

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht – Karls – Universität Heidelberg

Diplomarbeit  
im Studiengang Physik

vorgelegt von  
Burkhard Freudiger  
aus Nordhorn

September 1998



**Bestimmung des  
Radon – Gehalts  
in  
flüssigem Stickstoff**

Die Diplomarbeit wurde ausgeführt von  
Burkhard Freudiger  
am

Max – Planck – Institut für Kernphysik  
Heidelberg

unter der Betreuung von  
Prof. Dr. Wolfgang Hampel



Der Szintillationsdetektor BOREXINO dient zur spektralen Untersuchung des Sonnenneutrino­flusses, speziell der monoenergetischen  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos. Wegen der geringen zu erwartenden Ereignisrate muß der natürliche radioaktive Untergrund bestmöglich reduziert werden. Ein Schwerpunkt liegt auf der Reduktion des allgegenwärtigen Radon. Die Reinigung von Flüssigkeiten (Szintillator, PC-Abschirmung) gelingt durch Spülen mit gasförmigem Stickstoff, sofern dessen eigene Radonkontamination ausreichend niedrig ist (angestrebt ist  $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ).

Zur Messung der Radonkontamination im Stickstoff wurde die „Mobile Radon-Extraktionsanlage“ (*MoREx*) entwickelt und erfolgreich eingesetzt. Die Nachweisgrenze liegt bei ca.  $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Zur Reinigung des flüssigen Stickstoffs wurde ein Tieftemperaturadsorber („Low Temperature Adsorber“ *LTA*) eingesetzt. Erste Messungen haben gezeigt, daß diese Methode zum Reinigen von flüssigem Stickstoff erfolgversprechend ist. Die Stickstoffversorgungsanlagen am LNGS wurden in Betrieb genommen und getestet.

## **Reduction and measurement of radon contamination in nitrogen**

The aim of the scintillation detector BOREXINO is the spectral investigation of the solar neutrino flux, especially of the monoenergetic  ${}^7\text{Be}$ -neutrinos. The rather low expected event rates request a strong suppression of all natural radioactiv background. A focal point is the reduction of radon. The cleansing of the liquids (buffer, scintillator) can be done by gas stripping with nitrogen, if the contamination of the gas itself is low enough. It is the goal to reach a level of  $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

To measure the radon contaminations in nitrogen the „Mobile Radon-Extraction Apparatus“ (*MoREx*) was developed. It operates satisfactory, the limit of measurements is below ( $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ). The „Low Temperature Adsorber“ (*LTA*) was applied to reduce the contamination of liquid nitrogen. First measurements showed promising results. Finally the performance of the Borexino Nitrogen Supply Plants at LNGS was tested.

„Schön ist, was wir sehen,  
schöner, was wir wissen,  
über alles schön ist,  
was wir nicht fassen.“

*Niels Stensen (1638-1686)*  
*Anatom und Geologe*  
*Weihbischof von Münster, Paderborn und Schwerin*

# Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>I</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>III</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>1</b>
<b>1 Sonnenneutrinophysik – eine Einführung</b>	<b>1</b>
1.1 Teilchenastrophysik . . . . .	1
1.2 Die Sonne . . . . .	1
1.3 Neutrinos . . . . .	2
1.4 Sonnen–Neutrino–Problem . . . . .	5
1.5 Sonnen–Neutrino–Experimente . . . . .	7
<b>2 Borexino</b>	<b>11</b>
2.1 Grundlegendes . . . . .	11
2.2 Der radioaktive Untergrund von Borexino . . . . .	15
2.3 Radon . . . . .	16
2.4 Stickstoff . . . . .	19
2.5 Radon und Stickstoff in Aktivkohle . . . . .	20
<b>3 Experimenteller Aufbau und Meßvorgang</b>	<b>23</b>
3.1 Reinigung des flüssigen Stickstoffs . . . . .	23
3.2 Der Nachweis . . . . .	26
3.2.1 Allgemeine Vorgehensweise . . . . .	27
3.2.2 Erste Erfahrungen und technische Probleme . . . . .	29
3.3 Die Nachweisgeräte . . . . .	31
3.3.1 Die Mobile Radon–Extraktions–Anlage MoREx . . . . .	31
3.3.2 Die Zählrohrfüllanlage . . . . .	36
3.3.3 Zählrohre . . . . .	38
3.3.4 Die Meßelektronik . . . . .	39
3.4 Alternative Meßmethoden . . . . .	40
<b>4 Die Meßergebnisse</b>	<b>42</b>
4.1 Berechnung . . . . .	43
4.2 Blankmessungen . . . . .	46
4.3 Emanationsmessungen . . . . .	48
4.4 Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit . . . . .	49
4.5 Stickstoffmessungen in Heidelberg . . . . .	50
4.6 Bewertung der Ergebnisse . . . . .	51

<b>5</b>	<b>Meßwerte im LNGS</b>	<b>54</b>
5.1	Blankmessungen . . . . .	54
5.2	Die Nachweiseffizienz im LNGS . . . . .	55
5.3	Stickstoffmessungen im LNGS . . . . .	56
5.4	Anmerkung zu den Meßwerten . . . . .	58
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>59</b>
	<b>Anhang</b>	<b>I</b>
<b>A</b>	<b>Tabellen</b>	<b>I</b>
A.1	Technische Daten der MoREx . . . . .	I
A.2	Meßergebnisse . . . . .	III
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>VII</b>
	<b>Die BOREXINO - Kollaboration</b>	<b>XIII</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Die Proton-Proton-Fusionskette . . . . .	4
1.2	Das Sonnenneutrinospektrum nach dem SSM(BP95) . . . . .	4
1.3	MSW-Lösungen im $\Delta m^2$ - $\sin^2(2\theta)$ -Parameterraum . . . . .	7
1.4	Gemessene und erwartete Neutrinoflüsse . . . . .	10
2.1	LNGS – die Experimentierhallen . . . . .	11
2.2	Der Borexino-Detektor . . . . .	13
2.3	Radioaktive Zerfallskette von $^{238}\text{U}$ . . . . .	18
2.4	Rn-Profil in Aktivkohle . . . . .	22
3.1	Die Stickstoffanlagen in Heidelberg . . . . .	24
3.2	Vorläufige Borexino-Stickstoffversorgungsanlagen vor Halle C des LNGS . . . . .	25
3.3	Borexino-Stickstoffversorgungsanlagen vor Halle C des LNGS . . . . .	25
3.4	Das Vakuumsystem der MoREx . . . . .	32
3.5	Aktivkohlekühlfalle der MoREx . . . . .	35
3.6	Low-Level-Proportional-Zählrohr „Davis-Typ“ . . . . .	38

# Tabellenverzeichnis

2.1	Erwartete Zählraten der Neutrino-Detektoren . . . . .	13
2.2	Obergrenzen der radioaktiven Verunreinigungen in den Materialien von Borexino . . . . .	16
2.3	Die wichtigsten Daten der drei natürlich vorkommenden Radon-Isotope . . . . .	17
2.4	Kennzahlen einiger atmosphärischer Gase . . . . .	20
3.1	Masse und Volumen der Aktivkohlefallen . . . . .	35
4.1	Ergebnis der Blankmessungen der Zählrohrfüllapparatur in Heidelberg . . . . .	46
4.2	Ergebnis der Blankmessungen der MoREx . . . . .	47
4.3	Untergrundmessungen des Counters #124 . . . . .	47
4.4	Ergebnisse der Emanationsmessungen . . . . .	48
4.5	Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit . . . . .	50
4.6	Ergebnisse der Stickstoffmessungen in Heidelberg . . . . .	52
5.1	Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit im LNGS . . . . .	56
5.2	Ergebnisse der Stickstoffmessungen im LNGS . . . . .	57
A.1	Technische Daten der MoREx, Teil I . . . . .	I
A.2	Technische Daten der MoREx, Teil II . . . . .	II
A.3	Blanks der Zählrohrfüllapparatur in Heidelberg . . . . .	III
A.4	Nachweiswahrscheinlichkeit der Zählrohrfüllapparatur in Heidelberg . . . . .	III
A.5	Blanks der einzelnen Komponenten der MoREx . . . . .	IV
A.6	Messung von Standardaktivitäten mit der MoREx . . . . .	IV
A.7	Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit im LNGS . . . . .	V
A.8	Emanationsmessungen . . . . .	V
A.9	Stickstoffproben in Heidelberg . . . . .	VI
A.10	Stickstoffproben im LNGS . . . . .	VI

# Kapitel 1

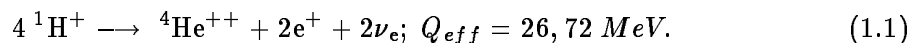
## Sonnenneutrinophysik – eine Einführung

### 1.1 Teilchenastrophysik

Teilchenastrophysik ist eine neue physikalische Disziplin des 20. Jahrhunderts. Sie beinhaltet die Beobachtung astrophysikalischer Vorgänge, aber nicht mit Licht (wie aus der klassischen Astronomie bekannt), sondern mit Hilfe von Elementarteilchen, die in bestimmten meistens unzugänglichen oder der optischen Beobachtung verborgenen Regionen des Weltalls entstehen. Die natürlichen Teilchenquellen (Sterne, Supernovae und Galaxien) liefern eine scheinbar unerschöpfliche Menge der verschiedenen Teilchen mit den unterschiedlichsten Energien, und in kosmischen Maßstäben existieren Beschleunigungsmechanismen (z.B. Magnetfelder), die selbst mit den modernen Teilchenbeschleunigern zumindest in absehbarer Zukunft nicht reproduziert werden können. Aber auch die Natur der benutzten „Sonden“ ist oft noch Gegenstand der Forschung: bestes Beispiel ist das Neutrino (siehe Kap. 1.3). Die Resultate haben letztlich Auswirkungen auf die Astronomie, die Kosmologie sowie die Elementarteilchenphysik. Die Teilchenastrophysik umspannt also das gesamte physikalische Wissen vom Mikrokosmos bis zum Makrokosmos (siehe u.a. [Bah89, Bah92, Tur93]). Zusätzlich erfordert sie aber auch neue Konzepte der experimentellen Arbeit. Eine besondere Methode ist dabei die *Low-Level-Meßtechnik*, d.h. der Nachweis und die Interpretation sehr geringer Ereignisraten. Eine der größten Herausforderungen ist dabei die Reduktion des natürlichen radioaktiven Untergrundes, der terrestrischen oder kosmischen Ursprungs sein kann.

### 1.2 Die Sonne

Die Sonne entstand aus einer Gas- und Staubwolke mit den Überresten früherer Sterne. Diese Wolke ist auf Grund der Eigengravitation kollabiert, bis vor etwa 4,6 Milliarden Jahren in ihrem Zentrum Druck und Temperatur die Schwelle überschritten, bei der das Feuer der Kernfusion zündete. Seitdem wird in der Sonne Energie produziert durch Umwandlung von Wasserstoff in Helium:



Im Laufe der Zeit wurden einige sinnvollen Annahmen unter dem Begriff „Standardsonnenmodell“ (kurz: SSM) zusammengefaßt, so daß ein anschauliches Bild von den Bedingungen im Inneren der Sonne entstand, das zudem in vertretbarer Zeit mit Computern berechnet werden kann (u.a. [Bac89, BP92, BP95, Tur93]):

1. Die Sonne wird als sphärisch-symmetrische Gaskugel angenommen, die einzige geometrische Variable ist der Radius.
2. Die Sonne ist ein Hauptreihenstern. Sie befindet sich makroskopisch seit langer Zeit (ca.  $4,6 \cdot 10^9 a$ ) im quasistatischen Gleichgewicht, d.h. Zustandsänderungen verlaufen hinreichen langsam ab und haben nur sehr geringen Einfluß auf den globalen Aufbau der Sonne.
3. Die Energie wird im Zentrum der Sonne durch Kernfusion gemäß der *pp-Kette* (siehe Abb. 1.1) bzw. des *CNO-Zyklus* erzeugt.
4. Rotation, Massenverlust und Magnetfelder werden vernachlässigt; sie finden erst in den Nicht-Standard-Sonnen-Modellen wieder Beachtung.
5. Der Druck auf Grund der Eigengravitation wird durch Gasdruck und Strahlungsdruck vollständig kompensiert.
6. Der Energiefluß erfolgt über Strahlung (Photonen), Konvektion und Neutrinoemission.
7. Die Mengenanteile von Wasserstoff (ca. 70%) und Helium (ca. 25%) gehen hauptsächlich aus der primordialen Elementsynthese nach dem Urknall hervor, die meisten schwereren Elemente stammen aus der Nukleosynthese in Sternen und Supernovae, die nach ihrem Ende das Material zur Bildung des Sonnensystems lieferten. Die Massenanteile werden als empirische Eingabewerte hinzugefügt.

Der größte Teil der Energie wird durch Photonen weggetragen, die aber im Sonneninneren nur eine mittlere freie Weglänge von einigen Zentimetern besitzen. Sie werden vielfach gestreut, brauchen für den Weg vom Zentrum der Sonne größenordnungsmäßig  $10^5$  Jahre und verlieren dabei alle Informationen über die Richtung, Energie, Impuls oder Drehimpuls der an der Reaktion beteiligten Teilchen. Wenn wir Photonen sehen, entstammen sie den äußeren Bereichen der Sonne (einer Gasschicht mit einer Dicke von 0,21 % des Sonnenradius) und liefern somit keinerlei Information über Zustände und Prozesse im Sonneninneren.

### 1.3 Neutrinos

Bei der Untersuchung des  $\beta$ -Zerfalls in den 20er Jahren zeigte sich, daß die Energie der emittierten Elektronen ein kontinuierliches Spektrum ergaben und der Kernspin um einen ganzzahligen Wert wechselte. Da das Elektron aber einen halbzahligen Spin besitzt und zudem bei der Emission eines einzelnen Teilchen niemals ein kontinuierliches Spektrum auftreten kann, schien hier die Energie-, die Impuls- und die Drehimpulserhaltung verletzt. W. Pauli postulierte deshalb 1930 zur Rettung der Erhaltungssätze ein weiteres elektrisch neutrales Teilchen mit Spin- $\frac{1}{2}$ , das an dieser Reaktion beteiligt sein sollte.

Der experimentelle Nachweis der Neutrinos gelang durch F. Reines (1918-1998; Nobelpreis 1995 für den Nachweis) und C.L. Cowan erst im Jahre 1956, als Reaktoren hinreichend große und damit meßbare Neutrinoflüsse produzierten [Rei59]. Im Jahr 1962 zeigte die Untersuchung des Pion-Zerfalls die Existenz unterschiedlicher Neutrino-Arten. Das derzeit gültige Standardmodell der Elementarteilchen ordnet jedem der existierenden schweren und geladenen Leptonen ( $e$ ,  $\mu$ ,  $\tau$ ) ein Neutrino zu, so daß man drei unterschiedliche Neutrino-Sorten (sog. „Flavours“) unterscheidet: das Elektron-Neutrino  $\nu_e$ , das Myon-Neutrino  $\nu_\mu$  und das Tau-Neutrino  $\nu_\tau$ .

Bisher waren alle Experimente der Elementarteilchenphysik mit einer Neutrino-Ruhemasse „Null“ verträglich. Auf dem Weg zu einer Vereinheitlichung der Naturkräfte und bei der Entwicklung supersymmetrischer Modelle höherer Ordnung wird allerdings in bestimmten Theorien zwingend gefordert, daß das Neutrino exakt masselos ist. Die Frage nach der Neutrinomasse ist also ein Prüfstein zukünftiger Physik.

Sowohl zeitlich als auch inhaltlich eng verknüpft mit den neuen Erkenntnissen in der Atom- und Quantenphysik ist die Entwicklung in der Astronomie und Kosmologie. Hubbles Erkenntnis von der Existenz von Galaxien und Galaxienhaufen außerhalb der Milchstraße führte zu einem grundlegend neuen Verständnis der kosmischen Evolution. In den selben Jahrzehnten entwickelte sich ein neues Verständnis für die Vorgänge, die in Sternen zur Produktion von Energie und gleichzeitig zur Synthese der chemischen Elemente führen. Erstmals beschrieb H.A. Bethe zusammen mit C.L. Critchfield die genauen Abläufe [Bet39] bei der Fusion von Protonen zu Helium („pp-Kette“, Abb. 1.1). Die zweite wesentliche Reaktion, der sog. „CNO-Zyklus“, geht auf Bethe und C.F. v. Weizsäcker zurück. Beim CNO-Zyklus werden Helium-Kerne unter katalytischer Beteiligung von Kohlenstoff, Stickstoff, Sauerstoff und Fluor produziert (dabei ist der CNO-Zyklus wegen der zu geringen Zentraltemperatur in der Sonne stark unterdrückt und wird im folgenden nicht weiter berücksichtigt). Damit war erstmals ein theoretisches Model aufgestellt, das die Fusionsreaktionen vollständig beschreibt und zudem eine (auch quantitative) Abschätzung des Neutrinoflusses zuließ.

Die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Reaktionen (und damit die Produktionsraten der einzelnen Neutrinos) hängen in unterschiedlichem Maße von der Temperatur ab. Die Produktion der pp-Neutrinos ist nur mit  $T_C^{-1,2}$  abhängig von der Zentraltemperatur (und zwar nahezu unabhängig vom benutzten Sonnenmodell). Da die pp-Fusion gleichzeitig die Startreaktion der Fusionskette darstellt (und sowohl der pep-Zweig als auch der CNO-Zyklus stark unterdrückt ist), ist sie eng mit der Gesamtleuchtkraft der Sonne verknüpft. Die pp-Neutrinos konnten erstmalig mit den beiden radiochemischen Gallium-Experimenten GALLEX und SAGE nachgewiesen werden (siehe Kap. 1.5).

**Neutrino-Spektrum:** Um den tatsächlich auf der Erde zu erwartenden Fluß solarer Neutrinos vorherzusagen, muß auf eine Kombination mehrerer grundlegender Annahmen zurückgegriffen werden. Das *Standardsonnenmodell* umschreibt die astrophysikalischen Parameter im Quellgebiet. Mit Beschleunigerexperimenten werden die Wirkungsquerschnitte und Verzweungsverhältnisse der jeweiligen Fusionsreaktionen experimentell bestimmt. Das *Standardmodell der elektroschwachen Wechselwirkung* beschreibt die Eigenschaften des Neutrinos. Damit läßt sich das erwartete Spektrum quantitativ darstellen (siehe Abb. 1.2 sowie [Bah89, BP92, BP95, BP98]).

Abbildung 1.1: Die Proton-Proton-Fusionskette: Dargestellt sind die grundlegenden Reaktionen, die dabei auftretenden Neutrinos (eingekreist), die Verzweigungsverhältnisse und die Temperaturabhängigkeit der drei relevanten Neutrinoflüsse [Bet39, Bah89, Ham87, Kir97, Sch97].

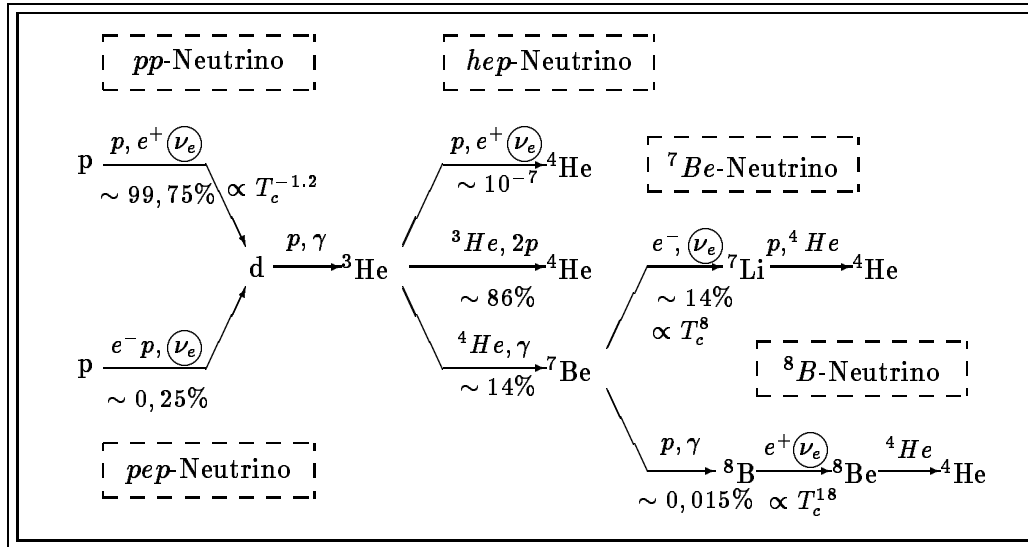
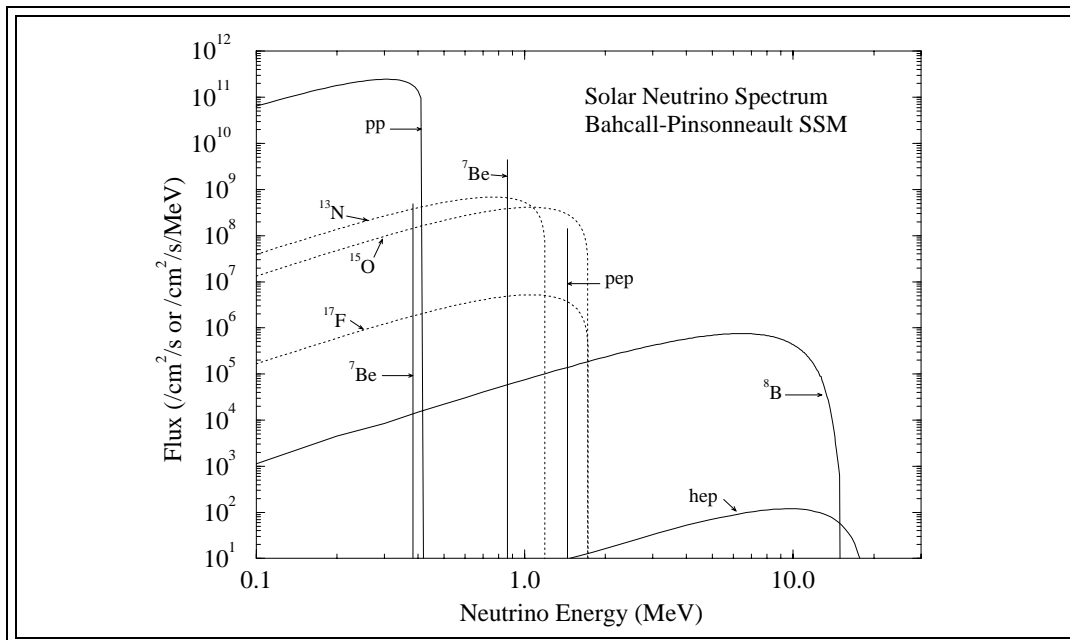


Abbildung 1.2: Das Neutrinospektrum nach dem Standardsonnenmodell vom Bahcall und Pinsonneault (SSM(BP95)): dargestellt ist das theoretisch vorhergesagte Neutrinospektrum, wie es am Ort der Erde meßbar sein müßte [HaL98].



## 1.4 Sonnen-Neutrino-Problem

Das sogenannte „Sonnen-Neutrino-Problem“ teilt sich in einige grundlegende Aspekte auf [Bah89, Bah96, Ben96, Bor91, GAL98I, GAL98II, Kir97, Rag95]:

- Der mit dem  $^{37}\text{Cl}$ -Experiment gemessenen Neutrinofluß (oberhalb  $E_\nu = 0,8\text{MeV}$ ) entspricht nur etwa 35% des Flusses, der vom SSM vorhergesagt wurde. Auch alle übrigen Detektoren weisen verglichen mit der Vorhersage einen zu geringen Neutrinofluß nach (vergl. Abb. 1.4 auf Seite 10).
- Kamiokande konnte (oberhalb  $E_\nu = 7,5\text{MeV}$ , also vor allem  $^8\text{B}$ -Neutrinos) etwa 50% des vorhergesagten Flusses messen. Das setzt (aufgrund der gut bekannten Verzweungsverhältnisse in der pp-Kette) eine bestimmten Fluß von  $^7\text{Be}$ -Neutrinos voraus (sofern sich die Neutrinos nicht ändern). Diese  $^7\text{Be}$ -Neutrinos müßten mit dem Cl-Detektor meßbar sein, scheinen aber offensichtlich nicht zum Signal beizutragen.
- Der erstmalige qualitative und quantitative Nachweis der pp-Neutrinos und damit der Startreaktion der ganzen pp-Kette durch GALLEX und SAGE läßt sich aufgrund der nur geringen Temperaturabhängigkeit gut mit Aussagen vergleichen, die man aus der Leuchtkraft der Sonne über die Zentraltemperatur ermittelt. Der gemessene Fluß entsprach etwa 60 % der Vorhersage des SSM (BP98) (siehe Abb. 1.4, Seite 10). Beide Gallium-Detektoren wurden getestet mit einer  $^{51}\text{Cr}$ -Quelle. Die Neutrinos aus dem  $^{51}\text{Cr}$ -Zerfall besitzen sehr ähnliche Energien wie die  $^7\text{Be}$ -Neutrinos. Werden die Cr-Neutrinos nachgewiesen, müßten auch die Be-Neutrinos meßbar sein. Offensichtlich aber fehlt das Signal der  $^7\text{Be}$ -Neutrinos.

Die Überprüfung der Standardsonnenmodelle bestätigte das bisherige Wissen und ließ nicht genügend Spielraum, um das Defizit zu erklären<sup>1</sup>. Die Produktion der  $^7\text{Be}$ - und der  $^8\text{B}$ -Neutrinos ist streng abhängig von der Zentraltemperatur der Sonne, die durch die Modellrechnungen des SSM beschrieben wird. Die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Reaktionen (insbesondere  $^7\text{Be}(p,\gamma)^8\text{Be}$ ) wurden überprüft und die Verzweungsverhältnisse bestätigt (u.a. G. Bogaert in [SNC97], Seite 32).

