar, jedoch kann bei der maximal möglichen Vergrößerung keine Aussage darüber getroffen werden, ob es sich um Staubpartikel oder Beschädigungen handelt.
- Mit dem DIC-Mikroskop kann kein Höhenunterschied zwischen dem restlichen Fenster und der Beschädigung festgestellt werden. Daher ist es unwahrscheinlich, dass die Beschädigung darin besteht, dass Teile der Beschichtung vom Fenster abplatzen.

Aufgrund des bisher gewonnenen Wissens über die Beschädigung ist eine Bewertung dieser Charakteristika in Bezug auf die Beschädigungsmechanismen nicht möglich. Die Ergebnisse machen jedoch eine zielgerichtete Suche nach Beschädigungen an den beaufschlagten Proben möglich. Die Bedingungen, denen diese Proben während ihrer ersten Beaufschlagung ausgesetzt worden sind, werden im nächsten Abschnitt beschrieben.

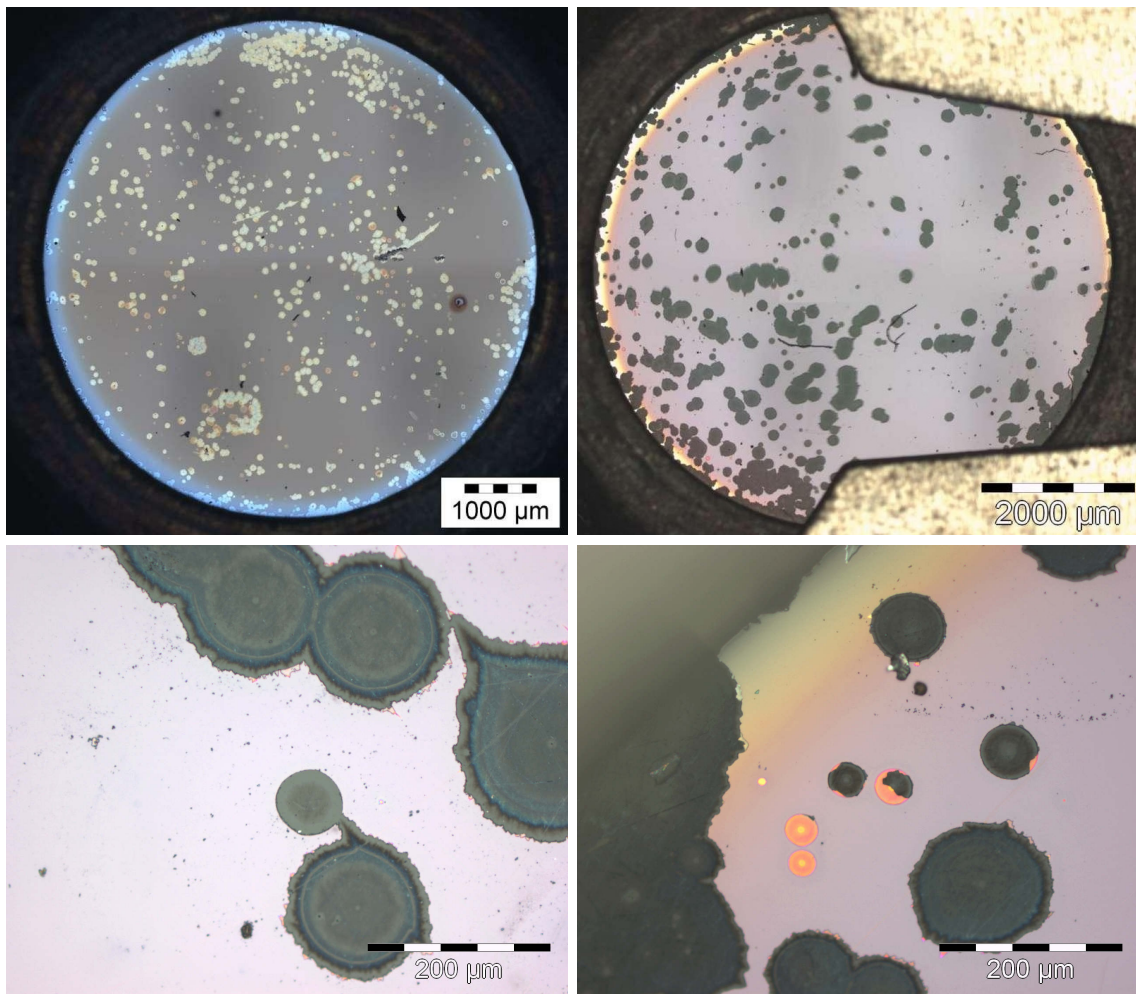


Abbildung 5.1: Mittels DIC-Mikroskop aufgenommene Bilder der bereits beschädigten, eingeschweißten Proben. Links oben: Es ist eine Übersichtsaufnahme des Laser-Fensters (532 nm Anitreflexionsbeschichtung) zu sehen, das während des Experiments erneut mit Tritium beaufschlagt wird. Die Beschädigungen erscheinen in den Aufnahmen als grünliche Punkte. Auffällig ist die Häufung dieser Punkte an einigen Stellen, wohingegen in anderen Bereichen keine Beschädigungen gefunden werden können. Der bläuliche Bereich am Rand des Fensters wird wahrscheinlich durch die Beschichtung hervorgerufen, die nicht bis zum Rand des Fensters reicht. Rechts oben: Dieses Bild zeigt eine Übersicht über das Raman-Fenster, das von der rechts unten und rechts oben zu sehenden Maske des Mikroskops gehalten wird. Die Beschädigungen erscheinen in diesem Bild dunkel. Die größten einzeln auftretenden Beschädigungen besitzen zudem etwa die doppelte Größe der beim Laser-Fenster beobachteten Flecken. Zum Rand hin nehmen die Beschädigungen zu. Links unten: Hier ist eine Detailaufnahme der Beschädigung des Raman-Fensters gezeigt. Man erkennt im Innern jeder der Beschädigungen einen hellen Punkt, der der Ursprung der Beschädigung sein könnte. Ausgehend von diesem Punkt zeigt sich ein unterschiedlich stark ausgeprägter Farbverlauf zum Rand der Beschädigung hin. Die Form der Flecken ist meist rund. Ist jedoch ein Kratzer in der Beschichtung, scheint sich die Beschädigung an diesem entlang auszubreiten, wodurch Zacken an den Kreisen entstehen. Rechts unten: In dieser Detailaufnahme des Raman-Fensters ist der Randbereich des Fensters gezeigt. Links unten ist hier eine Anhäufung von Beschädigungen zu sehen. Die einzelnen Beschädigungspunkte gehen dabei ineinander über und bilden einen großen beschädigten Bereich. Zudem sind orangefarbene Punkte erkennbar, an denen scheinbar die dunkle Verfärbung der Beschädigung einsetzt.

5.2 Die Beaufschlagung der Proben mit Tritium

Um eine Aussage über die mögliche Tauglichkeit eines Probentyps für das KATRIN-Experiment treffen zu können, müssen die Bedingungen bekannt sein, denen die Proben während ihrer Beaufschlagung ausgesetzt waren. Daher werden die Bedingungen der ersten Beaufschlagung in diesem Abschnitt zusammengefasst.

Die Drücke, die in Probenbehälter I geherrscht haben bzw. in den restlichen Probenbehältern noch herrschen, sind in Tabelle 5.1 angegeben. Die Werte liegen alle in einem Bereich von 4 mbar um den angestrebten Wert von 200 mbar. Auch der mit Hilfe des Gaschromatographen der CAPER-Anlage bestimmte Tritiumgehalt ist in der Tabelle für die mit der selben Gasmischung befüllten Probenbehälter III und IV angegeben. Für die Gasmischung, mit der Probenbehälter I und II befüllt wurden, sind aus technischen Gründen keine Gasanalysen direkt vor der Befüllung vorgenommen worden. Aufgrund einer Analyse des Gases, die etwa zwei Wochen vor der Befüllung der Probenbehälter I und II durchgeführt worden ist, kann jedoch davon ausgegangen werden, dass der im Gasgemisch enthaltene Tritiumanteil zum Zeitpunkt der Befüllung mindestens 90 % betrug.

Neben dem Tritiumgehalt können mit Hilfe des Gaschromatographen auch Verunreinigungen des Gases durch Helium oder Kohlenwasserstoffe sowie die enthaltenen Wasserstoffisotopologe HT und DT detektiert werden. Das Ergebnis der Analyse des Gases vor der Befüllung von Probenbehälter III und IV (siehe Tabelle 5.2) zeigt, dass die genommene Probe quasi keine Kohlenwasserstoffe enthält. Dies ist der Fall, da das Gas zuvor mit Hilfe eines Permeators [Wel10] gereinigt worden ist, den nur Wasserstoffisotope durchdringen können.

Tabelle 5.2 zeigt zudem die Analyse mittels Gaschromatographen des Gases, das Probenbehälter I bei seiner Entleerung nach 17 Tagen entnommen worden ist. Da eine ausreichende Menge an Gas zur Verfügung stand, sind zwei unabhängige Messungen durchgeführt worden. Es konnten bei diesen Messungen sowohl Kohlenwasserstoffe als auch Helium in dem Gas festgestellt werden. Die Bildung von Kohlenwasserstoffen kann unter Umständen, wie in Kapitel 3 beschrieben, zu einem beschleunigten Auftreten oder einer Verstärkung der Beschädigung führen.

Durch die Analysen des Gaschromatographen sind neben dem Druck innerhalb der Probenbehälter auch die Gaszusammensetzungen vor der Befüllung der Probenbehälter III und IV bekannt. Durch die Analyse des Gases während der Öffnung von Probenbehälter I sind die Bedingungen, denen die Proben zumindest gegen Ende der 17 Tage Beaufschlagungsdauer ausgesetzt waren, bestimmt. Die Untersuchung dieser Proben mit den unterschiedlichen Messmethoden wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

5.3 Ergebnisse der ersten Untersuchungen beaufschlagter Proben

Dieser Abschnitt stellt die Ergebnisse der Untersuchungen der Proben des Probenbehälters I vor. Die Proben sind über 17 Tage einem Gasgemisch mit einem Druck von 198 mbar und mit mindestens 94 % Tritiumanteil ausgesetzt worden.

Einen ersten Überblick über diese Ergebnisse liefert Abschnitt 5.3.1. Hier sind die für einen Großteil der Proben geltenden Aussagen zusammengefasst. Zudem wird ein erster

Tabelle 5.1: Tritiumdruck und -reinheit bei der Beaufschlagung der Probenbehälter. Die angegebenen Werte der Tritiumkonzentration stammen von der gleichen Gaschromatographenanalyse wie die in Tabelle 5.2 gezeigten Werte. Da Probenbehälter III und IV innerhalb eines Tages befüllt worden sind, ist die Tritiumkonzentration bei beiden Behältern identisch. Die Angaben zur Tritiumkonzentration besitzen Messunsicherheiten von 5 bis 10 %.

Behälter	Druck in mbar	Tritiumkonzentration in %
I	198	> 90
II	200	> 90
III	204	97
IV	204	97

Tabelle 5.2: Durch den Gaschromatographen der CAPER-Anlage bestimmte Zusammensetzung des Gases für Behälter III und IV und aus Behälter I. In Spalte 2 ist die Zusammensetzung des Gases vor der Befüllung von Probenbehälter III und IV gezeigt. Die Messwerte in den Spalten 3 und 4 spiegeln die Zusammensetzung des Gases aus Probenbehälter I nach 17 Tagen Beaufschlagung der Proben wieder. Es werden die prozentualen Anteile an unterschiedlichen Kohlenwasserstoffen (C_yQ_x , mit $Q = H, D, T$), Kohlendioxid CO_2 , Helium, tritiierten Wasserstoffisotopologen (HT, DT und T_2) sowie an in allen Verbindungen enthaltenem Tritium betrachtet. Die Angaben besitzen Messunsicherheiten von 5 bis 10 %.

Gesuchte Verbindung	Konzentration im Gas für Probenbehälter III/IV in %	Konzentration im Gas aus Probenbehälter I in %	Konzentration im Gas aus Probenbehälter I in %
C_yQ_x	0	1	1
CO_2	0	0	0
Helium	0	1	1
HT	4	7	7
DT	2	2	3
T_2	94	88	87
Tritium (gesamt)	97	94	94

Überblick über die aufgetretenen Beschädigungen gegeben. In den Abschnitten 5.3.2 bis 5.3.7 werden die Ergebnisse für die einzelnen Proben vorgestellt. Dabei wird besonders auf die Ergebnisse der TR-Messung eingegangen, da mit dieser die für die LARA-Messungen relevanten optischen Eigenschaften tatsächlich gemessen werden können.

5.3.1 Überblick über die Ergebnisse

Bevor im Einzelnen auf die Ergebnisse der Proben eingegangen wird, liefert dieser Abschnitt einen Überblick über allgemeine Aussagen, die anhand der Untersuchungen über die meisten der Proben getroffen werden können. Dabei wird nicht näher auf die Untersuchungen mittels optischem Mikroskop eingegangen, da diese keine Anzeichen einer Beschädigung aufgrund der Beaufschlagung zeigen.

Die Untersuchung der beaufschlagten Proben mittels DIC-Mikroskop zeigt, dass die Beschichtung der meisten Proben nicht bis an den Rand der Probe heran reicht. Auch ist der nicht beschichtete Randbereich, bezogen auf eine Probe, nicht an jeder Stelle gleich breit. Zudem bietet das DIC-Mikroskop die Möglichkeit, Strukturen von weniger als $10\text{ }\mu\text{m}$ genauer zu untersuchen. Dadurch konnten Flüssigkeitstropfen auf der Oberfläche einiger Proben festgestellt werden, die eine Größe von etwa $10 - 30\text{ }\mu\text{m}$ besitzen. Auf welche Weise diese Tröpfchen auf die Proben gelangt sind, ist noch nicht genau geklärt. Wahrscheinlich stammt die Flüssigkeit jedoch von der Handhabung der Proben in der Omegatron-Handschuhbox.

Des Weiteren sind Verschmutzungen der Probenoberfläche durch Staubpartikel nachgewiesen worden. Diese Verschmutzungen treten verstärkt am Rand der Probe auf (siehe Abbildung 5.2), da sie hier durch den Sicherungsring der Probenhalterung in das Fenster eingearbeitet werden. Der Sicherungsring ist zudem für Kratzer im Randbereich der Proben verantwortlich, wie sie ebenfalls in Abbildung 5.2 zu sehen sind. Die Kratzer beeinflussen jedoch die restlichen Messungen nicht. Zusätzlich hierzu können an Probe I6 auch Stellen gefunden werden, an denen Fragmente aus der Oberfläche herausgebrochen zu sein scheinen. Die Größe dieser Fragmente ist im Bereich von etwa $20\text{ }\mu\text{m}$.

Bei der Untersuchung der Proben ist außerdem die zu den anderen Proben deutlich unterschiedliche Beschaffenheit der Beschichtung von Probe I5 aufgefallen, die mittels Sol-Gel-Verfahren beschichtet worden ist. Es zeigen sich in den Aufnahmen dieser Probe deutliche Strukturen innerhalb der Beschichtung, in denen vermehrt Verschmutzungen anhaften. Diese machen eine Aussage über eine mögliche Beschädigung der Probe nur schwer möglich. Zudem ist ein Beschichtungsfehler gefunden worden (siehe Abbildung 5.2).

Dagegen kann bei vier der beaufschlagten Proben mit Hilfe des DIC-Mikroskops eine Beschädigung, wie sie unter 5.1 charakterisiert worden ist, mit einer minimalen Größe von wenigen Mikrometern ausgeschlossen werden. Im Falle noch kleinerer Beschädigungen können diese jedoch nicht mehr aufgelöst werden. Für eine Probe (I4) können deutliche Schäden durch die Beaufschlagung gefunden werden. Die maximale Größe der Beschädigungen beträgt weniger als $10\text{ }\mu\text{m}$. Dass das optische Mikroskop mit seiner eher geringen, 1,7-fachen Vergrößerung keine Anzeichen für eine Beschädigung finden kann, liegt somit in der Größe der bis zu diesem Zeitpunkt auftretenden Beschädigung begründet.

Die Ergebnisse der TR-Messungen sind insgesamt nicht immer eindeutig. Durch die relativ großen Schwankungen von zum Teil mehr als 50 % bei wiederholter Messung einer Probe ohne veränderte Bedingungen, ist eine definitive Aussage nur bei zwei der sechs Proben

möglich. Die Beurteilung der Ergebnisse wird noch zusätzlich dadurch erschwert, dass bisher keine Erfahrungswerte mit einer TR-Messung gesammelt werden konnten. Daher konnten im Vorfeld keine genauen Kriterien festgelegt werden, die zur Erkennung einer Beschädigung herangezogen werden können. Um ein eindeutigeres Ergebnis zu erreichen, werden daher auch die Ergebnisse der Referenzmessungen der Proben gleichen Probentyps aus den Probenbehältern III und IV herangezogen. In Anhang I ist gezeigt, dass die optischen Eigenschaften innerhalb eines Probentyps hierfür ausreichend vergleichbar sind.

Insgesamt können mit dem TR-Aufbau bei vier Proben keine Anzeichen für eine Beschädigung durch die Beaufschlagung beobachtet werden. Bei einer Probe kann aufgrund der TR-Messung keine genaue Aussage getroffen werden. Im Falle der Probe I4 hingegen ist eine Beschädigung sicher (diese Probe ist mittels Elektronenstrahldeposition beschichtet worden).

Nach diesem groben Überblick über die Ergebnisse werden nun in den folgenden Abschnitten die wichtigsten Resultate in Bezug auf eine Beschädigung für jede der sechs Proben herausgestellt. Genutzt werden hierfür die Veränderungen des über alle Messpunkte und, für den Fall mehrerer Messungen, über alle Messungen gebildeten Mittelwerts des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexions- bzw. Transmissionsphotodiodensignal. Da die Auswertung eher qualitativen Charakter besitzt, werden hierzu keine genauen Zahlenwerte für die Beschreibung der Veränderungen herangezogen. Sind an den Mittelwerten deutliche Veränderungen vorhanden (die Daten hierzu sind in Anhang H, Tabelle H.4, zusammengestellt), wird zusätzlich die orts aufgelöste, graphische Darstellung aller Messpunkte betrachtet, um eine Aussage über die Ortsabhängigkeit der Veränderung der optischen Eigenschaften treffen zu können. In Anhang I sind diejenigen graphischen Darstellungen zusammengefasst, die an dieser Stelle nicht gezeigt werden.

Für die beiden Proben, für die durch die Ergebnisse der Betrachtung mittels DIC-Mikroskop eine Beschädigung durch die Beaufschlagung nicht ausgeschlossen werden kann, wird zusätzlich noch auf diese Ergebnisse eingegangen. Im Falle der vier anderen Proben wird auf eine Wiederholung der allgemeinen Befunde, die bereits in diesem Abschnitt dargestellt worden sind, verzichtet.

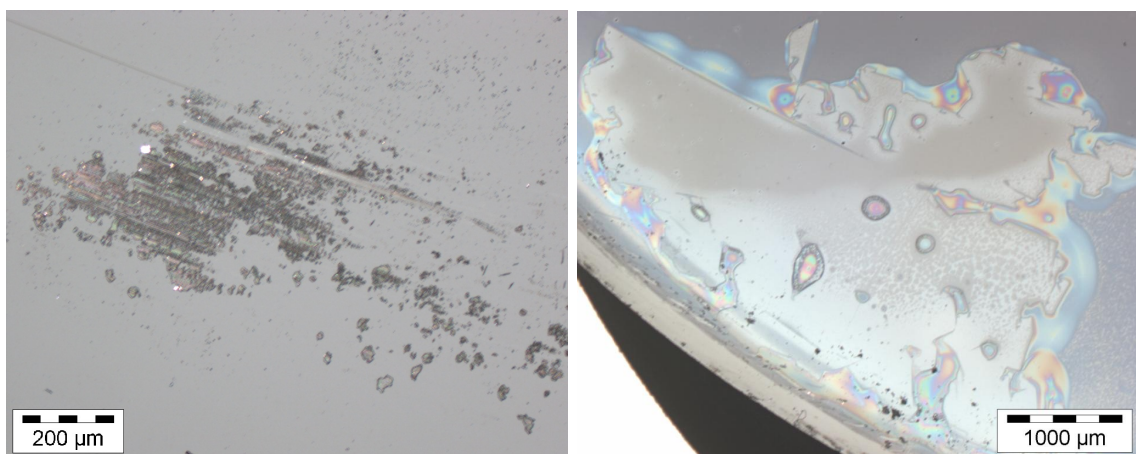


Abbildung 5.2: Aufnahmen des DIC-Mikroskops von den beaufschlagten Proben I6 und I5. Links: Das gezeigte Bild verdeutlicht die Beeinflussung der Proben durch den Sicherungsring. Die Aufnahme stammt vom direkten Randbereich der Probe I6. Es können neben der Verunreinigung der Probe deutliche Kratzspuren erkannt werden. Rechts: Es ist der Beschichtungsfehler von Probe I5 gezeigt.

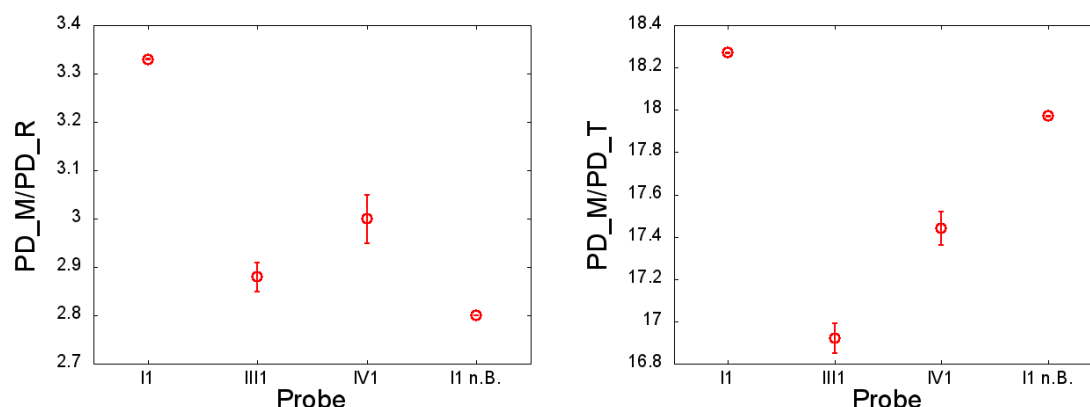


Abbildung 5.3: Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I1. Es sind die Mittelwerte über alle Messpunkte der Proben I1, III1 und IV1 vor, sowie die der Probe I1 nach der Beaufschlagung (n.B.) gezeigt, Links: Hier sind die Daten des Verhältnisses von Monitor- (PD_M) zu Reflexionsphotodiodensignal (PD_R) dargestellt. Die im Vergleich deutlich größeren Fehlerbalken bei Probe III1 und IV1 sind das Resultat der Mittlung über mehrere Messungen. Rechts: Das Diagramm zeigt die Mittelwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal (PD_T). Auch hier sind die größeren statistischen Fehler ein Resultat einer Mittlung über mehrere Messungen.

5.3.2 Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Magnetronspattern beschichteten Probe I1

Anhand des Diagramms aus Abbildung 5.3 kann für den Reflexionskoeffizienten eine deutliche Abweichung zu dem vor der Beaufschlagung gemessenen Wert hin zu einem höheren Wert des Reflexionskoeffizienten beobachtet werden. Diese Erhöhung äußert sich in einer Reduktion des Quotienten von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal. Zudem liegt der Mittelwert nicht mehr im Wertebereich aller Proben dieses Probentyps. Der Transmissionskoeffizient der Probe dagegen zeigt nur eine sehr geringfügige Veränderung. Dadurch liegt der Wert des Transmissionskoeffizienten noch im Wertebereich aller Proben dieses Probentyps.

Aufgrund der geringen Abweichung des Reflexionskoeffizienten von den Werten aller Proben dieses Herstellungsverfahrens und des nahezu unveränderten Transmissionskoeffizienten zeigt diese Probe keine Anzeichen für eine Beschädigung.

5.3.3 Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Ionenstrahlgestützter Deposition beschichteten Probe I2

Die TR-Messdaten zu Probe I2 sind in Abbildung 5.4 dargestellt. Im Falle des Reflexionskoeffizienten kann keine signifikante Veränderung beobachtet werden. Der Transmissionskoeffizient dagegen ist gegenüber allen anderen Werten leicht erhöht.

Aus diesem Grund ist in Abbildung 5.5 die graphische Darstellung der Messdaten an allen Messpunkten gezeigt. Man erkennt hier, dass die Erhöhung des Transmissionskoeffizienten über die gesamte Oberfläche geschieht. Trotzdem wird davon ausgegangen, dass die Probe noch keine Beschädigung zeigt. Die Begründung hierfür liegt zum einen an der geringen Abweichung verglichen mit den beispielsweise bei Probe III2 aufgetretenen Schwankungen.

Zum anderen erscheint, basierend auf den Ergebnissen des Kapitels 3, eine Zunahme des Transmissionskoeffizienten aufgrund einer Beschädigung als nicht wahrscheinlich. Damit kann an der mittels Magnetronspattern beschichteten Probe I2 nach 17 Tage in einer Tritiumatmosphäre mit etwa 200 mbar Tritiumpartialdruck keine Beschädigung festgestellt werden.

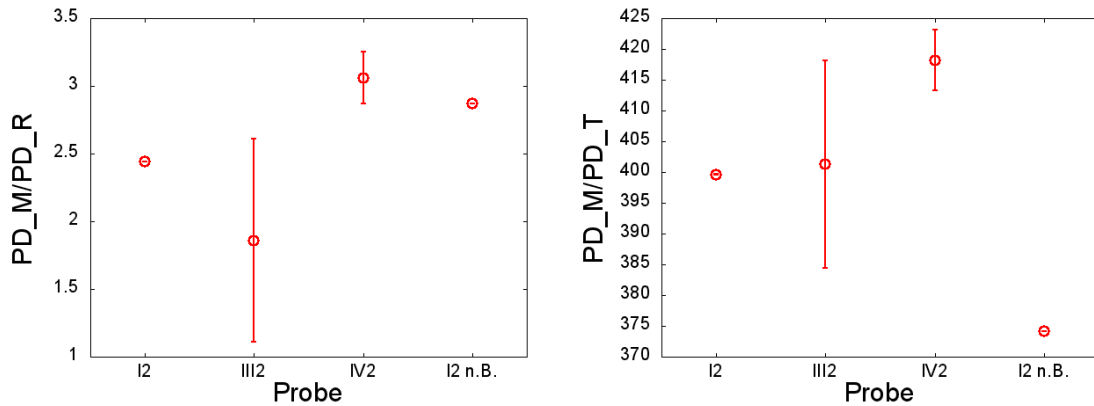


Abbildung 5.4: Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I2.

Es sind die über alle Messdaten gemittelten Daten des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexions- bzw. Transmissionsphotodiodensignal der Proben I2, III2 und IV2 vor sowie der Probe I2 nach der Beaufschlagung gezeigt. Im Falle der Messdaten mit einem großen Fehler, der auf der Standardabweichung der Messungen vom Mittelwert beruht, ist der Mittelwert aus mehreren Messungen gebildet worden (siehe Probe III2 und IV2). Rechts: Das gezeigte Verhältnis von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal hat sich nach der Beaufschlagung nur geringfügig geändert. Rechts: Hier sind die Daten des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal von Probe I2 nach der Beaufschlagung gezeigt.

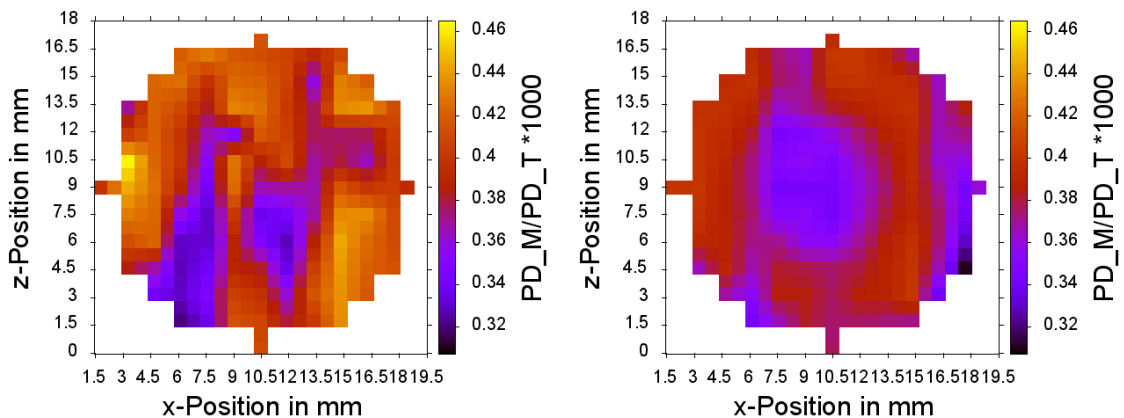


Abbildung 5.5: Graphische Darstellung der Messdaten des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal der Probe I2 nach 17 Tagen in einer Tritiumumgebung. Hier sind die graphischen Auftragungen der Messdaten des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal vor (links) und nach der Beaufschlagung (rechts) gezeigt. Aufgrund der Verteilung der Bereiche mit hohem und geringem Transmissionskoeffizienten auf der Probe ist es möglich, dass die beiden Diagramme um 180° gegeneinander verdreht sind (zur Problematik der Drehung der Proben siehe Kapitel 4.7).

5.3.4 Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Ionenstrahlspattern beschichteten Probe I3

In Abbildung 5.6 sind die Veränderungen der optischen Eigenschaften von Probe I3 gezeigt. Der Reflexionskoeffizient ist sowohl gegenüber der Messung von Probe I3 vor der Beaufschlagung als auch gegenüber den anderen Proben dieses Probenotyps erhöht. Der Transmissionskoeffizient dagegen zeigt keine Veränderung, die auf eine Beschädigung hinweist.

