

INAUGURAL – DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde
der
Naturwissenschaftlich – Mathematischen
Gesamtfakultät
der Ruprecht-Karls-Universität
Heidelberg

Vorgelegt von
MSc. Jeschua Geist
aus Schwäbisch Hall

Tag der mündlichen Prüfung: 15. Januar 2020

Bestimmung der Isomerenergie von ^{229}Th
mit dem hochauflösenden
Mikrokalorimeter-Array *maXs30*

Gutachter: Prof. Dr. Christian Enss
Prof. Dr. Maurits Haverkort

Der Isomerzustand des Thoriumisotops ^{229}Th ist der niedrigste bekannte angeregte Kernzustand und ist daher ein vielversprechender Kandidat für Präzisionstests der zeitlichen Konstanz von Naturkonstanten und für eine neue Generation von Zeitstandards. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Unsicherheit des experimentellen Werts der Isomerenergie weiter verbessert, um den zu durchsuchenden Wellenlängenbereich bei der lasergetriebenen Anregung aus dem Grundzustand zu reduzieren und die wegen der geringen Linienbreite des Zustands langwierige Suche zu beschleunigen. Hierfür wurde ein hochauflösendes Mikrokalorimeter-Array vom Typ *maXs30* basierend auf metallischen magnetischen Kalorimetern (MMC) entworfen, im Reinraum hergestellt und zur hochaufgelösten Messung des Gammaspektrums von ^{229}Th eingesetzt. Ein MMC besteht aus einem Teilchenabsorber und einem paramagnetischen Temperatursensor. Die Temperaturänderung durch die Absorption eines Photons im Absorber wird in eine Magnetisierungsänderung des Paramagneten umgewandelt und über ein SQUID-Magnetometer ausgelesen. Die Detektorkanäle des hier diskutierten Detektors besitzen eine exzellente Linearität, sowie Energieauflösungen von $\Delta E = 7,9\text{ eV}$ im Limes kleiner Energien und $\Delta E = 9,8\text{ eV}$ bei 60 keV , was dem derzeit weltweit besten Auflösungsvermögen von über 6000 entspricht. Das aufgenommene Gammaspektrum entsteht aus ^{229}Th im angeregten Zustand, welches durch α -Zerfall einer chemisch gereinigten ^{233}U -Quelle erzeugt wird. Aus dem Gesamtspektrum konnte die Isomerenergie konsistent auf drei Wegen bestimmt werden und lieferte ein Ergebnis von $E_{\text{iso}} = (8,09 \pm 0,13 \text{ (stat)}_{-0,14}^{+0,05} \text{ (syst)})\text{ eV}$.

Determination of the isomeric energy of ^{229}Th
with the high-resolution microcalorimeter array *maXs30*

The thorium isotope ^{229}Th has the isomeric state with the lowest nuclear excitation known and is thereby a good candidate for investigating the stability of universal constants and a new generation of time-standards. In the framework of this thesis the uncertainty of the experimental value of the isomeric energy has been further improved to reduce the wavelength range that needs to be scanned in a laser-driven excitation and to speed up the lengthy search due to the small linewidth. A high-resolution microcalorimeter-array of *maXs30*-type based on metallic magnetic calorimeters (MMC) has been designed, fabricated in the cleanroom and used to measure the gamma-spectrum of ^{229}Th . An MMC consists of a particle absorber and a paramagnetic sensor. A change of temperature caused by an absorbed photon is converted to a change of magnetization by the paramagnetic material and read out by a SQUID. This detector shows excellent linearity and energy resolutions of 7.9 eV (FWHM) at small energies and 9.8 eV at 60 keV, corresponding to a resolving power above 6000. The gamma-spectrum of excited ^{229}Th is produced by the α -decay of a chemically purified ^{233}U -source. On three different ways the isomeric energy could be extracted consistently from the spectrum resulting in $E_{\text{iso}} = (8.09 \pm 0.13 \text{ (stat)}_{-0.14}^{+0.05} \text{ (syst)}) \text{ eV}$.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Motivation	5
2.1	Der isomere Zustand von ^{229}Th	6
2.2	Direkter Nachweis des isomeren Zustands $^{229\text{m}}\text{Th}$	7
2.3	Indirekter Nachweis von $^{229\text{m}}\text{Th}$ mit Mikrokalorimetern	9
3	Grundlagen von metallischen magnetischen Kalorimetern	13
3.1	Teilchenabsorber	14
3.2	Temperatursensor	15
3.2.1	Paramagnetisches Sensormaterial	16
3.2.2	Wärmekapazität und Magnetisierung des Sensors	17
3.2.3	Signalhöhe	19
3.2.4	Silber im Vergleich zu Gold als Wirtsmetall	21
3.3	Detektorgeometrie	21
3.4	Signalauslesung	23
3.5	Signalform	25
3.6	Energieauflösung	27
4	Experimentelle Grundlagen	33
4.1	Der <i>maXs30</i> -Detektor	33
4.1.1	Detektoraufbau	33

4.1.2	Anpassungen im Design des Detektors	36
4.2	Präparation des felderzeugenden Dauerstroms	38
4.3	Signalaufnahme mittels SQUID-Magnetometern	39
4.3.1	Prinzipien eines dc-SQUIDs	39
4.3.2	Zweistufiger Aufbau	41
4.3.3	Beitrag zum Rauschen	43
4.4	Simulation des erwarteten Detektorsignals	43
4.4.1	Optimierungsmöglichkeiten	46
4.5	Versuchsaufbau	48
4.6	Strahlungsquellen	50
4.6.1	^{233}U -Quelle	50
4.6.2	^{241}Am -Quelle	51
4.7	Optimierung der Zählrate	52
4.8	Signalaufnahme	53
4.8.1	Nicht-Linearität der Analog-Digital-Wandler	54
5	Experimentelle Ergebnisse	59
5.1	Eigenschaften des <i>maXs30</i> -Detektors	59
5.1.1	Bestimmung der Detektor-Induktivität	59
5.1.2	Bestimmung der Er^{3+} -Konzentration des Temperatursensors	61
5.1.3	Pulsform	62
5.1.4	Sensor-Magnetisierung	65
5.1.5	Rauschen und Energieauflösung	65
5.2	Signalverarbeitung	68
5.2.1	Zeitschnitte	68

5.2.2	Temperaturkorrektur	70
5.2.3	Aussortieren beeinträchtigter Messphasen	71
5.2.4	Aufaddieren der Einzelspektren	74
5.2.5	Glättungsfaltung	76
5.2.6	Energiekalibration	78
5.3	Gesamtspektrum	84
5.3.1	Mutter- und Tochterzerfälle in der Quelle	86
5.4	Die Energie des isomeren Zustands von ^{229}Th	88
5.4.1	Bestimmung von E_{iso} über die Differenzen-Methode	88
5.4.2	Analyse des Linien-Dubletts bei 29,18 keV	93
5.4.3	Bestimmung der absoluten Energie der Th- $\gamma_{2,1}$ -Linie	95
5.4.4	Bewertung und Vergleich mit bisherigen Ergebnissen	96
6	Zusammenfassung	99
	Literaturverzeichnis	101

1. Einleitung

Die Zeitmessung war von Beginn der Menschheit an ein Spiegel der Handwerkskunst und des wissenschaftlichen Fortschritts. Beginnend mit frühen Sonnen- und Sanduhren, die eine Zeitmessung auf Stundenniveau erlaubten, konnten die ersten mechanischen Uhren mit einer Genauigkeit von einigen Minuten pro Tag bis hin zu Quarz-Uhren auf etwa eine Sekunde pro Jahr verbessert werden. Eine Revolution in der Zeitmessung brachte die Erfindung der Atomuhr im Jahre 1949. Dabei wird die Schwingungsperiode eines elektromagnetischen Wechselfeldes, das Übergänge zwischen zwei festgelegten langlebigen Zuständen der Atome eines chemischen Elements anregt, in eine hochpräzise Zeitinformation umgewandelt. Bei der klassischen Atomuhr werden Cäsium-Atome durch Mikrowellenstrahlung angeregt und eine relative Genauigkeit von 10^{-15} erreicht.

Durch die Anregung mit sichtbarem Licht, welches eine 50 000-mal höhere Frequenz aufweist als die für den Übergang im Cäsium verwendeten Mikrowellen, konnte die Genauigkeit durch die Entwicklung optischer Atomuhren deutlich vorangetrieben werden. In den vergangenen Jahren haben sich diese stetig weiterentwickelt, sodass die exaktesten heute eine relative Genauigkeit von bis zu 10^{-18} erreichen, was bedeutet, dass sie in 10 Milliarden Jahren lediglich um bis zu einer Sekunde falsch gehen. Hilfreich ist eine derart hohe Genauigkeit unter anderem bei der Synchronisierung weltweiter Computernetzwerke, die zum Beispiel mit Satellitennavigation oder elektronischen Finanztransaktionen in Verbindung stehen. Darüber hinaus limitiert die Zeitmessung einige physikalische Experimente zum Beispiel auf der Suche nach Gravitationswellen [Kol16] oder der zeitlichen Varianz physikalischer Grundkonstanten [GR10]. Zudem ermöglicht eine derart präzise Uhr in der Geodäsie die Bestimmung der Position im Gravitationsfeld der Erde auf dem Niveau weniger Zentimeter [McG18, Meh18].

Die Linienbreite atomarer Übergänge limitiert die weitere Entwicklung der Atomuhren. Eine vielversprechende Möglichkeit dies zu umgehen besteht darin, ein deutlich schmaleres Atomkernniveau anzuregen. Aus der Mössbauer-Spektroskopie an Kernübergängen in Festkörpern bei kryogenen Temperaturen sind dabei Q-Faktoren von bis zu 10^{15} bekannt [Pot88]. Das Isotop ^{229}Th besitzt den ersten angeregten Kernzustand (Isomierzustand) mit der niedrigsten bisher bekannten Anregungsenergie und ist dadurch das einzige Isomer, das im für UV-Laser erreichbaren Bereich liegt. Mit einer Kernuhr basierend auf der Anregung dieses isomeren Zustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ wird eine Genauigkeit von 10^{-19} prognostiziert [Kaz12]. Dabei besteht ein weiterer Vorteil im Vergleich zu Atomuhren in einer geringeren Frequenzverschiebung auf-

grund externer elektrischer und magnetischer Felder, da der Atomkern deutlich besser gegenüber diesen externen Störungen abgeschirmt ist als die Hülle eines Atoms [Pei15]. Neueste optische Uhren arbeiten dabei oft mit nur einzelnen Ionen in einer Ionenfalle [Cho19] bis zu einigen tausend Ionen, die durch ein optisches Gitter im Ultrahochvakuum auf Position gehalten werden [Tak16]. Dies garantiert höchste Materialreinheit durch vorheriges Aussortieren von Fremdatomen. Werden die anzuregenden Atome hingegen in einem Festkörper bereitgestellt, so führt deren große Anzahl ($N \gg 10^{10}$) zu einem großen Signal-zu-Rauschen-Verhältnis, jedoch treten oftmals Gitterdefekte, Verunreinigungen sowie Fluoreszenz des Wirtskristalls auf.

Auf dem Weg zum Bau eines Lasers, der direkt in den $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Zustand anregt, ist es aufgrund dessen schmaler natürlicher Linienbreite und des stark begrenzten Durchstimmbereichs eines UV-Lasers nötig, diese Anregungsenergie sehr genau zu kennen. Diese zu vermessen und dadurch den Weg für den Bau eines entsprechenden Lasers zu ebnen, ist Gegenstand vorliegender Arbeit.

In Kapitel 2 werden die Besonderheiten des Isomerezustands von ^{229}Th insbesondere hinsichtlich einer Eignung zur Verwendung in einer Kernuhr basierend auf diesem Übergang weiter ausgeführt.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden metallische magnetische Kalorimeter für die Messung eingesetzt, da sie eine exzellente Energieauflösung über einen großen Energiebereich gewährleisten. In Kapitel 3 werden die für das Verständnis der Funktionsweise eines metallischen magnetischen Kalorimeters benötigten theoretischen Grundlagen dargestellt. Angefangen mit dem grundsätzlichen Detektionsprinzip werden im weiteren Verlauf des Kapitels die einzelnen Detektorkomponenten, Teilchenabsorber und Temperatursensor, sowie die gradiometrisch verschalteten Detektionsspulen vorgestellt. Unter Zuhilfenahme eines vereinfachten thermodynamischen Modells werden der Signalverlauf, unterschiedliche Beiträge zum Detektorrauschen sowie das durch thermodynamische Fluktuationen bestimmte fundamentale Limit der Energieauflösung des Detektors diskutiert.

Speziell für die hier diskutierte Messung wurde im Rahmen dieser Arbeit das in [Hen17] entwickelte Detektor-Array *maXs30*, welches aus 8x8 metallischen magnetischen Kalorimeter-Pixeln aufgebaut ist, angepasst und im institutseigenen Reinraum hergestellt. In den experimentellen Grundlagen in Kapitel 4 werden zunächst dessen Aufbau und die durchgeführten Anpassungen diskutiert. Mit dem sich anschließenden Abschnitt über die Signalaufnahme mittels SQUID-Magnetometern kann dann das erwartete Detektorsignal berechnet werden. Der Versuchsaufbau im Kryostaten und die verwendeten radioaktiven Quellen werden im Anschluss vorgestellt. Mit der Berechnung und Optimierung der Zählraten im hier relevanten Energiebereich und der Signalaufnahme bei Raumtemperatur schließt dieses Kapitel. Auf die Reinheit der Quelle musste hierbei besonders geachtet werden, da bereits in vorangegangenen

nen Arbeiten in der Arbeitsgruppe eine ^{233}U -Quelle mit metallischen magnetischen Kalorimetern untersucht wurde. Trotz einer hohen Statistik, der Verwendung einer Röntgenlinse als Energie-Bandpass für Photonen und einer hinreichend guten Energieauflösung konnte in [Sch16] aufgrund eines massiven Untergrunds durch β -Zerfälle kein Wert für die Energie des Isomerzustands von ^{229}Th ermittelt werden. In [Pon17] wurde bereits mit der auch in dieser Arbeit verwendeten Quelle gemessen. Der Untergrund war zu dieser Zeit sehr gering, da die Quelle kurz zuvor hergestellt wurde. Aufgrund einer Energieauflösung des damaligen Aufbaus von $\Delta E_{\text{FWHM}} \approx 200$ eV war es jedoch auch hier noch nicht möglich einen verlässlichen Wert für die Isomerenergie E_{iso} zu erhalten. In [Bus18] wurde mit demselben Detektor wie in dieser Arbeit gemessen. Noch ohne die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Optimierungen am Versuchsaufbau wurde zu der Zeit eine Energieauflösung von $\Delta E_{\text{FWHM}} \approx 20$ eV erreicht und letztendlich ein Wert von $E_{\text{iso}} = (8,5 \pm 3,6)$ eV [Bus18] ermittelt.

In Kapitel 5 werden die Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt, wobei im ersten Teil zunächst detektorspezifische Messergebnisse wie die Bestimmung der Detektor-Induktivität, der Er^{3+} -Konzentration des Temperatursensors, der Signalverlauf und die Sensor-Magnetisierung diskutiert werden. Jeweils mit einem Vergleich mit den Erwartungen sind die Ergebnisse der Messungen des Detektor-Rauschens und der dadurch erreichten Energieauflösung des Detektors bei unterschiedlichen Energien in einem gemeinsamen Abschnitt zusammengefasst. Im zweiten Teil werden zur Aufbereitung der Detektorsignale durchgeführte Schritte bis hin zur Energiekalibration aufgenommenen Spektren erläutert. Das daraus entstehende Gesamtspektrum wird im dritten Teil des Kapitels vorgestellt. Die Ergebnisse zur Bestimmung der Energie des Isomerzustands von ^{229}Th werden im vierten Teil des Ergebniskapitels diskutiert. Dabei gibt es drei Methoden die Isomerenergie aus dem gemessenen Energiespektrum der ^{233}U -Quelle zu extrahieren.

2. Motivation

Unter allen der etwa 176 000 bekannten Kernanregungszustände ist neben $^{233\text{m}}\text{U}$ mit $E_{\text{iso}} = 76\text{ eV}$ das hier untersuchte Isotop $^{229\text{m}}\text{Th}$ mit einer erwarteten Isomerenergie unterhalb von 10 eV ein Exot unter den Kernanregungszuständen. In Abbildung 2.1 wird gezeigt, dass diese typischerweise zwischen einigen keV bis hin zu einigen MeV liegen. Zusätzlich sind der zugängliche Bereich für den Betrieb optischer Atomuhren

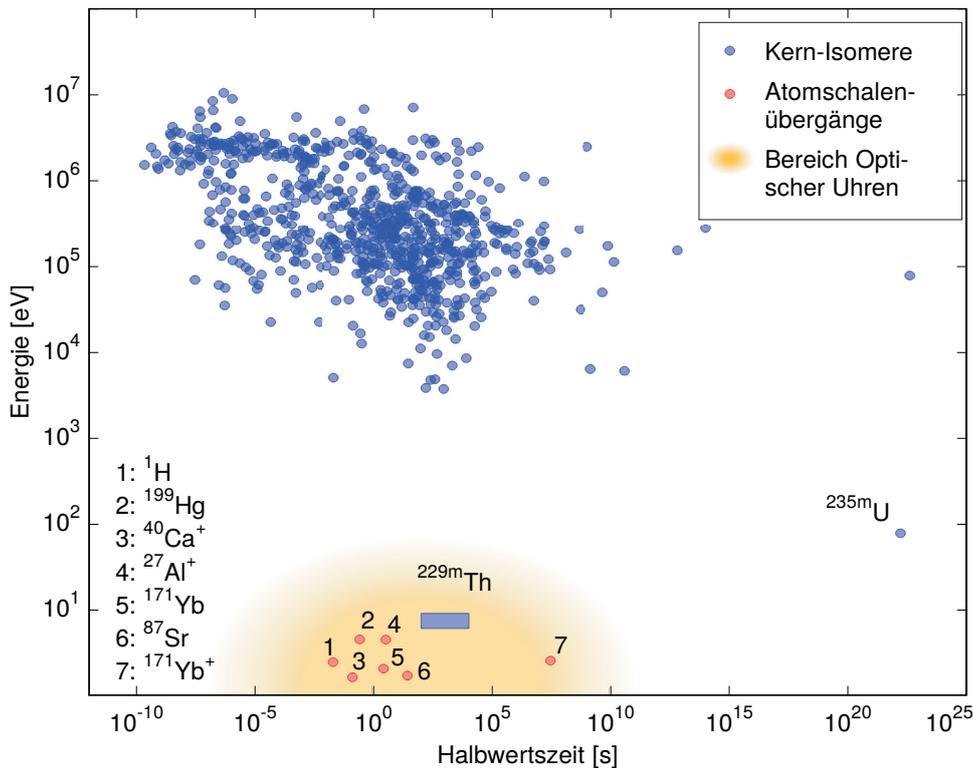


Abbildung 2.1: Isomerenergien unterschiedlicher Isotope. Blaue Kreise: bekannte isomere Kernzustände, dunkelblaue Bereiche durch Überlappen mehrerer Kreise [Tul11]. Rote Kreise: ausgewählte atomare Übergänge die Verwendung in Atomuhren finden. Orangefarbener Bereich: für optische Uhren momentan erreichbarer Parameterraum. Blaue Box: erwarteter Bereich für die Energie und Halbwertszeit von $^{229\text{m}}\text{Th}$. Abbildung nach [vdW16b].

in Orange, der neben der Energie durch die Halbwertszeit limitiert wird, und einige momentan für solche Uhren verwendete Isotope eingezeichnet. In einem isolierten Atomkern zerfällt der isomere Zustand, im Folgenden als $^{229\text{m}}\text{Th}$ bezeichnet, in den Grundzustand mit einer erwarteten Halbwertszeit von einigen 1000 Sekunden [Dyk98]. Der daraus folgende erwartete Bereich für $^{229\text{m}}\text{Th}$ ist durch eine blaue Box gekennzeichnet. Die Möglichkeit diesen Zustand mit einem Laser direkt anzuregen,

was sonst nur mit atomaren Übergängen möglich ist, öffnet die Tür zu einer Vereinigung der Kernphysik mit Methoden der Atomphysik mit immensen Aussichten auf ein tieferes Verständnis beider Disziplinen. Im Folgenden werden dazu die Einzigartigkeit von ^{229}Th , ein historischer Überblick bisheriger Erkenntnisse und die daraus folgende Bedeutung für die Motivation vorliegender Arbeit herausgestellt. Dabei ist die Realisierung einer Kernuhr basierend auf der laserspektroskopischen Anregung in den isomeren Zustand von ^{229}Th eine besonders hervorstechende Anwendung zur Motivation dieser Arbeit. In den sich anschließenden Abschnitten werden Experimente zum Nachweis von $^{229\text{m}}\text{Th}$ per interner Konversion, im Kristall, in Ionen-Fallen, durch Anregung am Synchrotron sowie die im Rahmen dieser Arbeit verwendete Methode des Nachweises vorgestellt.

2.1 Der isomere Zustand von ^{229}Th

In der natürlichen Zerfallsreihe von ^{237}Np entsteht ^{229}Th durch α -Zerfall von ^{233}U . In Abbildung 2.2 sind die niederenergetischen Kern-Energieniveaus und einige Übergänge des Isotops ^{229}Th dargestellt. Ein Thoriumatom $^{229}\text{Th}^*$ in einem der angeregten Zustände kann diesen entweder durch Emission eines Photons oder durch interne Konversion verlassen. Der Zerfall des isomeren Zustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ in den Grundzustand findet im neutralen Thoriumatom sogar hauptsächlich durch interne Konversion statt [Kar07, Tka15, Bil17]. Der angeregte Zustand wird dabei durch Übertragen der Energie per elektromagnetischer Wechselwirkung an ein Elektron in der Atomhülle, welches dann emittiert wird, verlassen. Die resultierende kinetische Energie dieses Elektrons setzt sich aus der Isomerenergie abzüglich der Ionisierungsenergie der jeweiligen Elektronenschale zusammen. Im Jahr 1976 wurde erstmals aufgrund von Messungen des Gammaspektrums von ^{229}Th mit Halbleiterdetektoren ein isomeres Zustand $^{229\text{m}}\text{Th}$ unterhalb von 100 eV in Betracht gezogen [Kro76]. Einige Jahre später unterstützen weitere Messungen und ein dadurch gewonnenes tieferes Verständnis der Kernstruktur von ^{229}Th diese Prognose [Bur90, Bar03, Ruc06, Bur08]. Der erste konkrete Messwert entstand durch Auswerten unterschiedlicher höherenergetischer Kernübergänge in den Grundzustand und anschließender Differenzbildung zu Übergängen in den isomeren Zustand mit (-1 ± 4) eV [Rei90]. Mit hochauflösenden Detektoren und höherer Statistik wurde eine solche Messung 1994 mit einem Ergebnis von $(3,5 \pm 1,0)$ eV deutlich verbessert [Hel94]. Die erste Messung mit einem Mikrokalorimeter stammt von 2007 und brachte einen Wert von $(7,8 \pm 0,5)$ eV [Bec07, Bec10]. Bis dahin waren alle Nachweismethoden indirekter Natur, sodass die Existenz des isomeren Zustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ an sich nicht bewiesen war. Dies gelang im Jahr 2016 durch den Nachweis der internen Konversion von $^{229\text{m}}\text{Th}$ in den Grundzustand [vdW16b].

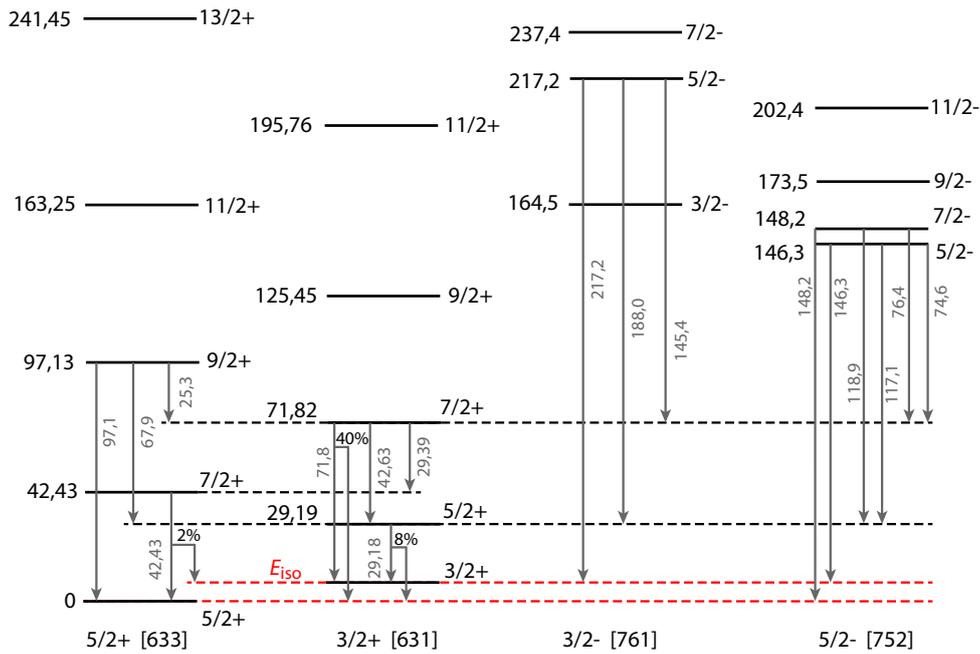


Abbildung 2.2: Ausschnitt einiger niederenergetischer Kernenergieniveaus von ^{229}Th in vier Rotationsbändern, jeweils gekennzeichnet durch Spin, Parität und die Nielsen-Quantenzahlen in eckigen Klammern. Die Energien der Anregungsniveaus sowie der Übergänge sind jeweils in keV angegeben. Bild nach [VdW18].

2.2 Direkter Nachweis des isomeren Zustands ^{229m}Th

Beim α -Zerfall von ^{233}U wird der isomere Zustand von ^{229}Th lediglich mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 2 % besetzt. Experimente, die darauf abzielten, die Abregung des Isomers mit optischen Methoden direkt zu beobachten [Irw97, Ric98, Bro01, Moo04, Kas05], scheiterten unter anderem aufgrund des großen Untergrunds an Radiolumineszenz [Utt99, Sha99]. Um dies zu umgehen, kann beim α -Zerfall an der Oberfläche einer ^{233}U -Quelle emittiertes ^{229}Th , sogenannte Rückstoß-Atome, in geringem Abstand zur Quelle mit einem Absorber aus zum Beispiel CaF_2 [Ste15] oder LiCaAlF_6 [Rel10] aufgesammelt werden. Nach hinreichend langer Akkumulationsdauer kann der Absorber von der Quelle getrennt und mittels Photovervielfachern oder einer CCD-Kamera und diversen Filtertechniken der weitere Zerfall des ^{229}Th untersucht werden. In zahlreichen Versuchen in unterschiedlichen Laboren wurde unter anderem an der PTB¹ [Yam15, Thi18, Mei19], dem LLNL² [Bur10] und am LANL³ [Zha12] der Nachweis des Isomers auf diese Weise angestrebt. Ein vom LANL veröffentlichtes Ergebnis musste später relativiert werden, da Lumineszenz erzeugt

¹PTB: Physikalisch-Technische Bundesanstalt

²LLNL: Lawrence Livermore National Laboratory

³LANL: Los Alamos National Laboratory

durch Cherenkov-Strahlung in Folge des β -Zerfalls von ^{213}Bi und ^{209}Pb vom erhofften Signal nicht zu unterscheiden war [Pei13].

In [Pon18] wurde ^{229}Th direkt in einen STJ-Detektor⁴ implantiert, jedoch ebenfalls kein Nachweis gefunden. Im Falle von ^{229}Th liegt die erste Ionisierungsenergie mit 6,31 eV unterhalb der erwarteten Isomerenergie, sodass für diesen Prozess eine sehr kurze Halbwertszeit im Mikrosekundenbereich vorausgesagt wurde [Kar07, Tka15], was mit einem STJ nicht aufgelöst werden kann.

An der LMU⁵ wird ein Verfahren angewandt, bei welchem die Rückstoß-Atome in einem He-Puffergas gekühlt und in einer Kaskade aus Massen- und Ladungsfiltern vor der Detektion der Zerfallsphotonen selektiert werden können [vdW16a]. Auf diese Weise ist es möglich, gezielt den Zerfall einzelner Ladungszustände von Thorium-Ionen zu untersuchen. In mindestens einfach geladenen ^{229}Th -Ionen ist der Zerfall von $^{229\text{m}}\text{Th}$ per interner Konversion energetisch verboten und die Halbwertszeit dadurch deutlich verlängert. In [vdW16b] gelang es dadurch erstmals die Existenz des Zustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ an sich nachzuweisen und ihn zwischen der ersten und dritten Ionisierungsenergie, also zwischen 6,3 und 18,3 eV, einzugrenzen. Wenig später konnten dort die Halbwertszeit des Isomers zu $(7 \pm 1) \mu\text{s}$ bestimmt [Sei17] und zeitgleich zur Durchführung dieser Arbeit ein Wert von $E_{\text{iso}} = (8,28 \pm 0,17) \text{ eV}$ für die Isomerenergie ermittelt werden [Sei19].

Um die geringe Ausbeute an $^{229\text{m}}\text{Th}$ beim natürlichen Zerfall einer ^{233}U -Quelle experimentell zu umgehen und da dies ohnehin für die Realisierung einer Kernuhr vonnöten sein wird, kann der Grundzustand direkt in den isomeren Zustand angeregt werden. Dies wurde in [Yam15] in einem Bereich zwischen etwa 3,9 und 9,5 eV, in [Jee15] zwischen 7,3 und 8,8 eV und in [Ste18] zwischen 7,5 und 10 eV jeweils ohne erfolgreichen Nachweis von $^{229\text{m}}\text{Th}$ durchgeführt. In [vdW17] wird zudem eine Technik vorgeschlagen direkt in den Isomerezustand anzuregen, ohne dessen Wert exakt zu kennen. Dadurch wird sowohl die weitere Untersuchung des Zerfallskanals per interner Konversion erleichtert, als auch ein Nachweis des Zerfalls per Photonenemission, so er denn existiert, immer greifbarer.

Nach wie vor bleibt der Untergrund bei kleinen Energien durch Radiolumineszenz des Wirtsmaterials ein limitierender Faktor derartiger Messungen. In [Yos18] wurde die Kernanregung von ^{201}Hg per Synchrotronstrahlung eines höherenergetischen Zustands mit 26,27 keV demonstriert. Wenig später wurde damit ebenfalls in den ersten angeregten Zustand von ^{229}Th mit $5/2^+(631)$ (vgl. Abbildung 2.3) angeregt und dessen Halbwertszeit, das Zerfallsverhältnis in Grund- und Isomerezustand sowie dessen Energie zu $(29\,189,93 \pm 0,07) \text{ eV}$ bestimmt [Mas19]. Das neu erlangte Wissen um diesen Wert ermöglichte im Rahmen dieser Arbeit eine weitere, in Abschnitt 5.4.3

⁴STJ: aus dem Englischen: **S**uperconducting **T**unnel **J**unction

⁵LMU: Ludwig Maximilian Universität; München

diskutierte Methode die Isomerenergie von ^{229}Th aus den Messdaten zu extrahieren. Auch ohne Synchrotronstrahlung oder einen Laser, dessen Wellenlänge um den erwarteten Bereich von 160 nm, was einer Energie von 7,8 eV entspricht, variiert werden kann, ist die Anregung in den isomeren Zustand $^{229\text{m}}\text{Th}$ über den sogenannten elektronischen Brückenprozess möglich [Kek85, Por10]. Dabei wird der Isomerzustand über eines der bekannten Energieniveaus der Elektronenhülle des Th^+ -Ions über zwei Photonen angeregt. Aufgrund der Vielzahl dieser Niveaus kann die Anregungseffizienz dadurch deutlich erhöht werden.

2.3 Indirekter Nachweis von $^{229\text{m}}\text{Th}$ mit Mikrokalorimetern

Durch die Entwicklung von Mikrokalorimetern [Ban93, Fle03, Ens05] ist es möglich das Gammaspektrum von ^{229}Th sowohl hochauflösend als auch gleichzeitig über einen großen Energiebereich zu analysieren [Kaz12].

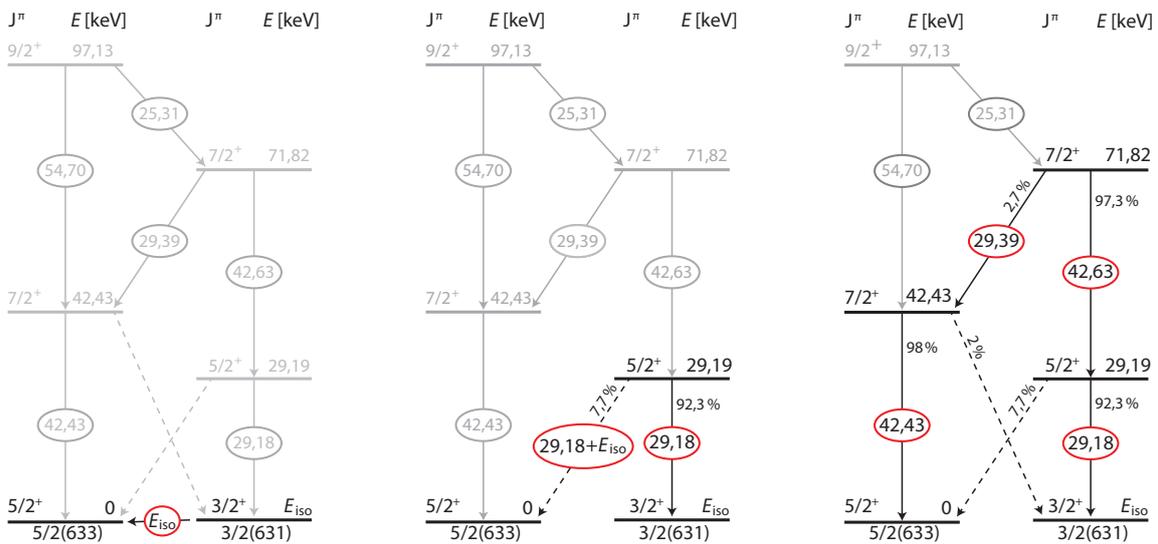


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung unterschiedlicher Wege zur Bestimmung der Isomerenergie von ^{229}Th aus den Kern-Übergängen zweier Rotationsbänder. Der direkte Übergang von $^{229\text{m}}\text{Th}$ in den Grundzustand (**links**) ist stark unterdrückt und wurde daher bisher noch nicht unmittelbar beobachtet. Die indirekten Methoden durch direktes Auflösen des $29,19$ keV-Dubletts (**Mitte**) und das Bilden von Energiedifferenzen entlang der Zerfallskaskade ausgehend vom $7/2^+$ (631)-Zustand (**rechts**) werden im Rahmen dieser Arbeit angewandt. Abbildung aus [Bus18].

In Abbildung 2.3 sind dazu ein direkter (links) und zwei indirekte Wege (Mitte und rechts) skizziert. Schematisch dargestellt sind jeweils die sechs untersten Energieniveaus in den beiden durch die Nielsen-Quantenzahlen beschriebenen Rotationsbändern und die jeweiligen Abregungsenergien. Der für die jeweilige Methode relevante

Teil des Zerfallsschemas ist in Schwarz dargestellt, alles Übrige in hellem Grau angedeutet.

Die erste in Abbildung 2.3 (links) dargestellte Methode ist die direkte Messung des Zerfalls des Isomerzustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ in den Grundzustand. Obgleich diese Methode die präziseste wäre, ist sie aufgrund der geringen Photonenausbeute dieses Übergangs bisher nicht gelungen, denn dieser findet hauptsächlich durch interne Konversion statt (vgl. Abschnitt 2.2). Im vorliegenden Aufbau ist diese Methode zudem nicht möglich, da Photonen mit Energien von unter 10 eV bereits im Gehäuse der verwendeten Uranquelle (vgl. Abschnitt 4.6) absorbiert werden, bevor sie den Detektor überhaupt erst erreichen könnten.

Bei der zweiten Methode (Abbildung 2.3 - Mitte) wird die Isomerenergie indirekt durch Differenzbildung der beiden Übergänge aus dem $5/2^+(631)$ -Zustand mit etwa 29,19 keV in den Grund- bzw. isomeren Zustand bestimmt. Die Herausforderung dabei ist, dass der Interbandübergang in den Grundzustand mit 7,7% dem Innerbandübergang in den Isomerzustand gegenüber deutlich unterdrückt ist. Es gilt daher ein Linien-Dublett bei 29,19 keV aufzulösen, das lediglich um den Wert der Isomerenergie $E_{\text{iso}} \approx 8 \text{ eV}$ separiert ist und ein Intensitätsverhältnis von etwa 1:14 aufweist. Abbildung 2.4 zeigt dies qualitativ anhand der Simulation eines Dubletts mit einem Abstand von 8,23 eV und einem Verzweigungsverhältnis von 1:14. Dabei wurden jeweils eine instrumentelle Linienbreite von 5,5 eV, 8,0 eV und 10,5 eV angenommen. Letztere und die Anzahl an simulierten Ereignissen sind dabei vergleichbar mit den Parametern der in Abschnitt 5.4.2 diskutierten Messung. Um die beiden Linien gut voneinander trennen zu können, ist offensichtlich eine instrumentelle Linienbreite vergleichbar des Abstands beider Linien, also der Isomerenergie, vonnöten.

Die ebenfalls indirekte Methode (rechts) in Abbildung 2.3 wurde bereits in [Kro76] für höher liegende Energieniveaus und in [Bec07] für die abgebildeten angewandt. Dabei werden ausgehend von einem höheren angeregten Zustand (hier: $7/2^+(631)$ mit 71,82 keV) die addierten Übergangsenergien in den isomeren Zustand $E_{42,63} + E_{29,18}$ von denen in den Grundzustand $E_{29,39} + E_{42,43}$ abgezogen um aus deren Differenz die Isomerenergie

$$E_{\text{iso}} = (E_{29,39} + E_{42,43}) - (E_{42,63} + E_{29,18}) \quad (2.1)$$

zu erhalten. Durch Umordnen der Summanden in Gleichung 2.1 erhält man

$$E_{\text{iso}} = (E_{29,39} - E_{29,18}) - (E_{42,63} - E_{42,43}) =: \Delta E_{29 \text{ keV}} - \Delta E_{42 \text{ keV}}. \quad (2.2)$$

Daraus wird ersichtlich, dass bei dieser Methode zwei durch etwa 200 eV getrennte Energie-Differenzen jeweils bei etwa 29 und 42 keV voneinander abgezogen werden. Die Vorteile hinsichtlich der absoluten Energiekalibration des Detektors werden in den Abschnitten 5.2.6 und 5.4.1 deutlich.

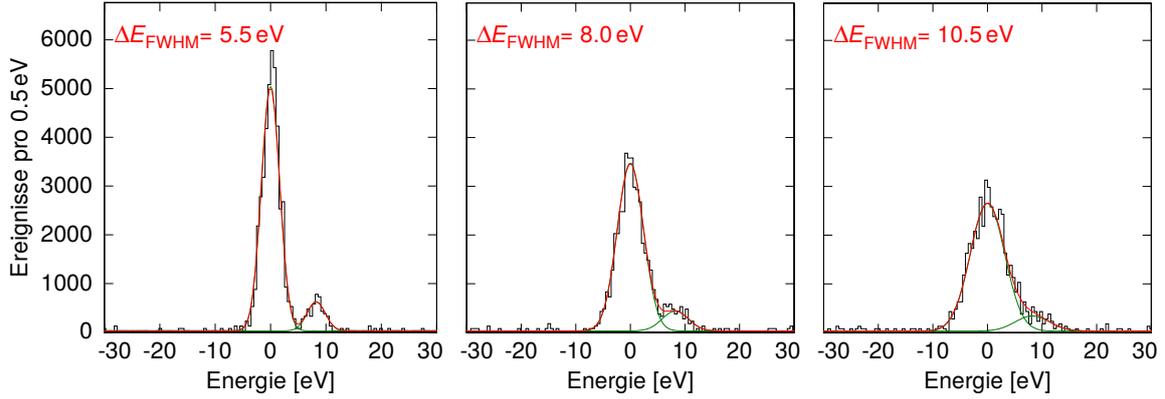


Abbildung 2.4: Instrumentelle Linienbreite zum direkten Auflösen des 29,2 keV-Dubletts: Simulierte Histogramme und angepasste Summe (rot) aus Gauß-Kurven (jeweils grün) mit instrumentellen Linienbreiten von 5,5 eV, 8,0 eV und 10,5 eV. Aufgrund des Intensitätsverhältnisses von 1:14 ist eine instrumentelle Linienbreite vergleichbar mit dem Linienabstand vonnöten um beide Linien optisch voneinander trennen zu können.

In bisherigen Arbeiten [Bec07, Bus18] war es aufgrund der jeweiligen Energieauflösung nicht möglich die Doppellinienstruktur der Linien bei 29,18 keV und 42,43 keV bei der numerischen Anpassung zur Linienmittenbestimmung direkt zu berücksichtigen. Es wurde jeweils eine einzelne Gauß-Verteilung angepasst und die Linienmitte anschließend durch das jeweilige Verzweigungsverhältnis korrigiert. Dadurch ergibt sich

$$E_{\text{iso}} = \frac{(E_{29,39} - E_{29,18}) - (E_{42,63} - E_{42,43})}{1 - b_{29} - b_{42}} = \frac{\Delta E_{29 \text{ keV}} - \Delta E_{42 \text{ keV}}}{1 - b_{29} - b_{42}} \quad (2.3)$$

als Ergebnis für die Energie des isomeren Zustands, wobei b_{29} und b_{42} die Verzweigungsverhältnisse des 29,18 keV- sowie des 42,43 keV-Linienpaars sind. In dieser Arbeit ist es jedoch erstmals gelungen eine hinreichend hohe Energieauflösung zu erreichen um die Doppellinienstruktur dieser Linien in der Anpassung direkt berücksichtigen zu können, was den Einfluss der Unsicherheiten der Literaturwerte der Verzweigungsverhältnisse auf das Ergebnis signifikant reduziert.

3. Grundlagen von metallischen magnetischen Kalorimetern

Metallische magnetische Kalorimeter (MMCs)¹ erreichen eine hohe Energieauflösung und können diese über einen großen Energiebereich gewährleisten. Die grundlegende Funktionsweise sowie die Eigenschaften der einzelnen MMC-Komponenten wird im Folgenden vorgestellt. Zuletzt wird die erwartete Signalform sowie die daraus resultierende theoretisch erreichbare Energieauflösung diskutiert. Der zu messende Eintrag einer Energie E wird im Rahmen dieser Arbeit durch die Absorption eines Photons, entstanden aus einem Übergang im Atomkern (γ -Strahlen) oder in der Atomhülle (Röntgenstrahlen), erzeugt. In Abbildung 3.1 sind die einzelnen Komponenten eines

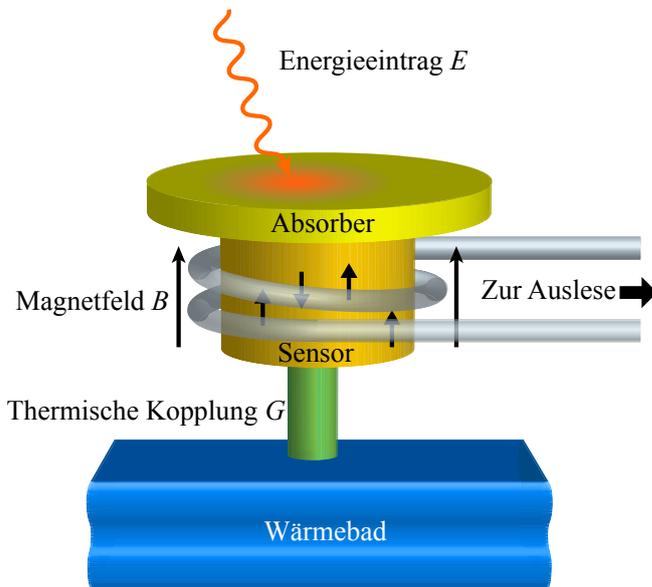


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung eines metallischen magnetischen Kalorimeters, bestehend aus einem Teilchenabsorber, der in gutem thermischen Kontakt mit einem Temperatursensor steht. Letzterer befindet sich in einem schwachen ihn durchdringenden Magnetfeld, dessen Änderung über eine Detektionsspule ausgelesen wird. Über eine thermische Kopplung ist das Kalorimeter mit dem Wärmebad verbunden.

MMCs schematisch dargestellt. Nach dem ersten Hauptsatz der Thermodynamik gilt für die Temperaturänderung

$$\Delta T \simeq \frac{E}{C_{\text{ges}}}, \quad (3.1)$$

die durch die Absorption eines einzelnen Photons mit einer Energie E im Teilchenabsorber hervorgerufen wird. Dabei setzt sich die Gesamtwärmekapazität C_{ges} aus der des Teilchenabsorbers sowie der eines Temperatursensors zusammen. Letzterer befindet sich in gutem thermischen Kontakt mit dem Teilchenabsorber um eine schnelle Thermalisierung zu ermöglichen und besteht aus einem paramagnetischen Material. Die auf die Absorption eines Photons folgende Temperaturänderung ΔT führt

¹Akronym aus dem Englischen: **M**etallic **M**agnetic **C**alorimeter

dann durch die temperaturabhängige Magnetisierung $M(T)$ dieses Sensormaterials in einem schwachen Magnetfeld zu einer Magnetisierungsänderung

$$\Delta M \simeq \frac{\partial M(T)}{\partial T} \Delta T. \quad (3.2)$$

Diese erzeugt eine magnetische Flussänderung

$$\Delta \Phi \propto \Delta M(T) \simeq \frac{\partial M(T)}{\partial T} \frac{E}{C_{\text{ges}}}. \quad (3.3)$$

in einer supraleitenden Auslesespule um den Sensor, welche wiederum über ein fluss-sensitives SQUID²-Magnetometer, näher beschrieben in Abschnitt 4.3, ausgelesen wird. Nach der vollständigen Thermalisierung von Teilchenabsorber und Temperatursensor wird die entstandene Wärme über eine schwache thermische Kopplung mit Wärmeleitfähigkeit G an ein Wärmebad abgegeben. Über die Stärke dieser thermischen Verbindung lässt sich die Signalabklingzeit einstellen, wie in Abschnitt 4.1.1 beschrieben ist.

Aus Gleichung 3.3 folgt bereits, dass um ein möglichst großes Signal $\Delta \Phi$ zu erhalten, die Gesamtwärmekapazität C_{ges} möglichst klein und die Magnetisierungsänderung $\partial M(T)/\partial T$ möglichst groß sein muss. Weitere Möglichkeiten zur Optimierung des Detektors werden in Abschnitt 4.4 über die Berechnung und Simulation des Detektorsignals dargelegt.