Die technische oder physikalische Funktionsweise der benutzten Detektoren wurde ebenfalls überprüft [GAL98I, Kir97]. Da bei der Kernfusion nur Neutrinos des Elektron-Flavours entstehen, wurden die Detektoren gebaut, um genau diese Elektronneutrinos nachzuweisen. Sie sind „blind“ für Neutrinos mit anderem Flavour. Da sie vor allem das Ausbleiben des  $\nu_e$ -Flusses feststellten, werden sie auch als „Disappearance“-Experimente bezeichnet.

**Neutrino-Oszillation:** Es bleibt die Frage nach der Natur des Neutrinos und ob, wie und in welchem Umfang sich die Neutrinos verändern könnten. Eine Möglichkeit ist die *Flavour-Oszillation* der Neutrinos im Leptonsektor analog zu einem Mechanismus, der im

<sup>1</sup>In diesem Zusammenhang wurden tatsächlich viele Komponenten des SSM überprüft. Der Einfluß von Magnetfeldern floß ebenso ein wie unterschiedliche Eingabewerte der Element-Verteilung. Ein anderes Feld ist die Helioseismologie, die die akustischen (mechanischen) Wellen auf der Sonnenoberfläche aufzeichnet und dadurch mit erstaunlicher Präzision Rückschlüsse über das Sonneninnere ermöglicht (u.a. [GONG98]).

Quark-Sektor bekannt ist. Dort wird der Flavour-Wechsel mit der Cabbibo-Kobayashi-Maskawa-Mischungsmatrix beschrieben.

Voraussetzung dazu ist, daß die *Flavourzustände*  $\nu_i$  der Neutrinos ( $i$  steht für  $e$ ,  $\mu$  oder  $\tau$ ) quantenmechanisch kein reiner Zustand sind, sondern eine Superposition mindestens zweier *Massenzustände*  $\nu_j$  ( $j = 1, 2$  oder  $3$ ). Wird in der Sonne ein Neutrino produziert, das eine Superposition zweier Massenzustände  $\nu_{j=1}$  und  $\nu_{j=2}$  darstellt, ist es lediglich eine Frage des „Mischungswinkels  $\theta_{ij}$ “, in welchem Flavour das Neutrino auftritt.

Die *Wahrscheinlichkeit*, ein solares Elektronneutrino *am Ort der Erde* mit konvertiertem Flavour *zu messen*, ist abhängig vom Mischungswinkel  $\theta_{ij}$  und einem Faktor  $\cos \alpha_{ij}$  mit

$$\alpha_{ij} \propto \frac{R}{L_{ij}} \propto \frac{R \cdot \Delta m^2}{E(\nu_i)} \quad (1.2)$$

mit der Oszillationslänge  $L_{ij}$  (bei der das Neutrino mit 100% Wahrscheinlichkeit seinen Flavour gewechselt hat), dem Abstand  $R$  zwischen Quelle und Detektor (in unserem Fall die Erdumlaufbahn um die Sonne), der Differenz der Massenquadrate  $\Delta m^2$  (hier geht der bisher neue Gedanke des massebehafteten Neutrinos in die Theorie ein) und der Neutrinoenergie  $E(\nu_i)$ . Anders ausgedrückt: die Wahrscheinlichkeit, ein Neutrino eines bestimmten Flavours  $\nu_i$  mit einer bestimmten Energie  $E(\nu_i)$  an einem bestimmten Abstand  $R$  nachzuweisen, ist letztlich nur noch abhängig von der Differenz der Massenquadrate  $\Delta m^2$  und  $\sin^2(2\theta_{ij})$  [Bah89, Ben96, Ber94, Bor98I, BP92, BP95, Ham87, Kir97].

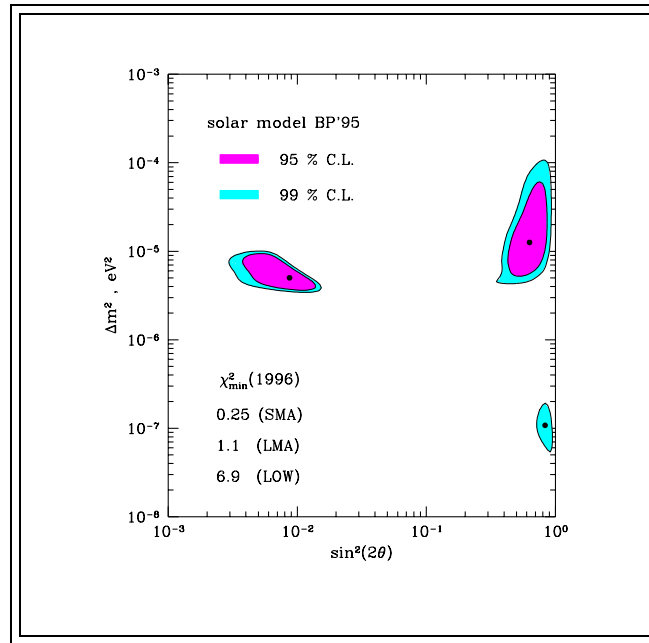
Die verschiedenen Lösungsansätze zeichnen sich dadurch aus, daß sie unterschiedliche Wahrscheinlichkeiten dafür angeben, ob das in der Sonne entstandene Neutrino noch im ursprünglichen Flavourzustand existiert oder ob Flavouroszillation eingetreten ist und somit der meßbare Neutrinofluß unterschiedlich stark reduziert wurde.

Die sogenannte „*Vakuumszillation*“ (kurz: *VO*) beschreibt die Konversion der Neutrinos im Vakuum. Sie ließe sich u.a. nachweisen, weil die Erdbahn um die Sonne elliptisch ist und deshalb abhängig vom Abstand die Konversionswahrscheinlichkeit schwankt („*Erdbahneffekt*“). Der *Mikheyev-Smirnov-Wolfenstein-Effekt* (oder kurz: *MSW-Effekt*) beschreibt die Flavouroszillation unter resonanter Verstärkung in Materie, also durch kohärente Vorwärtsstreuung der Neutrinos an freien Elektronen, z.B. beim Durchgang des Neutrinos durch die Sonnenmaterie (erscheint als „*Klein-Winkel-Lösung*“ (engl.: *small mixing angle solution* oder kurz: *MSW-SMA*)). Bei großem Oszillationswinkel („*Groß-Winkel-Lösung*“: *large mixing angle solution* oder: *MSW-LMA*) wird der Effekt beim Durchgang des Neutrinos durch die Erde teilweise rückgängig gemacht („*Zenithwinkel-Effekt*“). Letzteres konnte bisher noch nicht nachgewiesen werden (Super-Kamiokande 1997).

Die Ergebnisse der Detektormessungen werden mit den theoretischen Vorhersagen verglichen. Die wahrscheinlichsten Lösungen der Parameter  $\sin^2(2\theta)$  und  $\Delta m^2$  werden ermittelt und lassen sich graphisch darstellen (Abb. 1.3). Die unterschiedlichen Oszillationsmodelle zeichnen sich dadurch aus, daß sie in dieser Graphik wie „*Inseln*“ liegen. Ziel der Sonnenneutrino-physik ist, diese Parameterbereiche weiter einzugrenzen<sup>2</sup>. Ausführliche Diskussionen der verschiedenen Lösungsmöglichkeiten findet sich u.a. in [BKS98, BaK98].

<sup>2</sup>Die Kamiokande-Kollaboration veröffentlichte im Juni '98 erstmals die Feststellung, daß die Meßergebnisse bei der Beobachtung der atmosphärischen Neutrinos mit hoher Wahrscheinlichkeit für Flavouroszillation  $\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$  und damit für eine von Null verschiedene Ruhemasse sprechen (*Neutrino '98*, 4.–9. Juni 1998 in Takyama, Japan; siehe auch: *Long-Baseline News*, Special Edition, Juni 1998, im WWW: <http://www.hep.anl.gov/ndk/longbnews/index.html>).

Abbildung 1.3: Beispiel eines  $\sin^2(2\theta) - \Delta m^2$  - Parameterdiagramms. Graphische Auftragung der wahrscheinlichsten MSW-Lösungen für Konversion  $\nu_e \rightarrow \nu_\mu$ . Berücksichtigt sind die Raten der Sonnenneutrino-detektoren Homestake- $^{37}\text{Cl}$ , SuperKamiokande, SAGE und GALEX [BaK97].



## 1.5 Sonnen-Neutrino-Experimente

Zur Beobachtung von Sonnenneutrinos haben sich derzeit drei Typen von Detektoren als besonders effizient erwiesen: die *radiochemischen Detektoren*, die *Čerenkov-Detektoren* und die *Szintillationsdetektoren*. Die ersten beiden Detektortypen werden im folgenden kurz beschrieben. Mit dem Szintillationsdetektor *Borexino* befaßt sich das Kapitel 2 etwas detaillierter.

**Die Einheit „SNU“:** Die Sonne ist eine starke Neutrinoquelle (ca.  $10^{11}$  Neutrinos  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  am Ort der Erde). Allerdings unterliegen Neutrinos nur der „Schwachen Wechselwirkung“ (einer der vier Elementarkräfte<sup>3</sup>). Der Wirkungsquerschnitt für Neutrino-Reaktionen liegt typischerweise bei  $10^{-46} \text{cm}^2$ , somit erhält man durchschnittliche Reaktionsraten von  $10^{-36} \text{s}^{-1}$ . Sie sind also ziemlich „reaktionsfaul“, so daß man die Nachweisgeräte (Detektoren) sehr groß bauen und vor Fremdeinflüssen schützen muß. Um die Meßergebnisse in „handlichen“ Größen darstellen zu können, wurde als gängige Einheit der Sonnenneutrino-physik „1 SNU“ (engl.: *Solar Neutrino Unit = Sonnen-Neutrino-Einheit*) festgelegt:

$$1 \text{ SNU} := \frac{1 \text{ neutrinoinduzierte Reaktion}}{10^{36} \text{ Targetatome} \cdot \text{ Sekunde}} \quad (1.3)$$

<sup>3</sup>Die vier Elementarkräfte sind die Gravitation, die Elektromagnetische Wechselwirkung, die Schwache Wechselwirkung und die Starke Wechselwirkung. Tatsächlich unterliegen die Neutrinos auch dem Einfluß der Gravitation, die allerdings auf atomarer Ebene vernachlässigbar ist und deshalb auch hier keine weitere Erwähnung findet.

**Die Detektoren:** Die Funktionsweise der drei Detektortypen basiert auf den grundlegenden Elementarreaktionen, an denen ein Neutrino beteiligt sein kann. Reaktionen der Schwachen Wechselwirkung funktionieren über den Austausch von  $W^\pm$ -Bosonen („geladener Strom“, engl.: *charged current* oder kurz: *CC*; die Reaktionspartner können sich in ihren Quantenzahlen (z.B. Flavour, Ladung) ändern) oder  $Z^0$ -Bosonen (sog. „neutraler Strom“, engl. *neutral current* oder *NC*; Impuls und Energie werden übertragen, Flavour und Ladung bleiben individuell erhalten).

Eine spezielle Reaktionsart ist die *Elektronstreuung* ( $\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$ ). Sie kann sowohl als NC- wie auch als CC-Reaktion auftreten, wobei der CC-Zweig ausschließlich auf  $\nu_e e$ -Streuung begrenzt ist (bzw. allgemein: Neutrino-Leptonstreuung bei *gleichem* Flavour). Ist die Energie des Neutrinos hoch genug, wird das freie Elektron auf eine Geschwindigkeit beschleunigt, die höher ist als die Lichtgeschwindigkeit im umgebenden Medium. Dabei sendet es *Čerenkov-Strahlung* aus, diese sich kegelförmig um den Einfallsvektor des Teilchens ausbreitet. Sie erlaubt es, die Energie des Teilchens, die Einfallrichtung und gleichzeitig seine Ankunftszeit im Detektor zu bestimmen. Letzteres ist wichtig für die Feststellung von Zenith-Winkel-Effekten (bisher waren aber alle Beobachtungen erfolglos (J.N. Bahcall in [SNC97])). Dieser Detektortyp wurde mit den japanischen Experimenten **Kamiokande** und der neueren größeren Version **Superkamiokande** verwirklicht (u.a. S.T. Petcov in [SNC97], Seite 309 sowie im WWW unter „<http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/>“).

Im Vergleich zu den japanischen Experimenten arbeitet das Sudbury Neutrino Observatory (**SNO**, Meßbeginn 1999) in Kanada mit schwerem Wasser ( $D_2O$ ) und sucht neben der  $\nu_x e^-$ -Streuung auch nach NC- und CC-Ereignissen mit dem Deuteriumkern des schweren Wassers. Ein mögliches NC-Ereignis ist die Aufspaltung eines Deuteriumkerns:  $\nu_x + d \rightarrow p + n + \nu_x$ . Das Neutron wird im Detektor abgebremst („moderiert“); rekombiniert es mit einem anderen Kern, sendet dieser  $\gamma$ -Strahlung aus, die nachgewiesen werden kann.

Bei einer CC-Reaktion wird neben Energie, Impuls und Drehimpuls auch noch die Leptonenquantenzahl und Ladung oder Flavour übertragen,  $\nu_e + d \rightarrow p + p + e^-$ . Das Neutron des Deuteriumkerns wandelt sich um in ein Proton, wobei ein Elektron ausgesandt wird, um die Ladung und die Leptonenzahl zu erhalten. Dieses Elektron ist wieder durch Čerenkov-Strahlung nachweisbar. (R. Meijer Drees in [SNC97], Seite 210, A. Hime in [SNC97], Seite 218 sowie im WWW: „<http://www.snodaq.phy.queensu.ca/>“).

Die *radiochemischen Detektoren* basieren ausschließlich auf CC-Reaktionen: durch einen Neutrino-Einfang-Reaktion wird eine inverse  $\beta$ -Reaktion provoziert. Die neu entstandenen instabilen Nuklide werden chemisch extrahiert und in ein Proportionalzählrohr überführt, um die Rückreaktion durch Auger-Elektronen und Röntgenstrahlen nachzuweisen, wobei u.a. die Zerfallsenergie und die Pulsform zur Analyse benutzt werden. Die Energieschwelle kann sehr niedrig angesetzt werden, aber der chemische Nachweis ist zeitverzögert und gibt auch nur Aufschluß über eine integrale Reaktionsrate.

Das älteste und erste Sonnenneutrinoexperiment ist der **Chlor-Detektor** in der Homestake-Mine in South-Dakota (R. Davis et al.), bei dem die Reaktion  $^{37}\text{Cl}(\nu_e, e^-)^{37}\text{Ar}$  ausgenutzt sowie der anschließende Elektroneneinfang  $^{37}\text{Ar}(e^-, \nu_e)^{37}\text{Cl}$  nachgewiesen wird (R. Davis in [SNC97], Seite 64ff).

Die nächste Generation radiochemischer Detektoren sind die Gallium-Detektoren **SAGE** und **GALLEX**, die als Targetmaterial für den Neutrino-Einfang  $^{71}\text{Ga}$  benutzen:  $^{71}\text{Ga}(\nu_e, e^-)^{71}\text{Ge}$ . Beim **Gallium Experiment (GALLEX)** dienen als Target 30,3t Gallium (das aufgrund der natürlichen Isotopenverteilung 12t  $^{71}\text{Ga}$  enthält) in 100t konzentrierter Gallium-Chlorid-Lösung. Die Energieschwelle liegt bei 233keV. Nachgewiesen wird die Rückreaktion  $^{71}\text{Ge}(e^-, \nu_e)^{71}\text{Ga}$ , also der Zerfall des  $^{71}\text{Ge}$  durch Elektroneneinfang. Die Messungen liefen von 1991 bis 1997 und lieferten als kombiniertes Ergebnis aus den Meßperioden GALLEX I -IV [Kir97]:

$$\Phi_{GALLEX}(\nu_{Solar}) = 76,4 \pm 6.3 (stat)_{-4.9}^{+4.5} (syst) SNU (1\sigma) \quad (1.4)$$

Das entspricht ca. 60% der Vorhersage aus dem SSM(98) [BP98], sofern man annimmt, daß die Neutrinoproduktion konstant ist, die Neutrinos unverändert bleiben und folglich auch der Neutrinofluß am Ort der Erde zeitlich konstant ist.

Die Zuverlässigkeit des Detektors wurde durch Eichungen mit  $^{51}\text{Cr}$  [GAL98I] und  $^{71}\text{As}$  (T. Kirsten in [SNC97]) sowie Eichung der Zählrohre mit  $^{71}\text{Ge}$  nachgewiesen. Das Experiment wird in einer neuen Kollaboration unter dem Namen **Gallium Neutrino Observatory (GNO)** fortgeführt.

Das **Soviet-American-Gallium-Experiment (SAGE)** in Baksan im Kaukasus nutzt die gleiche Kernreaktion, allerdings wird das Gallium hier in metallisch-flüssiger Form verwandt. Das Meßergebnis stimmt innerhalb der Fehler mit dem von GALLEX überein (V.N. Gavrin, Neutrino '98, Takayama, Japan, siehe auch [Pel98]):

$$\Phi_{SAGE}(\nu_{Solar}) = 74_{-10}^{+11} (stat.)_{-7}^{+5} (syst.) SNU (1\sigma). \quad (1.5)$$

Die Vorhersage des Standardsonnenmodells (BP98) sagt für beide Gallium-Experimente einen Neutrinofluß von  $129_{-6}^{+8} SNU$  voraus ( $1\sigma$ -Fehler beinhaltet alle Fehlerquellen quadratisch addiert [BP98]). Andere Modelrechnungen sagen ebenfalls Flüsse von 120-140 SNU voraus [BKS98, Kir97, Pel98].

Abb. 1.4 zeigt abschließen noch einmal den Vergleich der theoretisch erwarteten und der gemessenen Neutrino Flüsse für die Gallium-Experimente GALLEX und SAGE, das  $^{37}\text{Cl}$ -Homestake-Experiment und Superkamiokande.

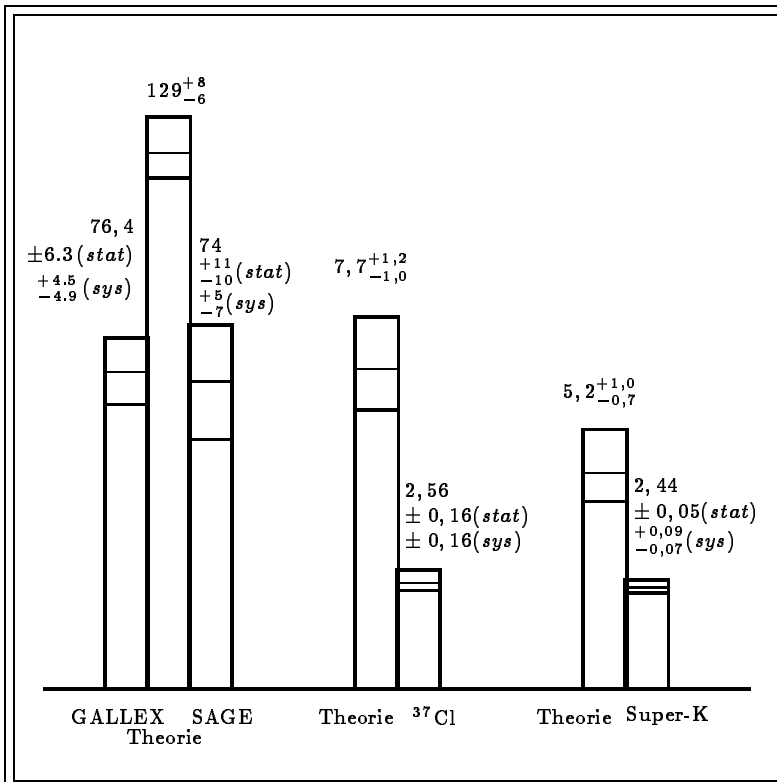


Abbildung 1.4: Gemessene und nach dem SSM(BP98) erwartete Neutrino-flüsse der einzelnen Sonnenneutrino-detektoren. Die Werte der radiochemischen Experimente GALLEX, SAGE und  $^{37}\text{Cl}$  sind in SNU mit  $1 \sigma$  Fehler angegeben. Die Daten des Superkamionkande-Detektors (fast ausschließlich  $^8\text{B}$  - Neutrinos) sind in  $[10^6 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}]$  angegeben [BP95, BP98, BXN98II, Kir97, Pel98, SNC97].

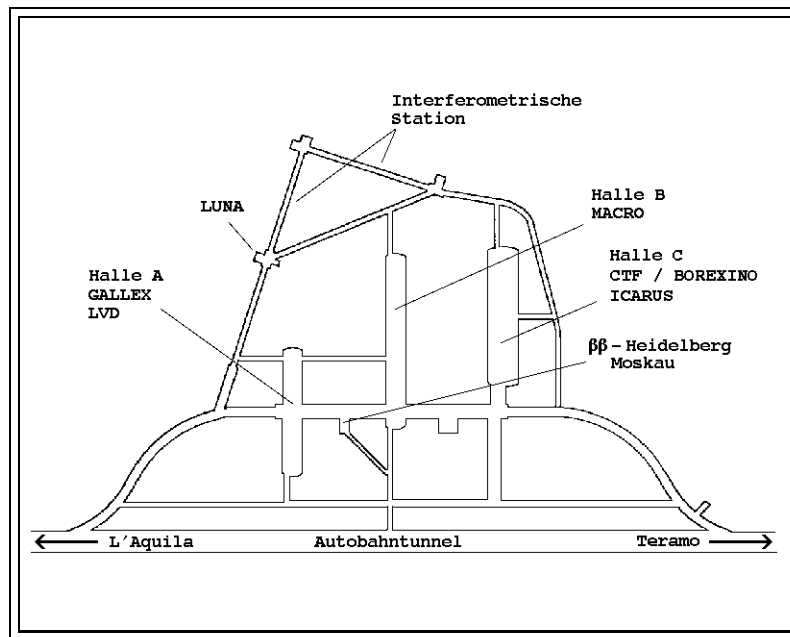
# Kapitel 2

## Borexino

### 2.1 Grundlegendes

Borexino ist ein Low-Level-Detektor der neuesten Generation. Das gegenüber den radiochemischen Experimenten deutlich höhere Neutrinosignal folgt aus dem physikalischen Konzept des Detektors: viele Elektronen dienen als Target für  $\nu e$ -Streuung. Da ein Neutrinosignal aber nicht von  $\beta$ -Zerfällen oder durch  $\gamma$ -Strahlung induzierte Compton- oder Photoereignisse unterschieden werden kann, muß ganz besonders darauf geachtet werden, daß der radioaktive Untergrund so weit wie möglich reduziert wird.

Abbildung 2.1: Lageplan der Experimentierhallen im Gran Sasso Untergrundlabor LNGS (Aufsicht)



Durch die Standortwahl in den *Laboratorii Nazionali del Gran Sasso* (LNGS) bei Assergi (AQ) in Italien ist der Detektor von großen Teilen der kosmischen Strahlung durch etwa 1400 m Gestein (3300 m Wasseräquivalent) abgeschirmt (Abb. 2.1 zeigt eine Skizze der Experimentierhallen). Der Borexino-Detektor wird derzeit (September 1998) aufgebaut in der Halle C unmittelbar neben der CTF (Counting Test Facility), dem Pilotprojekt des

Borexino-Experimentes, in dem viele Probleme im Vorfeld untersucht wurden und grundlegend die physikalische wie technische Funktionsfähigkeit eines Detektors wie Borexino festgestellt wurde.

**Physik des Detektors:** Borexino ist ein Szintillationsdetektor zum Nachweis von Sonnenneutrinos. Ein eintreffendes Neutrino streut an einem Elektron eines Szintillatormoleküls und löst es damit aus dem Molekül (zur Erinnerung: die  $\nu e$ -Streuung ist für Neutrinos aller Flavour möglich, allerdings mit unterschiedlicher Wahrscheinlichkeit). Das nun freigesetzte Elektron stößt an weitere Moleküle des Szintillators und regt sie so an. Die überschüssige Energie wird (mit etwas Zeitverzögerung) als Lichtsignal wieder abgegeben. Dieses Lichtsignal wird mit Photoelektronenvervielfältigern registriert und kann ausgewertet werden. Es erlaubt Rückschlüsse über den Zeitpunkt und die Energie des Neutrinoereignisses (im Gegensatz zu den radiochemischen Detektoren, die zeitverzögert und integral messen). Alle Meßsignale zusammen lassen sich also spektral analysieren. Allerdings liefert Borexino keine Informationen über die Richtung des eingehenden Neutrinos [s.u.a. Bor91, Bor98I, Gia97, Lau96].

Die Hauptaufgabe von Borexino ist die quantitative Bestimmung des  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinoflusses, der als monoenergetische Linie ( $E(\nu_{{}^7\text{Be}}) = 862 \text{ keV}$ ) im Sonnenneutrinospektrum erscheint (vergl. Abb. 1.1 und 1.2 auf Seite 4). Borexino analysiert insbesondere die integralen Zählrate der induzierten Photonen im sog. „*Neutrino-Fenster*“,  $E(\gamma) = 250 - 800 \text{ keV}$  und wird in der nächsten Zukunft der einzige Detektor sein, der das Auftreten bzw. Fehlen der monoenergetischen  $862 \text{ keV}$ -Linie der  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos direkt nachweisen kann.