Um die Änderung des Reflexionskoeffizienten genauer zu untersuchen ist in Abbildung 5.7 die graphische Darstellung der Proben vor und nach der Beaufschlagung gezeigt. Die Zunahme ist gleichmäßig über die gesamte Probenoberfläche hinweg beobachtbar. Dies

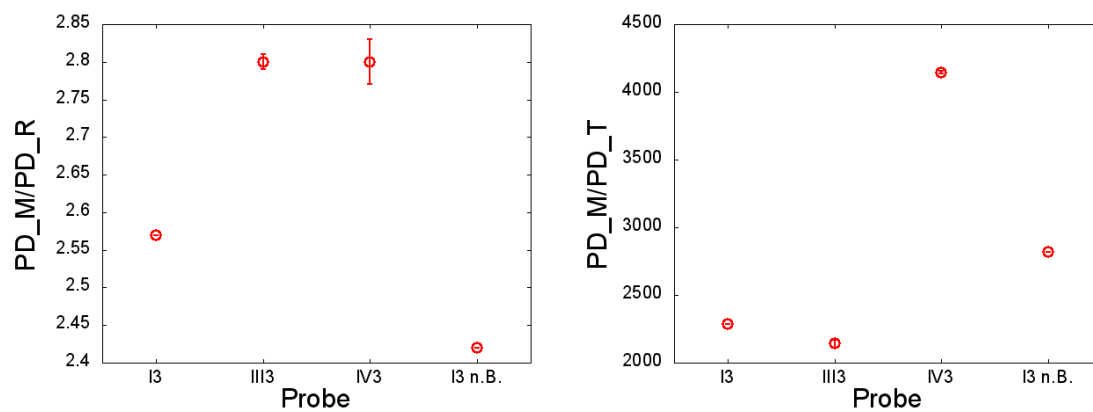


Abbildung 5.6: Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I3. Es sind die Verhältnisse von Monitor- zu Reflexions- (links) bzw. zu Transmissionsphotodiodensignal (rechts) der Proben I3, III3 und IV3 vor sowie der Probe I3 nach der Beaufschlagung (n.B.) gezeigt. Auffällig ist hier im Vergleich zu den anderen Proben der geringe Fehler bei mehrmaligem Messen einer Probe. Zudem zeigt der Reflexionskoeffizient nach der Beaufschlagung höhere Werte.

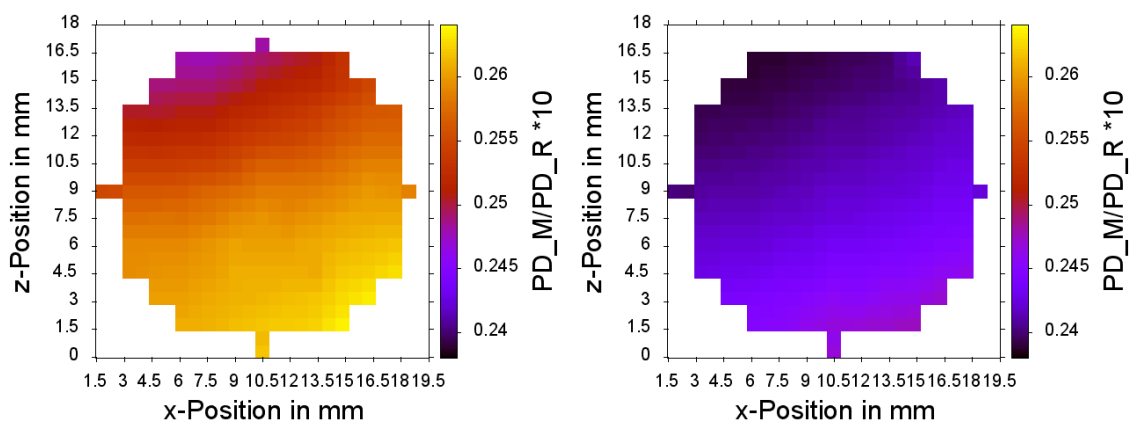


Abbildung 5.7: Vergleich der graphischen Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal von Probe I3 vor und nach der Beaufschlagung. Links: Hier ist das Verhältnis von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal der Probe I3 vor der Beaufschlagung gezeigt. Rechts: Das dargestellte Verhältnis von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal nach der Beaufschlagung zeigt eine gleichmäßige Zunahme über die gesamte Probenoberfläche hinweg.

könnte ein Anzeichen für eine Beschädigung sein.

Bei dieser Probe ist eine Aussage über eine mögliche Beschädigung sehr schwer. Einerseits sprechen der über die gesamte Probenoberfläche ansteigende Reflexionskoeffizient und die geringen Abweichungen bei mehrfachen Messungen einer Probe für einen Schaden. Andererseits sind die Änderungen der optischen Eigenschaften nicht signifikant genug um eine Beschädigung zu belegen. Aus diesem Grund wird zu diesem Zeitpunkt des Experiments noch von keiner Beschädigung ausgegangen.

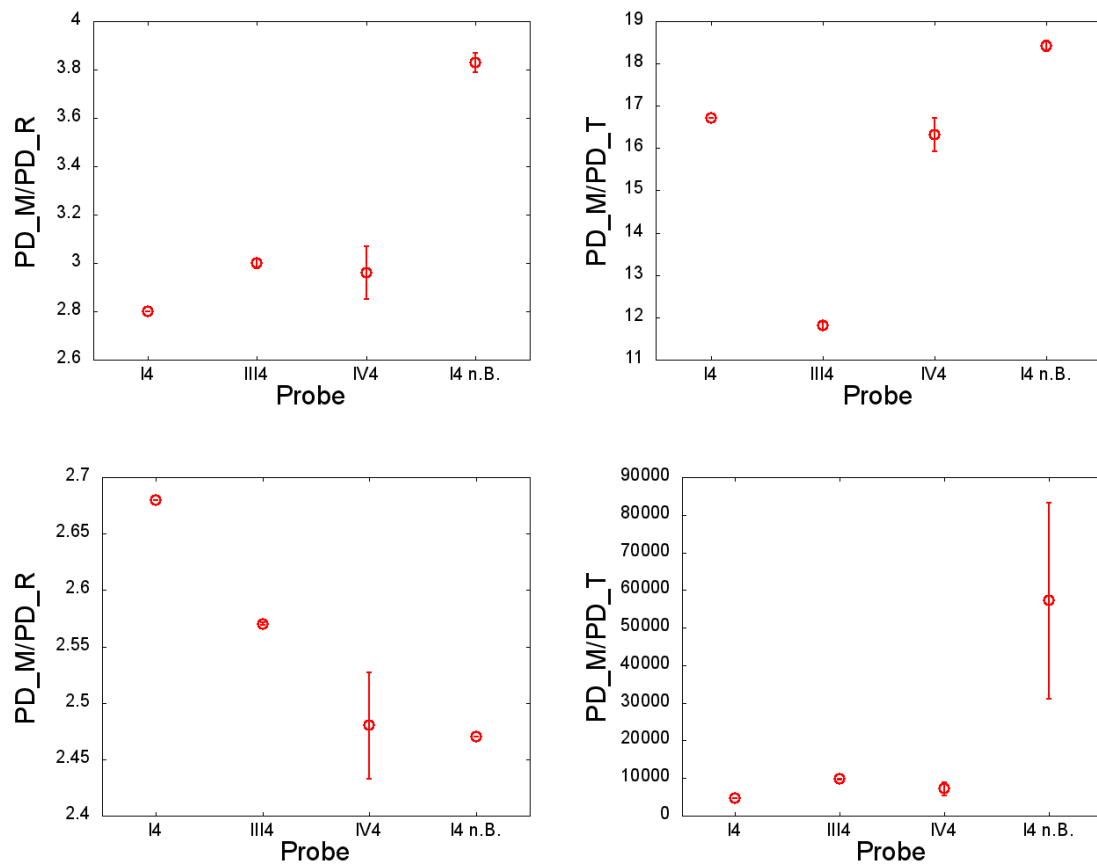


Abbildung 5.8: Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I4. Es werden jeweils die Mittelwerte über alle Messpunkte und im Falle mehrerer Messungen über alle Messungen der Proben I4, III4 und IV4 vor sowie der Probe I4 nach der Beaufschlagung (n.B.) gezeigt. Oben: Hier ist das Verhältnis von Monitor- zu Reflexions- (links) bzw. zu Transmissionsphotodiodensignal (rechts) im Falle der Bestrahlung mit 593 nm Laserlicht gezeigt. Da auch nach der Bestrahlung zwei Messungen an der Probe durchgeführt worden sind, ist der eingezeichnete Wert der Mittelwert aus diesen beiden Messungen. Unten: Für die an dieser Stelle gezeigten Messdaten ist die 1064 nm Laserdiode verwendet worden. Auch in diesem Fall wird der Mittelwert von mehreren Messungen, nämlich von dreien, nach der Beaufschlagung verwendet. Das linke Diagramm zeigt das Verhältnis von Monitor- zu Reflexions-, das rechte zu Transmissionsphotodiodensignal.

5.3.5 Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Elektronenstrahldeposition beschichteten Probe I4

In Abbildung 5.8 sind die Diagramme zum Vergleich der optischen Eigenschaften vor und nach der Beaufschlagung für die Bestrahlung mit unterschiedlichen Laserdioden gezeigt. Der Reflexionskoeffizient sinkt bei der Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 593 nm. Bei der Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 1064 nm steigt der Reflexionskoeffizient dagegen im Vergleich mit der Messung vor der Beaufschlagung an. Im Vergleich mit allen Proben dieses Probentyps bleibt er dagegen unverändert. Der Transmissionskoeffizient dagegen zeigt bei beiden Wellenlängen eine Verminderung, die bei der im Falle der Bestrahlung mit 1064 nm Licht etwa den Faktor 6 ausmacht.

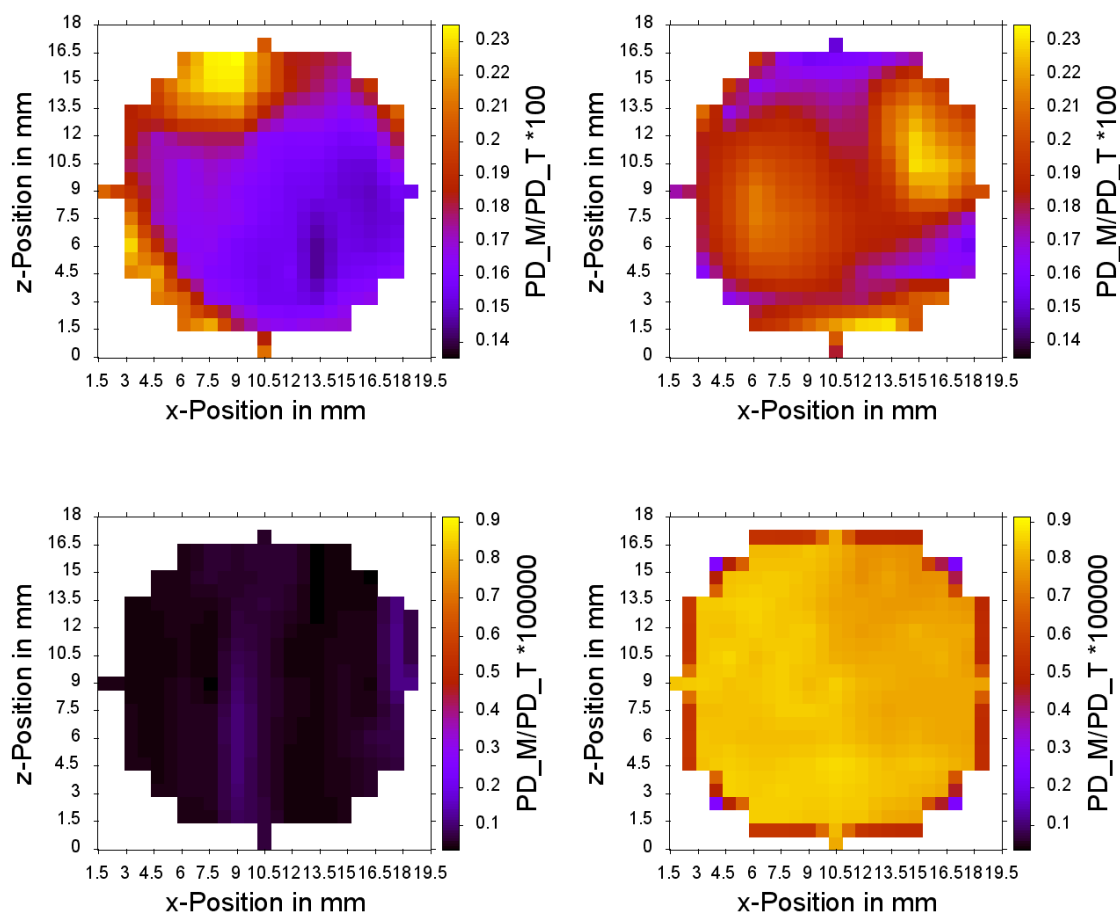


Abbildung 5.9: Vergleich der graphischen Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal von Probe I4 vor und nach der Beaufschlagung. Die Diagramme zeigen das Verhältnis von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal der Probe I4 vor (links) und nach der Beaufschlagung (rechts) bestrahlt mit unterschiedlichen Lichtquellen. Oben: Hier sind die aus der Bestrahlung mit 593 nm Laserlicht gewonnenen Daten gezeigt. Es scheint, als seien die beiden Proben um 180° gegeneinander verdreht in den TR-Aufbau eingebracht worden. Der Transmissionskoeffizient nimmt besonders im inneren Bereich der Probe ab. Unten: Die Bestrahlung der Probe I4 mit Licht der Wellenlänge 1064 nm zeigt bei dieser Messung einen um mehr als eine Größenordnung angestiegenen Wert. Die am Rand auftretenden Pixel sind eine Folge der hohen Randwerte, die mit dem umliegenden Bereich geglättet werden.

Die graphische Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal zeigt sowohl bei der Reduktion bei Bestrahlung mit 593 nm Licht als auch beim Anstieg im Falle von 1064 nm gegenüber der nicht beaufschlagten Probe ein über die gesamte Oberfläche gleichmäßiges Verhalten. In Abbildung 5.9 sind die graphischen Darstellungen für das Verhältnis von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal gezeigt. Im Falle der Bestrahlung mit 593 nm ist die Reduktion im Zentrum der Probe verstärkt gegenüber den Randbereichen. Für die Ergebnisse mit 1064 nm weisen die Transmissionswerte kleinere Schwankungen um den Mittelwert auf. Jedoch ist der Transmissionskoeffizient um etwa den Faktor 7 geringer. Es können jedoch keine Bereiche ausgemacht werden, in denen der Transmissionskoeffizient gegenüber anderen Bereichen eine besondere Entwicklung zeigt.

Zusätzlich zu den Ergebnissen der TR-Messung sind bei dieser Probe auch die Untersuchungen mittels DIC-Mikroskop von besonderem Interesse. In Abbildung 5.10 sind exemplarisch zwei der aufgenommenen Bilder gezeigt. Die dort gezeigten Befunde können jedoch auf jedem der aufgenommenen Bilder und über die gesamte Oberfläche der Probe hinweg beobachtet werden. Die Befunde zeigen die in Abschnitt 5.1 definierten Charakteristika einer Beschädigung. Ihre Größe beträgt allerdings nur weniger als 10 μm .

Insgesamt kann sowohl durch den TR-Aufbaus als auch durch das DIC-Mikroskop eine Beschädigung nachgewiesen werden. Zwar zeigt der Reflexionskoeffizient bei der Bestrahlung mit Licht unterschiedlicher Wellenlänge einerseits eine Reduktion und andererseits einen Anstieg gegenüber der unbeaufschlagten Probe. Dies kann jedoch durch eine wellenlängenabhängige Absorption in Defekten oder durch eine Änderung des Brechungsindex aufgrund von Verdichtung, wie sie in Kapitel 3 beschrieben worden sind, durchaus erklärt werden. Dagegen kann die Reduktion des Transmissionskoeffizienten nicht durch systematische oder statistische Effekte erklärt werden, zumal die Messungen mehrmals durchgeführt worden sind. Bestärkt wird dies durch die Beobachtung für die Beschädigung charakteristischer Befunde unter dem DIC-Mikroskop. Dass die Flecken nicht die Größe der bereits beschädigten, eingeschweißten Fenster besitzen, kann mit der erst kur-

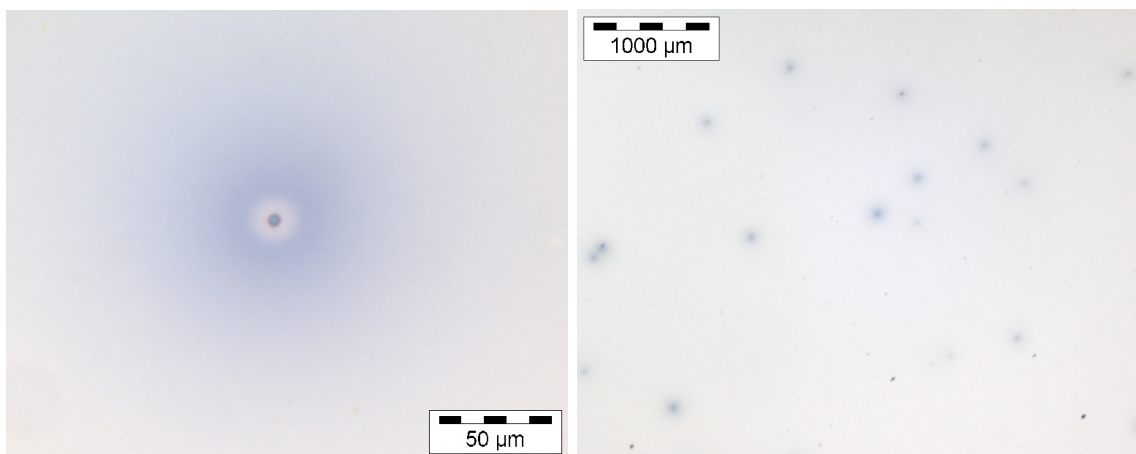


Abbildung 5.10: Aufnahmen des DIC-Mikroskops von der beaufschlagten Probe I4. Die Aufnahmen der Probe I4 zeigen Beschädigungen aufgrund der 17 Tage dauernden Lagerung der Proben in einer Tritiumumgebung. Links: Hier ist eine Detailaufnahme der Beschädigung von Probe I4 zu sehen. Sie ist kreisrund und zeigt einen Farbverlauf in ihrem Inneren. Rechts: Die Befunde sind über die gesamte Oberfläche der Probe hinweg sichtbar.

zen Beaufschlagungszeit von 17 Tagen erklärt werden.

5.3.6 Messergebnisse der beaufschlagten, mittels Sol-Gel-Verfahren beschichteten Probe I5

Anhand des in Abbildung 5.11 gezeigten Diagramms des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal kann ein deutlicher Anstieg des Reflexionskoeffizienten gegenüber dessen Wert vor der Beaufschlagung und gegenüber den anderen Proben dieses Probentyps bemerkt werden. Der Transmissionskoeffizient dagegen weist zwar eine Reduktion gegenüber dem Zeitpunkt vor der Beaufschlagung auf, jedoch nicht gegenüber den anderen typgleichen Proben.

Anhand der graphischen Darstellung des Verhältnisses von Monitor zu Reflexionsphotodiodensignal in Abbildung 5.12 wird deutlich, dass sich die Veränderung nicht über die gesamte Probenoberfläche gleichmäßig verhält. Wird von einer Drehung der Probe gegenüber der Referenzmessung ausgegangen, wird zwar deutlich, dass die Bereiche mit hohem bzw. geringem Reflexionskoeffizienten etwa erhalten bleiben, jedoch ist die Ausprägung der Veränderung nicht regelmäßig.

Mit Hilfe des DIC-Mikroskops wird die gegenüber den anderen Proben stark unterschiedliche Struktur der Beschichtung deutlich. Durch diese Struktur scheinen mehr Partikel an der Oberfläche anzuhaften, als dies bei den anderen Proben der Fall ist. Da das Aussehen der Partikel dem einer Beschädigung stark ähnelt, ist eine Aussage über eine Beschädigung in diesem Fall nicht möglich.

Zusammenfassend kann für diese Probe nach 17 Tagen in einer Tritiumumgebung keine eindeutige Aussage getroffen werden. Zum einen zeigt der Reflexionskoeffizient zwar einen deutlichen Anstieg, jedoch zeigt die graphische Auswertung kein gleichmäßiges Verhalten über die gesamte Oberfläche, wie es für eine Beschädigung wahrscheinlicher wäre. Zudem weist der Transmissionskoeffizient keine deutliche Veränderung auf. Auch die DIC-

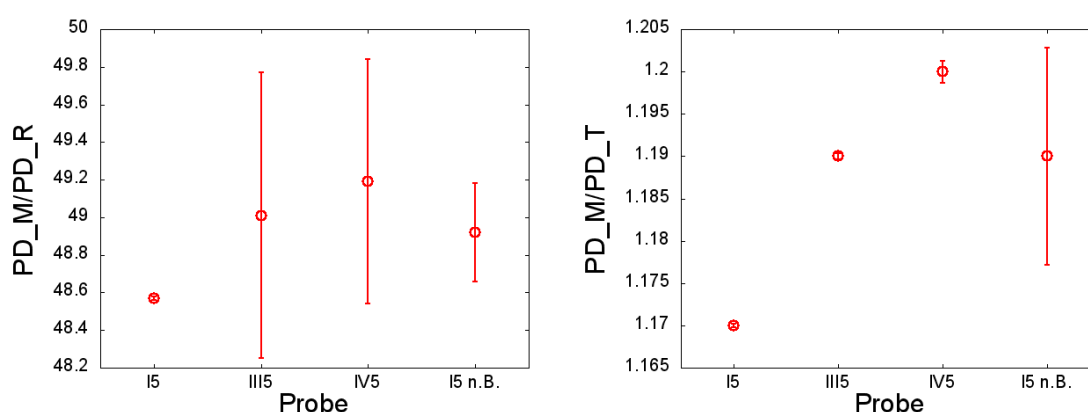


Abbildung 5.11: Ergebnisse der TR-Messung der beaufschlagten Probe I5

Gezeigt werden die Mittelwerte der Proben I5, III5 und IV5 vor sowie der Probe I5 nach der Beaufschlagung (n.B.). Links: Der Reflexionskoeffizient der Probe I5 nach der Beaufschlagung weist einen deutlich erhöhten Wert auf. Rechts: Hier sind die Mittelwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal für alle Proben des Probentyps gezeigt.

Aufnahmen erlauben aufgrund der hohen Anzahl an anhaftenden Partikeln keine eindeutige Aussage über eine mögliche Beschädigung.

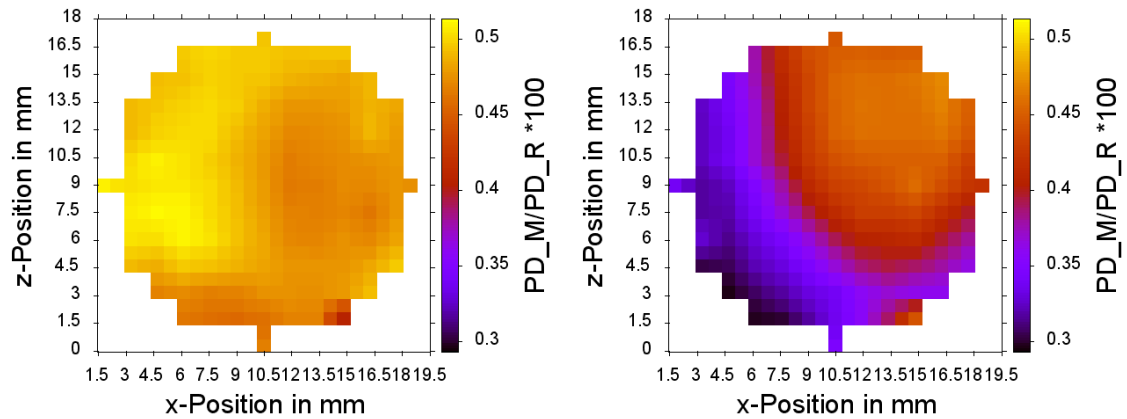


Abbildung 5.12: Vergleich der graphischen Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal von Probe I5 vor und nach der Beaufschlagung. Links: Hier sind die Daten der Messung vor der Beaufschlagung gezeigt. Rechts: Die Daten der beaufschlagten Probe scheinen um 90° gegenüber den Daten der Referenzmessung gedreht zu sein.

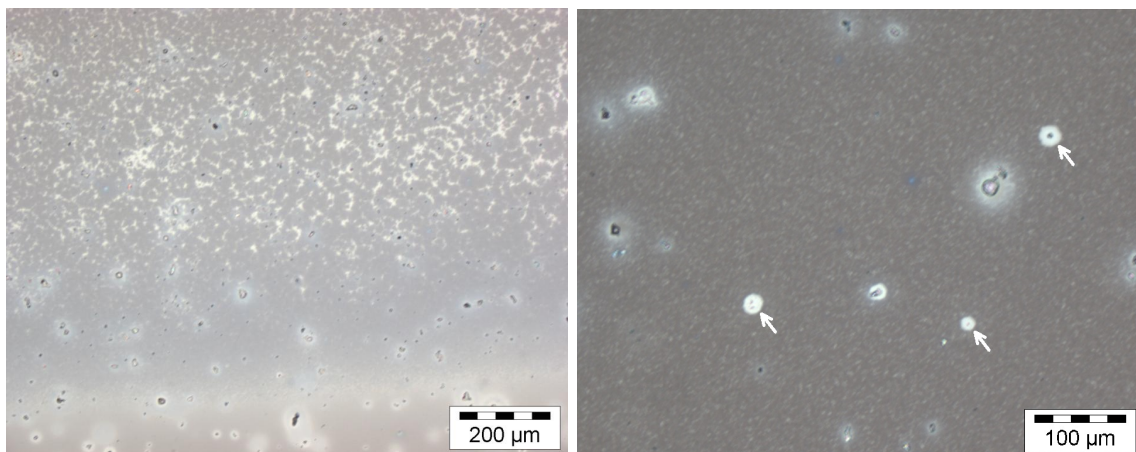


Abbildung 5.13: Aufnahmen des DIC-Mikroskops von der beaufschlagten Probe I5. Links: Abgebildet ist hier der Randbereich der Probe I5. Man erkennt gut die Struktur der Beschichtung und die Partikel, die auf der Probe anhaften. Letztere erscheinen auf dem Bild durch einen helleren Außenbereich. Rechts: Diese Aufnahme zeigt die Oberfläche mit einer noch höheren Vergrößerung. Die mit einem Pfeil gekennzeichneten Punkte könnten aufgrund ihres Aussehens (dunkler Fleck mit hellem umgebendem Kreis) eine Beschädigung darstellen. Da die ebenfalls in dieser Aufnahme sichtbaren Partikel jedoch ein sehr ähnliches Aussehen haben, ist eine Unterscheidung schwer möglich.

5.3.7 Messergebnisse der beaufschlagten, unbeschichteten Probe I6

Das Verhältnis der Messdaten von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal, das in Abbildung 5.14 gezeigt ist, zeigt einen Anstieg des Reflexionskoeffizienten bei einer Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 532 nm gegenüber der Probe I6 vor der Beaufschlagung. Jedoch zeichnet sich der Reflexionskoeffizient nach der Beaufschlagung sowohl bei der Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 532 nm als auch der Wellenlänge 593 nm durch keine signifikante Veränderung gegenüber den Koeffizienten der Vergleichsproben dieses Probenotyps aus. Für das Verhältnis zum Transmissionsphotodiodensignal unter Verwendung des Lichtes größerer Wellenlänge zeigen sich ebenfalls keine signifikanten Veränderungen. Lediglich der Transmissionskoeffizient, der mit Hilfe von 532 nm Licht bestimmt worden ist, zeigt einen leichten Rückgang gegenüber der unbeaufschlagten Probe. Vergleicht man jedoch die Unterschiede innerhalb des Probenotyps vor der Beaufschlagung kann diese Reduktion keinesfalls als ausreichend für eine Beschädigung bezeichnet werden. Probe I6 weist somit keine Beschädigung durch die Beaufschlagung auf.

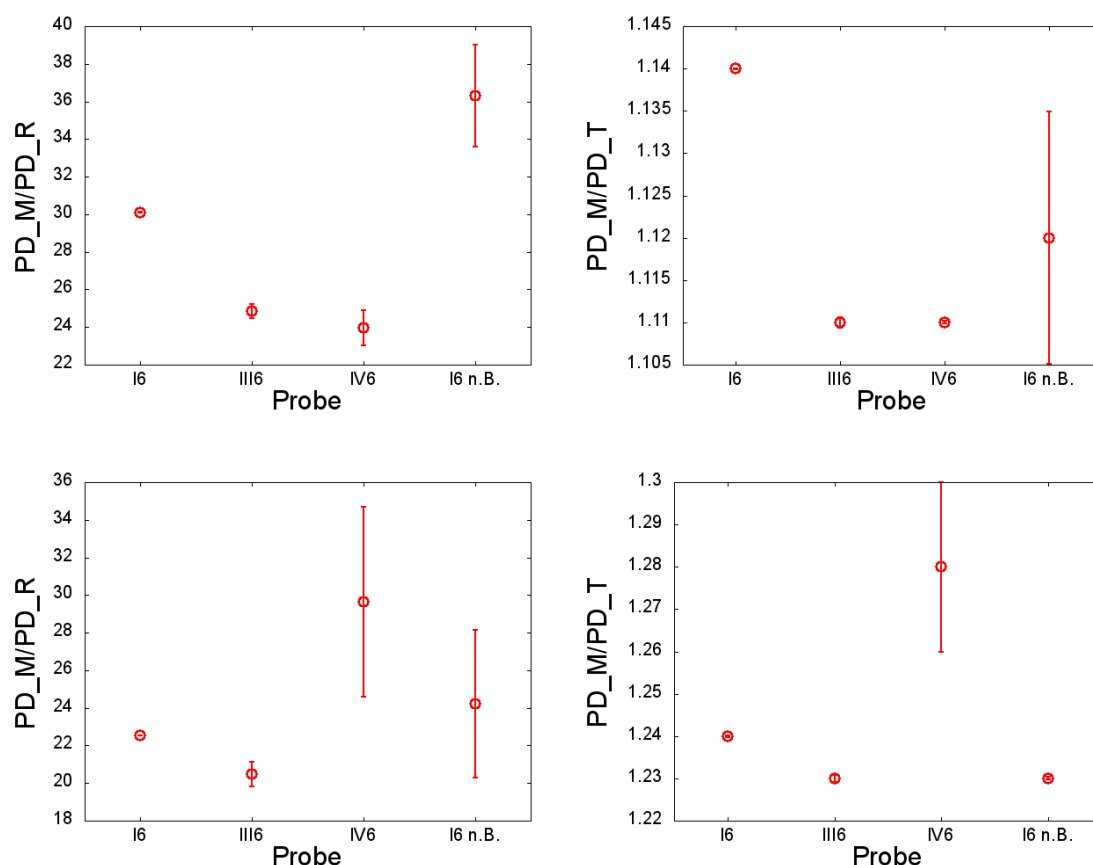


Abbildung 5.14: Ergebnisse der TR-Messung der Proben I6, III6 und IV6 vor sowie der Probe I6 nach der Beaufschlagung (n.B.). Oben: Die in den Diagrammen des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexions- (links) bzw. zu Transmissionsphotodiodensignal (rechts) gezeigten Mittelwerte sind mit Hilfe der Laserdiode mit einer Wellenlänge von 532 nm aufgenommen worden. Unten: Hier sind mit Licht einer Wellenlänge von 593 nm gewonnene Daten gezeigt. Das linke Diagramm stellt das Verhältnis von Monitor- zu Reflexions-, das rechte zu Transmissionsphotodiodensignal dar.