3.1 Teilchenabsorber

Die Aufgabe des Teilchenabsorbers besteht darin, das zu detektierende Photon zu stoppen und dessen kinetische Energie komplett zu absorbieren. An dieser Stelle sei angemerkt, dass der Sensor selbst nicht gleichzeitig als Absorber verwendet wird, aufgrund der Möglichkeit über die Kopplung zwischen Absorber und Sensor die Signalanstiegszeit auszubremsen sowie der Freiheit, Absorbermaterial und -fläche an die jeweiligen Anforderungen an den Detektor anpassen zu können. Dabei ist die Natur der zu detektierenden Teilchen ausschlaggebend für die Wahl eines geeigneten **Absorbermaterials**. Die in dieser Arbeit angestrebte Messung bedarf einer optimalen Absorptionseffizienz für Photonen mit einer Energie von 29 keV und einer hinreichend guten bis hin zu 60 keV. Die Absorption findet in diesem Energiebereich hauptsächlich durch den Photoeffekt statt, dessen Wahrscheinlichkeit in etwa mit der Kernladungszahl Z^4 bis Z^5 skaliert. Neben dem Absorptionskoeffizienten wird die Absorptionseffizienz durch die Dichte und die Dicke des Absorbermaterials festgelegt. In Kombination mit der Erkenntnis aus Gleichung 3.3, dass die Signalgröße

²Abkürzung für: **S**upraleitender **Q**uanten **I**nterferenz **D**etektor

antiproportional zur Gesamtwärmekapazität ist, folgt, dass die Wahl eines geeigneten Materials auf eines mit hohem Z , großer Dichte ρ bei gleichzeitig möglichst geringer Wärmekapazität fällt. Zu den spezifischen Materialeigenschaften zählt ebenfalls eine schnelle und gleichmäßige Thermalisierung innerhalb eines insbesondere großen Absorbers um eine gleichbleibende Signalform zu garantieren.

Ein geeignetes Absorbermaterial sollte, um sich für die Röntgenspektroskopie zu eignen, wie bereits erwähnt, möglichst viele der zu detektierenden Photonen stoppen, deren Temperatureintrag und somit deren Energie zügig und reproduzierbar an den Sensor übermitteln und zudem, nach Gleichung 3.3, eine möglichst kleine Wärmekapazität aufzuweisen. Mögliche Kandidaten sind im Wesentlichen Metalle, Dielektrika und Supraleiter von denen sich Metalle trotz ihrer vergleichsweise hohen Wärmekapazität, unter anderem aufgrund ihrer einfachen Mikrostrukturierbarkeit, als sehr vorteilhaft herausstellen. Dielektrika zeigen ein langes und ungleichmäßiges Thermalisierungsverhalten, da Elektron-Loch Paare, die durch ein auftreffendes Photon entstehen können, an Gitterdefekten gefangen werden und erst nach längerer aber unregelmäßiger Zeit rekombinieren können [McC93]. Selbiges gilt für Supraleiter, bei denen vermutlich aufgebrochene Cooper-Paare zu Thermalisierungszeiten von bis zu einigen hundert Millisekunden führen [Cos93, Ran09, Hen12]. Eine ausführlichere Diskussion über die Vor- und Nachteile der einzelnen Materialien findet sich unter anderem in [Hen12].

Das Metall **Gold als Absorbermaterial** zeichnet sich durch seine gute thermische Leitfähigkeit aus und ermöglicht dadurch eine schnelle und umfassende Thermalisierung die theoretisch gut verstanden ist [Ens00, Koz12]. Wie bereits erwähnt ist der dominante Mechanismus bei der Absorption von Photonen mit Energien unterhalb von 500 keV der Photoeffekt. Ein entstandenes hochenergetisches Photoelektron streut an weiteren Elektronen und bildet dabei Sekundärelektronen sowie quantisierte Dichtoszillationen der Leitungselektronen, sogenannte Plasmonen, welche wiederum in Elektron-Loch-Paar Anregungen zerfallen. Die weitere Thermalisierung dieser findet dann durch die Erzeugung von hochfrequenten athermischen Phononen durch Elektron-Phonon-Streuung statt, deren Energie am Ende wiederum an die Leitungselektronen abgegeben wird. In einem hinreichend kleinen Volumen läuft dieser gesamte Prozess sowohl schneller als die thermische Diffusion als auch als die Thermalisierung zwischen Teilchenabsorber und Temperatursensor ab und ist daher innerhalb des Signalanstiegs mit einem Mikrokalorimeter nicht auflösbar.

3.2 Temperatursensor

Durch den paramagnetischen Temperatursensor wird eine Temperaturerhöhung ΔT in eine Änderung der Magnetisierung ΔM umgewandelt. Die magnetischen Momen-

te im Sensor ermöglichen dies indem sie in einem äußeren Magnetfeld annähernd einem Curie-Gesetz folgen. Der Beitrag des Sensors zur Wärmekapazität des Detektors sowie die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung, welche in Gleichung 3.3 einfließen, wurden ausführlich in [Fle03] hergeleitet, weshalb im Folgenden nur die für das wesentliche Verständnis von MMCs nötigen Aspekte zusammengefasst werden.

3.2.1 Paramagnetisches Sensormaterial

Im Rahmen dieser Arbeit wurde Silber als Wirtsmetall dotiert mit dem Seltenerdmetall Erbium als Material für den paramagnetischen Temperatursensor verwendet. In der Vergangenheit wurden Au:Er-Legierungen verwendet, welche in [Ran14] ausführlich beschrieben sind und auf deren Vor- und Nachteile im folgenden Abschnitt 3.2.4 kurz eingegangen wird. Im mit geringen Konzentrationen an Erbium dotierten Silber nehmen die Er-Atome, wie in Abbildung 3.2 gezeigt, reguläre Gitterplätze des fcc-Gitters mit Gitterkonstante $4,08 \text{ \AA}$ ein und geben drei ihrer Elektronen an das Leitungsband ab. Im Kristallgitter liegt das Erbium dann als Er^{3+} -Ion mit Elek-

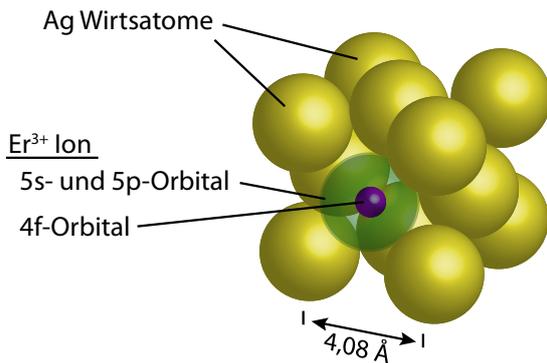


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung eines einzelnen Er^{3+} -Ions, das einen regulären Gitterplatz in der fcc-Matrix des Silber-Wirtskristalls einnimmt. Die Gitterkonstante von Silber beträgt $4,08 \text{ \AA}$. Die Ausmaße der vollbesetzten 5s- und 5p-Orbitale, die das 4f-Orbital abschirmen sind zusätzlich angedeutet.

tronenkonfiguration $[\text{Kr}]4d^{10}4f^{11}5s^25p^6$ vor. Es trägt ein permanentes magnetisches Moment da sein 4f-Orbital mit nur 11 anstatt 14 Elektronen gefüllt ist und gewährleistet dadurch das paramagnetische Verhalten der Legierung. Der Durchmesser des 4f-Orbitals ist mit $0,6 \text{ \AA}$ klein und wird durch die vollen 5s- und 5p-Orbitale mit 2 \AA Durchmesser abgeschirmt wodurch die LS -Kopplung der Elektronen erhalten bleibt. Mit den Hundschen Regeln lässt sich dadurch auf Bahndrehimpuls L , Gesamtspin S sowie Gesamtdrehimpuls J und damit auf das magnetische Moment

$$\boldsymbol{\mu} = -g_J \mu_B \mathbf{J} \quad (3.4)$$

des Er^{3+} -Ions schließen. Dabei wird $\mu_B = 9,274 \cdot 10^{-24} \text{ J/T}$ als das Bohrsche Magneton bezeichnet und der Landé-Faktor g_J [Abr70] errechnet sich mit den Werten $L = 6, S = 3/2$ und damit $J = L + S = 15/2$, die sich aufgrund der drei ungepaarten

Elektronen im 4f-Orbital ergeben, zu

$$g_J = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} = \frac{6}{5}. \quad (3.5)$$

Für Temperaturen $T > 100$ K beschreiben obige Parameter das magnetische Verhalten der Ag:Er-Legierung sehr gut [Wil69]. Bei tieferen Temperaturen macht sich das Kristallfeld durch Aufspaltung des 16-fach entarteten Grundzustands in mehrere Multipletts bemerkbar. Der energetisch stabilste Zustand ist ein Kramers- Γ_7 -Dublett, welches bei Ag:Er-Legierungen einen Abstand von $\Delta E/k_B \approx 25$ K zum nächst höheren Multiplett besitzt [Hah92]. Dabei steht $k_B = 8,62 \cdot 10^{-5}$ eV/K für die Boltzmann-Konstante. Da metallische magnetische Kalorimeter unterhalb von 100 mK und in schwachen Magnetfeldern betrieben werden, ist vorwiegend das unterste Dublett besetzt und das System kann als Zwei-Niveau-System mit effektivem Spin $\tilde{S} = 1/2$ und effektivem Landé-Faktor $\tilde{g} = 6,80$ [Abr70] beschrieben werden. Bei Temperaturen $T < 50$ mK muss je nach Stärke des Magnetfeldes und der Erbiumkonzentration die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten an sich mit berücksichtigt werden (vgl. Abschnitt 3.2.2). Bei noch tieferen Temperaturen $T < 1$ mK deutet sich ein Spin-Glas-Übergang an [Fle00].

3.2.2 Wärmekapazität und Magnetisierung des Sensors

Zu Beginn dieses Kapitels wurde gezeigt, dass um das Signal eines magnetischen Kalorimeters zu verstehen, Kenntnis von der Magnetisierungsänderung $\partial M/\partial T$ des Sensormaterials sowie der Wärmekapazität C_{sens} vonnöten ist. In [Fle03] wurde ausführlich hergeleitet, dass sowohl die Wärmekapazität als auch die Magnetisierung des Temperatursensors allein durch statistische Überlegungen qualitativ sehr gut beschrieben werden können. Dabei werden die thermodynamischen Eigenschaften für kleine Erbium-Konzentrationen im Sensor durch ein Ensemble nicht untereinander wechselwirkender magnetischer Momente beschrieben. In einem Magnetfeld³ B erfahren die Er^{3+} -Ionen mit Spin \tilde{S} eine Zeeman-Aufspaltung des Grundzustands in $2\tilde{S} + 1 = 2$ Energieniveaus. Deren Besetzung ist im thermodynamischen Gleichgewicht durch die Boltzmann-Verteilung gegeben. Für die Wärmekapazität dieses Zeeman-Ensembles ergibt sich schließlich

$$C_z(T) = Nk_B \left(\frac{\delta E}{k_B T} \right)^2 \frac{e^{\delta E/k_B T}}{(e^{\delta E/k_B T} + 1)^2}, \quad (3.6)$$

mit der Anzahl N an unabhängigen magnetischen Momenten, der Energieaufspaltung $\delta E = \tilde{g}\mu_B B$ und dem Landé-Faktor $\tilde{g} = 6,80$. Der Temperaturverlauf der Wärmeka-

³Genaugenommen ist B die magnetische Flussdichte und H das Magnetfeld. Falls der Unterschied nicht explizit von Bedeutung ist, wird im Folgenden weiter B für beide Größen verwendet.

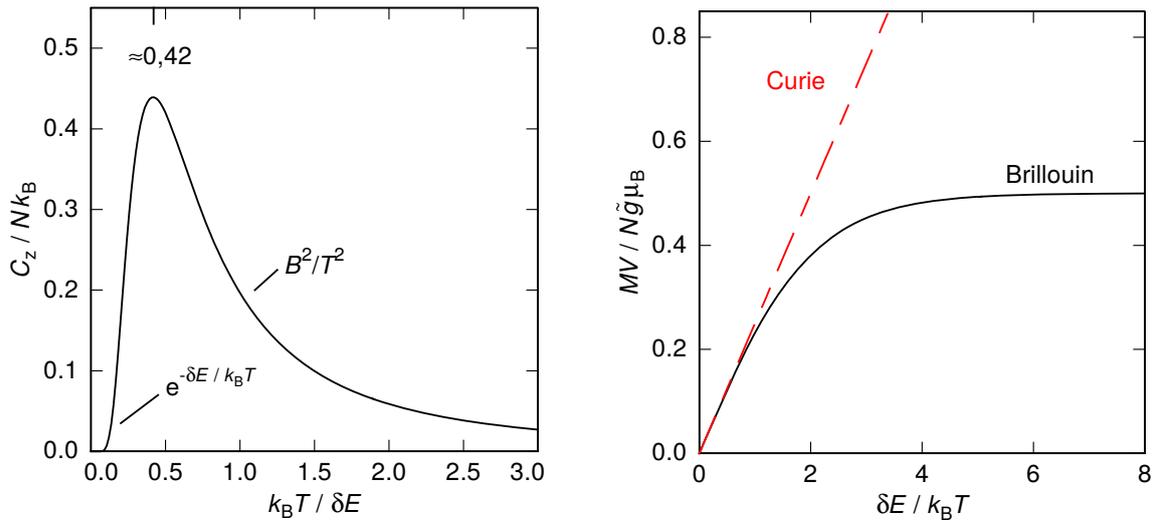


Abbildung 3.3: Reduzierte spezifische Wärmekapazität (**links**) und reduzierte Magnetisierung (**rechts**) eines Systems bestehend aus N unabhängigen Zwei-Niveau-Systemen mit Spin $\tilde{S} = 1/2$ und Energieaufspaltung $\delta E = \tilde{g}\mu_B B$. Das einem Curie-Gesetz folgende Hochtemperaturverhalten der Magnetisierung ist durch eine gestrichelte Gerade angedeutet.

Wärmekapazität ist links in Abbildung 3.3 dargestellt und zeigt einen exponentiellen Anstieg bei kleinen Temperaturen bis hin zu einem als Schottky-Anomalie bezeichneten Maximum bei $T \approx 0,42 \delta E / k_B$ und einem sich anschließenden Abfall proportional zu B^2/T^2 .

Die Magnetisierung M des Sensors in einem Volumen V wird unter analogen Annahmen aus der Änderung der freien Energie mit dem Magnetfeld B hergeleitet. Es ergibt sich

$$M(T) = \frac{N}{2V} \tilde{g}\mu_B \tanh\left(\frac{\delta E}{2k_B T}\right). \quad (3.7)$$

Wie in rechts Abbildung 3.3 zu sehen ist, folgt der Verlauf bei hohen Temperaturen dem bekannten Curie-Verhalten proportional zu $1/T$. Hin zu tiefen Temperaturen ($k_B T \ll \delta E$) sättigt die Magnetisierung auf einen Wert von $M(T \rightarrow 0) = \frac{N}{2V} \tilde{g}\mu_B$, da hier alle Spins parallel zum äußeren Magnetfeld ausgerichtet sind.

Unter Berücksichtigung der **Wechselwirkungen** zwischen den magnetischen Momenten müssen obige Betrachtungen erweitert werden. In [Sch00] ist dies ausführlich beschrieben. Hauptsächlich interagieren die Spins durch die RKKY-Wechselwirkung [Rud54, Kas56, Yos57]. Dabei werden Leitungselektronen des Wirtsmetalls in der näheren Umgebung eines Er^{3+} -Ions durch dessen Spin polarisiert und können diese Information an einen nächsten Spin übertragen. Die Wechselwirkung geschieht also indirekt, sie bevorzugt, je nach Abstand der Er-Spins eine parallele oder antiparallele Ausrichtung der Spins und kann in erster Näherung als isotrop angenommen

werden. Eine weitere relevante ist die Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Dabei wird die direkte Interaktion magnetischer Dipolmomente beschrieben, welche ein anisotropes Verhalten aufweist und unabhängig vom Wirtsmetall ist.

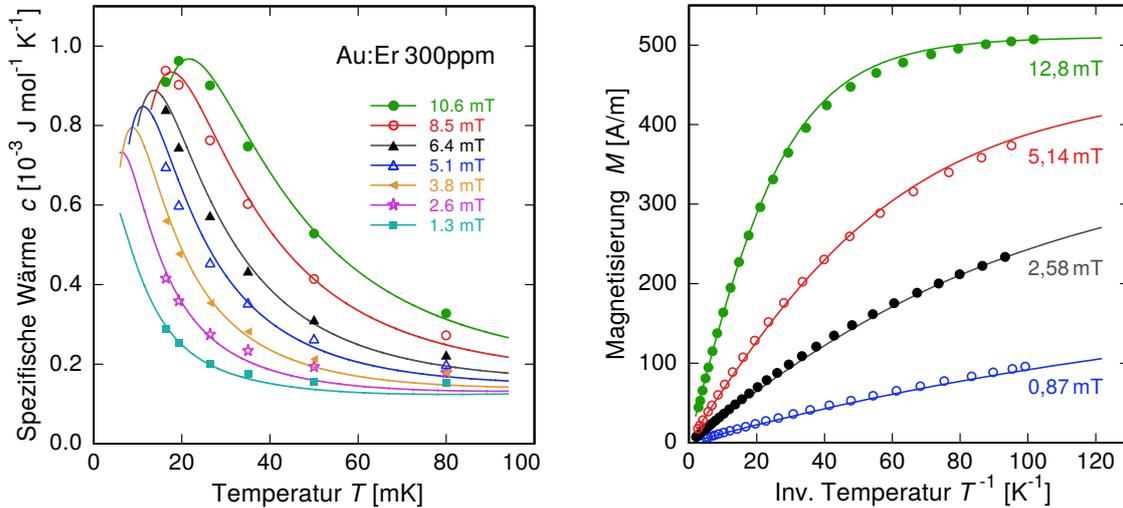


Abbildung 3.4: Spezifische Wärme (**links**) und Magnetisierung (**rechts**) eines Au:Er-Sensors mit einer Er^{3+} -Konzentration von 300 ppm in Abhängigkeit von der Temperatur T und dem Magnetfeld B , aus [Fle03]. Die experimentellen Daten sind durch Symbole und die Simulationen, die auf der exakten Diagonalisierung des Wechselwirkungs-Hamiltonians basieren, durch Linien dargestellt.

Die in Abbildung 3.4 gezeigten experimentellen Ergebnisse (Symbole) sind für einen Au:Er-Sensor mit einer Er^{3+} -Konzentration von 300 ppm aus [Fle03] entnommen. Die Simulationen (Linien) basieren dabei auf der Methode der exakten Diagonalisierung des Hamiltonians, der die Wechselwirkungen beschreibt. Es besteht jeweils eine gute Übereinstimmung zwischen der Theorie und den Messwerten, jeweils für unterschiedliche externe Magnetfelder und Temperaturen. Auch stimmt der qualitative Verlauf mit dem vereinfachten Modell aus Abbildung 3.3 überein.

Dies zeigt, dass das Verhalten eines mit Erbium dotierten Metalls sehr gut verstanden ist. Für die Optimierung eines Detektoraufbaus ist dies essentiell, da nur dann das Detektorsignal numerisch berechnet und hinsichtlich der spezifischen Anforderungen an die jeweilige Messung optimiert werden kann.

3.2.3 Signalthöhe

Mit den Erkenntnissen aus dem vorherigen Abschnitt kann die Signalthöhe in Form der Änderung des magnetischen Moments $\Delta m = V \Delta M$ des Temperatursensors mit Volumen V , die sich in Folge eines Energieeintrags E in den Teilchenabsorber nach

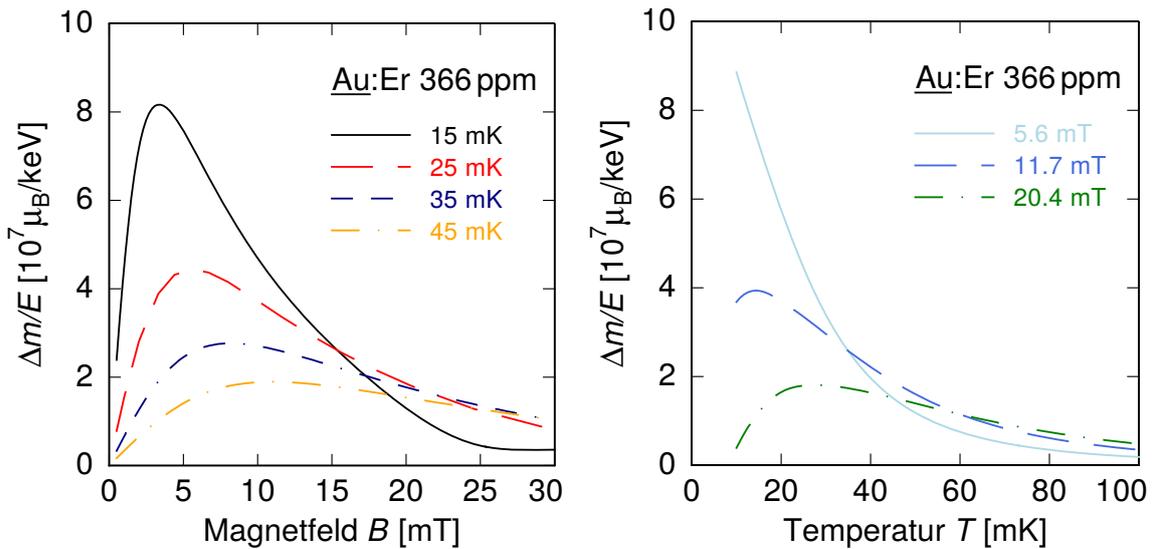


Abbildung 3.5: Berechnete Signalhöhe für einen paramagnetischen Au:Er-Sensor pro Energieeintrag E in den Detektor in Abhängigkeit des angelegten, homogenen Magnetfelds B (**links**) und der Temperatur T (**rechts**). Exemplarisch wurde dazu ein Sensortvolumen $V_{\text{sens}} = 300 \mu\text{m} \cdot 300 \mu\text{m} \cdot 1,5 \mu\text{m}$ und ein Volumen des Teilchenabsorbers von $V_{\text{abs}} = 500 \mu\text{m} \cdot 500 \mu\text{m} \cdot 20 \mu\text{m}$ angenommen.

Gleichung 3.3 ergibt, berechnet werden. In Abbildung 3.5 ist dies exemplarisch für einen Au:Er-Sensor mit einer Erbiumkonzentration von 366 ppm und einem Volumen von $V_{\text{sens}} = 300 \mu\text{m} \cdot 300 \mu\text{m} \cdot 1,5 \mu\text{m}$, sowie einem Teilchenabsorber aus Gold mit einem Volumen $V_{\text{abs}} = 500 \mu\text{m} \cdot 500 \mu\text{m} \cdot 20 \mu\text{m}$ unter Berücksichtigung der Wechselwirkungen zwischen den Er^{3+} -Ionen, dargestellt. In der linken Abbildung ist die Änderung Δm pro Energieeintrag E über dem als homogen angenommenen Magnetfeld B im Sensor für unterschiedliche Detektortemperaturen T aufgetragen. Bei kleinen Magnetfeldern ergibt sich eine etwa lineare Abhängigkeit vom Magnetfeld des großvolumigen Absorbers. Das Maximum wird näherungsweise erreicht, wenn die vom Magnetfeld abhängige Wärmekapazität der Erbium-Spins im Temperatursensor gleich groß ist, wie die der Photonen und Elektronen zusammen. Zu höheren Magnetfeldern hin ergibt sich ein zum Magnetfeld reziprokes Verhalten von $\Delta m \propto 1/B$. Dieser Bereich scheint, wie in Abbildung 3.5 rechts zu sehen ist, aufgrund der kleineren Signalhöhe für den Betrieb des Detektors unattraktiv zu sein, jedoch bringt er den Vorteil, dass die Temperaturabhängigkeit der Signalhöhe ebenfalls geringer ist. Ein Detektor dessen Energieauflösung durch Temperaturschwankungen des Kryostaten limitiert ist, kann deshalb trotz geringerer Signalhöhe, die bessere Energieauflösung erreichen.

3.2.4 Silber im Vergleich zu Gold als Wirtsmetall

Gold kommt in seiner natürlichen Isotopenzusammensetzung ausschließlich in der Form des Isotops ^{197}Au vor, besitzt einen Kernspin von $3/2$ und ein Kern-Quadrupolmoment von $0,55$ barn [Pow74]. Durch das Dotieren mit den im Vergleich zu den Goldatomen kleineren Er^{3+} -Ionen wird die Symmetrie des kubischen fcc-Gitters von reinem Gold gebrochen. Zudem trägt die dadurch veränderte Ladungsverteilung zu dieser Deformation bei. Die Entartung der Energie-Eigenwerte der Kerne, die bei reinem Gold besteht, wird dadurch aufgehoben und es entsteht ein zusätzlicher Beitrag zur Wärmekapazität, der zu niedrigen Temperaturen hin ansteigt [Her00]. Dieser Beitrag wurde in der Signalform früherer magnetischer Kalorimeter in Form eines zusätzlichen schnellen Abklingens des Signals beobachtet, da sich innerhalb von etwa $0,2$ ms bis 1 ms, je nach äußerem Magnetfeld, die im Er^{3+} -Ionen System gespeicherte Energie kurzzeitig in das der Quadrupolmomente verlagert [Fle98]. Silber hingegen kommt in der natürlichen Zusammensetzung mit den Isotopen ^{107}Ag und ^{109}Ag vor, besitzt einen Kernspin von $1/2$ und daher kein Kern-Quadrupolmoment das die Signalform in obiger Weise beeinflusst.

3.3 Detektorgeometrie

Der in Abbildung 3.1 gezeigte schematische Aufbau eines MMCs wurde in den ersten makroskopischen Prototypen durch Umwickeln des zylindrischen Sensors mit einem Niob-Draht als Detektionsspule realisiert [Büh88, Ban93]. Heute werden die Detektoren, wie in Abbildung 3.6 dargestellt in planarer Geometrie mit Mikrometer-Genauigkeit mikrostrukturiert um höchste Präzision und Reproduzierbarkeit zu garantieren [Sch00, Pie12]. Weitere mögliche Geometrien sowie deren Vor- und Nachteile werden unter Anderem ausführlich in [Fle03] diskutiert.

Nach Gleichung 3.3 wird die Magnetisierungsänderung des paramagnetischen Temperatursensors durch die Änderung eines magnetischen Flusses in einer supraleitenden Detektionsspule nachgewiesen. In Abbildung 3.6 ist sowohl die Draufsicht als auch der Querschnitt der verwendeten Detektorgeometrie schematisch dargestellt. Die Detektionsspule verläuft in Form eines in einer Ebene verlaufenden Mäanders unterhalb des planaren Temperatursensors und wird über einen Flusstransformator induktiv an ein SQUID-Magnetometer gekoppelt. Es sind jeweils zwei Detektoreinheiten, bestehend aus Detektionsspule, Temperatursensor und Absorber gradiometrisch miteinander verschaltet, sodass ein Energieeintrag in einer, im Folgenden als Pixel bezeichneten Detektoreinheit, ein positives und im Nachbarpixel ein negatives Signal erzeugt. Diese Verschaltung bietet den Vorteil, dass sich Störsignale verursacht zum Beispiel durch Temperaturfluktuationen des gesamten Detektorchips die beide

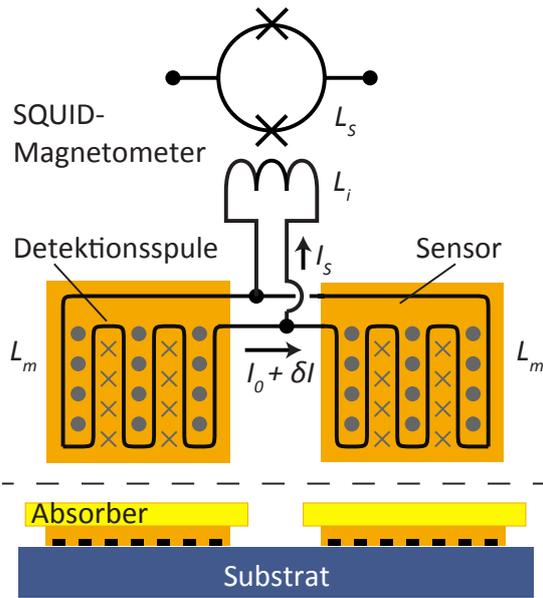


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der planaren Detektorgeometrie nach [Fle05]. Oben ist die Draufsicht und durch eine gestrichelte Linie separiert unten ein Querschnitt abgebildet. Bei dieser gradiometrischen Anordnung befinden sich zwei planare Temperatursensoren jeweils auf einer mäanderförmigen Detektionsspule. Das Magnetfeld wird durch einen Dauerstrom I_0 in der Spule erzeugt. Induktiv wird der Detektor an ein separates SQUID-Magnetometer gekoppelt.

Pixel gleichermaßen betreffen, gegenseitig betragsmäßig aufheben und das Ausgangssignal dadurch nicht beeinträchtigen. Zudem wird so für ein Pixelpaar jeweils nur ein SQUID-Magnetometer zur Auslesung benötigt.

Das für die Ausrichtung der Spins im Temperatursensor benötigte Magnetfeld wird durch das in Abschnitt 4.2 näher beschriebene Präparieren eines Dauerstroms in die supraleitende Detektionsspule durch diese selbst erzeugt. Mit dem Finite-Elemente-Programm femm⁴ kann dieses durch den Dauerstrom I_0 erzeugte Magnetfeld numerisch berechnet werden. In Abbildung 3.7 sind die Ergebnisse einer solchen Simulation um ein Streifenpaar mit Bahnbreite $w = 5 \mu\text{m}$, einem Mitte-zu-Mitte Abstand von $p = 10 \mu\text{m}$ und einer Schichtdicke von 250 nm dargestellt. Das Material der Detektionsspule wird dabei als Supraleiter, also als perfekter Diamagnet angenommen. Durch gestrichelte Linien angedeutet sind dabei die 300 nm dicke Isolationslage aus SiO_2 sowie die Sensorlage mit einer Dicke von $1,5 \mu\text{m}$, die aufgrund ihrer kleinen Suszeptibilitäten bei den betrachteten tiefen Temperaturen jeweils nicht in der Simulation berücksichtigt wurden. Das erzeugte Magnetfeld ist offensichtlich sehr inhomogen, was zur Folge hat, dass die Spins an verschiedenen Orten im Temperatursensor unterschiedlich stark ausgerichtet werden. In Abbildung 3.8 ist die Häufigkeitsverteilung P des Geometriefaktors

$$G(\mathbf{r}/p) = \frac{p}{\mu_0} \frac{|\mathbf{B}(\mathbf{r})|}{I_0} \quad (3.8)$$

im Temperatursensor dargestellt, welche aus der Simulation extrahiert wurde. Der dimensionslose Parameter G wurde in [Bur04] hergeleitet und beschreibt das durch den Dauerstrom I_0 erzeugte Magnetfeld \mathbf{B} am Ort \mathbf{r} . Dabei ist p der Mitte-zu-Mitte Abstand der Spulenbahnen und $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Vs/Am}$ die magnetische Permeabilität.

⁴FiniteElementMethodMagnetics, D.Meeker, <http://www.femm.info>

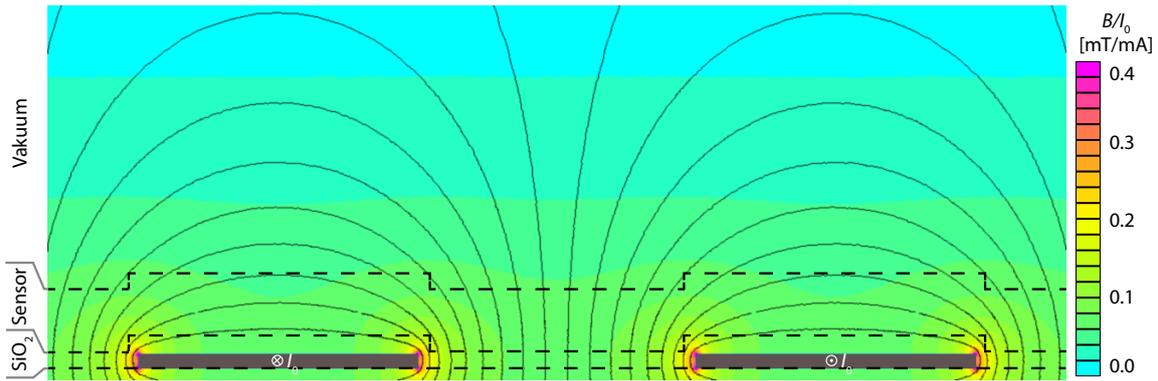


Abbildung 3.7: Verteilung des Magnetfelds um zwei benachbarte im Querschnitt dargestellte Bahnen der Detektionsspule (grau), erzeugt durch einen Dauerstrom I_0 . Die Magnetfeldlinien sind in schwarz und die Verteilung der Magnetfeldstärke in Falschfarben dargestellt. Durch gestrichelte Linien sind die Positionen einer 300 nm dicken Isolationslage aus SiO_2 sowie die eines $1,5 \mu m$ dicken Temperatursensors oberhalb eines Detektionsspulen-Paares mit einer Bahnbreite von $5 \mu m$ und einem Mitte-zu-Mitte Abstand von $10 \mu m$ angedeutet.

Der gewichtete Mittelwert $\langle G \rangle = 0,61$ ist aufgrund des dünneren Temperatursensors und der etwas dickeren Isolationslage um etwa 0,12 größer als in [Hen17]. Im Folgenden sowie in Abschnitt 4.4 wird deutlich, dass dies zu einem größeren erwarteten Signal und in der Folge auch einer besseren Energieauflösung führt.

3.4 Signalauslesung

Mit den bisher in diesem Kapitel erlangten Erkenntnissen von der Absorption eines Photons im Teilchenabsorber, über das Verhalten der Spins im Temperatursensor und der daraus resultierenden Magnetisierungsänderung des Sensors im durch die Detektionsspule erzeugten Magnetfeld, wird im Folgenden die im SQUID-Magnetometer zu erwartende Signalhöhe hergeleitet.

Aufgrund der im vorigen Abschnitt gezeigten Inhomogenität des im Sensor erzeugten Magnetfelds, ist die Magnetisierungsänderung

$$\delta M(\mathbf{r}) = \frac{\partial M(B(\mathbf{r}))}{\partial T} \frac{\delta E}{C_{\text{ges}}} \quad (3.9)$$

die ein Volumenelement dV am Ort \mathbf{r} im Temperatursensor erfährt ortsabhängig. Mit Hilfe des dimensionslosen Parameters G aus Gleichung 3.8 ergibt sich der Beitrag aus einem Volumenelement dV zur magnetischen Flussänderung in der gesamten

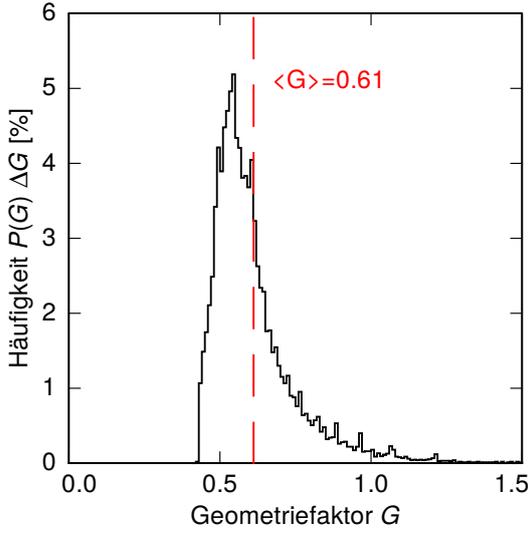


Abbildung 3.8: Häufigkeitsverteilung des dimensionslosen Parameters G in einem $1,5\ \mu\text{m}$ dicken Temperatursensor. Die Dimensionen entsprechen dabei den in Abbildung 3.7 angedeuteten, mit einer $300\ \text{nm}$ dicken Isolationslage sowie einer Schichtdicke der Spule von $250\ \text{nm}$, einer Streifenbreite von $5\ \mu\text{m}$ und einem Mitte-zu-Mitte Abstand von $10\ \mu\text{m}$.

Detektionsspule zu

$$d(\delta\Phi) = \frac{\mu_0}{p} G(\mathbf{r}/p) \delta M(\mathbf{r}) dV. \quad (3.10)$$

Die gesamte magnetische Flussänderung $\delta\Phi$ in der Detektionsspule in Folge eines Energieeintrags δE in den Absorber mit Wärmekapazität C_{abs} ergibt sich durch Integration über das gesamte Volumen V_{sens} des Temperatursensors. Dabei hängt die spezifische Wärme pro Volumen des Temperatursensors $c_{\text{sens}}(B(\mathbf{r}))$ ebenfalls vom Magnetfeld $B(\mathbf{r})$ am Ort \mathbf{r} im Sensor ab. Diese Ortsabhängigkeit kann durch die in Abbildung 3.8 gezeigte Häufigkeitsverteilung des Geometriefaktoren berücksichtigt werden. Somit ergibt sich für die magnetische Flussänderung pro Energieeintrag

$$\frac{\delta\Phi}{\delta E} = \frac{V_{\text{sens}}}{V_{\text{sens}} \langle c_{\text{sens}} \rangle + C_{\text{abs}}} \left\langle \mu_0 \frac{G}{p} \frac{\partial M}{\partial T} \right\rangle, \quad (3.11)$$

wobei

$$\langle X \rangle = \int_0^\infty X P(B) dB = \int_0^\infty X P(G) dG \quad (3.12)$$

den mit $P(G)$ gewichteten Mittelwert von X beschreibt.

Wie in Abbildung 3.6 dargestellt, besteht eine Detektoreinheit im gradiometrischen Aufbau aus zwei mäanderförmigen Detektionsspulen mit Induktivitäten L_m , die parallel zur Einkoppelspule mit Induktivität L_i des SQUID-Magnetometers verschaltet sind. Da der magnetische Fluss Φ in den drei geschlossenen supraleitenden Spulen jeweils erhalten ist, wird eine, durch einen der Temperatursensoren hervorgerufene, Flussänderung $\delta\Phi$ durch einen Abschirmstrom δI kompensiert. Dieser lässt sich mit Hilfe der Kirchhoffschen Regeln in der Einkoppelspule des SQUIDs durch

$$\delta I = \frac{\delta\Phi}{L_m + 2(L_i + L_B)} \quad (3.13)$$

ausdrücken. Dabei steht L_B für die Streuinduktivität der Verbindungsdrähte zwischen den Detektionsspulen des Detektorchips und der Einkoppelpule des SQUID-Chips. Die induktive Kopplung zwischen Einkoppelpule und SQUID kann über deren Induktivitäten L_i und L_S sowie einen Kopplungsfaktor k als Gegeninduktivität $M_{iS} = k\sqrt{L_i L_S}$ berücksichtigt werden. Die Änderung des magnetischen Flusses im SQUID-Magnetometer ergibt sich damit zu

$$\delta\Phi_S = M_{iS}\delta I = \frac{k\sqrt{L_i L_S}}{L_m + 2(L_i + L_B)}\delta\Phi. \quad (3.14)$$

3.5 Signalform

Um den Signalverlauf in Folge eines Energieeintrags E in den Teilchenabsorber vorherzusagen zu können, genügt es die Detektorkomponenten durch ein thermodynamisches System bestehend aus zwei Subsystemen anzunähern, wie in [Fle05] gezeigt. In Ab-

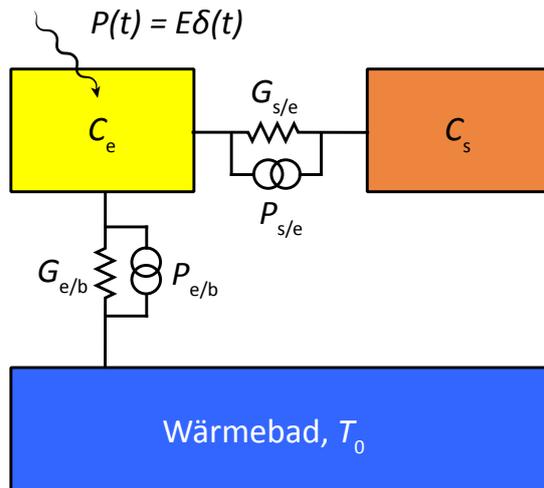


Abbildung 3.9: Thermodynamisches Modell der kanonischen Subsysteme eines metallischen magnetischen Kalorimeters nach [Fle05]. Dargestellt ist das System der Er^{3+} -Spins und das der Elektronen, jeweils gekennzeichnet durch den Index 's' bzw. 'e'. Mit C sind jeweils die Wärmekapazitäten, mit G die thermischen Leitfähigkeiten und mit P die jeweiligen Rauschleistungen bezeichnet. Der Index 'b' steht für das Wärmebad mit Temperatur T_0 .

bildung 3.9 sind die einzelnen Subsysteme sowie deren Verbindungen schematisch dargestellt. Da sich Absorber und Sensor in gutem thermischen Kontakt miteinander befinden, ist die Annahme gerechtfertigt, dass sich Phononen und Elektronen innerhalb des Detektors im thermischen Gleichgewicht befinden. Bei den gegebenen Betriebstemperaturen kann der Beitrag der Phononen vernachlässigt werden, wodurch ein Subsystem durch die Wärmekapazität C_e der dominierenden Elektronen beschrieben werden kann. In Abschnitt 3.2 wurde beschrieben wie dieses System an das der Spins im Temperatursensor, hier dargestellt durch die Wärmekapazität C_s , koppelt. Diese Kopplung wird in dem Modell durch die thermische Leitfähigkeit $G_{s/e}$ beschrieben, während die zum Wärmebad mit Temperatur T_0 durch $G_{e/b}$ gegeben ist. Betrachtet man die Änderungen des Energieinhalts \dot{E}_e und \dot{E}_s des jeweiligen Subsystems mit Temperatur T_e und T_s in Folge eines durch eine Deltadistribution

beschriebenen instantanen Energieeintrags $E\delta(t)$ in das Elektronensystem, so ergeben sich die zwei Differentialgleichungen

$$\dot{E}_e = C_e \dot{T}_e = G_{s/e}(T_s - T_e) + G_{e/b}(T_0 - T_e) + E\delta(t) \quad (3.15)$$

$$\dot{E}_s = C_s \dot{T}_s = G_{s/e}(T_e - T_s). \quad (3.16)$$

Die Größe die, wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, letztendlich ausgelesen wird, ist die Änderung der Sensortemperatur, also die der Spins T_s . Als eine Lösung der Differentialgleichungen für $t \geq 0$ ergibt sich

$$\Delta T_s = T_s - T_0 = \frac{E}{C_{\text{ges}}} (-e^{-t/\tau_0} + e^{-t/\tau_1}) =: \frac{E}{C_s} p(t) \quad (3.17)$$

mit der Gesamtwärmekapazität $C_{\text{ges}} = C_e + C_s$. Dabei wurde die Punktantwortfunktion $p(t) := \beta (-e^{-t/\tau_0} + e^{-t/\tau_1})$, die den zeitlichen Verlauf des Signals beschreibt, sowie der Anteil $\beta := C_s/C_{\text{ges}}$ der Spin-Wärmekapazität an der Gesamtwärmekapazität, definiert. Der Signalanstieg erfolgt also exponentiell mit der Zeitkonstanten τ_0 bis zu einem Maximalwert; die dann folgende Thermalisierung mit dem Wärmebad erfolgt ebenfalls exponentiell und mit einer Zeitkonstanten τ_1 . Die genauen Abhängigkeiten der Zeitkonstanten von den Wärmekapazitäten und -leitfähigkeiten sind in [Fle05] gegeben. An dieser Stelle genüge die Näherung gleicher Wärmekapazitäten von Teilchenabsorber und Temperatursensor ($C_e \approx C_s$), sowie einer schwachen Kopplung zum Wärmebad ($G_{e/b} \ll G_{s/e}$). Während τ_1 durch den thermischen Link zum Wärmebad bestimmt ist, ist τ_0 im fundamentalen Limit durch die Wechselwirkung zwischen den Spins im Temperatursensor mit den Leitungselektronen mit Temperatur T_e gegeben. Mit der Korringa-Relation $\kappa = \tau_K \cdot T_e$, erhält man den Ausdruck $\tau_{0,K} = (1 - C_s/C_{\text{ges}}) \tau_K$ für das fundamentale Limit der Signalanstiegszeit. Durch Einführen eines thermischen Flaschenhalses mit thermischer Leitfähigkeit $G_{a/s}$ zwischen Teilchenabsorber und Temperatursensor kann die Signalanstiegszeit gezielt ausgebremst werden. Insbesondere bei großen Absorbern können dadurch Abhängigkeiten vom Absorptionsortes der Photonen, die sich durch unterschiedliche Signalanstiegszeiten äußern, vermieden werden [Pie12]. Eine komplette Thermalisierung innerhalb des Teilchenabsorbers wird dadurch sichergestellt, bevor dieser mit dem Temperatursensor thermalisiert. Das Einstellen der Anstiegszeit

$$\tau_0 = \frac{C_a}{2G_{a/s}} \quad (3.18)$$

und der Abklingzeit

$$\tau_1 = \frac{C_{\text{ges}}}{G_{e/b}} \quad (3.19)$$

ist also über das Material und die Geometrie der thermischen Verbindungen des Temperatursensors zum Teilchenabsorber beziehungsweise Wärmebad und somit durch Justieren von $G_{a/s}$ beziehungsweise $G_{e/b}$ einfach möglich, wie dies in Abschnitt 4.1.1 beschrieben ist.

3.6 Energieauflösung

Die theoretisch zu erwartende Energieauflösung des Detektors wird einerseits durch die im vorherigen Abschnitt hergeleitete Signalform und -höhe an sich bestimmt, ist jedoch limitiert durch unterschiedliche Rauschbeiträge die sich dem Signal überlagern. Diese Beiträge, deren Ursprung sowie deren relativer Einfluss sollen im Folgenden kurz dargelegt werden.

Thermodynamische Energiefluktuationen machen den fundamentalen Rauschbeitrag in Mikrokalorimetern aus. In Abbildung 3.9 wurde durch die Rauschquellen $P_{s/e}$ und $P_{e/b}$ schematisch dargestellt, dass Energie im thermischen Gleichgewicht ($E\delta(t) = 0$) zwischen den Subsystemen sowie dem Wärmebad fluktuieren kann. Berücksichtigt man deren Leistungsspektren $S_{p_i} = 4k_B T^2 G_i$ in den Differentialgleichungen 3.15 und 3.16, so ergibt sich nach [Fle05] durch Fouriertransformation das Leistungsspektrum der Energiefluktuationen im Zeeman-System der Spins

$$S_{E_{s,td}}(f) = 4k_B T^2 C_s \left(\alpha_0 \frac{\tau_0}{1 + (2\pi\tau_0 f)^2} + \alpha_1 \frac{\tau_1}{1 + (2\pi\tau_1 f)^2} \right). \quad (3.20)$$

Dabei sind α_0 und α_1 Funktionen abhängig von den Wärmekapazitäten und Zeitkonstanten wobei $\alpha_0 + \alpha_1 = 1$ gilt. Da meist $\tau_0 \ll \tau_1$ gilt, kann zudem $\alpha_0 \approx 1 - \beta$ und $\alpha_1 \approx \beta$ genähert werden. In Abbildung 3.10 ist die spektrale Leistungsdichte

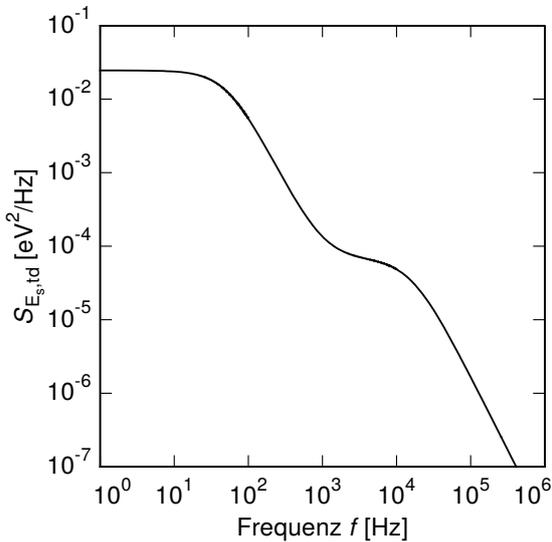


Abbildung 3.10: Spektrale Leistungsdichte der thermodynamischen Energiefluktuationen in Abhängigkeit von der Frequenz f . Es wurde in Anlehnung an die tatsächlichen Detektorparameter $\tau_0 = 10 \mu\text{s}$, $\tau_1 = 3 \text{ ms}$, $C_s = 11 \text{ pJ}$ und $\beta = 0,55$ und eine Temperatur von $T = 25 \text{ mK}$ angenommen.

des thermodynamischen Rauschens in Abhängigkeit der Frequenz f für $\tau_0 = 10 \mu\text{s}$, $\tau_1 = 3 \text{ ms}$, $C_s = 11 \text{ pJ}$ und $\beta = 0,55$ bei einer Temperatur von $T = 25 \text{ mK}$ abgebildet. Die beiden Zeitkonstanten τ_0 und τ_1 führen dazu dass die beiden Plateaus bei einer jeweils charakteristischen Frequenz $f_c = 1/2\pi\tau$ abschneiden. In Abschnitt 5.1.5 wird sich zeigen, dass diese Form das gemessene Rauschen sehr gut beschreibt und

dass das thermodynamische Rauschen bei dem verwendeten Detektor der dominante Beitrag zum Gesamtrauschen ist.