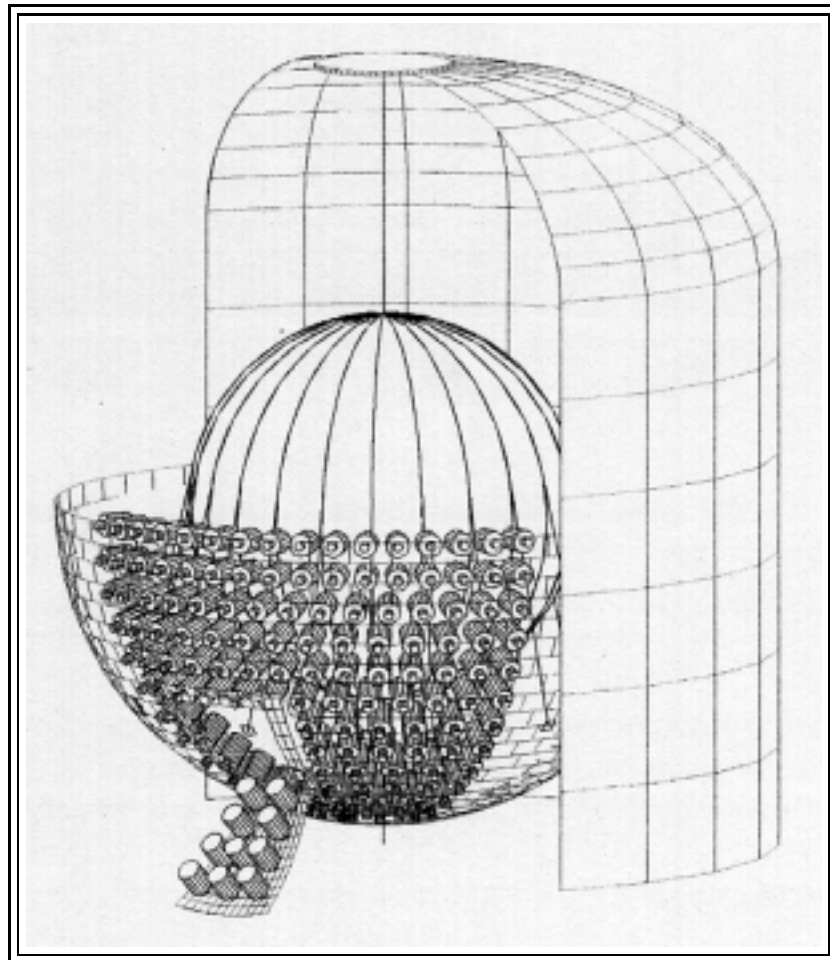
Borexino ist ein Echtzeitdetektor, der auch zeitliche *Variationen* des Neutrinoflusses nachweisen kann. Das Neutrino legt zu verschiedenen Zeiten unterschiedliche Wege zurück, so daß unterschiedliche Effekte zur Flavouroszillation führen können (vergl. hierzu den Abschnitt „*Neutrino-Oszillation*“ im Kap. 1.4): Am Tag müssen die Sonnenneutrinos nur eine kurze Strecke durch das Erdreich zurücklegen ( $\approx 1000 \text{ m}$ ), während sie in der Nacht die gesamte Erde durchqueren müssen, bevor sie im Detektor gemessen werden können (Zenithwinkeleffekt). Aufgrund der elliptischen Erdbahn wird der Fluß ( $\propto 1/R^2$ ) zwischen Sommer und Winter unterschiedlich sein (Erdbahneffekt). Während die Erde um die Sonne kreist, bleibt die Erdachse immer in der gleichen Richtung orientiert. Der Weg, den ein Neutrino nachts *durch* die Erde zurücklegen muß, wird im Winter länger sein als im Sommer, wodurch der Fluß ebenfalls beeinträchtigt werden kann (Jahreszeiteneffekt). Die Stärke und die Energieabhängigkeit der Unterdrückung kann deutliche Hinweis darauf geben, ob Vakuum-Oszillation oder MSW-Effekt die Lösung des Neutrinoproblems liefert. Das  $\sin^2(2\theta) - \Delta m^2$ -Diagramm (Abb 1.3 auf Seite 7) zeigt, welche Lösungen möglich bzw. wahrscheinlich sind.

Erwartet werden ca. 50 Ereignisse pro Tag, wenn das Standardsonnenmodel korrekt ist und die Neutrinos unverändert bleiben, bzw. 12 Ereignisse täglich, wenn vollständige Konversion gemäß der MSW-Klein-Winkel-Lösung vorliegt. Tabelle 2.1 vergleicht die erwarteten Zählraten mit denen anderer zukünftiger Sonnenneutrino-detektoren [Bor91, Bor98I, Cal95]. Auf Grund der sehr guten Zeitauflösung soll Borexino nach 3 Jahren Meßbetrieb in der Lage sein, Vakuum-Oszillation (erkennbar z.B. an jahreszeitlichen Schwankungen) zu bestätigen oder auszuschließen [Bor98I]. Ebenfalls könnte der klare Nachweis des Anteils des CNO-Zyklus an der Energieproduktion in der Sonne gelingen [Ben96].

Tabelle 2.1: Erwartete Zählraten (Ereignisse pro Tag) der Neutrino-Detektoren unterschieden nach den verschiedenen Oszillationsmodellen „Klein-Winkel-Lösung“ (MSW-SMA), „Groß-Winkel-Lösung“ (MSW-LMA) und Vakuumoszillation (VO) [Bor98I] (zum Vergleich: GALLEX hat in seiner gesamten Meßzeit von etwa  $5\frac{1}{2}$  Jahren insgesamt „nur“ ca. 320 Neutrino-Reaktionen gezählt [Cri97, Kir97]).

Experiment	MSW-SMA	MSW-LMA	VO
Superkamiokande	$16^{+7,6}_{-5,2}$	$14^{+3,6}_{-2,4}$	$12^{+1,0}_{-2,4}$
SNO	$8,3^{+6,0}_{-4,2}$	$5,7^{+6,0}_{-1,6}$	$4,9^{+6,0}_{-2,6}$
Borexino	$12^{+16}_{-0,5}$	$32^{+7}_{-8}$	$38^{+15}_{-21}$
Icarus	$1,0^{+0,7}_{-0,5}$	$0,7^{+0,3}_{-0,2}$	$0,7^{+0,9}_{-0,4}$

Abbildung 2.2:  
Der Borexino-Detektor: Struktur-  
skizze mit dem äußeren Tank, der *Stainless Steel Sphere* mit den *Photomultiplier-tubes* und des *Inner Vessel*.



**Der Detektor:** Der Borexino-Detektor ist ein Low-Level-Szintillationsdetektor, gebaut, um relativ geringe Ereignisraten (Elektron-Neutrino-Streuung) nachzuweisen. Im Umfeld gibt es jedoch einen starken Untergrund an radioaktiver bzw. kosmischer Strahlung. Zum Schutz vor der kosmischen Strahlung wurde ein Standort unter Tage gewählt. Die übrige radioaktive Strahlung versucht man durch eine Zwiebschalenarchitektur abzuschirmen (siehe Abb 2.2 auf Seite 13). Der äußere Tank beinhaltet hochreines Wasser, in dem eine Stahlkugel montiert ist. Innerhalb dieser Stahlkugel befindet sich Pseudocumol, das durch (mindestens) einen Nylonballon noch einmal unterteilt wird. Diese Nylonblase soll das innerste Volumen vor der Diffusion von radioaktiven Gasen (spez. Radon) schützen. Schließlich werden zur Auswertung nur die Daten aus dem zentralen (innersten) Kugelvolumen innerhalb des Nylonballons gezählt. Dadurch wird erreicht, daß die Abschirmung vor Untergrundstrahlung nach innen hin immer besser wird. Diese Methode bezeichnet man als „graded shielding“ (engl. für: abgestufte Abschirmung).

Im Detail: Der äußere Tank ist aus rostfreiem Stahl mit 18m Durchmesser und einer maximalen Höhe von 16,73m. In ihn eingebettet ist einen ebenfalls aus rostfreien Stahl gefertigte Kugelschale (*Stainless Steel Sphere*, im folgenden kurz: SSS) mit 13,7m Durchmesser). Sie dient nicht nur zur Abschirmung, sondern ist auch Halterung für die Photomultiplier. Der Zwischenraum ist gefüllt mit hochreinem Wasser. Damit erhält der Detektor eine erste Abschirmung vor der lokalen Streustrahlung, die hauptsächlich aus  $\gamma$ -Strahlung und Neutronen besteht, sowie vor den kosmischen Myonen.

Der Innenraum der SSS ist gefüllt mit Pseudocumol (*1,2,4-Trimethylbenzol*, im folgenden kurz: PC). Als weiteren Schutz des innersten Volumens, das zur Messung herangezogen wird, befindet sich in der SSS die schwimmende Nylonblase (*Inner Vessel*, im folgenden kurz: IV); mit einem Durchmesser von 8,5m. Sie enthält ca. 300t PC, wobei hier als Fluor (Leuchtstoff) ca. 1,5g/l PPO (2,5-Diphenyloxazol) zugesetzt sind (dieses PC-PPO-Gemisch ist der eigentliche Szintillator). Da auch am Rand des IV noch störende Untergründereignisse auftreten könnten, wird nur das innerste Volumen des IV als sog. *Fiducial Volume* zur Auswertung herangezogen (ca. 100t PC+PPO).

2200 Photoelektronenvervielfältiger (*8" Thorn EMI Photo-Multiplier-Tubes*, kurz: PMT) sind in die SSS eingearbeitet, 400 PMT's sehen nach außen als Antikoinzidenzzähler, wobei die Wasserschicht zum Nachweis der Čerenkovstrahlung kosmischer Myonen genutzt wird.

Die Wasserabschirmung ist am Boden des Detektors auf 1 m reduziert, was durch eine Stahlplatte von 15cm Dicke ausgeglichen wird. Unter dem Detektor ist ein Gang eingerichtet, durch den künstliche Neutrinoquellen möglichst nah an den Detektorkern herangebracht werden können. Es ist geplant, Tests mit einer  $^{51}\text{Cr}$ -Neutrino-Quelle vorzunehmen. Ebenfalls in bodennähe sind Kabeldurchführungen sowie ein großes Tor, durch daß man in das Innere des Detektors gelangen kann.

Mit der Fertigstellung des Detektors ist Anfang 2000 zu rechnen. Der tatsächliche Meßbeginn ist zum 1. September 2000 geplant, spätestens aber zum 1. April 2001 [Bor91, Ben96].

## 2.2 Der radioaktive Untergrund von Borexino

Bei einem Low-Level-Experiment (wie Borexino eines ist) gibt es drei große Fragen, durch die das gesamte Experiment im Ansatz und in der Durchführung beeinflusst wird: *Welchen radioaktiven Untergrund gibt es? Welchen Einfluß hat er auf das Experiment? Und welche physikalischen, chemischen oder rechnerischen Möglichkeiten existieren, um diesen Einfluß zu minimieren?*

Der radioaktive Untergrund kann in 5 Kategorien aufgeteilt werden: 1. Aktivität aus der Umgebung (Felswände etc.), 2. Kontamination des Detektormaterials oder der Abschirmung, 3. durch kosmische Strahlung (z.B. Myonen) induzierter Untergrund, 4. Neutronen aus den primordialen Zerfallsreihen und ( $\alpha, n$ )-Reaktionen sowie 5. radioaktive Edelgase in der Luft, Argon (Ar), Krypton (Kr) und speziell Radon und die Tochternuklide [Heu95].

Die Aktivitäten aus der Umgebung sowie der Neutronen- bzw. Myoneninduzierte Untergrund wird zusammengefaßt als der externe Untergrund. Er ist im wesentlichen bekannt und wurde (und wird) im LNGS immer wieder von den verschiedensten Experimenten überprüft. Spuren von natürlichem  $^{40}\text{K}$  können im Stahl enthalten sein, treten allerdings normal als Ion auf und sind deshalb in nichtpolaren organischen Flüssigkeiten wie dem Szintillator nicht löslich. Szintillator und Fluor sind organische Flüssigkeiten, die aus Erdöl hergestellt werden. Es ist deshalb auch mit  $^{14}\text{C}$ -Kontamination zu rechnen<sup>1</sup>. Schließlich ist der Szintillator während des Transports der kosmischen Strahlung (z.B. Myonen, Protonen und Neutronen) ausgesetzt. Die dadurch entstandenen kosmogenen Isotope (z.B.  $^{12}\text{C}(n, \alpha nn)^7\text{Be}$  oder  $^{12}\text{C}(p, \alpha pn)^7\text{Be}$ ), müssen erst abklingen bzw. aus dem Szintillator entfernt werden, bevor die Messungen beginnen.

Um die benutzten Materialien und die notwendigen Reinigungsprozeduren auf ihre Eignung zu prüfen und sich mit ihnen vertraut zu machen wurde das Pilotprojekt CTF gebaut, das in seiner Struktur Borexino ähnlich ist, allerdings deutlich kleiner [Bor91, Bor98I, Bor98II, Lau96]. Der von den einzelnen Detektorkomponenten ausgehenden „interne“ Untergrund wurde und wird ebenfalls intensiv erforscht, u.a. durch Emanationsmessungen, durch Messungen mit Germaniumdetektoren und Neutronenaktivierung (siehe u.a. [Ben96, Bor91, Bor98I, Gol93, Heu95, Lau96, Ned98, Nef96]). Hauptquellen sind die primordialen Zerfallsreihen von  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  (Vergl. Tab. 2.3 auf Seite 17 sowie Abb. 2.3 auf Seite 18). Zudem wurde die CTF genutzt, um die optischen Eigenschaften des Szintillators sowie die unterschiedliche Reaktion auf  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung zu untersuchen.

Dabei bestätigte sich die Erwartung, daß Radon einen gravierenden Teil des Untergrundes ausmacht und spezielle Methoden zur Reinigung entwickelt werden mußten. Um die vom Radon ausgehende Gefahr zu verdeutlichen, werden im Abschnitt 2.3 einige Merkmale des Radon zusammengefaßt. Der nachfolgende Abschnitt 2.4 beschäftigt sich mit dem Reinigungsmittel Stickstoff, den Produktionsmethoden und geeigneten Methoden zur Reinigung, um als Spülgas bei Borexino eingesetzt zu werden. Die für Borexino bzw. die einzelnen Komponenten zulässigen Obergrenzen zum Untergrund sind in Tab. 2.2 nachzulesen.

---

<sup>1</sup>Bei  $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ -Reaktionen wird in der Atmosphäre  $^{14}\text{C}$  produziert. Es gelangt über Photosynthese in alle Pflanzen und wird über die Nahrungskette in die Tierwelt getragen. Da Erdöl aus den Überresten von Pflanzen gewonnen wird, ist es mit  $^{14}\text{C}$  belastet. Es zerfällt mit einer Halbwertszeit von  $\tau_{1/2} \approx 5730a$ . Das Isotopenverhältnis  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  im Szintillator sollte kleiner als  $10^{-18} g/g$  sein.

Tabelle 2.2: Abschätzung der Obergrenzen der radioaktiven Verunreinigungen in den Materialien von Borexino (sog. interner Untergrund). Die dargestellten Werte fanden Eingang in die Monte-Carlo-Simulationen, mit denen die Anforderungen an den Detektor bestimmt wurden. Die genannten Aktivitäten beinhalten das gesamte  $\gamma$ -Spektrum. Die Einheit [g/g] bezeichnet die Menge der Untergrundquelle pro Masseneinheit. Die Massenangaben für die PC-Abschirmung, die Kabel und die Gesamtmenge Radon geben nur die Werte innerhalb der SSS wieder [Ben96, Bon94].

Komponente	$^{238}\text{U}$ [g/g]	$^{232}\text{Th}$ [g/g]	$K_{nat}$ [g/g]	Aktivität	Gesamtmasse/ Volumen
2000 PMT's	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$6,5 \cdot 10^8 \gamma/d$	$8 \cdot 10^6 g$
PC-Abschirmung	$1 \cdot 10^{-15}$	$1 \cdot 10^{-15}$	$5 \cdot 10^{-12}$	$4 \cdot 10^3 \gamma/d$	$1 \cdot 10^3 m^3$
Nylon-Blase	$2 \cdot 10^{-11}$	$2 \cdot 10^{-11}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$3,4 \cdot 10^3 \gamma/d$	$5 \cdot 10^4 g$
Licht-Leiter	$2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$9,6 \cdot 10^6 \gamma/d$	$6 \cdot 10^6 g$
SSS	$2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$6 \cdot 10^7 \gamma/d$	$37 \cdot 10^6 g$
Kabel	$2,1 \cdot 10^{-8}$	$2,4 \cdot 10^{-8}$	$7 \cdot 10^{-6}$	$1,5 \cdot 10^7 \gamma/d$	$2 \cdot 10^5 g$
$^{222}\text{Rn}$ in der PC-Absch.		$1 mBq/m^3$		$1,7 \cdot 10^5 \gamma/d$	$1 \cdot 10^3 m^3$

## 2.3 Radon

Das radioaktive Edelgas Radon, das in größerer Dichte in den unteren Atmosphärenschichten auftritt, stammt aus den drei primordialen Zerfallsketten von  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$ . Es ist chemisch inaktiv, dabei löslich in Wasser und organischen Flüssigkeiten wie dem bei Borexino benutzten Szintillator. Radon kommt in 22 Nukliden vor, davon sind drei natürlich anzutreffen (siehe Tabelle 2.3). Die Mutterisotope sind häufig in Gesteinen enthalten, so daß in Felshöhlen und in der Nähe von Beton eine erhöhte Radonkonzentration meßbar ist (in den Hallen des LNGS durchschnittlich  $50 - 60 Bq/m^3$  mit starken Schwankungen, abhängig vom Luftdruck, der Luftfeuchtigkeit und der Belüftung [Lau96]).

$^{219}\text{Rn}$  aus der Zerfallsreihe von  $^{235}\text{U}$  kann bei den vorliegenden Betrachtungen vernachlässigt werden. Die Isotopenhäufigkeit von  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  beträgt ungefähr  $1 : 20$ . Zudem hat das längstlebige Tochternuklid  $^{211}\text{Pb}$  nur eine Halbwertszeit von  $36,1 min$ , so daß nach etwa 6 Stunden der Anteil dieser Radon-Isotope auf unter  $10^{-3}$  abgefallen ist.

Die Zerfallsreihe von  $^{232}\text{Th}$  hat zwar etwa dieselbe Intensität wie die von  $^{238}\text{U}$ , so daß  $^{220}\text{Rn}$  ebenso häufig auftreten würde wie  $^{222}\text{Rn}$ . Allerdings liegen die Nuklide mit längeren Halbwertszeiten in der Kette vor dem Radon.  $^{220}\text{Rn}$  und die Tochternuklide zerfallen innerhalb weniger Stunden, so daß von dem aus der Umgebungsluft stammenden  $^{220}\text{Rn}$  keine Gefahr für den Detektor ausgeht. Es ist nur noch auf einen möglichst geringe  $^{232}\text{Th}$ -Kontamination der Detektormaterialien zu achten.

Tabelle 2.3: Die wichtigsten Daten der drei natürlich vorkommenden Radon-Isotope [FZK95].

Zerfallsreihe (Ursprung)	$^{235}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U}$
Halbwertszeit	$7,038 \cdot 10^8 a$	$1,405 \cdot 10^{10} a$	$4,4687 \cdot 10^9 a$
Radonnuklid	$^{219}\text{Rn}$	$^{220}\text{Rn}$	$^{222}\text{Rn}$
Halbwertszeit $\tau_{1/2}$	3,96 s	55,6 s	3,825 d
$\alpha$ -Energie [MeV]	6,82; 6,55; 6,43	6,29	5,49
längstlebige Tochternuklid	$^{211}\text{Pb}$	$^{212}\text{Pb}$	$^{210}\text{Pb}$
Halbwertszeit $\tau_{1/2}$	36,1 min	10,64 h	22,3 a
$\beta$ -Energie [MeV]	1,4	0,3; 0,6	0,02; 0,06

Das Nuklid mit der größten Häufigkeit ist  $^{222}\text{Rn}$  ( $\alpha$ -Zerfall mit einer Halbwertszeit von  $\tau_{1/2} = 3,825 d$ ). Innerhalb weniger Stunden bildet sich in der Kette der  $^{222}\text{Rn}$ -Töchter ein Gleichgewicht, das beim  $^{210}\text{Pb}$  ( $\tau_{1/2} = 22,3 a$ ) seinen vorläufigen Endpunkt findet [Lau96, Bru76, Ben96]. Die vollständige Zerfallsreihe ist in Abb. 2.3 (Seite 18) abgedruckt.

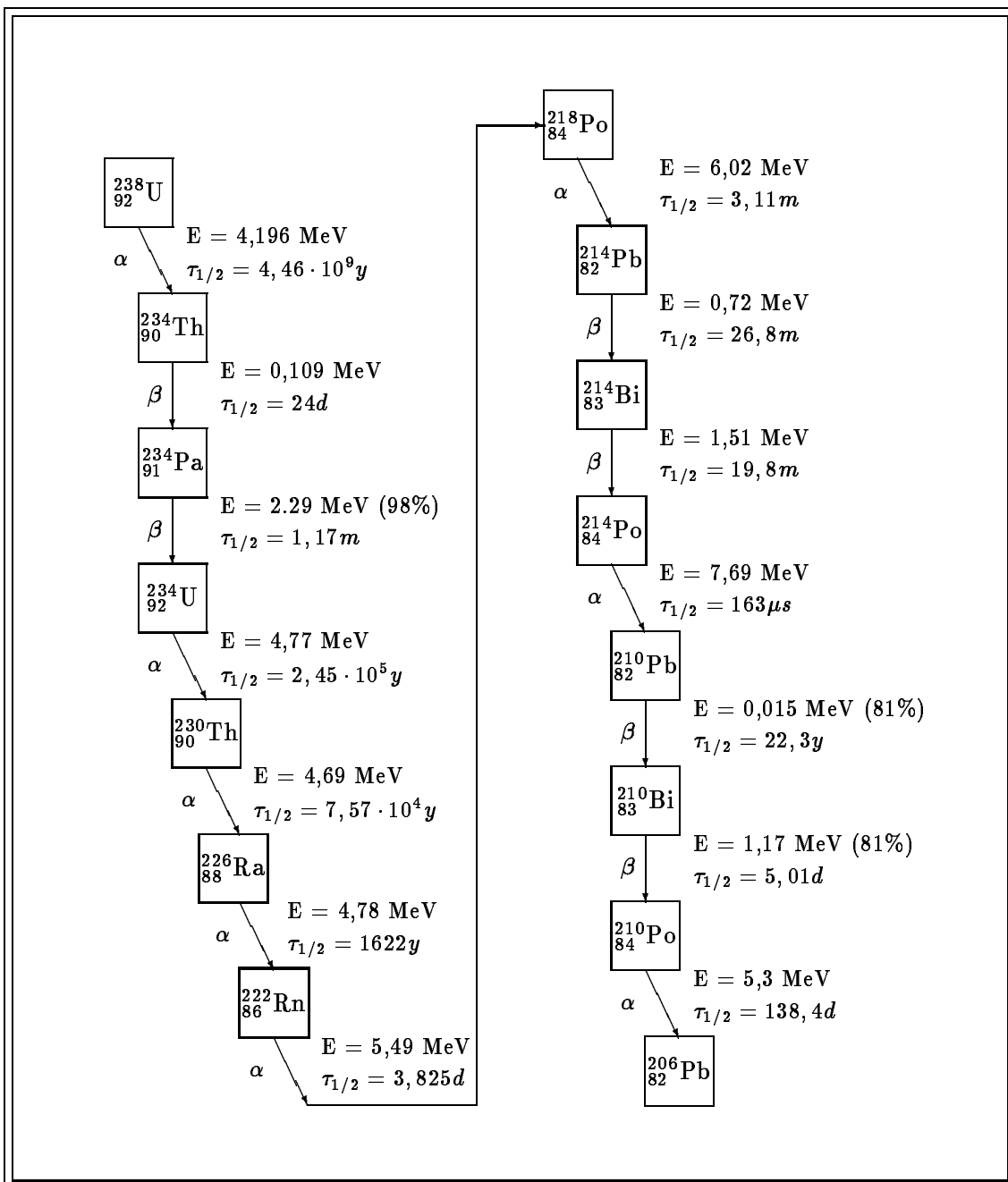
Die erste große Kontaminationsgefahr entsteht beim Aufbau des Detektors. Alle benutzten Teile (z.B. Dichtringe, Kabel) und Materialien (Stahl, Nylon) werden im Vorfeld auf ihre Radonemanation und ihr Verhalten als Barriere gegen Radondiffusion untersucht<sup>2</sup>.

Beim Aufbau sind zudem die Oberflächen ungeschützt der Umgebungsluft ausgesetzt. Das gasförmige Radon kann in die Materialien (z.B. das Nylon des IV) hineindiffundieren. Zerfällt es dort, können die verbleibenden Tochternuklide in die Kristall- bzw. Molekülstrukturen eingebaut werden. Vor allem das metallische  $^{210}\text{Pb}$  kann sich auf diese Weise festsetzen und ist anschließend nur schwer zu entfernen. Darum ist geplant, die Endmontage des IV unter Reinraumbedingungen durchzuführen und gleichzeitig in einem (weitestgehend) geschlossenen System mit synthetisch hergestellter Luft ( $\text{N}_2 - \text{O}_2$ -Gemisch) unter größtmöglicher Vermeidung von Radon zu arbeiten.

Radon kann durch einige Stoffe hindurch diffundieren und läßt sich auch später nur durch sehr wenige Materialien vom Eindringen in den Detektor abhalten. Da zudem die einzelnen Detektorkomponenten unablässig Radon emanieren, das sich in der Wasserabschirmung und im Szintillator ansammelt, sind umfangreiche Reinigungsprozeduren entwickelt und im Rahmen der CTF getestet worden (siehe u.a. [Ben96, Bor91, Bor97, Bor98I, Bor98II, Lau96]). Eine Standardmethode zum Reinigen von Flüssigkeiten ist das Spülen mit sauberem Gas (engl.: *gas stripping*), im speziellen Fall mit Stickstoff.

<sup>2</sup>Ein umfangreicher Anteil an Emanationsmessungen wurde am MPI für Kernphysik durchgeführt.