5.4 Zusammenfassung und Bewertung der Ergebnisse im Rahmen des KATRIN-Experiments

Die Ergebnisse der ersten Untersuchung beaufschlagter Proben sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Lediglich bei Probe I4 kann eine Beschädigung zweifelsfrei nachgewiesen werden. Damit ist die Vermutung bestätigt, dass diejenige Probe von LASEROPTIK, die die geringste Packungsdichte aufweist, am anfälligsten für eine Beschädigung ist. Für die zweite Probe im Experiment, die sich durch eine geringe Packungsdichte auszeichnet, nämlich Probe I5, kann weder im Falle der TR-Messung noch durch die Bewertung mittels DIC-Mikroskop aufgenommener Bilder eine klare Aussage über eine Beschädigung getroffen werden.

Für Probe I6 hingegen, also für das unbeschichtete Fenster, kann eine Beschädigung ausgeschlossen werden. Die drei anderen Proben I1, I2 und I3 zeigen unter Berücksichtigung aller Untersuchungsmethoden keine klaren Anzeichen eines Schadens. Jedoch muss dabei beachtet werden, dass die TR-Messungen keine eindeutigen Ergebnisse geliefert haben und das DIC-Mikroskop nur Beschädigungen, die mindestens eine Größe von wenigen Mikrometern besitzen, aufzeigen kann. Weiteren Aufschluss über die Tauglichkeit der Beschichtungen der Proben I1, I2, und I3 sowie über die Tauglichkeit der unbeschichteten Fenster können die weiteren Messungen dieses Experiments liefern. Daher ist geplant, die Proben noch mindestens weitere zwei Monate einer Tritiumumgebung auszusetzen.

Diese Ergebnisse müssen im Rahmen des KATRIN-Experiments bewertet werden. Dabei ist zu beachten, dass aufgrund zweier Aspekte lediglich qualitative Aussagen über die Tauglichkeit der einzelnen Beschichtungen möglich sind. Zum einen sind die optischen Eigenschaften der im Experiment verwendeten Proben nicht mit denen der Fenster der LARA-Zelle vergleichbar. So werden in dem in dieser Arbeit beschriebenen Experiment auch hoch reflektierende Beschichtungen verwendet. Eine beobachtete Veränderung einer optischen Eigenschaft lässt sich somit nicht zwingend direkt auf eine für die LARA-Messungen optimierte Beschichtung übertragen. Die grundlegende Aussage über eine Tauglichkeit sollte dadurch jedoch nicht betroffen sein. Zum anderen sind die Proben

Tabelle 5.3: Zusammenfassung der Ergebnisse der ersten Untersuchung an 17 Tage in Tritiumumgebung gelagerten Proben. Die Abstufung der Bewertung ist folgende: - -: eine Beschädigung ist zweifelsfrei vorhanden, -: eine Beschädigung kann nicht zweifelsfrei belegt werden, aber es sind deutliche Anzeichen vorhanden, o: aufgrund der Daten kann keine Aussage getroffen werden, +: eine Beschädigung kann nicht zweifelsfrei ausgeschlossen werden, ++: es gibt keine Anzeichen für eine Beschädigung.

Probe	opt. Mikroskop	TR-Aufbau	DIC-Mikroskop
I1 (IAD)	++	+	++
I2 (MS)	++	+	++
I3 (IBS)	++	+	++
I4 (EBD)	++	- -	- -
I5 (Sol-Gel)	++	o	o
I6 (-)	++	++	++

erst 17 Tage beaufschlagt worden. Im Rahmen des KATRIN-Experiments dürfen sich die optischen Eigenschaften der Proben in einer Tritiumumgebung über mindestens 60 Tage hinweg nicht ändern, was einer Messphase entspricht. Im besten Fall zeigen sie sogar während der gesamten Messzeit des KATRIN-Experiments, also über 5 Jahre oder mehr, keine Degradation der optischen Eigenschaften.

Die nach den ersten Untersuchungen an beaufschlagten Proben qualitativ möglichen Aussagen sind folgende:

- Mittels Elektronenstrahldeposition hergestellte Beschichtungen sind ungeeignet für die Nutzung in einer Tritiumatmosphäre. Diese Schlussfolgerung wird durch die Beschädigung der Probe I4 gestützt. Eine Untermuerung dieser Aussage ist im weiteren Experiment zu erbringen.
- Die Fenster selbst scheinen durch die Tritiumumgebung (noch) nicht beschädigt zu werden. Dies kann daraus gefolgert werden, dass die unbeschichteten Fenster bisher keine Beschädigung aufweisen. Damit ist im Falle einer Beschädigung aller Beschichtungen die Möglichkeit gegeben, die LARA-Zelle mit unbeschichteten Fenstern zu betreiben, sofern diese Proben auch in weiteren Messungen keine Beschädigungen zeigen.
- Kohlenwasserstoffe können in diesem Experiment nicht als Beschädigungsursache ausgeschlossen werden. Genau wie beim LOOPINO-Experiment, während dem die Beschädigung der Zellenfenster erstmals beobachtet werden konnte, bilden sich innerhalb der Probenbehälter tritiierte Kohlenwasserstoffe. Es ist bisher nicht geklärt, ob diese die Beschädigung hervorrufen oder verstärken können. Da nicht bekannt ist, wie viel Kohlenwasserstoff sich im Gasgemisch nach dem Durchlaufen des Permeators im Inner Loop des KATRIN-Experiments bildet, bevor das Gas durch die LARA-Zelle geleitet wird, ist dies ein Aspekt, der nicht vernachlässigt werden darf.
- Die mittels Ionenstrahlgestützter Deposition, Ionenstrahlputtern oder Magnetronputtern aufgetragenen Beschichtungen scheinen zum derzeitigen Zeitpunkt geeignet für die Verwendung innerhalb des KATRIN-Experiments. Weder mittels TR-Messung noch mittels Analyse mit dem DIC-Mikroskop können bisher Ergebnisse gefunden werden, die die Eignung dieser Beschichtungen widerlegen. Sollten die auf diese Weise beschichteten Proben auch nach einer Beaufschlagungszeit von 60 Tagen und mehr keine Verschlechterung der optischen Eigenschaften aufweisen, können die LARA-Messungen in der vom KATRIN-Experiment geforderten Güte durchgeführt werden.

Somit ist nach den ersten Messungen an beaufschlagten Proben weiterhin die Möglichkeit gegeben, dass eine Beschichtung gefunden werden kann, die einen Betrieb des LARA-Aufbaus mit der geforderten Präzision von 0,1 % in 250 s bei einem Tritiumpartialdruck von 100 - 200 mbar gewährleistet.

Im letzten Kapitel dieser Arbeit werden die erreichten Ziele nochmals kurz zusammengefasst. Zudem wird ein Ausblick auf die weiteren Schritte gegeben, die aus den Erfahrungen der ersten Messungen für den weiteren Ablauf des Experiments gefolgert werden können. Auch die aus den ersten Ergebnissen ableitbaren Folgerungen für den LARA-Aufbau und das KATRIN-Experiment werden beschrieben.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der ersten, unter KATRIN-Bedingungen durchgeführten LARA-Messungen ist eine Beschädigung an den beschichteten Fenstern der LARA-Zelle aufgetreten. Diese Beschädigung bringt das Erreichen der geforderten Präzision von 0,1 % in 250 s unter einem Tritiumpartialdruck von 100 - 200 mbar bei der Messung der Gaszusammensetzung in Gefahr. Im Falle einer geringeren Präzision der LARA-Messungen als 0,1 % ist es jedoch fraglich, ob das KATRIN-Experiment die angestrebte Sensitivität von $0,2 \text{ eV}/c^2$ (90 % C.L.) zur Messung der Neutrinomasse erreichen kann.

Da eine solche Beschädigung in der Literatur bisher noch keine Erwähnung gefunden hatte, war die Entwicklung eines vollkommen neuen Experiments notwendig. Ziel dieses Experiments ist es, die Bedingungen des KATRIN-Experiments so genau wie möglich abzubilden, um dadurch die am besten geeignete Fenster-Beschichtung zu finden und den Aufwand, der durch einen Austausch der Fenster oder der ganzen LARA-Zelle entstehen würde, zu minimieren. Dafür wurde zum einen eine Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben mit Tritium und zum anderen eine Möglichkeit, die Proben zu untersuchen, entwickelt. Dabei mussten die durch die Verwendung des radioaktiven Gases geltenden Sicherheitsanforderungen immer beachtet werden.

Die Versuchseinrichtung zur Beaufschlagung der Proben konnte innerhalb der CAPER A-Handschuhbox erfolgreich in Betrieb genommen werden. Neben der Befüllung der Probenbehälter mit von Kohlenwasserstoffen befreitem Tritiumgas, kann hier auch eine Rückführung des Gases und eine Analyse mittels Gaschromatographen geleistet werden. Auch die innerhalb des Tritiumlabor Karlsruhe verwendeten Versuchseinrichtungen zur Untersuchung der Proben konnten in die hierfür vorgesehene Omegatron-Handschuhbox eingebaut und in Betrieb genommen werden. In diesem Zusammenhang sei auch der große zeitliche Aufwand für die Realisierung des TR-Aufbaus erwähnt. Dieser ist der Grund dafür, dass lediglich eine Messung nach 17 Tagen in einer Tritiumatmosphäre an beaufschlagten Proben im Rahmen dieser Arbeit vorgestellt werden kann.

Zusätzlich bietet die Zusammenarbeit mit dem ebenfalls zum Karlsruher Institut für Technologie gehörenden Fusionsmateriallabor die Möglichkeit, die Proben mittels DIC-Mikroskop zu untersuchen. Da der Transport der Proben zum Fusionsmateriallabor jedoch mit einem großen Aufwand verbunden ist, können diese Untersuchungen nicht für die Proben jedes Probenbehälters durchgeführt werden.

Nachdem bereits erste Referenzmessungen an den Proben außerhalb der Handschuhbox vorgenommen worden sind, sind in dieser Arbeit auch die ersten Untersuchungen an Pro-

ben vorgestellt worden, die 17 Tage in einer Tritiumumgebung mit einem Druck von 198 mbar und einer Tritiumreinheit von mindestens 93 % aufbewahrt worden sind. Als Ergebnis dieser Messungen zeigen sich bei der von LASEROPTIK mittels Elektronenstrahldosition beschichteten Probe bereits erste Beschädigungen. Bei einer weiteren Probe, die von das LLNL zur Verfügung gestellt worden ist, kann eine Beschädigung nicht ausgeschlossen, aber auch nicht bestätigt werden. Die restlichen Proben von LASEROPTIK sowie ein unbeschichtetes Fenster von THORLABS zeigen zu diesem Zeitpunkt der Untersuchungen keine Anzeichen für eine Beschädigung.

Aus diesen ersten Ergebnissen lässt sich bereits schlussfolgern, dass Beschichtungen, die mittels Elektronenstrahldosition aufgetragen sind, für das KATRIN-Experiment untauglich sind. Um diese Aussage mit weiteren Messergebnissen zu untermauern, besonders durch die typgleichen Proben aus Probenbehälter III und IV, und eine Aussage über die anderen Proben treffen zu können, müssen die Messungen fortgesetzt werden. Die kürzeste Zeit, die die Beaufschlagung insgesamt andauern darf, ist dabei etwa 60 Tage, was einer KATRIN-Messkampagne entspricht. Jedoch erscheint es sinnvoll, die Beschichtungen über einen noch längeren Zeitraum hinweg zu testen, sofern noch nicht alle Proben eine Beschädigung aufweisen. Auf diese Weise kann eine Beschädigung auch nach mehreren Messkampagnen ausgeschlossen werden oder zumindest bestimmt werden, nach welcher Zeitspanne ein Austausch der Fenster nötig ist.

Außerdem können durch weitere Messungen folgende Fragen geklärt werden:

- In wie weit ist eine aufgetretene Beschädigung reproduzierbar? Hierüber gibt der Vergleich der Ergebnisse der drei typgleichen Proben Aufschluss.
- Wird die Anfälligkeit für eine Beschädigung durch das Einschweißen der Proben beeinflusst? Dies wird durch einen Vergleich der eingeschweißten und der nicht eingeschweißten Proben, die mittels Elektronenstrahldosition beschichtet worden sind, ermöglicht. Da die ersten Ergebnisse Schäden an den mittels EBD beschichteten, nicht eingeschweißten Fenstern gezeigt haben, kann bereits jetzt ausgeschlossen werden, dass die Beschädigung nur bei eingeschweißten Proben auftritt.
- Wachsen die unter dem DIC-Mikroskop sichtbaren, wenige Mikrometer großen Flecken an und stellen somit eine Beschädigung in einem frühen Stadium dar? Oder werden die bei den bereits beschädigten Proben festgestellten größeren Flecken durch andere Effekte verursacht? Für eine Beantwortung dieser Fragen muss die Probe I4 nach einer weiteren Beaufschlagung erneut unter dem DIC-Mikroskop untersucht werden.

Aus den ersten Untersuchungen beaufschlagter Proben wird deutlich, dass aufgrund einer einzelnen Messung jeder Probe zum Teil nur schwer ein Ergebnis abgeleitet werden kann. Um die Bewertung der Ergebnisse zu erleichtern, sollten daher in Zukunft mindestens zwei Messungen durchgeführt werden. Um den hierdurch entstehenden Mehraufwand an Zeit auszugleichen, ist eine Reduktion der Messzeit um zwei bis drei Sekunden zu erwägen. Zudem kann eine Betrachtung noch unbeaufschlagter Proben, die durch das LLNL beschichtet worden sind, eine bessere Einordnung des Gesehenen ermöglichen. Sind auch auf diesen Proben Bereiche zu erkennen, die als Beschädigung gedeutet werden können, liefert das DIC-Mikroskop zumindest im Falle geringer Beschädigung keine Ergebnisse. Ist dies nicht der Fall, kann sicher von einer Beschädigung der Probe zu diesem Zeitpunkt des Experiments ausgegangen werden.

Das Experiment in seiner bisherigen Form kann lediglich eine Beschädigung für den Fall der während des KATRIN-Experiments herrschenden Bedingungen detektieren. Eine Möglichkeit, die tatsächliche Ursache der Beschädigung zu finden, bietet es jedoch nicht. Daher sind folgende Abwandlungen in der Beaufschlagung denkbar:

- Der Einfluss von Kohlenwasserstoffen auf die Beschädigung kann durch die Lagerung der Proben in einem nicht tritiierten Gasgemisch, das Kohlenwasserstoffe enthält, untersucht werden. Tritt hierbei keine Beschädigung auf, so können Kohlenwasserstoffe allein nicht für die Beschädigung verantwortlich sein.
- Die Beschädigung aufgrund einer Vakuumumgebung kann durch eine Lagerung der Proben in einem auf 100 bis 200 mbar evakuierten Probenbehälter untersucht werden. Auch dieser Beschädigungsmechanismus kann bei einer nicht eintretenden Beschädigung als alleinige Ursache ausgeschlossen werden.
- Eine Auswirkung der Aktivität auf die Beschädigung kann untersucht werden, indem die Proben geringerer und auch höherer Aktivität durch das Tritiumgas ausgesetzt werden. Im Falle einer geringeren Aktivität bieten sich zu einer Beaufschlagung, wie sie im Experiment mit Hilfe der Probenbehälter durchgeführt wird, zwei Alternativen. Zum einen können mit einer bereits vorhandenen Elektronenkanone die Betaelektronen des Tritiumzerfalls simuliert werden. Zum anderen gibt es bereits eingeschweißte Proben, die mit Gasen geringer Tritiumkonzentration genutzt worden sind. Mit dem bloßen Auge sind an diesen keine Beschädigungen sichtbar. Jedoch könnte eine Untersuchung mittels DIC-Mikroskop auch hier Beschädigungen aufdecken.

Es ist dabei zu beachten, dass durch diese Untersuchungen nicht ausgeschlossen werden kann, dass sich die Beschädigungsmechanismen gegenseitig verstärken. So ist durchaus denkbar, dass die Proben eines über längere Zeit evakuierten Probenbehälters keine Beschädigung zeigen, der verminderte Druck während der Beaufschlagung die Proben jedoch anfälliger für einen Schaden macht.

Sollte am Ende all dieser Untersuchungen eine Beschichtung gefunden sein, die keine Beschädigung aufweist, wird diese für das KATRIN-Experiment verwendet werden. Sollte es sich jedoch zeigen, dass der Einschweißvorgang einen Einfluss auf die Tauglichkeit der Proben hat, so müssen auch hier die eingeschweißten Proben nochmals untersucht werden.

Kann dagegen keine Beschichtung gefunden werden, die den Bedingungen während des KATRIN-Experiments standhält, so sind folgende Alternativen denkbar:

- Die am wenigsten für eine Beschädigung anfällige Beschichtung kann verwendet werden. Dies bedeutet, dass die Fenster der Zelle bzw. die ganze Zelle im Laufe der Messungen des KATRIN-Experiments ausgetauscht werden müssen. Dieser Austausch müsste fest in den Messplan des Experiments integriert sein, was einen gewissen organisatorischen Aufwand bedeutet. Zudem ist der Austausch einer Zelle aufgrund der erschwerten Bedingungen innerhalb einer Handschuhbox nicht einfach. Für diese Möglichkeit spricht jedoch, dass keine weitere Entwicklungsarbeit mehr nötig ist.
- Eine weitere Möglichkeit stellt die Verwendung unbeschichteter Fenster dar. Im Falle nicht beschädigter Fenster aus Quarzglas können diese verwendet werden. Da diese Fenster im Wellenlängenbereich von 500 bis 800 nm jedoch eine Transmission von

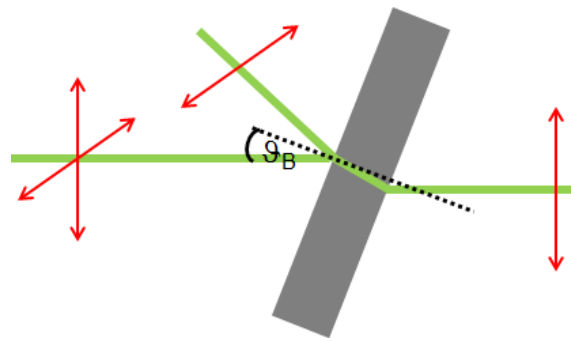


Abbildung 6.1: Prinzip des Brewster-Fensters. Trifft ein Strahl unpolarisierten Lichtes im Brewsterwinkel θ_B auf eine Oberfläche, so sind der reflektierte und der gebrochene Strahl senkrecht zueinander polarisiert. Ist der einfallende Strahl parallel zur Einfallsebene polarisiert, so entfällt an einem perfekten Fenster die Reflexion. Das gesamte Licht transmittiert somit durch das Fenster. Eigene Darstellung nach [Shu07].

weniger als 85 % besitzen [Tra07], wird die Intensität des Lichtes in der Zelle sowie des Streulichtes vermindert. Sollten diese Proben ebenfalls eine Beschädigung aufweisen, so ist eine Suche nach anderen Materialien für optische Gläser möglich. Dabei müssen die Gläser zum einen geeignete optische Eigenschaften aufweisen, wie beispielsweise ein hoher Transmissionskoeffizient. Zum anderen dürfen sie weder durch die Laserstrahlung noch durch die Tritiumumgebung beschädigt werden. Ein Beispiel hierfür sind Saphirfenster. Fenster aus diesem Material werden bereits erfolgreich im Tritiumlabor Karlsruhe als Schaugläser verwendet und finden auch an zwei der in diesem Experiment verwendeten Probenbehältern Verwendung. Allerdings ist die Transmission nochmals etwa 10 % geringer als bei Quarzglas.

- Auch Brewster-Fenster (siehe Abbildung 6.1) anstelle der bisher verwendeten Zellfenster sind denkbar. Dabei ist jedoch zu beachten, dass das gestreute Licht teilweise depolarisiert ist. Dies macht einen komplizierten Aufbau der Brewster-Fenster nötig. Des Weiteren besteht auch hier das Problem der Beschädigung der Gläser. Die Fenster müssen somit aus einem Material gefertigt sein, das nicht durch die herrschenden Bedingungen beschädigt wird. Zudem erfordert diese Möglichkeit eine Neukonstruktion der Probenzelle und einen erhöhten Aufwand bei der Justage des Strahlengangs.

Ist die Problematik der Beschädigung der Fenster durch eine Tritiumumgebung jedoch gelöst, so steht innerhalb des Tritiumlabor Karlsruhe ein präzises Messinstrument zum Nachweis von Tritium bereit. Auch die Überwachung der Reinheit des Gases mit der geforderten Präzision für das KATRIN-Experiment ist somit möglich.

Anhang A

Vereinfachte Berechnung der Dosis auf die LARA-Fenster

In diesem Anhang wird eine Berechnung der auf die LARA-Fenster entfallenden Strahlendosis durchgeführt, um das Ergebnis mit den Strahlendosen in Kapitel 3 zu vergleichen. Da der Abstand der Laser- und Raman-Fenster zum Mittelpunkt der Zelle unterschiedlich ist, hier jedoch nur eine Abschätzung und keine genaue Berechnung geleistet werden soll, wird zur Vereinfachung das Zellvolumen als Würfel mit vernachlässigbarer Wandstärke approximiert. Zudem wird das Gasgemisch durch eine punktförmige Quelle vereinfacht

Wichtige Randbedingungen sind:

Druck:	$p = 200 \text{ mbar}$
Volumen der Zelle:	$V = 8,1 \text{ cm}^3 = 8,1 \cdot 10^{-3} \text{ l}$
Temperatur	$T = 295 \text{ K}$
Allgemeine Gaskonstante:	$R = 8,31 \frac{\text{J}}{\text{mol} \cdot \text{K}} = 83,1 \frac{\text{mbar} \cdot \text{l}}{\text{mol} \cdot \text{K}}$ [Moh08]
Avogadro-Konstante	$N_A = 6,02 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ [Moh08]
Mittlere Elektronenenergie	$\langle \beta \rangle = 5,73 \cdot 10^3 \text{ eV}$ [Pil61]
Halbwertszeit $T_{1/2}$	$12,32 = 3,89 \cdot 10^8 \text{ s}$ [Luc00]
Radius eines Fensters:	$r = 0,34 \text{ cm}$
Dichte von SiO_2 :	$\varrho = 2,2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ [Dab00]
Zeit für einen KATRIN-Run	60 Tage = $5\,184\,000 \text{ s}$
Gesamtzeit für KATRIN-Experiment	3 Jahre = $9,46 \cdot 10^7 \text{ s}$

Mit Hilfe der allgemeinen Gasgleichung erhält man die Stoffmenge in mol, die in dem Volumen der LARA-Zelle enthalten ist:

$$n = \frac{p \cdot V}{R \cdot T} = 6,6 \cdot 10^{-5} \text{ mol} \quad (\text{A.1})$$

Da die Teilchenzahl pro mol immer der Avogadro-Konstante entspricht, sind in einem mol T_2 $n_{T_2} = 2 \cdot N_A = 1,2 \cdot 10^{24}$ Tritiumatome enthalten. Damit ist die in der Zelle enthaltene Teilchenzahl gegeben durch N_{T_2} :

$$N_{T_2} = n \cdot n_{T_2} = 7,9 \cdot 10^{19} \quad (\text{A.2})$$

Die Aktivität A dieser Teilchenzahl beträgt:

$$A = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \cdot N_{T_2} = 1,4 \cdot 10^{11} \text{ Bq} = 3,8 \text{ Ci} \quad (\text{A.3})$$

Um nun die Zerfälle Φ pro Flächeneinheit und Zeit und die Dosis D zu bestimmen, werden drei Vereinfachungen vorgenommen:

- Das Innere der Zelle wird mit einem Würfel angenähert, dessen Seitenlänge

$$a = \sqrt[3]{8,1 \text{ cm}^3} \approx 2 \text{ cm} \quad (\text{A.4})$$

beträgt. Weiterhin wird angenommen, dass aufgrund einer vernachlässigbaren Wandstärke die Fensterflächen mit den Seitenflächen des Würfels übereinstimmen.

- Die Strahlungsquelle wird als punktförmig und im Mittelpunkt der Zelle befindlich angenommen.
- Der Abstand b des äußeren Randes eines Fensters vom Mittelpunkt der Zelle beträgt 1,06 cm im Gegensatz zum minimalen Abstand von $a/2 = 1 \text{ cm}$ (siehe Abbildung A.1). Da hier lediglich eine Abschätzung der auf die Fenster einwirkenden Strahlendosis geleistet werden soll, wird im Folgenden mit einem Abstand $a/2$ der Fensterfläche vom Zellenmittelpunkt gerechnet.

Die Anzahl Φ an Zerfällen pro Fläche und Zeit berechnet sich zu:

$$\Phi = \frac{A}{4 \cdot \pi \cdot \left(\frac{a}{2}\right)^2} = 1,1 \cdot 10^{10} \frac{\text{Zerfälle}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}} \quad (\text{A.5})$$

Hieraus kann die durch die Elektronen pro Fläche und Zeit deponierte Energie E_F bestimmt werden:

$$E_F = \Phi \cdot \langle \beta \rangle = 6,3 \cdot 10^{13} \frac{\text{eV}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}} \quad (\text{A.6})$$

Diese führt, multipliziert mit der Fläche eines Zellfensters, auf die pro Sekunde auf einem Fenster deponierte Energie E_A :

$$E_A = E_F \cdot \pi \cdot r^2 = 2,3 \cdot 10^{13} \frac{\text{eV}}{\text{s}} \quad (\text{A.7})$$

Um eine Aussage über die Gesamtdosis, der die Fenster ausgesetzt werden, treffen zu können, muss die bestrahlte Masse bestimmt werden. Hierfür wird unter anderem die Eindringtiefe d von Tritium in das Fenstermaterial benötigt. Da jedoch keine Werte für optische Fenster gefunden werden konnten, wird ab hier mit drei unterschiedlichen Werten

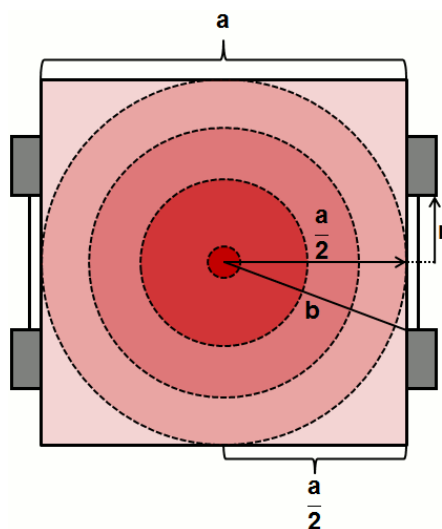


Abbildung A.1: Schematische Darstellung der zur Dosisberechnung angewandten Approximationen. Die Abbildung zeigt einen Querschnitt durch eine LARA-Zelle mit einer als Punktquelle approximierten Strahlungsquelle. An den Seitenflächen sind die Fenster (eingefasst in dunkel dargestellte Flansche) mit Radius r zu sehen. Der Abstand des Mittelpunkts der Fenster zum Mittelpunkt der Zelle beträgt $a/2$, der Abstand vom äußeren Rand der Fenster zum Mittelpunkt ist mit b bezeichnet. Die unterschiedlich eingefärbten Kreise sollen die Kugelschalen verdeutlichen, auf denen 1 cm^2 immer mit der gleichen Energie durch die Punktquelle bestrahlt wird.

Tabelle A.1: Eindringtiefen von T_2 in unterschiedliche Materialien

Bezeichnung	Eindringtiefe	Material
d_{St}	$1000\mu\text{m}$	Stahl
d_{Si}	$100\mu\text{m}$	mit Si beschichteter Stahl
d_{Al}	$0,1\mu\text{m}$	mit Al_2O_3 beschichteter Stahl

gerechnet, die von G.W. Hollenberg et al. [Hol95] für Stahl und mit Silizium bzw. Al_2O_3 beschichteten Stahl bestimmt worden sind (siehe Tabelle A.1).

In Tabelle A.2 werden die errechneten Ergebnisse für die bestrahlte Masse, die daraus resultierende Dosisrate und die Gesamtdosis für die unterschiedlichen Eindringtiefen angegeben. Zur besseren Vergleichbarkeit der errechneten Strahlungsdosen dient Tabelle A.3. Hier sind die in Kapitel 3 vorkommenden Strahlendosen nochmals zusammengefasst.

Vergleicht man die Strahlendosen aus Tabelle A.3 mit denen aus Tabelle A.2 wird deutlich, dass die Werte in einem ähnlichen Größenordnungsbereich liegen. Dies gilt auch für die kleinsten für die LARA-Fenster berechneten Dosen, die im Bereich der in [Leo09] untersuchten Strahlendosen liegen. Daher kann davon ausgegangen werden, dass die in Kapitel 3 beschriebenen Beschädigungsmechanismen auch auf die LARA-Fenster zutreffen.

Tabelle A.2: Ergebnisse der Berechnungen für bestrahlte Masse, Dosisrate und Dosis

	d_{St}	d_{Si}	d_{Al}
$m = \varrho \cdot V = \varrho \cdot \pi \cdot r^2 \cdot d_x$ in kg	$7,1 \cdot 10^{-5}$	$7,1 \cdot 10^{-6}$	$7,1 \cdot 10^{-9}$
Dosisrate $\frac{E_A}{m}$ in $\frac{\text{Gy}}{\text{s}}$	$5,2 \cdot 10^{-2}$	$5,2 \cdot 10^{-1}$	$5,2 \cdot 10^2$
Dosis $D_{60\text{Tage}} = \frac{E_A}{m} \cdot t$ in Gy	$2,7 \cdot 10^5$	$2,7 \cdot 10^6$	$2,7 \cdot 10^9$
Dosis $D_{3\text{Jahre}} = \frac{E_A}{m} \cdot t$ in Gy	$4,9 \cdot 10^6$	$4,9 \cdot 10^7$	$4,9 \cdot 10^{10}$

Tabelle A.3: Zusammenfassung der in Kapitel 3 vorkommenden Strahlendosen. *: Entspricht bei einer Dichte von $2,2 \text{ g/cm}^3$ etwa $4,4 \cdot 10^7 \text{ Gy}$.