Magnetisches Johnson-Rauschen entsteht in den supraleitenden Detektionsspulen und den SQUIDs aufgrund der Wechselwirkung mit Elektronen in metallischen Komponenten in der unmittelbaren Umgebung, welche sich bei endlichen Temperaturen frei und zufällig bewegen, beziehungsweise den dadurch entstehenden Magnetfeldern. Den größten Einfluss haben daher der Temperatursensor und der Teilchenabsorber an sich, die nur durch eine dünne Isolationslage getrennt direkt auf der Detektionsspule angebracht sind. Einen weiteren Beitrag liefert die Detektorplattform, die häufig aus Kupfer besteht und auf der Detektor- und SQUID-Chip direkt aufgeklebt sind. In [Pie08] wurde das Leistungsspektrum für das magnetische Flussrauschen eines metallischen Quaders mit Höhe h , elektrischer Leitfähigkeit σ und Temperatur T nach einer Methode aus [Har68, Ens00] hergeleitet. Es gilt

$$S_{\Phi,J} = \frac{2,376}{4\pi} \mu_0^2 k_B T \sigma A p \left(e^{-2\pi d/p} - e^{-2\pi(d+h)/p} \right). \quad (3.21)$$

Der Quader befindet sich dabei in einem Abstand d über der mäanderförmigen Detektionsspule mit einem Mitte-zu-Mitte Abstand der Streifen p und einer gemeinsamen überlappenden Fläche A . In Abschnitt 4.4 wird sich herausstellen, dass der Anteil des magnetischen Johnson-Rauschens am Gesamtrauschen des Detektoraufbaus vernachlässigbar klein ist.

Das **1/f-Rauschen der Erbiumionen** spielt hauptsächlich bei kleinen Frequenzen eine Rolle. In [Dan05] wurde das Rauschen eines SQUID-Magnetometers systematisch untersucht und durch Hinzufügen von Au:Er-Proben unterschiedlicher Erbiumkonzentrationen konnte ein konzentrations- und frequenzabhängiger Rauschbeitrag identifiziert werden. Es wurde zudem beobachtet, dass dieser im Bereich zwischen 30 mK und 4,2 K temperaturunabhängig und proportional zur Erbiumkonzentration ist [Fle03]. Durch Messungen der Suszeptibilität von Au:Er Sensoren wurde gezeigt, dass dieser Rauschbeitrag durch deren Imaginärteil vollständig beschrieben werden kann [Hof12, Wiß13] und seinen Ursprung im Umklappen von Gruppen magnetischer Momente trägt. Weitere Messungen an metallischen Kalorimetern mit unterschiedlichen Geometrien und Au:Er-Sensoren zeigten, dass jedes Er^{3+} -Ion im Temperatursensor ein Rauschen mit Stärke $S_m(f) \approx 0,1 \mu_B^2 / f$ des magnetischen Moments beiträgt, was in der Summe zu einem magnetischen Flussrauschen

$$S_{\Phi,\text{Er}} = \frac{\mu_0^2 \langle G^2 \rangle}{p^2} S_m(f) N_{\text{Er}} \quad (3.22)$$

führt [Fle03]. Dabei ist G der Geometriefaktor aus Abschnitt 3.3, p der Mitte-zu-Mitte Abstand zweier benachbarter Detektionsspulenstreifen und N_{Er} die Anzahl an Erbium-Ionen im Temperatursensor. Das im Rahmen dieser Arbeit beobachtete

1/f-Rauschen der Erbiumionen mit Ag:Er-Sensor ist mit $S_m(f) \approx 0,03 \mu_B^2/f$ kleiner als aus den Daten der Au:Er-Sensoren erwartet. Ein Vergleich mit derzeit entwickelten Detektoren, die mit dem selben Ag:Er-Sputtertarget hergestellt wurden, jedoch andere Sensorgeometrien besitzen [Gam19, Vel19] wird Aufschluss über diesen Beitrag bringen.

Nicht zuletzt erzeugt die **Auslesungselektronik** einen Beitrag zum Gesamtrauschen. Dabei tragen die SQUID-Magnetometer, wie in Abschnitt 4.3.3 beschrieben, sowohl einen frequenzunabhängigen als auch einen zu $1/f$ proportionalen Rauschbeitrag $S_{\Phi_S, \text{SQ}}(f)$ bei. Ebenso trägt die Raumtemperaturelektronik zur Auslesung der SQUID-Magnetometer einen Teil zum Rauschen bei. Die Größenordnungen dieser Beiträge sind im Abschnitt 4.4 über die Simulation des Detektorsignals und dort in Tabelle 4.2 dargestellt.

Da sich das **Gesamtrauschen** aus den oben diskutierten Einzelbeiträgen über die gesamte Signalkette aufaddiert, kann man, um die einzelnen Beiträge miteinander vergleichen zu können, diese auf ein scheinbares magnetisches Flussrauschen im SQUID-Magnetometer umrechnen. Dazu benötigt man die Flusssensitivität $d\Phi/dE$, welche durch Gleichung 3.11 gegeben ist, sowie die induktive Fluss-zu-Fluss-Konversion $\delta\Phi_S/\delta\Phi$ zwischen Detektions- und SQUID-Spule aus Gleichung 3.14. Für das Gesamtrauschen des Detektors ergibt sich damit

$$S_{\Phi_S, \text{ges}} = \left(\frac{\delta\Phi_S}{\delta\Phi} \right)^2 \left(\left(\frac{1}{\beta} \frac{d\Phi}{dE} \right)^2 S_{E_S, \text{td}} + S_{\Phi, \text{J}} + S_{\Phi, \text{Er}} \right) + S_{\Phi_S, \text{SQ}}. \quad (3.23)$$

Die **erwartete Energieauflösung** des Detektors, wird, wie eingangs bereits erwähnt, durch die Signalform und -höhe sowie das Rauschen bestimmt. Dieses Verhältnis wird durch das sogenannte Signal-zu-Rauschen Verhältnis (*SNR*) ausgedrückt⁵.

$$SNR(f) = \frac{\tilde{p}(f)}{\sqrt{S(f)}} \approx \frac{1}{\sqrt{S(f)}} \frac{2\tau_1\beta}{\sqrt{1 + (2\pi\tau_0 f)^2} \sqrt{1 + (2\pi\tau_1 f)^2}} \quad (3.24)$$

Hierbei wurde die in Gleichung 3.17 eingeführte, den zeitlichen Verlauf des Detektorsignals beschreibende Punktantwortfunktion $p(t)$ in den Frequenzraum transformiert. Daraus ergibt sich die spektrale Dichte $\tilde{p}(f)$ des Signals, wobei bereits erneut angenommen wurde dass $C_s \approx C_e$ und $\tau_0 \ll \tau_1$. In Abbildung 3.11 ist $\tilde{p}(f)$ für einen Detektor mit $\tau_0 = 10 \mu\text{s}$, $\tau_1 = 3 \text{ms}$ und $C_s = 11 \text{pJ}$ bei einer Temperatur von $T = 25 \text{mK}$ abgebildet. Unterhalb von $f = \frac{1}{2\pi\tau_1} \approx 50 \text{Hz}$ ist \tilde{p} etwa konstant und fällt aufgrund der Abklingzeit dann zu höheren Frequenzen hin ab. Wegen der kleineren Signalanstiegszeit τ_0 erfolgt bei etwa $f = 1/(2\pi\tau_0) \approx 15 \text{kHz}$ ein weiterer Abfall zu noch höheren Frequenzen. Ebenfalls abgebildet ist das durch das thermodynamische Rauschen bestimmte Signal-zu-Rauschen Verhältnis. Es ist unterhalb von

⁵Abkürzung aus dem Englischen: **Signal-to-Noise-Ratio**.

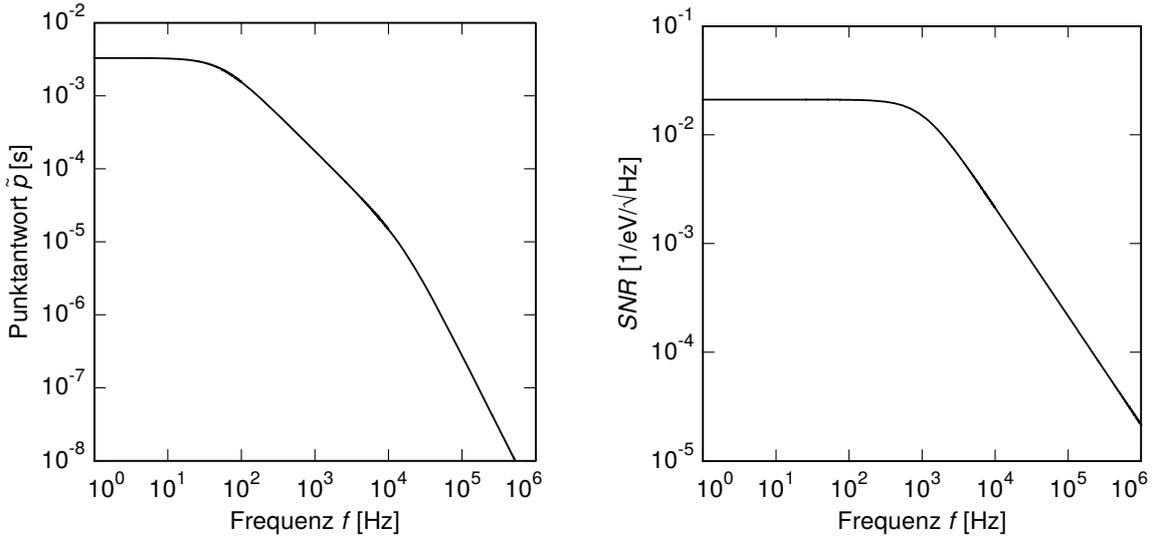


Abbildung 3.11: Punktantwort \tilde{p} (**links**) und das durch das thermodynamische Rauschen limitierte fundamentale Limit des Signal-zu-Rauschen Verhältnisses SNR (**rechts**) in Abhängigkeit von der Frequenz f . Es wurde jeweils ein Detektor mit $\tau_0 = 10 \mu\text{s}$, $\tau_1 = 3 \text{ms}$ und $C_s = 11 \text{pJ}$ bei einer Temperatur von $T = 25 \text{mK}$ angenommen.

etwa $f \approx 1 \text{kHz}$ konstant und fällt dann zu höheren Frequenzen ab. Die Berechnung der Energieauflösung hängt davon ab, auf welche Weise die Energie des detektierten Photons aus der Signalform bestimmt wird. In [Fle03] wurde die Methode des „Optimalen Filters“ ausführlich beschrieben und für eine Gauß-förmige Linienform eine Energiebreite auf halber Höhe (FWHM⁶) der Linie von

$$\Delta E_{\text{FWHM}} = 2\sqrt{2 \ln 2} \left(\int_0^{\infty} SNR^2(f) df \right)^{-1/2} \quad (3.25)$$

ermittelt.

Das **fundamentale Limit der Energieauflösung** erhält man, indem man alle theoretisch reduzierbaren Rauschbeiträge vernachlässigt und lediglich das fundamentale, thermodynamische Rauschen $S_{E_s,td}$ berücksichtigt. Nach [Fle03] erhält man dann die exakte Lösung

$$\Delta E_{\text{FWHM}} = 2\sqrt{2 \ln 2} \sqrt{4k_B T^2 C_e} \left(\frac{G_{e/b}}{G_{s/e}} + \frac{G_{e/b}^2}{G_{s/e}^2} \right)^{1/4}. \quad (3.26)$$

Nimmt man wieder $\tau_0 \ll \tau_1$ an und verkürzt den Ausdruck durch $\beta = C_s / (C_s + C_e)$, so ergibt sich

$$\Delta E_{\text{FWHM}} \approx 2\sqrt{2 \ln 2} \sqrt{4k_B T^2 C_e} \left(\frac{1}{\beta(1-\beta)} \cdot \frac{\tau_0}{\tau_1} \right)^{1/4}. \quad (3.27)$$

⁶Abkürzung aus dem Englischen: **F**ull **W**idth at **H**alf **M**aximum

Hieraus kann man bereits einige grundlegende Aussagen über den Betrieb des Detektors und mögliche Optimierungsmöglichkeiten treffen. So zeigt die Proportionalität der Energieauflösung zur Temperatur und zu $\sqrt{C_e}$, dass der Detektorbetrieb bei möglichst tiefen Temperaturen und mit möglichst kleinen Teilchenabsorbern hinsichtlich der Energieauflösung optimal ist. Wie im Falle der vorliegenden Arbeit, ist die Anforderung an die Absorberdicke häufig durch eine erforderliche Absorptionswahrscheinlichkeit (vgl. Abschnitt 2.3) fest vorgegeben und eine Reduzierung dieser würde sich nachteilig auf die Zählrate im interessanten Energiebereich auswirken. Die Signalanstiegszeit τ_0 kann aufgrund der Korringa-Relation nicht beliebig verkürzt werden und wird im Gegenteil, um eine gleichmäßige Thermalisierung im Absorber- und Sensorvolumen zu garantieren, häufig gezielt ausgebremst. Die Signalabklingzeit τ_1 zu vergrößern ist leicht durch Dimensionierung der Thermalisierung zum Wärmebad möglich, hat jedoch eine Vergrößerung der Detektor-Totzeit und somit eine Verringerung der möglichen Zählrate zur Folge. Optimal hingegen scheint ein Angleichen der Beiträge der Elektronen C_e und Spins C_s zu den Wärmekapazitäten von Teilchenabsorber und Temperatursensor zu sein, sodass $\beta = 1/2$ gilt.

Für vorliegende Detektorparameter mit der Signalanstiegszeit $\tau_0 = 10 \mu\text{s}$, der Signalabklingzeit $\tau_1 = 3 \text{ ms}$, den Wärmekapazitäten $C_{\text{sens}} = 11 \text{ pJ}$ und $C_{\text{abs}} = 9 \text{ pJ}$ und damit $\beta = 0,55$ bei einer Temperatur von $T = 25 \text{ mK}$ ergibt sich nach Gleichung 3.27 ein fundamentales Limit der Energieauflösung von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 2,7 \text{ eV}$.

4. Experimentelle Grundlagen

Für die im Rahmen dieser Arbeit angestrebten Messungen wurde ein neuer Detektor, basierend auf einem angepassten *maXs30*-Entwurf, mit sowohl großer Detektionsfläche als auch guter Energieauflösung verwendet. Im Folgenden wird zunächst das speziell für diese Messung angepasste und hergestellte Detektorarray *maXs30* in der Version *2b* vorgestellt. Das Vorgehen zur Präparation des felderzeugenden Dauerstroms, die zur Signalauslesung und -verstärkung verwendeten SQUID-Magnetometer sowie die Simulationen des erwarteten Detektorsignals werden im weiteren Verlauf diskutiert. Die Eigenschaften der verwendeten radioaktiven Strahlungsquellen sind Gegenstand des nächsten Abschnitts. Das Kapitel schließt mit jeweils einem Abschnitt über die Optimierung der Zählrate im für vorliegende Messungen relevanten Energiebereich, sowie einem Abschnitt über die Auslesung des Detektorsignals.

4.1 Der *maXs30*-Detektor

Mit einer Detektionsfläche von 16 mm^2 und einer spektralen Energieauflösung besser als $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10 \text{ eV}$ ist der zweidimensionale Detektor *maXs30* geradezu prädestiniert die in Abschnitt 2.3 erörterten Anforderungen an einen Detektor zur Messung der Isomerenergie von ^{229}Th zu erfüllen. Im Rahmen der Dissertation von D. Hengstler wurde der *maXs30*-Detektor entworfen, optimiert, hergestellt und ausführlich charakterisiert [Hen17]. Im Folgenden wird die Umsetzung des aus 32 Einzeldetektoren bestehenden Detektor-Arrangements vorgestellt und im Anschluss auf die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Modifikationen eingegangen.

4.1.1 Detektoraufbau

Der *maXs30*-Detektor besteht aus einer Anordnung von 64 einzelnen Detektoreinheiten, im Folgenden auch als 'Pixel' bezeichnet, jeweils bestehend aus einem Teilchenabsorber, einem Temperatursensor aus Ag:Er und einer supraleitenden mäanderförmigen Detektionsspule, wie sie jeweils in Abschnitt 3.1 bis 3.3 vorgestellt wurden. Zwei dieser Pixel werden jeweils über eine, in Abschnitt 3.3 beschriebene, gradiometrisch verschaltete Detektionsspule ausgelesen und bilden damit einen von 32 Einzeldetektoren.

Auf der linken Seite von Abbildung 4.1 ist eine schematische Zeichnung des gesam-

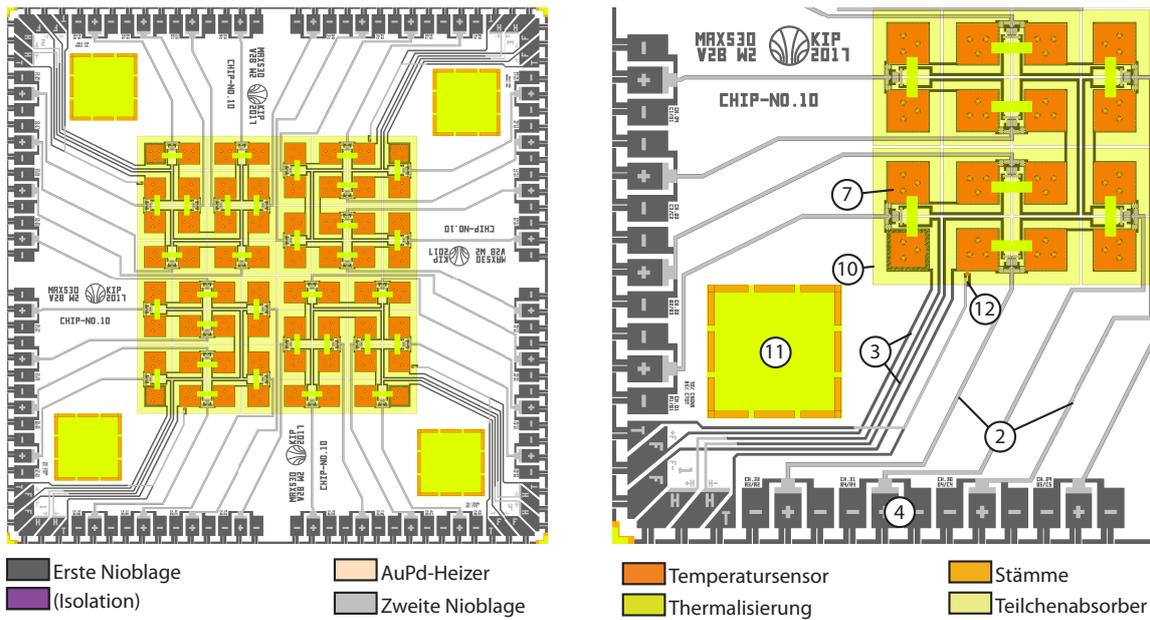


Abbildung 4.1: Technische Zeichnung des *maXs30*-Detektors im Überblick (**links**), vergrößerte Darstellung einer der vier Quadranten (**rechts**). Die Beschreibungen der einzelnen Komponenten finden sich im Text. Die Isolationslage ist hier zur besseren Übersicht nicht dargestellt.

ten Detektor-Chips, wie sie zur Mikrostrukturierung verwendet wird, abgebildet¹. Die rechte Seite zeigt vergrößert einen der vier identischen Quadranten in welchen, wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, jeweils separat ein Dauerstrom präpariert werden kann. Ein einzelner Detektor mit zusätzlich vergrößertem Ausschnitt um den Dauerstrom-Heizer findet sich in Abbildung 4.2. Die einzelnen Lagen wurden, wie in [Hen17] beschrieben, im institutseigenen Reinraum auf einem Silizium-Substrat mikrostrukturiert.

Beginnend mit der ersten Lage aus Niob, hier in Dunkelgrau dargestellt, in welcher die mäanderförmigen Detektionsspulen (1), die Leitungen zur Auslesung mittels SQUID-Magnetometer (2), sowie die zur Präparation des Dauerstroms (3) und die jeweiligen Anschlussflächen (4) strukturiert sind. Über letztere kann der Detektor über kalt-verschweißte Aluminium-Verbindungsdrähte mit den SQUIDS beziehungsweise mit der Verkabelung des Kryostaten verbunden werden. Die diagonale Anordnung der mäanderförmigen Detektionsspule sowie eine zusätzliche supraleitende Bahn um diese reduzieren das Übersprechen benachbarter Pixel, da sich die Ströme am Rand des Sensors gegenseitig aufheben [Fle05]. Zudem Verringern sie parasitäres Einkop-

¹Für den Entwurf wurde das Computerprogramm Virtuoso[®] verwendet - Cadence Design Systems Inc., Bagshot Road, Bracknell, Berkshire, RG12 OPH, United Kingdom

peln externer Magnetfelder. Die sich anschließende Isolationslage aus Siliziumdioxid ist in Abbildung 4.1 nicht zu sehen, da sie sich auf der gesamten Fläche befindet und lediglich an den Kontaktflächen am Chiprand, sowie an den Durchführungen in die zweite Niob-Lage, ausgespart ist. In dem vergrößerten Ausschnitt rechts in Abbildung 4.2 sind die Absorber und die zweite Niob-Lage ausgeblendet und dadurch diese Durchführungen, also Bereiche ohne Isolation, in Lila sichtbar (5). Hier ist ebenfalls der zur Präparation des Dauerstroms benötigte Heizer in hellem Beige zu erkennen (6). Er wird in der nächsten Lage aus einer Gold-Palladium-Legierung strukturiert, ist durch die Isolationslage elektrisch von der ersten Nioblage getrennt und kann diese, wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, über deren kritische Temperatur heizen. Um den Heizer zu kontaktieren und um tiefer gelegene Leitungen kreuzen zu können, folgt dann eine weitere Nioblage, hier dargestellt in hellem Grau. Um parasitäre Induktivitäten, das Einkoppeln externer Magnetfelder, sowie das Übersprechen von benachbarte Einzeldetektoren zu verringern, liegen die beiden Nioblagen bei den Leitungen zur Auslesung mittels SQUID-Magnetometer (2) nur durch die Isolationslage elektrisch getrennt direkt aufeinander.

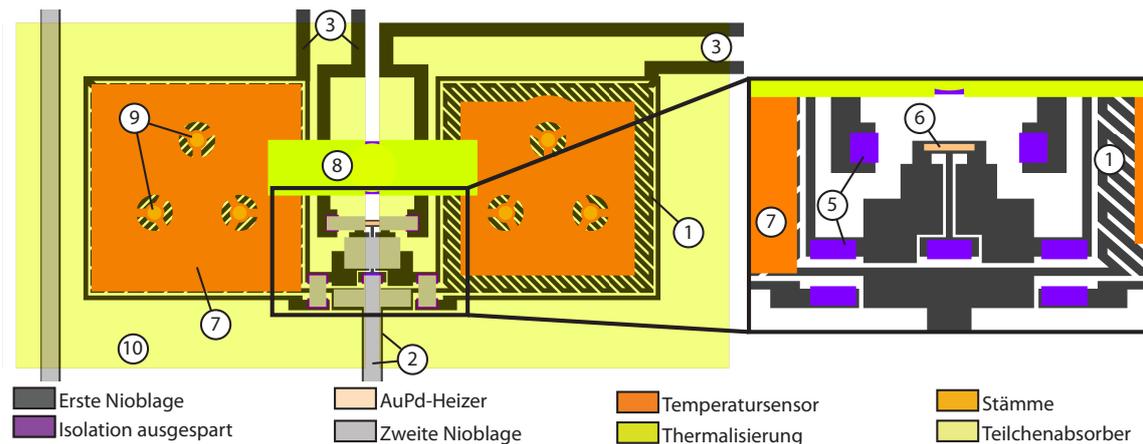


Abbildung 4.2: Technische Zeichnung eines einzelnen, nicht-gradiometrischen Einzeldetektors (**links**), vergrößerte Darstellung des zentralen Bereichs um den Heizer (**rechts**). Die Beschreibungen der einzelnen Komponenten finden sich im Text. In der vergrößerten Darstellung wurden die Teilchenabsorber sowie die zweite Nioblage ausgeblendet.

Der aus Ag:Er bestehende paramagnetische Temperatursensor (orange, 7) befindet sich in dem durch den Dauerstrom in der mäanderförmigen Detektionsspule (1) erzeugten Magnetfeld. Zum Schutz vor Oxidation wird er durch eine dünne Goldschicht abgedeckt. Durch einen Steg aus Gold (8) kann die Signalabklingzeit, also die Thermalisierungsdauer zum Wärmebad eingestellt werden. Abbildung 4.2 zeigt einen der vier nicht-gradiometrischen Einzeldetektoren bei welchen die rechte Sensorfläche um etwa 30 % kleiner ist. Dadurch reagiert dieser Einzeldetektor auf Temperaturschwan-

kungen des gesamten Detektorchips, was, wie in Abschnitt 5.2.2 beschrieben, zur Korrektur der Signalhöhen ausgenutzt wird. Über jeweils drei Stämme aus Gold (9) mit einem Durchmesser von jeweils $20\ \mu\text{m}$ wird die effektive Kontaktfläche zwischen einem Temperatursensor und dem jeweiligen Teilchenabsorber (10) auf $0,38\%$ der Absorberfläche reduziert. Dadurch wird ein Signalverlust durch athermische Phononen minimiert (vgl. Abschnitt 3.1). Jeder einzelne Stamm hat zudem nur über drei definierte Stege Kontakt zum Temperatursensor wodurch die Signalanstiegszeit gezielt ausgebremst und dadurch eine vollständige Thermalisierung des Teilchenabsorbers sichergestellt werden kann. Wie in Abschnitt 3.6 beschrieben wurde, hängt die Dimensionierung des Temperatursensors von der des Teilchenabsorbers ab, wobei sich letztere aus den Anforderungen der jeweiligen Messung ergibt. Für vorliegende Arbeit wurde eine Sensordicke von $1,5\ \mu\text{m}$ und eine Absorberdicke von $20\ \mu\text{m}$ gewählt. Die Lücke zwischen zwei benachbarten Teilchenabsorbern (10), dargestellt in transparentem Gelb, beträgt $20\ \mu\text{m}$, sodass durch die 64 Teilchenabsorber mit einer Fläche von jeweils $500\ \mu\text{m} \cdot 500\ \mu\text{m}$ insgesamt eine aktive Fläche des Detektors von $16\ \text{mm}^2$ und ein Füllfaktor von $93,3\%$ erreicht wird. Die Anzahl an Photonen, die ihre Energie direkt im Substrat deponieren und dadurch unerwünschte Signale erzeugen, ist daher also gering.

In den Ecken des Detektorchips befinden sich zudem vier Quadrate aus Gold (11) über welche der gesamte Chip zur besseren Thermalisierung mechanisch an die Experimentierplattform angeedrückt werden kann. Zur Energiekalibration und zum Erfassen von Langzeitschwankungen der Signalhöhe, zum Beispiel auf Grund von Temperaturschwankungen, ist am Temperatursensor eines Pixels in jedem Quadranten ein zusätzlicher Heizer angebracht (12), über welchen zukünftig gezielt Testsignale auf den Detektor gegeben werden können.

4.1.2 Anpassungen im Design des Detektors

Im Vergleich zu [Pon17, Hen17] wurden einige Anpassungen im Design und den Dimensionen des *maXs30*-Detektors durchgeführt um diesen einerseits auf den Stand neuester Forschung zu bringen und ihn andererseits optimal auf die Messung der Isomerenergie von ^{229}Th abzustimmen. Im Folgenden werden diese Neuerungen vorgestellt und die wichtigsten Detektoreigenschaften tabellarisch zusammengefasst.

Die Anzahl der temperatursensitiven Einzeldetektoren wurde von einem auf vier erhöht, sodass sich nun in allen vier Ecken des Detektors und dadurch in jedem Quadranten einer befindet. So ist es nun möglich Temperaturgradienten innerhalb des Detektors zu untersuchen und gegebenenfalls die vier Temperaturinformationen zu kombinieren. Zudem bilden vier Pixel eine Redundanz gegenüber technischer Ausfälle einzelner Detektoren, die die Wahrscheinlichkeit einer erfolgreichen Temperaturkor-

rektur deutlich erhöhen.

Zusätzlich wurde die Temperatursensitivität dieser vier asymmetrischen Einzeldetektoren erhöht, indem die Sensorfläche des jeweils kleineren Pixels von 90 % auf 70 % des Partnerpixels angepasst wurde. Aus den Erfahrungen aus vorherigen Arbeiten (z.B. [Sch16]) wurde deutlich, dass dies insbesondere bei kleinen Feldströmen hilfreich ist.

<u>Leitungen und Detektionsspule</u>		<u>Temperatursensor</u>	
Material	Nb	Material	<u>Ag:Er</u>
Dicke untere Lage	250 nm	Fläche	298 μm \cdot 298 μm
Dicke obere Lage	400 μm	Dicke	1,5 μm
Streifenbreite Spule	5 μm	<u>Teilchenabsorber</u>	
Streifenabstand Spule	5 μm	Material	Au
Streifenbreite zum SQUID:		Fläche	500 μm \cdot 500 μm
untere Lage	30 μm	Dicke	20 μm
obere Lage	24 μm	<u>Stämme</u>	
Dicke Isolation	300 nm	Material	Au
<u>Heizer des Dauerstromschalters</u>		Durchmesser	20 μm
Material	AuPd	Höhe	7 μm
Länge	20 μm	Abdeckung der	
Breite	5 μm	Absorberfläche	0,38 %
Dicke	60 nm	<u>Therm. Link zw. Absorber und Sensor</u>	
Widerstand	8,8 Ω	Material	<u>Ag:Er + Au</u>
<u>Therm. Link zum Wärmebad</u>		Querschnittsfläche	9 \cdot 108 μm^2
Material	Au	Länge	12 μm

Tabelle 4.1: Zusammenfassung der wichtigsten Parameter und Detektoreigenschaften des *maXs30v2b*-Detektors. Die mit * markierten Werte stammen aus experimentellen Messungen, die in Kapitel 5 vorgestellt werden. Weitere Details befinden sich in [Hen17].

Weiterhin wurden die Kontaktierungen zwischen dem Detektor-Chip mit den SQUID-Chips durch Hinzufügen einer dritten Kontaktfläche symmetrisiert (vgl. Abbildung 4.2). Bei zwei Kontaktflächen entsteht durch die Aluminium-Verbindungsdrähte eine zusätzliche supraleitende Schleife in welche externe Magnetfelder einkoppeln können. Durch eine Symmetrisierung mit einer dritten Kontaktfläche und aufgrund des Übereinanderliegens der Leitungen auf Detektor- und SQUID-Chips, entstehen zwei zusätzliche Schleifen in welchen sich die Störsignale im Idealfall betragsmäßig gegenseitig aufheben [Sch19]. In [Bus18] konnte dies experimentell in einem direkten

Vergleich zwischen zwei und drei Kontaktflächen durch Bewegen eines Permanentmagneten außerhalb des Kryostaten bestätigt werden.

Die Schichtdicken der Teilchenabsorber wurden von $30\ \mu\text{m}$ auf $20\ \mu\text{m}$ und die der Temperatursensoren von $3,5\ \mu\text{m}$ auf $1,5\ \mu\text{m}$ reduziert. Ersteres folgt hauptsächlich aus der in Abschnitt 4.7 diskutierten Absorptionseffizienz des Goldabsorbers im relevanten Energiebereich, geht jedoch ebenfalls einher mit der in Abschnitt 2.3 geforderten Energieauflösung und dem in Abschnitt 4.7 diskutierten Zusammenspiel zwischen der Aufnahmezeit des Detektors und der Zerfallsrate der radioaktiven Quelle. Die Dicke der Temperatursensoren folgt dann gemäß Abschnitt 3.6 aus einer Optimierungssimulation des Detektorsignals.

4.2 Präparation des felderzeugenden Dauerstroms

Das für den Betrieb des Detektors benötigte Magnetfeld wird, wie in Kapitel 3.3 beschrieben wurde, durch einen Dauerstrom I_F in der mäanderförmigen Detektionsspule erzeugt. Wie dieser über einen Dauerstromschalter eingepreßt werden kann, ist in Abbildung 4.3 in drei Schritten dargestellt. Zunächst ist die Grundvoraussetzung, dass die Detektortemperatur niedriger als die kritische Temperatur $T_{c,\text{Nb}} = 9,2\text{K}$ der Leitungen aus Niob ist und dass deren kritischer Strom I_c , limitiert durch die

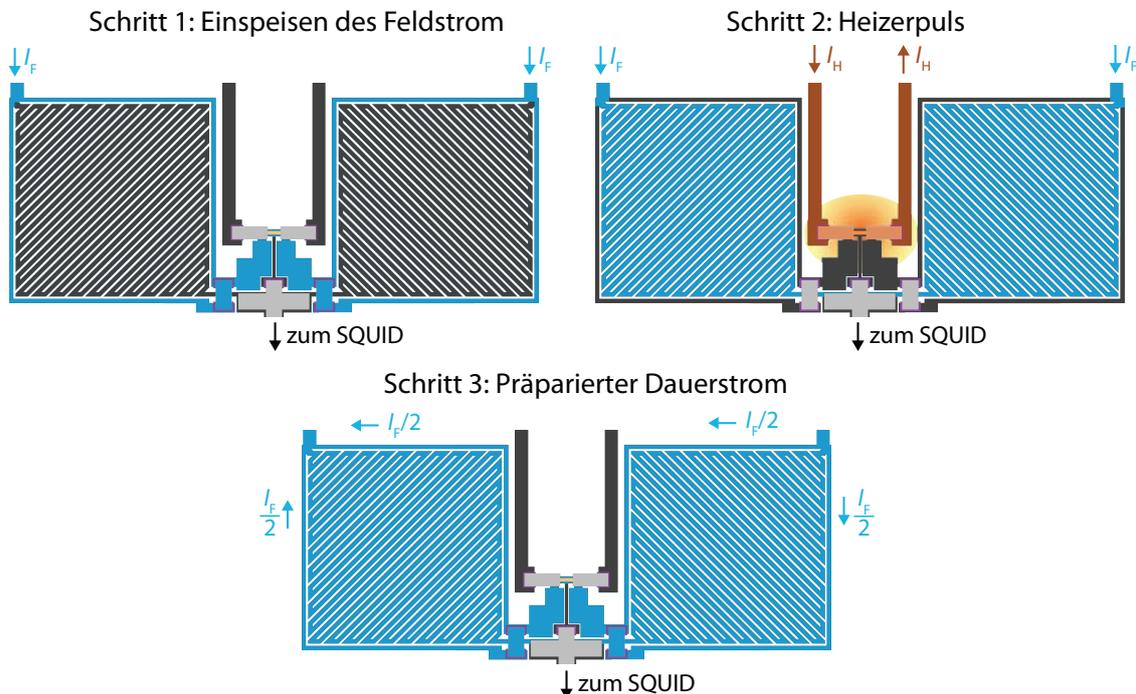


Abbildung 4.3: Die drei Schritte zur Präparation des felderzeugenden Dauerstroms.

Materialreinheit und die Leitungsdimensionen, größer als der gewünschte Feldstrom $I_F < I_c$ ist. In Schritt 1 wird der gewünschte Feldstrom I_F eingespeist und fließt zunächst hauptsächlich durch die Leitungen um die mäanderförmigen Detektionsspulen herum, hier eingefärbt in blau, da diese eine viel geringere Induktivität haben als die mäanderförmige Spule selbst. Durch einen kurzen Heizerpuls mit Stromstärke I_H wird in Schritt 2 ein Teil der Leitung durch den der in Schritt 1 eingespeiste Feldstrom fließt, über die kritische Temperatur geheizt und somit normalleitend getrieben. Dieser Bereich unter dem Heizer besitzt in diesem Moment einen endlichen elektrischen Widerstand, sodass der Feldstrom bevorzugt den weiterhin supraleitenden Weg durch die mäanderförmige Spule nimmt (blau eingefärbt). Schritt 3 zeigt schließlich den erfolgreich präparierten Dauerstrom I_F , wobei der Stromkreis über die Leitungen um die Spule (jeweils $I_F/2$) und den nun wieder abgekühlten und supraleitenden Bereich unter dem Heizer geschlossen wird. Aufgrund der Flusserhaltung in einer supraleitenden Spule bleibt dieser Dauerstrom erhalten [Mei33], auch wenn die entsprechende Stromquelle abgeschaltet wird.

Die Feld- und Heizerleitungen in jedem der vier Detektorquadranten sind jeweils in Serie geschaltet, sodass ein Dauerstrom immer in alle acht Detektoren gleichzeitig eingepreßt wird. Eine Neuerung im Design des *maXs30*-Detektors im Vergleich zu älteren Modellen ([Heu11, Pie12, Sch12]) ist, dass die Verbindungsleitung zu den SQUID-Magnetometern in Schritt 2 ebenfalls lokal geheizt wird und so kein unerwünschter Dauerstrom in dieser ebenfalls supraleitenden Schleife entsteht.

4.3 Signalaufnahme mittels SQUID-Magnetometern

Die infolge einer Temperaturänderung des Temperatursensors auftretende Änderung des magnetischen Flusses in der supraleitenden Detektionsspule ist, wie in Abschnitt 3.4 beschrieben wurde, das auszulesende Detektorsignal. Im Folgenden wird die Funktionsweise eines SQUID²-Magnetometers näher beleuchtet, in ein welches dieses Signal induktiv eingekoppelt und letztendlich in ein Spannungssignal umgewandelt wird. Dazu wird zunächst die prinzipielle Funktionsweise eines einzelnen dc-SQUIDs und schließlich die Realisierung eines zweistufigen Aufbaus zur optimalen Verstärkung und Linearisierung des SQUID-Signals vorgestellt.

4.3.1 Prinzipien eines dc-SQUIDs

Ein dc-SQUID ist ein hochempfindlicher flussabhängiger Widerstand, basierend auf dem Josephson-Effekt [Jos62]. Eine detaillierte Beschreibung befindet sich in [Cla04].

²kurz für: Supraleitender QUanten Interferenz Detektor

Grundsätzlich besteht ein dc-SQUID aus einer supraleitenden Schleife, die an zwei Stellen durch nicht-supraleitende Barrieren, sogenannte Josephson-Kontakte, unterbrochen ist. Diese meist sehr dünnen Unterbrechungen ermöglichen einem magnetischen Fluss in die Schleife ein- oder auszutreten. Im schematischen Schaltbild in Abbildung 4.4 wird das SQUID über einen konstanten Betriebsstrom I_b betrieben, zudem sind sogenannte Nebenwiderstände eingezeichnet, durch welche hysteretische Effekte vermieden werden [Wei96].

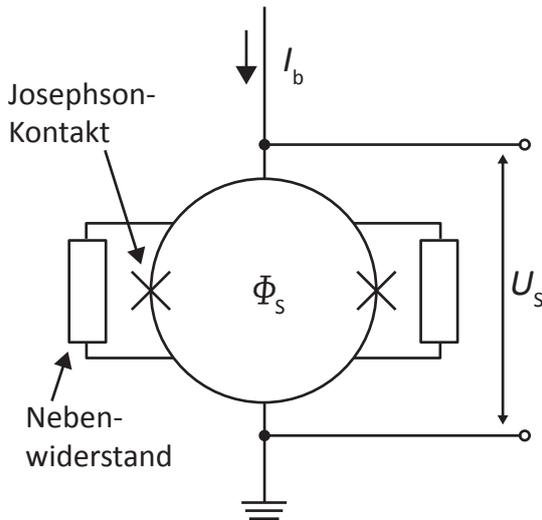


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung eines dc-SQUID-Magnetometers im Betrieb mit konstantem Strom I_b . Eine supraleitende Schleife wird dazu durch zwei Josephson-Kontakte unterbrochen. Parallel geschaltete Nebenwiderstände verhindern ein hysteretisches Verhalten des SQUIDs.

Auf der linken Seite von Abbildung 4.5 ist der Spannungsabfall U_s über dem SQUID in Abhängigkeit vom Betriebsstrom I_b dargestellt. Bei kleinen Betriebsströmen können die im Supraleiter zu Cooper-Paaren gebundenen Elektronen [Coo56] die Josephson-Kontakte durch Tunneln verlustfrei überwinden. Es fällt dann keine Spannung über dem SQUID ab. Abhängig vom Material und den Dimensionen ist dies nur bis zu einer kritischen Stromstärke I_c möglich. Bei höheren Strömen $I_b > I_c$ brechen Cooper-Paare auf und es entstehen sogenannte Quasiteilchen, die dann durch die Barrieren tunneln und einen Spannungsabfall U_s über dem SQUID erzeugen. Der kritische Strom I_c hängt periodisch vom magnetischen Fluss Φ_s der in der Spule eingeschlossen ist, ab. Die Periodizität wird dabei durch das magnetische Flussquant $\Phi_0 = h/2e \approx 2,07 \cdot 10^{-15}$ Vs bestimmt. In Abbildung 4.5 (links) sind daher die beiden Spannungskurven jeweils für die Extrema $\Phi_s = n\Phi_0$ und $\Phi_s = (n + 1/2)\Phi_0$, mit einer natürlichen Zahl n , eingezeichnet.

Auf der rechten Seite von Abbildung 4.5 ist die Fluss-Spannungs-Kennlinie für einen festen Betriebsstrom von $I_b = 30,4 \mu\text{A}$ dargestellt. Dabei hängt die Spannung U_s periodisch vom magnetischen Fluss Φ_s im SQUID ab. Prinzipiell ist das SQUID in diesem Betriebsmodus ein hochempfindlicher Fluss-zu-Spannungs-Konverter, jedoch ist das Ausgangssignal nur in einem kleinen Bereich von etwa $\Phi_0/4$ um den steilsten Arbeitspunkt linear.

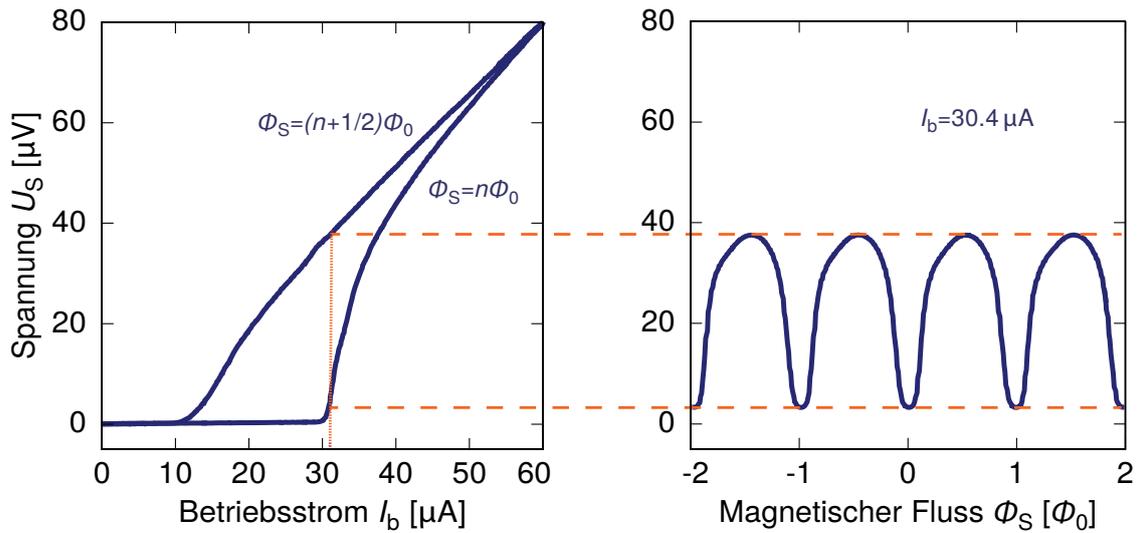


Abbildung 4.5: Links: Strom-Spannungs-Kennlinie eines dc-SQUIDs für die beiden Extrema an in der Spule eingeschlossenem magnetischen Fluss $\Phi_S = n\Phi_0$ und $\Phi_S = (n+1/2)\Phi_0$. Dabei ist n eine natürliche Zahl. **Rechts:** Fluss-Spannungs-Kennlinie für einen konstanten Betriebsstrom von $I_b = 30,4 \mu\text{A}$.