Abbildung 2.3: Radioaktive Zerfallskette von  $^{238}\text{U}$ , Zerfallstyp, Energie und Halbwertszeit. Es sind nur die Zerfallskanäle mit einer Zerfallswahrscheinlichkeit von mehr als 1% angegeben. Begleitende  $\gamma$ -Strahlung wurde nicht berücksichtigt [FZK95, Lau96].



## 2.4 Stickstoff

Eine gängige Methode, Flüssigkeiten von Gasen (wie etwa Radon) zu befreien, ist, sie mit anderen Gasen (wie etwa Stickstoff) zu spülen, damit das gesuchte bzw. störende Gas in die Gasphase übertritt und ausgeblasen wird. Stickstoff als Spül- und Reinigungsgas hat mehrere Vorteile: er ist in großen Mengen weltweit verfügbar, preisgünstig, leicht zu handhaben, nicht toxisch und nicht brennbar. Dabei ist Stickstoff chemisch inaktiv, so daß keine Veränderungen am Szintillator eintreten. Im Rahmen der CTF konnte gezeigt werden, daß die Flüssigkeit, also der Szintillator bzw. das als Abschirmung dienenden Wasser, unter bestimmten Umständen die gleiche Reinheitsstufe erreicht wie der Stickstoff (vergl. Kap. 4.2ff in [Lau96]). Die  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentration im Wasser der Abschirmung der CTF konnte durch Stickstoffreinigung auf einige  $10\text{mBq}/\text{m}^3$  reduziert werden (eine derartige Radonkontamination genügt aber nicht den Anforderungen für den Einsatz in Borexino). Da dieser Wert der Radon-Konzentration des Stickstoffs entspricht, sollte man sich Gedanken machen über dessen Kontamination mit radioaktiven Nukliden.

Stickstoff wird aus normaler Umgebungsluft gewonnen, es ist also mit meßbaren Mengen an Radon zu rechnen. Diese Menge gilt es zu bestimmen und ihre Auswirkung auf die Durchführung des Experimentes abzuschätzen. Typische Reinheitsstufen sind 99,9990 %. Standardverfahren sind die *kryogene Luftzerlegung* (fraktionierte Destillation) und die Reinigung des Gases mit PSA-Systemen (s.u.). Bei der kryogenen Luftzerlegung wird die Luft von Staub und Partikeln gereinigt, getrocknet und gekühlt. Nach mehreren Schritten verflüssigen sich die einzelnen Bestandteile der Luft bei verschiedenen Temperaturen und können dabei separiert werden. Bei dieser Methode kommt es hauptsächlich darauf an, Stickstoff, Sauerstoff, Argon, Helium und Neon voneinander zu trennen.

Bei der Gasreinigung mit *Pressure Swing Adsorption*-Systemen (kurz: PSA-Systemen) und *Temperature-Cycling-Adsorption-Systeme* nutzt man aus, daß der Adsorptionskoeffizient in einer Falle, die mit Adsorbentmaterial (z.B. Aktivkohle) gefüllt ist, abhängig ist vom Druck und von der Gastemperatur (vergl. Kap. 2.5) Je zwei Adsorber sind „parallel geschaltet“ und werden abwechselnd benutzt. Während das Gas durch einen Adsorber geleitet und somit gereinigt wird, zweigt man etwas von dem gereinigten Gas ab und leitet es in entgegengesetzter Richtung durch den zweiten Adsorber, um diesen zu reinigen.

Bei PSA-Systemen geschieht die Gasreinigung mit Überdruck im einen Adsorber, während der andere Adsorber mit Atmosphärendruck oder sogar Unterdruck gereinigt wird<sup>3</sup>. Bei *Temperature-Cycling-Adsorption-Systemen* geschieht die Gasreinigung bei niedrigen Temperaturen (gekühlt wird z.B. mit flüssigem Stickstoff). Der zweite Adsorber wird geheizt, während die Verunreinigungen aus ihm ausgespült werden.

Die Spurengase, deren Volumenanteil bei ca. 0,04 Vol.-% liegt, sorgen bei der Bestimmung der Radon-Kontamination für Schwierigkeiten. Da einige Spurengase (v.a.  $\text{CO}_2$ ) ähnliche physikalische Eigenschaften (Schmelzpunkt, Siedepunkt) besitzen wie Radon, werden sie ebenfalls in Kühlfallen adsorbiert und müssen anschließend umständlich aus der Gasprobe extrahiert werden (siehe Kap. 3.1). Die physikalischen Eigenschaften der in der Atmosphäre auftretenden Gase findet man in Tab. 2.4 auf Seite 20.

---

<sup>3</sup>Der Einsatz von PSA-Systemen zur Reinigung des Standardstickstoffes im Umfeld der Stickstoffversorgungsanlagen wurde in der Kollaboration diskutiert und u.a. von der Gruppe der Universität Princeton, USA, (J. Benzinger et al.) getestet. Der Einsatz des Tieftemperaturadsorbers LTA (siehe Kap. 3) im PSA-Betrieb ist prinzipiell möglich.

Tabelle 2.4: Kennzahlen einiger atmosphärischer Gase: durchschnittlicher Anteil in der trockenen Atmosphäre nahe der Erdoberfläche, Dichte, Siede- und Schmelztemperatur. Die Spurengase (unterer Tabellenteil) machen insgesamt weniger als 0,038 % des Gesamtvolumens aus [Bli94, HCP75]. Die Dichte bezieht sich auf Normbedingungen (1013mbar, 0°C).

Gas	Volumenanteil an normaler Luft	Dichte [g/l] <sup>Norm</sup>	Siedepunkt °C	Schmelzpunkt °C
Stickstoff N <sub>2</sub>	78,084%	1,2506	-195,5	-209,86
Sauerstoff O <sub>2</sub>	20,946%	1,429	-182,962	-218,4
Argon Ar	0,934%	1,7837	-185,7	-189,2
Kohlendioxid CO <sub>2</sub>	345 · 10 <sup>-6</sup>	1,98	-78,5 <sup>sub</sup>	-56,6 <sup>(5,6atm)</sup>
Neon Ne	18,18 · 10 <sup>-6</sup>	0,8990	-246,048	-248,67
Helium He	5,24 · 10 <sup>-6</sup>	0,175	-268,934	< -272,2 <sup>(26atm)</sup>
Methan CH <sub>4</sub>	2 · 10 <sup>-6</sup>	1,2506	-164	-182,48
Krypton Kr	1,14 · 10 <sup>-6</sup>	3,733	-152,30	-156,6
Wasserstoff H <sub>2</sub>	0,5 · 10 <sup>-6</sup>	0,0898	-252,87	-259,15
Distickstoffoxid N <sub>2</sub> O	0,3 · 10 <sup>-6</sup>	1,977	-88,5	-90,8
Xenon Xe	0,087 · 10 <sup>-6</sup>	0,009	-107,1	-111,9
Kohlenmonoxid CO	30 – 250 · 10 <sup>-9</sup>	0,7909	-191,5	-205,05
Stickstoffdioxid NO <sub>2</sub>	10 – 100 · 10 <sup>-9</sup>	1,4494	21,2	-11,2
Stickstoffoxid NO	5 – 100 · 10 <sup>-9</sup>	1,342	-151,8	-163,3
Schwefeldioxid SO <sub>2</sub>	< 1 – 50 · 10 <sup>-9</sup>	2,927	-10	-72,2
Ammoniak NH <sub>3</sub>	0,1 – 1 · 10 <sup>-9</sup>	0,8906 <sup>boil.p.</sup>	-33,34	-77,73
Formaldehyd HCHO	0,1 – 1 · 10 <sup>-9</sup>	0,815	-21	-92
Radon Rn	10 <sup>-19</sup>	9,73	-61,8	-71

## 2.5 Radon und Stickstoff in Aktivkohle

Zuvor wurde erläutert, daß Radon eine Hauptquelle des radioaktiven Untergrundes von Borexino ist und dieses Radon mit Stickstoff aus den Flüssigkeiten ausgespült werden kann. Da der Stickstoff aber ebenfalls (und deutlich meßbar) mit Radon kontaminiert ist, stellen sich zwei Fragen:

- Wie kann der Stickstoff gereinigt werden?
- Wie kann die Reinheit des Stickstoffs gemessen werden, bevor er mit dem Szintillator oder anderen Detektorkomponenten in Berührung kommt?

Die Extraktion von Radon aus großen N<sub>2</sub>-Mengen gelingt durch *Adsorption*, also der Anbindung der Radonatome eine stark gekühlte Oberfläche (z.B. mit flüssigem Stickstoff gekühlte Aktivkohle). Zwischen den Radonatomen und der Oberfläche wirken van-der-Waals-Kräfte (siehe auch [Bru76, Lau96]). Von entscheidender Bedeutung für den Erfolg der Radonextraktions (egal ob zum Messen oder zum Reinigen) ist auf jeden Fall eine große Oberfläche, auf der das Radon anbinden kann, sowie eine ausreichende Länge der benutzten Kühlfalle, um die sog. „Standzeit“ (s.u.) zu erhöhen.

**Länge der Kohlefalle:** Die Gasprobe wird durch eine Aktivkohle hindurchgeleitet. Wird die Falle gekühlt, friert das Radon mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit an der Kohlenoberfläche fest (Adsorption) bzw. wird von ihr in einem bestimmten Zeitraum wieder abgelöst (Desorption) und durch den Gasstrom mitgerissen. Analog gilt dies natürlich auch für das benutzte Carriergas (in unserem Fall das Probegas Stickstoff), aber mit einer anderen Wahrscheinlichkeit. Wegen der ständigen Adsorption und Desorption „wandert“ das Radon also mit einer bestimmten Geschwindigkeit durch die Falle. Die Zeit, die das Radon benötigt, um die Falle wieder zu verlassen, wird als „Standzeit“ bezeichnet. Eine Extraktion (ob zum Messen oder zum Reinigen) ist durch die Standzeit begrenzt. Um sie zu erhöhen, kann man verschiedene Größen in Betracht ziehen.

Der „Adsorptionskoeffizient“, also der Quotient  $\alpha = v(\text{Rn})/v(\text{N}_2)$  der beiden Gasgeschwindigkeiten, ist abhängig vom benutzten Adsorber, von der Temperatur und natürlich von den beiden zu untersuchenden Gasen (ausführliche Darlegungen finden sich u.a. in [Bru76, Lau96]). Messungen in der Kollaboration (G. Heusser, W. Rau, M. Wojcik 1997/98) führen zu einem Richtwert von  $\alpha \approx 2,4 \cdot 10^{-7}$  bei  $T = -196^\circ\text{C}$ . Damit ist man in der Lage, eine erste Abschätzung für die Größe einer Aktivkohlefalle zu machen, indem man in erster Näherung einer laminare Strömung des Gases in der Falle annimmt:

$$v(\text{Rn}) = \alpha \cdot v(\text{N}_2) = \alpha \cdot \frac{\Phi}{A} \quad (2.1)$$

gibt die Geschwindigkeit des Radon mit dem Gasfluß  $\Phi$  und der Kühlfallenquerschnittsfläche  $A$ . Die Kühlfalle muß also so dimensioniert werden, daß in einer bestimmten Zeit  $t = l/v$  Gas durch die Falle strömen kann, ohne das am Meßbeginn extrahiertes Radon durch den Gasstrom zum anderen Ende der Falle wieder hinaus geblasen wird.  $l$  ist die Länge der Kühlfalle; die Meßzeit  $t$  ist gegeben durch die zu messende Kontamination und den Untergrund der benutzten Meßapparaturen. Beispiel: alle an einer Extraktionsprozedur beteiligten Geräte tragen einen Untergrund<sup>4</sup> von  $50 \mu\text{Bq}$  in die Messung (vergl. hierzu die Ergebnisse in Tabelle 4.2 auf Seite 47). Dann sollte die absolut zu messende Aktivität mindestens doppelt so groß sein, also ca.  $100 \mu\text{Bq}$ . Bei einer gewünschten Rn-Reinheit des gasförmigen Stickstoffs von  $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  bedeutet das, mindestens  $100 \text{m}^3$  zu untersuchen, was bei einem durchschnittlichen Fluß von  $\Phi \approx 20 \text{m}^3/\text{h}$  in  $t \approx 5 \text{h}$  möglich ist. Zusammen mit Gleichung 2.1 folgt dann:

$$l = \frac{\alpha \cdot \Phi \cdot t}{A} = \frac{2,4 \cdot 10^{-7} \cdot 20 \text{m}^3/\text{h} \cdot 5 \text{h}}{5 \cdot 10^{-3} \text{m}^2} = 4,8 \text{mm} \quad (2.2)$$

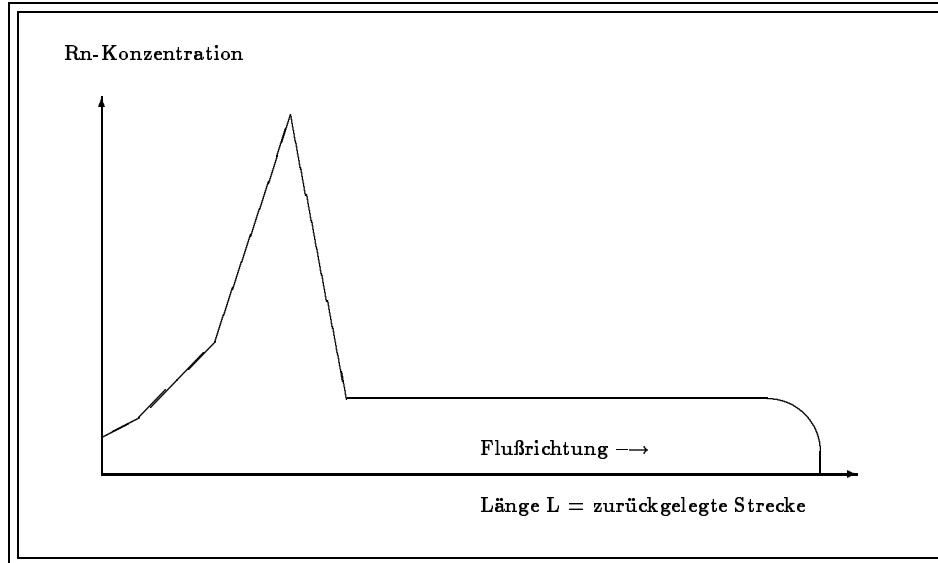
Diese Abschätzung gilt natürlich nur näherungsweise. Die Temperatur des einströmenden Gases ist deutlich höher als  $-196^\circ\text{C}$ . Auch die Packungsdichte (und damit die tatsächliche Oberfläche in einem bestimmten Volumen) ist sicher nicht überall innerhalb der Falle gleich. Eine Verschlechterung des Adsorptionskoeffizienten um einen Faktor 10 oder 15 ist dadurch nicht ausgeschlossen. Zudem zeigen Messungen, daß sich innerhalb einer Kohlensäule kein scharfes Profil ausbildet [Woj98]). Lage und Breite des Profils sind erwartungsgemäß abhängig von der Temperatur, der Gasgeschwindigkeit und der Spüldauer (siehe Abb. 2.4).

<sup>4</sup>Die unvermeidbar von einer Meßanlage ausgehende Untergrundaktivität (in unserem Fall Radonemanation aufgrund von Radiumkontamination) bezeichnet man als „Blankwert“ oder kurz „Blank“.

Um dieses Phänomen genauer zu untersuchen, wurde eine schmale Aktivkohlefall mit einer bekannten Radonaktivität beladen und anschließend mit gasförmigem Stickstoff nachgespült. Die Aktivität wurde abhängig vom Ort innerhalb der Kohlsäule gemessen, indem die Säule nach einigen Stunden vor einem Germaniumdetektor abgescannt wurde. Die beim  $\beta$ -Zerfall einiger Radon-Töchter ebenfalls freigesetzte  $\gamma$ -Strahlung wurde nachgewiesen (in diesem Fall das 609keV- $\gamma$ -Aktivitätsprofil des  $^{214}\text{Bi}$ -Zerfalls). Dabei konnte gezeigt werden, daß die Länge der Kohlsäule mindestens viermal größer dimensioniert werden muß, als im einfachen Ansatz angenommen (W. Rau 1998, sowie[Woj98]).

Die in dieser Arbeit benutzten Aktivkohlekühlfallen haben eine Länge von  $l = 250\text{mm}$  und einen Querschnitt von  $A \approx 50\text{cm}^2$  (siehe auch Tabelle A.2 im Anhang). Sie ist damit etwa um den Faktor 50 länger, als nach Gl. 2.2 nötig erscheint.

Abbildung 2.4: Schematische Darstellung eines Konzentrationsprofils von Radon in Aktivkohle: Belädt man eine gekühlte Aktivkohle mit einer Standardaktivität und bläst anschließend über längere Zeit Gas hinterher, wandert das Radon durch die Kohle. Dabei verschmiert der ursprüngliche „Rn-Peak“ deutlich nach vorne. Dies ist bei der Bestimmung der Standzeit eines Adsorbers zu berücksichtigen (siehe auch [Woj98]).



**Die Kohle und ihre Oberfläche:** Die im Rahmen dieser Arbeit benutzten Kohlefallen (siehe Seite 35) enthielten synthetische Aktivkohle von der Firma *Carbo-Act International*. Verwandt wurde ein Gemisch von  $F3$ -Kohle (Korngröße:  $0,85 - 1,18\text{mm}$ , Oberfläche:  $800 - 1000\text{m}^2/\text{g}$ ) und  $F4$ -Kohle (Korngröße:  $1,18 - 2,8\text{mm}$ , Oberfläche:  $800\text{m}^2/\text{g}$ ) im Mengenverhältnis 1:2, so daß man im Durchschnitt von einer relativen Oberfläche von ca.  $O_{rel} = 900\text{m}^2/\text{g}$  ausgehen darf. Die intrinsische  $^{226}\text{Ra}$ -Kontamination der Kohle liegt bei weniger als  $0,01\text{Bq}/\text{Kg}$  Kohle (Heusser (1993) in [Lau96], Seite 59). Die beiden Aktivkohlefallen haben ein mittleres Innenvolumen von  $1257\text{cm}^3$  und sind gefüllt mit etwa jeweils  $156,4\text{g}$  Aktivkohle. Die durchschnittliche Füllichte ist also  $\rho_{Füll} \approx 0,125\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ . Daraus folgt eine relative Oberfläche von  $O_{rel} \approx 112,5\frac{\text{m}^2}{\text{cm}^3}$  und die Gesamtoberfläche von  $O_{ges} \approx 140.000\text{m}^2$ .

## Kapitel 3

# Experimenteller Aufbau und Meßvorgang

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der Radonkontamination in Stickstoff. Messungen im Rahmen des Borexino-Pilotprojektes CTF haben ergeben, daß der industriell hergestellte und handelsüblich gelieferte Stickstoff („*Standard Purity Liquid Nitrogen*“ oder kurz: SPLN) eine zu hohe Eigenkontamination aufweist, um als Reinigungsmittel dienen zu können. Eine Nachbehandlung ist in jedem Fall notwendig.

### 3.1 Reinigung des flüssigen Stickstoffs

Die Reinigung des Stickstoffs geschieht üblicherweise dadurch, daß der Stickstoff in gasförmigem Zustand über eine gekühlte Oberfläche (z.B. Aktivkohle) geleitet wird, damit Verunreinigungen (z.B. Radon) an der Oberfläche ausfrieren (adsorbieren). Im Umfeld von Borexino werden allerdings große Gasmengen benötigt, so daß sehr große Oberflächen und große Mengen an Kühlmittel (typischerweise flüssiger Stickstoff) nötig sind. Darum wurde zusammen mit der Firma *Messer Griesheim AG* eine Konstruktion angefertigt, die aus einer 11l-Aktivkohlefall, einem großen Dewargefäß und einer Heizung besteht (diese Konstruktion wird innerhalb der Stickstoffversorgungsanlagen von Borexino als „*Low Temperature Adsorber*“ oder LTA bezeichnet). Durch sie wird der Stickstoff *vor* dem Verdampfen, also in flüssigem Zustand, hindurchgeleitet und die im Stickstoff existierende Radon-Kontamination adsorbiert.

Die Stickstoffinstallationen, wie sie probeweise in Heidelberg aufgebaut wurden, lassen sich der Abb. 3.1 entnehmen. Der flüssige Stickstoff (SPLN) wird dabei in dreierlei Form genutzt. Er kann als Kühlmittel in den LTA eingefüllt werden, dient gleichzeitig als zu reinigendes Rohprodukt und kann über den Bypass als Standard-Produkt in den Verdampfer geleitet werden. Der gereinigte Stickstoff (HPLN: *High Purity Liquid Nitrogen*) kann entweder flüssig verwandt oder ebenfalls durch den Verdampfer geleitet werden. Erste Messungen zeigten erfolgreich, daß eine Reduktion der Radon-Aktivität unter  $10\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  möglich ist.

Die Stickstoffversorgungsanlagen im LNGS bestehen aus drei  $6m^3$ -Flüssigstickstofflagertanks, dem LTA, zwei atmosphärische Verdampfern, einem Heizverdampfer und einem Gasheizer.

In den atmosphärischen Verdampfern wird der Stickstoff an der großen Oberfläche angewärmt und dabei gasförmig. Im Heizverdampfer wird der flüssige Stickstoff durch elektrisch geheizte Edelstahlrohre geleitet und verdampft. Die Oberfläche, mit der das Gas in Berührung kommt, ist hier wesentlich kleiner als bei den atmosphärischen Verdampfern. Darum ist mit einem niedrigeren Blank zu rechnen. Durch das elektrische Heizen kann auch die Temperatur des Gases besser kontrolliert werden (es darf nicht zu kalt sein, wenn es zum Reinigen des Szintillators eingesetzt wird).

Der vorläufige Aufbau der Stickstoffinstallationen im LNGS wird aus Abb. 3.2 ersichtlich, Abb. 3.3 zeigt dann die endgültige Konstellation der Stickstoffversorgungsanlagen vor der Halle C. Auch hier läßt sich der Stickstoff in verschiedenen Reinheitsstufen flüssig und gasförmig entnehmen (auf die verschiedenen Möglichkeiten wird in Kap. 5 näher eingegangen).

Abbildung 3.1: Skizze der Stickstoffinstallation mit dem Flüssigstickstofftank, dem Low Temperatur Adsorber (LTA; im punktierten Kasten) zum Ausfiltern von Radon und anderen Verunreinigungen aus dem flüssigen Stickstoff, einem atmosphärischen Verdampfer und der Kupferleitung zur MoREx (s. Abschnitt 3.3.1). Alle Geräte wurden vorläufig zu Testmessungen am Heidelberger MPI aufgebaut. Die Stickstoffqualität wird abgekürzt mit SPLN (*Standard Purity Liquid Nitrogen*), HPLN (*High Purity Liquid Nitrogen*), SPGN (*Standard Purity Nitrogen*) und HPGN (*High Purity Gaseous Nitrogen*).

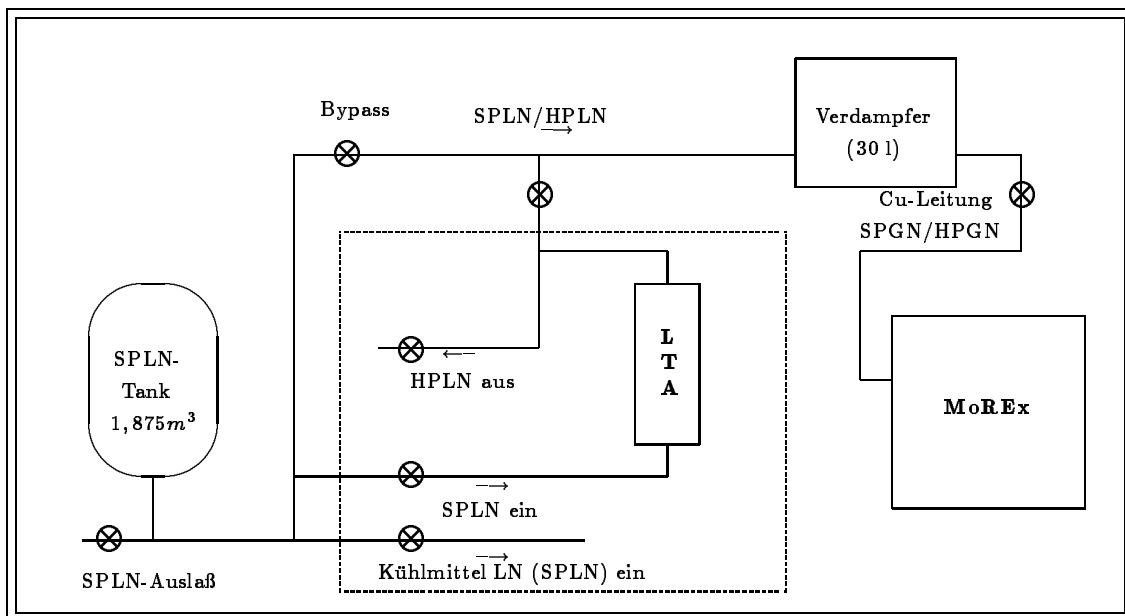


Abbildung 3.2: Skizze der vorläufig errichteten Stickstoffversorgungsanlagen für den Borexino-Detektor, wie sie für den Meßbetrieb zur Verfügung standen. Die Installationen beinhalten drei  $6m^3$ -Flüssigstickstofflagertanks (T1-T3), den LTA, zwei atmosphärische Verdampfer (V1 u. V2), einen Heizverdampfer (H1), einen Gasheizer (H2) und eine Verbindung zur MoREx. In den atmosphärischen Verdampfern wird der Stickstoff an der großen Oberfläche angewärmt und wird dabei gasförmig. Der Heizverdampfer hat eine wesentlich geringere Oberfläche als die atmosphärischen Verdampfer und erzeugt deshalb einen vergleichbar geringeren Blank. Das Gas wird elektrisch geheizt. Dadurch ist auch die Temperatur des ausströmenden Gases kontrollierbar.