Strahlendosis	Quelle
$> 6 \cdot 10^{26} \text{ eV/cm}^*$	[Dev94]
$> 10^9 \text{ Gy}$	[Boi03]
$< 10^9 \text{ Gy}$	[Bus09, Bus10]
$10^4 - 1,2 \cdot 10^7 \text{ Gy}$	[Leo09]

Anhang B

Vergleich der Eigenschaften der verwendeten Beschichtungen

In Kapitel 4.2.2 werden verschiedene Methoden beschrieben, mit denen optische Fenster beschichtet werden können. Aufgrund der unterschiedlichen Verfahren allein ist noch keine Aussage über die mögliche Eignung der Beschichtungen für das KATRIN-Experiment möglich. Darum werden hier ihre Eigenschaften näher betrachtet.

B.1 Beschreibung der ausgewählten Eigenschaften

Um eine Aussage über die Tauglichkeit der unterschiedlichen Beschichtungen zu ermöglichen, werden ausgewählte physikalische und optische Eigenschaften von unterschiedlich hergestellten SiO_2 -Schichten betrachtet. Die ausgewählten Eigenschaften werden im Folgenden kurz beschrieben:

Packungsdichte

Die Packungsdichte beschreibt das Verhältnis des Volumens der Atome, die sich in einer Elementarzelle befinden, zum Gesamtvolumen der Elementarzelle. Nach [LOK11] ist es möglich, dass Tritium in dichter gepackte Beschichtungen weniger leicht eindringen kann. In diesem Fall wären dichter gepackte Beschichtungen weniger anfällig für eine Beschädigung.

Oberflächenrauigkeit

Die Oberflächenrauigkeit bezeichnet die Abweichung einer realen Oberfläche von ihrem Ideal. Es ist davon auszugehen, dass Beschichtungen mit im Vergleich zu anderen Beschichtungen geringerer Oberflächenrauigkeit weniger Ablenkungen des Laserstrahls erzeugen und damit auch eine geringere Streuung in beliebige Raumrichtungen aufweisen.

Mechanischer Stress

Der Begriff des mechanischen Stresses wurde bereits in Kapitel 3.2.1 genauer erklärt. Er beschreibt die Spannung, die innerhalb der Beschichtung herrscht. Stress kann ab einem bestimmten Wert zur Zerstörung der Beschichtung oder deren Ablösung vom Fenster führen [Pul79, Cas77, Hu91, Ran96]. Laserbestrahlung [Ris09] und die Verdichtung durch ionisierende Strahlung [Nor74] erhöhen den Stress in den Beschichtungen zusätzlich, weshalb Schichten mit hohen Stresswerten schneller beschädigt werden könnten.

Unreinheiten

Unreinheiten sind in die Struktur der Beschichtung eingebaute Fremdatome, also Atome, die nicht in der ursprünglichen Zusammensetzung enthalten sind. Nach [Bus10] haben Verunreinigungen wie Cl- oder Al-Atome keine Auswirkung auf die durch ionisierende Strahlung auftretenden Schäden. Dies gilt jedoch nicht für den OH-Gehalt. So zeigt amorphes SiO_2 mit einem hohen OH-Anteil eine geringere Verdichtung. Daher könnten sich Beschichtungen mit hohem OH-Anteil als geeigneter erweisen.

Defektdichte

Die Defektdichte bezeichnet die Anzahl von Punktdefekten auf einer bestimmten Fläche. Punktdefekte haben direkte Auswirkung auf die Absorption der Beschichtungen, da in diesen Licht absorbiert wird [Nat04]. Zudem wird in [Ris09] gezeigt, dass die Diffusion von Tritium über Punktdefekte stattfindet. Daher sind Punktdefekte innerhalb der Beschichtungen zu vermeiden.

Brechungsindex

Der Brechungsindex gibt an, wie sich die Wellenlänge und die Phasengeschwindigkeit innerhalb eines Mediums im Vergleich zur Ausbreitung im Vakuum ändern. Wichtig für die aus mehreren Schichten bestehenden Beschichtungen ist, dass die Brechungsindizes der Schichten aufeinander abgestimmt sind. Daher sollte der Brechungsindex durch die Bedingungen während des KATRIN-Experiments um maximal 0,1 % verändert werden.

Transmissionskoeffizient

Der Transmissionskoeffizient ist ein Maß für die Durchlässigkeit einer Beschichtung für optisches Licht. Für das KATRIN-Experiment ist ein hoher Transmissionskoeffizient unverzichtbar (siehe Kapitel 3.1).

Extinktionskoeffizient

Der Extinktionskoeffizient beschreibt die Abschwächung von Licht innerhalb einer Beschichtung durch Streuung oder Absorption. Nach Kapitel 3.1 ist hierfür ein möglichst kleiner Wert wünschenswert.

Laserschadensschwelle

Die Laserschadensschwelle gibt an, ab welcher Energie pro Flächeneinheit ein Schaden durch die Bestrahlung mit einem Laser eintritt. Hier ist ein möglichst hoher Wert von Vorteil.

B.2 Vergleich der physikalischen Eigenschaften

In Tabelle B.1 sind die Werte der im vorherigen Abschnitt beschriebenen physikalischen Eigenschaften für die fünf unterschiedlichen Beschichtungsmethoden zusammengestellt.

In Bezug auf die Packungsdichte zeichnen sich vor allem mittels MS hergestellte Beschichtungen aus, wohingegen das Sol-Gel-Verfahren Schichten mit den geringsten Packungsdichten erzeugt. Den besten Wert in Bezug auf die Oberflächenrauigkeit erzielen mittels IBS hergestellte Beschichtungen. Dies geht jedoch mit einem deutlich höheren mechanischen Druckstress einher, verglichen mit den anderen Beschichtungsverfahren von LASEROPTIK. Die einzige Schicht, in der Zugstress anstelle von Druckstress herrscht, ist die mittels Sol-Gel-Verfahren hergestellte Schicht. Diese weist gleichzeitig einen hohen OH-Gehalt auf. Sowohl bei der Herstellung mit IBS als auch mit MS ist ein Einbau von Argonatomen in die Struktur möglich. In Bezug auf die Defektdichte, die nur für zwei

der fünf Beschichtungsverfahren vorliegt, erzielt das IBS-Verfahren bessere Werte als das IAD-Verfahren.

Insgesamt ist, ausgehend von den physikalischen Eigenschaften, die Eignung mittels MS hergestellter Beschichtungen eher wahrscheinlich. Dagegen sind die Werte der EBD, soweit vorhanden, eher schlecht. Die restlichen Beschichtungsverfahren weisen sowohl positive als auch negative Aspekte auf.

B.3 Vergleich der optischen Eigenschaften

Auch die optischen Eigenschaften sind in einer Tabelle zusammenfasst (siehe Tabelle B.2).

Einfachschichten, die mit EBD oder IAD hergestellt worden sind, zeichnen sich durch einen eher geringen Transmissionskoeffizienten aus. Einen besonders hohen Transmissionskoeffizienten weisen dagegen Sol-Gel-Mehrfachschichten und IBS-Einfachschichten auf. Eine solche IBS-Schicht hat zudem einen sehr geringen Extinktionskoeffizienten. Dies gilt auch für die mittels IAD hergestellte Schicht, deren Extinktionskoeffizient im sichtbaren Bereich so klein ist, dass er nicht mehr gemessen werden kann. Negativ fällt bezüglich dieser Eigenschaft das MS auf, das den größten Extinktionskoeffizienten besitzt. Die höchste Laserschadensschwelle bei 450 nm besitzen mittels IAD und IBS hergestellte Schichten. Die Verfahren EBD und Sol-Gel schneiden bei dieser Eigenschaft eher schlecht ab.

In Bezug auf die optischen Eigenschaften sind somit vermutlich die mittels IBS hergestellten Beschichtungen besonders geeignet.

Zusammenfassend scheint eine mit EBD hergestellte Beschichtung am wenigsten geeignet für die Verwendung im Rahmen des KATRIN-Experiments. Die restlichen Beschichtungsverfahren zeigen sowohl vorteilhafte als auch nachteilige Eigenschaften. Daher kann insgesamt keine Aussage darüber getroffen werden, welche diejenige Beschichtung ist, die mit der geringsten Wahrscheinlichkeit während des Experiments eine Beschädigung aufweist.

Tabelle B.1: Übersicht über ausgewählte physikalische Eigenschaften der mittels unterschiedlicher Verfahren hergestellten Beschichtungen. □: mit DIBS produziert, ◆: abhängig vom O₂-Druck während des Beschichtungsprozesses, ★: mit niederenergetischen Ionen und bei Raumtemperatur produziert, ◇: mit O₂-Ionen produziert, △: in einer O₂-Umgebung produziert, ♣: in einer Ar-Umgebung produziert, ■: mit Ar-Ionen produziert, ▼: falls Ar-Ionen bei Produktion genutzt werden, ♠: bei einer Schichtdicke von 200 nm, ‡: bei einer Schichtdicke von 1000 nm, ⊗: Druckstress, †: Zugstress

	EBD	IAD	IBS	MS	Sol-Gel
Packungsdichte	0,6 - 0,8◆ [Jer05]	0,93★ [Bac97]	> 0,97 [Emi87]	nahezu 1 [Ebe10]	0,5 [Tho86]
	0,9 [Ebe10]	> 0,97 [Ebe10]			0,40 - 0,59 [Him01]
Oberflächen- rauigkeit in nm	1 [Alv99]	3◇ [Alv99]	0,6 - 0,68△ [Koj97]	—	—
	2△♣ [Alv99]	0,8■◇ [Alv99]			
mechanischer Stress in Mpa	kein Wert angegeben⊗ [Pul79]	50 - 150 ⊗ [Bac97]	400⊗ [KS04]	195 - 272⊗ [Rei04]	kein Wert angegeben† [Bac97]
Unreinheiten	—	geringer OH-Anteil [Bac97]	Ar-Einbau▼ [Bac97]	Ar-Einbau▼ [Bac97]	hoher OH- und H-Anteil [Bac97]
Defektdichte mm ⁻²	in —	10 - 30♣ [Gal07]	5 - 15 [Gal07]	—	—
		170 - 265# [Gal07]			

Tabelle B.2: Übersicht über ausgewählte optische Eigenschaften der mittels unterschiedlicher Verfahren hergestellten Beschichtungen. □: mit DIBS produziert, ♦: bei 550 nm, ★: bei 632,8 nm, ◇: mit O₂-Ionen produziert, △: in einer O₂-Umgebung produziert, ♣: abnehmend bei steigender Porosität, ■: bei 528 nm, ▼: bei 370 nm und 2 gleichartigen Schichten, ♠: bei 530 nm und 3 gleichartigen Schichten, ‡: im sichtbaren Bereich, ☒: bei 450 nm ☒: bei 1064 nm, ∞: bei 1060 nm, *: bei 355 nm, †: 248 nm, ◀: bei 308 nm

	EBD	IAD	IBS	MS	Sol-Gel
Brechungsindex	1,43 - 1,49 ♦ [Jer05]	1,46 - 1,53 ♦ [Bac97]	1,44 - 1,46 ♦ [Bac97]	1,43 - 1,49 ♦ [Bac97]	1,42 - 1,45 ♦ [Bac97]
		1,5 - 1,6 [Mar86]		1,47 - 1,48 ☒ [Rei04]	1,22 [Tho86]
					1,188 - 1,271 ★♣ [Him01]
Transmissionskoeffizient in %	92,3 [Alv99]	92,4 ◇ [Alv99]	99,985 - 99,998 □ [Cuo89]	—	94,24 ■ [Inn08]
					100 ▼ [Tho86]
					100 ♠ [Tho86]
Extinktionskoeffizient	$1,5 \cdot 10^{-5}$ △ [Pul79]	$< 2 \cdot 10^{-5}$ ∞ [Cuo89]	$< 10^{-5}$ ‡ [Bac97]	$< 10^{-4}$ ‡ [Bac97]	—
		nicht messbar ‡ [Cuo89]	$< 5 \cdot 10^{-6}$ □ [Cuo89]		
Laserschadensschwelle in J/cm ²	9 - 14 ☒ [Gal07]	34 - 36 ☒ [Gal07]	30 - 40 ☒ [Gal07]	—	4 - 5 † [Tho86]
	2,5 - 5* [Gal07]	10 - 19* [Gal07, Alv99]	8 - 9* □ [Gal07]		8,5 - 10* [Tho86]
	18 - 20 ◀ [Alv99]				10 - 14 ☒ [Tho86]

Anhang C

Transmissions- und Reflexionsspektren der verwendeten Fenster von LASEROPTIK

In diesem Anhang sind die Transmissionsspektren der nicht eingeschweißten Beschichtungen von LASEROPTIK (siehe 4.2.2, ab Seite 44) sowie die Reflexionsspektren der eingeschweißten Proben (siehe 4.2.3, ab Seite 55) enthalten.

C.1 Transmissionsspektren der nicht eingeschweißten Fenster

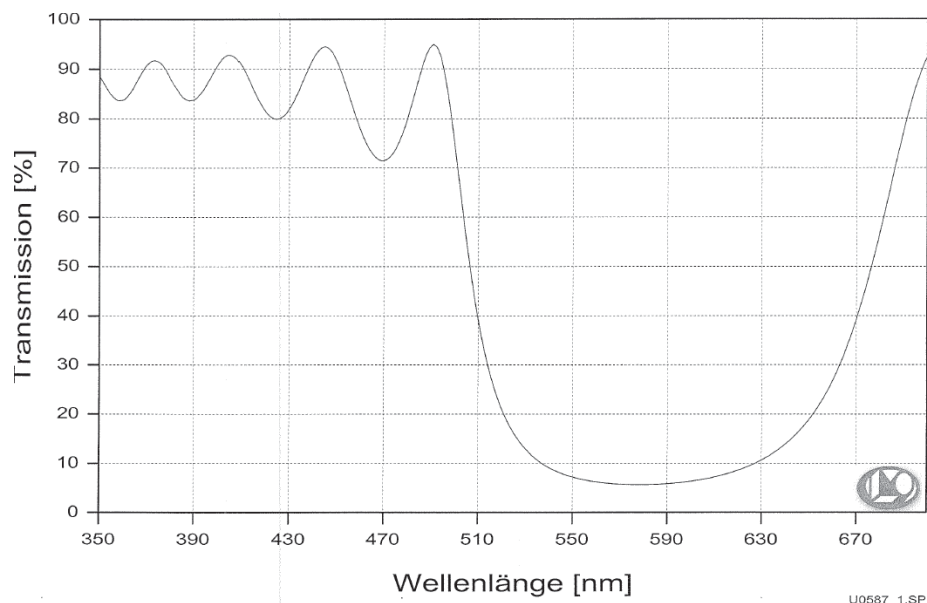


Abbildung C.1: Transmissionsspektrum der mittels IAD beschichteten Proben. Die Beschichtung ist mittels Ionenstrahlgestützter Deposition aufgetragen [LOK11].

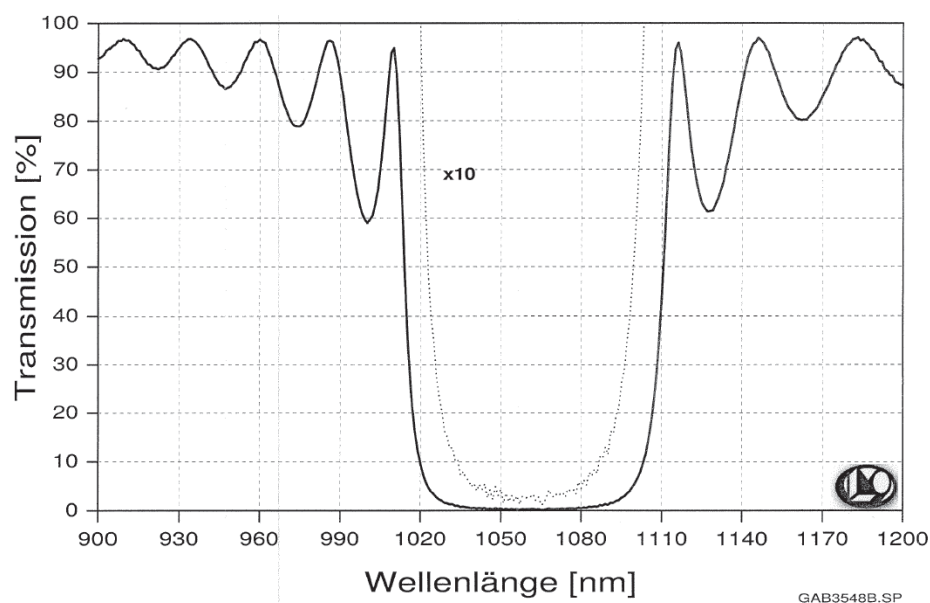


Abbildung C.2: Transmissionsspektrum der mittels MS beschichteten Proben. Die Beschichtung ist mittels Magnetronsputtern aufgetragen [LOK11].

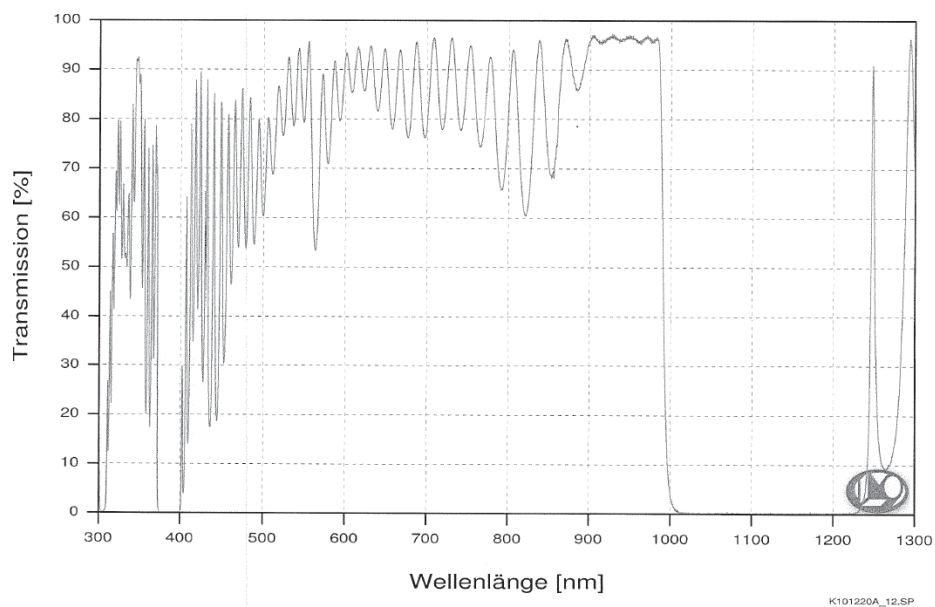


Abbildung C.3: Transmissionsspektrum der mittels IBS beschichteten Proben. Die Beschichtung ist mittels Ionenstrahlputtern aufgetragen [LOK11].

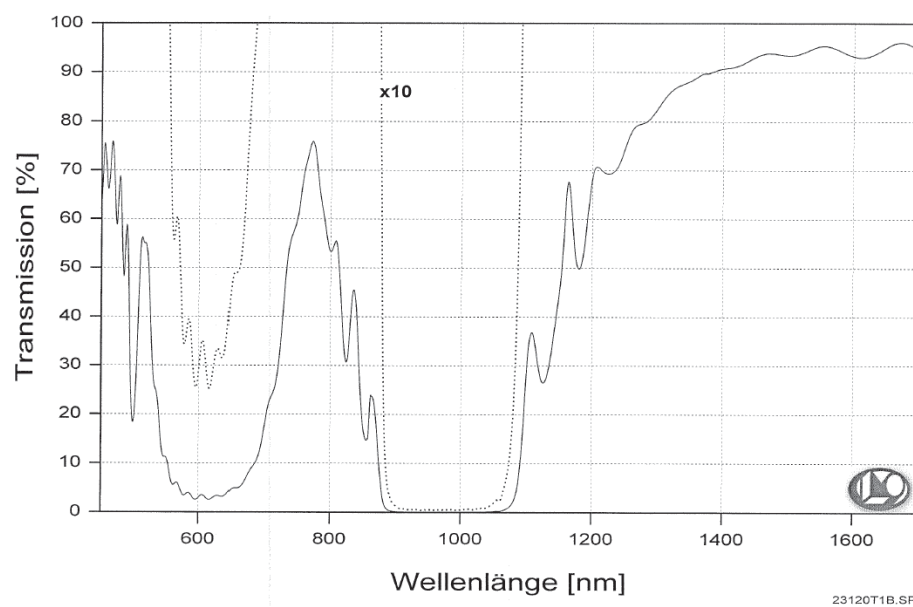


Abbildung C.4: Transmissionsspektrum der mittels EBD beschichteten Proben. Die Beschichtung ist mittels Elektronenstrahldeposition aufgetragen [LOK11].

C.2 Reflexionsspektren der eingeschweißten Fenster

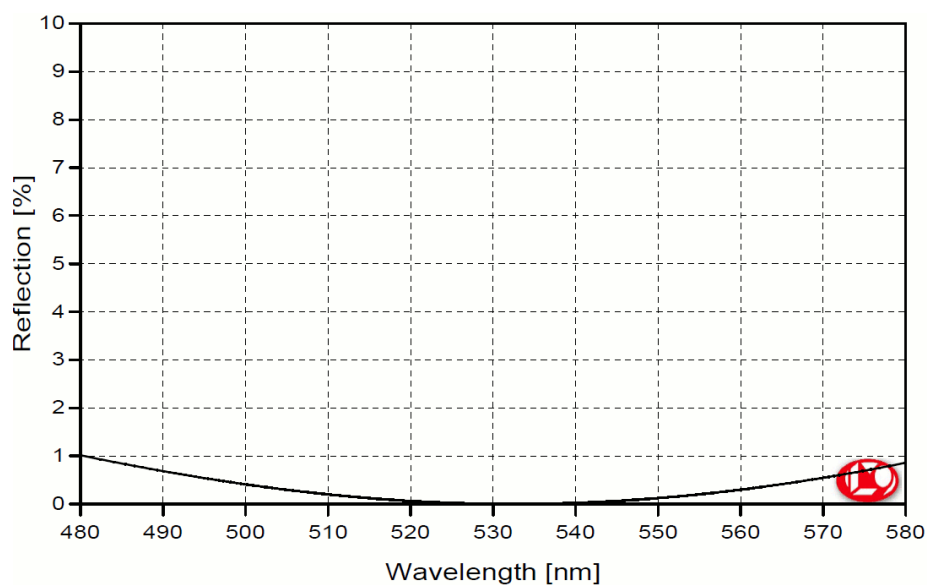


Abbildung C.5: Reflexionsspektrum der Laser-Fenster. Die Beschichtung ist mittels Elektronenstrahldeposition aufgetragen [LOA08].

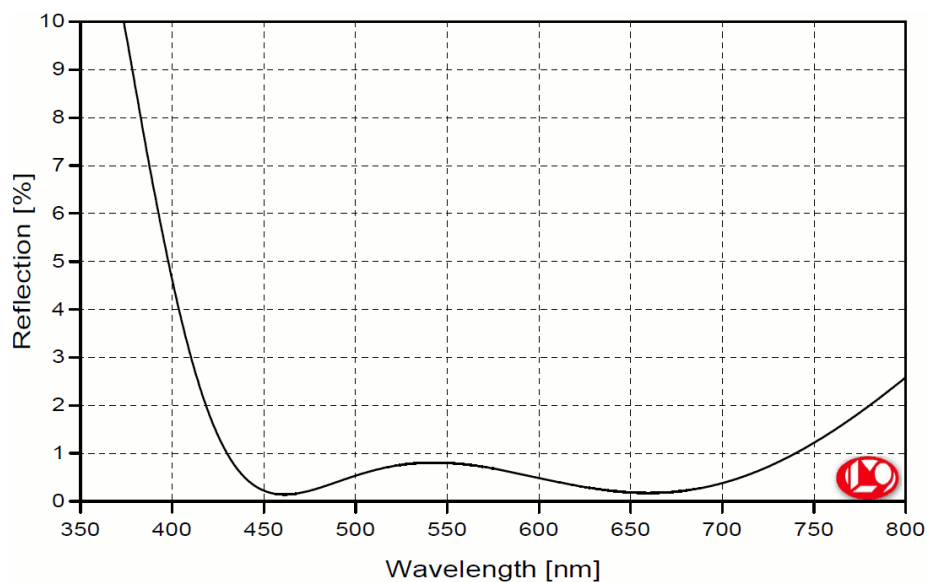


Abbildung C.6: Reflexionsspektrum der Raman-Fenster. Die Beschichtung ist mittels Elektronenstrahldeposition aufgetragen [LOA08].

Anhang D

Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox

D.1 Allgemeines zu Wischtests innerhalb einer Handschuhbox

Wischtests stellen das Standardverfahren zur Kontaminationskontrolle im Tritiumlabor Karlsruhe dar. Sie dienen der Messung nicht festhaftender Kontamination von Oberflächen. Die Kontamination wird dabei mit Hilfe eines Styroporstreifens teilweise von der Oberfläche abgenommen. Man geht konservativ davon aus, dass nur etwa 10 % der Aktivität vom Wischtest aufgenommen wird. Bei jedem Wischtest ist darauf zu achten, dass die gewischte Fläche mindestens 300 cm^2 beträgt. Sollte dies nicht der Fall sein, muss der ermittelte Aktivitätswert um den jeweiligen Faktor erhöht werden.

Nach dem Wischen der Oberfläche wird der Wischtest innerhalb einer dafür vorgesehenen Plastikflasche in 15 ml Szintillationsflüssigkeit aufgelöst. In dieser werden durch die beim Zerfall des Tritiums entstehenden Elektronen Lichtblitze erzeugt. Dieses Licht kann dann mit Hilfe der Elektronenvervielfacher eines Flüssigszintillationsspektrometers gezählt und dadurch auf die an der gewischten Oberfläche anhaftende Aktivität geschlossen werden.

Werden die Wischtests innerhalb einer Handschuhbox genommen, so ist es sinnvoll diese Wischtests zu kennzeichnen (siehe Abbildung D.1). Hierfür wird eine Stanze verwendet. Am besten wird bereits im Voraus ein Plan erstellt, welcher Wischtest für welche Stelle verwendet werden soll. Außerdem werden zwei Plastikbeutel benötigt, einer für den Einschleus- und einer für den Ausschleusvorgang. Diese sind ebenfalls zu markieren. Da die Wischtests durch das Evakuieren der Schleuse aus den Beuteln heraus gezogen werden würden, was gerade bei den benutzten Wischtests vermieden werden sollte, werden die Beutel mit Büroklammern verschlossen. Weiterhin sollten die Wischtests im Innern einer Handschuhbox immer zu zweit durchgeführt werden: Die erste Person kann die Wischtests durchführen, die zweite Protokoll führen. Letztere notiert beispielsweise, ob die 300 cm^2 eingehalten worden sind oder ob ein Wischtest zerrissen ist. Die statische Aufladung der Styroporstreifen erschwert die Arbeiten innerhalb der Handschuhbox zusätzlich.

Für das Einbringen der benutzten Wischtests in die Plastikflaschen gibt es zwei Möglichkeiten: Zum einen können die Wischtests direkt an der Schleuse unter Nutzung der mobilen Absaugung umgefüllt werden. Werden jedoch höhere Aktivitätswerte, also etwa

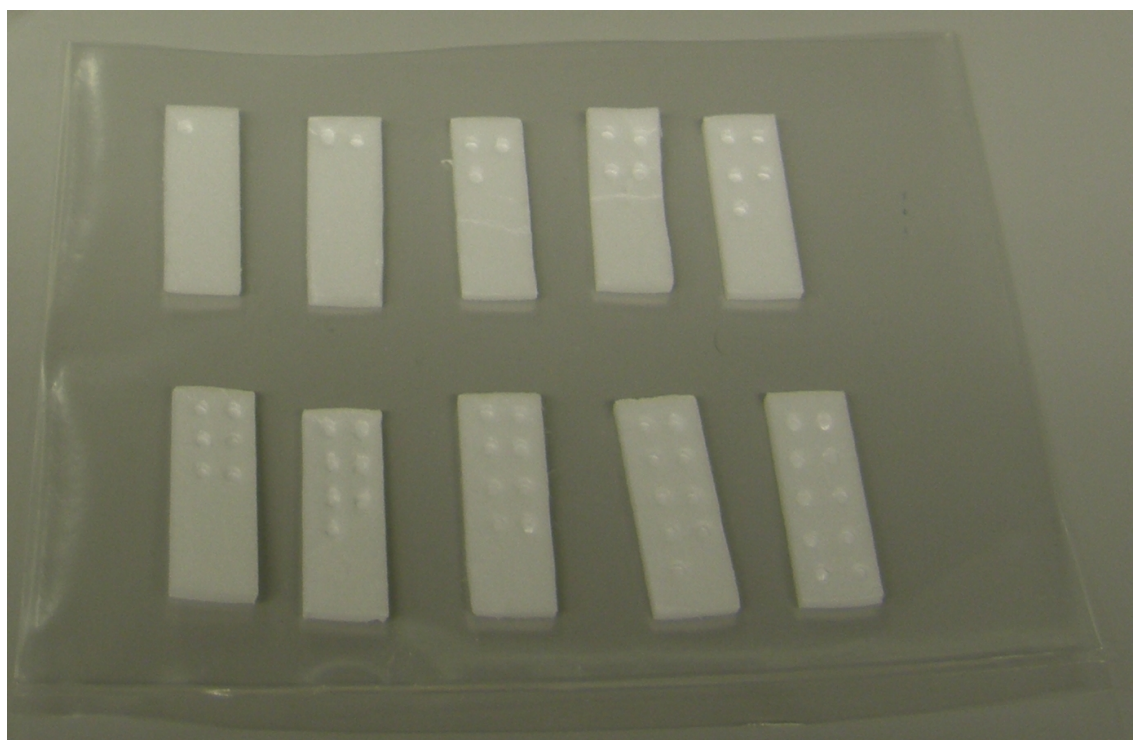


Abbildung D.1: Fotografie gestanzter Wischtests in einem Plastikbeutel zum Einschleusen. Die Stanzung dient der Identifizierung der einzelnen Wischtests. Eine Zuordnung der gewischten Oberflächen zu den Wischtests und deren Aktivitätsergebnis ist somit möglich.