4.3.2 Zweistufiger Aufbau

Durch Hinzufügen einer zweiten Verstärkungsstufe zum zuvor beschriebenen einstufigen Aufbau, kann der Einfluss der Raumtemperaturelektronik³ auf das Gesamtrauschen des Detektorsignals deutlich reduziert werden. Zudem kann das dc-SQUID der ersten Verstärkerstufe derart entlastet werden, sodass dort, also in der näheren Umgebung des Detektors, weniger Leistung dissipiert wird. In Abbildung 4.6 ist die Realisierung eines solchen zweistufigen SQUID-Aufbaus mit einer Serienschaltung aus N Verstärker-SQUIDs (in blauer Farbe hinterlegt) schematisch dargestellt. Letztere befindet sich ebenfalls bei tiefen Temperaturen und wird durch den Betriebsstrom I_{b2} versorgt. Das dc-SQUID der ersten Stufe ist in lila Farbe hinterlegt und wird im Gegensatz zum vorangegangenen Abschnitt im Spannungsmodus betrieben um die Wärmedissipation zu minimieren. Dabei fließt der Betriebsstrom I_{b1} hauptsächlich durch den Lastwiderstand R_g wodurch das SQUID mit einer annähernd konstanten Spannung betrieben werden kann. Der kleine Anteil $I_c \ll I_{b1}$ des Betriebsstroms, der durch das SQUID fließt, hängt vom Fluss in der SQUID-Schleife ab. Eine Flussänderung in der ersten Verstärkerstufe erzeugt also eine Stromänderung, welche wiederum über eine Einkoppelspule mit Gegeninduktivität M_{iA} als Flussänderung in die zweite Stufe eingespeist und dort in ein Spannungssignal umge-

³Modell: XXF-1 der Firma Magnicon GmbH, Barkhausenweg 11, 22339 Hamburg, Deutschland

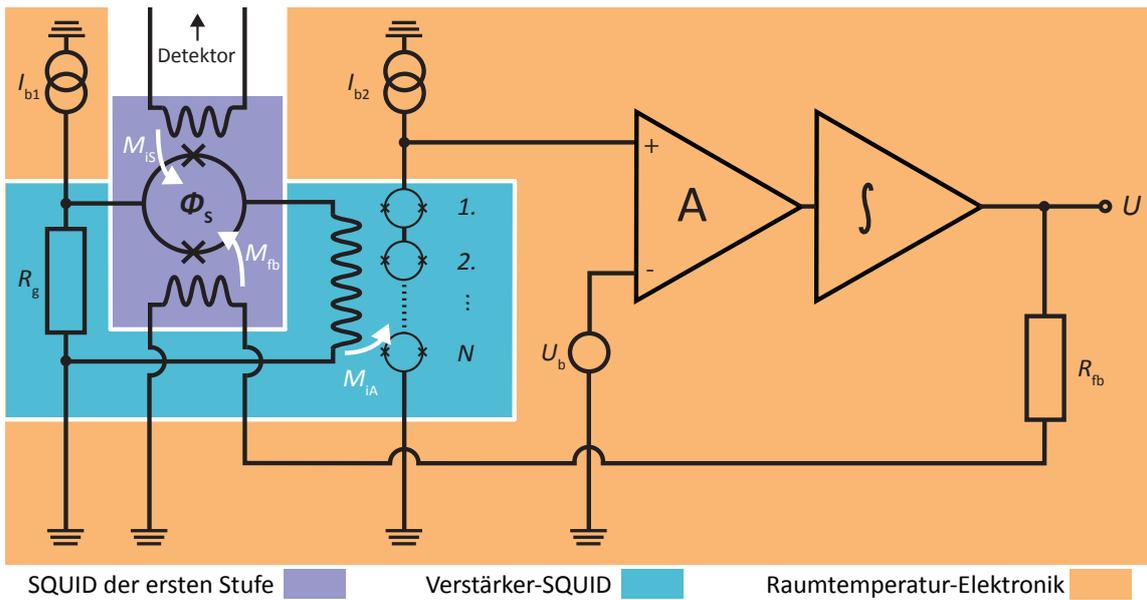


Abbildung 4.6: Schematische Darstellung eines zweistufigen SQUID-Aufbaus. Die erste Stufe (in lila Farbe hinterlegt) besteht aus einem im vorigen Abschnitt beschriebenen dc-SQUID, hier betrieben im Spannungsmodus. In blauer Farbe hinterlegt ist die zweite Stufe – der aus einer Serie aus N im Strommodus betriebenen Einzel-SQUIDS bestehende Tiefemperaturverstärker. Die übrigen Komponenten, wie die Stromquellen, Verstärker sowie die Rückkopplung befinden sich in einer Elektronik bei Raumtemperatur (orange).

wandelt wird. Befinden sich alle N SQUIDS der zweiten Stufe in Phase, so addieren sich deren Spannungs-Fluss-Charakteristiken konstruktiv, sodass sich eine um den Faktor N erhöhte Ausgangsspannung ergibt.

Aufgrund der in Abbildung 4.5 gezeigten Nicht-Linearität der Fluss-Spannungs-Kennlinie eines dc-SQUIDS bietet sich zur Linearisierung des Ausgangssignals eine Fluss-Rückkoppelung an. Dabei wird die in der SQUID-Elektronik bei Raumtemperatur verstärkte Ausgangsspannung U integriert und über einen Rückkoppelwiderstand R_{fb} und eine Rückkoppelspule mit der Gegeninduktivität M_{fb} wieder in das dc-SQUID der ersten Verstärkerstufe eingespeist und dem ursprünglichen Magnetisierungssignal $\Delta\Phi_s$ entgegengesetzt. Der zweistufige SQUID-Aufbau wird dadurch immer auf dem selben Punkt der Fluss-Spannungs-Kennlinie, dem sogenannten Arbeitspunkt, festgehalten. Diese linearisierte Kompensationsspannung ist proportional zur im Detektor erzeugten Magnetisierungsänderung $\Delta\Phi_s$ im SQUID und kann dadurch als Ausgangssignal verwendet werden. Einen maximalen Verstärkungsfaktor erhält man dabei durch Betreiben der SQUIDS an der steilsten Stelle der jeweiligen Kennlinie, was über die Betriebsströme I_{b1} und I_{b2} justiert werden kann.

Zusammenfassend kann die Ausgangsspannung U nun über die Flussänderung $\Delta\Phi_S$

der ersten Stufe, die über dem Widerstand R_{fb} mit der Gegeninduktivität M_{fb} in das SQUID der ersten Stufe rückgekoppelt wird, ausgedrückt werden. Die Flussänderung $\Delta\Phi_{\text{S}}$ kann dabei durch den in der ersten Stufe erzeugten Strom I_{S} und die Gegeninduktivität M_{IS} ausgedrückt werden. Es gilt:

$$U = \frac{R_{\text{fb}}}{M_{\text{fb}}} \Delta\Phi_{\text{S}} = R_{\text{fb}} \frac{M_{\text{IS}}}{M_{\text{fb}}} I_{\text{S}}. \quad (4.1)$$

Die Gegeninduktivitäten $M_{\text{x}} = k_{\text{x}} \sqrt{L_{\text{S}} L_{\text{x}}}$ werden dabei jeweils durch eine Kopplungskonstante k und den Induktivitäten des SQUIDs L_{S} und der der jeweiligen Einkoppelpule L_{x} bestimmt.

4.3.3 Beitrag zum Rauschen

Ein zweistufiger SQUID-Aufbau, wie er im vorigen Abschnitt vorgestellt wurde, trägt mit einem von der Frequenz unabhängigen $S_{\Phi_{\text{S}}}^{\text{w}}$ und einem frequenzabhängigen Beitrag $S_{\Phi_{\text{S}}}^{1/f}(1 \text{ Hz}) \cdot (f/\text{Hz})^{-\xi}$ zum Gesamtrauschen des Detektors bei. Ist der Spannungshub der Verstärker-SQUIDs groß genug, so dominiert das Rauschen der SQUIDs der ersten Stufe den Beitrag und das weiße Rauschen des Lastwiderstands sowie das der Ausleseelektronik sind vernachlässigbar. Das weiße SQUID-Rauschen ist ein vom Nebenwiderstand R erzeugtes Spannungsrauschen, welches in ein magnetisches Flussrauschen mit einer Leistungsdichte von

$$S_{\Phi_{\text{S}}}^{\text{w}} = \frac{18k_{\text{B}} T L_{\text{S}}^2}{R} \quad (4.2)$$

simuliert werden kann. Dabei wurde eine ideale SQUID-Geometrie mit einer SQUID-Induktivität L_{S} angenommen [Tes77, Bru82]. Aus einer durch Selbstheizeffekte der Nebenwiderstände verursachten angenommenen Arbeitstemperatur eines SQUIDs von $T = 200 \text{ mK}$, einem Widerstand $R = 8 \Omega$ und einer Induktivität von $L_{\text{S}} = 80 \text{ pH}$ folgt daher ein weißes Rauschen von $S_{\Phi_{\text{S}}}^{\text{w}} \approx (100 \text{ n}\Phi_0)^2/\text{Hz}$. Das frequenzabhängige $1/f$ -Rauschen spielt hauptsächlich bei kleinen Frequenzen eine Rolle. Mit typischen Exponenten ξ zwischen 0,6 und 1,2 [Kem16] beträgt die Amplitude des Flussrauschens bei 1 Hz etwa $S_{\Phi_{\text{S}}}^{1/f}(1 \text{ Hz}) \approx (5 \mu\Phi_0)^2/\text{Hz}$. Der Ursprung des $1/f$ -SQUID-Rauschens ist noch nicht vollständig verstanden. Möglicherweise wird es durch magnetische Momente an der Oberfläche der SQUID-Schleife [Koc07] oder in den Josephson-Kontakten erzeugt [Kum16, dG17].

4.4 Simulation des erwarteten Detektorsignals

Mit den bis zu dieser Stelle erlangten Informationen über die Eigenschaften der SQUID-Magnetometer und deren Beitrag zum Gesamtrauschen des Detektors sind

alle benötigten Parameter vorhanden um das Detektorsignal sowie die erwartete Energieauflösung zu berechnen. Die grundlegenden Eigenschaften des Detektors werden in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Zusätzlich fließen die in Abschnitt 5.1.4 abgeschätzte reale Detektortemperatur von 25 mK und die Er^{3+} -Konzentration von 430 ppm, deren Messung in Abschnitt 5.1.2 beschrieben ist, in die Berechnungen mit ein. In Tabelle 4.2 sind die weiteren für die Simulation verwendeten Parameter zusammengefasst. Die mit * markierten Werte stammen dabei aus den in Kapitel

<u>Allgemein</u>	
Reale Detektortemperatur T	25 mK*
Felderzeugender Dauerstrom I_0	90 mA
Signalanstiegszeit τ_0	9,6 μs *
Signalabklingzeit τ_1	2,7 ms*
Bond-Draht-Induktivität L_B	0,29 nH*
<u>Temperatursensor</u>	
Erbiumkonzentration	430 ppm*
Wechselwirkungsparameter α	12,5
Restwiderstandsverhältnis $RRR_{\text{Ag:Er}}$	2,4
1/ f - Er^{3+} -Rauschen $S_{\Phi}^{\text{Er}}(1 \text{ Hz})$	$(0,03 \mu\Phi_0)^2/\text{Hz}$
1/ f -Exponent ζ	0,9
<u>SQUID-Magnetometer</u>	
Einkoppelinduktivität L_i	1,1 nH
Eingangssensitivität $1/M_{\text{in}}$	$8,9 \mu\text{A} \Phi_0^{-1}$
Weißes Rauschen S_{Φ}^{w}	$(0,45 \mu\Phi_0)^2/\text{Hz}$
1/ f -Anteil $S_{\Phi}^{1/f}(1 \text{ Hz})$	$(5 \mu\Phi_0)^2/\text{Hz}$
1/ f -Exponent ξ	0,9

Tabelle 4.2: Parameter zur Simulation des *maXs30v2b*-Detektor-Signals. Die mit * markierten Werte wurden experimentell bestimmt und werden in Kapitel 5 hergeleitet.

5 diskutierten Messungen. Der Parameter $\alpha = 12,5$, durch welchen die experimentellen Messdaten in [Hen17] beschrieben werden konnten, gibt das Verhältnis der RKKY- und Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen einzelnen Er-Spins in der Ag:Er-Legierung an. Das Restwiderstandsverhältnis RRR^4 gibt das Verhältnis der elektrischen Widerstände bei Raumtemperatur und 4 K an und ist dadurch ein Maß für die durch Defekte beeinträchtigte Reinheit eines Materials. Für das Er^{3+} -Rauschen sowie das des zweistufigen SQUID-Aufbaus wurden für derartige Aufbauten typische Werte angenommen. In Abbildung 4.7 werden links die einzelnen Rauschbeiträge,

⁴Akronym aus dem Englischen: **R**esidual **R**esistivity **R**atio

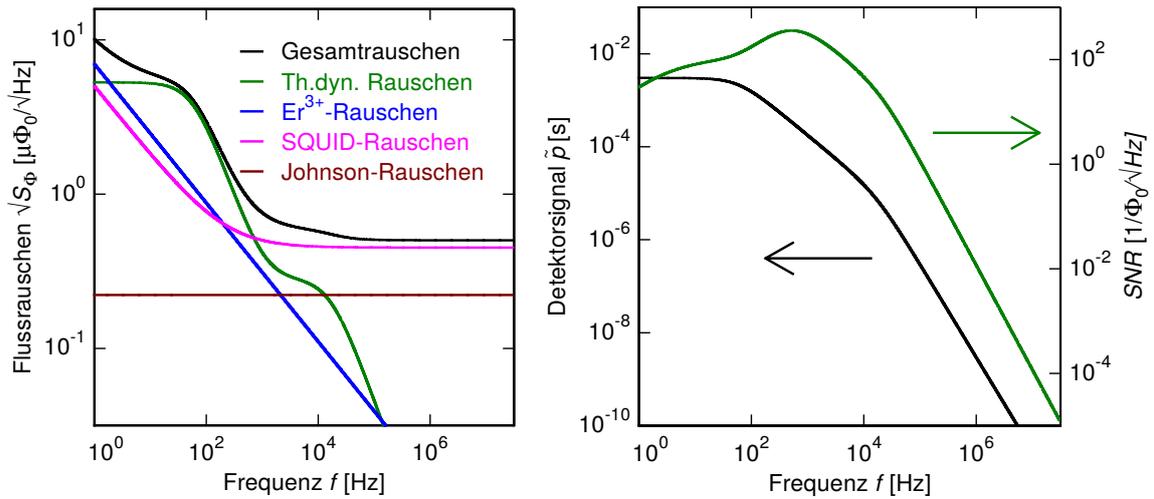


Abbildung 4.7: Aus der Detektorsimulation berechnetes, erwartetes Spektrum der Beiträge zum Flussrauschen (**links**) und das erwartete Signal in Form der Punktantwort \tilde{p} zusammen mit dem Signal-zu-Rauschen Verhältnis SNR (**rechts**) jeweils in Abhängigkeit von der Frequenz f . In die Berechnungen eingeflossen sind die Parameter aus den Tabellen 4.1 und 4.2.

sowie das erwartete Gesamtrauschen im SQUID-Magnetometer nach Gleichung 3.23 in Abhängigkeit der Frequenz dargestellt. Wie erwartet tragen die frequenzabhängigen Beiträge der SQUID-Auslesung und der Er^{3+} -Ionen hauptsächlich bei niedrigen Frequenzen, die thermodynamischen Fluktuationen ebenfalls bei mittleren und der frequenzunabhängige Beitrag der SQUIDs hauptsächlich bei hohen Frequenzen zum Gesamtrauschen des Detektors bei.

Auf der rechten Seite von Abbildung 4.7 wurde in dem selben Graphen sowohl die Punktantwortfunktion auf die linke und das nach Gleichung 3.24 bestimmte Signal-zu-Rauschen-Verhältnis auf die rechte Ordinatensachse aufgetragen. Qualitativ stimmen beide Kurven sehr gut mit den in Abbildung 3.11 durch vereinfachte Annahmen erhaltenen überein. Mit den im Signal-zu-Rauschen-Verhältnis berücksichtigten erwarteten Rauschbeiträgen kann nun die erwartete Energieauflösung des Detektors nach Gleichung 3.25 bestimmt werden. Das Ergebnis ist zusammen mit den ebenfalls berechneten Wärmekapazitäten von Temperatursensor und Teilchenabsorber in Tabelle 4.3 eingetragen. Im Vergleich zum fundamentalen Limit der Energieauflösung, welches am Ende von Kapitel 3 nur durch Berücksichtigung der nicht zu verhindernden thermodynamischen Fluktuationen berechnet wurde, ist das hier errechnete Ergebnis um etwa 4 eV größer. Dieser Vergleich zeigt, dass die Detektorparameter bereits nahe am Optimum des fundamentalen Limits liegen. Im folgenden Abschnitt wird qualitativ gezeigt welche Möglichkeiten dennoch bestehen einzelne Parameter zu variieren, um einem Optimum noch näher zu kommen.

Simulationsergebnisse	
Spulen-Induktivität	$L_m = 2,4 \text{ nH}^*$
Kopplung zum SQUID	$\partial\Phi_S/\partial\Phi = 4,4 \%$
Wärmekapazitäten	
Temperatursensor	$C_{\text{sens}} = 11,3 \text{ pJ}$
Teilchenabsorber	$C_{\text{abs}} = 8,9 \text{ pJ}$
Energieauflösung	$\Delta E_{\text{FWHM}} = 7 \text{ eV}$

Tabelle 4.3: Ergebnisse der Signalsimulation des in dieser Arbeit verwendeten *maXs30v2b*-Detektors.

4.4.1 Optimierungsmöglichkeiten

Wie in den vorherigen Abschnitten gezeigt wurde, hängt der Arbeitspunkt des Detektors von vielen Größen und Rahmenbedingungen ab, die gemeinsam einen multidimensionalen Parameterraum aufspannen. Dabei existieren hinsichtlich unterschiedlicher Aspekte und Blickwinkel mitunter mehrere Optimalbedingungen. So wurde beispielsweise in Abschnitt 3.2.3 erwähnt, dass ein hinsichtlich einer maximalen Signalamplitude zu großer Feldstrom zu einer moderateren Temperaturabhängigkeit der Signalhöhe führt und sich der Detektor dadurch insensitive gegenüber Temperaturschwankungen des Detektor-Chips verhält, was unter Umständen zu einer besseren Energieauflösung führt.

Im Folgenden werden daher zunächst die vorhandenen Betriebsparameter und -bedingungen als Ausgangspunkt festgehalten und Möglichkeiten aufgezeigt durch Variation einzelner Parameter näher an das durch das fundamentale Limit der Energieauflösung vorgegebene Optimum, was in Abschnitt 3.6 zu $\Delta E_{\text{FWHM}} = 2,7 \text{ eV}$ berechnet wurde, zu gelangen. Im Anschluss werden Optionen diskutiert dieses Optimum an sich zu verbessern. Der Abschnitt schließt mit alternativen Auslesungs-Geometrien welche das Verhältnis zwischen der aktiven Absorberfläche und den benötigten Auslesungskanälen optimieren.

Annäherung an das fundamentale Limit der Energieauflösung

Eine naheliegende Möglichkeit näher an das fundamentale Limit der Energieauflösung zu gelangen, ist die Signalhöhe zu maximieren. Dabei ist, wie eingangs erwähnt, der hier verwendete felderzeugende Dauerstrom mit $I_0 = 90 \text{ mA}$ laut Optimierungsrechnung bereits etwas größer als es zur Maximierung der Signalhöhe optimal wäre. In [Ger17] wurde ein Thermometer präsentiert mit einer relativen Genauigkeit von bis zu $1,1 \cdot 10^{-4}$ bei 14 mK , durch welches eine Temperaturstabilisierung des Kryostaten auf dem μK -Niveau möglich sein wird. Dadurch werden Temperaturschwankungen

verringert und eine Reduktion des Feldstroms würde in vorliegendem Aufbau zu einer etwas besseren Energieauflösung führen. Generell ist durch Anpassen des Sensorvolumens ebenfalls ein größeres Signal möglich. Dieses wurde bei vorliegendem Detektor jedoch bereits optimiert. Ebenfalls ist die Er^{3+} -Konzentration der verwendeten Ag:Er-Legierung bei sonst festgehaltenen Parametern laut Simulation bereits nahe am Optimum. Eine Reduzierung um 100 ppm könnte die Energieauflösung lediglich noch um etwa 0,2 eV verbessern. Den Wechselwirkungsparameter α zu verringern kann zum Beispiel durch die Wahl eines alternativen Sensormaterials erreicht werden. In vorliegendem Aufbau gewinnt man mit $\alpha = 5$, wie es in [Fle03] zur Beschreibung eines Au:Er-Sensors verwendet wurde, etwa 0,8 eV in der Energieauflösung. Welche Nachteile Gold im Gegensatz zu Silber als Wirtsmetall für Erbium hat, wurde in Abschnitt 3.2.4 erläutert. Eventuell gibt es jedoch noch andere Materialkombinationen mit kleinem Parameter α , welche hier Optimierungsspielraum bieten. Um das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis und dadurch die Energieauflösung zu verbessern, können neben einer Vergrößerung des Signals einige Beiträge zum Rauschen reduziert werden. Ohne das Er^{3+} -Rauschen würde man in vorliegendem Aufbau etwa 0,5 eV und ohne das Rauschen der SQUIDs 1,5 eV an Auflösungsvermögen gewinnen. Ein weiterer Weg sich dem fundamentalen Auflösungslimit zu nähern besteht in einer Verbesserung der Kopplung an die SQUID-Magnetometer, durch welche im vorliegenden Aufbau nur 4,4% des Signals im SQUID der ersten Verstärkerstufe ankommen. Durch Vermeiden der Aluminium-Verbindungsdrähte könnte die Kopplung auf etwa 5% erhöht und die Energieauflösung um etwa 0,2 eV verbessert werden. Eine hypothetische Reduktion der Einkoppelinduktivität des SQUID-Magnetometers auf 0,5 nH könnte die Energieauflösung um etwa 0,5 eV verbessern. Ohne den Arbeitsbereich des SQUIDs an anderer Stelle nachteilig zu beeinträchtigen, ist dieß jedoch nicht möglich. Ein alternativer Ansatz die Kopplungsverluste deutlich zu reduzieren ist es, den Detektor in die SQUID-Spule selbst zu integrieren [Zak03, Kem18].

Verringern des fundamentalen Limits der Energieauflösung

Das in Gleichung 3.27 hergeleitete fundamentale Limit der Energieauflösung zu verbessern kann zum Beispiel durch Verringern der Absorber-Dicke und somit dessen Wärmekapazität geschehen. In Abschnitt 4.7 wird jedoch gezeigt, dass die Absorptionswahrscheinlichkeit der Photonen von der Absorber-Dicke abhängt und eine Verringerung zu einer geringeren Zählrate im für die Messung relevanten Energiebereich führen würde. Die Signal-Anstiegs- und -Abklingzeiten gehen ebenfalls direkt in die Berechnung des fundamentalen Limits der Energieauflösung ein. Die Signalanstiegszeit wurde gezielt ausgebremst um eine vollständige Thermalisierung des Teilchenabsorbers zu gewährleisten, bevor dieser mit dem Temperatursensor thermalisiert. Da die Signalabklingzeit letztendlich die maximale Aufnahmezeit des De-

tektors bestimmt, ist eine Vergrößerung dieser für vorliegende Messung ebenfalls nur eingeschränkt sinnvoll. Durch eine niedrigere Detektortemperatur lassen sich sowohl einige Rauschbeiträge als auch die Absorber-Wärmekapazität reduzieren. Die reale Detektortemperatur stimmt aufgrund von Heizeffekten der SQUID-Magnetometer unter Umständen nicht mit der der Experimentierplattform des Kryostaten überein. Durch die in Abschnitt 5.1.3 beschriebene geplante Thermalisierung durch das Substrat könnte in nächsten Detektorgenerationen die reale Detektortemperatur gesenkt und dadurch die Energieauflösung allgemein weiter verbessert werden.

Alternative Auslesungsgeometrien

Eine weitere Möglichkeit die Energieauflösung zu verbessern, wäre eine Reduzierung der Wärmekapazitäten durch Verkleinern der Detektor-Pixel. Möchte man die aktive Fläche jedoch konstant halten, so sind mehr Pixel nötig, was wiederum zu steigender Komplexität und Wärmedissipation durch die dadurch höhere Anzahl an benötigten SQUID-Magnetometern führt. In [Gam19] und [Sch19] wurden Detektoren vorgestellt auf welche letzteres nicht zutrifft. Durch unterschiedliche Signalanstiegszeiten können Signale von bis zu vier Absorbern durch nur einen Temperatursensor ausgelesen werden. In [Weg18] wird die gleichzeitige Auslesung vieler Detektoren in einem Multiplex-Verfahren über eine gemeinsame Zuleitung und die Entwicklung der dazu benötigten SQUIDS vorangetrieben. Bei beiden Ansätzen, an welchen während der Durchführung dieser Arbeit zeitgleich in der Arbeitsgruppe geforscht wurde, entstehen im direkten Vergleich zum *maXs30*-Detektor reduzierte Auflösungsvermögen durch zusätzliche Rauschbeiträge. Dennoch ist es grundsätzlich möglich bei gleicher aktiver Detektionsfläche weniger Auslesungskanäle zu verwenden, oder alternativ bei einer gleichen Anzahl von Kanälen eine größere Fläche abzudecken.

4.5 Versuchsaufbau

Die zum Betrieb des *maXs30*-Detektors benötigten Temperaturen im Bereich einiger Millikelvin werden durch einen trockenen $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten des Typs BF-LD250⁵ mit einer Basistemperatur unter 7 mK zur Verfügung gestellt. Eine ausführliche Beschreibung des Funktionsprinzips eines solchen Kryostaten findet sich unter anderem in [Ens05, Pob07].

Auf der linken Seite der Abbildung 4.8 ist eine schematische, nicht maßstabsgetreue Zeichnung mit den wichtigsten Komponenten des experimentellen Versuchsaufbaus im Kryostaten abgebildet. Durch einen Vakuumpopf ist es möglich das zu kühlende

⁵BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie 10, 00370 Helsinki, Finnland

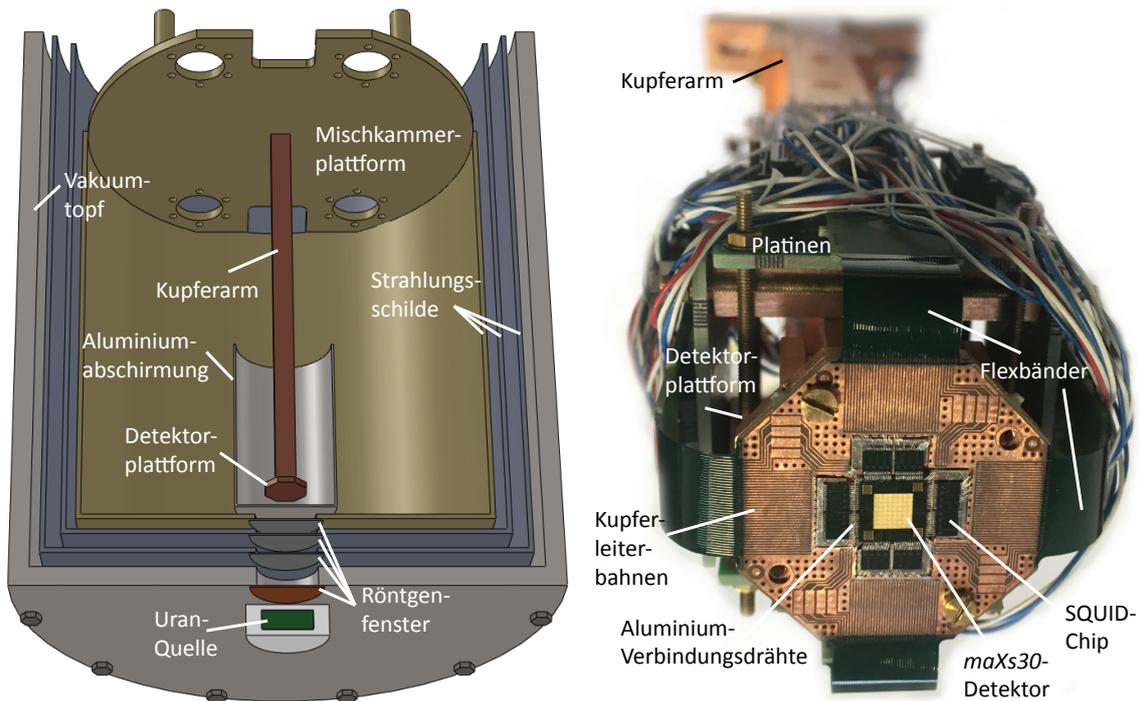


Abbildung 4.8: Schematische, nicht maßstabsgetreue Zeichnung der wichtigsten Komponenten des experimentellen Versuchsaufbaus im Kryostaten (**links**). Fotografie der auf dem Kupferarm installierten Detektorplattform mit *maXs30*-Detektor und acht Chips auf welchen sich die 32 SQUID-Magnetometer befinden (**rechts**).

Volumen zu evakuieren, um so den thermischen Ausgleich zwischen unterschiedlichen Temperaturstufen zu reduzieren. Weitere Töpfe im Inneren des Vakuumtopfs befinden sich jeweils auf unterschiedlichen Temperaturstufen und dienen als Strahlungsschilde, die einen thermischen Ausgleich über Wärmestrahlung eindämmen. Die radioaktiven Quellen befinden sich außerhalb des Kryostaten. Um ein Eintreten der zu untersuchenden Photonen in den Kryostaten zu ermöglichen, befinden sich jeweils Aussparungen im Vakuumtopf und den Strahlungsschilden. Die Aussparung des Vakuumtopfs wird durch ein vakuumdichtes Röntgenfenster aus $150\ \mu\text{m}$ dickem Polyimid und die der Strahlungsschilde durch $6\ \mu\text{m}$ dicke, mit $50\ \text{nm}$ Aluminium bedampfte, Mylar-Folien⁶ verschlossen. Eine unterhalb von $1,2\ \text{K}$ supraleitende Abschirmung aus $1\ \text{mm}$ dickem Aluminium⁷ befindet sich unmittelbar um die Detektorplattform und besitzt zur Optimierung der Zählrate kein Röntgenfenster. Die Detektorplattform ist am unteren Ende eines rechteckigen Stabs aus Kupfer montiert, welcher wiederum an der Unterseite einer vergoldeten Kupferplatte, die im Folgenden als Mischkammerplattform bezeichnet wird, befestigt ist. Ein Kollimator aus Kupfer-

⁶ES301865 der Firma Goodfellow GmbH, 61213 Bad Nauheim, Deutschland

⁷SKU 8237.10 der Firma SIGG Switzerland Bottles AG, Walzmühlestrasse 62, 8500 Frauenfeld, Schweiz

fer verhindert, dass Photonen außerhalb der Teilchenabsorber auf den Detektorchip oder den SQUID-Chips auftreffen.

In Abbildung 4.8 rechts ist eine Fotografie der auf dem Kupferarm installierten Detektorplattform ohne den Kupferkollimator außerhalb des Kryostaten abgebildet. In der Mitte dieser Plattform aus Kupfer ist der Detektor umgeben von den acht SQUID-Chips der ersten Verstärkerstufe aufgeklebt⁸. Die elektrische Kontaktierung der Chips untereinander sowie die von den SQUID-Chips zu den Leiterbahnen einer Platine wird durch kalt-verschweißte Aluminium-Verbindungsdrähte realisiert. Über flexible Bänder⁹ führen die Leitungen weiter auf vier Steckerplatinen, über welche der Detektoraufbau mit den Verstärker-SQUID-Modulen und der Verkabelung des Kryostaten verbunden wird.

4.6 Strahlungsquellen

4.6.1 ²³³U-Quelle

Zur Durchführung der in Kapitel 2 beschriebenen indirekten Messung der Isomerenenergie von ²²⁹Th, wurde in dieser Arbeit eine ²³³U-Quelle verwendet, die durch α -Zerfall mit einer Halbwertszeit von 159 200 Jahren in ²²⁹Th zerfällt. Die bei der Abregung von angeregten Zuständen der ²²⁹Th-Kerne entstehenden γ -Photonen machen zusammen nur etwa 0,12 % und die der sehr schwachen ²²⁹Th- $\gamma_{4,3}$ -Linie nur etwa 0,0008 % der Photonen mit Energien unterhalb von 60 keV aus. Der Großteil der Gesamtintensität stammt von Röntgenphotonen mit Energien kleiner als 20 keV.

Das Uran liegt in der hier verwendeten Quelle¹⁰, die bereits in [Pon17] und [Bus18] verwendet wurde, als Uranylнитrat $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ in wässriger Lösung vor. Im direkten Vergleich des in Abbildung 4.9 gezeigten Übersichtsspektrum konnte im Vergleich zu [Sch16], wo auf mehrlagige Edelstahlfolien abgeschiedenes Uranoxid als Quelle verwendet wurde, der dort nachgewiesene, hauptsächlich aus β -Zerfällen verursachte Untergrund, durch Verwendung der neuen Quelle deutlich reduziert werden.

Da sich in der Quelle mit der Zeit weitere Zerfallsprodukte anreichern, wurde diese in regelmäßigen Abständen durch Prof. Dr. C. Düllmann vom Institut für Kernchemie der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz in einem chemischen Aufbereitungsverfahren gereinigt. Dazu wird das Uran in Salzsäure gelöst und durch Anionen-

⁸tesa STICK der Firma tesa SE, Hugo-Kirchberg-Str. 1, 22848 Norderstedt, Deutschland

⁹Würth Elektronik GmbH & Co. KG, Circuit Board Technology, Salzstraße 21, 74676 Niedernhall, Deutschland

¹⁰freundlicherweise zur Verfügung gestellt durch Herrn Dr. P. Thirolf von der Ludwig-Maximilians-Universität in München

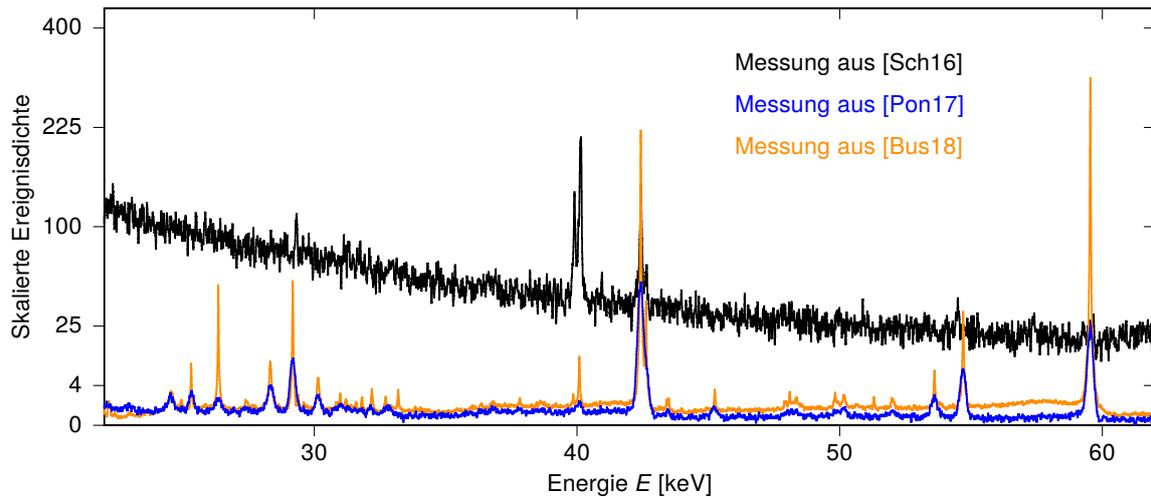


Abbildung 4.9: Übersichtsspektren der Messungen aus [Sch16], [Pon17] und [Bus18]. Durch eine Abschätzung der Ereignisanzahl in der ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie bei etwa 42,4 keV wurden die Spektren zum Vergleich aufeinander skaliert. Die Ordinatenachse ist zur besseren Übersicht wurzelskaliert.

Austausch-Chromatographie¹¹ das Thorium sowie weitere Zerfalls-Töchter eluiert. Durch γ -Spektroskopie mit Halbleiterdetektoren vor und nach der Reinigung konnte gezeigt werden, dass dabei ein relativer Reinigungsfaktor > 250 erreicht wurde [Dü17]. Einige Verunreinigungen beziehungsweise Fremd-Isotope können durch diese chemische Reinigung jedoch nicht entfernt werden. Durch Aufnahme eines α -Spektrums zwischen 4 und 6 MeV konnte ^{232}U , ^{234}U , ^{238}Pu und ^{239}Pu neben dem ^{233}U in der Quelle nachgewiesen werden (vgl. dazu Abschnitt 5.3.1). Das Quellengehäuse besteht aus einer PEEK¹²-Kapsel, mit einer Wandstärke von 2 mm durch die die Photonen nur wenig absorbiert, die α -Teilchen hingegen gestoppt werden. Im Zeitraum der Messung lag die Aktivität der Quelle bei etwa 74 MBq.

4.6.2 ^{241}Am -Quelle

Um genügend Linien zur Kalibration zu erhalten wurde zeitweise zusätzlich eine ^{241}Am -Quelle verwendet. ^{241}Am zerfällt mit einer Halbwertszeit von 433 Jahren durch α -Zerfall zu ^{237}Np . Durch ein 250 nm dickes Berylliumfenster wird sichergestellt, dass die Photonen, nicht aber die α -Teilchen, das Quellengehäuse verlassen können. In [Pie12] wurde das Röntgenspektrum dieser Quelle ausführlich untersucht. Für die vorliegende Messung sind die Np - $\gamma_{2,1}$ -Linie bei 26,3 keV und die Np - $\gamma_{1,0}$ -Linie bei 33,2 keV von besonderer Bedeutung, da sie die nächsten zu den Thorium-Linien bei

¹¹hierbei wurde das Kunstharz AG1X8 der Firma Bio-Rad Laboratories GmbH, Kapellenstraße 12, 85622 Feldkirchen, Deutschland verwendet.

¹²Polyetheretherketon

29 keV und in der Literatur sehr genau bestimmt sind. Weitere Intensitäten und Energien finden sich unter anderem in [Bea67, Des03, Lép08, Bè10]. Im Zeitraum der Messung lag die Aktivität der Quelle bei etwa 370 kBq.

4.7 Optimierung der Zählrate

Die im Experiment erreichbare Zählrate wird einerseits durch die maximal mögliche Aufnahme rate des Detektors limitiert, andererseits wird sie durch die Aktivität der zu untersuchenden Quelle, den durch den Detektor abgedeckten Raumwinkel, die Transmission sich im Strahlengang befindlicher Materialien und die Absorptionseffizienz des Teilchenabsorbers bestimmt. Letztere beiden sind dabei abhängig von der Energie des jeweiligen Photons.

Durch die Thermalisierung zum Wärmebad wird eine minimale Zeit zwischen zwei Pulsen vorgegeben um unerwünschte Artefakte durch Stapelung der Pulse (Pile-Up) zu vermeiden. In der Aufnahmesoftware wurde daher eine Sperrzeit (Hold-Off) von 480 ms implementiert, wodurch die maximale Aufnahme rate auf etwa 2 Hz beschränkt wird. Die verwendete ^{233}U -Quelle hatte im Zeitraum der Messung eine Aktivität von etwa 74 MBq wobei davon den größten Anteil Röntgenphotonen unterhalb von 20 keV ausmachen. Der minimal mögliche Abstand zwischen der Quelle und dem Detektor ist mit etwa 9 cm durch das äußere Röntgenfenster, den Abstand der Strahlungsschilde voneinander und der Dicke des Kollimators bestimmt. Von einem Punkt auf dem Teilchenabsorber aus gesehen ergibt sich mit dem Durchmesser des äußeren Röntgenfensters von 2,5 cm ein abgedeckter Raumwinkel von etwa 0,06 sr.

Um den Detektor nicht einer unnötig hohen Rate an weniger relevanten Photonen auszusetzen, ist es sinnvoll, die Rate von Röntgenphotonen mit Energien kleiner als 29 keV zu reduzieren. Dies wurde durch eine gleichzeitig als supraleitende Abschirmung fungierende, 1 mm dicke Abschirmung aus Aluminium um den Detektor realisiert. In Abbildung 4.10 ist auf der linken Seite die prozentuale Transmissionswahrscheinlichkeit eines Photons durch diese Aluminium-Abschirmung, sowie durch die übrigen Materialien auf dem Weg zum Detektor über der Energie des Photons dargestellt. Zunächst wird ein beträchtlicher Anteil der Photonen bereits in der ^{233}U -Quelle selbst aufgrund deren hoher Kerndichte absorbiert. Dazu wurde vereinfachend angenommen, dass ein Photon im Mittel das ^{233}U in wässriger Lösung zur Hälfte durchquert, bevor es die 2 mm dicke Kapsel-Wand des Quellengehäuses aus PEEK erreicht. Dadurch verringert sich die Zählrate bei 29 keV bereits um knapp 40 %. Die zu durchquerende Luft außerhalb des Kryostaten wurde auf 5 mm abgeschätzt und spielt oberhalb von etwa 5 keV keine Rolle. Ebenfalls ist die Abschwächung durch das Röntgenfenster des Vakuumpopfs, welches aus Polyimid besteht, sowie durch die drei mit Aluminium bedampften Mylar-Fenster der Strahlungsschil-

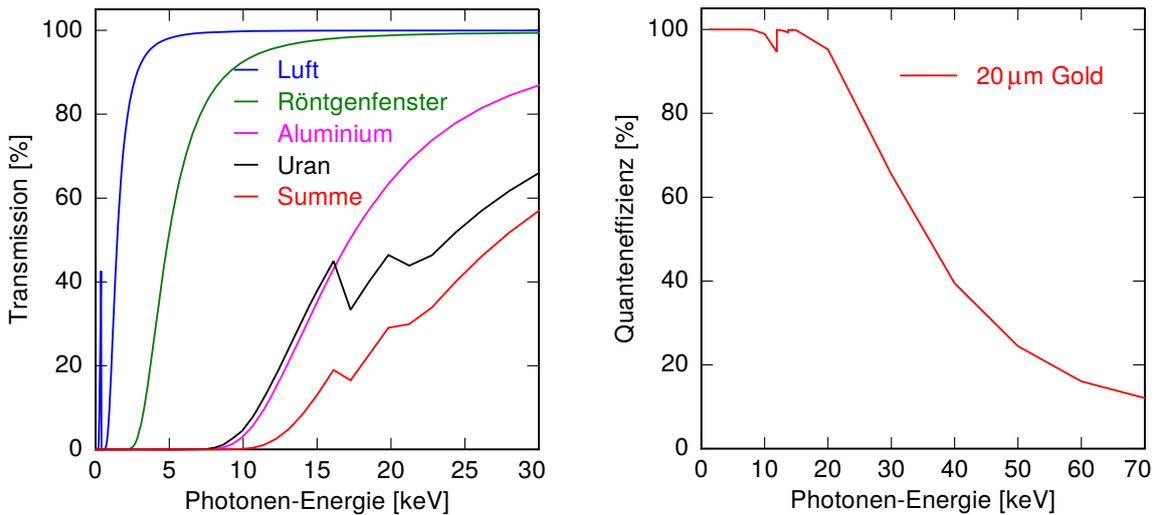


Abbildung 4.10: Transmission einzelner Materialien zwischen Quelle und Teilchenabsorber (**rechts**) und prozentuale Absorptionseffizienz des 20 µm dicken Absorbers aus Gold (**links**), jeweils aufgetragen über der Energie eines Photons.

de im Vergleich zu Uran vernachlässigbar. Die 1 mm dicke Aluminium-Abschirmung hingegen erzielt den erwünschten Effekt, indem sie die Zählrate bei 16 keV gegenüber der bei 29 keV in etwa halbiert, sodass insgesamt die starke Röntgenlinie bei 16,2 keV um mehr als 80 % reduziert wird.

Die Absorptionswahrscheinlichkeit durch den 20 µm dicken Teilchenabsorber aus Gold, in Abbildung 4.10 rechts dargestellt, wirkt hingegen wie ein Tiefpass auf die Photonen. Während die Röntgenphotonen bei 16 keV noch nahezu komplett gestoppt werden, geschieht dies bei 29 keV lediglich noch mit etwa 65 %iger Wahrscheinlichkeit. In Abschnitt 3.6 wurde gezeigt, wie sich die Wärmekapazität des Teilchenabsorbers und somit auch dessen Dicke auf die Energieauflösung des Detektors auswirken. Ein dickerer Absorber würde zwar eine höhere Absorptionseffizienz erlauben, jedoch wäre die Energieauflösung dadurch schlechter.

Zusammenfassend konnte das Verhältnis der Zählraten von 29 keV zu 16 keV um etwa die Hälfte reduziert und dadurch die Ausbeute bei 29 keV insgesamt beinahe verdoppelt werden.

4.8 Signalaufnahme

Das bei tiefen Temperaturen durch den zweistufigen SQUID-Aufbau aufbereitete Detektorsignal wird zunächst bei Raumtemperatur, wie in Abschnitt 4.3.2 beschrie-

ben, durch die SQUID-Elektroniken¹³ analog verstärkt. Zur Aufnahme dieser Spannungssignale der 64 Pixel des *maXs30*-Detektors wurde in [Hen17] das neue 32-Kanal-Aufnahmesystem PAQS¹⁴ aufgesetzt. Es basiert auf zwei 16-Kanal Analog-Digital-Wandler-Modulen¹⁵ des Modells SIS3316¹⁶ mit einer maximalen Abtastrate von 125 MHz pro Kanal und einer Spannungsauflösung von 16 bit. Über eine Netzwerkschnittstelle werden die digitalisierten Daten auf einen Computer übertragen. Dank eines Doppelspeichersystems ist es dabei möglich gleichzeitig Daten aufzunehmen und zum Computer zu übertragen, was eine hohe Aufnahmezeit erlaubt. Intern wird jeder Kanal zunächst in einen Trigger-Kanal und einen unveränderten Daten-Kanal aufgeteilt. Auf jedem Kanal kann ein individueller Schwellwert gesetzt werden ab welchem ein Puls aufgenommen wird. Hierbei werden sowohl positive als auch negative Polaritäten berücksichtigt. Ebenso ist es möglich zu jedem Puls simultan eine Temperaturinformation, die aus einem, in Abschnitt 4.1.1 gezeigten, temperatursensitiven Kanal, extrahiert werden kann, mit aufzunehmen. Mit dieser Information ist es möglich die aufgenommenen Pulshöhen im Nachhinein auf temperaturbedingte Schwankungen hin zu korrigieren. Alternativ können auch beim Auslösen eines Schwellwerts die Signale aller anderen Kanäle gleichzeitig aufgenommen werden. So kann das Übersprechen zwischen einzelnen Kanälen oder die Nullsignalauflösung untersucht werden. Jedes aufgezeichnete Ereignis besteht dabei aus 16 384 Datenpunkten von welchen bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen 4094 vor Auslösen des Schwellwertes waren. Die Analog-Digital-Wandler erlauben eine Überabtastung bis zu einem maximalen Faktor von 512. Dazu werden jeweils n benachbarte Datenpunkte zu einem Wert gemittelt. Durch die Wahl einer Überabtastung von 16 ergab sich bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen ein Zeitfenster von 2,1 ms pro Ereignis. Einzelheiten zum Aufbau und den Besonderheiten des Aufnahmeprogramms finden sich in [Hen17].

4.8.1 Nicht-Linearität der Analog-Digital-Wandler

In [Fri19] wurde ein Messaufbau vorgestellt und charakterisiert um die Nicht-Linearität der Analog-Digital-Wandler (ADCs) quantitativ zu erfassen. Im Folgenden sind dazu die dort gewonnenen Erkenntnisse sowie die daraus für vorliegende Messungen gezogene Konsequenzen aufbereitet.

Der Eingangs-Spannungsbereich von $\pm 2,5$ V der ADCs ist in 2^{16} Stufen unterteilt. Idealerweise ist die Übertragungsfunktion zwischen der Eingangsspannung und die-

¹³Modell: XXF-1 der Firma Magnicon GmbH, Barkhausenweg 11, 22339 Hamburg, Deutschland

¹⁴Paralleles Aufnahmesystem - Akronym aus dem Englischen: **P**arallel **A**quisition **S**ystem

¹⁵ADC-Chips des Typs AD9268BCPZ-125 der Firma Analog Devices, One Technology Way, P.O. Box 9106, Norwood, MA 02062-9106, U.S.A.