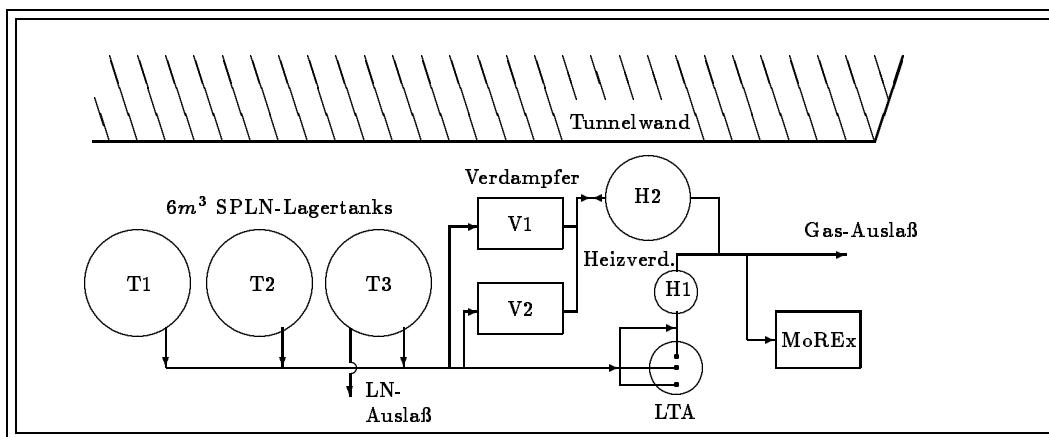
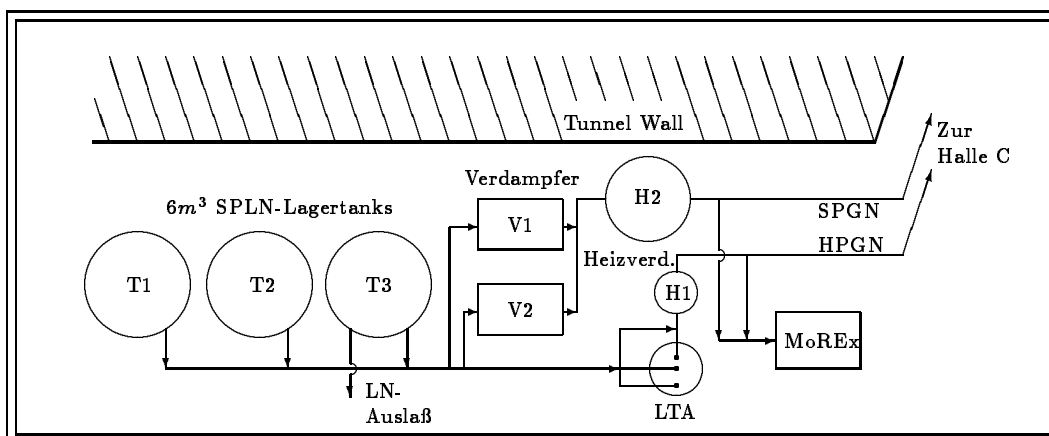


Abbildung 3.3: Skizze der vollständigen Stickstoffversorgungsanlagen für den Borexino-Detektor, wie sie für die nächste Zukunft geplant sind. Sie beinhalten ebenfalls die drei  $6m^3$  - Flüssigstickstofflagertanks (T1-T3), den LTA, zwei atmosphärischen Verdampfer (V1 u. V2), einen Heizverdampfer (H1), einen Gasheizer (H2), die Verbindung zur MoREx sowie separate Leitungen für SPGN und HPGN zur Halle C.



## 3.2 Der Nachweis

Bevor im Detail auf die Nachweisgeräte und die Prozedur eingegangen wird, sollen einige grundsätzliche Bemerkungen verdeutlichen, mit welchen Schwierigkeiten der experimentelle quantitative Nachweis von Radon in Stickstoff behaftet ist.

Sämtliche verwendeten Materialien dürfen nur äußerst gering mit Radon oder mit Radium kontaminiert sein oder müssen so geartet sein, daß man durch gezielte Prozesse die von ihnen ausgehende Kontamination zumindest vorübergehend auf ein vertretbares Maß reduzieren kann.

Da man einerseits mit großen Mengen (einige  $10m^3$ ) gasförmigen Stickstoffs arbeitet, andererseits aber aus diesen Mengen einige wenige (maximal einige tausend) Atome nachweisen will, muß die Anlage Überdruck (z.B.  $p = 2bar$ ) vertragen und gleichzeitig für Hochvakuumbedingungen (bis  $p \leq 10^{-5}mbar$ ) tauglich sein.

Damit auch bei großen Gasmengen alle Radonotope in den Fallen gebunden werden (und möglichst wenige durch nachströmendes Gas wieder mitgerissen werden), sollte die Gasgeschwindigkeit möglichst niedrig sein. Deshalb darf der Innendurchmesser nicht zu klein sein. Ein größerer Innendurchmesser bedeutet aber auch eine größere Oberfläche, die bei Berührung mit Gas auf verschiedenste Art kontaminiert werden kann und somit das Vakuum verschlechtert. Der Meßprozeß kann dadurch möglicherweise vollständig behindert oder durch Anbindung von Radon an Oberflächen das Meßergebnis deutlich verfälscht werden.

Ebenfalls muß ein Kompromiß gefunden werden zwischen einer guten Reproduzierbarkeit der Bedingungen in der Anlage und den Vakuumeigenschaften. In einem verwinkelten System mit langen Röhren können die Meßgeräte (insbesondere unter dynamischen Bedingungen) sicher nur den lokalen Druck wiedergeben (und somit nur einen Richtwert darstellen). Zusätzliche Flansche und Manometer stellen jedoch eine potentielle Leckstelle dar und bieten zusätzliche Oberflächen. Sie werden deshalb auf ein Minimum reduziert.

Frühere Untersuchungen in der Gruppe (durch G. Heusser, M. Laubenstein, M. Wojcik et al.) haben ergeben, daß synthetische Aktivkohle das geeignete Mittel zum zeitweiligen Binden des Radons ist. Bei Temperaturen um  $-196^\circ C$  bewegen sich Radon in der Kohle ca.  $10^6 - 10^7$  mal langsamer als Stickstoff ([Heu97, Woj98]; siehe auch Seite 21). Diese Kohle enthält aber als Spurenelement Radium, daß für eine natürlicher und regelmäßige Radon-Emanation sorgt, die sich nach einigen  $^{222}Rn$ -Halbwertszeiten im Gleichgewicht befindet. Um die Kohlen von diesem Radon zu befreien, werden sie bei Temperaturen von ca.  $200^\circ C$  bis  $220^\circ C$  ausgeheizt, mit Helium gespült und danach evakuiert. Zum Sammeln des Radon wird sie mit flüssigem Stickstoff („Liquid Nitrogen“ oder kurz: LN) gekühlt (also  $-196^\circ C$ ). Ist das Radon gesammelt, wird es durch Heizen der Kohlefallen wieder freigesetzt (ca.  $200^\circ C$ ). Sämtliche Materialien müssen also Temperaturdifferenzen von ca.  $400K$  in kurzer Zeit verkraften können und dabei ihre Vakuumeigenschaften nicht verlieren. Materialermüdung darf nicht auftreten.

Um diesen Bedingungen gerecht zu werden, wurde die **Mobile Radon-Extraktionsanlage „MoREx“** angefertigt, die nach ihrer Konstruktion in Heidelberg umfangreichen Tests unterzogen wurde (siehe Kapitel 4). Ihre Funktionsfähigkeit wurde nachgewiesen und die erreichbaren Meßgrenzen bestimmt. Die Extraktion und Konzentration geringster Radonkontaminationen aus gasförmigem Stickstoff ist jetzt möglich, bleibt aber relativ umfangreich und findet an mehreren unterschiedlichen Anlagen statt.

1. Der erste Schritt ist das Sammeln und Konzentrieren des Radons in der MoREx. Der kontaminierte Stickstoff wird durch eine gekühlte Kohlefalle geleitet und dort das Radon ausgefroren. Anschließend wird das überschüssige Gas abgepumpt, das restliche Gas mit Hilfe eines Getters gereinigt und danach mittels Helium in eine kleinere und *ausbaubare* Kohlefalle überführt.
2. Der zweite Schritt vollzieht sich an der Zählrohrfüllapparatur, die nahezu baugleich im Chemielabor des Heidelberger MPI für Kernphysik und im LNGS zu finden ist<sup>1</sup>. Die transportable Kohlefalle der MoREx wird angeschlossen und das Radon weiter konzentriert und gereinigt. Schließlich wird mit der Gasprobe eines der Low-Level-Proportionalzählrohre gefüllt. Bei den Testmessungen in Heidelberg standen dazu von GALLEX übernommene Low-Level-Proportionalzählrohre vom Typ HD-II zur Verfügung [Rau95]. Im LNGS wurden Zählrohre benutzt, wie sie beim <sup>37</sup>Cl-Experiment und später für Vorversuche zu GALLEX benutzt wurden [Kum72, Win93].
3. Das Zählrohr mit der Gasprobe wird im Low-Level-Labor in die dafür vorgesehene Meßelektronik angeschlossen.

Im Anschluß wird der typische Verlauf des Extraktions- und Meßprozesses dargestellt. Dabei wird auf einzelne Komponenten der MoREx Bezug genommen, die im Abschnitt 3.3.1 noch etwas detaillierter beschrieben werden.

### 3.2.1 Allgemeine Vorgehensweise

**Vorbereitung:** Aufgrund der natürlichen Radium-Kontamination der Aktivkohle ist prinzipiell mit einer konstanten Radon-Emanation zu rechnen, die vor Meßbeginn entfernt werden muß. Der Reinigungsprozeß erfolgt durch Evakuieren, Ausheizen (ca. 200 – 220°C) und Helium-Spülen (1l/min, ca. 1h durch die geheizten Fallen); ebenfalls wird die Kohlefalle am Helium-Einlaß geheizt und bepumpt. Dabei wird die Heliumfalle zuerst durch Heliumspülen gereinigt und dann gekühlt, um in ihr neu entstehendes Radon und das aus der Heliumflasche stammende Radon zu binden. Nach dem He-Spülen wird die Anlage evakuiert. Die Fallen sollten noch im geheizten Zustand geschlossen werden, da sie beim Abkühlen bereits wieder stark bindend wirken und sich dadurch die Sauberkeit der Kohlen erkennbar wieder verschlechtert. Der Teflon-Partikelfilter sollte regelmäßig ausgeheizt werden, auch wenn von ihm selbst nur geringe Emanation ausgeht. Allerdings vergrößert der dort festgesetzte Staub die Oberfläche.

---

<sup>1</sup>Die Apparatur wurde während der Bauphase des Borexino-Outer-Tanks in das GNO-Main-Building gebracht, soll aber später im Radon-Labor im Borexino-Big-Building in der Halle C des LNGS stehen.

Der Druck in der Anlage ist (wie oben schon erläutert) nicht einfach abzuschätzen. Zwar ist das Volumen ohne die Fallen nicht sehr groß (einige Liter), dafür sind die Wege zwischen den Druckanzeigern und den äußersten Bereichen der Anlage relativ lang und verwinkelt, so daß sich ein schwer nachvollziehbarer Gradient ausbildet. Die Druckmessung ergibt nur den lokalen Wert (und ist zudem gerätespezifisch mit einem Anzeigefehler von 15–30 % belegt).

Unter sehr guten Konditionen (alles ist sauber und auch die Turbopumpe ist ausgeheizt) erreicht man in der MoREx auch mit warmen Fallen einen Druck von  $p = 3 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ , unter normalen Umständen sind  $p = 5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$  gut und  $p = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$  vollkommen ausreichend. Läßt sich der Druck nicht unter einige  $10^{-4} \text{ mbar}$  reduzieren, ist irgendwo ein Leck aufgetreten. Schwankt der Druck sehr stark, hat man entweder ein Leck oder eine Gasquelle (z.B. wurde Gas auf einer Oberfläche gebunden und evaporiert nun langsam).

**Die Extraktion:** Die evakuierten Kühlfallen werden ca.  $30 \text{ min}$  vor einer Extraktion mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Die Temperatur sollte zwischen  $-140^\circ\text{C}$  und  $-180^\circ\text{C}$  im inneren Bereich liegen, so daß Radon zwar an die Kohle gebunden wird, der Stickstoff hingegen weiterhin gasförmig bleibt. Um das vollständige Abkühlen der Falle abzukürzen, kann man etwas Helium einleiten (damit der Temperatureausgleich nicht mehr nur durch Wärmestrahlung, sondern auch durch Wärmeleitung erfolgen kann). Es hat sich gezeigt, daß dies zwar manchmal ganz praktisch ist, aber nicht zwingend notwendig, da die Falle sehr schnell abkühlt, sobald man Stickstoff in sie einläßt.

Ist die Falle auf die gewünschten Temperatur abgekühlt, beginnt man mit dem Stickstoffblasen. Nach kurzer Zeit stellen sich in der Falle relativ stabile Bedingungen ein ( $\Phi \approx 20 \text{ m}^3/\text{h}$ ,  $p_{\text{Falle}} \approx 2 \text{ bar}$  und  $-180^\circ\text{C} \leq T \leq -120^\circ\text{C}$ ), wobei die Temperatur sehr sensibel auf Veränderungen des Druckes oder des Flusses reagiert.

**Helium-Spülen:** Unterbricht man den Stickstofffluß, kondensiert der in der Falle befindliche Stickstoff nahezu sofort. Um zu vermeiden, daß zuviel Stickstoff in der Falle hängen bleibt, wird unmittelbar (wenige Sekunden) nach dem Schließen der Stickstoffleitung die Falle weiter mit Helium gespült und gleichzeitig von hinten mit der Vorpumpe bepumpt. Es hat sich gezeigt, daß dabei schon das zehnfache Fallenvolumen an Spülgas ( $12 - 13 \text{ l}$  mit  $1 \text{ l}/\text{min}$ ) ausreichend ist, große Mengen des gebundenen Stickstoffs abzulösen.

**Kühlen mit Alkohol:** Natürlich ist auch nach dem Helium-Spülen noch nicht der gesamte Stickstoff aus der Falle entwichen. Darum wird der Kühlstickstoff weggenommen und die Falle mit Alkohol weitergekühlt (genauer gesagt: angewärmt), bis sie eine Temperatur von etwa  $-100^\circ\text{C}$  bis  $-110^\circ\text{C}$  hat. Die Falle wird weiterhin bepumpt und noch einmal mit ihrem zehnfachen Volumen mit Helium durchspült. Anschließend ist der Stickstoff soweit aus der Falle abgepumpt, daß mit der Turbopumpe ein Druck von wenigen  $10^{-2} \text{ mbar}$  erreicht werden kann.

**Transfer in die Transportfalle:** Hat die Falle mit dem gesammelten Radon einen hinreichend geringen Druck erreicht (was bedeutet, daß sie die größte Menge des gebundenen Stickstoffs wieder abgegeben hat), wird sie verschlossen und das Dewargefäß mit dem Alkohol abgenommen. Nachdem der Alkohol abgewischt wurde bzw. verdunstet ist, wird die Falle auf ca.  $160^{\circ}\text{C}$  geheizt (die Temperatur sollte niedriger sein als beim Ausheizen, weil sonst die Gefahr besteht, Radon freizusetzen, das beim Ausheizen nicht gelöst werden konnte).

Zeitgleich wird die Transportfalle ausgeheizt, mit Helium gespült und evakuiert, so daß auch sie nahezu vollständig von Radon frei ist. Sie wird anschließend in flüssigem Stickstoff gekühlt. Jetzt wird die Sammelfalle geöffnet und etwa das Zehnfache ihres Volumens an Helium durch beide Fallen hindurchgeblasen, um das Radon zu transferieren. Danach wird das Helium abgepumpt, alle Ventile geschlossen und die Transportfalle abmontiert.

**Gettern:** In die MoREx ist ein Getter eingebaut, der die Reinigung des Gases erleichtern bzw. beschleunigen soll. Tatsächlich hat sich aber gezeigt, daß dies nicht unbedingt nötig ist, zumal an der Zählrohrfüllapparatur noch ein Getter ist, der den selben Effekt mit wesentlich kleineren Gasmengen herbeiführen soll<sup>2</sup>. Wird der Getter eingesetzt, so befindet sich das Gas-Extrakt mit dem Radon nicht mehr in den Aktivkohlefallen. Es wird in die Transportfalle *gepumpt*, und die gesamte MoREx anschließend mehrfach mit einer Atmosphäre Helium gefüllt und ebenfalls durch die Transportfalle abgepumpt.

### 3.2.2 Erste Erfahrungen und technische Probleme

Die MoREx ist in Art und Aufbau bisher einmalig und so gab es anfangs verschiedene Fragen bezüglich der Funktionsfähigkeit und des Prozeßverlaufes. Die Antworten darauf konnten nur durch Ausprobieren herausgefunden werden. Ist es z.B. möglich, die Fallen ausreichend kalt zu halten, wenn man Stickstoff mit einem Gasfluß von  $10\text{m}^3/\text{h}$  oder mehr durchbläst, wobei der Stickstoff etwa Umgebungstemperatur besitzt? Kann oder muß man das ausströmende Gas dazu nutzen, um das einströmende Gas schon am Eingang in die MoREx vorzukühlen? Welche unerwarteten Eigenarten würde der Extraktionsprozeß offenbaren?

**Gastemperatur:** Die Antwort hierauf war recht schnell gefunden. Ein Vorkühlen des einströmenden Gases würde den Verbrauch an flüssigem Stickstoff sicher reduzieren. Zudem zeigte sich, daß das ausströmende Gas mit  $\approx -100^{\circ}\text{C}$  relativ kalt war und die Temperaturkorrektur des Gasflußmessers nicht mehr richtig arbeitete. Allerdings würde ein „Wärmetauscher“ im Hochvakuumbereich die Oberfläche signifikant vergrößern. Natürlich würde dann auch das einströmende kalte Gas die gesamte Anlage stark abkühlen und so möglicherweise dafür sorgen, daß sich das Radon nicht erst in der Kohle, sondern schon an der Oberfläche der Rohre absetzt. Darum fiel die Entscheidung zugunsten einer Heizung, die das ausströmende Gas auf Temperaturen über  $-40^{\circ}\text{C}$  aufwärmte.

---

<sup>2</sup>Anfangs war aus technischen Gründen der Einsatz des Getters der MoREx nicht möglich, so daß zwangsweise mit dem kleinen Getter an der Zählrohrfüllanlage gearbeitet werden mußte. Da sich die Prozedur als praktikabel erwies, wurde vorerst nur so vorgegangen.

Die Temperatur in den Fallen hängt weniger vom Gasstrom ab als vielmehr vom lokal herrschenden Druck, auf den sie sogar sehr sensibel reagiert. Es ist ohne Probleme möglich, durch geschicktes Drosseln der Ventile am Eingang und Ausgang der Falle einen Druck von etwa 1,4 – 2,1 *bar* in der Falle einzustellen (abhängig von der Größe der Falle und dem Gasfluß), mit dem Temperaturen unter  $-190^{\circ}\text{C}$  erreicht werden. Im Normalbetrieb wird die Anlage so betrieben, daß sich in den Fallen Temperaturen von ca.  $-140^{\circ}\text{C}$  bis  $-180^{\circ}\text{C}$  einstellen.

**Verunreinigung der Fallen:** Dieses Problem tauchte auf und zeigte sich in einer Stärke, die vorher nicht erwartet wurden. Nach dem Stickstoffblasen durch die Anlage war die Oberfläche der Aktivkohlen offensichtlich stark mit Stickstoff und in einzelnen Messungen auch mit  $\text{CO}_2$  beladen (vergl. Tab. 2.4, Seite 20). Der Druck in der Anlage sank auch nach stundenlangem Pumpen nicht unter einige Millibar. Vor allem die Tatsache, daß die Fallen nach dem Ende des Stickstoffflusses sehr schnell auf Temperaturen von unter  $-196^{\circ}\text{C}$  sanken, zeigte deutlich, daß der noch in ihnen befindliche Stickstoff an der Kohlenoberfläche kondensierte. Um dieses überschüssige Gas zu entfernen, wurde die Lösung entwickelt, gleich nach dem Stickstoffblasen mit etwa  $0,4\text{m}^3$  Helium nachzuspülen (ca. 80 *min*, 5 *l/min*) und gleichzeitig mit der Vorpumpe den Druck zu reduzieren. Dadurch konnte die Anlage immerhin in den Bereich von 2 *mbar* evakuiert werden.

Der danach folgende Einsatz der Turbopumpe reduzierte den Druck aber auch nur noch um weniger als eine Größenordnung, wobei die Kühlfallen immer noch in flüssigen Stickstoff standen<sup>3</sup>. Wurden die Fallen erwärmt, stieg der Druck schnell und stark an, z.T. einige *bar*. In der Falle ist ein Manometer, dessen Meßgrenze bei 7 *bar* liegt, steigt der Druck höher, wird das Manometer beschädigt; um Lecks zu vermeiden, sollte die Falle dann geöffnet und das Gas abgelassen werden.

Die Aktivkohle bindet also zuviel Stickstoff, der bei Erwärmung wieder frei wird und sehr hohen Druck produziert, so daß erstens der Getter nicht mehr eingesetzt werden kann und zweitens beim Abpumpen das gebundene Radon mitgerissen werden könnte. Zudem wird die Evakuierungsprozedur unvertretbar in die Länge gezogen.

Der zweite Versuch, dieses Problem zu lösen, war erfolgreicher. Indem das Dewargefäß mit flüssigem Stickstoff entfernt und durch ein Dewargefäß mit kaltem Alkohol ersetzt wurde, erwärmte man die Fallen auf Temperaturen zwischen  $-110$  und  $-100^{\circ}\text{C}$ . Erneutes Helium-Spülen (ca. 12 *min*, 1 *l/min*) half dann, um das überschüssige Gas ( $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$  etc.) zu entfernen, ohne das Radon mitzureißen. Allerdings versagt diese Methode, wenn große Mengen  $\text{CO}_2$  auftreten (wie man Tab. 2.4 entnehmen kann, haben  $\text{CO}_2$  und Rn sehr ähnliche thermodynamische Eigenschaften).

Ein Test ergab, daß es möglich ist, auch ohne Einsatz des Getters die weiteren Konzentrationsschritte an der Zählrohrfüllanlage durchzuführen und realistische Meßergebnisse zu erzielen.

---

<sup>3</sup>Dieses Verfahren war auch deshalb nicht empfehlenswert, weil die Turbopumpe ständig an der oberen Grenze ihrer Leistungsfähigkeit arbeitete und gelegentlich ausfiel. Damit konnte Luft (und so auch Radon) trotz der Vorpumpe von hinten in die Apparatur eindringen und das Messergebnis verfälschen.

**Konstruktive Veränderungen:** Die MoREx hat sich als funktionsfähig erwiesen und wird erfolgreich eingesetzt. Allerdings handelt es sich dabei um einen Prototyp, der zwar befriedigende physikalische Ergebnisse liefert, der aber auch noch (vor allem technisch) weiter verbessert werden konnte.

Vor allem das vorsichtige Auftauen der Falle in gekühltem Alkohol führte dazu, daß über einige Wochen nur noch mit einer Falle („Falle II“) gearbeitet wurde. Der Einsatz der sog. „Kesselfalle“ war nicht mehr möglich, da Dewar und Heizung fest um die Falle herum montiert waren. Der Kühlstickstoff wurde durch eine fest montierte Leitung in das Dewargefäß gefüllt und konnte am Ende durch ein Ventil unter dem Kessel wieder ausgelassen werden (wobei der größte Teil des flüssigen Stickstoffs verdampfte und verloren ging). Es stand also nur eine Falle zur Verfügung. Da eine Falle nach einer Extraktion allerdings mindestens einen Tag ausgeheizt werden sollte, war dieser Zustand unbefriedigend.

Nach etwa 8 Monaten Erfahrung im Umgang mit der Anlage wurde dies zum Anlaß genommen, einige Veränderungen und Nachbesserungen vorzunehmen. Im Vorvakuumbereich wurden einige Ventile hinzugefügt und der Partikelfilter mit Flanschen versehen. Die gesamte Helium-Zuleitung sowie einige Steuer- und Anzeigeräte wurden auf eine Seite verlegt, so daß die Kontrolle und Bedienung der Anlage vereinfacht wurde. Im Zuge dieser Umbaumaßnahmen wurde ferner der Kessel mit der vorderen Falle („Kesselfalle“) ausgebaut und durch eine andere (der Falle II baugleiche) Falle ersetzt.

Für die Zukunft anzustreben sind jedenfalls kürzere Wege sowie eine weitere Reduktion des Gesamtvolumens und folglich auch der inneren Oberfläche, um die Kontaminationsgefahr weiter zu reduzieren. Umfassende Planungen im Vorfeld einer Weiterentwicklung, basierend auf den Erfahrungen aus dem Meßbetrieb mit der MoREx, können zudem ergonomische Verbesserungen hervorbringen. Verbunden damit ist es sicher noch möglich, das gesamte Gerät zu verkleinern und leichter zu machen, was auch den Einsatz in weniger zugänglichen Bereichen ermöglichen könnte. Ein weiteres (rein technisches, aber deshalb nicht minder wichtiges) Problem bei dem sukzessiven Zusammenbau sind die unterschiedlichen Normen der verschiedenen Flansche, Schrauben, Rohre und des gesamten Materials. Da vor allem an Flanschen, Dichtungen und Ventilen die Leckgefahr am größten ist, sollte bei einer Weiterentwicklung darauf geachtet werden, daß das verwandte Material (mehr oder minder) überall und auch noch in den nächsten Jahren in ausreichender Menge verfügbar ist.