Werte von mehr als 100 Bq pro Wischtest, erwartet, empfiehlt sich der Transport zu einem Abzug.

D.2 Äußerliche Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox

Da die Omegatron-Handschuhbox schon lange Zeit nicht mehr regelmäßig genutzt wurde, empfiehlt sich zunächst eine äußerliche Kontaminationskontrolle. Dabei wird besonders auf die Untersuchung der Handschuhe Wert gelegt, da im Falle einer Kontamination von diesen eine besonders große Gefahr ausgeht. In Tabelle D.1 werden die Ergebnisse der durchgeführten Wischtests angegeben. Die darin verwendeten Abkürzungen können anhand der Abbildung D.2 nachvollzogen werden.

Alle Wischtests zeigen eine Aktivität von weniger als 1 Bq/cm². Daher kann als Ergebnis festgestellt werden, dass die Omegatron-Handschuhbox äußerlich als nicht kontaminiert gelten kann.

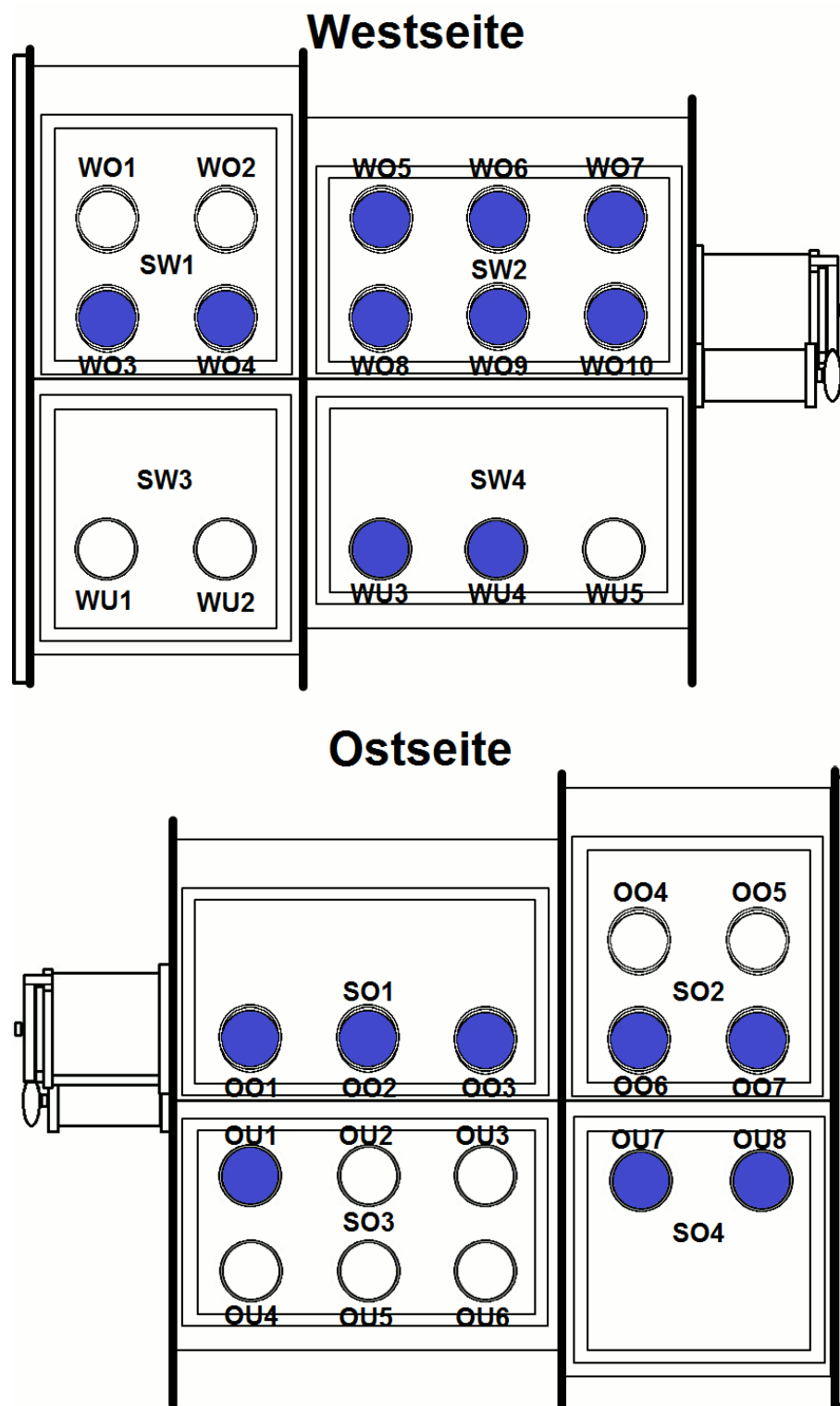


Abbildung D.2: Beschriftete, schematische Zeichnung der Omegatron-Handschuhbox. An den eingefärbten Handschuhdeckeln sind Handschuhe angebracht.

D.3 Innerliche Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox

Um die Wischtests im Innern der Box durchzuführen, werden insgesamt sieben unterschiedliche Sets mit je zwischen drei und acht Wischtests, wie in Abschnitt D.1 beschrieben, vorbereitet. Mit ihnen sollen die Boxenhandschuhe und Scheiben von innen auf Kontamination untersucht werden. Bevor die Wischtests an den Scheiben durchgeführt werden können, müssen zunächst die Handschuhe selbst gewischt werden. Hierdurch wird verhindert, dass die Wischtestergebnisse durch an den Handschuhen anhaftende Kontamination verfälscht werden. Zudem wird notiert mit welchem Handschuh die jeweilige Stelle gewischt wird.

Anhand von Tabelle D.3 können sowohl die Stellen, an denen die Wischtests durchgeführt worden sind, als auch die Ergebnisse der Wischtests nachvollzogen werden. Die Ergebnisse werden zusätzlich in Abbildung D.3 veranschaulicht.

Auch innerhalb der Handschuhbox kann nur eine leichte Kontamination durch Tritium festgestellt werden. Damit ist gezeigt worden, dass eine Öffnung der zweiten Hülle zum Einbau der Versuchseinrichtungen zur Überwachung der optischen Eigenschaften in die Omegatron-Handschuhbox möglich ist.

Tabelle D.1: Ergebnisse der äußerlichen Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox. Die Abkürzungen können Abbildung D.2 entnommen werden. Fortsetzung in Tabelle D.2

Wischtest-Nr.	Ort	Aktivität (Bq/cm ²)
1	SW1	<0,1
2	SW2	<0,1
3	SW3	<0,1
4	SW4	<0,1
5	SO1	<0,1
6	SO2	<0,1
7	SO3	<0,1
8	SO4	<0,1
9	Schleuse (klein)	<0,1
10	Anschluss WO1	<0,1
11	Anschluss WO2	<0,1
12	WO3	<0,1
13	WO4	<0,1
14	WO5	<0,1
15	WO6	<0,1
16	WO7	<0,1
17	WO8	<0,1
18	WO9	<0,1
19	WO10	<0,1
20	Anschluss WU1	<0,1

Tabelle D.2: Ergebnisse der äußerlichen Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox - Fortsetzung Tabelle D.1. Die Abkürzungen können Abbildung D.2 entnommen werden.

Wischtest-Nr.	Ort	Aktivität (Bq/cm ²)
21	Anschluss WU2	<0,1
22	WU3	<1
23	WU4	<0,1
24	Anschluss WU5	<1
25	OO1	<0,1
26	OO2	<0,1
27	OO3	<0,1
28	Anschluss OO4	<0,1
29	Anschluss OO5	<0,1
30	OO6	<0,1
31	OO7	<1
32	OU1	<0,1
33	Anschluss OU2	<0,1
34	Anschluss OU3	<0,1
35	Anschluss OU4	<0,1
36	Anschluss OU5	<1
37	Anschluss OU6	<1
38	OU7	<0,1
39	OU8	<0,1
40	Schleuse (groß)	<0,1

Tabelle D.3: Ergebnisse der innerlichen Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox. Die Abkürzungen können Abbildung D.2 entnommen werden. Fortsetzung in Tabelle D.4

	Wischtest- Nr.	Ort	Bemerkungen	Aktivität (Bq/cm ²)
Set 1	1	WO7	mit WO10	11
	2	SW2	r. Hälfte, mit WO9	3
	3	WO9	mit WO10	12
	4	WO10	mit WO9	8
	5	WO6	mit WO9, zerbrochen	6
	6	WO8	mit WO9	4
	7	SW2	l. Hälfte, mit WO9, auf Boden abgelegt	6
	8	WO5	mit WO9	2
Set 2	1	SW1	mit WO4	2
	2	WO3	mit WO4	<1
	3	Anschluss WO2	mit WO4	5
	4	WO4	mit WO3, zerbrochen	1
	5	Anschluss WO1	mit WO3	1
	6	SW3	l.o. Ecke, mit WO3	1
	7	Boxenluft	mit WO4	<1
Set 3	1	SW4	r. Hälfte, mit WU4, mehr als 300 m ²	7
	2	SW4	l. Hälfte, mit WU4, mehr als 300 m ²	6
	3	WU3	mit WU4	6
	4	Anschluss WU5	mit WU4	11
	5	WU4	mit WU3	3

Tabelle D.4: Ergebnisse der innerlichen Kontaminationskontrolle an der Omegatron-Handschuhbox - Fortsetzung Tabelle D.3. Die Abkürzungen können Abbildung D.2 entnommen werden.

	Wischtest-Nr.	Ort	Bemerkungen	Aktivität (Bq/cm ²)
Set 4	1	OO2	mit OO1	1
	2	OO1	mit OO2	1
	3	SO1	l. Hälfte, mit OO2	4
	4	OO3	mit OO2, Öl auf Handschuh OO3	2
	5	SO1	r. Hälfte, mit OO3	2
	6	OO2	mit OO3	2
Set 5	1	Anschluss OO4	mit OO6	2
	2	OO7	mit OO6	2
	3	OO6	mit OO7	7
	4	SO2	mit OO7, mehr als 300 m ²	3
	5	OO5	mit OO7	4
	6	Boxenluft	mit OO7	2
Set 6	1	OU8	mit OU7, mit OO7 übergeben	1
	2	SO4	l. Hälfte, mit OU7, mit OO7 übergeben	2
	3	OU7	mit OU8, mit OO7 übergeben	1
	4	SO4	r. Seite, mit OU8, mit OO7 übergeben	1
Set 7	1	OU2	r. Seite, mit OU8, mit OO2 übergeben	6
	2	SO3	l. Hälfte, mit OU1, mit OO2 übergeben	3
	3	OU4	mit OU1, mit OO2 übergeben	8

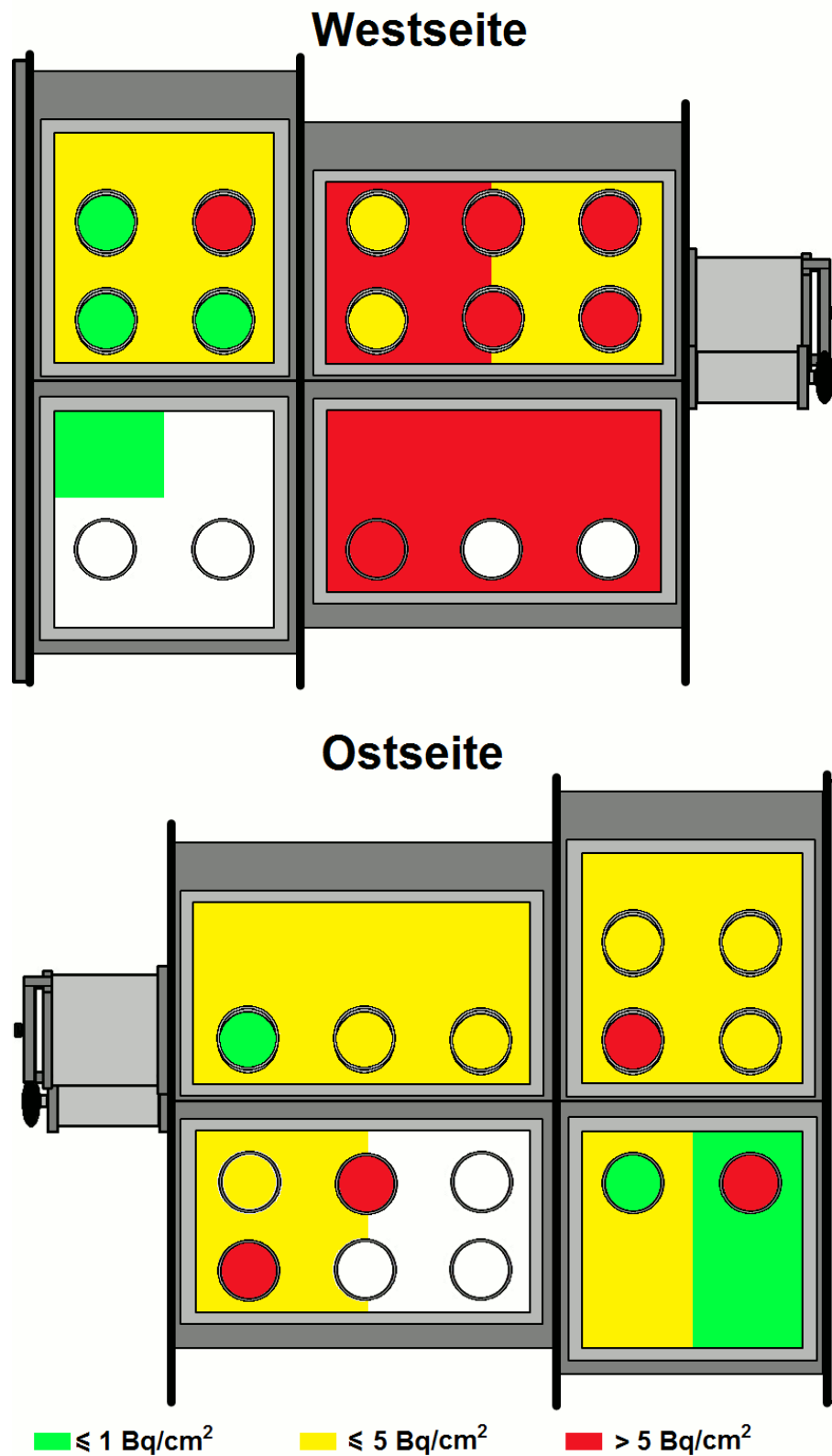


Abbildung D.3: Graphische Darstellung der Ergebnisse der inneren Wischtests an der Omegatron-Handschuhbox. Die höchste Aktivität, die mit diesen Wischtests nachgewiesen worden ist, liegt bei 12 Bq/cm^2 .

Anhang E

Kontamination der Boxenluft nach der Öffnung eines Probenbehälters

In Kapitel 4.3.2 wird die Möglichkeit einer Erhöhung der Boxenaktivität durch die Öffnung zuvor mit Tritium befüllter, evakuierter Probenbehälter erwähnt. Auch die mögliche Reduktion des Anstiegs durch eine Spülung mit Deuterium ist erläutert worden. Spülung bedeutet hier, dass nach dem Evakuieren der Probenbehälter Deuteriumgas in diese eingefüllt und danach wieder abgepumpt wird. Auf diese Weise kann durch einen Isotopenaustausch das in den Edelstahl der Probenbehälterwände eingedrungene Tritium reduziert werden [Uda92b, Uda92a].

Um die Freisetzung von Aktivität innerhalb der CAPER A-Handschuhbox aufgrund der Öffnung eines Probenbehälters mit und ohne vorheriger Spülung zu untersuchen, sind zwei Testexperimente durchgeführt worden. Es ist zu beachten, dass der Probenbehälter vor dem Testexperiment mit Spülung bereits durch das Testexperiment ohne Spülung kontaminiert ist.

E.1 Untersuchung des Anstiegs der Kontamination der Boxenluft ohne Spülung

Um den Anstieg der Kontamination der Boxenluft nach der Öffnung eines ungespülten Probenbehälters zu untersuchen, wird Probenbehälter II verwendet. Zunächst wird die Leckrate des Probenbehälters auf 10^{10} mbar·l/s bestimmt. Danach wird der Behälter in die CAPER A-Handschuhbox eingeschleust und über die Verbindungsleitung mit der Anlage verbunden. Nun wird der Probenbehälter mit Tritiumgas gefüllt und danach wieder evakuiert. Die genauen Druckwerte sowie die zeitlichen Abläufe können Tabelle E.1 entnommen werden. Vor dem Öffnen des Probenbehälters wird die Aktivität der Boxenluft nochmals kontrolliert. Sobald der Flansch des Probenbehälters geöffnet wird, steigt die Aktivität von $2,2 \text{ MBq/m}^3$ auf 373 MBq/m^3 (siehe Abbildung E.1). Daraufhin wird der Probenbehälter wieder verschlossen, damit die Aktivität innerhalb der Handschuhbox nicht weiter ansteigt.

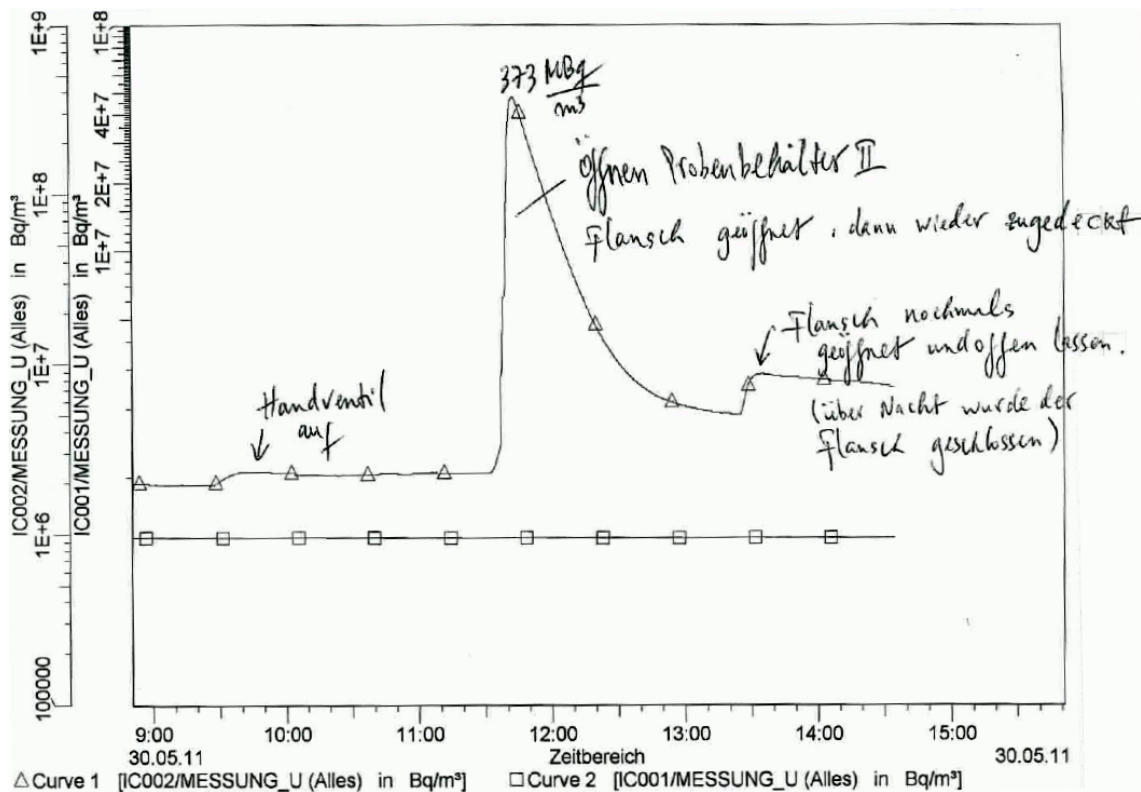


Abbildung E.1: Zeitlicher Verlauf der Aktivität der Boxenluft der CAPER A-Handschuhbox. Die mit $\triangle$ gekennzeichnete Kurve zeigt die Boxenaktivität in MBq/m³. Die zugehörige Skala ist die linke der beiden vertikalen Skalen. Man erkennt bereits beim Anschließen des Probenbehälters einen leichten Anstieg der Aktivität (im Diagramm mit "Handventil auf" gekennzeichnet). Nach dem Öffnen des Probenbehälters steigt die Aktivität auf 373 MBq/m³ an. Sobald der Probenbehälter wieder verschlossen ist, reduziert sich die Aktivität. Nach 13:20 Uhr wird der Probenbehälter ein zweites Mal geöffnet, verbunden mit einem erneuten Anstieg der Aktivität, der jedoch mit einem Wert von knapp 90 MBq/m³ deutlich geringer ausfällt als der erste.

Tabelle E.1: Zeitlicher Ablauf der Arbeiten zum Test des Kontaminationsanstiegs der Boxenluft sowie die Veränderung der Aktivität innerhalb der Handschuhbox ohne Spülung mit Deuterium.

Datum	Uhrzeit	Ereignis	Boxenaktivität in MBq/m ³
30.05.11	vor 10:38	Lecktest an Probenbehälter II durchgeführt, Leckrate 10^{-10} mbar · l/s	
		Anschluss Probenbehälter II an Verbindungsleitung	
		Evakuierung Probenbehälter II auf etwa 0 mbar	
		Befüllung Probenbehälter II mit Tritiumgas auf etwa 213 mbar	
		Evakuierung Verbindungsleitung	
	11:24	Evakuierung Probenbehälter II auf etwa 1 mbar	2,2
		Öffnung Probenbehälter II	373
		Verschließen Probenbehälter II	
	13:20		unter 60
		Erneute Öffnung Probenbehälter II	etwa 90
		Verschließen Probenbehälter II	

E.2 Untersuchung des Anstiegs der Kontamination der Boxenluft mit Spülung

Zur Untersuchung des Aktivitätsanstiegs der Boxenluft nach dem Öffnen eines mit Deuterium gespülten Probenbehälters wird ebenfalls Probenbehälter II verwendet. Hierbei wird der Probenbehälter zunächst mit Tritiumgas gefüllt. Nach dem Evakuieren wird der Probenbehälter dreimal mit Deuteriumgas mit unterschiedlichen Drücken gespült. Genaue Druckangaben können Tabelle E.2 entnommen werden. Im Anschluss an die ersten beiden Füllvorgänge wird der Probenbehälter direkt evakuiert. Nach der dritten Befüllung wird mit der Evakuierung bis zum nächsten Tag gewartet. Nach der Evakuierung wird der Probenbehälter geöffnet. Es wird nur ein leichter Anstieg der Aktivität innerhalb der Handschuhbox von 2,4 auf 3,3 MBq/m³ verzeichnet.

Insgesamt zeigen die beiden Testexperimente, dass deutlich geringere Aktivitätsmengen innerhalb der CAPER A-Handschuhbox freigesetzt werden, wenn vor der Öffnung der Probenbehälter eine Spülung mit Deuterium stattfindet. Daher wird auch bei späteren Öffnungen von Probenbehältern immer eine solche Spülung vorgenommen werden.

Tabelle E.2: Zeitlicher Ablauf der Arbeiten zum Test des Kontaminationsanstiegs der Boxenluft sowie die Veränderung der Aktivität bei mehrfacher Spülung mit Deuterium. Nach einem Spülen der Probenbehälter mit Deuteriumgas kann nur ein kleiner Anstieg der Kontamination der Boxenluft von etwa $0,9 \text{ MBq/m}^3$ beobachtet werden. Auffällig ist, dass die Aktivität der Handschuhbox zeitnah nach Öffnung des Probenbehälters durch einen Schleusvorgang um mehr als 4 MBq/m^3 angestiegen ist. Dies ist wahrscheinlich auf eingeschleusten Sauerstoff zurückzuführen.

Datum	Uhrzeit	Ereignis	Boxenaktivität in MBq/m^3
31.05.11	9:15	Evakuierung Probenbehälter II auf etwa 0 mbar	2,4
	09:28	Befüllung Probenbehälter II mit Tritiumgas auf etwa 189 mbar	
		Evakuierung Probenbehälter II auf 13 mbar	
	13:44	Befüllung Probenbehälter II mit D_2 auf 36 mbar	
		Evakuierung Probenbehälter II	
		Befüllung Probenbehälter II mit D_2 auf 52 mbar	
		Evakuierung Probenbehälter II	
		Befüllung Probenbehälter II mit D_2 auf 64 mbar	
01.06.11	09:15	Evakuierung Probenbehälter II auf etwa 0 mbar	2,4
	09:50	Öffnung Probenbehälter II	3,3
		Einschleusen Kupferdichtung	7,6
	11:25	Einbau Kuperdichtung und Verschließen Probenbehälter II	
	11:31		6,5

Anhang F

Schleusen des Transportbehälters über einen Handschuhdeckel

In Kapitel 4.6 wird die Möglichkeit eines Schleusvorgangs über einen Handschuhdeckel erwähnt. Diese Art des Schleusens eignet sich vor allem in Handschuhboxen, die wenig Platz bieten, wie es bei der CAPER A-Handschuhbox der Fall ist. Bei dem in dieser Arbeit beschriebenen Experiment ist zudem ein Transport des Transportbehälters von der Versuchseinrichtung durch die enge CAPER-Anlage zur Schleuse mit dem Risiko der Zerstörung der Proben verbunden. Im Folgenden werden allgemein die Arbeitsschritte während eines solchen Schleusvorgangs näher beschrieben. Dabei werden zunächst die Vorbereitungen, die getroffen werden müssen, erläutert, bevor der Ablauf des eigentlichen Schleusvorgangs dargestellt wird.

Vorbereitungen

Bevor mit den Vorbereitungen begonnen wird, muss das Formular der Arbeitserlaubnis ausgefüllt werden. Hierin ist eine Beschreibung aller Arbeiten sowie eine Abschätzung des maximal freisetzbaren Aktivitätsinventars enthalten. Des Weiteren muss die mobile Absaugung vorbereitet sein. Da ein Schleusvorgang über einen Handschuhdeckel nur unterhalb einer Kontamination der Boxenluft von 1 MBq/m^3 auf jeden Fall möglich ist, muss die Aktivität kontrolliert werden. Sollte die Aktivität zwischen 1 und 5 MBq/m^3 liegen, ist der Schleusvorgang nur nach Absprache mit dem Strahlenschutzbeauftragten möglich. Bei Aktivitäten oberhalb von 5 MBq/m^3 ist ein Schleusvorgang über einen Handschuhdeckel nicht möglich.

Zudem müssen alle Gegenstände bereitgestellt werden, die für den Vorgang benötigt werden. Hierzu zählen Handschuhe, Kittel, Kabelbinder, Plastiksäcke und Klebeband. Der jeweilige Verwendungszweck wird bei der Beschreibung des Schleusvorgangs näher erläutert. Zusätzlich muss für den Fall eines Einschleusvorgangs ein Mülleimer für brennbaren Abfall bereitgestellt werden.

Einschleusvorgang

Nachdem ein Kittel sowie Handschuhe angelegt worden sind, wird der Stutzen des Handschuhdeckels, an dem der Schleusvorgang stattfinden soll, von innen mit Hilfe eines zweiten Handschuhs und eines Handschuhdeckels verschlossen. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass bei der nun folgenden Abnahme des Handschuhs vom Stutzen die Box nicht geöffnet wird und nur so wenig Boxenluft wie möglich in die Raumluft entweicht. An den freien Stutzen wird ein Plastiksack, in dem der zu schleusende Gegenstand enthalten ist, mit

Hilfe von Klebeband angebracht. Wiederum mit dem zweiten Handschuh wird der Handschuhdeckel von innen geöffnet und der Gegenstand aus dem Plastikbeutel entnommen. Sollten an dieser Stelle Probleme irgendwelcher Art auftreten, muss der Schleusvorgang abgebrochen werden und ein Interventionsbereich, wie er in Abschnitt 4.8.2 beschrieben ist, eingerichtet werden.

Der nun leere Plastikbeutel muss weitestgehend von der Boxenluft befreit werden, bevor der Stutzen erneut mit Hilfe des zweiten Handschuhs von innen verschlossen wird. Der Plastikbeutel wird mit einem Kabelbinder verschlossen. Auf diese Weise wird die Menge an in die Raumluft freigesetzter Boxenluft vermindert. Nachdem der Plastikbeutel vom Handschuhstutzen abgenommen worden ist, wird er als brennbarer Abfall entsorgt. Als letzter Arbeitsschritt wird ein Handschuh an dem Stutzen angebracht und mit einem Gummi gesichert.

Ausschleusvorgang

Die Arbeitsschritte während eines Ausschleusvorgangs sind, bis auf zwei Ausnahmen, die gleichen wie die beim Einschleusvorgang beschriebenen. Zum einen muss der auszuschleusende Gegenstand in der Nähe des Handschuhstutzens, über den geschleust werden soll, bereitgestellt werden. Zum anderen muss der zum Schleusen verwendete Plastikbeutel nach dem Vorgang in einen zweiten Plastikbeutel eingebracht werden, bevor ein weiterer Transport zu einer anderen Handschuhbox erfolgen kann.

Anhang G

Detaillierte Darstellung der Kalibrationen für den TR-Aufbau

In Abschnitt 4.5.3 sind die Ergebnisse der Kalibration der Thermistoren und der Photodioden knapp zusammengefasst. An dieser Stelle werden die zugehörigen Messungen und die durchgeführten Rechnungen näher erläutert. In Abschnitt G.1 wird die Kalibration der Thermistoren und in Abschnitt G.2 die der Photodioden beschrieben.