¹⁶Struck Innovative Systeme GmbH, Harksheider Str.102, 22399 Hamburg, Deutschland

sen Stufen gleichmäßig mit einer konstanten Stufenbreite von etwa $76 \mu\text{V}$. Durch die integrale Nichtlinearität (INL) wird die Abweichung der realen von der idealen Übertragungsfunktion beschrieben. In Abbildung 4.11 ist das Ergebnis der Messung aus

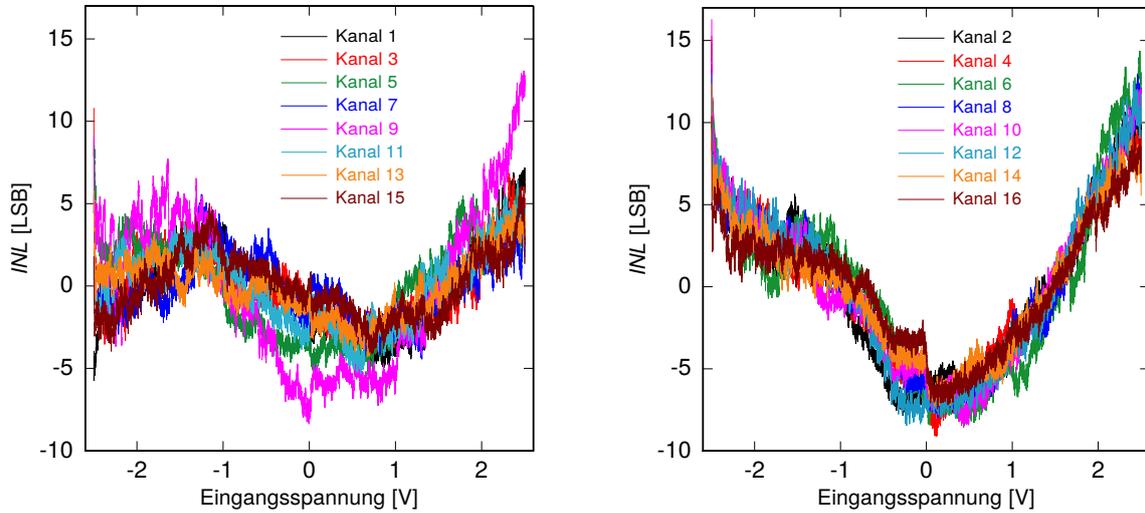


Abbildung 4.11: Integrale Nichtlinearität (INL) als Funktion der Eingangsspannung für alle Kanäle eines Analog-Digital-Wandlers vom Typ SIS3316. Die ungeraden (**links**) und die geraden Kanalnummern (**rechts**) bilden jeweils eine Gruppe, die eine ähnliche Charakteristik in der INL aufweisen. Abbildungen nach [Fri19].

[Fri19] für einen baugleichen ADC dargestellt. Dabei ist ein qualitativ unterschiedliches Verhalten für ungerade (**links**) und gerade Kanalnummern (**rechts**) zu erkennen. Vermutlich ist dies auf die systematischen Unterschiede der beiden Kanäle eines einzelnen ADC-Chips zurückzuführen. Während der Hersteller eine maximale integrale Nichtlinearität von 3 LSB angibt¹⁷, wurden hier bis zu 16 LSB gemessen. Die ADC-Chips wurden dabei unter Verwendung eines sogenannten Dithering¹⁸-Verfahrens betrieben. Dazu wird jedem Messwert am Eingang des ADCs eine bekannte, durch einen Digital-Analog-Wandler zufällig erzeugte Menge an Rauschen hinzugefügt, die dem digitalisierten Signal vor dem Ausgang des ADCs wieder abgezogen wird. Dadurch wird ein bestimmter Spannungswert nicht immer durch die selben letzten Bits erzeugt, sondern entsteht durch Mittlung über ein zufällig gewähltes Spannungsintervall. Dadurch kann eine Verbesserung der lokalen Linearität an vielen Punkten der ADC-Transferfunktion erreicht werden.

In vorliegendem Messaufbau füllte ein 60 keV -Puls den halben Bereich des Spannungsfensters beinahe komplett aus, wodurch ein LSB etwa $1,8 \text{ eV}$ entspricht. Um nicht komplett durch die eben genannte Nicht-Linearitäten limitiert zu sein, wurde wie folgt vorgegangen: Zunächst wurde durch Benutzung der internen AC-Kopplung

¹⁷LSB: englisches Akronym für **L**east **S**ignificant **B**it

¹⁸englisch für Zittern

des Ausgangs der SQUID-Elektronik sichergestellt, dass die Pulse immer auf dem selben Eingangsspannungswert beginnen. Zusätzlich werden die Einzelmessungen von allen Pixeln mit positiver und negativer Polarität sowie mit ungerader und gerader Kanalnummer, wie in Abschnitt 5.2.4 beschrieben, zunächst aufeinander skaliert und erst anschließend deren Nicht-Linearitäten korrigiert. Der Beitrag zur Nicht-Linearität der Analog-Digitalwandler wird also zunächst gemittelt und wird sich dadurch zwar durch eine Verbreiterung einzelner Linien, aber weniger stark auf deren absolute Position auswirken. Der verbleibende Einfluss der ADC-Nichtlinearität kann mithilfe der in Abbildung 4.12 gezeigten Graphen abgeschätzt werden. Dazu

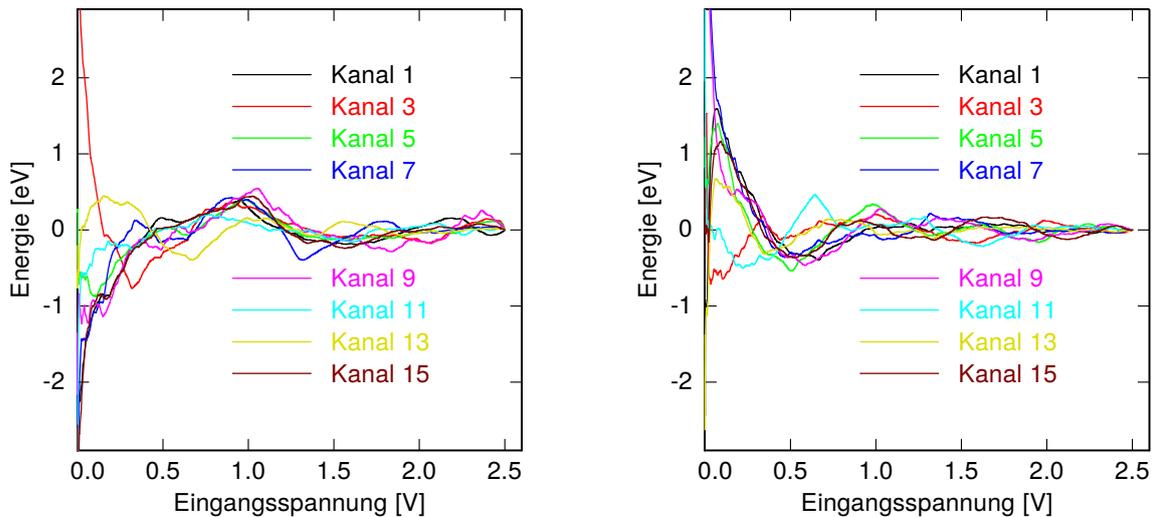


Abbildung 4.12: Abschätzung des Einflusses der Linearität der Analog-Digital-Wandler auf die Energiekalibrierung des Detektors. Residuen der durch eine kubische Funktion angepasste Nichtlinearität der Messdaten aus Abbildung 4.12 für negative (**links**) und für positive Signale (**rechts**).

wurden exemplarisch die in Abbildung 4.12 links gezeigten Messdaten der ungeraden Kanalnummern zunächst in positive und negative Amplituden unterteilt. Dann wurde an die Übertragungsfunktion analog zu dem in Abschnitt 5.2.6 erläuterten Verfahren zur Korrektur der Linearität der Detektorsignale eine kubische Funktion angepasst. Abbildung 4.12 zeigt jeweils die Abweichung der Messdaten von dieser Anpassung für negative Signalamplituden auf der linken und für positive auf der rechten Seite. Ähnlich wie dies durch das Anpassen eines Musterpulses geschieht, wurden die Spannungswerte durch das Integral von Null zum jeweiligen Spannungswert ersetzt. Die Umrechnung der Ordinatenachse von Spannung in Energie wurde dabei mithilfe einer während der Messung üblichen Pulshöhe abgeschätzt. Offensichtlich nehmen die Schwankungen zu hohen Spannungswerten hin ab, da bei größeren Pulsen zunehmend oft über die Unsicherheiten einzelner Bits gemittelt wird. In dem für vorliegende Arbeit relevanten Energiebereich zwischen etwa 29 und 42 keV, was im

Graphen einer Eingangsspannung von etwa 1 bis 1,5 V entspricht, können nach dieser Abschätzung einzelne Spannungswerte eines Pulses mit einer Energie von 29 keV um etwa 0,5 eV und mit 42 keV um etwa 0,3 eV fehlerhaft sein.

Da ein Puls mit einer bestimmten Energie dank der AC-Kopplung stets den gleichen Spannungsbereich des ADCs abdeckt, wird sichergestellt, dass sich die Nicht-Linearität eines einzelnen Kanals zeitlich nicht ändert. Durch das Aufsummieren der Spektren vieler Einzelkanäle mit unterschiedlichen Polaritäten, wird zudem über die Abweichungen einzelner Kanäle gemittelt und im Gesamtspektrum bleibt lediglich die gemeinsame Systematik der verwendeten Kanäle übrig.

5. Experimentelle Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse zur Bestimmung der Isomerenergie von ^{229}Th diskutiert. Dazu wird zunächst die Charakterisierung des eigens für diese Messungen hergestellten *maXs30*-Detektors dargestellt. Hier werden zunächst intrinsische Detektoreigenschaften wie die Signalform, die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung des Temperatursensors und die Beiträge zum Gesamttrauschen des Detektors betrachtet. Die nötigen Schritte zur Aufbereitung der Detektorsignale hinsichtlich externer Störungen und Temperaturstabilität auf dem Weg zum Aufaddieren eines Energiespektrums über mehrere Pixel hinweg sind Gegenstand der sich anschließenden Abschnitte gefolgt von der Energiekalibration des Detektors, die in dieser Arbeit von besonderer Bedeutung ist. Das resultierende Energiespektrum der ^{233}U -Quelle wird dann zunächst auf Untergrund durch Verunreinigungen durch andere radioaktive Isotope sowie deren Zerfallsprodukte hin untersucht. Die Ermittlung der Isomerenergie von ^{229}Th aus den aufgenommenen Energiespektren auf die drei eingangs erwähnten unterschiedlichen Methoden ist Hauptbestandteil des letzten Abschnitts. Dieser schließt mit einer Bewertung der erzielten Ergebnisse inklusive eines Vergleichs mit Resultaten anderer Arbeiten.

5.1 Eigenschaften des *maXs30*-Detektors

Um die Detektorsignale zu verstehen, ist es hilfreich, einzelne Detektoreigenschaften sorgfältig zu untersuchen und mit den Erwartungen aus den numerischen Simulationen aus Abschnitt 4.4 zu vergleichen. Die im Verlauf dieses Kapitels diskutierten Messungen wurden, wenn nicht explizit anders erwähnt, bei einer Mischkammer-Temperatur von $T_{\text{MK}} = 12\text{ mK}$ und einer Detektortemperatur von 25 mK durchgeführt. Messungen an einem Einzeldetektor werden jeweils exemplarisch an Detektorkanal Nr.18 vorgestellt, da sich dieser über die gesamte Messdauer sehr homogen verhielt und die beste Energieauflösung zeigte.

5.1.1 Bestimmung der Detektor-Induktivität

Die Induktivität der mäanderförmigen Detektionsspule aus Niob kann durch eine Messung des Rauschens bei Temperaturen über $1,18\text{ K}$ ermittelt werden. Bei diesen Temperaturen ist sichergestellt, dass die Verbindungsdrähte aus Aluminium zwischen der Detektionsspule des Detektors und der Einkoppelspule des SQUIDs normalleitend sind und daher einen endlichen Widerstand aufweisen, während die Spulen aus

Niob noch supraleitend sind. Der Widerstand R der Verbindungsdrähte erzeugt dann bei der Temperatur T ein frequenzunabhängiges Stromrauschen mit spektraler Leistungsdichte S_1^b , welches über die Gegeninduktivität M_{is} in das SQUID einkoppelt und dort ein Flussrauschen von

$$S_{\Phi_S}^b = M_{is}^2 S_1^b = M_{is}^2 \frac{4k_B T}{R} \quad (5.1)$$

erzeugt. In Abbildung 5.1 ist links ein Ersatzschaltbild bestehend aus den Detek-

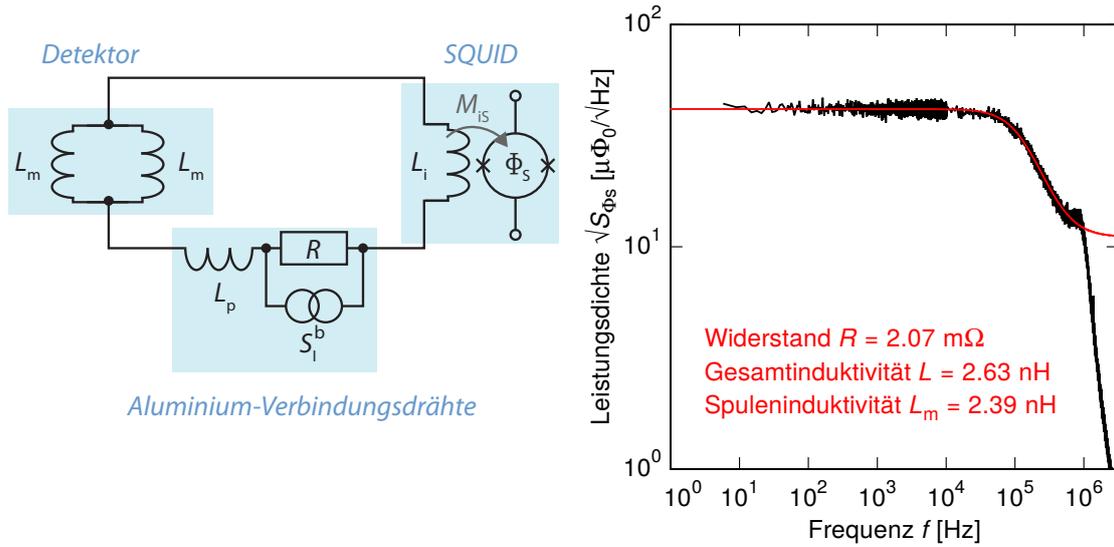


Abbildung 5.1: Ersatzschaltbild der Detektionsspulen des Detektors, der Einkoppelspule des SQUID-Magnetometers sowie der Aluminium-Verbindungsdrähte (**links**). Gemessene Rauschleistungsdichte im SQUID in Abhängigkeit von der Frequenz f bei einer Temperatur von $T = 4,75$ K (**rechts**). Den Messdaten überlagert ist eine numerische Anpassung nach Gleichung 5.2.

tionsspulen des Detektors, der Einkoppelspule des SQUIDs sowie den Aluminium-Verbindungsdrähten dargestellt. Die Gesamtinduktivität L des Stromkreises erzeugt zusammen mit dem Widerstand R der Aluminium-Verbindungsdrähte einen Tiefpass mit einer Abschneidefrequenz von $f_c = R/(2\pi L)$. Mit dem Rauschen des SQUIDs aus Abschnitt 4.3.3 erwartet man dadurch ein Flussrauschen im SQUID von

$$S_{\Phi_S} = S_{\Phi_S}^b \frac{1}{1 + (f/f_c)^2} + S_{\Phi_S}^{S,w}, \quad (5.2)$$

da der $1/f$ -Anteil bei diesen Temperaturen vernachlässigt werden kann. Dabei steht $S_{\Phi_S}^{S,w}$ für die frequenzunabhängige Leistungsdichte des weißen Rauschens des SQUIDs, welches in Abschnitt 4.3.3 diskutiert wurde. Die rechte Seite der Abbildung zeigt das gemessene Flussrauschen im SQUID eines einzelnen Detektorkanals bei einer

Temperatur von 4,75 K in Abhängigkeit von der Frequenz f . Den in Schwarz dargestellten Messdaten ist eine numerische Anpassung nach Gleichung 5.2 überlagert und inklusive der daraus erhaltenen Parameter in Rot eingezeichnet. Die Messdaten stimmen offensichtlich qualitativ bis zu einer Frequenz von etwa 1 MHz sehr gut mit obiger Gleichung überein. Die zweite Abschneidekante kommt dabei durch die endliche Bandbreite der Rückkoppelelektronik der SQUID-Auslesung zustande und wurde in der numerischen Anpassung nicht berücksichtigt. Die Gesamtinduktivität L setzt sich aus der der beiden parallel geschalteten Detektionsspulen, $L_m/2$, der der Einkoppelspule des SQUID-Magnetometers, $L_i = 1,1$ nH, und einer nach [Hen17] abgeschätzten parasitären Induktivität von $L_p = 0,37$ nH zusammen. Für die Induktivität einer einzelnen Detektionsspule ergibt sich daher

$$L_m = 2(L - L_p - L_i) = 2,39 \text{ nH}, \quad (5.3)$$

was sehr gut mit dem errechneten Wert aus Tabelle 4.3 von $L_{m,\text{theo}} = 2,46$ nH übereinstimmt.

5.1.2 Bestimmung der Er^{3+} -Konzentration des Temperatursensors

Bei der Herstellung des *maXs30*-Detektors wird, wie in [Hen17] beschrieben, die Sensorlage über einen Lift-Off-Prozess strukturiert, das heißt zunächst vollflächig auf eine mikrostrukturierte Fotolack-Schicht aufgebracht und anschließend wird dieser Fotolack durch ein Lösemittel entfernt. Dabei lässt sich eine Folie bestehend aus dem Sensormaterial an einem Stück vom Substrat lösen, welche im Folgenden dazu verwendet wurde, die Er^{3+} -Konzentration des Temperatursensors zu bestimmen. Hierfür wurde eine Magnetisierungsmessung in einem kommerziell erhältlichen

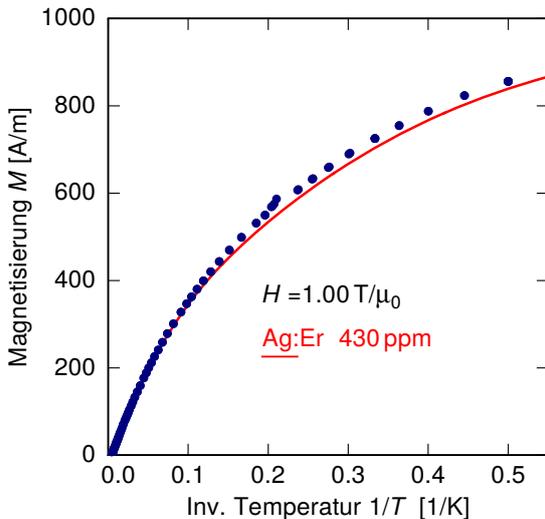


Abbildung 5.2: Magnetisierungsmessung der Ag:Er -Sensor-Folie in Abhängigkeit von der inversen Temperatur in einem externen Magnetfeld von 1 T. Die im Text näher beschriebene numerische Anpassung ergibt eine Erbiumkonzentration von etwa 430 ppm.

MPMS XL Magnetometer¹ in einem äußeren Magnetfeld von 1 T und in einem Temperaturbereich zwischen 2 K und 300 K durchgeführt. Abbildung 5.2 zeigt das Ergebnis dieser Messung, wobei die Magnetisierung M über der inversen Temperatur $1/T$ aufgetragen ist. In [Fle00] wurde gezeigt, dass die numerisch berechnete theoretische Erwartung für eine Erbiumkonzentration von 1 ppm in Silber auf die höheren Konzentrationen skaliert werden kann und wie diese Erwartungen unter Berücksichtigung des Einflusses des Kristallfelds von Silber auf die Erbiumionen, gemessen durch inelastische Neutronenstreuung [Hah92], zustande kommen. Für die durchgezogene (rote) Linie wurde eine solche Skalierung durchgeführt, wobei für die numerische Anpassung lediglich der Temperaturbereich über 100 K verwendet wurde, da sich etwaige Verunreinigungen oder unerwünschterweise oxidiertes Erbium dann durch eine Abweichung von der Anpassung zu tieferen Temperaturen hin bemerkbar machen. Die gute Übereinstimmung der Anpassung an die Messdaten lässt auf keine offensichtlichen Verunreinigungen schließen und liefert eine Erbiumkonzentration von etwa 430 ppm.

5.1.3 Pulsform

Der Anstieg des Detektorsignals infolge der Absorption eines Photons wird beim *maXs30*-Detektor und wie in Gleichung 3.18 beschrieben, im thermodynamischen Modell durch die Wärmekapazitäten von Teilchenabsorber und Temperatursensor sowie dem thermischen Flaschenhals zwischen den Stämmen und der Sensorfläche bestimmt. Jeder der drei Stämme hat drei thermische Verbindungen mit einer Länge l von etwa $12\ \mu\text{m}$, einer Querschnittsfläche von $A = 9\ \mu\text{m} \cdot h_{\text{sens}}$ mit einer Dicke von $h_{\text{sens}} = 1,5\ \mu\text{m}$. Mit der Er^{3+} -Konzentration von 430 ppm ergibt sich eine elektrische Leitfähigkeit von $\rho_{\text{AgEr}} = \rho_{\text{AgEr}}^{300\text{K}} / (RRR - 1) + (6,76 \cdot 10^{-6}\ \Omega\text{m} \cdot 430\ \text{ppm}) = 1,17 \cdot 10^{-8}\ \Omega\text{m}$ und nach dem Wiedemann-Franz Gesetz insgesamt eine Leitfähigkeit von

$$G = 9 \frac{\mathcal{L}T}{\rho_{\text{AgEr}} l} A = 52,9\ \mu\text{W/K}. \quad (5.4)$$

Dabei steht $\mathcal{L} = 2,44 \cdot 10^{-8}\ \text{W}\Omega/\text{K}^2$ für die Lorenzzahl und es wurde eine Temperatur von $T = 25\ \text{mK}$ angenommen. Daraus folgt eine erwartete charakteristische Zeitkonstante

$$\tau_0 = \frac{C_{\text{abs}}C_{\text{sens}}}{G(C_{\text{abs}} + C_{\text{sens}})} = 9,3\ \mu\text{s}, \quad (5.5)$$

die den Signalanstieg durch eine Exponentialfunktion der Form $A(t) \propto 1 - e^{-t/\tau_0}$ beschreibt. Aus dem Einzelpuls links in Abbildung 5.3 kann eine charakteristische Zeitkonstante von $\tau_0 = 9,6\ \mu\text{s}$ ermittelt werden, was sehr gut mit der Erwartung aus Gleichung 5.5 übereinstimmt.

¹Quantum Design, Inc., 10307 Pacific Center Court, San Diego, Ca 92121, USA

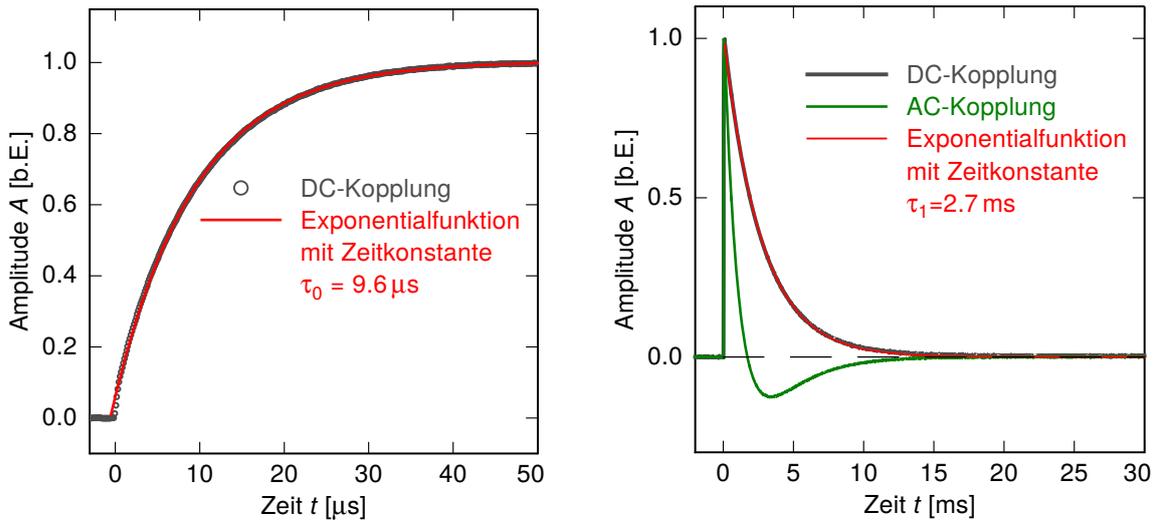


Abbildung 5.3: Signalanstieg eines Einzelpulses mit der numerischen Anpassung einer Exponentialfunktion (**links**). Vergleich zweier Einzelpulse, aufgenommen mit AC- bzw. DC-Kopplung der Rückkoppel elektronik (**rechts**). An die abklingende Flanke des DC-gekoppelten Pulses wurde numerisch eine Exponentialfunktion angepasst.

Das Abklingverhalten des Detektorsignals wurde durch Aufnahmen eines erweiterten Zeitfensters, rechts in Abbildung 5.3 zu sehen, untersucht. Zu sehen sind zwei Einzelpulse, jeweils einer unter Verwendung eines Hochpassfilters in der Rückkoppel elektronik (AC-Kopplung, grün) und einer ohne Filter (DC-Kopplung, grau). An letzteren wurde numerisch eine Exponentialfunktion der Form $\propto e^{-t/\tau_1}$ angepasst, woraus sich eine charakteristische Zeitkonstante von $\tau_1 = 2,7 \text{ ms}$ ableiten lässt. Aufgrund der in Abschnitt 4.8.1 diskutierten Nicht-Linearität der Analog-Digital-Wandler wurden bis auf die temperatursensitiven alle Kanäle AC-gekoppelt. Bei diesen Pulsen wird die Signalabklingzeit durch den Hochpassfilter der AC-Kopplung bestimmt und erlaubt dadurch keine Rückschlüsse auf die Detektorparameter.

In [Hen17] wurde an einem asymmetrischen Einzeldetektor beobachtet, dass das Abklingen des Signalverlaufs beim *maXs30*-Detektor zwei Zeitkonstanten unterliegt, da zunächst eine Thermalisierung innerhalb der beiden Pixel eines Einzeldetektors stattfindet, bevor dieser dann mit dem Wärmebad thermalisiert. Bei den in Abbildung 5.3 gezeigten Pulsen eines symmetrischen Einzeldetektors ist die Thermalisierung zum Wärmebad nicht in Form einer zweiten charakteristischen Zeitkonstante sichtbar, da die gradiometrische Verschaltung des Detektors nur sensitiv auf eine Temperaturdifferenz der beiden Einzelpixel, nicht aber auf deren gemeinsame Temperaturdifferenz zum Wärmebad ist. Um das Abklingen des Signals vollständig zu beschreiben, müssen dennoch beide Thermalisierungswege berücksichtigt werden. Die Thermalisierung zwischen beiden Pixeln geschieht über einen $205 \mu\text{m}$ langen Thermalisierungssteg aus Gold mit einer Querschnittsfläche von $A = 80 \mu\text{m} \cdot 0,2 \mu\text{m}$,

welcher nach dem Wiedemann-Franz Gesetz bei einer Temperatur von $T = 25$ mK und einem Restwiderstandsverhältnis von $RRR = 2,1$ eine Leitfähigkeit von

$$G_{\text{pp}} = 2,17 \text{ nW K}^{-1} \quad (5.6)$$

besitzt. Die thermische Verbindung zum Wärmebad findet hauptsächlich vom Sensor direkt über Phononen zum Silizium-Substrat statt, welches wiederum auf der Unterseite metallisiert und auf den Experimentierhalter aufgeklebt ist. Über die Sensorfläche $A = 298 \cdot 298 \text{ } \mu\text{m}^2$ und unter der Annahme, dass der Kapitza-Widerstand zwischen Ag:Er-Sensor und dem Silizium-Substrat das Nadelöhr ist, ergibt das bei einer Temperatur von $T = 25$ mK eine Leitfähigkeit von etwa

$$G_{\text{b}} = \frac{1}{R_{\text{tb}}} AT^3 = 1,04 \text{ nW K}^{-1}, \quad (5.7)$$

wobei $R_{\text{tb}} \approx 13,5 \text{ K}^4 \text{ cm W}^{-2}$ in [Swa89] für die Kontaktfläche zwischen Silber und Silizium bestimmt wurde. Insgesamt ergeben sich nach [Hen17] durch Kombination beider Thermalisierungswege zwei Zeitkonstanten

$$\tau_{+,-} := \tau_{\text{pp,b}} = \frac{C_{\text{abs}} + C_{\text{sens}}}{(G_{\text{pp}} + G_{\text{b}}) \pm G_{\text{pp}}}. \quad (5.8)$$

Mit den Wärmekapazitäten $C_{\text{abs}} = 8,95 \text{ pJ}$ und $C_{\text{sens}} = 11,0 \text{ pJ}$ aus Tabelle 4.3 ergibt sich eine schnellere Zeitkonstante $\tau_+ = 3,7 \text{ ms}$, welche trotz des vereinfachten thermischen Modells relativ gut mit dem experimentellen Wert von $\tau_1 = 2,7 \text{ ms}$ aus Abbildung 5.3 übereinstimmt. Die zweite Zeitkonstante $\tau_- = 19 \text{ ms}$ beschreibt die Thermalisierung zum Wärmebad. Bei den wie in Abbildung 5.3 gezeigten Signalen von symmetrischen Einzeldetektoren kann diese zweite Abklingzeit, wie eingangs erwähnt, nicht beobachtet werden, da jeweils nur die Temperaturdifferenz zwischen beiden Pixeln ein Signal erzeugt. In [Hen17] wurde sie an Pulsen des temperatursensitiven Einzeldetektors beobachtet. Für zukünftige Detektorgenerationen kann dieser doppelte Thermalisierungs-Effekt durch eine bessere Thermalisierung zur Substratrückseite verhindert werden. Dazu wird ein Loch durch das nur schlecht thermisch leitende Substrat geätzt und durch gut thermisch leitendes Gold ersetzt, wodurch ein direkter thermischer Kontakt zur Rückseite des Substrats und damit zum Wärmebad ermöglicht wird. In [Gam19] wurden die einzelnen dafür benötigten Schritte erfolgreich demonstriert. Da der Gesamtprozess jedoch zur Zeit der Herstellung der in dieser Arbeit verwendeten Detektoren noch nicht ausreichend etabliert war, wurde bei der Herstellung des Detektors darauf verzichtet. Um diese längere Thermalisierungszeit zum Wärmebad ausreichend zu berücksichtigen, wurde bei den vorliegenden Messungen im in Abschnitt 4.8 beschriebenen PAQS-Programm eine Sperrzeit (Hold-Off) von 480 ms implementiert. Dadurch konnte sichergestellt werden, dass ein Detektorpixel nach Auslösen eines Triggers und der damit verbundenen Aufnahme eines Signals genug Zeit hat, um wieder vollständig mit dem Wärmebad zu thermalisieren, bevor das nächste Ereignis aufgenommen wird.

5.1.4 Sensor-Magnetisierung

Aus der Messung des durch den paramagnetischen Temperatursensor erzeugten magnetischen Flusses Φ_S im SQUID-Magnetometer in Abhängigkeit von der Temperatur T_{MK} der Mischkammerplattform, kann sowohl der eingeprägte Dauerstrom I_0 überprüft, als auch die reale Detektortemperatur T abgeleitet werden. In Abbil-

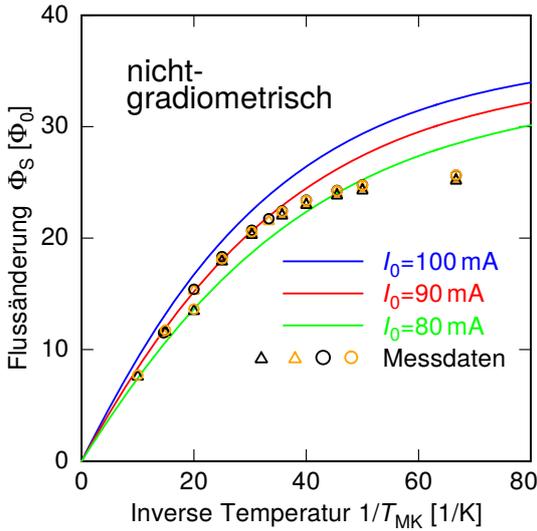


Abbildung 5.4: Überlagerung von zwei Magnetisierungsmessungen zweier nicht-gradiometrischer Detektorkanäle (Symbole) in Abhängigkeit von der inversen Temperatur $1/T_{\text{MK}}$ der Mischkammerplattform. Den berechneten Theoriekurven für Dauerströme von $I_0 = 80, 90$ und 100 mA liegen die Parameter aus Tabelle 4.2 zugrunde.

dung 5.4 sind je zwei solcher Messungen für zwei der vier nicht-gradiometrischen Detektoren überlagert (Symbole) und in Abhängigkeit von der inversen Temperatur $1/T_{\text{MK}}$ abgebildet. Zusätzlich sind die erwarteten Kurven basierend auf den Berechnungen aus Kapitel 3 für eingeprägte Dauerströme von $I_0 = 80, 90$ und 100 mA eingezeichnet. Zu deren Berechnung wurden die in Tabelle 4.2 genannten Detektor- und Betriebsparameter angenommen. Es gibt offensichtlich bei den höheren Temperaturen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem eingespeisten Feldstrom von $I_0 = 90 \text{ mA}$. Unterhalb von etwa $T_{\text{MK}} = 30 \text{ mK}$ flachen die Messdaten im Vergleich zu den Theoriekurven ab, was bedeutet dass der Detektor aufgrund lokaler Heizeffekte durch die SQUID-Magnetometer thermisch von der Experimentierplattform abkoppelt. Für die gewählte Betriebstemperatur von $T_{\text{MK}} = 12 \text{ mK}$ liegt die reale Detektortemperatur daher bei etwa $T = 25 \text{ mK}$.

5.1.5 Rauschen und Energieauflösung

In Abbildung 5.5 sind die gemessene spektrale Leistungsdichte eines Einzeldetektors in Abhängigkeit von der Frequenz sowie die theoretisch berechneten und an die Messung angepassten Einzelbeiträgen und das erwartete Gesamtrauschen gezeigt. Die Einzelbeiträge wurden dabei wie in den Abschnitten 3.6 und 4.3.3 gezeigt unter Verwendung der in Tabelle 4.2 gegebenen Detektorparametern berechnet. Das gemessene

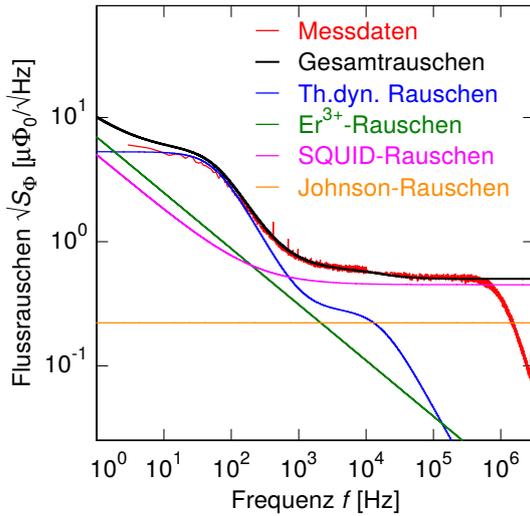


Abbildung 5.5: Messung der spektralen Leistungsdichte eines Einzeldetektors (rot) in Abhängigkeit der Frequenz und berechnete und an die Messung angepasste Einzelbeiträge der unterschiedlichen Rauschquellen sowie deren Summe (schwarz). Den Berechnungen liegen die Werte aus Tabelle 4.2 zugrunde.

Rauschen stimmt beinahe im gesamten Frequenzbereich sehr gut mit den theoretisch berechneten und an die Messung angepassten Werten überein. Unterhalb von etwa 300 Hz liegt das gemessene Rauschen etwas unter dem erwarteten, was möglicherweise auf einen überschätzten $1/f$ -Beitrag des Er^{3+} - oder des SQUID-Rauschens zurückzuführen ist. Dabei ist dieser abgeschätzte Beitrag mit $S_m(f) \approx 0,03 \mu_B^2/f$ bereits kleiner als aus entsprechenden Messungen mit Au:Er-Sensoren [Pie12] zu erwarten ist.

In Abbildung 5.6 ist links die Nulllinienauflösung eines Detektorkanals gezeigt, die mit $\Delta E_{\text{FWHM}} = 7,9 \text{ eV}$ bereits sehr nahe an die in Tabelle 4.3 berechnete Energieauflösung von 7 eV herankommt. Die Energieauflösung der Nulllinie wurde dabei analog

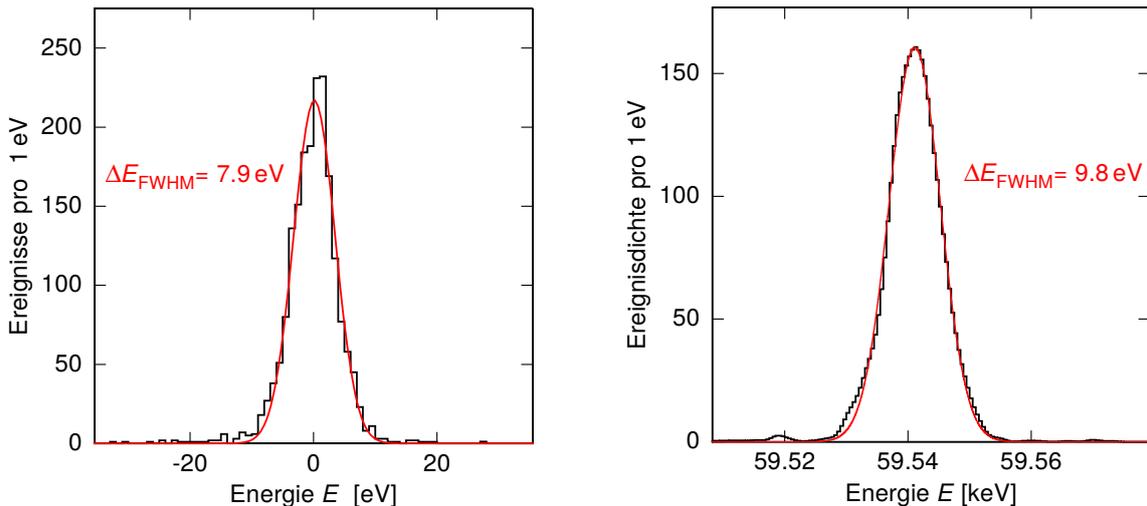


Abbildung 5.6: Instrumentelle Linienbreite eines Einzeldetektors bei 0 keV (**links**) und bei der $\gamma_{2,0}$ -Linie von ^{241}Am mit etwa 59,5 keV (**rechts**).

zum in Kapitel 5.2 beschriebenen Vorgehen zur Aufbereitung des Detektorsignals, durch Aufnehmen von ungetriggerten Nullsignalen und anschließendem Anpassen eines Musterpulses ermittelt. Sie ist dabei weitgehend unabhängig von Schwankungen der Detektortemperatur. Dies gilt nicht für die rechts in Abbildung 5.6 dargestellte $\gamma_{2,0}$ -Linie aus der ^{241}Am -Kalibrationsquelle. Hier wurde wie in den Abschnitten 5.2.2 und 5.2.5 beschrieben die Temperaturschwankungen des Detektors korrigiert und anschließend eine Glättungsfaltung durchgeführt. Die hier erreichte Linienbreite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 9,8 \text{ eV}$ entspricht einem relativen Auflösungsvermögen von $E/\Delta E > 6000$, was besser ist als alle Auflösungsvermögen, die bis zum Zeitpunkt dieser Arbeit für vergleichbare Tieftemperaturkalorimeter veröffentlicht wurden.

Die Energieauflösung des Detektors kann zusätzlich zu den in Abschnitt 3.6 diskutierten kalkulierbaren Rauschbeiträgen durch weitere, weniger korrigierbare Einflüsse herabgesetzt werden. Dazu zählen unter anderem durch temporäre Vibrationen des Versuchsaufbaus, direktes Einkoppeln elektrischer und magnetischer Störfelder, Spannungs- oder Strom-Schwankungen in den SQUID-Elektroniken und den Analog-Digital-Wandlern sowie zeitweise Temperaturgradienten innerhalb des Detektors. Der Unterschied zwischen der Nulllinienauflösung und der bei höheren Energien ist dabei unter anderem auf durch diese Einflüsse verursachte Schwankungen des Gesamtverstärkungsfaktors in der Auslesungskette (gain instabilities) zurückzuführen. In

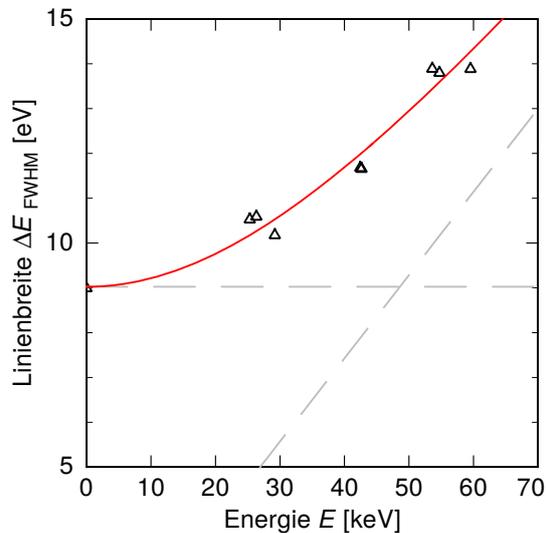


Abbildung 5.7: Linienbreiten auf halber Höhe (FWHM) bei unterschiedlichen Energien eines aufsummierten Energiespektrums der ^{241}Am - und ^{229}Th -Quelle.

Abbildung 5.7 sind dazu die Linienbreiten weiterer Linien eines aufsummierten Gesamtspektrums der ^{241}Am - und ^{229}Th -Quelle über der Energie aufgetragen. Qualitativ ergibt sich der Verlauf durch die quadratische Summe eines durch die Nulllinienauflösung bestimmten, energieunabhängigen und durch einen energieabhängigen Beitrag, jeweils angedeutet durch graue gestrichelte Linien.

5.2 Signalverarbeitung

Im Folgenden werden die Schritte hin zu einem energiekalibrierten Histogramm mit hoher Statistik, welches zur Bestimmung der Isomerenergie von ^{229}Th benötigt wird, vorgestellt.

5.2.1 Zeitschnitte

Der erste Schritt zur Aufbereitung über eine längere Zeitspanne aufgenommener Messdaten besteht darin, die Messung in Zeitbereiche zu unterteilen, in welchen sich der Detektor möglichst homogen verhalten hat. Im Folgenden werden dazu anhand einer beispielhaften Messphase exemplarisch einige Indikatoren für zu unterteilende Bereiche und deren mögliche Ursachen diskutiert. Dabei führen nicht alle der Indikatoren auf allen Kanälen gleichermaßen zur Notwendigkeit einer Unterteilung. Zudem treten zeitweise Verbreiterungen einiger Linien im Spektrum auf, die sich zumindest bisher auf keine der im Folgenden diskutierten Indikatoren zurückführen lassen. In

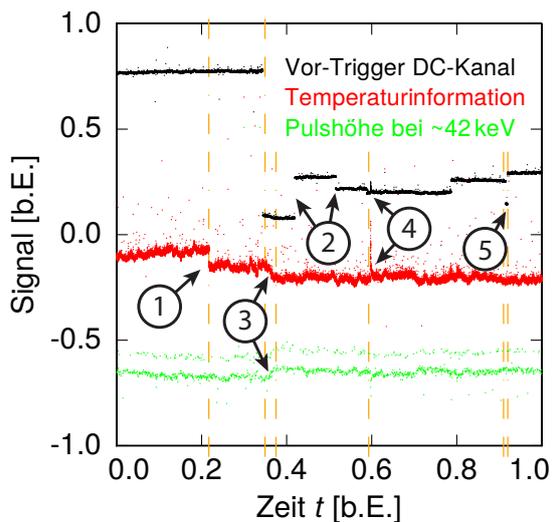


Abbildung 5.8: Vor-Trigger-Niveau (schwarz), Temperaturinformation (rot) und relative Pulshöhen der 42 keV-Linien (grün) einer Messphase von etwa 50 Stunden Dauer. Die Zahlen (1)-(4) stehen an Stellen die im Text als Indikatoren hinsichtlich eines Zeitschnitts diskutiert werden.

Abbildung 5.8 sind das Vor-Trigger-Niveau (schwarz), die zu jedem Puls parallel mit aufgenommene Temperaturinformation (rot) und ein Ausschnitt der relativen Pulshöhen um die beiden 42 keV-Linien (grün) für einen DC-gekoppelten Detektorkanal während einer Messphase von etwa 50 Stunden Dauer abgebildet.

Zu dem mit (1) markierten Zeitpunkt findet ein Sprung in der Temperaturinformation statt. Bei den anderen beiden Messgrößen ist zur selben Zeit kein entsprechendes Ereignis erkennbar, was zeigt, dass dies kein echter Temperatursprung sein kann. Ein zeitlicher Schnitt ist hier vonnöten, da ansonsten bei der im nächsten Abschnitt diskutierten anschließenden Temperaturkorrektur eine Stufe auftritt, die sich letztendlich als zusätzliche Verbreiterung auf die Linienbreite auswirkt. Die tatsächliche

Ursache eines derartigen Sprungs, der in diesem Beispiel offensichtlich nur den temperatursensitiven Detektorkanal betrifft, ist im Einzelnen meist nicht bekannt. Mögliche Szenarien sind ein spontaner oder durch ein höherenergetisches Photon oder Myon verursachter Flusssprung in der Detektions- oder Einkoppelspule oder auch eine Flussänderung im SQUID-Magnetometer. Sprünge, die nur in einem einzelnen der vier temperatursensitiven Detektorkanäle auftreten, können in zukünftigen Messungen mit dem *max30*-Detektor durch die gleichzeitige Auswertung der vier temperatursensitiven Kanäle leicht identifiziert und korrigiert werden.

An den durch (2) markierten Zeitpunkten finden derartige Sprünge im Vor-Trigger-Niveau des Kanals selbst statt. Die möglicherweise damit einhergehende Änderung der Betriebsparameter des SQUID-Magnetometers dieses Kanals kann sich letztendlich durch eine veränderte Wärmedissipation auf das thermische Gleichgewicht aller Kanäle auswirken. Jedoch sind auch hier keine offensichtlichen Auswirkungen auf die Pulshöhen bei 42 keV erkennbar. Dass sich einige dieser Sprünge jedoch durchaus nachteilig auf die Energieauflösung auswirken können, ist zudem auf die in Abschnitt 4.8.1 diskutierten Nichtlinearitäten der Analog-Digital-Wandler zurückzuführen. Um diese Auswirkungen zu reduzieren, wurden bei den finalen Messungen alle nicht-temperatursensitiven Detektorkanäle in der SQUID-Ausleseelektronik ACgekoppelt. Daraus folgt jedoch auch, dass man die Signalsprünge im Vor-Trigger-Niveau nicht mehr als Indikatoren für potentielle Zeitschnitte verwenden kann.

In dem mit (3) markierten Zeitbereich findet eine vergleichsweise starke korrelierte Änderung sowohl in der Temperaturinformation als auch bei den Pulshöhen der 42 keV-Linien statt. Dies können durchaus reale Temperaturvariationen des Detektors zum Beispiel durch eine variierende Kryostatentemperatur sein, die üblicherweise durch die Temperaturkorrektur erfasst wird und damit kein Zeitschnitt erforderlich ist. Der kurze Zeitbereich dieser Temperaturänderung von etwa 10 Minuten könnte jedoch auch ein Indiz für eine Auswirkung durch kurze Tätigkeiten im Labor, wie zum Beispiel das Nachfüllen der Kühlfalle des Kryostaten mit flüssigem Stickstoff, sein. Ob die Schwankung in diesem Zeitbereich korrigiert werden kann, zeigt sich letztendlich erst nach der in Abschnitt 5.2.3 beschriebenen Temperaturkorrektur anhand der daraufhin erreichten Linienbreite.