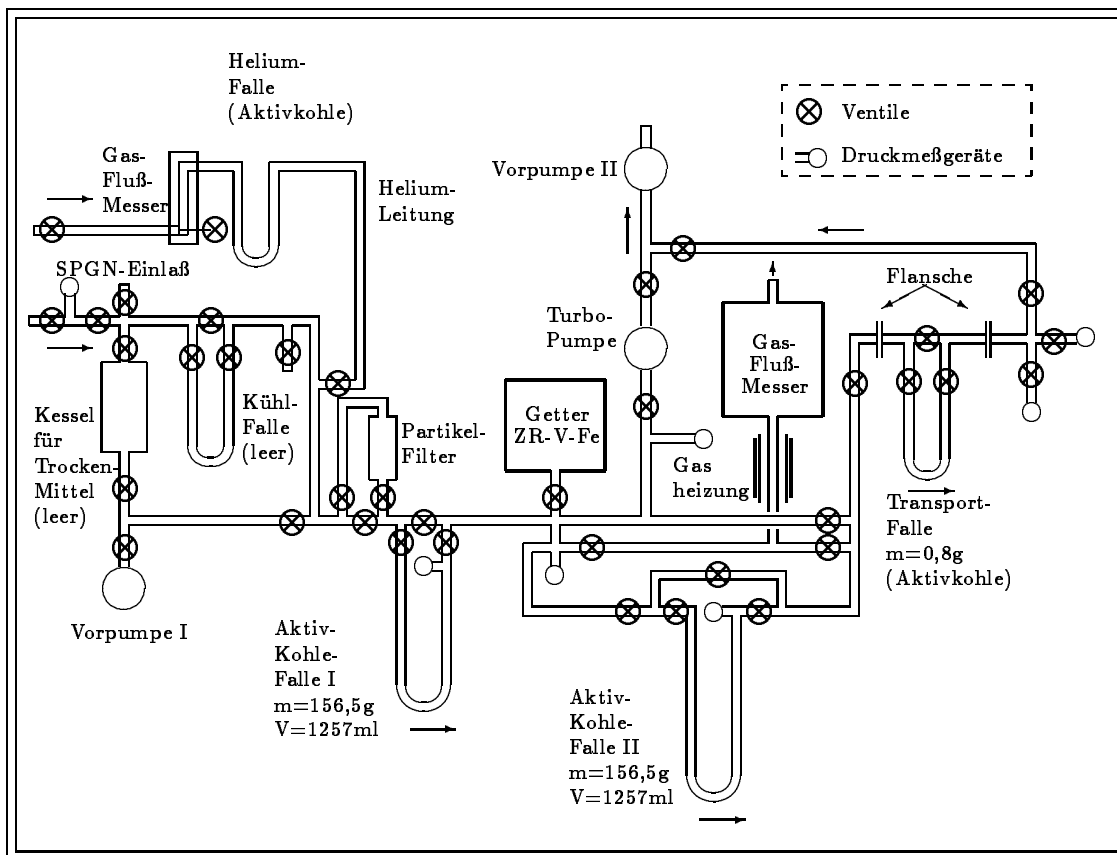
## 3.3 Die Nachweisgeräte

### 3.3.1 Die Mobile Radon-Extraktions-Anlage MoREx

Die MoREx, an der die soeben beschriebene Prozedur durchgeführt wurde, wurde zur Konstruktion und zu Testmessungen in der Beschleunigerhalle des Heidelberger MPI für Kernphysik aufgebaut. Sie dient dazu, aus großen Mengen gasförmigem Stickstoffs vorhandenes Radon in den Aktivkohlefallen auszufrieren und für weitere Schritte zu binden.

Sie erfüllt die zu Beginn des Kap. 3.2 aufgelisteten Kriterien: niedrige Eigenkontamination, Überdrucktauglichkeit und hinreichend gute Vakuumeigenschaften, wenig empfindlich gegenüber großen Temperaturschwankungen, leicht zu reinigen, chemisch stabil, gut zu handhaben und nicht toxisch.

Abbildung 3.4: Das Vakuumsystem der „Mobilen Radon-Extraktionsanlage“ *MoREx*: alle Gasleitungen mit Kühlfallen, Getter, Gasflußmesser und allen Ventilen.



Der Aufbau ist in Abbildung 3.4 dargestellt und wird nachfolgend im Detail erläutert. Die aufgeführten technischen Daten sind in Tabelle A.1 im Anhang zusammengefaßt<sup>4</sup>.

**Vakuum-System:** Das Röhrensystem besteht vollständig aus elektropoliertem Edelstahl. Die Rohre haben unterschiedliche Innendurchmesser von ca. 0,5 cm – 2 cm. Damit ist gewährleistet, daß ausreichend große Mengen Stickstoff durch die Anlage fließen können, der Stickstoffdurchfluß dabei nicht zu schnell wird und gleichzeitig das Innenvolumen (und somit vor allem die kontaminationsgefährdete Oberfläche) nicht zu groß wird<sup>5</sup>.

<sup>4</sup>Der technische Aufbau und der Meßvorgang sind detailliert in „MoREx Documentation and User Manual“ dargestellt, daß ebenfalls vom Verfasser im Zuge dieser Arbeit angefertigt wurde [Fre98].

<sup>5</sup>Bei relativ niedriger Eigenkontamination des Stickstoff muß eine ausreichend große Menge durch die Anlage geleitet werden, um ein Meßergebnis zu erhalten, das deutlich über dem Untergrund liegt. Ein zu hoher Gasfluß könnte jedoch das in den Fallen gesammelte Radon wieder mitreißen und so das Ergebnis verfälschen. Um die Meßprozedur in vertretbarem Zeitrahmen durchzuführen, wird mit Gasflüssen von ca. 20 m<sup>3</sup>/h gearbeitet.

**Stickstoff-Zuleitung, Feuchtigkeitsfilter, Partikelfilter:** Für den Testbetrieb in Heidelberg mußte etwas improvisiert werden, da einerseits größere Mengen gasförmigen Stickstoffs benötigt wurden, andererseits aber die Anlage nur begrenzte Zeit hier stationiert werden sollte. Also wurde an einem schon vorhandenen Stickstofftank ein zusätzlicher atmosphärischer Verdampfer angeschlossen und von diesem eine Kupferleitung in die Halle gelegt. Die Kupferleitung wurde fest mit der MoREx verbunden.

Der für den Phasenübergang von der flüssigen Phase zur Gasphase nötige Wärmeaustausch findet bei atmosphärischen Verdampfern über die große Oberfläche mit der Umgebung statt. Die Temperatur des ausgehenden Gases läßt sich aber nicht kontrollieren. Weiterhin gilt allgemein, daß der absolute Blankwert einer Komponente hoch ist, wenn die Oberfläche, mit denen das Gas in Berührung kommt, groß ist. Um also den Blank zu reduzieren und die Bedingungen reproduzierbarer zu machen, steht im LNGS ein Heizverdampfer zur Verfügung, bei dem der Stickstoff mit elektrischen Heizelementen verdampft wird.

Entnimmt man Stickstoff aus einem Lagertank, ändert sich der Druck. Nach einem bestimmten Druckabfall wird sich automatisch ein Ventil öffnen und der Druck wird wieder aufgebaut. Dies führt zu Schwankungen im Gasfluß. Um den Stickstofffluß konstant zu halten (und damit die Reproduzierbarkeit der Bedingungen zu erhöhen) wurde an den Eingang ein selbstregelndes Gasflußventil (CT PLATON Typ Flostat FVAS) angebracht, daß die Druck- und Flußschwankungen mindert.

Direkt hinter dem Eingang besteht die Möglichkeit, das Gas durch eine Falle zu leiten, die mit einem Feuchtigkeitsfilter (z.B. Silicagel) gefüllt werden kann<sup>6</sup>. Desweiteren ist im Eingangsbereich ein Partikelfilter (*Milipore Waterguard II (Teflon) F-40 in line*, für Teilchen  $\leq 0,003\mu\text{m}$ ) angebracht.

**Helium-Zuleitung:** In der Anlage wird nicht nur mit Stickstoff gearbeitet. Helium dient zu Reinigungszwecken und als Carrier, also als Transportgas, um das in den Fallen gefangene Radon von der einen in die nächste Falle zu überführen. Dazu wurde parallel zum Stickstoffeinlaß eine weitere Leitung gelegt, durch die Helium vor dem Partikelfilter in die Anlage eingelassen werden kann. Da das hierzu verwandte Helium in einer normalen Gasflasche gelagert wird, ist es natürlich auch mit Radon kontaminiert (vergl. den Abschnitt „Flaschenstickstoff“ in Kap 4.6). Deshalb wurde hier ebenfalls ein kleine Kühlfalle (Aktivkohle) angebracht, um sich davor zu schützen.

**Vorpumpen:** Am Eingang (zwischen Heliumeinleitung und Partikelfilter) ist eine Vorpumpe (*VARIAN Scroll Pump*) angebaut, die nach dem Einsatz großer Gasmengen die Anlage auf einen niedrigen Druck bringt ( $p_{\text{min}} = 10^{-2}\text{mbar}$  am Ort der Pirani-Meßröhre (s.u.) im zentralen Bereich).

Eine weitere Vakuumpumpe (Alcatel Membranpumpe) schafft entweder ein Vorvakuum für die Turbopumpe oder pumpt alternativ am Ausgang, also hinter der Transportfalle. Dort erreicht sie einen Druck von  $p_{\text{min}} \approx 10^{-3}\text{mbar}$ .

---

<sup>6</sup>Verschiedene Gründe haben dazu geführt, auf Trockenmittel zu verzichten. Anfangs war die Radonkontamination der Trockenmittel noch nicht bestimmt, dann stellte sich während der ersten Messungen heraus, daß eine gesonderte Trocknung des Gases regulär nicht nötig war.

**Turbopumpe:** Das Hochvakuum wird durch eine Turbopumpe (*TPU050* der Firma *Pfeiffer*) erreicht, die unter guten Konditionen die Anlage bis unter  $p = 10^{-5} \text{ mbar}$  evakuiert ( $p \approx 4 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$  am Ort der Penning-Meßröhre (s.u.) im zentralen Bereich).

**Gasflußmesser:** Der Stickstoff wird aus dem zentralen Bereich direkt entlassen durch einen Gasflußmesser (*Metallkonus-Durchflußmesser Model D10A5487EA 9609N1478/1* der Firma *Bailey, Fischer & Porter*), so daß am Ende die genaue Menge des untersuchten Stickstoffs bestimmt werden kann. Er ist durch ein Ventil abgetrennt, so daß er nicht den Vakuumbedingungen entsprechen muß. Problematisch ist die Tatsache, daß der Stickstoff, wenn er die Kühlfallen passiert hat, relativ kalt ist ( $T \approx -100^\circ\text{C}$ ). Damit ist nicht unbedingt gewährleistet, daß der Gasflußmesser die Gasmenge korrekt angibt, da die geräteeigene Software nur bis  $-40^\circ\text{C}$  korrigiert. Aus diesem Grund wurde ein Heizgerät nachgerüstet, mit dem das Gas auf vertretbare Temperaturen ( $-10^\circ\text{C}$  bis  $+40^\circ\text{C}$ ) erwärmt und damit für korrekte Anzeigen sorgt.

**Getterpumpe:** In die Anlage eingebunden wurde eine Getterpumpe vom Typ „SAES SORB-AC GP100-MK4-4“ (mit Kartusche „SAES SORB-AC C100-MK2-ST707“ (70% Zirkon, 10% Vanadium und 20% Eisen nach Aktivierung), mit der das in der Falle gebundene Gas zusätzlich gereinigt werden sollte.

**Vakuum-Meßröhren, Manometer:** Im zentralen Bereich nahe der Turbopumpe sind zwei Vakuum-Meßröhren angebracht: eine *Pirani-Vakuum-Meßröhre Thermovac TR 201/205/206* (Meßbereich  $p = 10^{-3} - 10^3 \text{ mbar}$ ) und eine *Penningvac-Meßröhre PR 25/35/36* (Meßbereich  $p = 10^{-10} - 10^{-3} \text{ mbar}$ ), beide zu bedienen und abzulesen über ein Multifunktionsdisplay *Combivac CM 31* (alle Geräte von der Firma *Leybold AG, Köln*).

Am Stickstoffeinlaß sowie in beiden Aktivkohle-Kühlfallen sind mechanische (d.h. öl- und fettfreie) Manometer (Typ 3A001 DIN 16008; Anzeige:  $-1 \text{ bar} \leq p \leq 6 \text{ bar}$ ) zur Kontrolle des lokalen Drucks eingebaut. Das ist vor allem in den Fällen wichtig, da sich bei einer Radonextraktion auch viel Stickstoff auf der Aktivkohle sammelt, der sich beim Aufwärmen stark ausdehnt.

Am Ausgang hinter der Transportfalle sind noch einmal zwei Manometer (Typ „*Baratron*“) für Anzeigen bis 100 Torr bzw. bis 1000 Torr angebracht (*Datametrix Barocel Pressure Sensor Typ 600A-100T-R12-H21x-4* bzw. *Typ 600A-1000T-R12-H21x-4*).

**Aktivkohle-Kühlfallen:** Kernstück der Anlage sind die drei Kühlfallen, gefüllt mit Körnern aus synthetischer Aktivkohle, in denen das Radon gesammelt wird (siehe Abb. 3.5 auf Seite 35). Sie erscheinen in den Protokollen unter der Bezeichnung „*Kesselfalle*“ (kurz: „KF“), „*Aktivkohlefalle I*“ („AK I“), „*Aktivkohlefalle II*“ („AK II“) und „*Transportfalle*“ („TF“). Die Transportfalle kann von der MoREx abgeschraubt und an die Zählrohrfüllanlage angeschlossen werden. Die Volumina der Falle und die Massen der Aktivkohlefüllung sind nachfolgend in Tab 3.1 dargestellt.

Tabelle 3.1: Volumina der Aktivkohlefallen und die Massen der Aktivkohlefüllung (der Fehler bei der Massenbestimmung ist auf gebundene Feuchtigkeit zurückzuführen) [Heu97].

	m [g]	V [cm <sup>3</sup> ]
Falle I	156,4 ± 1,0	1257
Falle II	156,4 ± 1,0	1257
Kesselfalle	60,9 ± 1,0	750
Transportfalle	0,8 ± 0,05	3,387

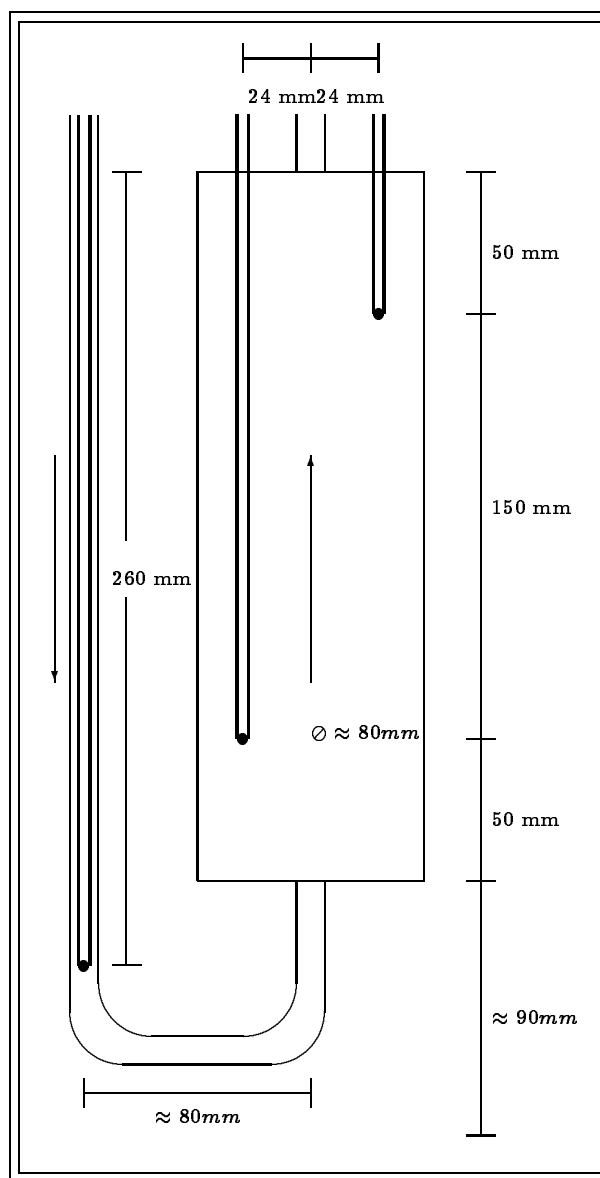


Abbildung 3.5: Skizze einer Aktivkohlekühlfalle der MoREx ( $V = 1257\text{cm}^3$ ), gefüllt mit 156,4g Aktivkohle (Carbo-Act International F3 & F4; F3:  $\varnothing \approx 0,85 - 1,18\text{mm}$ ,  $800 - 1000\text{m}^2/\text{g}$ ; F4:  $\varnothing \approx 1,18 - 2,8\text{mm}$ ,  $800\text{m}^2/\text{g}$ ; im Volumenverhältnis  $V(F3)/V(F4) = 1/2$ ). Die gesamte Oberfläche beträgt ca.  $142.000\text{m}^2$ . Die breiten Linien zeigen die Position der eingebauten pt100-Thermofühler. Die Pfeile zeigen die Gasflußrichtung.

### 3.3.2 Die Zählrohrfüllanlage

Die Zählrohrfüllanlage ist die Weiterentwicklung einer Anlage, die im Rahmen des GALLEX-Experimentes zur Bestimmung des Radiumgehaltes in Gallium-Chlorid-Lösung benutzt wurde [Len87]. Sie dient dem Zweck, ein zu untersuchendes Gasgemisch aus einem Probengefäß (Spülflasche, Kolben, Kühlfalle etc.) zu trocknen, zu konzentrieren und schließlich das gesammelte Radon mit dem Zählgas  $P10$  (s.u.) zu vermischen und in ein Low-Level-Proportional-Zählrohr zu füllen.

Die Anlage setzt sich im wesentlichen aus drei Bereichen zusammen. Links findet sich eine große Glasröhre mit einem Argon- /  $P10$ - Einlaß und der Verbindung zu der Quecksilberdiffusionspumpe, der Töplerpumpe und dem Zählrohrstutzen. Rechts ist der Anschluß für die Proben, der Heliumeinlaß mit Aktivkohlefalle, eine Feuchtigkeitsfalle (Quarzwolle), eine Molekülsieb-Kühlfalle (gen. „MS-Falle“) zum Sammeln von Radon, als Gasauslaß eine Blasenflasche („Liquid Lock“) und eine Vorpumpe. Beide Bereiche werden verbunden durch die sog. „Radon-Falle“, (eine weitere Kühlfalle zum Sammeln von Radon), den Getter und eine Verbindungsröhre.

**Vorbereitung:** Die ganze Anlage wird mit der Vorpumpe und später mit der Quecksilberpumpe evakuiert. Letztere ist mit einer Kühlfalle ausgestattet, um das Eindringen von Quecksilberdampf in die Anlage zu minimieren. Sämtliche Kühlfallen werden ausgeheizt (ca.  $1h$  bei  $120 - 140^\circ C$ ). Zwei Vakuum-Meßröhren (eine Penning- und eine Pirani-Röhre) sind in der Glasröhre angebracht, eine weitere Pirani-Röhre befindet sich zwischen dem Getter und der Rn-Falle, ein Manometer ist an der Verbindung vom Probengefäß zur Glasapparatur angebracht und ein weiteres zeigt den Druck am Helium-Einlaß. Das Vorvakuum erreicht einen Druck von einigen  $0,1 mbar$ , danach arbeitet die Quecksilberpumpe mit Drucken bis zu  $1 \cdot 10^{-6} mbar$  (wobei auf Grund der Architektur der Anlage die Druckanzeige nur einen lokalen Wert angibt und ansonsten als Richtwert zu verstehen ist).

Auf den Zählrohrstutzen wird eines der Low-Level-Proportional-Zählrohre aufgesetzt, evakuiert und ebenfalls ausgeheizt. Falls das Zählrohr zuvor mit großen Aktivitäten beladen war, empfiehlt es sich, es mit Argon zu spülen. Weiterhin muß der Getter etwa  $20 - 25 min$  unter Hochvakuum ausgeheizt (aktiviert) werden.

**Anbringen der Probe:** Für die weitere Konzentration und Reinigung des Gasgemisches wird die Transportfalle<sup>7</sup> mit Kupferrohren vakuumdicht angeschlossen. Der rechte Bereich wird mehrfach durch den Bypass des Probengefäßes mit Helium durchspült und wieder evakuiert, da mit dem Anbringen zwangsläufig auch Luft in die Anlage geraten ist. Dann wird die Heliumfalle und die Molekülsieb-Falle mit flüssigem Stickstoff und die Feuchtigkeitsfalle mit Alkohol (auf ca.  $-65^\circ C$ ) gekühlt. In die Anlage wird etwa  $1 bar$  Helium eingelassen.

**Transfer des Radons und Gettern:** Die Transportfalle wird kurz mit einem Fön geheizt, um die Kohle vorzuwärmen und die ersten Radon-Atome freizusetzen. Sie wird vorsichtig zur Apparatur hin geöffnet, bis der Druckausgleich stattgefunden hat. Danach

<sup>7</sup> Alternativ kann jedes beliebige andere Probengefäß angeschlossen werden. Dies ermöglicht den multiplen Einsatz der Zählrohrfüllanlage auch zur Bestimmung anderer Aktivitäten.

wird sie geheizt, um das Radon von der Aktivkohle zu lösen. Mit Helium wird das Radon dann durch die Feuchtigkeitsfalle in die MS-Falle transferiert (ca. 3,5 min, 500 ml/min). Das Helium wird durch die Blasenflasche aus der Apparatur entlassen. Nach dem Spülvorgang kann davon ausgegangen werden, daß nahezu alles Radon transferiert wurde. Der tatsächliche Wirkungsgrad der gesamten Prozedur wird im Kap. 4.4 näher besprochen.

Der nächste Schritt besteht darin, das Radon von der MS-Falle in die Radon-Falle zu transferieren, wobei die Feuchtigkeitsfalle umgangen wird, um das in ihr gefangene Wasser und andere störende Stoffe nicht nachträglich wieder in die Gasprobe einzubringen. Zudem kann man davon ausgehen, daß das benutzte Helium trocken ist.

Die Radon-Falle wird mit Stickstoff gekühlt, zwischen den beiden Fallen das Ventil geöffnet und Helium durch die jetzt geheizte MS-Falle und durch die Rn-Falle gespült (ca. 2 min, 500 ml/min) und mit der Vorpumpe abgepumpt. Nach dem Heliumspülen wird die ganze Anlage mit der Quecksilberpumpe evakuiert, dann die Ventile an der Rn-Falle geschlossen, die Falle aufgetaut und der Getter in Betrieb gesetzt (30 – 35 V, je nach Gasmenge 1 bis 3 Stunden).

**Vorbereitung des Zählrohres:** Während der Getter das Gas weiter reinigt, hat man Zeit, sich um das Zählrohr zu kümmern. Um das (immer noch beheizte) Zählrohr zu reinigen, wird Argon in die Anlage eingelassen, anschließend mit der Töplerpumpe mehrfach bis in das Zählrohr hochgedrückt und danach die gesamte Anlage wieder evakuiert. Danach wird der Drei-Wege-Hahn zwischen Töplerpumpe und Zählrohr vorerst geschlossen.

Als Zählgas wird jetzt P10 (eine Mischung aus 90% Argon und 10% Methan) eingelassen und im großen Eichvolumen der Töplerpumpe so abgemessen, daß der Gasdruck im Zählrohr später etwa 760 Torr = 1 atm erreicht. Ist die Gasmenge befriedigend eingestellt, wird das Steigrohr wieder evakuiert. Das Zählgas wird im großen Kolben der Töplerpumpe belassen.

Parallel beobachtet man den Druck im Bereich der Rn-Falle und des Getters. Steigt der Druck deutlich an, sollte man zwischendurch die Kühlfalle wieder mit flüssigem Stickstoff kühlen und das vom Getter freigesetzte Gas (hauptsächlich Wasserstoff) durch die Falle abpumpen. Sollte der Druck bei aktivem Getter sichtbar absinken, sind die chemisch aktiven Gase alle gebunden worden und es sollte nur noch das Radon übrig sein. Der Getter kann jetzt abgeschaltet werden.

**Füllen des Zählrohres:** Nach Abkühlen des Getters wird das Zählgas aus der Töplerpumpe in den Bereich der Rn-Falle gelassen, um sich mit dem noch dort befindliche Radon zu vermischen. Ist dies geschehen, muß etwa 10 bis 15 mal<sup>8</sup> mit der Töplerpumpe gepumpt werden, um das Zählgas (mit dem Radon) in das Eichvolumen zu bringen. Die Höhe der Quecksilbersäule ermöglicht eine erneute Druckmessung, bevor das Zählgas mit Töplerpumpe und Puscher in das Zählrohr gedrückt wird. Dabei wird die Quecksilbersäule möglichst weit an das Aktivvolumen herangefahren, um das Totvolumen möglichst gering zu halten.