G.1 Kalibration der Thermistoren

Die Kalibration der Thermistoren wird mit Hilfe eines nach DIN EN 60751 genormten Pt100-Messwiderstandes durchgeführt. Hierfür wird der Pt100-Messwiderstand ebenfalls am oberen Kupferblock der Laserdiode befestigt und der Widerstand mit einem Multimeter bestimmt. Die Temperatur des Kupferblocks wird über das Peltierelement geregelt, das vom Temperaturcontroller gesteuert wird. Dabei dient dem Controller der Widerstand des Thermistors als Eingangssignal. Aus diesem Grund kann dessen Widerstand direkt auf einen bestimmten Wert geregelt werden. So können Daten aufgenommen werden, aus denen die Relation zwischen dem Widerstand des Thermistors R_T und dem Pt100-Messwiderstand $R_{Pt}(R_T)$

$$R_{Pt}(R_T) = m \cdot R_T + b \quad (\text{G.1})$$

gewonnen werden kann. Für den Thermistor an Laserdiode 1 ergeben sich die in Abbildung G.1 gezeigten Messdaten. Aus dem Diagramm ergeben sich für die Variablen aus Gleichung G.1 folgende Werte:

$$m = -0,2 \cdot 10^{-3} \quad (\text{G.2})$$

$$b = 128,4 \Omega \quad (\text{G.3})$$

Mit Hilfe der in der DIN EN 60751 Norm festgelegten Funktion für den Widerstand eines Pt100-Messwiderstands R_{Pt}

$$R_{Pt}(T) = 100\Omega(1 + A \cdot T - 5,775 \cdot B \cdot T^2), \quad (\text{G.4})$$

mit $A = 3,9083 \cdot 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ und $B = -5,775 \cdot 10^{-7} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$, ergibt sich für die Temperatur in Abhängigkeit vom Widerstand des Thermistors R_T die folgende Funktion:

$$T(R_T) = -100 \cdot A + \frac{\sqrt{100^2 \cdot A^2 - 4 \cdot (100 - (m \cdot R_T + b)) \cdot 100 \cdot B}}{2 \cdot 100 \cdot B}. \quad (\text{G.5})$$

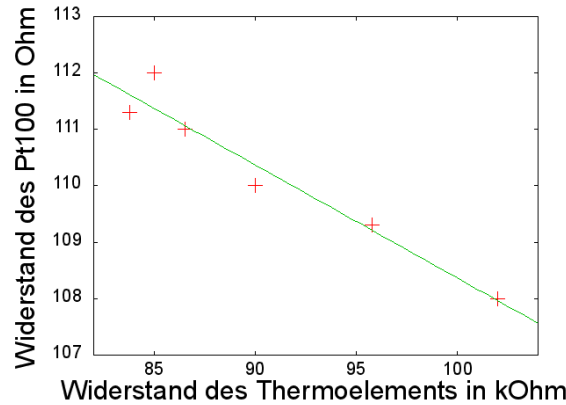


Abbildung G.1: Diagramm zur Kalibration des an Laserdiode 1 angebrachten Thermistors. Mit den roten Kreuzen sind die Messdaten in das Diagramm eingezeichnet. Die grüne Gerade ist mittels linearer Regression an die Daten angepasst worden.

Der für die späteren Messungen am Temperaturcontroller eingestellte Widerstand von $95,8\text{ k}\Omega$ entspricht damit $T = 23,7^\circ\text{C}$. Die Thermistoren der beiden anderen Laserdioden sind typgleich. Zudem ist bei deren Auswahl auf möglichst identische Widerstandswerte bei Raumtemperatur geachtet worden. Die Abweichung betrug maximal $\pm 2\text{ k}\Omega$. Dabei ist jedoch zu beachten, dass der Widerstand durch die Körperwärme der messenden Person beeinflusst worden ist. Trotzdem kann davon ausgegangen werden, dass die drei Sensoren ein identisches Temperaturverhalten zeigen. Dies ist mit jeweils einer bzw. zwei Messungen verifiziert worden. Dass die Temperaturen, auf die die drei Laserdioden gekühlt werden, leicht unterschiedlich sind, stellt für die Messungen kein Hindernis dar. Es ist wichtig, dass die Laserdioden im angegebenen Temperaturbereich von $20 - 30^\circ\text{C}$ bzw. von $23 - 27^\circ\text{C}$ mit geringen Temperaturschwankungen betrieben werden.

G.2 Kalibration der Photodioden

Um die Photodioden zu kalibrieren wird der TR-Aufbau verwendet. Die im Folgenden verwendeten Bezeichnungen können Abbildung G.2 entnommen werden.

Die mit Photodiode i an der Position x gemessene Intensität ist abhängig von der Ausgangsintensität I_0 , einem Faktor R_x zur Beschreibung der Intensitätsabschwächung durch den Aufbau, beispielsweise am Spiegel oder am Strahlteiler, und der Sensitivität der Photodiode S_i :

$$I_x = I_0 \cdot R_x \cdot S_i. \quad (\text{G.6})$$

Die Messung der Lichtintensität an zwei Positionen vor und nach einem Vertauschen der jeweiligen Photodioden ermöglicht das Bilden zweier Verhältnisse V_1 und V_2

$$V_1 = \frac{I_x}{I_y} = \frac{R_x \cdot S_1}{R_y \cdot S_2}, \quad (\text{G.7})$$

$$V_2 = \frac{I_x}{I_y} = \frac{R_x \cdot S_2}{R_y \cdot S_1}. \quad (\text{G.8})$$

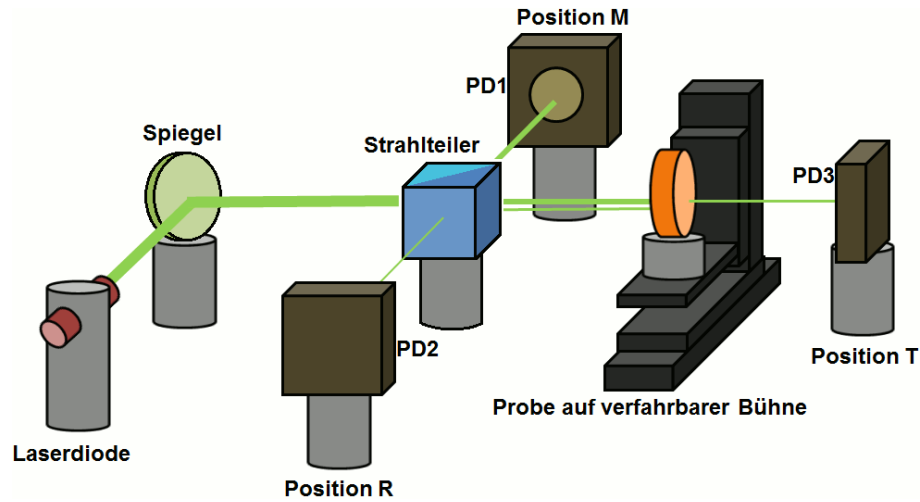


Abbildung G.2: Schematische Darstellung des Messaufbaus zur Kalibration der Photodioden. Um die Kalibration der Photodioden vorzunehmen, wird der TR-Aufbau verwendet, in dessen Strahlengang Probe I1 integriert wird. Die Positionen der Photodioden werden mit M, R und T bezeichnet. Die Photodioden selbst werden mit 1, 2 und 3 nummeriert.

Durch Division der beiden Verhältnisse erhält man einen von I_0 und R_x unabhängigen Ausdruck.

$$\frac{V_1}{V_2} = \frac{S_1^2}{S_2^2}. \quad (\text{G.9})$$

Die Zahlenwerte der Verhältnisse können aus Messwerten ermittelt werden. Zur Kalibration der drei Photodioden werden hierfür insgesamt vier unterschiedliche Messungen mit folgenden Bedingungen durchgeführt:

- PD1 auf Position M, PD2 auf Position R,
- PD2 auf Position M, PD1 auf Position R,
- PD1 auf Position M, PD3 auf Position T,
- PD3 auf Position M, PD1 auf Position T.

Jede dieser Messungen wird fünf Mal wiederholt. Die Messzeit beträgt 10 s, was bedeutet, dass über die Mittelwerte von zehn 1 s langen Messintervallen gemittelt wird. Aus den so gewonnenen Daten ergibt sich:

$$S_1^2 = \frac{V_1}{V_2} S_2^2 = 0,987 \cdot S_2^2, \quad (\text{G.10})$$

$$S_3^2 = \frac{V_1}{V_2} S_2^2 = 0,979 \cdot S_2^2. \quad (\text{G.11})$$

Bei allen folgenden Messungen wird PD1 auf der Position R, PD2 auf der Position T und PD3 auf der Position M verwendet. Die ermittelten Sensitivitäten sind in alle in dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse bereits eingerechnet.

Anhang H

Mittelwerte der aus den TR-Messungen gewonnenen Messdaten

Im Abschnitt 5.3 werden die Mittelwerte aus den Messdaten der TR-Messung bewertet. In den Tabellen dieses Anhangs sind die zugehörigen Zahlenwerte aufgeführt.

Die Tabellen enthalten den aus den durchgeführten Messungen einer jeden Probe gebildeten Mittelwert aller Messpunkte $\bar{x}_a$, sowie den Mittelwert $\bar{x}_s$ der selektierten Messpunkte. Im Falle der selektierten Messpunkte sind die am Randbereich der Probe befindlichen Messpunkte vernachlässigt worden. Auf diese Weise kann eine Verfälschung der Ergebnisse durch ein Auftreffen des Laserstrahls auf den Sicherungsring ausgeschlossen werden. Zudem ist die jeweilige Standardabweichung σ_a bzw. σ_s der Mittelwerte angegeben. Sollte zu einer Probe nur eine Messung vorhanden sein, wird der jeweilige Wert der Messung, also der Mittelwert aus je 10 Messungen mit einer Sekunde Messzeit, und dessen Standardabweichung angegeben. Diese Daten werden mit einem * an der Probennummer gekennzeichnet.

Die Tabellen H.1 und H.2 enthalten die Daten zu den nicht eingeschweißten Proben der Probenbehälter I, III und IV. Die Daten der eingeschweißten Proben können Tabelle H.3 entnommen werden. Die Mittelwerte zu den an den beaufschlagten Proben durchgeführten Messungen sind in Tabelle H.4 gegeben.

Tabelle H.1: Zusammenfassung der Mittelwerte und deren Standardabweichung der Referenzmessungen der nicht eingeschweißten Proben. PB: Probenbehälter, $\bar{x}_a$: Mittelwert mit Daten aller Messpunkte, $\bar{x}_s$: Mittelwert mit Daten der selektierten Messpunkte, σ_a : Standardabweichung zu $\bar{x}_a$, σ_s : Standardabweichung zu $\bar{x}_s$, R/T: Angabe, ob gemessener Wert Reflexions- (R) oder Transmissionseigenschaften (T) widerspiegelt; *: Es ist nur eine Messung zu dieser Probe durchgeführt worden. Die Tabelle wird in H.2 fortgesetzt.

PB	Probe	R/T	λ in nm	Mittelwert $\bar{x}_a$	σ_a	Mittelwert $\bar{x}_s$	σ_s
I	1*	R	593	3,33	0,0004	3,33	0,0005
III	1	R	593	2,88	0,03	2,88	0,03
IV	1	R	593	3,00	0,05	2,98	0,05
I	1*	T	593	18,27	0,003	18,50	0,003
III	1	T	593	16,92	0,07	16,83	0,07
IV	1	T	593	17,44	0,08	17,71	0,06
I	2*	R	1064	2,44	0,00003	48,75	0,0006
III	2	R	1064	1,86	0,75	52,27	0,009
IV	2	R	1064	3,06	0,19	60,79	3,56
I	2*	T	1064	399,63	0,08	399,33	0,11
III	2	T	1064	401,25	16,89	395,91	18,20
IV	2	T	1064	418,19	4,94	415,74	4,14
I	3*	R	1064	2,57	0,00005	51,47	0,0011
III	3	R	1064	2,80	0,010	55,76	0,07
IV	3	R	1064	2,80	0,03	56,33	0,54
I	3*	T	1064	2285,9	1,0	2259,8	1,1
III	3	T	1064	2140,1	31,2	2120,8	21,7
IV	3	T	1064	4143,5	9,9	4108,6	20,3
I	4*	R	593	2,80	0,0004	2,81	0,0005
III	4	R	593	3,00	0,02	2,99	0,03
IV	4	R	593	2,96	0,11	2,96	0,10
I	4*	T	593	16,71	0,004	16,20	0,004
III	4	T	593	11,80	0,1	12,07	0,12
IV	4	T	593	16,32	0,4	16,37	0,6

Tabelle H.2: Zusammenfassung der Mittelwerte und deren Standardabweichung der Referenzmessungen der nicht eingeschweißten Proben - Fortsetzung zu Tabelle H.1. PB: Probenbehälter, $\bar{x}_a$: Mittelwert mit Daten aller Messpunkte, $\bar{x}_s$: Mittelwert mit Daten der selektierten Messpunkte, σ_a : Standardabweichung zu $\bar{x}_a$, σ_s : Standardabweichung zu $\bar{x}_s$, R/T: Angabe, ob gemessener Wert Reflexions- (R) oder die Transmissionseigenschaften (T) widerspiegelt; *: Es ist nur eine Messung zu dieser Probe durchgeführt worden.

PB	Probe	R/T	λ in nm	Mittelwert $\bar{x}_a$	σ_a	Mittelwert $\bar{x}_s$	σ_s
I	4*	R	1064	2,68	0,00003	2,67	0,0008
III	4	R	1064	2,57	0,0011	2,57	0,0003
IV	4	R	1064	2,48	0,0472	2,48	0,04
I	4*	T	1064	4763,6	2,3	4809,4	2,8
III	4	T	1064	9721,2	132,2	10109,1	114,3
IV	4	T	1064	7166,7	1777,1	10429,6	755,5
I	5*	R	593	48,57	0,010	48,75	0,012
III	5	R	593	49,01	0,76	48,90	0,88
IV	5	R	593	49,19	0,65	49,61	0,66
I	5*	T	593	1,17	0,0002	1,16	0,0002
III	5	T	593	1,19	0,0004	1,19	0,0003
IV	5	T	593	1,20	0,0013	1,19	0,0013
I	6*	R	532	30,11	0,002	30,04	0,00
III	6	R	532	24,84	0,37	24,76	0,33
IV	6	R	532	23,98	0,93	24,04	0,82
I	6*	T	532	1,14	0,00004	1,14	0,00005
III	6	T	532	1,11	0,0006	1,10	0,0007
IV	6	T	532	1,11	0,00015	1,11	0,0004
I	6*	R	593	22,55	0,005	22,97	0,01
III	6	R	593	20,49	0,66	20,65	0,10
IV	6	R	593	29,62	5,05	30,37	5,15
I	6*	T	593	1,24	0,0002	1,24	0,019
III	6	T	593	1,23	0,0009	1,24	0,002
IV	6	T	593	1,28	0,02	1,27	0,02

Tabelle H.3: Zusammenfassung der Mittelwerte und deren Standardabweichung der Referenzmessungen der eingeschweißten Proben. PB: Probenbehälter, $\bar{x}_a$: Mittelwert mit Daten aller Messpunkte, $\bar{x}_s$: Mittelwert mit Daten der selektierten Messpunkte, σ_a : Standardabweichung zu $\bar{x}_a$, σ_s : Standardabweichung zu $\bar{x}_s$, R/T: Angabe, ob gemessener Wert Reflexions- (R) oder Transmissionseigenschaften (T) widerspiegelt; *: Es ist nur eine Messung zu dieser Probe durchgeführt worden.

PB	Probe	R/T	λ in nm	Mittelwert $\bar{x}_a$	σ_a	Mittelwert $\bar{x}_s$	σ_s
II	I*	R	532	101,11	0,04	102,552472	0,04
II	I*	T	532	1,06	0,00015	1,06247771	0,00017
II	II*	R	532	55,04	0,009	54,6534093	0,011
II	II*	T	532	1,06	0,0003	1,06247013	0,0003
II	III*	R	532	90,31	0,06	90,5161799	0,06
II	III*	T	532	1,08	0,0002	1,08264812	0,0003
II	III*	R	532	119,98	0,08	108,923167	0,09
II	III*	T	532	1,10	0,0002	1,08725677	0,0003

Tabelle H.4: Mittelwerte und deren Standardabweichung der ersten Messung beaufschlagter Proben. PB: Probenbehälter, $\bar{x}_a$: Mittelwert mit Daten aller Messpunkte, $\bar{x}_s$: Mittelwert mit Daten der selektierten Messpunkte, σ_a : Standardabweichung zu $\bar{x}_a$, σ_s : Standardabweichung zu $\bar{x}_s$, R/T: Angabe, ob gemessener Wert Reflexions- (R) oder Transmissionseigenschaften (T) widerspiegelt; *: Es ist nur eine Messung zu dieser Probe durchgeführt worden.

PB	Probe	R/T	λ in nm	Mittelwert $\bar{x}_a$	σ_a	Mittelwert $\bar{x}_s$	σ_s
I	1*	R	593	2,80	0,0003	2,80	0,000007
I	1*	T	593	17,97	0,004	17,63	0,00009
I	2*	R	1064	2,87	0,000013	57,69	0,000006
I	2*	T	1064	374,13	0,013	374,76	0,0003
I	3*	R	1064	2,42	0,000008	48,40	0,000004
I	3*	T	1064	2817,24	0,59	2788,48	0,013
I	4	R	593	3,83	0,04	3,83	0,00002
I	4	T	593	18,42	0,13	19,01	0,0002
I	4	R	1064	2,47	0,000013	49,47	0,000006
I	4	T	1064	57219,84	26081,7	57361,65	3,8
I	5*	R	593	35,22	0,010	35,55	0,0003
I	5*	T	593	1,19	0,00010	1,18	0,000003
I	6*	R	532	23,74	0,06	23,41	0,0014
I	6*	T	532	1,15	0,002	1,15	0,00192
I	6*	R	593	21,29	0,004	20,87	0,0041
I	6*	T	593	1,23	0,0003	0,06	0,000010

Anhang I

Vergleich der optischen Eigenschaften innerhalb eines Probentyps

Bei der Auswertung der mittels TR-Aufbau gewonnenen Daten fällt auf, dass die Beschichtungen örtlich bezogene Schwankungen um den Mittelwert der gemessenen Transmissions- bzw. Reflexionsstärke zeigen. Diese Schwankungen können in der graphischen Darstellung der Messdaten als Strukturen nachvollzogen werden.

In diesem Anhang werden die Proben, die mit dem gleichen Herstellungsprozess beschichtet worden sind, auf vergleichbare optische Eigenschaften hin untersucht. So kann nur im Falle von vergleichbaren Beschichtungen auch davon ausgegangen werden, dass eine aufgetretene Beschädigung an den Proben repräsentativ für die Beschichtungsmethode ist. Zudem können im Falle vergleichbarer Eigenschaften typgleicher Proben die Ergebnisse aller Proben zur Beurteilung der Messdaten in Bezug auf eine mögliche Beschädigung herangezogen werden (siehe Abschnitt 4.8.1 und Kapitel 5). Daher werden im Folgenden die Diagramme der mittels TR-Messung gewonnenen Daten hinsichtlich der Vergleichbarkeit innerhalb eines Probentyps ausgewertet.

Da an dieser Stelle nicht die Untersuchung aller Probentypen gezeigt werden kann, werden exemplarisch die mittels Ionenstrahlgestützter Deposition beschichteten Proben dargestellt. Zusätzlich werden auch die unbeschichteten Proben untersucht. Diese könnten im Falle einer Beschädigung aller Beschichtungen ebenfalls als Fenster für die LARA-Zelle dienen.

Bei den TR-Messungen wird über alle Messpunkte der Oberfläche gemittelt, um die Eigenschaften der Beschichtung in einem Zahlenwert zusammenzufassen (siehe Anhang H, Tabelle H.1 und H.2). Werden diese Mittelwerte der typgleichen Fenster betrachtet, so kann anhand von Tabelle I.1 gesehen werden, dass die optischen Eigenschaften der typgleichen Beschichtungen in der selben Größenordnung liegen. Hier sind aus den Mittelwerten aus allen Messpunkten der drei vorhandenen Proben die Mittelwerte der Probentypen bestimmt worden. Zudem ist die maximale Abweichung der Mittelwerte der einzelnen Proben (x_a) von deren Mittelwert ($\bar{x}_a$) angegeben. Es zeigt sich, dass viele der Werte x_a eine Abweichung von weniger als 10 % bezogen auf $\bar{x}_a$ besitzen. Aber auch die größte aufgetretene Abweichung von 56,8 % lässt, verglichen mit den um mehr als eine Größenordnung unterschiedlichen Messwerten von Reflexion und Transmission, eine qualitative

Tabelle I.1: Zusammenstellung der Mittelwerte der Messdaten für jeden Probentyp und der jeweils maximalen Abweichung der Messwerte vom Mittelwert. R/T: Angabe, ob gemessener Wert Reflexions- (R) oder Transmissionseigenschaften (T) widerspiegelt, $\bar{x}_a$: Mittelwert mit Daten aller Messpunkte

Probe	R/T	λ in nm	$\bar{x}_a$	Maximale Abweichung der x_a von $\bar{x}_a$ in %
1	R	593	3,07	8,5
1	T	593	17,54	4,3
2	R	1064	2,45	32,6
2	T	1064	406,36	5,4
3	R	1064	2,72	5,7
3	T	1064	2856,5	45,4
4	R	593	2,92	5,1
4	T	593	14,94	21,8
4	R	1064	2,57	5,5
4	T	1064	7217,2	36,5
5	R	593	48,92	3,3
5	T	593	1,19	1,5
6	R	532	26,31	14,4
6	T	532	1,12	1,9
6	R	593	24,22	56,8
6	T	593	1,25	4,8

Aussage über die optischen Eigenschaften der Beschichtungen zu. Dies gilt vor allem bei Proben, deren Messwerte für Reflexions- und Transmissionskoeffizient einen Unterschied von 3 Größenordnungen aufweisen.

Somit haben die angegebenen Mittelwerte für jeden Probentyp eine ausreichende Aussagekraft, um sie zu einer Bewertung der Messdaten heranzuziehen. Es ist anzunehmen, dass die zu erwartende Beschädigung die TR-Eigenschaften deutlich, d.h. über Größenordnungen hinweg, verändern wird. Deshalb wird die vorgeschlagene Messmethode ausreichen, diese Beschädigung zu erkennen. Jedoch wird eine Bestimmung der ersten Anzeichen einer Beschädigung, die sich unter Umständen nicht signifikant gegenüber den Messunsicherheiten hervortut, nur bedingt möglich sein. Weiterhin ist zu beachten, dass damit lediglich eine Aussage über den Mittelwert der an den Messpositionen gewonnenen Daten getroffen ist. Um die Vergleichbarkeit bezogen auf die einzelnen Messpositionen zu untersuchen, werden wiederum die Probentypen 2 und 6 betrachtet. In den Abbildungen I.1 und I.2 werden jeweils die Messdaten für das Verhältnis von Monitor- zu Transmissions- und Re-

flexionsphotodiodensignal gezeigt.

Es wird deutlich, dass die Diagramme der Proben eines Probentyps eine sehr ähnliche Struktur aufweisen. Auch die maximalen Unterschiede der Messdaten vom Mittelwert sind ähnlich groß. Um jedoch nicht den fälschlichen Eindruck entstehen zu lassen, dass alle und nicht nur die meisten der Proben eines Probentyps die gleichen Eigenschaften aufweisen, sind in den Abbildungen I.1 und I.2 auch Diagramme gezeigt, die Unterschiede im Vergleich mit den anderen beiden Proben zeigen: Für Probe I6 weicht der Transmissionskoeffizient stärker, der Reflexionskoeffizient weniger vom Mittelwert ab, als es bei Probe III6 oder IV6 der Fall ist. Probe IV2 verhält sich sowohl in Bezug auf die Abweichung des Reflexionskoeffizienten vom Mittelwert als auch auf die Struktur zu den anderen Proben des Probentyps verschieden.

Insgesamt kann aus den in diesem Anhang beschriebenen Untersuchungen gefolgert werden, dass die Proben innerhalb eines Probentyps durchaus vergleichbare Eigenschaften aufweisen. Die Mittelwerte der Probentypen, die in Tabelle I.2 zusammen mit ihrer Standardabweichung angegeben sind, können eine Hilfe für die qualitative Beurteilung von Messergebnissen darstellen.

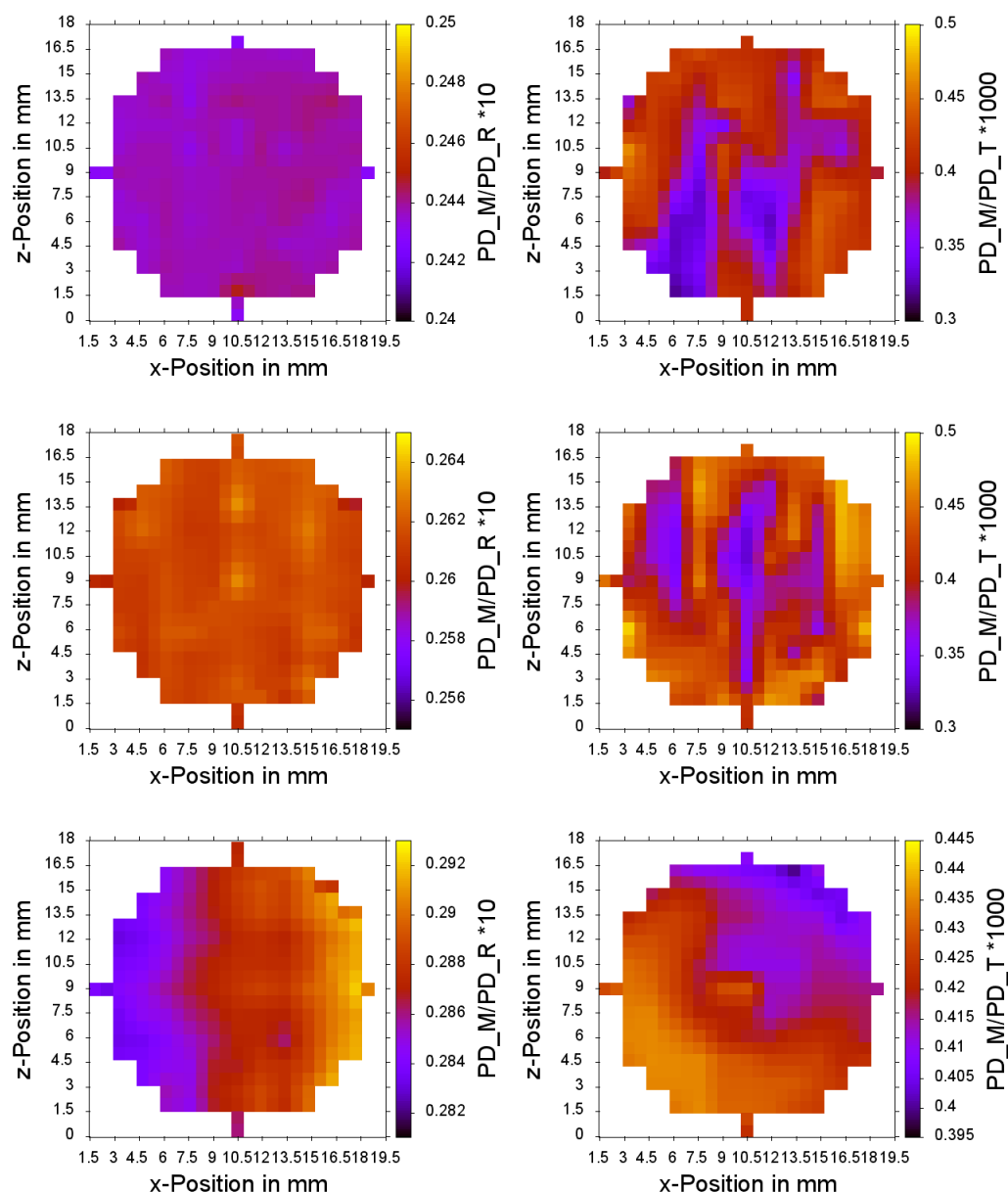


Abbildung I.1: Vergleich der graphischen Darstellungen der Messwerte von Probe I2 (oben), III2 (Mitte) und IV2 (unten). Auf der linken Seite ist jeweils das Verhältnis von Monitor- zu Reflexions-, auf der rechten Seite zu Transmissionsphotodiodensignal gezeigt. Links: Die Diagramme des Reflexionskoeffizienten von Probe I2 und Probe III2 weisen nur geringe Abweichungen der Messdaten vom Mittelwert auf. Eine besondere Struktur in den Diagrammen kann nicht erkannt werden. Dagegen zeigt Probe IV2 einen deutlichen Übergang von einem Bereich mit hohem Reflexionskoeffizienten am linken Rand der Probe zu einem Bereich mit einem geringen Koeffizienten am rechten Rand der Probe. Ein solcher Übergang fehlt im Falle der beiden anderen Proben. Rechts: Die gezeigten Transmissionsdiagramme von Probe I2 und III2 besitzen die gleiche Struktur und auch die unterschiedlichen Farbausprägungen sind sehr ähnlich. Bei Probe IV2 sind die Schwankungen um den Mittelwert weniger stark ausgeprägt. Auch die Struktur, die sich in der graphischen Darstellung zeigt, scheint unterschiedlich.