Bei (4) fand ein Ereignis statt welches sich sowohl auf das Vor-Trigger-Niveau des Kanals selbst als auch auf die Temperaturinformation durch einen instantanen kurzzeitigen Signalanstieg auswirkte. Dies ist erfahrungsgemäß kein realer Temperatureffekt, sondern kann durch eine zeitweise Änderung des lokalen Magnetfelds um die mit dem Detektor verbundenen supraleitenden Spulen zum Beispiel durch Bewegen massiver Objekte im Labor, durch Mobiltelefone oder WLAN-Funkverkehr verursacht werden. Massive Störungen dieser Art können eine ordnungsgemäße Funktion der Signalarückkopplung der SQUID-Schaltung verhindern, erzeugen fehlerhafte Pul-

se, können dabei meist nicht korrigiert werden und werden daher verworfen.

Im mit (5) markierten Zeitbereich fanden zwei Signalsprünge im Vor-Trigger-Niveau des Einzelkanals innerhalb kurzer Zeit statt. Aufgrund der dann reduzierten Statistik eines derart kurzen Zeitbereichs, kann hier weder die Qualität des Spektrums beurteilt noch kann die sich anschließende Temperaturkorrektur sinnvoll durchgeführt werden. Zu dicht aufeinander folgende Indikatoren eines benötigten Zeitschnitts führten daher im Zweifelsfall dazu dass der Zeitbereich verworfen wurde.

Bei der Auswertung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurde zusätzlich zu den durch oben genannte Indikatoren ermittelten Schnittstellen rekursiv geschnitten. Dazu wurde anhand der erreichten Linienbreite in einem Zeitbereich iterativ entschieden ob weitere Zeitschnitte nötig sind.

5.2.2 Temperaturkorrektur

Durch den gradiometrischen Aufbau der Einzeldetektoren sind deren Nullsignale vergleichsweise unempfindlich gegenüber Temperaturschwankungen des Detektorchips. Dennoch ändert sich der thermodynamische Parameterraum unter anderem durch die Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazitäten und -leitfähigkeiten mit der Temperatur. Durch die gleichzeitige Aufnahme des Vor-Trigger-Niveaus eines, in Abschnitt 4.1.1 vorgestellten, nicht-gradiometrischen Detektorkanals, kann jedem aufgenommenen Puls eine Temperaturinformation zugeordnet werden. Sie enthält dabei keine Information über die absolute Temperatur des Detektors, jedoch über die relative Temperaturänderung von einem zum nächsten aufgenommenen Puls. In Abbildung 5.9 ist die relative Pulshöhe über dieser Temperaturinformation aufgetragen. In der linken Abbildung ist eine deutliche Neigung der mit dem Auge leicht identifizierbaren Linien mit der Temperaturinformation zu erkennen. Für geringe Temperaturfluktuationen kann diese, wie in der Abbildung durch die gestrichelte Linie gezeigt, durch Anpassen einer Geraden erfasst werden. Teilt man nun die relativen Amplituden durch diese Gerade, so erhält man den in der rechten Abbildung gezeigten, korrigierten Datensatz. Vergleicht man die Linienbreiten vor und nach dieser Temperaturkorrektur, so verbessert sich die Energieauflösung bei typischen Bedingungen im vorliegenden Aufbau etwa um einen Faktor 5.

Nutzt man die temperatursensitiven Detektorkanäle gleichzeitig um Pulse aufzunehmen, so kommt es bei höheren Zählraten häufiger vor, dass dieser Kanal noch nicht vollständig thermalisiert ist, wenn für ein Ereignis auf einem anderen Pixel die Temperaturinformation benötigt wird. In diesem Fall ist diese Information verfälscht und führt zu einer fehlerhaften Temperaturkorrektur. Im Laufe dieser Arbeit wurde daher das in Abschnitt 4.8 beschriebene PAQS-Programm derart erweitert, dass bei der Mittlung über das Vor-Trigger-Niveau des temperatursensitiven Kanals ebenfalls die

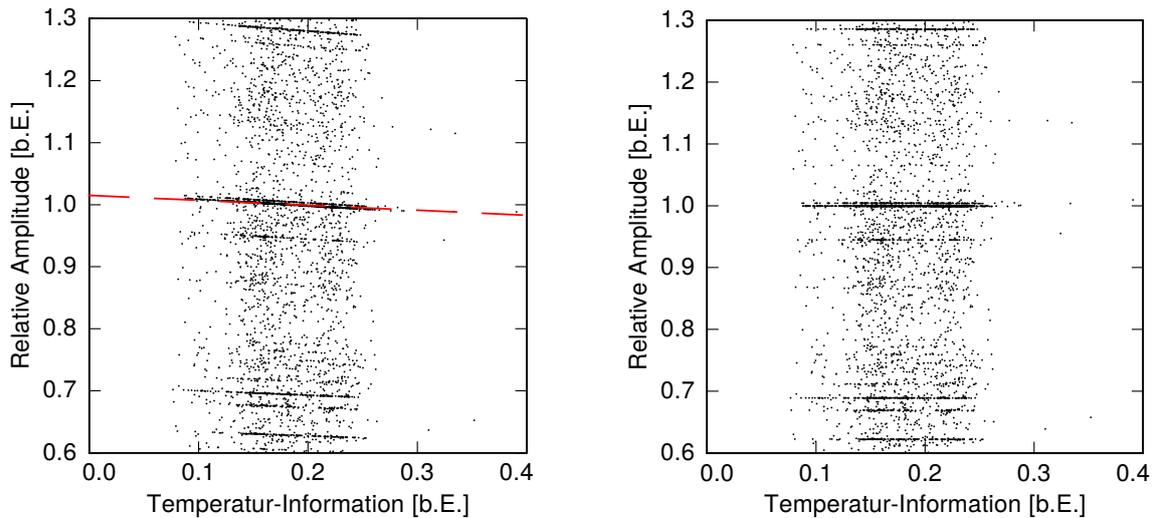


Abbildung 5.9: Beispiel einer Temperaturkorrektur. Relative Amplituden über der Temperaturinformation, also dem Vor-Trigger-Niveau vor der Korrektur eines nicht temperatursensitiven Kanals mit linearer Anpassung einer Gerade an eine geeignete Linie (**links**). Korrigierter Datensatz nach Dividieren der relativen Amplituden durch die lineare Anpassung (**rechts**).

Standardabweichung vom Mittelwert über diesen Bereich ermittelt wird. So können Ereignisse mit fehlerhafter Temperaturinformation im Nachhinein anhand einer zu großen Standardabweichung erkannt und aussortiert werden. Die Auswirkung dieses Effekts auf die im weiteren Verlauf dieses Kapitels diskutierter Messungen war jedoch sehr gering, da die temperatursensitiven Kanäle in den Ecken der sensitiven Fläche genau aus diesem Grund mit dicken Goldfolien abgedeckt waren.

Es stellt sich heraus, dass die zur Temperaturkorrektur verwendete Spektrallinie nach der Korrektur eine im Vergleich zu benachbarten Linien schmalere Linienbreite aufweist. Dies ist einerseits darauf zurückzuführen, dass statistische Schwankungen der verwendeten Linie durch die Anpassung der Geraden bis zu einem gewissen Grad ebenfalls korrigiert werden und zudem ist eine schwache Energieabhängigkeit der Steigung möglich. Aus strategischen Gründen wurde daher beim Auswerten des ^{233}U -Spektrums stets die ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie bei 42,4 keV zur Temperaturkorrektur verwendet, da diese sowohl eine hohe Statistik besitzt, als auch deren Breite und Position in der in Abschnitt 5.4.1 diskutierten Auswertung eine Rolle spielt.

5.2.3 Aussortieren beeinträchtigter Messphasen

Während die Selektion und Qualitätskontrolle aufgenommener Datensätze in früheren Arbeiten überwiegend manuell durch optische Begutachtung erfolgte, war das im Rahmen dieser Arbeit aufgrund der großen aufgenommenen Datenmengen kaum

noch möglich. Daher wurden zunächst hinsichtlich der im Folgenden diskutierten Aspekte sinnvolle Grenzwerte ermittelt, durch welche eine automatisierte Selektion der Datensätze möglich war. Der große Vorteil dieser Automatisierung ist neben der Zeitersparnis die vollständige Reproduzierbarkeit bei der Erstellung eines Datensatzes durch Wegfallen der meist subjektiven persönlichen Komponente.

Um die Amplitude eines einzelnen Pulses möglichst genau zu bestimmen, wird an den kompletten Puls ein zuvor erstellter Musterpuls angepasst. Bei den vorliegenden Messungen wurde dieser Musterpuls jedes Detektorpixels aus einigen hundert bis einigen tausend Pulsen der dominanten $^{229}\text{Th}-\gamma_{3,0}$ -Linie bei 42,4 keV gemittelt und die relative Amplitude durch Skalieren der Amplitude des Musterpulses ermittelt. Die verbleibende Abweichung der Pulsform eines jeden Pulses vom skalierten Musterpuls wird dabei berechnet und mit Störsignalen behaftete Pulse sowie Stapelungen von Ereignissen (Pile-Ups) können dadurch nachträglich durch Setzen eines Schwellwertes für diesen Parameter herausgefiltert werden. Bei einem typischen Pixel, in einem typischen Zeitbereich werden dadurch etwa 0,5 % der Signale verworfen.

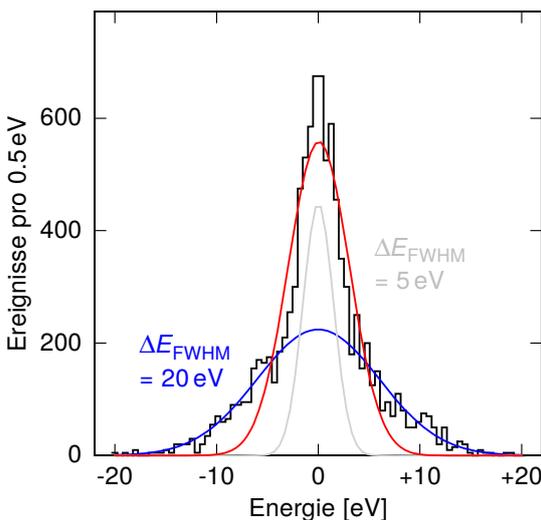


Abbildung 5.10: Beispielhafte Überlagerung zweier gaußförmiger Linien mit Linienbreiten von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 5 \text{ eV}$ (grau) und $\Delta E_{\text{FWHM}} = 20 \text{ eV}$ (blau). Durch die lineare Anpassung einer einzelnen Gauß-Verteilung (rot) kann die aufaddierte Linienform nicht mehr hinreichend beschrieben werden.

In Abbildung 5.10 wird anhand eines beispielhaften Datensatzes demonstriert, dass das Aufaddieren zweier gaußförmiger Linien mit unterschiedlichen Breiten mitunter in einer nicht gaußförmigen Linie im aufsummierten Spektrum resultiert. Das Histogramm der Überlagerung zweier Gauß-Verteilungen wurde dabei exemplarisch mit den Breiten $\Delta E_{\text{FWHM}} = 5 \text{ eV}$ in Grau und $\Delta E_{\text{FWHM}} = 20 \text{ eV}$ in Blau erstellt. Die numerische Anpassung einer Gauß-Kurve (rot) an diese Überlagerung zeigt eine deutliche Abweichung von den Daten (schwarz). Während dies bei symmetrischen Einzellinien zur Linienmittenbestimmung kaum eine Rolle spielt, wird die Auflösung eines Linien-Dubletts durch diese zusätzliche Verbreiterung deutlich erschwert. Im Rahmen dieser Arbeit wurden daher Messphasen bei welchen einzelne Linien durch temporäre Einflüsse verbreitert sind aussortiert. Dazu wurde an die $^{229}\text{Th}-\gamma_{2,1}$ - bei

29,2 keV und die ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie bei 42,4 keV-Linie, deren Breiten für die vorliegende Messung zentral sind, eine Gauß-Kurve angepasst und Zeitabschnitte mit Linienbreiten von $\Delta E_{\text{FWHM}} > 15$ eV verworfen. Insgesamt wurden dadurch zusätzlich etwa 4,5 % der Daten verworfen.

Weiterhin wurde in einzelnen Zeitabschnitten eine zusätzliche nicht gaußförmige Verbreiterung einzelner Linien beobachtet, deren Ursache in einer fehlerhaften Temperaturinformation begründet sein könnte. Daher wurden Zeitbereiche, bei welchen mehr als 15 % an Ereignissen im 5σ -Bereich außerhalb einer angepassten Gauß-Kurve an die ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ - bei 29,2 keV beziehungsweise 10 % außerhalb der ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie bei 42,4 keV liegen, ebenfalls aussortiert. In Abbildung 5.11 ist dies beispielhaft anhand

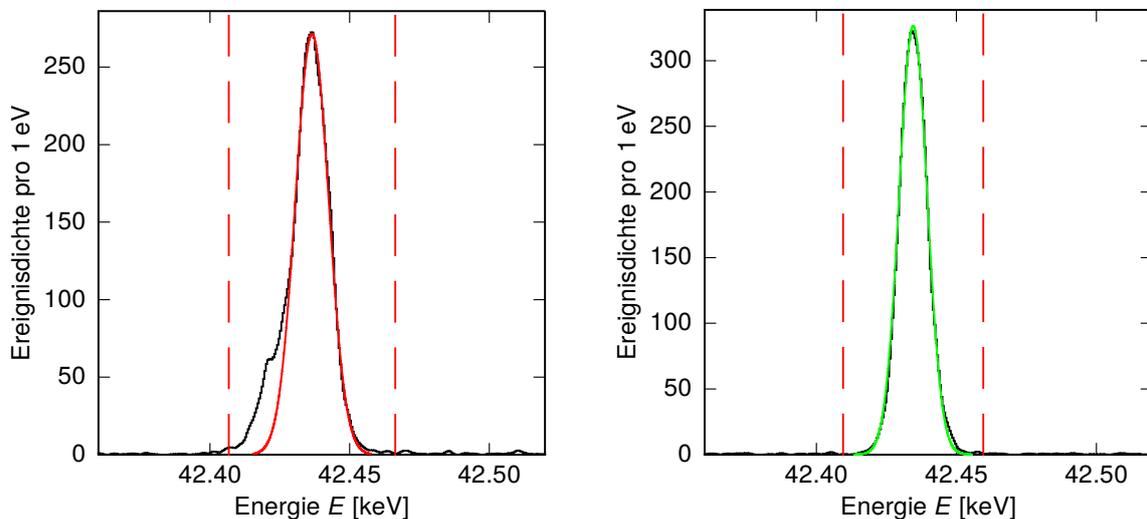


Abbildung 5.11: Histogramm zweier hinsichtlich nicht gaußförmigen Linien untersuchter Einzeldatensätze. Im linken Datensatz liegen etwa 15 % der Ereignisse im durch die vertikalen gestrichelten Linien markierten 5σ -Bereich um das Maximum der Linie außerhalb der Gauß-Verteilung. Im rechten Datensatz stimmt die Anzahl der Ereignisse im 5σ -Bereich zu 99,9 % mit der in der Gauß-Kurve überein.

der ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie bei 42,4 keV zweier Einzeldatensätzen demonstriert. Im linken Datensatz liegen etwa 15 % der Ereignisse im 5σ -Bereich um das Maximum der Linie außerhalb der numerisch angepassten Gauß-Verteilung – daher wurde dieser Zeitbereich verworfen. Beim rechten Datensatz stimmt die Anzahl der Ereignisse in der Gauß-Verteilung zu 99,9 % mit der in der Linie überein, wodurch er sich hinsichtlich dieses Kriteriums für das Gesamtspektrum eignet. Durch diese Filterung wurden insgesamt etwa weitere 22 % der Daten verworfen.

5.2.4 Aufaddieren der Einzelspektren

Nachdem die einzelnen Datensätze nach Güte selektiert und auf Temperaturschwankungen hin korrigiert wurden, werden diese im nächsten Schritt zu einem Gesamtdatensatz zusammengefügt. Im Folgenden werden dazu einige Strategien samt Vor- und Nachteilen diskutiert, die im Laufe vorliegender Arbeit angewandt wurden.

Besitzt jeder einzelne Datensatz hinreichend viel Statistik um ausreichend viele Linienpositionen mit der geforderten Genauigkeit identifizieren zu können, so kann die in Abschnitt 5.2.6 diskutierte Energiekalibration auf jeden dieser Einzeldatensätze angewandt und diese anschließend aufaddiert werden. Um dabei eine Linearitätskorrektur dritten Grades durchführen zu können, benötigt man drei zur Kalibration geeignete Linien mit ausreichender Statistik. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen einer ^{233}U - und ^{241}Am -Quelle war dies aufgrund geringer Zählraten nicht der Fall, daher wurde zwei weiteren Ansätzen nachgegangen.

Da anzunehmen ist, dass die Nicht-Linearität eines Detektor-Pixels während einer Messung konstant ist und kleine Signalsprünge lediglich zu einer Streckung oder Stauchung der Signalhöhen führen, können prinzipiell die einzelnen Datensätze eines Pixels nach der Temperaturkorrektur anhand einer Linie linear in der Amplitude gestreckt werden sodass die Linienpositionen möglichst gut übereinstimmen. Besitzt ein dadurch entstandener Datensatz eines einzelnen Pixels dann hinreichend Statistik, so besteht ein Ansatz darin bei diesen jeweils einzeln eine Linearitätskorrektur durchzuführen und die korrigierten Daten aller Kanäle anschließend zu einem Gesamtspektrum aufzuaddieren.

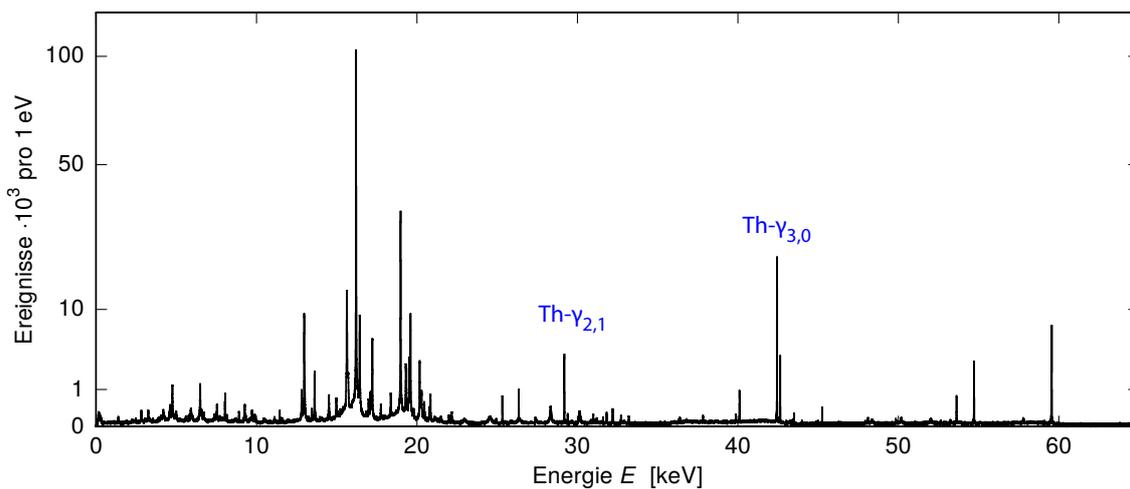


Abbildung 5.12: Aufsummiertes Gesamtspektrum im Energiebereich bis 65 keV. Zur besseren Sichtbarkeit der einzelnen Linien besitzt die Ordinatenachse eine Wurzelskalierung. Die beiden zum Aufsummieren verwendeten ^{229}Th -Linien sind gekennzeichnet.

Wie im vorangehenden Abschnitt jedoch bereits erwähnt wurde, ist die Energieauflösung bei der für die Temperaturkorrektur verwendeten Linie am besten und degradiert leicht mit zunehmendem Abstand von dieser. Für die in Abschnitt 5.4.1 diskutierte Auswertungsmethode ist dies nicht erwünscht, da an zwei entfernten Stellen im Spektrum jeweils bestmögliche Auflösung erforderlich ist. Daher wurde nach der Temperaturkorrektur der Einzeldatensätze an einer dieser beiden Linien und nach Aufaddieren aller Datensätze eines Einzelpixels zusätzlich eine Gauß-Kurve an die andere der beiden Linien angepasst. Die aufsummierten Datensätze der Einzelpixel wurden dann an diesen beiden Linien und dem Nullpunkt durch Anpassen einer Parabel aufeinander skaliert. Dadurch wurde im dann erhaltenen Gesamtspektrum eine bestmögliche Auflösung an beiden Linien gleichzeitig erreicht.

In Abbildung 5.12 ist das dadurch entstandene Gesamtspektrum mit einer wurzel-skalierten Ordinatenachse dargestellt. Die absolute Energiekalibration ist Gegenstand des Abschnitts 5.2.6.

Numerische Anpassung einer Gauß-Verteilung

Bei symmetrischen Linien mit ausreichend Statistik sowie einem verhältnismäßig niedrigen und konstantem Untergrund lässt sich die Linienposition durch Anpassung einer Gauß-Verteilung mit der statistischen Unsicherheit von $\Delta E = \sigma/\sqrt{N}$ bestimmen. Dabei ist σ die Standardabweichung der Gauß-Verteilung und N steht für die Anzahl an Ereignissen in der Linie. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen enthalten Linien oftmals geringe Statistik und werden durch einen meist unbekanntem Untergrund überlagert. Durch welche Möglichkeiten die Bestimmung der Linienmitte unter derartigen Umständen verbessert werden kann, wird im Folgenden anhand eines beispielhaft erzeugten Datensatzes motiviert.

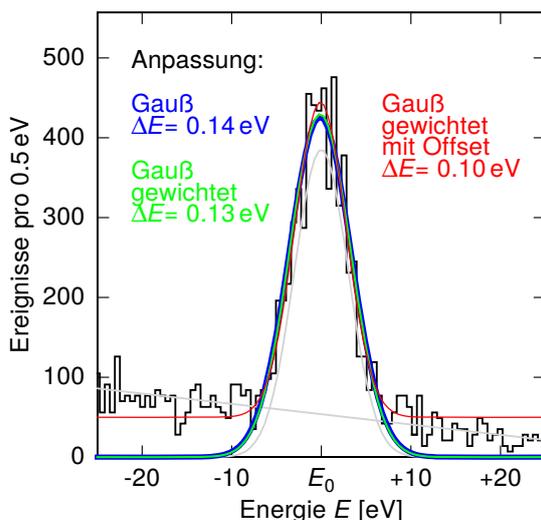


Abbildung 5.13: Beispielhafte Überlagerung einer gaußförmigen Linie mit Linienbreite $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10 \text{ eV}$ mit einem linear abfallenden Untergrund (jeweils grau). Es wurden drei Anpassungen, eine Gauß-Verteilung (blau), eine gewichtete Gauß-Verteilung (grün) und eine gewichtete Gauß-Verteilung unter Annahme eines konstanten Untergrunds (rot) an diese Überlagerung angepasst.

In Abbildung 5.13 ist eine Überlagerung einer Gauß-Verteilung mit einer Breite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10 \text{ eV}$ (grau) mit einem unbekanntem Untergrund – hier modelliert durch eine abfallende Gerade (ebenfalls grau) – dargestellt. Die numerische Anpassung einer Gauß-Verteilung (blau) ohne Berücksichtigung des Untergrunds ergibt eine deutliche Verbreiterung und in diesem Beispiel ein Fehler der Linienposition von $\Delta E = 0,14 \text{ eV}$. Durch Gewichtung jedes einzelnen Datenpunktes bei der numerischen Anpassung mit der Anzahl N der Ereignisse in der Linie (grün), kann der Fehler etwas reduziert werden. Nimmt man zusätzlich zu dieser Gewichtung für die numerische Anpassung einen gemittelten konstanten Untergrund an, so reduziert sich der Fehler in diesem Beispiel weiter auf etwa $\Delta E = 0,10 \text{ eV}$.

Zusammenfassend ist es ratsam, um bei der Bestimmung der Linienpositionen nicht zu sehr durch einen unbekanntem Untergrund beeinträchtigt zu sein, diesen mindestens durch einen konstanten Achsenversatz (Offset) zu berücksichtigen und zudem durch Gewichtung der Datenpunkte bei der Anpassung mit der Ereignisanzahl in der Linie, die Ereignisse auf Untergrund-Niveau weniger stark zu berücksichtigen als die in der Nähe des Maximums der Linie selbst.

5.2.5 Glättungsfaltung

Nach den in den vorigen Abschnitten beschriebenen Korrekturen können die aufaddierten und temperaturkorrigierten Pulshöhen in einer Häufigkeitsverteilung als Spektrum dargestellt werden. Die übliche Form ist dabei das Histogramm. Für Datensätze mit hoher Statistik und dadurch einer möglichen kleinen Klassenbreite ist diese Darstellung sinnvoll. Bei geringerer Statistik zeigt sich eine Abhängigkeit der Linienpositionen und -breiten von der gewählten Breite und absoluten Position der Klassen. Um dies zu veranschaulichen wurde ein Musterdatensatz, welcher in Abbildung 5.14 zu sehen ist, aus zehn zufällig generierten mit einer Breite von $\sigma = 1 \text{ AE}$ (Amplituden-Einheiten) normalverteilten Werten erstellt. Deren Amplitude ist jeweils durch ein Kreuz auf der oberen Achse der Abbildung verdeutlicht. Als Klassenbreite wurde 1 AE gewählt. Sowohl die Position als auch die Breite einer an das Histogramm angepassten Gauß-Verteilung ändert sich allein durch Verschieben der linken Klassengrenze hier von ganzzahligen (grün) auf halbzahlige AE (rot). Um diesen Effekt zu vermeiden, kann das Spektrum durch Faltung, basierend auf dem Prinzip der Kerndichteschätzung zu einer stetigen Dichtefunktion geglättet werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dazu eine Gauß-Verteilung $k(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2}}$ als Kern genommen, sodass bildlich ausgedrückt, jeder Messwert durch eine Normalverteilung mit Einheitsfläche ersetzt wird und anschließend durch Aufsummieren aller dieser Normalverteilungen eine stetige Funktion erzeugt wird.

Für eine Stichprobe bestehend aus n Werten $x_i \in \mathbb{R}$ aus einer beliebigen Dichte-

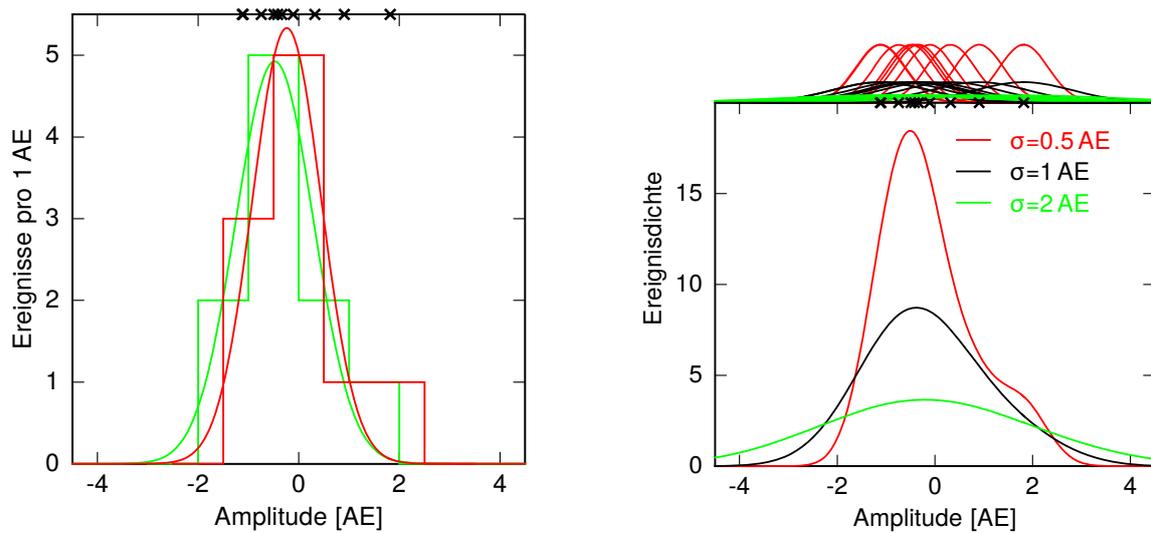


Abbildung 5.14: Musterdatensatz bestehend aus zehn mit einer Breite von $\sigma = 1$ AE (Amplituden-Einheiten) normalverteilten, zufällig generierten Werten, deren Amplituden auf den oberen Achsen als Kreuze eingezeichnet sind. Vergleich zweier aus den Musterdaten erstellter Histogramme mit unterschiedlicher linker Klassengrenze und einer Klassenbreite von 1 AE (**links**). Jeweils überlagert ist eine numerische Anpassung einer Gauß-Verteilung. Dichteverteilungen der Musterdaten erstellt durch Kerndichteschätzung mit unterschiedlichen Bandbreiten σ (**rechts**). Die einzelnen Gauß-Kurven aus welchen die Dichteverteilung aufsummiert wird sind auf der oberen Achse über den Datenpunkten eingezeichnet.

verteilung f und einem Kern k einer nichtnegativen normierten Funktion, wird der Kerndichteschätzer

$$\tilde{f}_n(x) = \frac{1}{n\sigma} \sum_{j=1}^n k\left(\frac{x - x_j}{\sigma}\right) \quad (5.9)$$

mit Bandbreite σ definiert.

Rechts in Abbildung 5.14 wird deutlich dass die Qualität des Kerndichteschätzers maßgeblich von der Bandbreite σ abhängt. Dazu sind die auf der oberen Achse der Abbildung eingezeichneten Beispielpunktwerte jeweils zusätzlich durch eine Gauß-Kurve mit Breite σ dargestellt. Im Graphen selbst sind jeweils die aufsummierten Kerndichteschätzungen, also die Summe der einzelnen Gauß-Kurven mit den drei unterschiedlichen Bandbreiten von $\sigma = 0,5$ bis $\sigma = 2$ eingezeichnet. Ist σ sehr klein gewählt (rote Kurve), so ist die Kurve wenig geglättet und wird durch Datenartefakte dominiert, ist σ hingegen zu groß (grüne Kurve), so wird die Kurve zu sehr geglättet, sodass die Breite aufgenommener Linien im Vergleich zur natürlichen Linienbreite, hier gegeben durch die Breite der erzeugenden Gauß-Verteilung der Musterdaten von $\sigma = 1$ AE, künstlich vergrößert wird. Ein sinnvoller Kompromiss hängt dabei von der Statistik und der natürlichen Linienbreite des aufgenommenen Spektrums sowie dem Auflösungsvermögen des Detektors und nicht zuletzt von der Intention der

Auswertung ab. Im Rahmen dieser Arbeit wurde, um die Position einer Linie mit etwa 1200 Ereignissen und einer Linienbreite von etwa $\Delta E_{\text{FWHM}} = 11$ eV bestmöglich auflösen zu können, $\sigma = 1$ eV gewählt.

Um die benötigte Rechenleistung für die Umwandlung der Messdaten in die Dichtefunktion zu reduzieren, kann anstatt der Kerndichteschätzung eine Faltung des Histogramms mit einem Gaußkern durchgeführt werden. Dazu wird zunächst ein Histogramm h mit möglichst kleiner Klassenbreite erstellt. Die Faltung hat dann die Form

$$\tilde{f}(x) = (h * k)(x) = \int_{\mathbb{R}} h(z) \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-\frac{(x-z)^2}{2\sigma^2}} dz. \quad (5.10)$$

Weitere Rechenleistung kann mit dem Faltungstheorem durch Faltung im Fourierraum eingespart werden [Bus18].

5.2.6 Energiekalibration

In Gleichung 3.3 wurde näherungsweise angenommen, dass die Signalhöhe eines magnetischen Kalorimeters perfekt proportional zum Eintrag einer Energie E in den Teilchenabsorber ist. Da jedoch sowohl die Gesamtwärmekapazität $C_{\text{ges}}(T)$ als auch die Magnetisierung $M(T)$ des Temperatursensors von der Temperatur des Detektors abhängen, ändern sich diese auch während der durch einen Puls verursachten Temperaturänderung. Dies führt dazu, dass die Signale bei hohen Photonenergien im Vergleich zu denen bei niedrigen Photonenergien relativ betrachtet kleiner sind. Im vorliegenden Aufbau führt die Absorption eines Np- $\gamma_{2,0}$ -Photons mit etwa 59,5 keV bei einer Detektortemperatur von 25 mK zu einem Temperaturanstieg von etwa 0,5 mK, was sich bereits merklich auf die Signalhöhe auswirkt.

In Abbildung 5.15 ist links dazu die gemessene Signalhöhe A einiger identifizierter Linien im aufsummierten Gesamtspektrum über deren Literaturenergien E inklusive einer kubischen Anpassung der Form

$$A(E) = aE + bE^2 + cE^3 = aE \left(1 + \frac{b}{a}E + \frac{c}{a}E^2 \right) =: a'E \left(1 + \frac{E}{B} + \frac{E^2}{C^2} \right) \quad (5.11)$$

aufgetragen. Dabei wurde letztere Darstellung gewählt um die Einflüsse des quadratischen Beitrags $B = a/b$ und des kubischen Beitrags $C = \sqrt{a/c}$ in Einheiten der Energie und unabhängig von der absoluten Kalibration a' quantifizieren zu können. Die Abweichung von der durch eine hellgraue gestrichelte Linie angedeutete lineare Abhängigkeit ist hier kaum zu erkennen. Auf der rechten Seite der Abbildung ist daher die Differenz zu dieser Geraden über der Photonenergie E dargestellt. Bei 60 keV beträgt sie lediglich etwa 1 %.

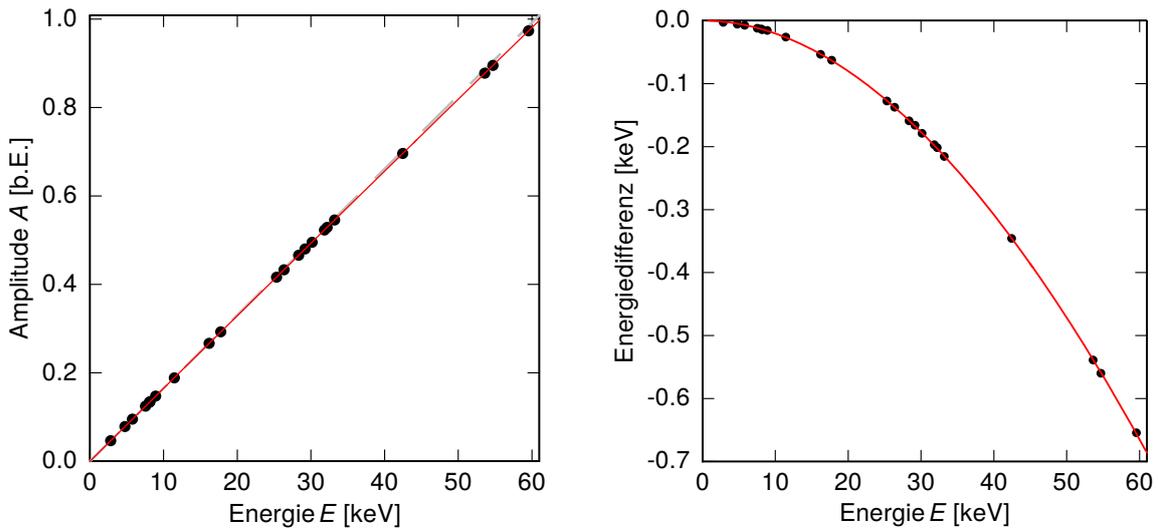


Abbildung 5.15: Gemessene Signalhöhe A in Abhängigkeit von der Photonen-Energie E für einige ausgewählte Röntgen- und γ -Linien des in Abschnitt 5.3 gezeigten Gesamtspektrums der verwendeten ^{233}U - und ^{241}Am -Quellen mit einer numerischen Anpassung nach Gleichung 5.11 (**links**). Die gestrichelte hellgraue Linie deutet eine lineare Abhängigkeit an. Differenz der gemessenen Energien von dieser linearen Abhängigkeit aufgetragen über der Energie E (**rechts**).

In früheren Arbeiten war die Nicht-Linearität meist nicht von zentraler Bedeutung und wurde daher oft stark vereinfachend gut durch eine quadratische Funktion beschrieben [Bat16]. Die hier betrachtete physikalische Fragestellung erfordert und die hierfür erarbeitete hohe Statistik gepaart mit der exzellenten Energieauflösung über einen großen Energiebereich, ermöglicht es im vorliegenden Datensatz eine große Anzahl an Linien zu identifizieren, die eine Linearitätskorrektur auf einem Niveau erlauben, welches zumindest die nächst höhere, kubische Ordnung nötig macht. Zudem kann, wie in Abschnitt 4.8.1 beschrieben ist, die Nicht-Linearität des Analog-Digital-Wandlers nicht undiskutiert vernachlässigt werden. In Abbildung 5.16 sind die Residuen, also die Differenzen der gemessenen Amplituden Linienmitten von einer quadratischen (**links**) und kubischen Anpassung (**rechts**) eingezeichnet. Offensichtlich liegen bei der quadratischen Anpassung die meisten Messwerte innerhalb ihrer Fehlergrenzen nicht auf der Kalibration. Zudem ist eine systematische Abweichung zu erkennen, die auf die Notwendigkeit einer höheren Ordnung schließen lässt. Die Residuen der kubischen Anpassung in der rechten Abbildung sind deutlich besser mit Null verträglich. Die Fehlerbalken wurden dabei jeweils aus der quadratischen Addition aus der statistischen Ungenauigkeit bei der Linienmittenbestimmung sowie dem Fehler der Literaturenergien berechnet. Obwohl die absolute Abweichung jedes einzelnen Wertes über den gesamten Energiebereich mit maximal 1,5 eV bereits sehr klein ist, werden im folgenden Abschnitt die Ursachen dieser Abweichungen sowie

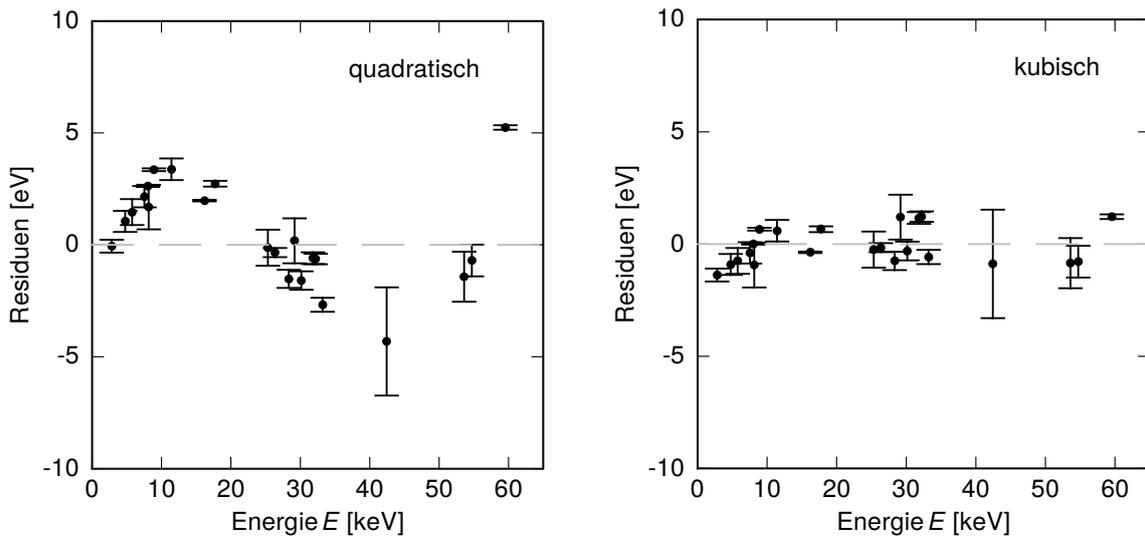


Abbildung 5.16: Residuen der quadratischen (**links**) und kubischen Anpassung (**rechts**) an die Signalamplituden einiger im Gesamtspektrum identifizierter Linien in Abhängigkeit von deren Energie E . Die Fehler setzen sich aus den statistischen Unsicherheiten der Linienmittenbestimmung sowie den Unsicherheiten der Literaturwerte zusammen.

die Verlässlichkeit der Literaturwerte diskutiert, um eine noch genauere Energiekalibration zu erreichen.

Diskussion der Kalibrationslinien und deren Literaturwerte

Den Großteil der Intensität der aus der ^{233}U -Quelle sowie der ^{241}Am -Kalibrationsquelle kommenden Photonen sind **Röntgenphotonen**, die aus einem angeregten Zustand der Elektronenhülle der Zerfallstöchter ^{229}Th beziehungsweise ^{237}Np entstehen. Aufgrund der endlichen Lebensdauer dieser Zustände haben die lorenz-verteilten Röntgenlinien eine endliche Linienbreite die hier meist in der Größenordnung von etwa 15 bis 20 eV(FWHM) liegt [Rod16]. Zudem können sogenannte Satellitenlinien durch den Einfluss fehlender Elektronen auf am Übergang nicht unmittelbar beteiligter Energieniveaus auftreten, welche unter anderem von der Beschaffenheit des Quellenmaterials und der Art der Anregung der Elektronenhülle im Atom selbst oder in benachbarten Atomen abhängen [Del12]. Die daraus resultierende Linienform ist oftmals eine komplexe Überlagerung von zum Teil unzureichend bekannten Einzellinien. Zudem beherbergt die Tatsache, dass viele der Röntgenlinien durch massive Teilchen angeregt werden, die Gefahr, dass Mehrfachanregungen zu systematisch höheren Photonenergien führen können. Trotz ihrer hohen Statistik eignen sich daher nur wenige dieser Röntgenlinien zur Energiekalibration.

Ebenfalls aus einem angeregten Zustand der Zerfallstöchter ^{229}Th beziehungsweise

^{237}Np entstehen γ -**Photonen**. Im Vergleich zur instrumentellen Linienbreite des Detektors sind diese, aus der Abregung von Kernniveaus entstehenden Linien, wegen der langen Lebensdauer sehr scharf ($\Delta E \ll 1 \text{ eV}$) und lassen sich im gemessenen Spektrum durch eine Gauß-Verteilung beschreiben, deren Breite dann nur durch die Energieauflösung des Detektors gegeben ist. Die statistische Unsicherheit bei der Bestimmung der Linienmitte, also letztendlich der Energie des Übergangs, wird dabei durch $\Delta E = \sigma/\sqrt{N}$ bestimmt, wobei σ für die Standardabweichung der Gauß-Verteilung und N für die Anzahl an Ereignissen in der Linie steht.

Einer weiteren Kategorie von Ereignissen entstammen Röntgen- und γ -Photonen aus **Verunreinigungen und Zerfallsprodukten**. Insbesondere in der ^{233}U -Quelle finden sich Spuren weiterer Uran-Isotope sowie deren Zerfallsprodukte. In Abschnitt 5.3.1 wird deren Vorhandensein sowie deren Abtrennung durch eine chemische Reinigung im Detail diskutiert. Da keine der identifizierten Verunreinigungen eine γ -Linie mit ausreichend genauem Literaturwert besitzt, können diese hier nicht zur Energiekalibration herangezogen werden.

Befinden sich Materialien im Strahlengang zwischen der Quelle und dem Detektor oder in der unmittelbaren Umgebung, so können diese durch **Fluoreszenz** Röntgenphotonen emittieren. Potentiell mögliche Materialien sind dabei das Aluminium und Kupfer der unterschiedlichen Schilde und des Kollimators sowie die im Detektor selbst verwendeten Materialien wie Gold, Silber und Niob. Insbesondere bei niedrigen Energien ist der Vorteil dieser Linien, dass sie in Detektornähe entstehen und nicht, wie die Photonen aus der Quelle, durch die Abschirmungen abgeschwächt werden. Im Rahmen dieser Arbeit konnten die Cu-K- α -Linien bei etwa 8,0 keV sowie die Cu-K $_{\alpha}$ -Linien bei etwa 8,9 keV, die Au-L $_{\beta 1}$ -Linie bei etwa 9,7 keV, die Ag-K $_{\alpha 2}$ - bei etwa 22 keV sowie die Ag-K $_{\alpha 1}$ -Linie bei etwa 22,2 keV identifiziert werden.

In [Deu95] wurden die Röntgenlinien nach der Anregung eines Elektrons aus der K-Schale von Kupfer sorgfältig untersucht. In Abbildung 5.17 sind diese numerisch an die jeweiligen Linien im Gesamtspektrum angepasst. Da die Anpassungen qualitativ die Linienform sehr gut beschreiben und in diesem Energiebereich keine weiteren Linien dieser Qualität zur Kalibration zur Verfügung stehen, können diese Linien durchaus zur Energiekalibration herangezogen werden.

Weitere Linien entstehen durch Ionisierung der Gold-Atome im Teilchenabsorber. Sogenannte **Escape-Linien** entstehen, wenn ein Photon mit einer Energie E über den Photoeffekt ein Loch in der Elektronenhülle eines Gold-Atoms erzeugt. Dieses wird daraufhin mit einem Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt, wodurch die Energie $E_{\text{Au}}^{\text{ph}}$ dieses Übergangs in Form eines Photons freigesetzt werden kann. Kann dieses Photon den Teilchenabsorber verlassen, so verbleibt ein Signal dem eine Energie $E - E_{\text{Au}}^{\text{ph}}$ zugeordnet wird. Beispielsweise findet man eine Linie bei 4,76 keV die von Th-L- $\beta 1$ -Photonen mit 16,20 keV verursacht wird, welche die Au-L- $\beta 1$ -Schale

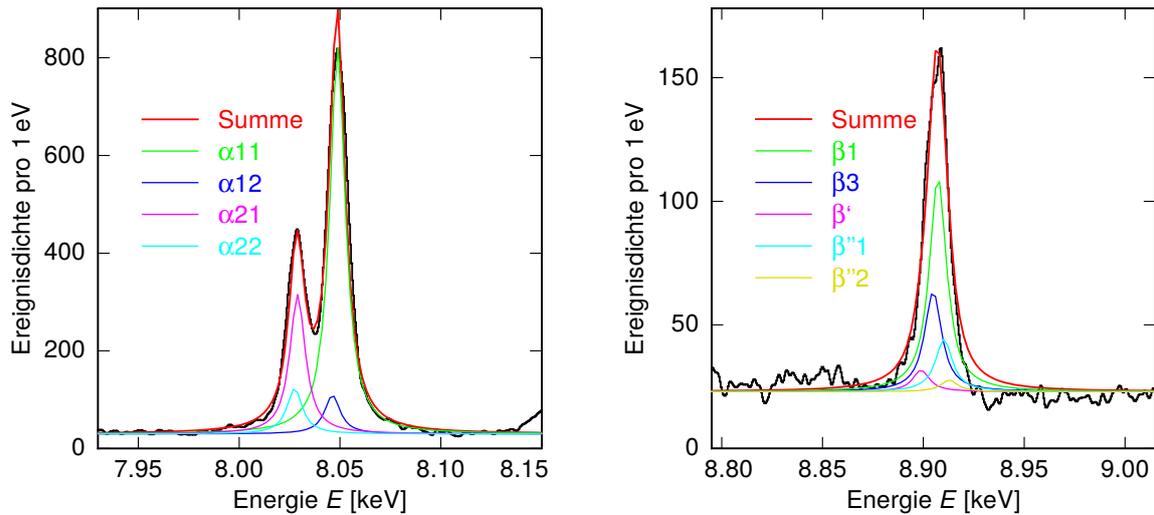


Abbildung 5.17: Zur Energiekalibration verwendete Fluoreszenz-Linien. Gemessenes Energiespektrum (schwarz) mit einer numerischen Anpassung (rot) an die Cu-K α - (**links**) und Cu-K β -Linien (**rechts**). Die Energien und Intensitätsverhältnisse stammen dabei aus [Deu95].

mit etwa 11,44 keV im Gold anregen. Aufgrund geringer Statistik und der nicht hinreichend bekannten Linienform der Übergänge der Gold-Elektronen-Niveaus können die Escape-Linien hier bisher nur eingeschränkt zur Energiekalibration verwendet werden.