---

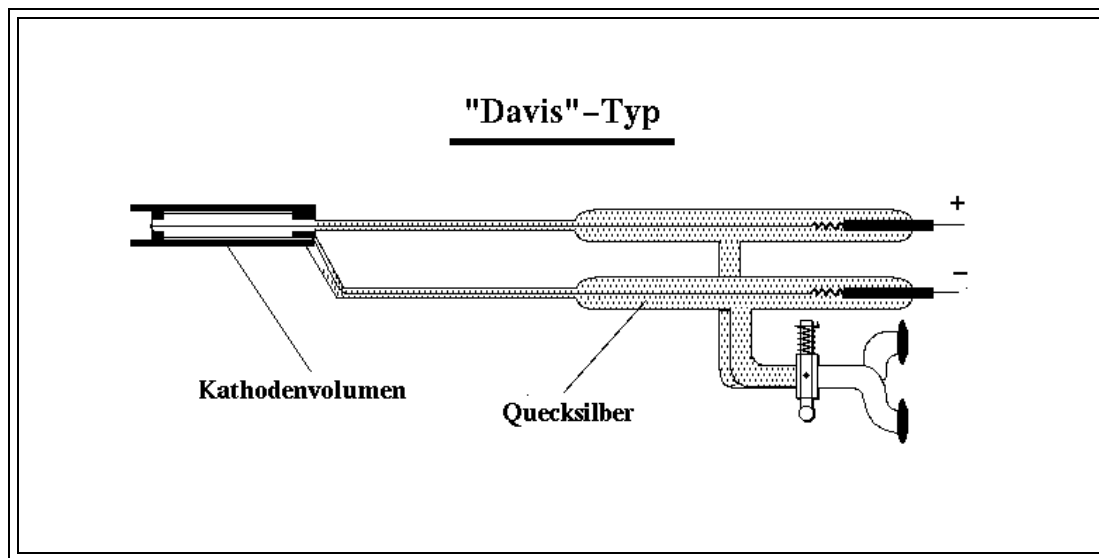
<sup>8</sup>Mit einem Pumpvorgang der Töplerpumpe reduziert man den Druck im Restvolumen und damit die verbleibende Gasmenge etwa um den Faktor 2,15. Nach zehnmalem Töplern ist der Druck also idealerweise um den Faktor 1000 gesunken. Das bedeutet, daß 99,9% der Radonatome mit der Töplerpumpe in das Eichvolumen transportiert wurden.

Zwangsläufig wird nicht alles Gas auch in das Zählrohr getrieben. Die Ventile und der Zählrohrstutzen sind mit Hahnfett geschmiert, wodurch die Oberfläche vergrößert wird. Es besteht die Gefahr, daß sich Gasblasen bilden. Darum muß nach dem Füllen des Zählrohres noch eine Restgasmessung erfolgen. Dazu wird die Töplerpumpe möglichst weit heruntergefahren, ohne daß Gas in das Steigrohr entweichen kann. Der Drei-Wege-Hahn über dem Eichvolumen wird geschlossen und die Quecksilbersäule bis zum kleinen Eichvolumen hochgefahren. Die Restgasmessung (üblicherweise weniger als 1%) erfolgt analog zur Volumenbestimmung. Mit der Restgasbestimmung ist die Prozedur abgeschlossen und das Zählrohr kann zur Datenaufnahme an die Meßelektronik angeschlossen werden.

### 3.3.3 Zählrohre

Zur Bestimmung des Radons stehen der Gruppe zwei verschiedene Typen von Low-Level-Proportional-Zählrohren zur Verfügung. Beide sind aus hochreinem Suprasilquarz gefertigt. Im LNGS werden hauptsächlich die älteren sog. „Davis-Counter“ benutzt. Dieser Typ wurden im Vorfeld des GALLEX-Experiments eingesetzt und ist u.a. in [Lau96, Len87, Win88] näher beschrieben (Siehe auch Abb. 3.6). Bei ihnen wird das Zählgas mit der zu messenden Aktivität mittels Quecksilber durch beide Schenkel in das Aktivvolumen gedrückt. Das Aktivvolumen liegt etwa in der Größenordnung von  $1\text{cm}^3$ , ist allerdings je nach Zählrohr sehr unterschiedlich, da jedes Zählrohr vom Glasbläser des MPI für Kernphysik individuell angefertigt wird.

Abbildung 3.6: Low-Level-Proportional-Zählrohr „Davis-Typ“. Um das Totvolumen so gering wie möglich zu halten, sind beide Schenkel bis zum Kathodenvolumen mit Quecksilber gefüllt (grauschattiert).



An der Kathode liegt eine Spannung von ca.  $-0,8\text{kV}$ , die Anode liegt auf  $0\text{V}$ . Die Spannungsversorgung der Kathode bzw. das Auslesen der Anode erfolgt über feine Wolfram-Drähte, die durch die beiden Schenkel zugeführt werden.

Da das Quecksilber in den Schenkeln mit dem spannungsführenden Draht in Berührung kommt, stellen die beiden Schenkel einen nicht zu unterschätzenden Kondensator dar, der das Untergrundrauschen erhöht. Zudem ist die innere Oberfläche besonders durch die zwei Hähne stark vergrößert. Aus diesen Gründen wurden die Zählrohre perfektioniert. Beim Typ *HD-II* wird das Gas nur noch durch einen Schenkel geführt; somit haben die Zählrohre nur noch einen Hahn. Die Spannungsversorgung (ca.  $-1kV$ ) bzw. der Auslesedraht wurden aus den Schenkeln herausgenommen, so daß sie nicht mehr mit dem Quecksilber in Berührung kamen. Um die Auslese zu verbessern wurde die Feldgeometrie innerhalb des Aktivvolumens verändert und die Kathoden am Rand speziell geformt, so daß auch hier die Feldlinien weitestgehend radial verlaufen (siehe hierzu u.a. [Pla89, Rau95, Win88, Win93]).

Die Messungen in Heidelberg wurden mit den *HD-II* Zählrohren # 124 (SC), # 125 (SC), # 131 (SC) und # 172 (SF) durchgeführt („SC“ steht für *shaped cathode* = geformte (Silicium-) Kathode, „SF“ analog für *geformte Eisenkathode*). Da diese Zähler allerdings für weitere Messungen in Heidelberg verbleiben sollten, wurden vor der Verlegung der Anlage zum LNGS einige alte Zählrohre vom „Davis“-Typ wieder hergestellt (# 39 (Fe), # 47 (Fe), # 53 (Fe) und # 55 (Fe)).

### 3.3.4 Die Meßelektronik

Bei der Meßelektronik konnte auf bestehende Geräte und Aufbauten zurückgegriffen werden, die speziell für Untersuchungen von Radonemanationen von Y. Zakharov aufgebaut wurden. Sie befindet sich im Low-Level-Labor des Heidelberger MPI für Kernphysik. Das Meßsystem im LNGS wird in vergleichbarem Aufbau von M. Laubenstein betrieben.

In einer Bleiabschirmung stehen vier Vorverstärkerboxen mit Kupferverkleidung, in die die Zählrohre eingebaut werden. Sie werden mit dem kommerziellen CAMAC-Meßsystem verbunden (Spannungsversorgung, Hauptverstärker, Analog-Digital-Umwandler, Trigger). Im Oktober 1997 wurde die Zahl der Zählrohrboxen von bisher 2 auf jetzt 4 verdoppelt<sup>9</sup>. Dadurch war es möglich, mehrere Messungen gleichzeitig durchzuführen, während alte Messungen zur Verbesserung der Statistik noch weiterzählen konnten.

Das Meßsystem registriert die Energie und den Zeitpunkt eines Zerfalls. Zur Auswertung herangezogen werden die Ereignisse oberhalb einer Schwelle ( $50keV$ ). Aus der Zeitinformation wird ermittelt, ob es sich um eigenständige Zerfälle oder um abhängige Ereignisse handelt: es zerfällt nicht nur das Radon, sondern auch die Tochterisotope, so daß jedem Radonatom mehrere Ereignisse im Zählrohr zugeordnet werden müssen. Die Zeitinformation erlaubt grob eine Diskriminierung von unabhängigen und abhängigen Ereignissen. Sie bedarf natürlich der Überprüfung mittels einer Standardaktivität.

---

<sup>9</sup>Das hierbei benutzte C++-Programm wurde von Y. Zakharov zur Auswertung von 2 Zählrohren geschrieben und von W. Rau für den Einsatz von 4 Zählrohren erweitert. Das entsprechende Programm der Meßanlage im LNGS wurde ebenfalls von W. Rau überarbeitet.

**Zählrohreicherung:** Bei der Zählrohreicherung gilt es zu überlegen, in welchem Energiebereich Ereignisse erwartet werden. Zwar ist die Zerfallsenergie des Radon bekannt (sie liegt in der Größenordnung von  $5 - 7\text{MeV}$ ). Da es sich aber um  $\alpha$ -Zerfälle handelt, ist die Menge der Energie, die im Zählrohr deponiert wird, abhängig vom Ort des Zerfalls innerhalb des Aktivvolumens. Sie liegt vor allem deutlich unterhalb der tatsächlichen Zerfallsenergie. Um einen Zerfall vom Untergrund zu unterscheiden, wird in unserem Fall nur eine Schwellenenergie eingestellt. Der Wert für die Schwellenenergie wird bei etwa  $50\text{keV}$  gesetzt, was sich empirisch als sinnvoll erwiesen hat. Dabei geht man wie folgt vor:

Nachdem das Zählrohr in die Vorverstärkerbox eingebaut und diese an das Meßsystem angeschlossen worden ist, wird in das Zählrohr von vorne eine  $^{55}\text{Fe}$ -Stiftquelle eingeführt.  $^{55}\text{Fe}$  zerfällt durch Elektroneneinfang und emittiert  $5,9\text{keV}$ -Röntgen-Quanten. Durch Überhöhung der Verstärkung um den Faktor 8 legt man diesen Peak in den Bereich von ca.  $50\text{keV}$ , wo für die spätere Messung auch die untere Meßschwelle liegen soll. Nun wird am Meßcomputer das Kalibrierungsprogramm gestartet und die Verstärkung so geregelt, daß der sich abzeichnende Peak sein Maximum bei Kanal 250 erreicht. Ist diese Einstellung vorgenommen, wird die Verstärkung wieder um den Faktor 8 reduziert und die Stiftquelle entfernt. Die Eichung ist abgeschlossen und die Messung kann gestartet werden.

### 3.4 Alternative Meßmethoden

Die MoREx wurde gebaut, um die Sauberkeit des „Reinigungsmittels Stickstoff“ zu überprüfen und dabei die bisher bekannten und in der CTF erreichten Meßgrenzen um etwa drei Größenordnungen zu unterschreiten. Am angenehmsten wäre dazu natürlich eine Anlage, die berührungsfrei den Stickstoff untersucht, die Meßwerte instantan („online“) ausgibt und durch elektronische Steuerung ein System anspricht, daß das restliche Radon aus dem Stickstoff entfernt, damit der Stickstoff unverzüglich durch den Szintillator oder andere Teile des Detektors geblasen werden kann. Kurz gesagt: *Man untersucht genau den Stickstoff, den man später benutzt!* Im Gegensatz dazu haben wir einen Prozeß, der mit allen Schritten (Reinigung, Extraktion, Transfer, Zählrohrfüllen, Auslesen) bis zu zwei Tage dauert. Der untersuchte Stickstoff wird ungenutzt abgeblasen, und man kann nur hoffen, daß zwischen der Meßextraktion und dem Einsatz des Stickstoffs als Reinigungsgas nichts passiert ist, weil man sich sonst möglicherweise mehr Radon in den Detektor hineinträgt, als man herauswäscht. Kurz gesagt: *Man weiß nicht, ob der Stickstoff, den man durch die Detektorkomponenten bläst, noch die gleiche Qualität besitzt wie der, den man untersucht hat!* Das tatsächliche Ergebnis sieht man erst in den Daten aus dem Detektor. Dieser Zustand ist natürlich nicht optimal. Zudem besteht die Gefahr, daß nach langen Extraktionszeiten (wenn also große Mengen Stickstoff durch die Fallen gespült werden) irgendwann das adsorbierte Radon durch die Kohle durchgewandert ist und die Falle wieder verläßt. Tatsächlich ist die Gaschromatographie geringer Mengen Radon in großen Mengen Stickstoff Ziel weiterer Untersuchungen (vergl. dazu [Bru76, Lau96]).

Interessant wäre ein Online-Meßsystem, daß die Radonkonzentration in der Kohle gleichzeitig orts aufgelöst darstellen kann. Eine Möglichkeit wäre, sich der  $\beta$ -Zerfall der Radon-Töchter zu bedienen, die in der Größenordnung von einigen 10 Minuten zerfallen (zum Vergleich: vom Beginn des Radonsammelns bis zum ersten „Meßergebnis“ vergehen viele Stunden, möglicherweise bis zu zwei Tage).

Die  $\beta^-$ -Zerfälle  $^{214}\text{Pb} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$  (mit  $T_{1/2} = 26,8\text{min}$ ;  $E = 6,7\text{MeV}$  bzw.  $6,65\text{MeV}$ ) und  $^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$  (mit  $T_{1/2} = 19,8\text{min}$   $E = 1,5\text{MeV}$  bzw.  $3,3\text{MeV}$ ) und die sie begleitende  $\gamma$ -Strahlung könnte mit einem Germaniumdetektor nachgewiesen werden [Bru76 (Seite 16), Ned98, Prok96].

Dies verlangt, das sich zwischen Radon und den Töchtern ein radioaktives Gleichgewicht ausgebildet hat, also nach einigen Halbwertszeiten der Töchter (ca. 2 – 3 Stunden). Damit ist die direkte Abtastung der Kohlefallen möglich, der Ausbau der Transportfalle (der vor allem die Flansche strapaziert) und die zeitaufwändige Überführung des Radons in die Proportionalzählrohre könnte entfallen. Diese Methode kann v.a. Anwendung finden bei der Untersuchung des chromatographischen Verhaltens des Radon in der Aktivkohle, wenn durch eine gezielte Gabe einer hohen Aktivität („Radon-Spike“) die untere Meßgrenze überschritten wird, wie in Abschnitt 2.5 erläutert wurde.

**Zukünftige Physik mit MoREx:** Die MoREx wurde bisher dazu eingesetzt, um geringste Radonkontamination in Stickstoff nachzuweisen. Dieser Ansatz eröffnet viele Möglichkeiten. Im Umfeld von Borexino wird ein umfangreiches Sortiment von Reinigungsgeräten und -anlagen (die sog. „Purification Plants“), eingesetzt, in denen z.B. der Szintillator oder die Abschirmungsflüssigkeit („Buffer Liquid“) gereinigt wird. Zudem kommen die Detektorkomponenten mit Lagertanks in Berührung. Die von diesen Anlagen ausgehende Radonemanation konnte bisher nur im Anschluß anhand der Kontamination der gereinigten Stoffe abgeschätzt werden. Sofern diese Anlagen vakuumdicht sind, könnten sie zukünftig mit dem gereinigten Stickstoff (HPGN) aus den Stickstoffversorgungsanlagen gespült und gefüllt werden. Nach einigen Halbwertszeiten wird sauberer Stickstoff hinterhergespült und die Radonemanation in der MoREx gesammelt und anschließend gemessen. So kann der Beitrag der einzelnen Anlagen zum radioaktiven Untergrund von Borexino detailliert untersucht werden. Weiterhin zeigt ein Blick in die Tabelle 2.4 (Seite 20), daß auch noch andere radioaktive Edelgase, wie etwa Krypton oder Argon, in der Umgebungsluft (und damit im Stickstoff) vorkommen oder durch Stoßprozesse mit Neutronen in den Detektorkomponenten entstehen und von Borexino registriert werden. Ein denkbarer Ansatz ist, auch diese Edelgase in Kohlefallen zu adsorbieren und durch anschließende Gaschromatographie, Massenspektrometrie oder präzisere Analyse der Zerfälle im Zählrohr (z.B. verbesserte Energieauflösung, Pulsformanalyse, Zeitauflösung der  $^{214}\text{Bi} - ^{214}\text{Po}$ -Koinzidenz ( $\tau_{1/2} = 163\mu\text{s}$ )) quantitativ zu bestimmen.

Ein weiteres Phänomen, das insbesondere für die MoREx, aber auch für den Tieftemperaturadsorber (LTA) von existenzieller Bedeutung ist, ist das Verhalten von Radon in Aktivkohle unter Berücksichtigung der Tatsache, daß zwar mit hohem Gasfluß ( $\text{N}_2$ ) gearbeitet wird, aber nur geringe Mengen Radon auftreten. Diese Phänomen wird bereits innerhalb der Kollaboration untersucht (u.a. Laubenstein, Heusser, Rau, Wojcik, Zakharov), ist aber noch nicht abschließend geklärt. Denkbar wäre, den Tieftemperaturadsorber (LTA) gezielt mit Radon zu beladen und anschließend verschieden große Mengen Stickstoff hinterherzublasen. Durch Bestimmung der Kontamination abhängig von der Gasmenge (= Spüldauer) ließen sich Aussagen treffen über die Standzeit des LTA.

# Kapitel 4

## Die Meßergebnisse

Die MoREx ist in ihrer Art und Größe ein Einzelstück und möglicherweise Prototyp für spätere Entwicklungen. Entsprechend schwierig waren anfangs die Abschätzungen des tatsächlichen Verhaltens und der Eigenarten der Anlage. Besonderes zu untersuchen war, welchen Beitrag zum Meßergebnis das aus den Kohlefallen nachwachsende Radon liefert, mit welchem Wirkungsgrad die Extraktion und die nachfolgenden Konzentrationsschritte funktionieren und wie hoch die Meßausbeute in der Elektronik ist. Dazu wurde die Anlage in der Meßhalle des Heidelberger MPI für Kernphysik installiert und mit einem konventionellen  $1,8m^3$ -Stickstofftank verbunden.

Desweiteren war die Abhängigkeit von verschiedenen Parametern nicht klar:

- Wie hängt die Ausbeute vom Fluß und der Gasmenge ab?
- Man kann davon ausgehen, daß sich das Radon auf Grund seines Siedepunktes eher im flüssigen Stickstoff aufhält und somit im Tank nicht der Stickstoff, sondern die Tankwände Radon emanieren. Es könnte ein meßbarer Unterschied auftreten, je nachdem ob der Tank frisch gefüllt wurde, einige Halbwertzeiten gestanden hat oder fast leer ist.
- In den benutzten Kühlfallen muß mit einer natürlichen Radonproduktion gerechnet werden. Wie kann man diese abschätzen und möglicherweise minimieren?

Um auf alle genannten Fragen Antworten zu finden, wurden ab Juli 1997 mehrfach Blankwerte von verschiedenen Kombinationen der beteiligten Komponenten gemessen und ausgewertet. Bevor die Meßergebnisse im einzelnen vorgestellt und diskutiert werden, sei im anschließenden Abschnitt 4.1 erläutert, wie die Kontamination einer Probe aus den Meßwerten bestimmt wird.

## 4.1 Berechnung

**Vorbemerkung:** Zusammen mit der MoREx wurden auch an anderen Apparaturen Emanationsmessungen durchgeführt, die im Rahmen des Borexino-Projektes für die Untergrundbestimmung wichtig waren. Alle Ergebnisse wurden in einer Tabelle zusammengefaßt und berechnet. Diese Tabelle enthielt folgende Daten (vergl. auch Tab. A.3 - A.10 im Anhang):

- Art der Probe (Emanation, Gasmessung, Meßapparatur) und laufende Nummer der Messung, Nummer des Zählrohrs, Druck im Aktivvolumen des Zählrohres und Anteil des Restgases ( $A_{RG}$ ), das nicht in das Zählrohr gefüllt wurde;
- Beginn ( $T_{S,Start}$ ) und Ende ( $T_{S,Stop}$ ) des Sammelzeitraums liefern Aussagen über den Blank-Beitrag einzelner Komponenten; der Füllzeitpunkt  $T_{Füll}$ , in dem das Proben-gas in eines der Zählrohre gefüllt wurde, beendet die Zeit, in der die Zählrohrfüllan-lage zum Blank beiträgt;
- Anteil der Sättigungsaktivität  $A_{Sätt}$ , Anteil der Sättigungsaktivität zum Zeitpunkt des Zählrohrfüllens  $A_{Sätt,T_{Füll}}$ , sowie Anteil der Sättigungsaktivität, die zum Füll-zeitpunkt ins Zählrohr gelangt ist  $A(ZR)_{Sätt,T_{Füll}}$  (Restgaskorrektur);
- Beginn  $T_{M,Start}$  und Ende  $T_{M,Stop}$  der Messung im elektronischen Datenerfassungs-system, Name des Datenfiles, der Eichfiles und Mengenanteil der Atome ( $\Delta_{Mess}$ ), die seit Beginn der Messung zerfallen sein müßten;
- Zahl der Ereignisse, die in einer Datei registriert wurden ( $\#Evnts_{File}$ ), Zahl der Ereignisse zum Zeitpunkt des Zählrohrfüllens ( $\#Evnts_{T_{Füll}}$ ), daraus resultierend die Zahl der Ereignisse im Zählrohr  $\#Evnts_{ZR,T_{Füll}}$  und folglich Atome in der Probe in der Sättigung ( $\#Atome_{Sätt}$ );
- Aus der Zahl der Zerfälle in einer Probe und der totalen Nachweiswahrscheinlichkeit ( $Eff_{tot}$ ) berechnet sich die totale Aktivität bzw. die Aktivität in einer bestimmten Menge oder die Emanation bei einer bestimmten Oberfläche;
- Bei den Stickstoffproben trägt der Verdampfer während der Extraktionszeit signifi-kant zum Blank bei. Dieser Anteil wird ebenfalls bestimmt.

**Berechnung:** Die Berechnung der von einer Probe ausgehenden Aktivität wird dann nach folgenden Regeln ausgeführt:

$$A_{Sätt} = 1 - \exp \{-\lambda \cdot (T_{S,Stop} - T_{S,Start})\} \quad (4.1)$$

ist der Anteil der Sättigungsaktivität, der von einer Probe abgegeben wird. Daraus be-rechnet sich der Anteil der Sättigungsaktivität, der beim Einfüllen des Gases ins Zählrohr noch übrigbleibt:

$$A_{Sätt,T_{Füll}} = \exp \{-\lambda \cdot (T_{Füll} - T_{S,Stop})\} \cdot A_{Sätt}. \quad (4.2)$$

Diese Wert muß noch korrigiert werden auf die Menge des Probengases, die tatsächlich in das Zählrohr gefüllt wurde:

$$A(ZR)_{Sätt,T_{Füll}} = A_{Sätt,T_{Füll}} \cdot (1 - A_{RG}). \quad (4.3)$$

Die weiteren Berechnungen beziehen sich auf die elektronische Datenerfassung. In einen bestimmten Zeitraum (speziell: während das Datenerfassungssystem in Betrieb ist) zerfällt nur ein bestimmter Anteil der Atome. Dies läßt sich prozentual ausdrücken durch die Gleichung

$$\Delta_{Mess} = \exp\{-\lambda \cdot (T_{M,Start} - T_{Füll})\} - \exp\{-\lambda \cdot (T_{M,Stop} - T_{Füll})\}, \quad (4.4)$$

wobei  $\lambda = \frac{\ln 2}{\tau_{1/2}} \approx 0,69/3,825d \approx 1/132,44h$  die Zerfallskonstante des Radon ist.

Dadurch ist es möglich zurückzuschließen auf die Zahl der Ereignisse (d.h. Zerfälle), die man registriert hätte, wenn ab dem Füllzeitpunkt bereits gemessen worden wäre:

$$\#Evnts_{T_{Füll}} = \frac{\#Events_{File}}{\Delta_{Mess}}. \quad (4.5)$$

Gelegentlich wird die Datenerfassung unterbrochen, z.B. um ein Zählrohr in das Meßsystem ein- oder auszubauen oder um nach einer gewissen Zeit die Kalibrierung zu kontrollieren. Dadurch werden die registrierten Zerfälle in mehrere unterschiedliche Dateien eingetragen. Gewichtet mit der relativen Meßzeit ergeben sie die Zahl der Zerfälle, die im Zählrohr ab dem Füllzeitpunkt hätten registriert werden können:

$$\#Evnts_{ZR, T_{Füll}} = \frac{\sum \#Evnts_{T_{Füll}}}{\sum \Delta_{Mess}} \quad (4.6)$$

Dieser Wert muß noch korrigiert werden auf die tatsächliche Gasmenge, den Blank-Wert der Füllanlage und den Anteil der Sättigungsaktivität:

$$\#Evnts_{Sample} = \frac{\left\{ \frac{\#Evnts_{ZR, T_{Füll}}}{1-ARG} - Glasblank \right\}}{ASätt, T_{Füll}} \quad (4.7)$$

Gewichtet mit der totalen Nachweiswahrscheinlichkeit erhält man die Anzahl der Atome in der Probe in der Sättigung und damit die Aktivität (evtl. versehen mit einem Umrechnungsfaktor, um das Ergebnis in sinnvolle Einheiten und Größenordnungen anzugeben):

$$A[mBq] = \lambda \cdot \#Atome_{Sätt} = \lambda \cdot \frac{\#Evnts_{Sample}}{Eff_{tot}} \quad (4.8)$$

**Statistische und systematische Meßfehler:** Die Bestimmung des Fehlers ist relativ komplex, da der gesamte Prozeß vom Meßbeginn bis zur Datenaufnahme viele Schritte beinhaltet, die das Ergebnis signifikant beeinflussen können. Viele der dabei eingehenden Größen (Blanks, Übertragungswahrscheinlichkeit, Restgas, Lukasfaktor etc.) mußten erst experimentell bestimmt werden, so daß schließlich auch die statistischen Fehler einer Messung als Fehler bei anderen Messungen wieder eingehen.

Generell besteht ständig die Gefahr, einen Teil der Probe durch Abpumpen zu verlieren oder aber durch ein Leck oder nicht ordentlich geschlossenes Ventil Kontaminationen von außen in die Probe einzubringen. Dieses Phänomen läßt sich nicht quantifizieren und wird nur dadurch einigermaßen auszuschließen sein, daß jede Messung mehrfach wiederholt und bestätigt wird. Da der Meßprozeß sehr zeitaufwändig ist, war die Möglichkeit der Wiederholung allerdings bisher auf ein Minimum beschränkt.