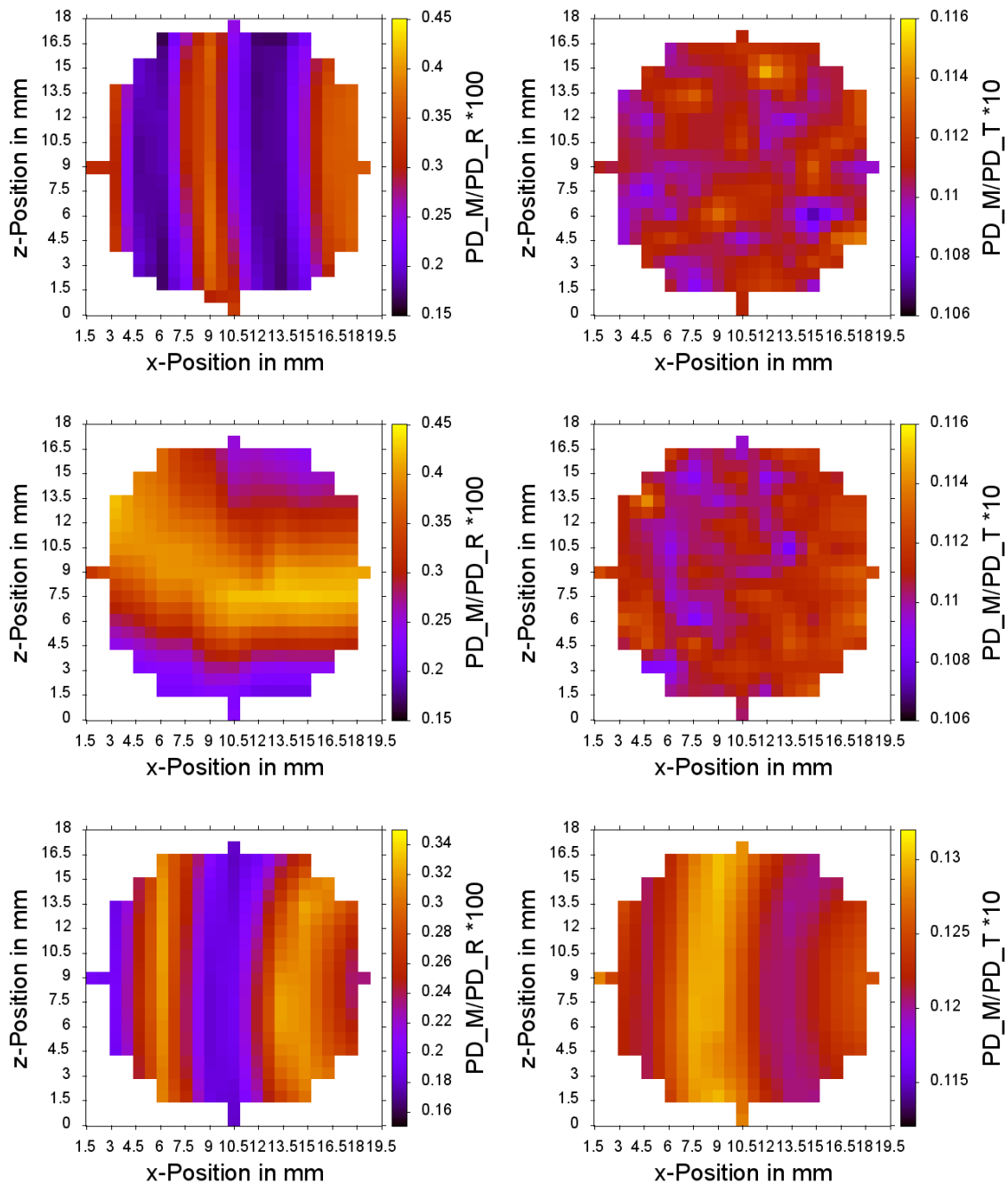


Abbildung I.2: Vergleich der graphischen Darstellungen der Messwerte von Probe III6 (oben), IV6 (Mitte) und I6 (unten). Auf der linken Seite ist jeweils das Verhältnis von Monitor- zu Reflexions-, auf der rechten Seite zu Transmissionsphotodi-odensignal gezeigt. Links: Die Darstellungen des Reflexionskoeffizienten der drei gezeigten Proben zeichnen sich durch ihre streifenförmige Struktur aus. Jedoch ist im Falle der Probe IV6 lediglich ein breiter Streifen zu sehen, wohingegen die Proben I6 und III6 mehrere dünne Streifen zeigen. Rechts: Die gezeigten Diagramme des Transmissionskoeffizienten der Proben III6 und IV6 besitzen vereinzelte Messpunkte im oberen und unteren Bereich der Farbskala. Eine besondere Struktur kann dabei nicht erkannt werden. Insgesamt sind die Diagramme vergleichbar. Dagegen zeigt sich in der Darstellung des Transmissionskoeffizienten von Probe I6 eine deutlich erkennbare, streifenförmige Struktur.

Tabelle I.2: Zusammenfassung der über alle Proben eines Probentyps gemittelten Messwerte und den dazugehörigen Standardabweichungen. $\bar{x}_a$: Mittelwert mit Daten aller Messpunkte, $\bar{x}_s$: Mittelwert mit Daten der selektierten Messpunkte (also aller Messpunkte jedoch ohne den Randbereich), σ_a : Standardabweichung zu $\bar{x}_a$, σ_s : Standardabweichung zu $\bar{x}_s$, R/T: Angabe, ob gemessener Wert Reflexions- (R) oder die Transmissionseigenschaften (T) widerspiegelt.

Probe	R/T	λ in nm	$\bar{x}_a$	σ_a	$\bar{x}_s$	σ_s
1	R	593	3,07	0,19	3,06	0,20
1	T	593	17,54	0,55	17,68	0,68
2	R	1064	2,45	0,49	53,94	5,06
2	T	1064	406,4	8,39	403,66	8,65
3	R	1064	2,72	0,11	2,72	0,11
3	T	1064	2856,5	912,0	2829,7	906,1
4	R	593	2,92	0,08	2,92	0,08
4	T	593	14,94	2,23	14,88	1,99
4	R	1064	2,57	0,08	2,57	0,08
4	T	1064	7217,2	2024,2	8449,4	2577,2
5	R	593	48,92	0,26	49,09	0,37
5	T	593	1,19	0,013	1,18	0,01
6	R	532	26,31	2,71	26,28	2,67
6	T	532	1,12	0,015	1,11	0,015
6	R	593	24,22	3,91	24,67	4,15
6	T	593	1,25	0,02	0,06	0,0008

Anhang J

Diagramme der ersten TR-Messungen beaufschlagter Proben

In Kapitel 5.3 kann nur eine sehr kleine Auswahl der zu den Messdaten der TR-Messung gehörigen Diagramme gezeigt werden. Da die Diagramme jedoch genauso wie die in Anhang H aufbereiteten Mittelwerte der Messungen zur Bewertung der Daten beitragen, sind die Diagramme in diesem Anhang zusammengefasst. Auf eine erneute Aufführung der Diagramme, die bereits in Kapitel 5.3 gezeigt werden, wird hierbei verzichtet. Die Interpretation der Diagramme erfolgt direkt in der Bildunterschrift.

Die Diagramme, die auf der Basis der Messdaten nach einer Beaufschlagungszeit von 17 Tagen erstellt werden, werden direkt mit den Referenzmessungen verglichen. Hierfür werden alle Farbskalen so gewählt, dass sowohl die Daten der Messung vor und nach der Beaufschlagung dargestellt werden können. Es ist zu beachten, dass die Proben nicht mit der selben Ausrichtung in den TR-Aufbau integriert worden sind. Daher können die Bilder gegeneinander verdreht sein.

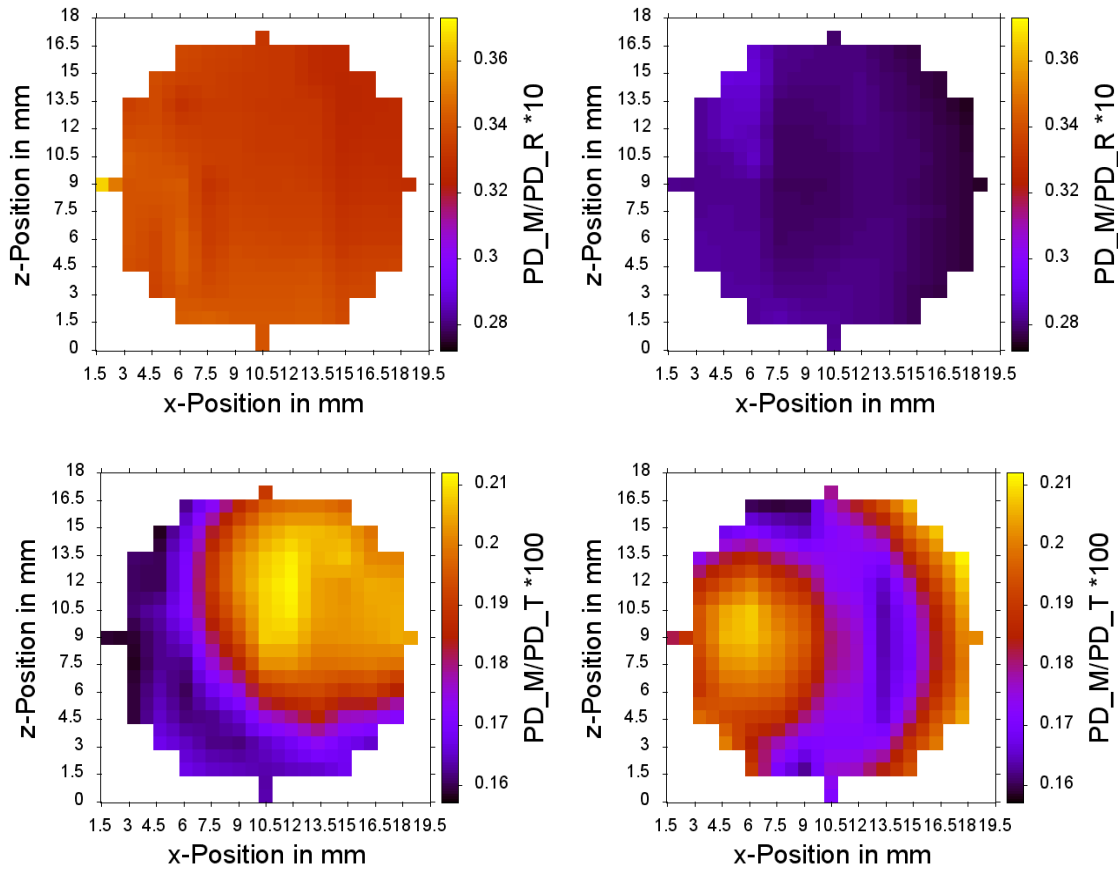


Abbildung J.1: Graphische Darstellung der Messwerte von Probe I1 vor und nach der Beaufschlagung. In der linken Spalte befinden sich die Diagramme der Referenzmessung, in der rechten die der Messung an der beaufschlagten Probe. Oben: Die Darstellungen zeigen das Verhältnis von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal der Probe I1. Der Reflexionskoeffizient der Probe nach der Beaufschlagung zeigt eine deutlich zu blauen Farbtönen verschobene Färbung. Daran kann eine Erhöhung des Koeffizienten erkannt werden. Diese Erhöhung ist auf der gesamten Probenoberfläche erkennbar. Unten: Hier ist das Verhältnis von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal der Probe graphisch dargestellt. Das Diagramm der Referenzmessung auf der linken Seite zeigt einen geringeren Transmissionskoeffizienten im Bereich rechts oben. Dieser Bereich wird im Diagramm der beaufschlagten Probe, die vermutlich um 180° gegenüber der unbeaufschlagten Probe gedreht ist, etwas kleiner. Insgesamt kann jedoch eine Erhöhung des Transmissionskoeffizienten an den Randbereichen der Probe festgestellt werden, da die in einem sehr dunklen Blau eingefärbten Bereiche nach der Beaufschlagung abgenommen haben.

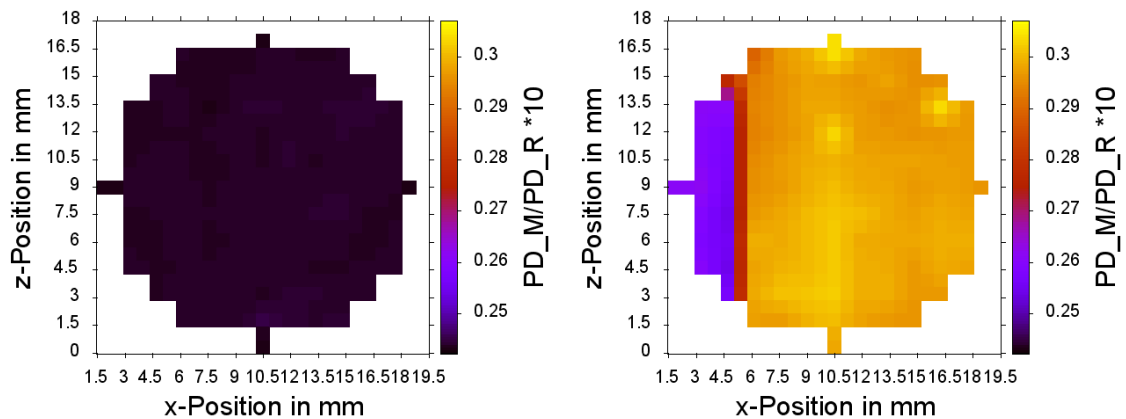


Abbildung J.2: Graphische Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal von Probe I2 vor und nach der Beaufschlagung. In der linken Spalte befinden sich die Diagramme der Referenzmessung, in der rechten die der Messung an der beaufschlagten Probe. Ein Vergleich der beiden Diagramme zeigt bereits auf den ersten Blick eine Verminderung des Reflexionskoeffizienten. Zudem kann an der beaufschlagten Probe ein Effekt gesehen werden, der bisher nicht erklärbar ist. So zeigen die Messpunkte der drei Spalten am linken Rand der Probe einen im Vergleich zum Rest der Probe deutlich erhöhten Wert des Reflexionskoeffizienten. Aufgrund der scharfen Abgrenzung dieses Bereichs kann von einem systematischen Effekt ausgegangen werden.

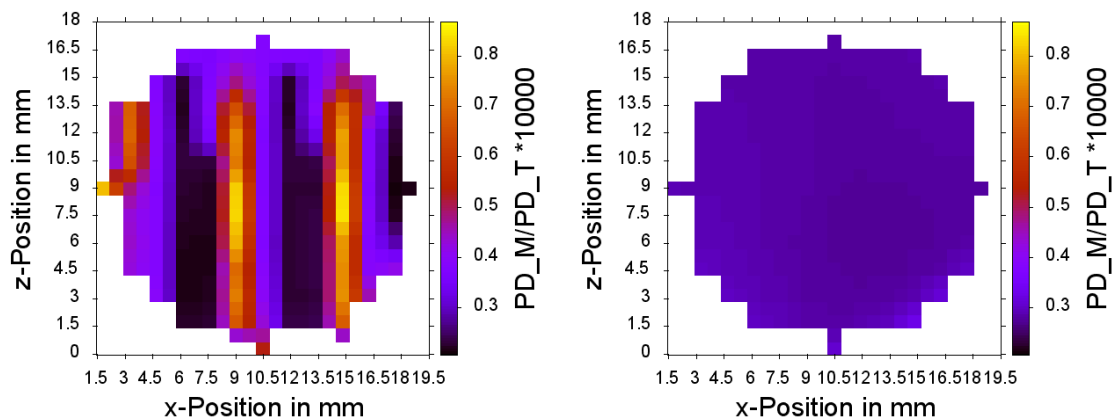


Abbildung J.3: Vergleich der graphischen Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal von Probe I3 vor und nach der Beaufschlagung. Links: Hier ist das Verhältnis von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal der Probe I3 vor der Beaufschlagung gezeigt. Rechts: Die von den Daten der Messung nach der Beaufschlagung gemachte Darstellung zeigt die streifenförmige Anordnung von Bereichen mit geringem Transmissionskoeffizienten nicht mehr.

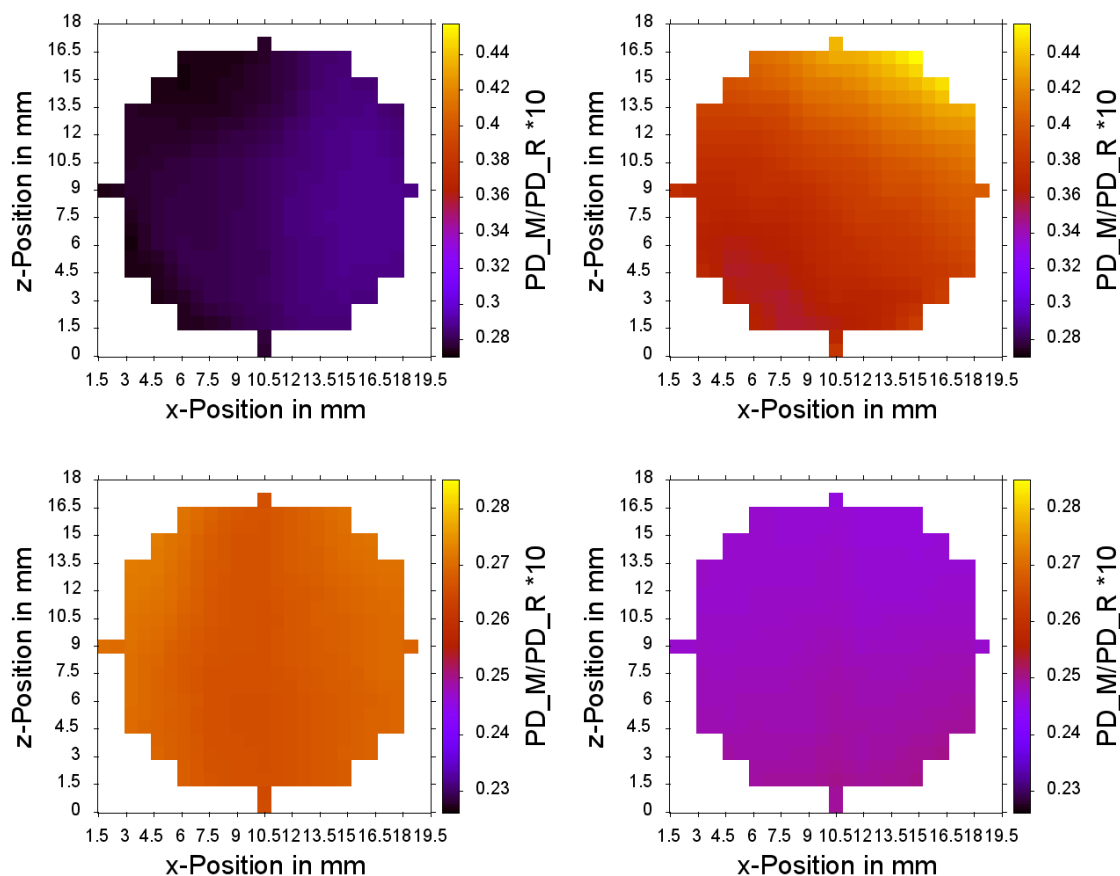


Abbildung J.4: Graphische Darstellung der Messwerte des Verhältnisses von Monitor- zu Reflexionsphotodiodensignal von Probe I4 vor und nach der Beaufschlagung. Auf der linken Seite sind jeweils die Diagramme vor der Beaufschlagung, auf der rechten die nach der Beaufschlagung zu sehen. Oben: Hier sind die Ergebnisse des Reflexionskoeffizienten bei Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 593 nm dargestellt. Die Veränderung findet gleichmäßig über die gesamte Oberfläche statt. Unten: Auch der Anstieg des Reflexionskoeffizienten bei der Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 1064 nm ist über den gesamten Oberflächenbereich eingetreten.

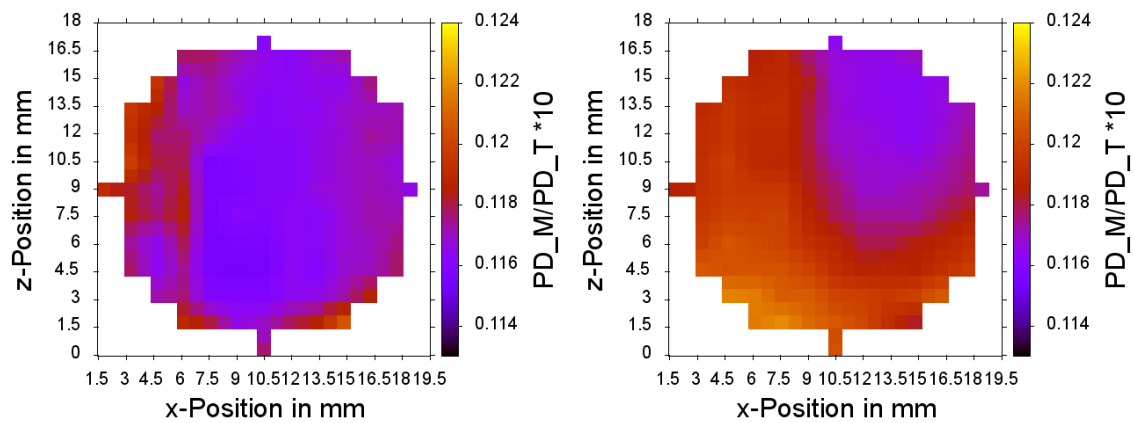


Abbildung J.5: Graphische Darstellung des Verhältnisses von Monitor- zu Transmissionsphotodiodensignal von Probe I5 vor und nach der Beaufschlagung. In der linken Spalte befinden sich die Diagramme der Referenzmessung, in der rechten die der Messung an der beaufschlagten Probe, die um 90° gegenüber der Referenzmessung gedreht zu sein scheint. Die gezeigten Diagramme weisen eine Verminderung des Transmissionskoeffizienten nach der Beaufschlagung der Probe auf. Auffällig ist der Bereich rechts oben, der weiterhin einen Transmissionskoeffizienten im Bereich der Werte der nicht beaufschlagten Probe zeigt.

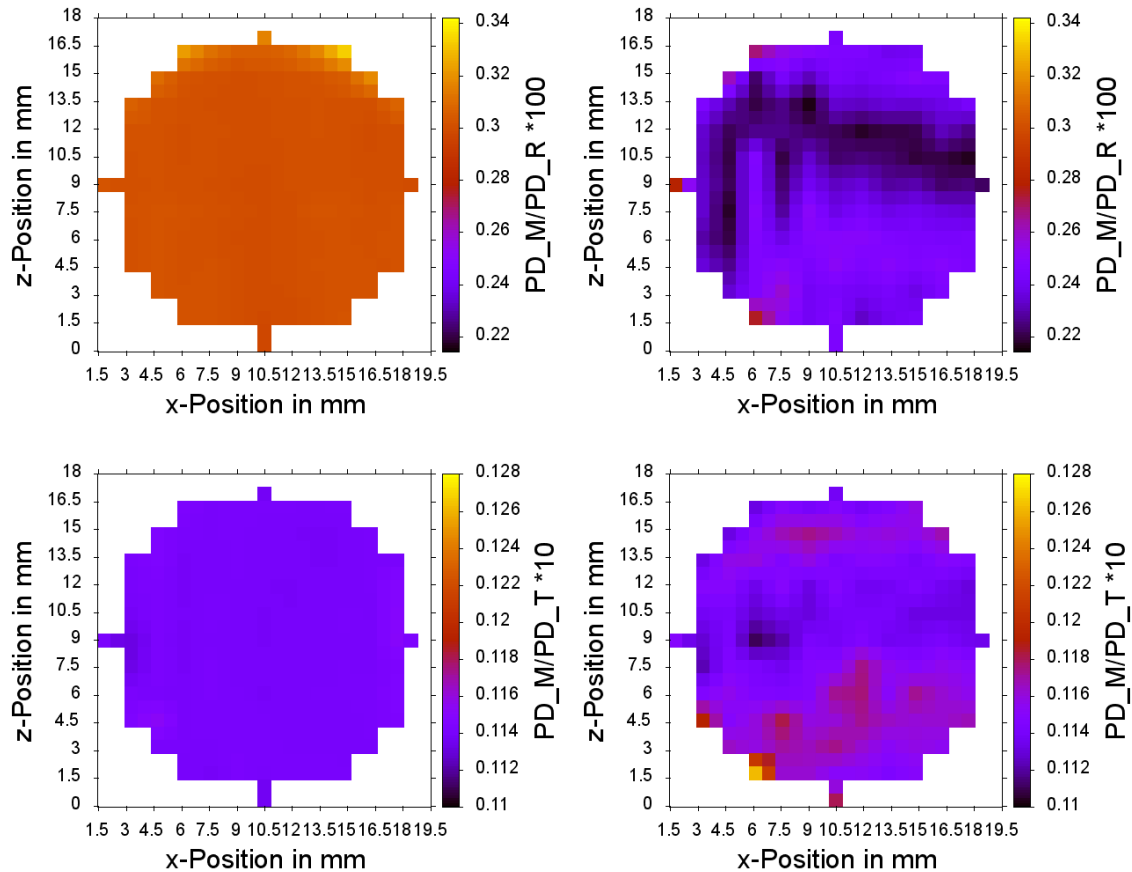


Abbildung J.6: Graphische Darstellung der Messwerte von Probe I6, bestrahlt mit Licht der Wellenlänge 593 nm, vor und nach der Beaufschlagung.

In der linken Spalte befinden sich die Diagramme der Referenzmessung, in der rechten die der Messung an der beaufschlagten Probe. Oben: Das Diagramm der Referenzmessung zeigt durch die getroffene Wahl der Farbskala eine sehr homogene Fläche. Lediglich im oberen Bereich des Diagramms kann ein etwas geringerer Reflexionskoeffizient festgestellt werden. Bei der beaufschlagten Probe dagegen ist ein deutlicher Unterschied zwischen den Bereichen mit dem höchsten (dunkelblau) und dem niedrigsten Reflexionskoeffizienten (pink) zu erkennen. Insgesamt kann eine Erhöhung des Reflexionskoeffizienten beobachtet werden. Unten: Für den Transmissionskoeffizienten zeigen die Diagramme ein ähnliches Verhalten. Insgesamt ist die Veränderung des Transmissionskoeffizienten aufgrund der Beaufschlagung jedoch deutlich geringer. So kann nur durch die Analyse des Diagramms keine Aussage über eine mittlere Veränderung getroffen werden.

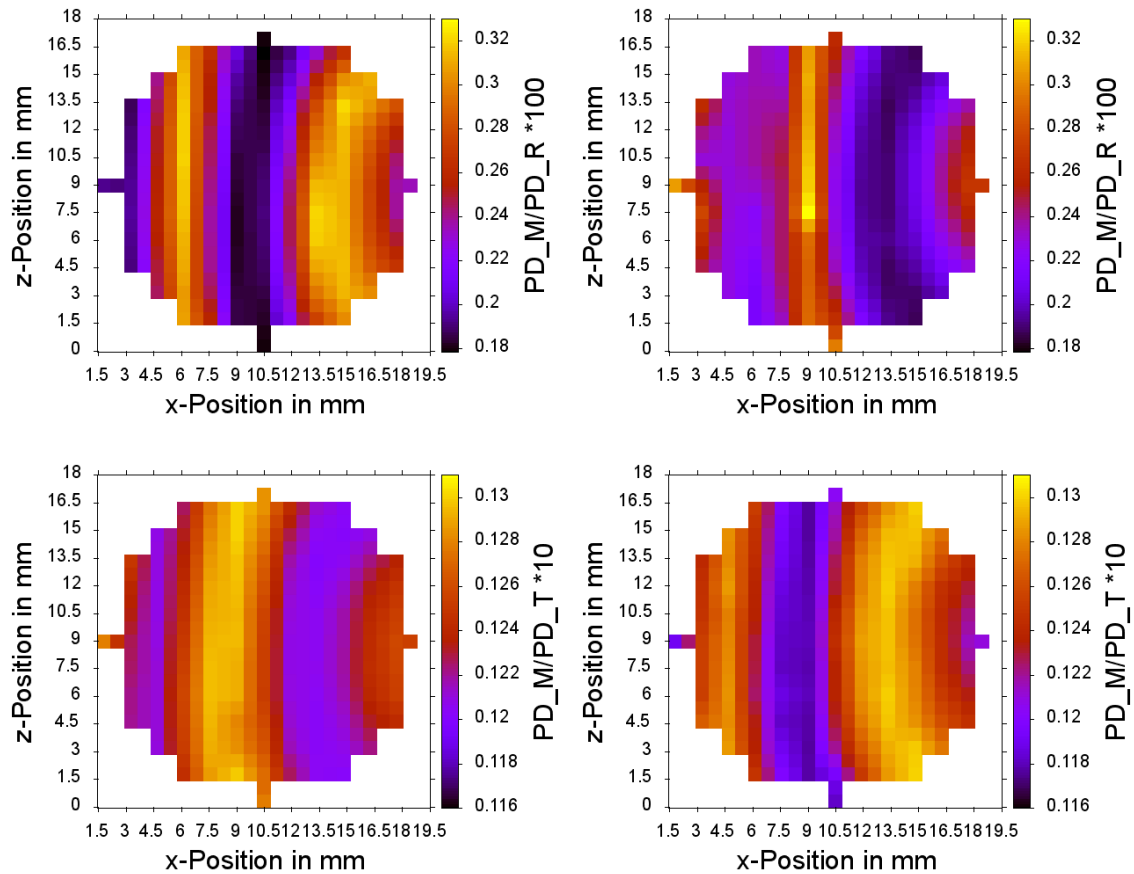


Abbildung J.7: Graphische Darstellung der Messwerte von Probe I6, bestrahlt mit Licht der Wellenlänge 593 nm, vor und nach der Beaufschlagung.

In der linken Spalte befinden sich die Diagramme der Referenzmessung, in der rechten die der Messung an der beaufschlagten Probe. Oben: Sowohl vor als auch nach der Beaufschlagung zeigen die Diagramme streifenförmige Bereiche mit einem hohen und geringen Reflexionskoeffizienten. Jedoch sind die Bereiche bei der beaufschlagten Probe weniger stark ausgebildet. Zudem ist die Position der Streifen eine andere, auch unter der Annahme einer Drehung der Probe. Unten: Für den Transmissionskoeffizienten können ebenfalls streifenförmige Bereiche beobachtet werden. Die Position der Streifen der beaufschlagten Probe stimmt hier allerdings, nach einer Drehung um 180° , mit der Position der Streifen der Referenzmessung überein.

Literaturverzeichnis

- [AAW04] U. Besserer and L. Dörr . *Arbeitsanweisung 0.2: Öffnen der 2. Hülle von Primärsystemen.* (2004).
- [Ada11] P. Adamson et al.. *Search for the disappearance of muon antineutrinos in the NuMI neutrino beam.* Phys. Rev. D, **84**, 071103 (2011).
- [Ahm02] Q. R. Ahmad et al.. *Direct Evidence for Neutrino Flavor Transformation from Neutral-Current Interactions in the Sudbury Neutrino Observatory.* **89**, 011301 (2002).
- [Alv99] M. Alvisi et al.. *Deposition of SiO₂ Films with High Laser Damage Thresholds by Ion-Assisted Electron-Beam Evaporation.* Appl. Opt., **38** 7, 1237–1243 (1999).
- [Amb98] I. Ambats et al.. *The MINOS Detectors Technical Design Report* (1998). Edited by Dave Ayres.
- [And07] E. Andreotti et al.. *MARE, Microcalorimeter Arrays for a Rhenium Experiment: A detector overview.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, **572** 1, 208 – 210 (2007). Frontier Detectors for Frontier Physics, Proceedings of the 10th Pisa Meeting on Advanced Detectors.
- [Ase00] V. Aseev et al.. *Energy loss of 18 keV electrons in gaseous T₂ and quench condensed D₂ films.* The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, **10**, 39–52 (2000).
- [Bab10] M. Babutzka. *Untersuchung eines verfahrenbaren Monitordetektors zur Überwachung der Aktivität des β -Zerfalls in der kryogenen Pumpstrecke des KATRIN-Experiments.* Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2010).
- [Bac97] H. Bach and D. Krause. *Thin films on glass.* Schott series on glass and glass ceramics. Springer (1997).
- [Bah06] J. N. Bahcall, A. M. Serenelli and S. Basu. *10,000 Standard Solar Models: A Monte Carlo Simulation.* The Astrophysical Journal Supplement Series, **165** 1, 400 (2006).
- [Bau04] P. Baumeister. *Optical coating technology.* SPIE Press monograph. SPIE Optical Engineering Press (2004).
- [Ber04] L. Bergmann, H. Niedrig and C. Schaefer. *Lehrbuch der Experimentalphysik: Optik : Wellen- und Teilchenoptik.* Lehrbuch der Experimentalphysik / Bergmann; Schaefer. de Gruyter (2004).