Zusammenstellung unterschiedlicher Kalibrationslinien

Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten unterschiedlichen Methoden zur Bestimmung der Isomerenergie von ^{229}Th ist die absolute Energiekalibration jeweils von unterschiedlicher Bedeutung für die Genauigkeit des Ergebnisses. Im Folgenden werden daher unterschiedliche Sätze an Kalibrationslinien für die Energiekalibration zusammengestellt. Deren Einfluss auf das Ergebnis der jeweiligen Methode wird, falls dies relevant ist, an der entsprechenden Stelle in Kapitel 5.4 diskutiert.

In Tabelle 5.1 sind einige im Gesamtspektrum identifizierte γ -Linien, deren Literaturwerte samt Quelle sowie die Verwendung in Auswahl (I) bis (IV) für die Energiekalibration zusammengefasst.

Auswahl (I) beinhaltet einen Großteil der identifizierten Linien aus Tabelle 5.1. Trotz der zum Teil großen Unsicherheiten einzelner Literaturwerte und Schwankungen der Residuen (vergleiche Abbildung 5.16) lebt diese Auswahl von der großen Anzahl an Werten über den gesamten Energiebereich des aufgenommenen Energiespektrums über welche bei der Bestimmung der Linearitätskurve gemittelt wird.

Linie	Literaturenergie [eV]	Quelle	Auswahl
<u>^{241}Am-Quelle</u>			
$^{237}\text{Np}-\gamma_{2,1}$	$26\,344,60 \pm 0,24$	[Bè10]	(I), (II), (III), (IV)
$^{237}\text{Np}-\gamma_{1,0}$	$33\,196,3 \pm 0,3$	[Bè10]	(I), (II), (III), (IV)
$^{237}\text{Np}-\gamma_{2,0}$	$59\,540,9 \pm 0,1$	[Bè10]	(I), (II), (III)
<u>^{233}U-Quelle</u>			
$^{229}\text{Th}-\gamma_{3,2}$	13 244	[Bro08]	
$^{229}\text{Th}-L_{\beta 1}$	$16\,201,556 \pm 0,030$	[Des03]	(I), (III)
$^{233}\text{U}-L_{\beta 1}$	$17\,220,15 \pm 0,28$	[Des03]	(I)
$^{229}\text{Th}-L_{\gamma 1}$	$18\,978,259 \pm 0,020$	[Des03]	(I)
$^{229}\text{Th}-L_{\gamma 3}$	$19\,503,445 \pm 0,060$	[Des03]	(I)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{5,4}$	$25\,314,6 \pm 0,8$	[Hel94]	(I), (II), (IV)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{2,1}$	$29\,181,7 \pm 1,0$	[Mas19, Sei19]	(I)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{4,3}$	$29\,391,1 \pm 0,4$	[Bec07]	
$^{229}\text{Th}-\gamma_{3,0}$	$42\,452,4 \pm 0,7$	[Hel94]	
$^{229}\text{Th}-\gamma_{3,0}$	$42\,434,9 \pm 2,4$	[Bec07]	(I)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{4,2}$	$42\,633,3 \pm 0,2$	[Bec07]	
$^{229}\text{Th}-\gamma_{6,4}$	$53\,610,7 \pm 1,1$	[Hel94]	(I), (II), (IV)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{5,3}$	$54\,703,8 \pm 1,4$	[Hel94]	(I), (II), (IV)
<u>sekundäre Röntgen-Linien</u>			
Cu-K $_{\alpha}$	vgl. Abb. 5.17	[Deu95]	(I), (III), (IV)
Cu-K $_{\beta}$	vgl. Abb. 5.17	[Deu95]	(I), (III), (IV)
<u>Escape-Linien</u>			
Th-L $_{\beta 1}$ - Au-L $_{\gamma 1}$	$2819,77 \pm 0,24$		(I)
Th-L $_{\beta 1}$ - Au-L $_{\beta 1}$	$4759,11 \pm 0,47$		(I)
U-L $_{\beta 1}$ - Au-L $_{\beta 1}$	$5777,70 \pm 0,55$		(I)
Th-L $_{\gamma 1}$ - Au-L $_{\beta 1}$	$7535,81 \pm 0,47$		(I)
Th-L $_{\gamma 6}$ - Au-L $_{\beta 1}$	$8156,55 \pm 1,00$		(I)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{5,0}$ - Au-K $_{\alpha 1}$	$28\,330,10 \pm 0,35$		(I)
$^{229}\text{Th}-\gamma_{5,0}$ - Au-K $_{\alpha 2}$	$30\,143,87 \pm 0,30$		(I)
$^{237}\text{Np}-\gamma_{2,0}$ - Au-L $_{\beta 1}$	$48\,098,47 \pm 0,48$		(I)
<u>Fluoreszenz-Linien</u>			
Au-L $_{\beta 1}$	$11\,442,45 \pm 0,47$	[Des03]	(I)
<u>Sonstige/Verunreinigungen</u>			
$^{225}\text{Ac}-\gamma_{2,0}$	$40\,090 \pm 50$	[Jai09]	
Ba-K $_{\alpha 2}$	$31\,816,615 \pm 0,060$	[Des03]	(I), (III)
Ba-K $_{\alpha 1}$	$32\,193,262 \pm 0,070$	[Des03]	(I), (III)

Tabelle 5.1: Identifizierte Röntgen- und γ -Linien mit zugehörigem Literaturwert, dessen Quelle sowie die Verwendung in Auswahl (I) bis (IV) für die Energiekalibration. Die Escape-Linien und deren Unsicherheiten wurden mit Energien aus [Des03] berechnet.

Auswahl (II) verwendet lediglich sechs γ -Linien von ^{229}Th und ^{237}Np , die in der Literatur hinreichend dokumentiert sind. Durch fehlende Linien unterhalb von 25 keV scheint die Kalibrationskurve unzureichend bestimmt zu sein. In **Auswahl (III)** wurden daher zusätzlich zu den sechs γ -Linien, die Kupfer-Röntgenlinien, die dominante Th- $L_{\beta 1}$ -Linie sowie die in der Literatur mit sehr kleinem Fehlern angegebenen Barium-Röntgen-Linien ergänzt. Bei **Auswahl (IV)** wurde neben den sechs γ -Linien lediglich die Kupfer-Röntgenlinien als Anker bei niedrigeren Energien für die Anpassung hinzugefügt und auf die Np- $\gamma_{2,0}$ -Linie verzichtet. Der in Abbildung 5.18 gezeigte

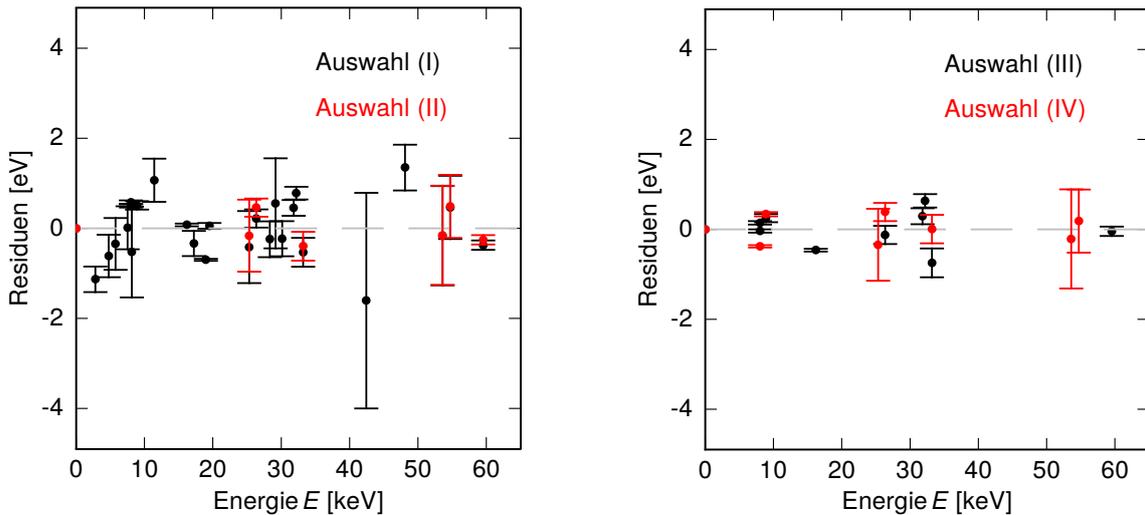


Abbildung 5.18: Vergleich der Residuen der Linearitätskorrekturen unter Verwendung der Auswahlen (I)-(IV) an Kalibrationslinien.

Vergleich der Residuen der Linearitätsanpassung unter Verwendung der Linienauswahl (I) bis (IV) zeigt, dass die Abweichung von Null bei den Auswahlen (II) bis (IV) stetig auf bis unter 0,5 eV reduziert werden konnte.

5.3 Gesamtspektrum

Mit einer durchschnittlichen Zählrate von etwa 550 Ereignissen/Pixel/Stunde im Energiebereich zwischen 0 und 70 keV wurde ein Gesamtspektrum unter Berücksichtigung der in den vorangegangenen Abschnitten erläuterten Korrekturen, effektiv über etwa 40 Tage auf 16 Detektor-Pixeln aufgenommen. Die Energiekalibration wurde wie in Abschnitt 5.2.6 beschrieben unter Verwendung der in Tabelle 5.1 zusammengefassten Auswahl (IV) an Kalibrationslinien durchgeführt. In Abbildung 5.19 wurde das Gesamtspektrum in drei Energiebereiche zwischen 0 und 60 keV. Zur besseren Sichtbarkeit wurden die Ordinatenachsen wurzelskaliert und auf die im jeweiligen Bereich vorhandene Zählrate angepasst.

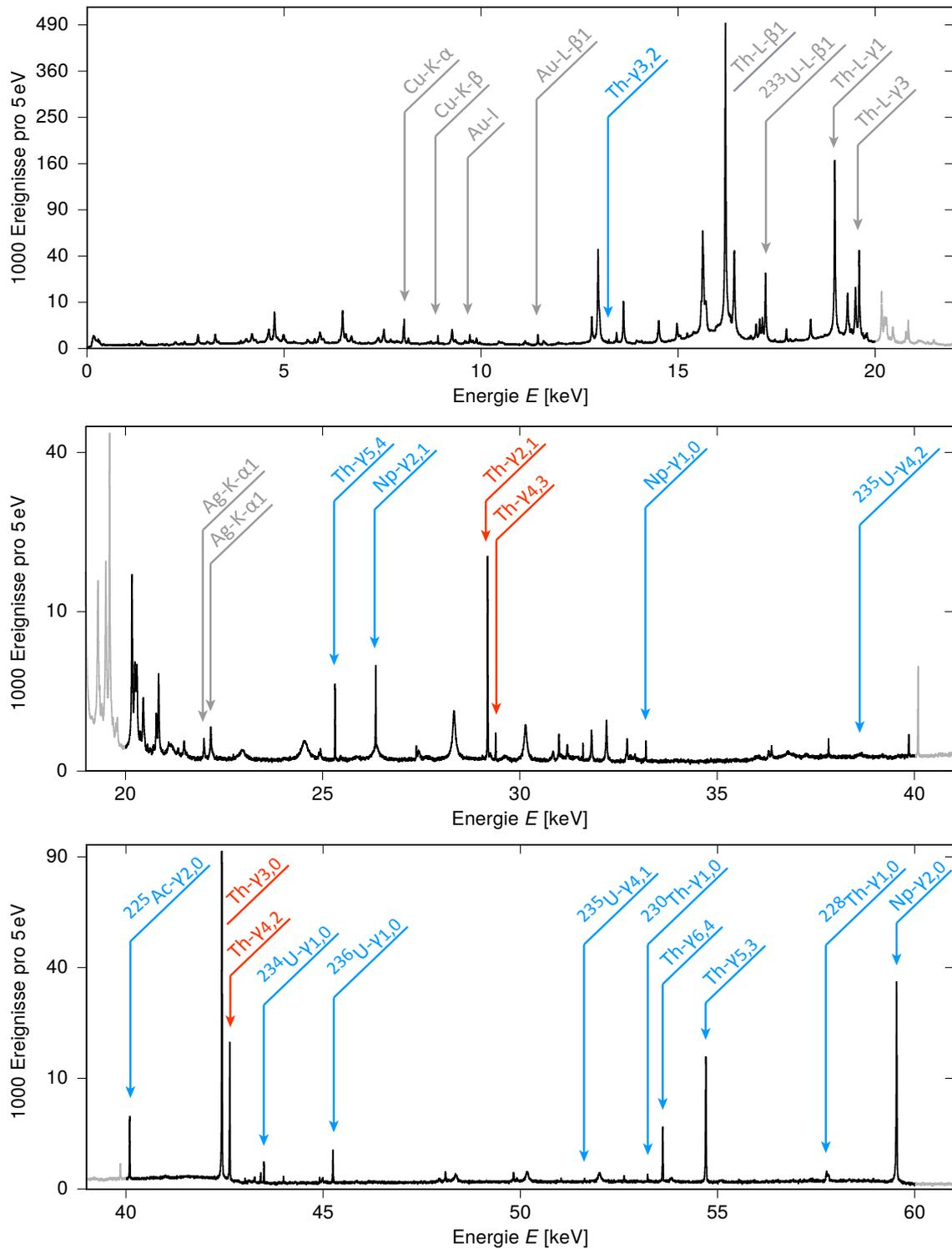


Abbildung 5.19: In drei Energiebereiche aufgeteiltes Gesamtspektrum der ^{233}U - und ^{241}Am -Quelle. Die primär zur Bestimmung der Isomerenergie von ^{229}Th verwendeten γ -Linien sind in Rot, weitere identifizierte γ - in Blau und Röntgen-Linien in Grau beschriftet. Wenn nicht explizit erwähnt ist jeweils das Isotop ^{229}Th beziehungsweise ^{237}Np gemeint. Zur besseren Sichtbarkeit von Linien mit geringer Statistik wurden die Ordinatenachsen jeweils wurzelskaliert.

5.3.1 Mutter- und Tochterzerfälle in der Quelle

In der ^{233}U -Quelle existieren, wie in Abschnitt 4.6.1 vorgestellt, unterschiedliche Arten von Verunreinigungen. Einerseits Isotope, die aufgrund ihrer ähnlichen chemischen Eigenschaften zu ^{233}U bei der chemischen Reinigung nicht abgetrennt werden können. Andererseits reichern sich mit der Zeit Tochter-Isotope aus den Zerfallsketten dieser Isotope in der Quelle an.

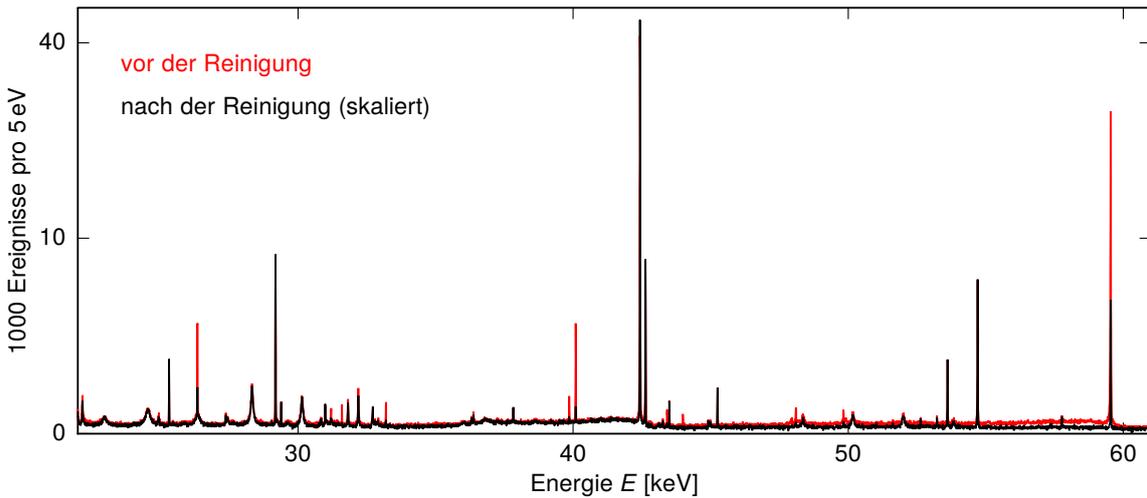


Abbildung 5.20: Aufgenommene Energiespektren der ^{233}U -Quelle vor der chemischen Reinigung in Rot und danach in Schwarz. Letzteres wurde anhand der Zählrate der ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie bei etwa 42,4 keV auf ersteres skaliert.

In Abbildung 5.20 ist dazu ein Vergleich der Messungen vor und nach einer erneuten chemischen Reinigung dargestellt. Neben einer deutlichen Reduktion der ^{237}Np - $\gamma_{2,0}$ -Linie bei 59,5 keV und dem durch Streuung dieser verursachten Untergrund, wurden offensichtlich auch die Zählraten der ^{237}Np - $\gamma_{2,1}$ - und $\gamma_{1,0}$ -Linien bei 26,3 keV und 33,2 keV durch die chemische Reinigung reduziert. Die Existenz des Isotops ^{237}Np lässt vermuten, dass auch ^{241}Pu in der Quelle vorhanden sein könnte, da es aus diesen durch α -Zerfall entsteht. In Abschnitt 5.4.1 wird sich zeigen, dass das Vorhandensein der ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ -Linie aus dem weiteren α -Zerfall des ^{237}Np nahe der schwächsten gesuchten ^{229}Th -Linie die Untersuchung dieser beeinträchtigen könnte. Es ist daher von entscheidender Bedeutung für die Auswertung die mögliche Existenz einer ^{237}Np -Kontamination in der Quelle zu untersuchen. ^{241}Pu und Photonen aus dem Zerfall von ^{237}Np selbst konnten bisher in der Quelle durch Gammaspektroskopie mit Halbleiterdetektoren nicht nachgewiesen werden. Bei der chemischen Reinigung der ^{233}U -Quelle konnte jeweils ^{241}Am abgetrennt werden, ^{237}Np und ^{241}Pu würden bei den verwendeten Reinigungsprozessen.

Anfang Januar 2019 wurde die Quelle zum letzten Mal chemisch gereinigt und dabei

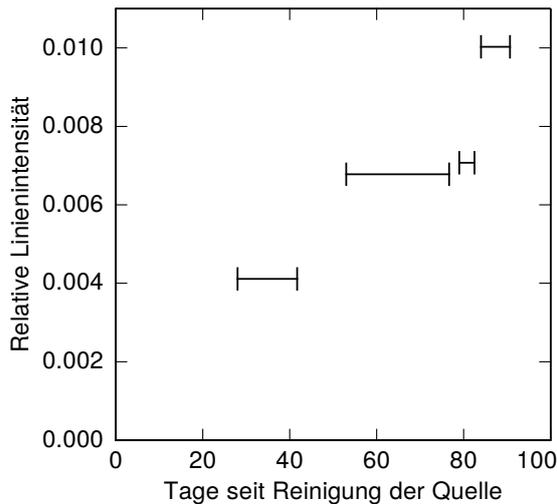


Abbildung 5.21: Zeitlicher Verlauf der relativen Ereignisanzahl der ^{237}Np - $\gamma_{2,0}$ -Linie im Verhältnis zur ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie in Tagen seit der Reinigung der ^{233}U -Quelle. Durch die Balken wird jeweils der Messzeitraum gekennzeichnet.

unter anderem ^{241}Am entfernt. Das Nachwachsen aus ^{241}Pu kann gut aus den nach der Reinigung aufgezeichneten Spektren nachvollzogen werden. In Abbildung 5.21 wird dazu der zeitliche Verlauf der Anreicherung von ^{241}Am anhand der ^{237}Np - $\gamma_{2,0}$ -Linie gezeigt. Die Zählraten der vier Messphasen wurden dabei jeweils auf die Anzahl an Ereignissen in der dominanten ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie normiert, um sie untereinander quantitativ vergleichen zu können. Die horizontalen Balken kennzeichnen jeweils die Dauer der jeweiligen Messung. Offensichtlich hat sich die Kontamination durch das nachgebildete ^{241}Am vom ersten zum letzten Messtag mehr als verdoppelt. Durch die Beobachtung dieser Anreicherung ist zwar bewiesen, dass sich ^{241}Pu in der ^{233}U -Quelle befindet, welches ^{241}Am und dadurch auch ^{237}Np nachproduziert. Da eine mögliche Anfangskonzentration an ^{237}Np nicht bekannt ist, kann jedoch keine quantitative Aussage über die in der Quelle vorhandene Menge an ^{237}Np getroffen werden. Eine erneute Messung der ^{233}U -Quelle zu höheren Energien, könnte dies durch Nachweis der ^{233}Pd - $\gamma_{4,0}$ -Linie bei etwa 86,4 keV ermöglichen.

In Abbildung 5.20 ist ebenfalls ein deutlicher Anstieg der Zählrate einer Linie bei etwa 40 keV zu erkennen. Sie entspricht vermutlich der ^{225}Ac - $\gamma_{2,0}$ -Linie, welche wiederum aus der α -Zerfallskette von ^{232}U beziehungsweise aus ^{229}Pa erzeugt werden kann.

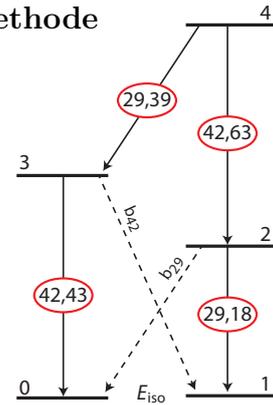
Weitere identifizierte Linien aus Tochterzerfällen sind ^{228}Th - $\gamma_{1,0}$ als Tochter von ^{232}U , ^{230}Th - $\gamma_{1,0}$ vom Isotop ^{234}U , ^{234}U - $\gamma_{1,0}$ vom Isotop ^{238}Pu sowie ^{235}U - $\gamma_{4,2}$ und $-\gamma_{4,1}$ vom Isotop ^{239}Pu .

5.4 Die Energie des isomeren Zustands von ^{229}Th

Aus dem energiekalibrierten Gesamtspektrum der ^{233}U -Quelle kann die Energie des isomeren Zustands von ^{229}Th wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, auf unterschiedliche Arten extrahiert werden. Im Folgenden wird zunächst das Ergebnis der zu aktuellem Zeitpunkt genauesten Methode, E_{iso} aus der Differenz des Abstands der beiden Linienpaare bei 29,2 und 42,4 keV zu gewinnen, diskutiert. Dazu wird jeweils in einem Unterabschnitt auf die Bestimmung der Linienmitten und auf die statistischen und systematischen Unsicherheiten eingegangen. Die Analyse des Dubletts bei 29,2 keV ist Gegenstand des darauf folgenden Abschnitts. Eine weitere Methode, die durch die unabhängige Bestimmung der Energie des ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Übergangs an einem Synchrotron [Mas19] ermöglicht wurde, wird im Anschluss diskutiert. Das Kapitel schließt mit einer Bewertung der in dieser Arbeit auf unterschiedliche Wege gewonnenen Ergebnisse und einem Vergleich mit Resultaten anderer Gruppen.

5.4.1 Bestimmung von E_{iso} über die Differenzen-Methode

Die Energie des isomeren Zustands von ^{229}Th lässt sich, wie in Abschnitt 2.3 motiviert wurde, durch die Differenz $E_{\text{iso}} = (E_{29,39} - E_{29,18}) - (E_{42,63} - E_{42,43})$ der Energien der ^{229}Th - $\gamma_{4,3^-}$, $\gamma_{2,1^-}$, $\gamma_{4,2^-}$ und $\gamma_{3,0}$ -Linien bestimmen. Der große Vorteil dieser Methode besteht darin, dass das Ergebnis weniger stark von der absoluten Energiekalibration abhängt, da die Linien der beiden Paare jeweils nur etwa 200 eV voneinander entfernt sind.



Bestimmung der Linienmitten

Für die Berechnung der Energiedifferenzen müssen zunächst die Linienmitten der vier Linien bestimmt werden. Dabei handelt es sich bei zwei der vier Linien um nicht aufgelöste Dubletts aus einer dominanten und einer etwa zehnmal schwächeren Linie. Im Folgenden wird daher das jeweilige Vorgehen beim Anpassen der Gauß-Verteilungen für jede der Linien einzeln diskutiert. Wie in Abschnitt 5.2.4 beschrieben, wurde dabei jeder Datenpunkt stets mit der Anzahl an Ereignissen in der jeweiligen Linie gewichtet, um die statistische Unsicherheit zu berücksichtigen. Zur Energiekalibration wurden die Auswahlen (I)-(IV) an Kalibrationslinien, wie in Abschnitt 5.2.6 beschrieben, verwendet. In den Abbildungen sind die Ergebnisse exemplarisch für Auswahl (IV) aus Tabelle 5.1 dargestellt. Der lokal als konstant angenommene Untergrund wurde anhand einer Mittelung der Ereignisse direkt außerhalb der jeweiligen Linie bestimmt. Links in Abbildung 5.22 ist die Doppellinie bestehend aus der domi-

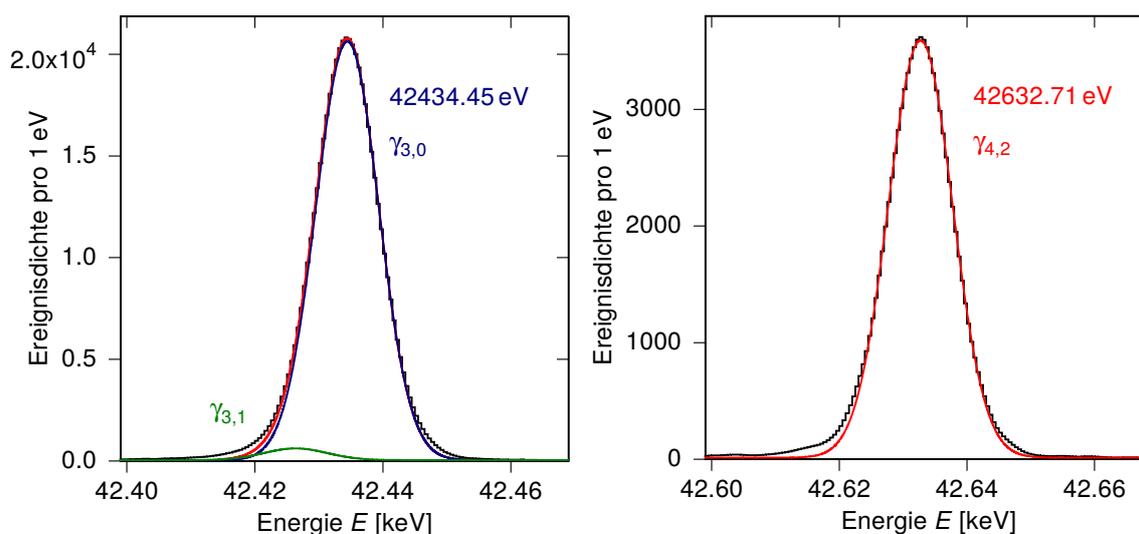


Abbildung 5.22: Bestimmung der Linienmitten der ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie (blau), die von der ^{229}Th - $\gamma_{3,1}$ -Linie (grün) überlagert wird (**links**) und der ^{229}Th - $\gamma_{4,2}$ -Linie (**rechts**). Die numerischen Anpassungen an die Linien sind jeweils in rot eingezeichnet.

nanten ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie und der um das Intensitätenverhältnis b_{42} schwächeren und um E_{iso} niederenergetischeren ^{229}Th - $\gamma_{3,1}$ -Linie dargestellt. Dabei wurden eine Summe aus zwei Gauß-Verteilungen mit der gleichen Linienbreite, einem Abstand von E_{iso} und einem Verzweungsverhältnis $b_{42} = 1/37$ [Bec07] sowie ein konstanter Untergrund angenommen. Aus der Anpassung folgt eine Energie von $E_{42,43} = 42\,434,45$ eV der ^{229}Th - $\gamma_{3,0}$ -Linie und eine statistische Unsicherheit von $\Delta E_{42,43}^{\text{stat}} = 0,01$ eV.

Die ^{229}Th - $\gamma_{4,2}$ -Linie rechts in Abbildung 5.22 beinhaltet etwa 45 000 Ereignisse, lässt sich als einzige der vier Linien durch eine einfache Gauß-Verteilung beschreiben, deren numerische Anpassung bei einer statistischen Unsicherheit von $\Delta E_{42,63}^{\text{stat}} = 0,02$ eV eine Energie von $E_{42,63} = 42\,632,71$ eV liefert.

Auf der linken Seite von Abbildung 5.23 ist in Rot die Anpassung der Summe aus zwei Gauß-Verteilungen an die Doppellinie bei 29,18 keV dargestellt. Sie setzt sich aus der dominanten ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie (blau) und der um das Intensitätenverhältnis von b_{29} schwächeren und um E_{iso} höherenergetischen ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie (grün) zusammen. Für die numerische Anpassung wurde dabei $b_{29} = 1/9,4$ [Mas19] festgehalten, sowie davon ausgegangen, dass beide Linien die gleiche Breite besitzen. Ebenfalls festgehalten wurde der Linienabstand E_{iso} , welcher in mehreren Iterationen aus dem Gesamtergebnis ermittelt wurde. Die ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie enthält dabei etwa 40 000 Ereignisse. Die Anpassung ergibt eine Linienbreite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10,3$ eV und eine absolute Energie von $E_{29,18} = 29\,182,26$ eV mit einer statistischen Unsicherheit von $\Delta E_{29,18}^{\text{stat}} = 0,02$ eV.

Die auf der rechten Seite von Abbildung 5.23 gezeigte ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie ist mit etwa

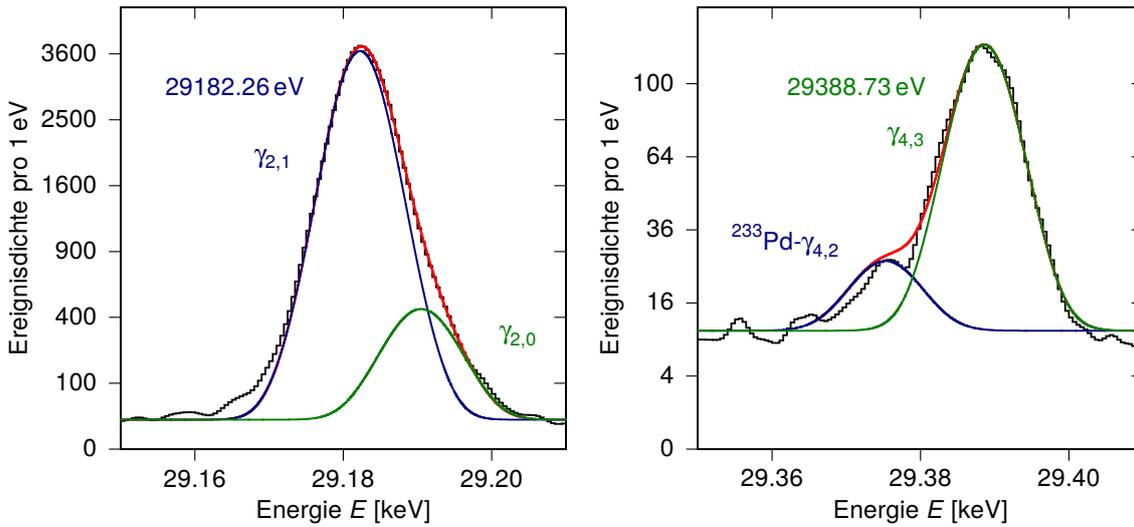


Abbildung 5.23: Bestimmung der Linienmitten der ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie (blau), die von der ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie (grün) teilweise überlagert wird (**links**) und der ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie (grün) an deren niederenergetischer Flanke sich vermutlich die ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ -Linie befindet (**rechts**). Die numerischen Anpassungen an die Doppellinien sind jeweils in rot eingezeichnet. Beide Ordinatenachsen sind wurzelskaliert.

1200 Ereignissen die schwächste der vier Linien der Differenzen-Methode. Zudem ist die Linienform offensichtlich nicht gaußförmig, was zunächst unerwartet war. Experimentelle Artefakte, welche bei nur einer Linie zu einer solchen komplexen Linienform führen, die anderen Linien jedoch unberührt lassen, können mit großer Sicherheit ausgeschlossen werden. In Abschnitt 5.3.1 wurde gezeigt, dass eine ^{241}Pu -Verunreinigung in der ^{233}U -Quelle vorliegt, durch welche sich ^{237}Np anreichert, welches wiederum eine ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ -Linie bei $(29\,374 \pm 20)$ eV [Sin05] verursachen kann. Da die absolute Position und Zählrate dieser Linie bisher nicht hinreichend bekannt ist, wurde diese Linie bei der numerischen Anpassung hinzugezogen, um die Linienform besser erklären zu können. Dabei wurde eine feste, aus dem Graphen in Abbildung 5.7 abgeleitete Linienbreite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10,7$ eV für beide Linien angenommen. Die Position und Amplitude der ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ -Linie wurde durch Reduzieren der in Abbildung 5.24 dargestellten Residuen der numerischen Anpassung ermittelt. Dabei ergibt sich eine Energie von $29\,375,3$ eV, was sehr nahe am Literaturwert liegt, der selbst jedoch mit einer sehr großen Unsicherheit von 20 eV angegeben ist. Da die Residuen innerhalb des durch die Statistik der Linien gekennzeichneten Unsicherheitsbereichs liegen, wird das Linien-Dublett durch die Anpassung gut beschrieben. Aus der Anpassung folgt eine absolute Energie von $E_{29,39} = 29\,388,73$ eV der ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie mit einer statistischen Unsicherheit von $\Delta E_{29,39}^{\text{stat}} = 0,13$ eV.

Die Energie E_{iso} des isomeren Zustands wurde dabei iterativ bestimmt, da sie als Abstand der Doppellinien bei 29,18 keV und 42,43 keV jeweils für die Linienmitten-

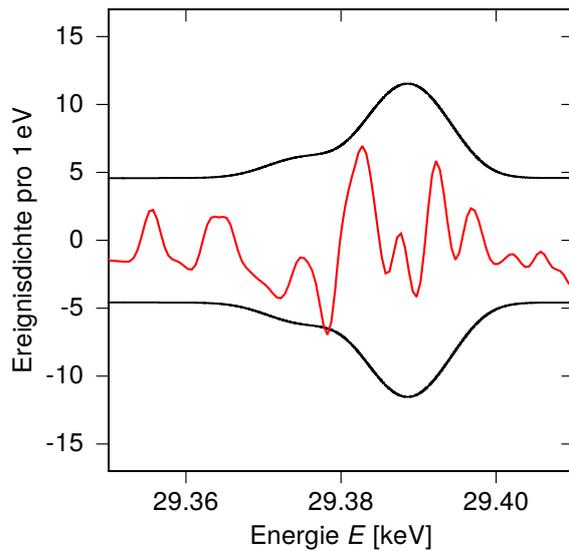


Abbildung 5.24: Residuen (rot) der Anpassung der Summe zweier Gauß-Verteilungen an die ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ - und die ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie zur Positions- und Amplitudenbestimmung der ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ -Linie. In Schwarz ist der statistische Unsicherheitsbereich aus der Zählrate der Anpassung eingezeichnet.

bestimmung benötigt wird. Dabei hängt die resultierende Energie der jeweils stärkeren der Doppellinien nur schwach von dem Wert für E_{iso} und dem des jeweiligen Verzweungsverhältnisses b ab.

Die Ergebnisse der beiden Differenzen sind in Abbildung 5.25 dargestellt. Es sind jeweils die beiden benachbarten der vier Linien inklusive der jeweiligen Energiedifferenz eingezeichnet. Nach Gleichung 2.2 ergibt sich daraus die Isomerenergie $E_{\text{iso}} = \Delta E_{29\text{ keV}} - \Delta E_{42\text{ keV}} = 8,09\text{ eV}$ von ^{229}Th .

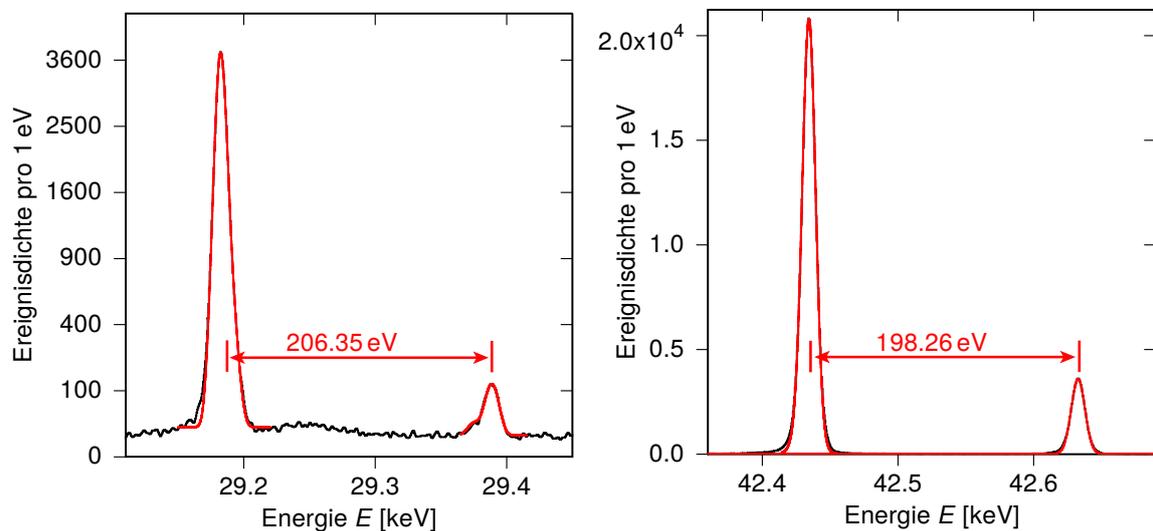


Abbildung 5.25: Ermittelte Energiedifferenzen $\Delta E_{29\text{ keV}} = E_{29,39} - E_{29,18}$ (links) und $\Delta E_{42\text{ keV}} = E_{42,63} - E_{42,43}$ (rechts) zur Bestimmung von E_{iso} nach der Differenzen-Methode. Im linken Graphen wurde zur besseren Sichtbarkeit eine Wurzelskalierung der Ordinatenachse gewählt.

Fehlerabschätzung

Die Gesamtunsicherheit der über die Differenzen-Methode bestimmten Energie des Isomerzustands von ^{229}Th setzt sich aus der statistischen Unsicherheit bei den Liniemittenbestimmungen, einer systematischen Unsicherheit durch die Korrektur der intrinsischen Nicht-Linearität sowie einem weiteren möglichen systematischen Einfluss durch die Ausleselektronik zusammen. Zudem stellt die möglicherweise durch eine überlagerte ^{233}Pd - $\gamma_{4,2}$ -Linie hervorgerufene Deformation der ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie eine weitere Unsicherheitsquelle dar.

Die statistische Unsicherheit $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{stat}} = 0,13 \text{ eV}$ wird nach der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung durch die geringe Statistik beziehungsweise die damit einhergehende statistische Unsicherheit bei der Bestimmung der Linienmitte der ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie bei 29,39 keV dominiert.

Die systematische Unsicherheit, die bei der in Abschnitt 5.2.6 beschriebenen Energiekalibration entsteht, kann auf zwei unterschiedliche Wege abgeschätzt werden. Einerseits streuen die Ergebnisse für E_{iso} unter Verwendung der unterschiedlichen, in Abschnitt 5.2.6 genannten Auswahlen (I)-(IV) an Kalibrationslinien absolut um $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{syst}} = 0,03 \text{ eV}$. Andererseits können die durch die Nicht-Linearität verursachte Korrektur jeder der vier Energien der Differenzen-Methode berechnet und anhand der Residuen in Abbildung 5.18 die Auswirkung deren Unsicherheit auf die Differenzen der vier Energien und schließlich auf E_{iso} abgeschätzt werden. Bei 29 keV beträgt die Nicht-Linearität etwa 0,17 %, was hier einer Energie von etwa 50 eV entspricht und bei 42 keV etwa 0,35 %, was etwa 150 eV entspricht. Nach Differenzbildung der absoluten Nicht-Linearität zwischen den benachbarten $\gamma_{4,3}$ - und γ_{21} -Linien bleibt eine Energie von 0,6 eV und zwischen der $\gamma_{4,3}$ - und $\gamma_{3,0}$ -Linie eine Energie von 1,5 eV die durch die Nicht-Linearitätskorrektur korrigiert wird. Für die Differenzen bedeutet dies, mit einer aus den Residuen abgeschätzten maximalen Abweichung von etwa 1 eV, Unsicherheiten von etwa 0,006 eV und 0,015 eV, was nach quadratischer Addition einer systematischen Unsicherheit von $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{syst}} = 0,016 \text{ eV}$ entspricht.

Die Nicht-Linearitäten der Analog-Digital-Wandler wurden in Abschnitt 4.8.1 diskutiert. Sie dominieren die Nicht-Linearität der Auslesungskette. Dabei werden Schwankungen auf großer Energieskala teilweise durch die allgemeine in Abschnitt 5.2.6 beschriebene Nicht-Linearitätskorrektur erfasst. Lediglich Schwankungen in kürzeren Energieintervallen zwischen den Kalibrationslinien bilden eine zusätzliche systematische Unsicherheit. Die in Abbildung 4.12 gezeigte, integrierte absolute Nicht-Linearität von bis zu etwa 0,5 eV wird über die Datenpunkte eines Pulses gemittelt und zusätzlich durch das Überlagern vieler Kanäle reduziert. Die mögliche Auswirkung auf die Differenzen bei 29 keV beziehungsweise 42 keV kann durch Differenzieren der Nicht-Linearität in Abbildung 4.12 und anschließendes Multiplizieren mit

dem Linienabstand von jeweils etwa 200 eV abgeschätzt werden. Bei 29 keV ergibt sich daraus etwa 0,03 eV und bei 42 keV etwa 0,02 eV Unsicherheit für die jeweiligen Energiedifferenzen von etwa 200 eV, was sich auf die gemeinsame Differenz mit einer geschätzten systematischen Unsicherheit von $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{syst}} = 0,04$ eV auswirkt.

Im Vergleich zu diesen kleineren möglichen Beiträgen zur systematischen Unsicherheit stellt die bei der Bestimmung der Linienmitte der $^{229}\text{Th}-\gamma_{4,3}$ -Linie zur Erklärung der Linienform angenommene $^{233}\text{Pd}-\gamma_{4,2}$ -Linie einen nennenswerten Beitrag zur systematischen Unsicherheit dar. Ohne die Annahme der $^{233}\text{Pd}-\gamma_{4,2}$ -Linie, also durch Anpassen einer einzelnen Gauß-Verteilung, ergeben sich eine nicht erklärbar hohe Linienbreite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 11,7$ eV, ein Artefakt bei den Residuen an der niederenergetischen Flanke sowie eine um 0,13 eV kleinere absolute Energie der $^{229}\text{Th}-\gamma_{4,3}$ -Linie. Diese Betrachtung stellt nach Gleichung 2.2 mit $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{syst}} = -0,13$ eV eine systematische Unsicherheit lediglich zu kleineren Werten für die Energie des Isomerezustands von ^{229}Th dar.

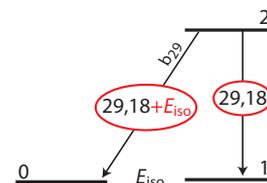
Insgesamt ergibt sich damit ein Ergebnis von

$$E_{\text{iso}} = (8,09 \pm 0,13(\text{stat})_{-0,13}^{+0,04}(\text{syst})) \text{ eV} \quad (5.12)$$

für die Energie des isomeren Zustands, bestimmt über die Differenzen-Methode.

5.4.2 Analyse des Linien-Dubletts bei 29,18 keV

Die in Abschnitt 2.3 vorgestellte Methode, die Energie des Isomerezustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ durch Auflösen des Linien-Dubletts der $^{229}\text{Th}-\gamma_{2,1}$ - und $^{229}\text{Th}-\gamma_{2,0}$ -Linie bei 29,18 keV zu erhal-



ten, ist mit der hier im Gesamtspektrum erreichten Energieauflösung von etwa $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10,3$ eV nicht direkt ohne weitere Annahmen möglich. Jedoch können aus der Linienform durch Überlagerung zweier Gauß-Verteilungen unter Festhalten der jeweils anderen Größe das Verzweungsverhältnis b_{29} und die Energie E_{iso} in Abhängigkeit voneinander bestimmt werden. Da die natürliche Linienbreite deutlich unter der Detektorauflösung liegt, kann die Breite der Gaußkurve in der Anpassung für beide Linien gleich gewählt werden. Zusätzlich wurde ein energieunabhängiger Untergrund berücksichtigt. Für die Energiekalibration wurde Auswahl (IV) der Kalibrationslinien aus Tabelle 5.1 verwendet. Im Vergleich zu den Einflüssen durch die im Folgenden diskutierten Unsicherheiten der Literaturangaben ist die Wahl der Kalibrationslinien bei dieser Methode jedoch vernachlässigbar.

In Abbildung 5.26 sind die numerische Anpassung der Summe zweier Gauß-Verteilungen sowie b_{29} und E_{iso} eingezeichnet. Nimmt man zunächst den im vorigen Abschnitt ermittelten Wert für die Isomerenergie von $E_{\text{iso}} = 8,09$ eV als festen Abstand der beiden Linien an, so ergibt die numerische Anpassung einen Wert für das

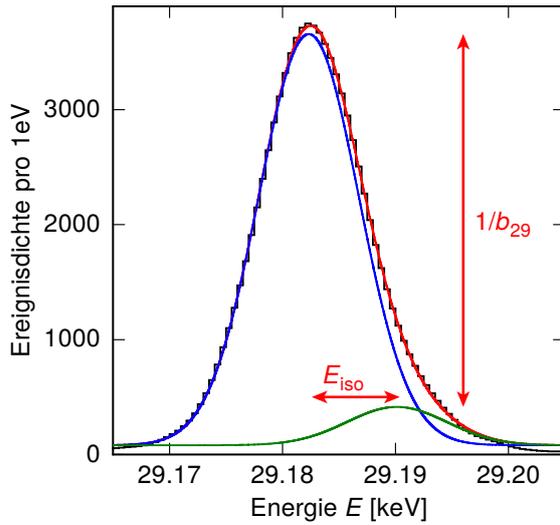


Abbildung 5.26: Anpassung der Überlagerung zweier Gauß-Verteilungen zur Bestimmung des Linienabstands E_{iso} in Abhängigkeit des Verzweigungsverhältnisses b_{29} .