- [Bes02] U. A. Besserer. *Tritiumspeicherung in ZrCo*. Doktorarbeit, Philipps-Universität Marburg (2002).
- [Bog00] J. Boger et al.. *The Sudbury Neutrino Observatory*. Nucl. Instrum. Meth., **A449**, 172–207 (2000).
- [Boi03] B. Boizot, S. Agnello, B. Reynard, R. Boscaino and G. Petite. *Raman spectroscopy study of β -irradiated silica glass*. Journal of Non-Crystalline Solids, **325** 1-3, 22–28 (2003).
- [Bon99] J. Bonn, L. Bornschein, B. Degen, E. Otten and C. Weinheimer. *A high resolution electrostatic time-of-flight spectrometer with adiabatic magnetic collimation*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, **421** 1-2, 256 – 265 (1999).
- [Bor05] B. Bornschein et al.. *Successful Experimental Verification of the Tokamak Exhaust Processing Concept of ITER with the CAPER Facility*. Fusion Science and Technology, **48**, 11–16 (2005).
- [Bur00] A. K. Burnham, M. Runkel, S. G. Demos, M. R. Kozlowski and P. J. Wegner. *Effect of vacuum on the occurrence of UV-induced surface photoluminescence, transmission loss, and catastrophic surface damage*. In E. W. Taylor (Ed.), *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, vol. 4134 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, 243–252 (2000).
- [Bus09] G. Buscarino, S. Agnello, F. M. Gelardi and R. Boscaino. *Polyamorphic transformation induced by electron irradiation in α -SiO₂ glass*. Phys. Rev. B, **80**, 094202 (2009).
- [Bus10] G. Buscarino, S. Agnello, F. M. Gelardi and R. Boscaino. *The role of impurities in the irradiation induced densification of amorphous SiO₂*. Journal of Physics: Condensed Matter, **22** 25, 255403 (2010).
- [Cas77] R. Castellano, M. Notis and G. Simmons. *1.6 Composition and stress state of thin films deposited by ion beam sputtering*. Vacuum, **27** 3, 109 – 117 (1977). Proceedings of the International Symposium on Vacuum and Thin Film Technology.
- [Cow56] C. Cowan, F. Reines, F. Harrison, H. Kruse and A. McGuire. *Detection of the free neutrino: A Confirmation*. Science, **124**, 103–104 (1956).
- [Cuo89] J. Cuomo, S. Rossnagel and H. Kaufman. *Handbook of ion beam processing technology: principles, deposition, film modification, and synthesis*. Materials science and process technology series. Noyes Publications (1989).
- [Dab00] J. Dabrowski and H. Müssig. *Silicon surfaces and formation of interfaces: basic science in the industrial world*. World Scientific (2000).
- [Dav68] R. Davis, D. S. Harmer and K. C. Hoffman. *Search for Neutrinos from the Sun*. Phys. Rev. Lett., **20**, 1205–1209 (1968).

- [Dec04] M. Decreton, T. Shikama and E. Hodgson. *Performance of functional materials and components in a fusion reactor: The issue of radiation effects in ceramics and glass materials for diagnostics*. Journal of Nuclear Materials, **329-333** 1-3 PART A, 125–132 (2004).
- [Dem08] W. Demtröder. *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik*. Springer-lehrbuch. Springer (2008).
- [Dev94] R. A. B. Devine. *Macroscopic and microscopic effects of radiation in amorphous SiO₂*. Nuclear Inst.and Methods in Physics Research, B, **91** 1-4, 378–390 (1994).
- [Doe01] L. Doerr et al.. *Upgrade of the isotope separation system at the Tritium Laboratory Karlsruhe*. Fusion Science and Technology, **41**, 1155–59 (November 11-16, 2001). Proc.of the 6th Internat.Conf.on Tritium Science and Technology.
- [Doe08] P. Doe. *Status of the focal plane detector (FPD)* (2008). Presentation at the 15th KATRIN Collaboration Meeting, Karlsruhe.
- [Dup07] A. Duparré. In N. Bauer (Ed.), *Handbuch zur industriellen Bildverarbeitung: Qualitätssicherung in der Praxis*, 173–181. Fraunhofer-IRB-Verl. (2007).
- [Ebe10] M. Ebert and J. Ebert. *Magnetron-Sputtern im Mikrowellenplasma im Vergleich zu konventionellen Aufdampfverfahren*. Laser+Photonik, 30–34 (2010).
- [Eic06] F. Eichelhardt and O. Kazachenko. *CPS Specification: Basic Requirements and Input Data from TRAP* (2006).
- [Ell87] S. R. Elliott, A. A. Hahn and M. K. Moe. *Direct evidence for two-neutrino double-beta decay in ⁸²Se*. Phys. Rev. Lett., **59**, 2020–2023 (1987).
- [Emi87] G. Emiliani and S. Scaglione. *Properties of silicon and aluminum oxide thin films deposited by dual ion beam sputtering*. **5** 4, 1824–1827 (1987).
- [Eng92] U. Engelmann. *Ramanspektroskopische und massenspektrometrische Untersuchungen der Wasserstoffisotope und isotop substituierter Methane*. Kernforschungszentrum Karlsruhe (1992).
- [Fel10] H. Felix. *Herstellung und Charakterisierung von keramik und metallgestützten Membranschichten für die CO₂-Abtrennung in fossilen Kraftwerken*. Schriften des Forschungszentrums Jülich. Forschungszentrum Jülich (2010).
- [Fis10] S. Fischer. *Investigations of laser stability in the KATRIN Raman setup and first depolarisation measurements with tritium at TLK* (2010).
- [Fis11] S. Fischer et al.. *Monitoring of Tritium Purity During Long-Term Circulation in the KATRIN Test Experiment LOOPINO Using Laser Raman Spectroscopy*. Fusion Science and Technology, **60** 3, 925–930 (2011).
- [Fix99] D. J. Fixsen, C. L. Bennett and J. C. Mather. *COBE Far Infrared Absolute Spectrophotometer Observations of Galactic Lines*. The Astrophysical Journal, **526** 1, 207 (1999).
- [For73] A. Ford and J. Browne. *Rayleigh and Raman cross sections for the hydrogen molecule*. Atomic Data and Nuclear Data Tables, **5** 3, 305 – 313 (1973).

- [Fow77] J. Fowler, D. Chandra, T. Elleman, A. Payne and K. Verghese. *Tritium diffusion in Al_2O_3 and BeO* . Journal of The American Ceramic Society, **60**, 155–161 (1977).
- [Fuk99] Y. Fukuda et al.. *Measurement of the Solar Neutrino Energy Spectrum Using Neutrino-Electron Scattering*. Phys. Rev. Lett., **82**, 2430–2434 (1999).
- [Gal07] L. Gallais et al.. *Laser damage resistance of silica thin films deposited by Electron Beam Deposition, Ion Assisted Deposition, Reactive Low Voltage Ion Plating and Dual Ion Beam Sputtering*. Thin Solid Films, **515** 7-8, 3830 – 3836 (2007).
- [Geb07] A. Gebel. *Entwicklung und Aufbau eines Prototypmoduls für die Drahtelektrode des KATRIN Hauptspektrometer*. Diplomarbeit, Institut für Kernphysik Westfälische Wilhelms-Universität Münster (2007).
- [GEM11] Groß- und Einzelhandel Müller GmbH. *Stereo-Zoom-Mikroskop Expert-DN* (2011). Datenblatt zum Stereo-Zoom-Mikroskop Expert-DN.
- [Gor09] R. Gornea and The EXO Collaboration. *Double beta decay in liquid xenon*. Journal of Physics: Conference Series, **179** 1, 012004 (2009).
- [Gri91] D. L. Griscom. *Optical Properties and Structure of Defects in Silica Glass*. Journal of the Ceramic Society of Japan, **99** 1154, 923–942 (1991).
- [Gro09] S. Grohmann. *Stability analyses of the beam tube cooling system in the KATRIN source cryostat*. Cryogenics, **49** 8, 413–420 (2009).
- [Gro11] S. Grohmann, T. Bode, H. Schön and M. Süßer. *Precise temperature measurement at 30 K in the KATRIN source cryostat*. Cryogenics, **51** 8, 438 – 445 (2011).
- [Hö09] M. Hötzel. *Berechnung von KATRIN Messspektren unter Einbeziehung der Eigenschaften der fensterlosen gasförmigen Tritiumquelle*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2009).
- [Ham99] W. Hampel et al.. *GALLEX solar neutrino observations: results for GALLEX IV*. Physics Letters B, **447** 1-2, 127 – 133 (1999).
- [Hei03] B. Heine. *Werkstoffprüfung: Ermittlung von Werkstoffeigenschaften : mit 338 Bildern und zahlreichen Tabellen*. Fachbuchverlag (2003).
- [Her11] P. Herwig. *Kalibrierung des KATRIN Laser-Raman-Systems mit nicht-tritierten Wasserstoffisotopologen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2011).
- [Hil04] U. Hilleringmann. *Silizium-Halbleitertechnologie*. Teubner Studienbücher. Teubner B.G. GmbH (2004).
- [Him01] C. Himcinschi et al.. *Characterization of silica xerogel films by variable-angle spectroscopic ellipsometry and infrared spectroscopy*. Semiconductor Science and Technology, **16** 9, 806 (2001).
- [Hin60] R. L. Hines and R. Arndt. *Radiation Effects of Bombardment of Quartz and Vitreous Silica by 7.5-kev to 59-kev Positive Ions*. Phys. Rev., **119**, 623–633 (1960).

- [Hol95] G. Hollenberg, E. Simonen, G. Kalinin and A. Terlain. *Tritium/hydrogen barrier development*. Fusion Engineering and Design, **28**, 190 – 208 (1995). Proceedings of the Third International Symposium on Fusion Nuclear Technology.
- [Hor09] E. Hornbogen and B. Skrotzki. *Mikro- und Nanoskopie der Werkstoffe*. Springer (2009).
- [Hu91] S. M. Hu. *Stress-related problems in silicon technology*. Journal of Applied Physics, **70**, 53–80 (1991).
- [Iba07] A. Ibarra, A. Muñoz-Martín, P. Martín, A. Climent-Font and E. R. Hodgson. *Radiation effects on the deuterium diffusion in SiO₂*. Journal of Nuclear Materials, **367-370 B SPEC. ISS.**, 1003–1008 (2007).
- [IFM11] Institut Fertigungstechnik Materialforschung. *Augerelektronen-Spektroskopie*. Abgerufen am 12.09.2011. URL <http://www.ifam.fraunhofer.de/index.php?seite=/2804/fachinfo/infoblaetter/>
- [Inn08] P. Innocenzi, Y. Zub and V. Kessler. *Sol-gel methods for materials processing: focusing on materials for pollution control, water purification, and soil remediation*. NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security. Springer (2008).
- [Jer05] M. Jerman, Z. Qiao and D. Mergel. *Refractive index of thin films of SiO₂, ZrO₂, and HfO₂ as a function of the films' mass density*. Appl. Opt., **44** 15, 3006–3012 (2005).
- [KAT04] KATRIN Collaboration. *KATRIN Design Report 2004*. FZKA Scientific Report 7090 (2004).
- [KK97] H. Klapdor-Kleingrothaus and K. Zuber. *Teilchenastrophysik*. Teubner-Studienbücher: Physik. Teubner (1997).
- [KK06] H. Klapdor-Kleingrothaus and I. Krivosheina. *The evidence for the observation of $0\nu\beta\beta$ decay: The identification of $0\nu\beta\beta$ events from the full spectra*. Modern Physics Letters A, **21**, 1547 – 1566 (2006).
- [Koj97] I. Kojima, B. Li, T. Fujimoto, K. J. Kim and D. W. Moon. *The structural nature of SiO₂/Ta₂O₅ multilayers on Si(100) formed by ion-beam sputter deposition*. Journal of Physics D: Applied Physics, **30** 15, 2143 (1997).
- [Kom11] E. Komatsu et al.. *Seven-year Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) Observations: Cosmological Interpretation*. The Astrophysical Journal Supplement Series, **192** 2, 18 (2011).
- [Kru83] P. Kruit and F. H. Read. *Magnetic field paralleliser for 2π electron-spectrometer and electron-image magnifier*. Journal of Physics E: Scientific Instruments, **16** 4, 313 (1983).
- [KS04] J. E. Klemberg-Sapieha et al.. *Mechanical Characteristics of Optical Coatings Prepared by Various Techniques: A Comparative Study*. Appl. Opt., **43** 13, 2670–2679 (2004).

- [Kud11] S. Kudella. *Suche nach Gravitationswellen mittels Laserinterferometrie und Untersuchungen zur Laserstabilität im Rahmen des KATRIN-Raman-Systems*. Bachelorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2011).
- [Lan68] W. Lang. *Nomarski differential interference-contrast microscopy*. ZEISS Information, **70**, 114–120 (1968).
- [Lar11] D. Larson et al.. *Seven-year Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) Observations: Power Spectra and WMAP-derived Parameters*. The Astrophysical Journal Supplement Series, **192** 2, 16 (2011).
- [Leo09] M. Leon, P. Martín, A. Ibarra and E. R. Hodgson. *Gamma irradiation induced defects in different types of fused silica*. Journal of Nuclear Materials, **386-388** C, 1034–1037 (2009).
- [Les06] J. Lesgourgues and S. Pastor. *Massive neutrinos and cosmology*. Physics Reports, **429** 6, 307 – 379 (2006).
- [Lew07] R. Lewis and University of Wales Swansea. *Development of a Raman system for in-line monitoring of Tritium at the Karlsruhe Tritium Neutrino (KATRIN) experiment*. University of Wales Swansea (2007).
- [Lim03] M. Limon et al. *Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP): Explanatory Supplement* (2003). URL http://lambda.gsfc.nasa.gov/data/map/doc/MAP_supplement.pdf
- [LOA08] *Angebot der Firma LASEROPTIK* (2008).
- [Lob85] V. Lobashev and P. Spivak. *A method for measuring the electron antineutrino rest mass*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, **240** 2, 305 – 310 (1985).
- [LOK11] *Telefongespräche und E-Mailverkehr mit Martin Ebert, Firma LASEROPTIK* (2010/2011).
- [Lon02] D. Long. *The Raman effect: a unified treatment of the theory of Raman scattering by molecules*. Wiley (2002).
- [Lon03] J. B. Lonzaga, S. M. Avanesyan, S. C. Langford and J. T. Dickinson. *Color center formation in soda-lime glass with femtosecond laser pulses*. **94** 7, 4332–4340 (2003).
- [Lor02] T. J. Loredo and D. Q. Lamb. *Bayesian analysis of neutrinos observed from supernova SN 1987A*. Phys. Rev. D, **65**, 063002 (2002).
- [Low11] *Internetpräsenz der Firma LASEROPTIK* (2011). URL <http://www.laseroptik.de/>
- [Luc00] U.-M. Lucas, L.L. *Comprehensive Review and Critical Evaluation of the Half-Life of Tritium*. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, **105** 4, 541–549 (2000).
- [Mar86] P. J. Martin. *Ion-based methods for optical thin film deposition*. Journal of Materials Science, **21**, 1–25 (1986).

- [Mar97] C. D. Marshall, J. A. Speth and S. A. Payne. *Induced optical absorption in gamma, neutron and ultraviolet irradiated fused quartz and silica*. Journal of Non-Crystalline Solids, **212** 1, 59 – 73 (1997).
- [Mat10] D. Mattox. *Handbook of Physical Vapor Deposition (PVD) Processing*. Elsevier Science Ltd (2010).
- [Mir11] S. Mirz. *Aufbau und Charakterisierung eines verbesserten Laser-Raman-Systems für das KATRIN-Experiment*. Bachelorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2011).
- [Moh08] P. J. Mohr, B. N. Taylor and D. B. Newell. *CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2006*. Rev. Mod. Phys., **80**, 633–730 (2008).
- [Mor77] G. Morris. *Methane formation in tritium gas exposed to stainless steel*. Lawrence Livermore Laboratory Report (1977). UCRL-52262.
- [Mos08] E. I. Moses. *The National Ignition Facility (NIF): A path to fusion energy*. Energy Conversion and Management, **49** 7, 1795 – 1802 (2008).
- [Nak10a] K. Nakamura and Particle Data Group. *2010 Review of Particle Physics*. J. Phys. G, **37** (2010).
- [Nak10b] K. Nakamura and Particle Data Group. *2011 Review of Particle Physics and 2011 partial update for the 2012 edition*. J. Phys. G, **37** (2010).
- [Nat04] U. Natura, O. Sohr, R. Martin, M. Kahlke and G. Fasold. *Mechanisms of radiation-induced defect generation in fused silica*. In *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, vol. 5273 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, 155–164 (2004).
- [Nat09] J. Natividad. *Herstellung von Hochtemperatur-Brennstoffzellen über physikalische Gasphasenabscheidung*. Forschungszentrum Jülich, Zentralbibliothek (2009).
- [Nor74] C. B. Norris and E. P. Eernisse. *Ionization dilatation effects in fused silica from 2 to 18 keV electron irradiation*. Journal of Applied Physics, **45** 9, 3876–3882 (1974).
- [Oet11] H. Oettel and H. Schumann. *Metallografie. Mit einer Einführung in die Kera-mografie (A15, Gb)*. Wiley VCH Verlag GmbH (2011).
- [Ott08] E. W. Otten and C. Weinheimer. *Neutrino mass limit from tritium β decay*. Reports on Progress in Physics, **71** 8, 086201 (2008).
- [Pag10] G. Pagliaroli, F. Rossi-Torres and F. Vissani. *Neutrino mass bound in the standard scenario for supernova electronic antineutrino emission*. Astroparticle Physics, **33** 5-6, 287 – 291 (2010).
- [Pas08] R. Paschotta. *Encyclopedia of laser physics and technology: A - M*. Bd. 1. Wiley-VCH (2008).

- [Pau30] W. Pauli. *Offener Brief an die Gruppe der Radioaktiven bei der Gauvereins-Tagung zu Tübingen* (4. Dez. 1930). Reproduced in: R. Kronig and V. Weisskopf (Eds.), Wolfgang Pauli, Collected Scientific Papers, Vol. 2, Interscience, New York (1964) 1316 - 1317.
- [Pau06] Y. Pauleau and European Materials Research Society. *Materials surface processing by directed energy techniques*. European Materials Research Society Series. Elsevier (2006).
- [Pil61] W. L. Pillinger, J. J. Hentges and J. A. Blair. *Tritium Decay Energy*. Phys. Rev., **121**, 232–233 (1961).
- [Pit86] J. R. Pitts and A. W. Czanderna. *Reduction of silica surfaces with particle beams*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B, **13** 1-3, 245–249 (1986).
- [Poo06] J. Poortmans and V. Arkhipov. *Thin film solar cells: fabrication, characterization and applications*. Wiley series in materials for electronic and optoelectronic applications. Wiley (2006).
- [Pov09] B. Povh, K. Rith, C. Scholz and F. Zetsche. *Teilchen und Kerne: Eine Einführung in die physikalischen Konzepte*. Springer-Lehrbuch. Springer (2009).
- [Pri10] F. Priester. *Systematische Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten des KATRIN Tritiumloop*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2010).
- [Pul79] H. K. Pulker. *Characterization of optical thin films*. Appl. Opt., **18** 12, 1969–1977 (1979).
- [Ram29] C. Raman. *The Raman effect. Investigation of molecular structure by light scattering*. Transactions of the Faraday Society, **25**, 781–792 (1929).
- [Ran96] J. Rancourt. *Optical thin films: user handbook*. Press Monograph Series. SPIE Optical Engineering Press (1996).
- [Rei04] D. W. Reicher and C. C. Sobczak. *Relation of cathode voltage to stress for DC magnetron sputtered SiO₂/Nb₂O₅ films*. In *Optical Interference Coatings*, ME3. Optical Society of America (2004).
- [Rei09] J. Reich. *Magnetfeldmessungen und Designarbeiten für das EMCS Luftspulensystem am KATRIN Hauptspektrometer*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2009).
- [Ric01] F. Richter, H. Kupfer, P. Schlott, T. Gessner and C. Kaufmann. *Optical properties and mechanical stress in SiO₂/Nb₂O₅ multilayers*. Thin Solid Films, **389** 1-2, 278 – 283 (2001).
- [Ris09] D. Ristau, M. Jupé and K. Starke. *Laser damage thresholds of optical coatings*. Thin Solid Films, **518** 5, 1607 – 1613 (2009). Proceedings of the 36th International Conference on Metallurgical Coatings and Thin Films.
- [RL03] H. V. R. Lässer, S. Grünhagen. *Gas chromatography at the Tritium Laboratory Karlsruhe*. Univ.-Verl. Karlsruhe (2003). FZKA 6894.

- [Roi10a] ROITHNER Lasertechnik. *Lasermodule CW532-005F* (11.08.2010). Datenblatt, abgerufen am 27.09.2011. URL <http://www.roithner-laser.com>
- [Roi10b] ROITHNER Lasertechnik. *PIL-VI-1064 LASERMODULES* (11.08.2010). Datenblatt, abgerufen am 27.09.2011. URL <http://www.roithner-laser.com>
- [Roi10c] ROITHNER Lasertechnik. *RLY-01:0.6-2mW* (11.08.2010). Datenblatt, abgerufen am 27.09.2011. URL <http://www.roithner-laser.com>
- [SA00] F. P. Saenz A, Jonsell S. *Improved molecular final-state distribution of HeT^+ for the beta-decay process of T_2* . Phys Rev Lett., **84**, 242–245 (2000).
- [Sch97] N. Schmitz. *NeutrinoPhysik*. Teubner Studienbücher: Physik. Teubner (1997).
- [Sch09] M. Schlösser. *First Laser Raman measurements with tritium for KATRIN and studies of systematic effects of the LARA-setup*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2009).
- [Sch11] M. Schlösser et al.. *Design Implications for Laser Raman Measurement Systems for Tritium Sample-Analysis, Accountancy or Process-Control Applications*. Fusion Science and Technology, **60** 3, 976–981 (2011).
- [Sei11] H. Seitz. *Kalibrierung des KATRIN Laser-Raman Systems mit katalytisch hergestellten, inaktiven Wasserstoffisotopologmischungen*. Bachelorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2011).
- [Sep08] S. Sepeur. *Nanotechnologie*. Vincentz Network (2008).
- [SFK11] *persönliche Kommunikation mit Sebastian Fischer, KIT* (2011).
- [Shu07] R. Shukla. *Practical Physics*. New Age International (2007).
- [Sib88] J. Sibilia. *A Guide to Materials Characterization and Chemical Analysis*. John Wiley & Sons (1988).
- [SIC11] SICO. *Quarzglas von SICO*. Internetpräsenz der Firma SICO, abgerufen 2011. URL <http://www.sico.at/en/quartz.html>
- [Sis04] M. Sisti et al.. *New limits from the Milano neutrino mass experiment with thermal microcalorimeters*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, **520** 1-3, 125 – 131 (2004). Proceedings of the 10th International Workshop on Low Temperature Detectors.
- [Ste93] T. Stephan, B. van Zyl and R. Amme. *Degradation of vacuum-exposed SiO_2 laser windows*. In *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, vol. 1848 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, 106–110 (1993).
- [Stu10a] M. Sturm. *Aufbau und Test des Inner-Loop-Systems der Tritiumquelle von KATRIN*. Doktorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2010).
- [Stu10b] M. Sturm et al.. *Monitoring of all hydrogen isotopologues at tritium laboratory Karlsruhe using Raman spectroscopy*. Laser Physics, **20**, 493–507 (2010).

- [SZ08] X. Shi-Zhen et al.. *Effects of Vacuum on Fused Silica UV Damage*. Chinese Physics Letters, **25** 1, 223 (2008).
- [Tec09] K. Technologie. *Transportordnung für den internen Transport radioaktiver Stoffe auf dem Gelände des Forschungszentrums Karlsruhe* (2009).
- [THO11] THORLABS. *Kinematic Bases: Magnetic Retention*. Abgerufen 2011. URL http://thorlabs.com/NewGroupPage9.cfm?ObjectGroup_ID=1546
- [Tho86] I. M. Thomas. *High laser damage threshold porous silica antireflective coating*. Appl. Opt., **25** 9, 1481–1483 (1986).
- [Til97] M. Tilsch. *Eigenschaften ionenstrahlgesputteter optischer SiO₂- und TiO₂-Schichten bei unterschiedlichen Wachstumsbedingungen und Veränderungen bei thermischer Nachbehandlung*. Utz, Wiss. (1997).
- [Tra07] F. Traeger. *Springer handbook of lasers and optics*. Springer (2007).
- [Uda92a] T. Uda, K. Okuno and Y. Naruse. *Hydrogen isotope exchange reaction rate in tritium and methane mixed gas*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **159**, 145–154 (1992).
- [Uda92b] T. Uda, K. Okuno and Y. Naruse. *Hydrogen isotope exchange reaction rate in tritium, hydrogen and deuterium mixed gases*. Radiochim. Acta, **56**, 209 (1992).
- [UDE11] Institut für Materialwissenschaften der Universität Duisburg-Essen. *Quecksilberdruckporosimetrie*. Abgerufen am 12.09.2011. URL http://www.uni-due.de/materials/HG_Druck.shtml
- [UKK97] *Korrespondenz zwischen Dr. David Taylor und UKAEA (UK)* (1997).
- [Ur11] C. Ur and The GERDA Collaboration. *The GERDA experiment: status and perspectives*. Nuclear Physics B - Proceedings Supplements, **217** 1, 38 – 40 (2011).
- [Wan09] N. Wandkowsky. *Design and Background Simulations for the KATRIN Main Spectrometer and Air Coil System*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (2009).
- [Wei99] C. Weinheimer et al.. *High precision measurement of the tritium β spectrum near its endpoint and upper limit on the neutrino mass*. Physics Letters B, **460** 1-2, 219 – 226 (1999).
- [Wei03] C. Weinheimer. *Laboratory Limits on Neutrino Masses*. In *Neutrino Mass*, vol. 190 of *Springer Tracts in Modern Physics*, 138–140. Springer Berlin / Heidelberg (2003).
- [Wei09] A. Weigert, H. Wendker and L. Wisotzki. *Astronomie und Astrophysik: Ein Grundkurs*. Wiley VCH Verlag GmbH (2009).
- [Wel10] S. Welte, D. Demange and R. Wagner. *Mechanical design and first experimental results of an upgraded technical PERMCAT reactor for tritium recovery in the fuel cycle of a fusion machine*. Fusion Engineering and Design, **85** 7-9, 1320–1325 (2010).

Danksagung

Zu guter Letzt möchte ich noch denjenigen Danken, ohne die diese Arbeit niemals möglich gewesen wäre.

Prof. Dr. Guido Drexlin danke ich, dass er mir die Arbeit an einer so interessanten Fragestellung ermöglicht hat.

Prof. Dr. Helmut H. Telle danke ich für die Unterstützung bei der Konzipierung des TR-Aufbaus und der Auswahl des Mikroskops sowie für die Übernahme der Zweitkorrektur.

Von ganzem Herzen danken möchte ich auch Sebastian Fischer, der mich auch in schwierigen Phasen stets mit Rat und Tat unterstützt hat. Weiterhin gilt ein großer Dank Dr. Beate Bornschein, die immer ein offenes Ohr für meine Fragen hatte und mir wertvolle Anregungen gegeben hat.

Martin Ebert und LASEROPTIK sowie Jim Fair und der NIF möchte ich für das Zurverfügungstellen der Proben und die geduldige Beantwortung all meiner Fragen danken.

Der Laser-Raman-Gruppe (Dr. Beate Bornschein, Sebastian Fischer, Timothy James, Dr. Richard Lewis, Dr. Michael Sturm, Magnus Schlösser, Philipp Herwig und Prof. Dr. Helmut Telle) danke ich für eine spannende und lehrreiche Zeit, die ich als ein Teil von ihr verbringen durfte.

Für die tatkräftige Unterstützung bei der Realisierung des TR-Aufbaus gilt mein Dank Dieter Adami, Frank Kramer, Martin Babutzka, sowie Florian Priester und Siegfried Horn. Für die Hilfe bei der Verkabelung des Experiments möchte ich Helmut Dietrich, Marco Röllig und Frank Rehlinghaus danken.

Bernhard Heinle verdanke ich mein Wissen über Wischtests und die sichere Handhabung von Tritium. Nico Metz danke ich zudem für die tolle Unterstützung in der aufregenden Zeit nach der Öffnung des ersten Probenbehälters.

Beim CAPER-Team (David Demage, Eleonore Fanghänel, Karl-Heinz Simon und Thanh Long Le) möchte ich mich für den Einbau der Versuchseinrichtung sowie für die vielen anderen für unser Experiment ausgeführten Arbeiten bedanken. Für die Hilfe bei zum Teil nicht enden wollenden Bestellungen danke ich Sylvia Krieger und Eva Porter. Außerdem möchte ich mich bei allen Mitarbeitern des TLK bedanken, die mich vom ersten Tag an so freundlich aufgenommen haben.

Bei meiner Familie möchte ich mich für ihre Unterstützung, sowohl in Form von Zuspruch als auch durch Korrekturen, bedanken. Besonders meinem Bruder Sven möchte ich dafür danken, dass er jederzeit zum Korrekturlesen meiner Arbeit zur Verfügung stand.

Mein letzter Dank gebührt jedoch Pierre, der sich während der gesamten Zeit meiner Diplomarbeit mit mir über Erfolge gefreut, mich in schweren Zeiten aufgebaut und trotz launiger Phasen gerade während des Schreibens immer unterstützt hat.