Verzweigungsverhältnis beider Linien von

$$1/b_{29} = 10,8 \pm 0,7 \quad (5.13)$$

bei einer Linienbreite von jeweils $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10,6 \text{ eV}$. Die Unsicherheit wurde dabei aus den Ergebnissen der Anpassungen für einen im zuvor ermittelten Fehlerbereich maximalen beziehungsweise minimalen Wert von E_{iso} abgeschätzt. Der hier erhaltene Wert für $1/b_{29}$ stimmt innerhalb der gemeinsamen Fehlergrenzen sehr gut mit dem in [Bec07] verwendeten Wert von $1/b_{29}^{\text{lit}} = 13 \pm 1$ und dem in [Mas19] bestimmten Wert von $1/b_{29}^{\text{lit}} = 9,4 \pm 2,4$ überein.

Nimmt man den in [Mas19] bestimmten Wert von $b_{29,\text{lit}} = 1/9,4$ fest an, so ergibt die numerische Anpassung einen Wert von

$$E_{\text{iso}} = (8,0 \pm 1,0) \text{ eV} \quad (5.14)$$

für die Energie des Isomerzustands bei einer Linienbreite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 10,5 \text{ eV}$. Dabei wurde die Unsicherheit anhand des Maximal- beziehungsweise Minimalwerts der Unsicherheit des Literaturwerts von b_{29}^{lit} in der numerischen Anpassung abgeschätzt.

Hält man die Linienbreite ΔE_{FWHM} der beiden Linien fest, so kann man E_{iso} in Abhängigkeit von b_{29} bestimmen. In Abbildung 5.27 ist dies für drei unterschiedliche Linienbreiten dargestellt. Mit einem präziseren Literaturwert für das Verzweigungsverhältnis b_{29} kann damit zukünftig ein entsprechender Wert für die Energie des Isomerzustands von ^{229}Th direkt aus der Abbildung abgelesen werden.

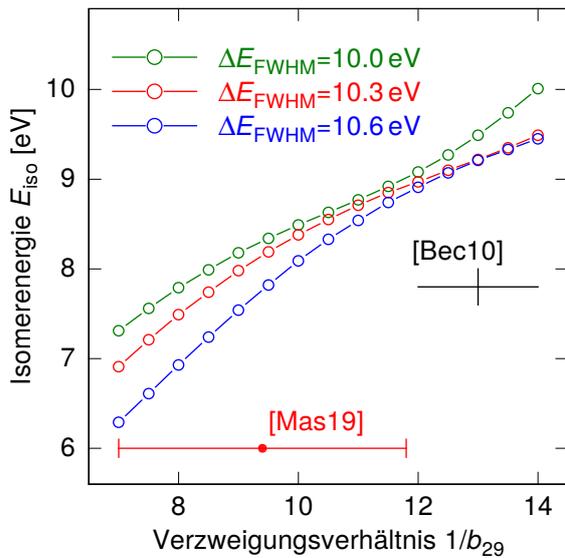
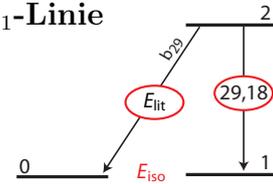


Abbildung 5.27: Aus dem Linien-Dublett bei 29,18 keV bestimmte Energie E_{iso} des Isomierzustands von ^{229}Th in Abhängigkeit vom Verzweungsverhältnis b_{29} der beiden Linien für drei in den numerischen Anpassungen festgehaltene Linienbreiten ΔE_{FWHM} . Zudem sind Literaturwerte eingezeichnet.

5.4.3 Bestimmung der absoluten Energie der Th- $\gamma_{2,1}$ -Linie

Durch die Bestimmung der absoluten Position der ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie im Gesamtspektrum aus dem Linien-Dublett bei 29,18 keV kann, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, die Energie des Isomierzustands über die Differenz zum Literaturwert der ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie bestimmt werden. Bei der numerischen Anpassung der Überlagerung zweier Gauß-Verteilungen wird, wie im letzten Unterkapitel dargelegt, jeweils eine gleiche Linienbreite beider Linien vorausgesetzt und das Verzweungsverhältnis aus [Mas19] als $1/b_{29}^{\text{lit}} = 9,4 \pm 2,4$ sowie ein konstanter Untergrund angenommen.



In Abbildung 5.28 ist die Anpassung der Überlagerung zweier Gauß-Kurven an die Doppellinie bei 29,18 keV dargestellt. Zusätzlich sind die Energie des Literaturwerts

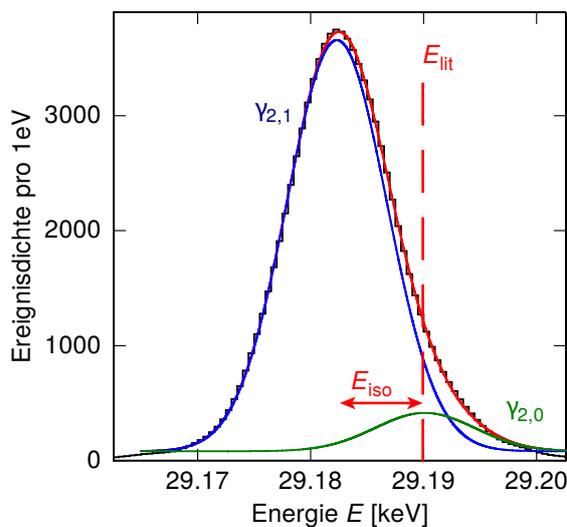


Abbildung 5.28: Numerische Anpassung der Überlagerung zweier Gauß-Verteilungen zur Bestimmung der absoluten Energie der ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie. Mit eingezeichnet ist der zu ermittelnde Linienabstand E_{iso} , sowie der dafür benötigte Literaturwert E_{lit} der ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie.

der ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie mit $E_{\text{lit}} = (29\,189,93 \pm 0,07) \text{ eV}$ [Mas19] und die von E_{iso} eingezeichnet.

Kalibrationslinien-Auswahl	E_{iso} [eV]
(I)	8,10
(II)	7,89
(III)	8,33
(IV)	7,71
Mittelwert:	8,01

Tabelle 5.2: Ergebnisse der Bestimmung von E_{iso} aus der absoluten Energie des Linien-Dubletts bei 29,18 keV, für unterschiedliche Auswahlen an Kalibrationslinien für die Energiekalibration aus Tabelle 5.1.

Da das Ergebnis stark von der absoluten Energiekalibration abhängt, sind in Tabelle 5.2 die Ergebnisse für die unterschiedlichen Auswahlen (I)-(IV) an Kalibrationslinien aus Tabelle 5.1 aufgelistet. Die unterschiedlichen Ergebnisse in Abhängigkeit von der Wahl der Kalibrationslinien zeigen, dass bei dieser Methode die absolute Energiekalibration von zentraler Bedeutung ist. Anders als bei den in Abschnitt 5.4.1 diskutierten Unsicherheiten, heben sich die Unsicherheiten hier nicht durch eine Differenzbildung fast vollständig auf. Die durch die Energiekalibration entstehende Unsicherheit kann durch die Schwankung der Residuen in Abbildung 5.16 abgeschätzt werden. Die Standardabweichung bei Auswahl (I) beträgt $\sigma = 0,66 \text{ eV}$ und bei den Auswahlen (II)-(IV) zwischen 0,30 eV und 0,40 eV. Daraus ergibt sich, je nach Wahl der Kalibrationslinien, eine systematische Unsicherheit von bis zu etwa 0,66 eV. Der Beitrag der Nichtlinearität der Analog-Digital-Wandler beträgt nach dem Aufaddieren bei 29,18 keV schätzungsweise noch 0,2 eV. Insgesamt ergibt sich daraus eine Unsicherheit nicht kleiner als $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{sys}} = 0,69 \text{ eV}$ zusätzlich zur statistischen Unsicherheit der ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie von $\Delta E_{\text{iso}}^{\text{stat}} = 0,02 \text{ eV}$. Durch Mittelung der Ergebnisse in Tabelle 5.2 folgt das Ergebnis für die Energie

$$E_{\text{iso}} = (8,01 \pm 0,02(\text{stat}) \pm 0,69(\text{syst})) \text{ eV} \quad (5.15)$$

des Isomerzustands aus der Bestimmung der absoluten Energie der ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie im Linien-Dublett bei 29,18 keV unter Bezugnahme der Literaturenergie der ^{229}Th - $\gamma_{2,0}$ -Linie aus [Mas19].

5.4.4 Bewertung und Vergleich mit bisherigen Ergebnissen

In Abbildung 5.29 sind die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Werte der Energie des Isomerzustands von ^{229}Th in Rot zum Vergleich mit Resultaten anderer Arbeiten [Bec10, Sei19] aufgetragen.

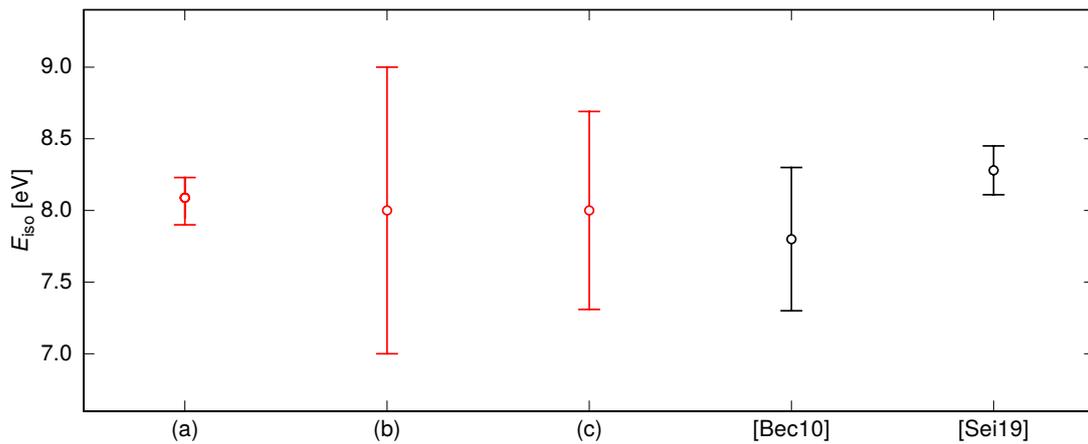


Abbildung 5.29: Vergleich der in dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse (rot) der Energie des Isomerzustands $^{229\text{m}}\text{Th}$ aus der Differenzen-Methode (a), aus dem Auflösen des Linien-Dubletts bei 29,18 keV (b) sowie aus der Bestimmung der absoluten Position der ^{229}Th - $\gamma_{2,1}$ -Linie mit in anderen Arbeiten gewonnenen Resultaten (schwarz). Bei den im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Ergebnissen wurden die statistischen und systematischen Unsicherheiten jeweils quadratisch addiert.

Die Genauigkeit der auf unterschiedliche Wege erhaltenen Ergebnisse dieser Arbeit ist auf zum Teil nahezu voneinander unabhängigen Begebenheiten und experimentellen Anforderungen zurückzuführen. Während die Differenzen-Methode (a) weitgehend unabhängig von der absoluten Energiekalibration ist, wird deren Unsicherheit hauptsächlich durch die Statistik der ^{229}Th - $\gamma_{4,3}$ -Linie, der schwächsten der betrachteten vier Linien, und der im vorliegenden Spektrum asymmetrischen Linienform dieser Linie bestimmt. Die Analyse der Form des Linien-Dubletts bei 29,18 keV (b) hingegen ist nahezu komplett unabhängig von der Nicht-Linearität des Detektors, kaum abhängig von der absoluten Energiekalibration und ist lediglich limitiert durch die Energieauflösung des Detektors und den noch zu ungenauen Wert des Verzweungsverhältnisses b_{29} . Das dritte Ergebnis dieser Arbeit für E_{iso} durch Bestimmung der absoluten Energie des Linien-Dubletts bei 29,18 keV im Vergleich mit einem Literaturwert (c) ist hingegen nahezu vollständig limitiert durch die durch die Unsicherheit der Nicht-Linearitätskorrektur bedingte absolute Energiebestimmung. Zukünftig kann die Nicht-Linearität der Analog-Digital-Wandler mit einer Präzisionsspannungsquelle kalibriert werden, wodurch auch bei der Energiebestimmung absolut Abweichungen kleiner 0,1 eV möglich sind.

Die drei auf unterschiedliche Wege bestimmten Ergebnisse dieser Arbeit weichen absolut nur um etwa 1% voneinander ab und stimmen innerhalb ihrer Unsicherheiten sehr gut miteinander überein. Über die Differenzen-Methode konnte die Isomerenergie $E_{\text{iso}} = (8,09 \pm 0,13 (\text{stat})_{-0,14}^{+0,05} (\text{syst}))$ eV mit den geringsten Unsicher-

heiten bestimmt werden. Im Vergleich zu dem bisher genauesten mit Mikrokalorimetern gemessenen Wert von $E_{\text{iso}}^{\text{Beck}} = (7,8 \pm 0,5) \text{ eV}$ [Bec10], liegt das in dieser Arbeit ermittelte Ergebnis am oberen Ende im Fehlerbereich. Die Differenz von 0,29 eV könnte darauf hindeuten, dass die in dieser Arbeit vermutete $^{233}\text{Pd}-\gamma_{4,2}$ -Linie auch in [Bec10] vorhanden war, dort aufgrund der schlechteren Energieauflösung jedoch eventuell nicht bemerkt wurde. Auch der vor kurzem veröffentlichte Wert von $E_{\text{iso}}^{\text{Seiferle}} = (8,28 \pm 0,17) \text{ eV}$ aus [Sei19], bestimmt aus dem Übergang des Isomerzustands in den Grundzustand über interne Konversion, ist höher als der aus [Bec10], stimmt aber mit dem Ergebnis dieser Arbeit innerhalb der Fehlergrenzen sehr gut überein.

6. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Energie des isomeren Zustands des Thorium-Isotops ^{229}Th mit einem auf metallischen magnetischen Kalorimetern basierenden 8×8 Pixel Detektor-Array *maXs30* aus dem Gammaspektrum von $^{229}\text{Th}^*$, welches aus ^{233}U durch α -Zerfall bevölkert wird, bestimmt. Dazu wurde ein *maXs30*-Detektor speziell für die Anforderungen dieser Messung angepasst, im institutseigenen Reinraum hergestellt, in Betrieb genommen und charakterisiert.

Um eine möglichst gute Energieauflösung bei hinreichend hoher Absorptionseffizienz im für die Messungen relevanten Energiebereich zwischen 29 und 42 keV zu erreichen, wurden die Dicke der Gammaabsorber aus Gold im Vergleich zum ursprünglichen Detektorentwurf aus [Hen17] auf $20 \mu\text{m}$ und die der Temperatursensoren entsprechend einer Optimierungsrechnung auf $1,5 \mu\text{m}$ reduziert. Zudem wurde die Asymmetrie und somit Temperatursensitivität der zur Temperaturkorrektur verwendeten Detektoren vergrößert und deren Anzahl von einem auf vier angehoben. Durch ein symmetrisiertes Leitungsarrangement konnte das parasitäre Einkoppeln externer Magnetfelder um mehr als eine Größenordnung reduziert werden. Dass die Anpassungen sinnvoll und die Herstellung des Detektors erfolgreich waren, konnte anhand guter Übereinstimmungen zwischen den berechneten Erwartungen und den Messungen detektor-spezifischer Parameter wie der Detektor-Induktivität, der Pulsform, der Sensor-Magnetisierung und nicht zuletzt dem Rauschen der Detektorsignale gezeigt werden. Die erreichte Energieauflösung im Limes kleiner Photonenenergien von $7,9 \text{ eV}$ (FWHM) kommt dem Design-Wert von $7,0 \text{ eV}$ sehr nahe. Zudem konnte eine Energieauflösung von $9,8 \text{ eV}$ (FWHM) bei Photonenenergien von 60 keV demonstriert werden, was mit einem relativen Auflösungsvermögen größer als 6000 weltweit einen Rekord für Detektoren auf Basis von Mikrokalorimetern, beziehungsweise energiedispersiven Detektoren allgemein, darstellt.

Durch stetige Optimierungen des Versuchsaufbaus im Laufe der Messphase konnte die Stabilität der Messung und dadurch die Qualität der aufgenommenen Energiespektren deutlich verbessert werden. Dazu zählen unter anderem die chemische Reinigung der ^{233}U -Quelle, das magnetische Abschirmen des Detektors durch zusätzliche supraleitende Abschirmungen sowie eine sorgfältige Optimierung der Zählrate.

Insgesamt betrug die Messphase ein Jahr wovon nach Kalibrations- und Optimierungsphasen des Aufbaus und der Quelle letztendlich effektiv knapp 40 Tage auf die Aufnahme des Gesamtspektrums entfielen, wobei 16 der 64 Detektor-Pixel ausgelesen wurden. Aufgrund der großen Menge an aufgenommenen Daten wurden einige neue automatisierte Auswertalgorithmen entworfen und eingesetzt.

Schließlich konnte die Energie des isomeren Zustands von ^{229}Th auf drei unterschiedliche Wege aus dem Gesamtspektrum ermittelt werden. Die Differenzen-Methode erbrachte mit $E_{\text{iso}} = 8,09 \text{ eV} \pm 0,13 \text{ eV (stat)}_{-0,14}^{+0,05} \text{ eV (syst)}$ den präzisesten bisher mit Mikrokalorimetern gemessenen und veröffentlichten Wert für die Isomerenergie. Über die Linienform des Linien-Dubletts bei 29,18 keV konnte dieses Ergebnis unterstützt und ein Wert von $E_{\text{iso}} = (8,0 \pm 1,0) \text{ eV}$ bestimmt werden, dessen vergleichsweise große Unsicherheit auf die Unsicherheit des Literaturwerts des Verzweigungsverhältnisses der beiden Linien des Dubletts zurückzuführen ist. Über die Bestimmung der absoluten Energie des Übergangs vom zweiten in den ersten angeregten Zustand (Isomierzustand) bei 29,18 keV und einen Vergleich mit dem Literaturwert des Übergangs vom zweiten angeregten Zustand in den Grundzustand, konnte ein dritter Wert von $E_{\text{iso}} = (8,01 \pm 0,02 \text{ (stat)} \pm 0,69 \text{ (syst)}) \text{ eV}$ ermittelt werden, der ebenfalls sehr gut mit dem Wert aus der Differenzen-Methode

$$E_{\text{iso}} = 8,09 \text{ eV} \pm 0,13 \text{ eV (stat)}_{-0,14}^{+0,05} \text{ eV (syst)}$$

übereinstimmt. Im Vergleich mit dem bisher genauesten mit Mikrokalorimetern gemessenen Wert von $E_{\text{iso}}^{\text{Beck}} = (7,8 \pm 0,5) \text{ eV}$ [Bec10] befindet sich das Ergebnis dieser Arbeit am oberen Ende des Unsicherheitsbereichs, stimmt jedoch innerhalb der Fehlergrenzen sehr gut mit ihm überein. Das vor kurzem veröffentlichte Ergebnis $E_{\text{iso}}^{\text{Seiferle}} = (8,28 \pm 0,17) \text{ eV}$ [Sei19] stammt aus der Messung des Übergangs vom Isomierzustand in den Grundzustand durch interne Konversion. Auch er liegt im oberen Unsicherheitsbereich von [Bec10], besitzt eine vergleichbare Unsicherheit wie das Ergebnis dieser Arbeit und stimmt innerhalb dieser Unsicherheiten sehr gut überein.

Durch Entfernen der vermuteten Pd-Kontamination in der ^{233}U -Quelle könnte die systematische Unsicherheit der Differenzen-Methode zukünftig auf unter 0,1 eV reduziert werden. Mit einem angepassten Detektor-Design und einer Energieauflösung $\Delta E < E_{\text{iso}}$ wird das Linien-Dublett bei 29,18 keV separierbar sein und ebenfalls ein sehr genaues Ergebnis liefern. Die Kalibration der Nicht-Linearität der Analog-Digital-Wandler wird, insbesondere bei der dritten in dieser Arbeit gezeigten Methode, eine absolute Energiebestimmung kleiner 0,1 eV ermöglichen.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte erfolgreich gezeigt werden, dass sich metallische magnetische Kalorimeter hervorragend dazu eignen Energiespektren hochaufgelöst über einen großen Energiebereich zu untersuchen. Zudem wurde demonstriert, dass der Versuchsaufbau im Kryostaten, der *maXs30*-Detektor, die zur Auslesung verwendeten SQUID-Magnetometer sowie die restliche Auslesungskette diese Performance über eine Messdauer von vielen Monaten gewährleisten können. Die erreichte Genauigkeit von etwa 2 % für die Energie des Isomierzustands macht den Bau eines Lasers zur direkten Anregung des Grundzustands in den Isomierzustand greifbar und ebnet dadurch den Weg zur Realisierung einer Kernuhr basierend auf diesem Übergang mit bisher unerreichter Präzision.

Literaturverzeichnis

- [Abr70] A. Abragam und B. Bleaney, *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Metals*, Clarendon Press Oxford, 1970.
- [Bè10] M.-M. Bè, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A. Nichols, A. Arinc und X. Huang, *Table of Radionuclides, Volume 5 in Monographie BIPM-5*, Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2010.
- [Ban93] S. Bandler, C. Enss, R. E. Lanou, H. J. Maris, T. More, F. S. Porter und G. M. Seidel, Metallic magnetic bolometers for particle detection, *Journal of Low Temperature Physics*, **93**, 709–714, 1993.
- [Bar03] V. Barci, G. Ardisson, G. Barci-Funel, B. Weiss, O. El Samad und R. K. Sheline, Nuclear structure of ^{229}Th from γ -ray spectroscopy study of ^{233}U α -particle decay, *Phys. Rev. C*, **68**, 034329, 2003.
- [Bat16] C. R. Bates, C. Pies, S. Kempf, D. Hengstler, A. Fleischmann, L. Gastaldo, C. Enss und S. Friedrich, Reproducibility and calibration of MMC-based high-resolution gamma detectors, *Applied Physics Letters*, **109**(2), 023513, 2016.
- [Bea67] J. A. Bearden, X-ray wavelengths, *Rev. Mod. Phys.*, **39**, 78–124, 1967.
- [Bec07] B. R. Beck, J. A. Becker, P. Beiersdorfer, G. V. Brown, K. J. Moody, J. B. Wilhelmy, F. S. Porter, C. A. Kilbourne und R. L. Kelley, Energy Splitting of the Ground-State Doublet in the Nucleus ^{229}Th , *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 142501, 2007.
- [Bec10] B. Beck, C. Wu, P. Beiersdorfer, G. Brown, J. Becker, K. Moody, J. Wilhelmy, F. Porter, C. Kilbourne und R. Kelley, Improved Value for the Energy Splitting of the Ground-State Doublet in the Nucleus ^{229}Th , *CERN-Proceedings*, **1**, 2010.
- [Bil17] P. V. Bilous, G. A. Kazakov, I. D. Moore, T. Schumm und A. Pálffy, Internal conversion from excited electronic states of ^{229}Th ions, *Physical Review A*, **95**(3), 2017.

- [Bro01] E. Browne, E. B. Norman, R. D. Canaan, D. C. Glasgow, J. M. Keller und J. P. Young, Search for decay of the 3.5-eV level in ^{229}Th , *Phys. Rev. C*, **64**, 014311, 2001.
- [Bro08] E. Browne und J. Tuli, Nuclear Data Sheets for $A = 229$, *Nuclear Data Sheets*, **109**(11), 2657 – 2724, 2008.
- [Bru82] J. J. P. Bruines, V. J. de Waal und J. E. Mooij, Comment on: ‘Dc SQUID: Noise and optimization’ by Tesche and Clarke, *J. Low Temp. Phys.*, **46**(3), 383–386, 1982.
- [Büh88] M. Bühler und E. Umlauf, A Magnetic Bolometer for Single-Particle Detection, *Europhys. Lett.*, **5**(4), 297–301, 1988.
- [Bur90] D. G. Burke, P. E. Garrett, T. Qu und R. A. Naumann, Additional evidence for the proposed excited state at ≤ 5 eV in ^{229}Th , *Phys. Rev.*, **C42**, R499–R501, 1990.
- [Bur04] A. Burck, Entwicklung großflächiger magnetischer Kalorimeter zur energieaufgelösten Detektion von Röntgenquanten und hochenergetischen Teilchen, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2004.
- [Bur08] D. G. Burke, P. E. Garrett, T. Qu und R. A. Naumann, Nuclear structure of $^{229,231}\text{Th}$ studied with the $^{230,232}\text{Th}(d, t)$ reactions, *Nucl. Phys.*, **A809**, 129–170, 2008.
- [Bur10] J. T. Burke, R. J. Casperson, E. L. Swanberg und D. Thomas, ^{229}Th the Bridge Between Nuclear and Atomic Interactions, *technical report LLNL-TR-463538*, 2010.
- [Bus18] J. Bussmann, Hochauflösende Röntgenspektroskopie an Thorium-229 mit einem maXs30-Detektor, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2018.
- [Cho19] C. W. Chou, D. B. Hume, J. Koelemeij, D. J. Wineland und T. Rosenband, Frequency Comparison of Two High-Accuracy Al^+ Optical Clocks, *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 070802, 2019.
- [Cla04] J. Clarke und A. I. Braginski (Ed.), *The SQUID Handbook*, WILEY-VCH, 2004.
- [Coo56] L. N. Cooper, Bound Electron Pairs in a Degenerate Fermi Gas, *Phys. Rev.*, **104**, 1189–1190, 1956.

-
- [Cos93] E. Cosulich, F. Gatti und S. Vitale, Further results on μ -calorimeters with superconducting absorber, *J. Low Temp. Phys.*, **93**(3), 263–268, 1993.
- [Dü17] C. E. Düllmann, Private Communication - nuClock Cooperation meeting - Heidelberg, Germany, September 18-20, 2017.
- [Dan05] T. Daniyarov, Metallische magnetische Kalorimeter zum hochauflösenden Nachweis von Röntgenquanten und hochenergetischen Molekülen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2005.
- [Del12] M. T. Deluigi und J. Díaz-Luque, Analysis of the K Satellite Lines in X-Ray Emission Spectra, in S. K. Sharma (Ed.), *X-Ray Spectroscopy*, Chapter 4, IntechOpen, Rijeka, 2012.
- [Des03] R. D. Deslattes, E. G. Kessler, P. Indelicato, L. de Billy, E. Lindroth und J. Anton, X-ray transition energies: new approach to a comprehensive evaluation, *Rev. Mod. Phys.*, **75**, 35–99, 2003.
- [Deu95] M. Deutsch, G. Hölzer, J. Härtwig, J. Wolf, M. Fritsch und E. Foerster, $K\alpha$ and $K\beta$ X-ray emission spectra of copper, *Physical Review A*, **51**, 283–296, 1995.
- [dG17] S. E. de Graaf, A. A. Adamyan, T. Lindström, D. Erts, S. E. Kubatkin, A. Y. Tzalenchuk und A. V. Danilov, Direct Identification of Dilute Surface Spins on Al_2O_3 : Origin of Flux Noise in Quantum Circuits, *Phys. Rev. Lett.*, **118**, 057703, 2017.
- [Dyk98] A. M. Dykhne und E. V. Tkalya, Matrix element of the anomalously low-energy (3.5 ± 0.5 eV) transition in ^{229}Th and the isomer lifetime, *Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, **67**(4), 251–256, 1998.
- [Ens00] C. Enss, A. Fleischmann, K. Horst, J. Schönefeld, J. S. Adams, Y. H. Huang, Y. H. Kim und G. M. Seidel, Metallic magnetic calorimeters for particle detection, *J. Low Temp. Phys.*, **121**(3), 137–176, 2000.
- [Ens05] C. Enss und S. Hunklinger, *Low-Temperature Physics*, SpringerLink: Springer e-Books, Springer Berlin Heidelberg, 2005.
- [Fle98] A. Fleischmann, Hochauflösendes magnetisches Kalorimeter zur Detektion von einzelnen Röntgenquanten, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 1998.
- [Fle00] A. Fleischmann, J. Schönefeld, J. Sollner, C. Enss, J. S. Adams, S. R. Bandler, Y. H. Kim und G. M. Seidel, Low temperature properties of erbium in gold, *J. Low Temp. Phys.*, **118**(1), 7–21, 2000.

- [Fle03] A. Fleischmann, Magnetische Mikrokalorimeter: Hochauflösende Röntgenspektroskopie mit energiedispersiven Detektoren, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2003.
- [Fle05] A. Fleischmann, C. Enss und G. Seidel, Metallic magnetic calorimeters, in C. Enss (Ed.), *Cryogenic Particle Detection*, 151–216, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2005.
- [Fri19] M. Friedrich, Aufbau und Charakterisierung eines maXs30-Detektors zur hochaufgelösten Röntgenspektroskopie an Elektronenstrahl-Ionenfallen (EBITs), Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2019.
- [Gam19] L. Gamer, Entwicklung und Charakterisierung des 4 k-Pixel Detektorarrays MOCCA für die energie- und orts aufgelöste Detektion neutraler Molekülfragmente, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2019.
- [Ger17] M. Gertig, High resolution susceptibility thermometers with metallic paramagnetic Au:Er sensors for millikelvin temperatures, Masterarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2017.
- [GR10] W. G Rellergert, D. DeMille, R. Greco, M. Hehlen, J. R Torgerson und E. R Hudson, Constraining the Evolution of the Fundamental Constants with a Solid-State Optical Frequency Reference Based on the Th-229 Nucleus, *Physical review letters*, **104**, 200802, 2010.
- [Hah92] W. Hahn, M. Loewenhaupt und B. Frick, Crystal field excitations in dilute rare earth noble metal alloys, *Phys. B.*, **180**, 176–178, 1992.
- [Har68] J. Harding und J. Zimmerman, Quantum interference magnetometry and thermal noise from a conducting environment, *Physics Letters A*, **27**(10), 670 – 671, 1968.
- [Hel94] R. G. Helmer und C. W. Reich, An excited state of ^{229}Th at 3.5 eV, *Phys. Rev.*, **C49**, 1845–1858, 1994.
- [Hen12] D. Hengstler, Untersuchung der Eigenschaften von supraleitenden Re-, Zn- und Zn:Mn-Absorbern für magnetische Mikrokalorimeter, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Hen17] D. Hengstler, Development and characterization of two-dimensional metallic magnetic calorimeter arrays for the high-resolution X-ray spectroscopy, PhD Thesis, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2017.

-
- [Her00] T. Herrmannsdörfer, R. König und C. Enss, Properties of Er-doped Au at ultralow temperatures, *Phys. B*, **284–288**, Part 2, 1698 – 1699, 2000.
- [Heu11] S. Heuser, Entwicklung mikrostrukturierter magnetischer Kalorimeter mit verbesserter magnetischer Flusskopplung für die hochauflösende Röntgenspektroskopie, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2011.
- [Hof12] V. Hoffmann, Messung der AC-Suszeptibilität von paramagnetischem Au:Er bei Temperaturen oberhalb des Spinglasübergangs, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Irw97] G. M. Irwin und K. H. Kim, Observation of Electromagnetic Radiation from Deexcitation of the ^{229}Th Isomer, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 990–993, 1997.
- [Jai09] A. Jain, R. Raut und J. Tuli, Nuclear Data Sheets for $A = 225$, *Nuclear Data Sheets*, **110**(6), 1409 – 1472, 2009.
- [Jee15] J. Jeet, C. Schneider, S. T. Sullivan, W. G. Rellergert, S. Mirzadeh, A. Cassanho, H. P. Jenssen, E. V. Tkalya und E. R. Hudson, Results of a Direct Search Using Synchrotron Radiation for the Low-Energy ^{229}Th Nuclear Isomeric Transition, *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 253001, 2015.
- [Jos62] B. D. Josephson, Possible new effects in superconductive tunnelling, *Phys. Lett.*, **1**, 251–253, 1962.
- [Kar07] F. Karpeshin und M. Trzhaskovskaya, Impact of the electron environment on the lifetime of the $^{229}\text{Th}^m$ low-lying isomer, *Phys. Rev. C*, **76**, 2007.
- [Kas56] T. Kasuya, A Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zener’s Model, *Prog. Theor. Phys.*, **16**(1), 45, 1956.
- [Kas05] Y. Kasamatsu, H. Kikunaga, K. Takamiya, T. Mitsugashira, T. Nakanishi, Y. Ohkubo, T. Ohtsuki, W. Sato und A. Shinohara, Search for the decay of ^{229m}Th by photon detection, *Radiochimica Acta - RADIOCHIM ACTA*, **93**, 511–514, 2005.
- [Kaz12] G. A. Kazakov, A. N. Litvinov, V. I. Romanenko, L. P. Yatsenko, A. V. Romanenko, M. Schreitl, G. Winkler und T. Schumm, Performance of a ^{229}Th solid-state nuclear clock, *New Journal of Physics*, **14**(8), 083019, 2012.
- [Kek85] D. Kekez, A. Ljubičić, K. Pisk und B. A. Logan, Nuclear deexcitation via the electronic-bridge mechanism, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 1366–1368, 1985.

- [Kem16] S. Kempf, A. Ferring und C. Enss, Towards noise engineering: Recent insights in low-frequency excess flux noise of superconducting quantum devices, *Applied Physics Letters*, **109**(16), 162601, 2016.
- [Kem18] S. Kempf, A. Fleischmann, L. Gastaldo und C. Enss, Physics and applications of metallic magnetic calorimeters, *Journal of Low Temperature Physics*, **193**(3), 365–379, 2018.
- [Koc07] R. H. Koch, D. P. DiVincenzo und J. Clarke, Model for $1/f$ Flux Noise in SQUIDS and Qubits, *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 267003, 2007.
- [Kol16] S. Kolkowitz, I. Pikovski, N. Langellier, M. D. Lukin, R. Walsworth und J. Ye, Gravitational wave detection with optical lattice atomic clocks, *Physical Review D*, **94**, 2016.
- [Koz12] A. Kozorezov, Energy Down-Conversion and Thermalization in Metal Absorbers, *J. Low Temp. Phys.*, **167**, 473–484, 2012.
- [Kro76] L. A. Kroger und C. W. Reich, Features of the low-energy level scheme of ^{229}Th as observed in the α -decay of ^{233}U , *Nucl. Phys.*, **A259**, 29–60, 1976.
- [Kum16] P. Kumar, S. Sendelbach, M. A. Beck, J. W. Freeland, Z. Wang, H. Wang, C. C. Yu, R. Q. Wu, D. P. Pappas und R. McDermott, Origin and reduction of $1/f$ magnetic flux noise in superconducting devices, *Phys. Rev. Applied*, **6**, 041001, 2016.
- [Lép08] M. Lépy, J. Plagnard und L. Ferreux, Measurement of ^{241}Am L X-ray emission probabilities, *Applied Radiation and Isotopes*, **66**(6–7), 715 – 721, 2008, Proceedings of the 16th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications.
- [Mas19] T. Masuda, A. Yoshimi, A. Fujieda, H. Fujimoto, H. Haba, H. Hara, T. Hiraki, H. Kaino, Y. Kasamatsu, S. Kitao, K. Konashi, Y. Miyamoto, K. Okai, S. Okubo, N. Sasao, M. Seto, T. Schumm, Y. Shigekawa, K. Suzuki, S. Stellmer et al., X-ray pumping of the ^{229}Th nuclear clock isomer, *Nature*, **573**(7773), 238–242, 2019.
- [McC93] D. McCammon, W. Cui, M. Juda, J. Morgenthaler, J. Zhang, R. Kelley, S. Holt, G. Madejski, S. Moseley und A. Szymkowiak, Thermal calorimeters for high resolution x-ray spectroscopy, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A*, **326**(1), 157 – 165, 1993.

-
- [McG18] W. McGrew, X. Zhang, R. J. Fasano, S. Schäffer, K. Beloy, D. Nicolodi, R. Brown, N. Hinkley, G. Milani, M. Schioppo, T. H. Yoon und A. D. Ludlow, Atomic clock performance enabling geodesy below the centimetre level, *Nature*, **564**, 2018.
- [Meh18] T. Mehlstäubler, G. Grosche, C. Lisdat, P. O. Schmidt und H. Denker, Atomic Clocks for Geodesy, *Reports on Progress in Physics*, **81**, 2018.
- [Mei33] W. Meissner und R. Ochsenfeld, Ein neuer Effekt bei Eintritt der Supraleitfähigkeit, *Naturwissenschaften*, **21**(44), 787–788, 1933.
- [Mei19] D.-M. Meier, J. Thielking, P. Głowacki, M. V. Okhapkin, R. A. Müller, A. Surzhykov und E. Peik, Electronic level structure of Th^+ in the range of the $^{229\text{m}}\text{Th}$ isomer energy, *Physical Review A*, **99**(5), 2019.
- [Moo04] I. Moore, I. Ahmad, K. Bailey, D. Bowers, Z.-T. Lu, T. P. O'Connor und Z. Yin, Search for a low-lying 3.5-eV isomeric state in ^{229}Th , *Physics Division Report PHY-10990-ME-2004*, 2004.
- [Pei13] E. Peik und K. Zimmermann, Comment on “Observation of the Deexcitation of the $^{229\text{m}}\text{Th}$ Nuclear Isomer”, *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 018901, 2013.
- [Pei15] E. Peik und M. Okhapkin, Nuclear clocks based on resonant excitation of gamma-transitions, *arXiv e-prints*, arXiv:1502.07322, 2015.
- [Pie08] C. Pies, Entwicklung eines Detektor-Arrays basierend auf magnetischen Kalorimetern für die hochaufgelöste Röntgenspektroskopie an hochgeladenen Ionen, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2008.
- [Pie12] C. Pies, maXs200: Entwicklung und Charakterisierung eines Röntgendetektors basierend auf magnetischen Kalorimetern für die hochauflösende Spektroskopie hochgeladener Ionen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Pob07] F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures, Springer-Verlag, 2007.
- [Pon17] R. Pons, Aufbau und Test eines maXs30-Detektors zur hochauflösenden Röntgenspektroskopie, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2017.
- [Pon18] F. Ponce, E. L. Swanberg, J. T. Burke, S. A. Faye und S. Friedrich, A Search for the Decay of Metastable $^{229\text{m}}\text{Th}$ with Superconducting Tunnel Junctions, *Journal of Low Temperature Physics*, **193**(5), 1214–1221, 2018.

- [Por10] S. G. Porsev, V. V. Flambaum, E. Peik und C. Tamm, Excitation of the isomeric ^{229m}Th nuclear state via an electronic bridge process in $^{229}\text{Th}^+$, *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 182501, 2010.
- [Pot88] W. Potzel, Recent ^{67}Zn -experiments, *Hyperfine Interactions*, **40**(1), 171–182, 1988.
- [Pow74] R. Powers, P. Martin, G. Miller, R. Welsh und D. Jenkins, Muonic ^{197}Au : A test of the weak-coupling model, *Nucl. Phys. A*, **230**(3), 413 – 444, 1974.
- [Ran09] P. Ranitzsch, Low Temperature Calorimeter with Superconducting Particle Absorbers, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2009.
- [Ran14] P. Ranitzsch, Development and characterization of metallic magnetic calorimeters for the calorimetric measurement of the electron capture spectrum of ^{163}Ho for the purpose of neutrino mass determination, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2014.
- [Rei90] C. W. Reich und R. G. Helmer, Energy separation of the doublet of intrinsic states at the ground state of ^{229}Th , *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 271–273, 1990.
- [Rel10] W. Rellergert, S. Sullivan, D. DeMille, R. Greco, M. Hehlen, R. Jackson, J. Torgerson und E. Hudson, Progress towards fabrication of ^{229}Th -doped high energy band-gap crystals for use as a solid-state optical frequency reference, *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, **15**, 012005, 2010.
- [Ric98] D. S. Richardson, D. M. Benton, D. E. Evans, J. A. R. Griffith und G. Tunge, Ultraviolet photon emission observed in the search for the decay of the ^{229}Th isomer, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 3206–3208, 1998.
- [Rod16] M. Rodrigues und M. Loidl, L x-ray satellite effects on the determination of photon emission intensities of radionuclides, *Applied Radiation and Isotopes*, **109**, 570 – 575, 2016, Proceedings of the 20th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 8–11 June 2015, Vienna, Austria.
- [Ruc06] E. Ruchowska, W. A. Płóciennik, J. Żylicz, H. Mach, J. Kvasil, A. Algóra, N. Amzal, T. Bäck, M. G. Borge, R. Boutami, P. A. Butler, J. Cederkäll, B. Cederwall, B. Fogelberg, L. M. Fraile, H. O. U. Fynbo, E. Hagebø, P. Hoff, H. Gausemel, A. Jungclaus et al., Nuclear structure of ^{229}Th , *Phys. Rev. C*, **73**, 044326, 2006.

-
- [Rud54] M. A. Ruderman und C. Kittel, Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons, *Phys. Rev.*, **96**, 99–102, 1954.
- [Sch00] J. Schönefeld, Entwicklung eines mikrostrukturierten magnetischen Tieftemperaturkalorimeters zum hochauflösenden Nachweis von einzelnen Röntgenquanten, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2000.
- [Sch12] S. Schäfer, Entwicklung einer Detektorzeile aus metallischen magnetischen Kalorimetern zur hochauflösenden Röntgenspektroskopie an hochgeladenen Ionen, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2012.
- [Sch16] P. Schneider, Spektroskopische Messungen an Thorium-229 mit einem Detektor-Array aus metallischen magnetischen Kalorimetern, Masterarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2016.
- [Sch19] C. Schötz, PolarmaXs: hochauflösendes, polarisationssensitives Röntgenspektrometer basierend auf magnetischen Mikrokalorimetern, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2019.
- [Sei17] B. Seiferle, L. von der Wense und P. G. Thirolf, Lifetime Measurement of the ^{229}Th Nuclear Isomer, *Phys. Rev. Lett.*, **118**, 042501, 2017.
- [Sei19] B. Seiferle, L. von der Wense, P. V. Bilous, I. Amersdorffer, C. Lemell, F. Libisch, S. Stellmer, T. Schumm, C. E. Düllmann, A. Pálffy und P. G. Thirolf, Energy of the ^{229}Th nuclear clock transition, *Nature*, **573**(7773), 243–246, 2019.
- [Sha99] R. W. Shaw, J. P. Young, S. P. Cooper und O. F. Webb, Spontaneous Ultraviolet Emission from $^{233}\text{Uranium}/^{229}\text{Thorium}$ Samples, *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 1109–1111, 1999.
- [Sin05] B. Singh und J. K. Tuli, Nuclear Data Sheets for $A = 233$, *Nuclear Data Sheets*, **105**(1), 109 – 222, 2005.
- [Ste15] S. Stellmer, M. Schreitl und T. Schumm, Radioluminescence and photoluminescence of $\text{Th}:\text{CaF}_2$ crystals, *Sci. Rep.*, **5**, 15580, 2015.
- [Ste18] S. Stellmer, G. Kazakov, M. Schreitl, H. Kaser, M. Kolbe und T. Schumm, On an attempt to optically excite the nuclear isomer in ^{229}Th , *Phys. Rev.*, **A97**(6), 062506, 2018.
- [Swa89] E. T. Swartz und R. O. Pohl, Thermal boundary resistance, *Rev. Mod. Phys.*, **61**, 605–668, 1989.

- [Tak16] M. Takamoto und H. Katori, Optical lattice clocks for precision time and frequency metrology, in *Principles and Methods of Quantum Information Technologies*, 93–110, Springer, 2016.
- [Tes77] C. D. Tesche und J. Clarke, dc SQUID: Noise and optimization, *J. Low Temp. Phys.*, **29**(3), 301–331, 1977.
- [Thi18] J. Thielking, M. V. Okhapkin, P. Głowacki, D. M. Meier, L. Von der Wense, B. Seiferle, C. Düllmann, P. Thirolf und E. Peik, Laser spectroscopic characterization of the nuclear clock isomer $^{229\text{m}}\text{Th}$, *Nature*, **556**, 2018.
- [Tka15] E. V. Tkalya, C. Schneider, J. Jeet und E. R. Hudson, Radiative lifetime and energy of the low-energy isomeric level in ^{229}Th , *Physical Review C*, **92**, 2015.
- [Tul11] J. Tuli, Nuclear wallet cards, *National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Brookhaven*, **8th edition**, 2011.
- [Utt99] S. B. Utter, P. Beiersdorfer, A. Barnes, R. W. Lougheed, J. R. Crespo López-Urrutia, J. A. Becker und M. S. Weiss, Reexamination of the Optical Gamma Ray Decay in ^{229}Th , *Phys. Rev. Lett.*, **82**, 505–508, 1999.
- [vdW16a] L. von der Wense, On the direct detection of $^{229\text{m}}\text{Th}$, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2016.
- [vdW16b] L. von der Wense et al., Direct detection of the ^{229}Th nuclear clock transition, *Nature*, **533**, 47–51, 2016.
- [vdW17] L. von der Wense, B. Seiferle, S. Stellmer, J. Weitenberg, G. Kazakov, A. Pálffy und P. G. Thirolf, A laser excitation scheme for $^{229\text{m}}\text{Th}$, *Phys. Rev. Lett.*, **119**, 132503, 2017.
- [VdW18] L. Von der Wense, On the Direct Detection of $^{229\text{m}}\text{Th}$, Springer International Publishing, 2018.
- [Vel19] C. Velte, Measurement of a high energy resolution and high statistics ^{163}Ho electron capture spectrum for the ECHO experiment, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2019.
- [Weg18] M. Wegner, Entwicklung, Herstellung und Charakterisierung eines auf metallischen magnetischen Kalorimetern basierenden Detektorarrays mit 64 Pixeln und integriertem Mikrowellen-SQUID-Multiplexer, Dissertation, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2018.

- [Wei96] H. Weinstock, *SQUID Sensors: Fundamentals, Fabrication and Applications*, Kluwer Academic Publishers, 1996.
- [Wil69] G. Williams und L. L. Hirst, Crystal-field effects in solid solutions of rare earths in noble metals, *Phys. Rev.*, **185**, 407–415, 1969.
- [Wiß13] V. Wißdorf, Magnetisches 1/f-Rauschen und Imaginärteil der magnetischen Suszeptibilität von Erbium dotiertem Gold bei Millikelvin Temperaturen, Bachelorarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg, 2013.
- [Yam15] A. Yamaguchi, M. Kolbe, H. Kaser, T. Reichel, A. Gottwald und E. Peik, Experimental search for the low-energy nuclear transition in ^{229}Th with undulator radiation, *New Journal of Physics*, **17**, 2015.
- [Yos57] K. Yosida, Magnetic Properties of Cu-Mn Alloys, *Phys. Rev.*, **106**, 893–898, 1957.
- [Yos18] A. Yoshimi, H. Hara, T. Hiraki, Y. Kasamatsu, S. Kitao, Y. Kobayashi, K. Konashi, R. Masuda, T. Masuda, Y. Miyamoto, K. Okai, S. Okubo, R. Ozaki, N. Sasao, O. Sato, M. Seto, T. Schumm, Y. Shigekawa, S. Stellmer, K. Suzuki et al., Nuclear resonant scattering experiment with fast time response: Photonuclear excitation of ^{201}Hg , *Phys. Rev. C*, **97**, 024607, 2018.
- [Zak03] V. Zakosarenko, R. Stolz, L. Fritzsche, H.-G. Meyer, A. Fleischmann und C. Enss, SQUID gradiometer for ultra-low temperature magnetic micro-calorimeter, *Superconductor Science and Technology*, **16**(12), 1404–1407, 2003.
- [Zha12] X. Zhao, Y. N. Martinez de Escobar, R. Rundberg, E. M. Bond, A. Moody und D. J. Vieira, Observation of the Deexcitation of the $^{229\text{m}}\text{Th}$ Nuclear Isomer, *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 160801, 2012.