Zudem untersuchen wir einen radioaktiven Zerfallsprozess, der a priori einer gewissen wahrscheinlichen Unsicherheit unterliegt, die noch dazu bei Low-Level-Messungen (also geringer Statistik) besonders auffällig in Erscheinung tritt. Dies macht sich vor allem dann bemerkbar, wenn zwischen der Extraktion des Radons und dem Start der Datenaufnahme mehrere Stunden (z.T. bis zu einem Tag) vergangen sind.

Die Blanks der beteiligten Anlagen sowie deren einzelner Komponenten wurden untersucht (siehe Tab. 4.1 und 4.2). Sie gehen (im allgemeinen inklusive ihres Fehlers) natürlich auch in die Berechnung des Fehlers ein. Da die in den Tabellen angegebenen Blankwerte allerdings Sättigungswerte sind, die in einer regulären Meßprozedur niemals erreicht werden, wurde individuell entschieden, ob ihr Beitrag gegenüber dem restlichen Fehler signifikant oder vernachlässigbar ist.

Das nächste Problem bietet der Radonzerfall selbst. Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit zerfällt in einem bestimmten Zeitraum ein Teil der Radonatome, allerdings statistisch verteilt. Da der Meßzeitraum selten länger als 2 Halbwertszeiten dauerte, spielt hier die Statistik eine besondere Rolle. Umgekehrt konnte bei Emanationsmessungen nicht immer abgewartet werden, bis sich ein radioaktives Gleichgewicht ausgebildet hatte, wodurch der (absolute) Meßwert verkleinert und der Fehler vergrößert wird.

Das dritte Phänomen, daß sich auf das Meßergebnis auswirkt, sind die Vorgänge im Zählrohr. Bedauerlicherweise ist es nicht so, daß der Zerfall eines Radon-Atoms exakt einen Puls mit vorherbestimmter Energie abgibt. Statt dessen wird das emittierte  $\alpha$ -Teilchen im Zählrohr abgebremst und die meßbare Energie ist stark abhängig vom Ort des Zerfalls innerhalb des aktiven Zählrohrvolumens. Im Aktivvolumen des Zählrohres zerfällt auch nicht nur das Radon, sondern auch die nachfolgenden Nuklide. Genauer gesagt: man sieht pro Rn-Atom nicht bloß einen, sondern sehr wahrscheinlich mehrere Zerfälle. Es ist auch möglich, daß einzelne Zerfälle gar nicht registriert werden. Dieses Phänomen wird in der totalen Nachweiswahrscheinlichkeit  $Ef f_{Tot}$  berücksichtigt. Da die totale Nachweiswahrscheinlichkeit aber erst experimentell bestimmt werden muß, unterliegt auch dieser Term einer gewissen Unsicherheit, die natürlich auch den Fehler beeinflusst.

Im Zählrohr werden außer den statistisch unabhängigen Zerfällen der Radonatome auch Zerfälle der Tochternuklide registriert, die natürlich nicht mehr statistisch unabhängig sind. Der sog. Lukas-Faktor wird als empirische Größe in die Berechnung des Fehlers eingeführt, um diesen Umstand zu berücksichtigen.

Abschließend muß noch berücksichtigt werden, daß die Datenaufnahme gelegentlich unterbrochen wird (z.B. zum Einbau eines weiteren Zählrohres), wodurch die „Totzeit“ der gesamten Zählung künstlich verlängert wird.

## 4.2 Blankmessungen der MoREx und der Zählrohrfüllapparat

Zuerst einmal galt es, die Eigenaktivität der einzelnen Komponenten nachzuweisen. Bei allen benutzten Materialien (Stahl, Glas, Kohle, Quarzwolle, Molekülsieb, vor allem aber Flansche und Dichtungen) muß davon ausgegangen werden, daß sie in einer bestimmten Menge Radium enthalten und mit einer bestimmten Rate Radon emanieren oder aber in unterschiedlichem Maße Diffusion von Radon aus der Umgebung in die Meßapparatur zulassen. Der Einfluß dieser Eigenkontamination läßt sich teilweise vorübergehend unterdrücken. Dazu müssen jedoch die verursachenden Komponenten festgestellt und quantitativ untersucht werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen und ihre Ergebnisse sind in den nachfolenden Tabellen 4.1 und 4.2 aufgelistet (weitere Details können den Tabellen A.3 bis A.10 im Anhang entnommen werden). Da die Messungen teilweise wiederholt wurden, ist zur besseren Unterscheidung das Datum des Zählrohrfüllens mit angegeben.

Tab. 4.3 zeigt ergänzend zwei Untergrundmessungen des Low-Level-Proportional-Zählrohrs # 124 SC. Es sollte untersucht werden, ob man in der Lage ist, die Aktivität einer Probe aus einem Zählrohr vollständig wieder zu entfernen, oder ob noch Restaktivitäten im Zählrohr zurückbleiben. Darum wurde für diese Untersuchung ein Zählrohr genommen, das jeweils wenige Tage vorher mit hohen Aktivitäten „belastet“ war.

Tabelle 4.1: Ergebnis der Blankmessungen der Zählrohrfüllapparat in Heidelberg. Die Messungen im 2. und 3. Abschnitt der Tabelle wurden durchgeführt nach der Extraktion eines Standards. Mit ihnen sollte untersucht werden, wieviel der zu messenden Aktivität in den einzelnen Komponenten der Anlage hängen bleibt und nicht in das Zählrohr gelangt. Die Messungen zeigen, daß dieser Anteil vernachlässigbar ist ( $\leq 1\%$ ).

Messung	Füll-Datum	Zählrohr	Aktivität in der Sättigung [ $\mu Bq$ ]
Blank der Zählrohrfüllanlage	01.07.97	# 124 SC	$54 \pm 15$
	22.07.97	# 125 SC	$72 \pm 18$
	25.07.97	# 124 SC	$115 \pm 24$
	26.09.97	# 124 SC	$47 \pm 13$
	05.11.97	# 124 SC	$16 \pm 7$
	06.05.97	# 124 SC	$58 \pm 16$
<b>gew. Mittelwert</b>	<b>[<math>\mu Bq</math>]</b>		<b><math>37 \pm 4</math></b>
Blank der Komponenten nach Standard (ohne ausheizen)			
MS-Falle	13.08.97	# 131 SC	$198 \pm 44$
	02.01.98	# 131 SC	$379 \pm 86$
Rn-Falle + Getter	02.01.98	# 172 SF	$477 \pm 97$
H <sub>2</sub> O-Falle	12.01.98	# 125 SC	$1410 \pm 700$
Blank nach Standard ( $236,6 \pm 3,8 \mu Bq$ )			
(ohne ausheizen)	19.11.97	# 172 SF	$693 \pm 57$
(mit ausheizen)	31.12.97	# 131 SC	$34 \pm 42$

Tabelle 4.2: Ergebnis der Blankmessungen der MoREx.

Messung	Füll-Datum	Zählrohr	Aktivität in der Sättigung [ $\mu Bq$ ]
Getter	09.12.97	# 125 SC	$234 \pm 81$
Getter (vorher ausgeheizt)	09.01.98	# 172 SF	$49 \pm 26$
Partikelfilter	18.08.97	# 125 SC	$155 \pm 69$
	06.03.98	# 131 SC	$43 \pm 29$
	30.07.97	# 125 SC	$-60 \pm 120$
Kesselfalle	05.08.97	# 131 SC	$2 \pm 49$
	01.09.97	# 125 SC	$8 \pm 37$
Aktivkohlefalle I	05.03.98	# 124 SC	$70 \pm 33$
Aktivkohlefalle II	11.07.97	# 124 SC	$97 \pm 68$
	19.08.97	# 131 SC	$32 \pm 57$
	08.01.98	# 125 SC	$31 \pm 26$
	27.02.98	# 131 SC	$51 \pm 26$
<b>gew. Mittelwert</b>	<b>absol. [<math>\mu Bq</math>]</b>		$49 \pm 14$
	<b>rel. [<math>\mu Bq/g</math>]</b>		$39 \pm 11$
Verdampfer (120 l Helium)	09.03.98	# 172 SF	$28600 \pm 1200$
	18.03.98	# 124 SC	$19800 \pm 1100$
<b>Mittelwert</b>	<b>[<math>\mu Bq</math>]</b>		$24200 \pm 6200$
Cu-Leitung	16.03.98	# 172 SF	$410 \pm 92$
Blank MoREx (norm. Prozedur, Aktivkohlefalle II für 1h gefüllt mit 1atm $N_2$ )	12.11.97	# 125 SC	$19 \pm 20$ (abs.)

Tabelle 4.3: Untergrundmessungen des Counters #124 SC: in der jeweils vorausgehenden Messung war dieses Zählrohr mit hohen Aktivitäten belastet; mit der Untergrundmessung konnte die Effizienz der Reinigungsmethoden (Spülen mit Argon, Evakuieren und Ausheizen) zufriedenstellend festgestellt werden.

Messung	Füll-Datum	Zählrohr	Untergrund [ $cpd$ ]
Blank ZR (evakuiert, 1 x Ar-gespült, 1atm P10)	27.10.97	# 124 SC	$1,2 \pm 0,4$
	01.12.97	# 124 SC	$1,6 \pm 0,5$

### 4.3 Emanationsmessungen

Im vorangehenden Abschnitt 4.2 wurde ausführlich der radioaktive Untergrund beschrieben, der von der MoREx und der in Heidelberg aufgebauten Zählrohrfüllanlage sowie einzelnen Komponenten dieser Anlagen ausgeht. Sie wirken sich unmittelbar auf die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen aus. Aus dem selben Grund ist natürlich auch der durch Komponenten des Detektors oder die umliegenden Versorgungseinrichtungen produzierte radioaktive Untergrund weiter zu untersuchen, was ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit geschah. Diese Messungen wurden z.T. direkt an der Zählrohrfüllapparatur vorgenommen, indem Proben in vakuumdichte Gefäße (z.B. Glaskolben) gefüllt wurden. Als weiteres Meßinstrument wurden zwei vakuumdichte Edelstahlkessel angefertigt. Materialproben oder Geräte, die sich nicht dazu eignen, an die Füllanlage angeschlossen zu werden, können in diese Kessel gelegt und nach einiger Zeit die Radonemanation durch Helium-Spülen und Abpumpen in eine Kohlefalle extrahiert werden. Mit dieser Falle wird dann wie üblich verfahren. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.4 dargestellt.

Tabelle 4.4: Ergebnisse der Emanationsmessungen.

Art der Probe	Füll-Datum	Zählrohr	Aktivität in Sättigung
<b>Silicagel + Stärke</b>			
104,9g; trocken	10.02.98	# 172 SF	10,9 ± 1,1 <i>mBq/kg</i>
104,9g; trocken	13.02.98	# 172 SF	10,2 ± 1,2
<b>PTFCE 302</b>			
	06.07.98	# 124 SC	-40 ± 420 $\mu\text{Bq}/\text{m}^2$
	10.07.98	# 131 SC	-80 ± 280
<b>Sicherheitsventil</b>			
0,5bar	23.06.98	# 124 SF	93 ± 38 $\mu\text{Bq}$
	01.07.98	# 131 SF	58 ± 32
<b>3m „Federbalg“</b>			
	28.07.98	# 41	150 ± 310 $\mu\text{Bq}$
	01.08.98	# 55	380 ± 350 $\mu\text{Bq}$
<b>Flowstat</b>			
	03.07.98	# 172 SF	91 ± 85 $\mu\text{Bq}$
<b>Drosselventil</b>			
	08.07.98	# 172 SF	56 ± 40
	13.07.98	# 124 SF	103 ± 39

Das „Silicagel mit Stärke“ wurde im MPI für Kernphysik speziell hergestellt, um als Trockenmittel zu dienen. Die üblicherweise zur Herstellung von Silicagel gebrauchten Materialien enthalten häufig deutlich meßbare Radiumkontaminationen, so daß sie für den Einsatz in Low-Level-Experimenten ungeeignet sind. Das hier gemessene Silicagel mit Stärke ist aus vergleichsweise sauberen Ausgangsmaterialien hergestellt, wie die Messungen zeigen.

„PTFCE 302“ ist die Bezeichnung für ein Teflonmaterial, das in den Selfa-Vakuumentilen als Material für die Ventilsitze dient, also unmittelbar mit dem Gasstrom in Berührung kommt. Die Selfa-Ventile (von der Firma Selfa, einer Tochterfirma von Air Liquide - Italien, hergestellt für hochreine Vakuumanlagen) wurden mehrfach in die

Stickstoffversorgungsinstallationen sowie ebenfalls innerhalb der MoREx eingebaut.

Das „Sicherheitsventil“ ist ein serienmäßig gefertigtes Überdrucksicherheitsventil, wie es vielfach (und natürlich auch bei Borexino) in Gasversorgungsanlagen eingesetzt wird. Speziell wurde ein Ventil untersucht, das bei 1,5bar (oder 0,5bar Überdruck) öffnet. Es wurde an die Füllanlage angeschlossen und damit auch auf Vakuumdichtigkeit geprüft.

Der sog. „Federbalg“ ist ein flexibler Edelstahlschlauch, der den Anschluß der MoREx an beliebiger Stelle der Stickstoffinstallationen ermöglicht und dabei erlaubt, trotz des Platzbedarfs der Anlage auf die Bedingungen vor Ort in gewissen Umfang Rücksicht zu nehmen.

Das „Drosselventil“ (CT PLATON Typ Flostat FVAS) wurde direkt am Eingang der MoREx angebracht, um für einen gleichmässigen Gasfluß zu sorgen (siehe Seite 33). Es wurde auf Emanation und Vakuumdichtigkeit untersucht.

## 4.4 Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit

Teil der Untersuchungen war auch die Nachweiswahrscheinlichkeit der Prozedur. Gemeint ist also die Frage, wieviel Radon im Laufe des Prozesses verloren geht und mit welcher Wahrscheinlichkeit man die zu messenden Radonatom nachweisen kann. Dazu wurden sowohl an die Zählrohrfüllanlage als auch an die MoREx sog. Radon-Standards<sup>1</sup> bekannter Aktivität angeschlossen und gemessen. Mit den Standardmessungen an der Zählrohrfüllanlage wurde die gemessene Aktivität mit der erwarteten Aktivität verglichen und daraus für jedes Zählrohr die Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt. Da die Werte innerhalb der Fehler übereinstimmen, wurde aus den Ergebnissen der Mittelwert gebildet (er geht in alle Rechnungen als totale Nachweiswahrscheinlichkeit  $Eff_{Tot}$  ein).

Anschließend wurden zweimal Standardlösungen an die MoREx angeschlossen. Da in einer üblichen Extraktion davon auszugehen ist, daß die Oberfläche der Kohle relativ schnell mit Stickstoff belagert wird und sich somit die tatsächliche freie Oberfläche deutlich reduziert, wird als Simulation dieses Zustandes zuerst ca.  $1m^3$  Stickstoff durch die Falle gespült. Danach wird das Radon aus der Standardlösung eingebracht. Anschließend wird eine bestimmten Menge Stickstoff hinterher geblasen, um das Radon auf der Oberfläche der Kohle „zu verschmieren“ und die Wanderung der Radonatom durch die Falle zu bewirken<sup>2</sup>. Die Messergebnisse wurden mit den zu erwartenden Aktivitäten verglichen (wobei die totale Nachweiswahrscheinlichkeit  $Eff_{Tot}$  bereits berücksichtigt wurde).

---

<sup>1</sup>„Radon-Standards“ sind allgemein Radonquellen mit gut bekannter Aktivität (in unserem Falle Radium-Chlorid-Lösungen) bei denen das Radium zu Radon zerfällt und sich nach einigen Radon-Halbwertzeiten ein Gleichgewicht einstellt, d.h. es wird genausoviel Radon produziert wie gleichzeitig zerfällt. Die Produktionsrate ist gleich der Aktivität. Das gebildete Radon kann extrahiert werden, da es üblicherweise vollständig in die Gasphase übertritt, wenn die Lösung mit Helium durchspült wird.

<sup>2</sup>Bei einem normalen Meßprozeß ist mit Gasmengen von  $100m^3$  oder mehr zu rechnen, die in der Kohle die gesammelten Radonatom verschmieren. Da die Aktivität von  $100m^3$  SPGN aber auch im Vergleich zu einem Radonstandard nicht vernachlässigbar ist und zudem die Meßprozedur um mehrere Stunden verlängert worden wäre, wurde entschieden, dieses Phänomen mit „nur“  $30m^3$  nachzuahmen.

Tabelle 4.5: Bestimmung der Totalen Nachweiswahrscheinlichkeit in Heidelberg mittels bekannter Standardaktivitäten. Die obere Hälfte der Tabelle zeigt die Daten von Messungen an der Zählrohrfüllanlage. In der unteren Hälfte sind die Messungen zu Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit der MoREx wiedergegeben.

Messung	Füll-Datum	Zählrohr	Nachweiswahrscheinlichkeit
236,6 ± 3,8 μBq-Standard	30.12.97	# 125 SC	(147,4 ± 2,9)%
Zählrohrfüllanlage	02.01.98	# 124 SC	(144,7 ± 3,5)%
	07.01.98	# 172 SF	(148,7 ± 3,2)%
	12.01.98	# 131 SC	(148,5 ± 3,1)%
<b>Mittelwert (<math>Eff_{Tot}</math>)</b>			(147,4 ± 1,8)%
134,6 mBq + (30 ± 0,1) m <sup>3</sup> SPGN <sub>2</sub>	19.11.97	# 131 SC	(93,4 ± 5,3)%
237 mBq + (38 ± 0,1) m <sup>3</sup> SPGN <sub>2</sub>	17.01.98	# 124 SC	(103,4 ± 7,3)%
<b>Mittelwert (<math>Eff</math>)</b>			(98,4 ± 7,1)%

Die Meßergebnisse (Tab. 4.5) zeigen, daß das Extraktions- und Meßverfahren zuverlässig arbeitet und die gesamte Prozedur verlustfrei durchzuführen ist. Bei beiden Standard-Messungen wurden Ergebnisse erzielt, die gut mit mit einer Nachweiswahrscheinlichkeit  $Eff = 1$  übereinstimmen.

## 4.5 Stickstoffmessungen in Heidelberg

Ziel der Arbeit ist die Extraktion und der quantitative Nachweis von Radon in gasförmigem Stickstoff, der für Borexino an verschiedenen Stellen zur Reinigung von Flüssigkeiten eingesetzt wird. In der Hoffnung, möglichst niedrige Kontamination des Stickstoffs vorzufinden, war und ist es realistisch anzunehmen, daß bei bekannter Nachweisgrenze große Stickstoffmengen untersucht werden müssen, um überhaupt ein meßbar über dem Untergrund liegendes Ergebnis zu erzielen.

Viele systematische Fragen waren anfangs offen. Vor allem das gaschromatographische Verhalten von Radon in der Aktivkohle zeigt sich als eine der Problemstellen. Eine geringe Radon-Kontamination des Stickstoffes erfordert große Gasmengen, um ein meßbares Signal-Untergund-Verhältnis zu erhalten. Es war aber nicht klar, welche Mengen Stickstoff durch die Aktivkohlefallen geblasen werden konnten, bis das gesammelte Radon am anderen Ende wieder heraus kam.

Dies war der Grund, warum erste Funktions- und Bedienungstests in Heidelberg durchgeführt wurden, quasi die „ersten Gehversuche“ mit dem neuen System, dessen sinnvolle und (zwecks Reproduzierbarkeit der Ergebnisse) auch gleichmäßige Bedienung erst einmal erlernt sein wollte. Zudem erhielt man sich die Option, nötige Änderungen in der Institutswerkstatt vorzunehmen.

Zuerst wurde handelsüblicher Stickstoff direkt aus dem Tank verwandt und dabei an den Stickstoff wie an das Lagersystem keine besonderen Anforderungen gestellt. Tatsächlich

waren dann auch die ersten Meßwerte sehr hoch (Größenordnung  $mBq/m^3$ , was angesichts der kleinen Gasmengen nicht verwunderlich ist, wenn man z.B. den Blank des Verdampfers in Betracht zieht). Mit der Zeit entwickelte sich eine gewisse Bedienungsroutine, die Abläufe wurden reproduzierbarer und damit auch die Meßwerte vergleichbarer.

Die Berechnung des Ergebnisses der Stickstoffproben erforderte im Vergleich zu den vorher aufgeführten Gleichungen noch einige Veränderungen.

Da keine Blankmessung vorgenommen wird, ist es nicht sinnvoll, von den Meßergebnissen auf einen „Sättigungswert“ rückzuschließen. Vielmehr ist zu untersuchen, wie hoch die Kontamination des Stickstoffs mit Radon *jetzt* ist. Außerdem ist der Extraktionszeitraum klein verglichen mit der Halbwertszeit, weshalb der Exponentialterm in Gl. 4.1 vernachlässigbar wird. Also wird die Funktion, mit der die Sättigungsaktivität berechnet wird, mit „1“ gleichgesetzt:

$$A_{Sätt} = 1 - \exp \{ \lambda \cdot (T_{S,Start} - T_{S,Stop}) \} := 1; \quad (4.9)$$

der entsprechende Term verschwindet aus Gleichung 4.2. Schließlich wird noch der Beitrag abgezogen, der durch den Verdampfer in den Stickstoff eingetragen wird. Unter der Annahme, daß nach intensivem Gasfluß zum Meßbeginn der Verdampfer frei von Radon ist, muß man davon ausgehen, daß gemäß

$$A(\text{Verdampfer}) = A_0(\text{Verdampfer}) \cdot (1 - \exp \{ -\lambda(T_{S,Stop} - T_{S,Start}) \}) \quad (4.10)$$

im Laufe der Messung neues Radon freigesetzt wird, daß von der Gesamtaktivität (Gl. 4.8) subtrahiert werden muß.

Natürlich muß die nachgewiesene Aktivität auch noch auf einen normierten Wert gebracht werden, da verschieden große Gasmengen gemessen wurden; deshalb wird die gemessene Aktivität durch das untersuchte Gasvolumen in  $[m^3]$  geteilt. Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 4.6.

## 4.6 Bewertung der Ergebnisse

**Abhängigkeit der Ausbeute vom Gasfluß:** Diese zu Beginn des Kapitels aufgestellte Frage läßt sich mit den Meßergebnissen der Standardaktivitäten beantworten, ist aber noch an einige Bedingungen geknüpft. Sowohl in Abschnitt 2.5 wie auch in Abschnitt 4.4 wurde erläutert, daß die Radonotope unter Gasfluß durch die Falle wandern und dabei, selbst wenn sie konzentriert auf die Kohle aufgebracht wurden (also im Profil quasi als „Peak“ erscheinen) diese Verteilung deutlich verschmiert. Im Rahmen der Standardmessungen wurden  $30m^3$  bzw.  $38m^3$  Stickstoff (bei einem Fluß von  $20m^3/h$ ) benutzt, um diesen Effekt zu erzielen. Die Messungen ergaben, daß der Nachweis des Radons vollständig möglich war. Daraus folgt, daß *unter den gegebenen Umständen* ( $30m^3$  bzw.  $38m^3$  bei  $20m^3/h$ ) die Ausbeute nicht beeinträchtigt wird. Messungen mit größeren Gasmengen (z.B.  $100m^3$ ) sind Inhalt zukünftiger Untersuchungen.

**Einfluß der Radonemanation aus der Meßapparatur:** In den Abschnitten 4.2 und 4.3 wurde ausführlich der Einfluß der Meßapparaturen auf die Ergebnisse erläutert. Speziell konnte festgestellt werden, daß die Emanation der Kühlfallen in Sättigung durchschnittlich

Tabelle 4.6: Ergebnisse der Stickstoffmessungen in Heidelberg.

Gasmenge [ $m^3$ ]	Füll-Datum	Zählrohr	Aktivität [ $\mu Bq/m^3$ ]
SPGN <sub>2</sub> aus Lagertank (Entnahme aus der Gasphase)			
$36 \pm 3$	24.10.97	# 124 SC	$69 \pm 9$
(Tank aufgefüllt am 13.11.97)			
$45 \pm 0,5$	15.11.97	# 131 SC	$43 \pm 5$
$50 \pm 0,3$	27.11.97	# 131 SC	$54 \pm 6$
SPGN <sub>2</sub> aus Lagertank (Entnahme aus der flüssigen Phase)			
(Tank aufgefüllt am 23.03.98)			
$106 \pm 0,3$	25.03.98	# 172 SF	$144 \pm 14$
HPGN <sub>2</sub> aus Flüssigtank + LTA			
$102 \pm 0,3$	13.03.98	# 172 SF	$-2 \pm 2$
(Tank aufgefüllt am 23.03.98)			
$103 \pm 0,3$	27.03.98	# 131 SC	$25 \pm 3$
N <sub>2</sub> aus 12-Flaschen-Batterie			
$40 \pm 0,3$	12.12.97	# 131 SC	$1083 \pm 100$
$20 \pm 0,3$	14.01.98	# 131 SC	$2096 \pm 194$
N <sub>2</sub> aus Einzelflasche			
$10,7 \pm 0,3$	21.03.98	# 172 SF	$189 \pm 12$

weniger als  $50 \mu Bq$  beträgt. Da die Radonprobe üblicherweise nur etwa 5 – 10h mit ihnen in Berührung kommt, ist ihr Beitrag zur nachgewiesenen Aktivität mit weniger als  $5 \mu Bq$  abzuschätzen. Der gesamte Einfluß aller an der Messung beteiligten Anlagen wurde in einer Messung mit ca.  $20 \pm 20 \mu Bq$  bestimmt.

**Ungereinigter Stickstoff:** Die in Heidelberg durchgeführten Messungen zeigen, daß der handelsübliche flüssig angelieferte und gelagerte Stickstoff in gasförmigem Zustand eine Radonkontamination in der Größenordnung von  $100 \mu Bq/m^3$  aufweist. Er ist also nicht geeignet, um damit den Szintillator oder andere Detektorkomponenten zu reinigen. Eine bessere Eingrenzung der Kontamination ist bisher aufgrund der wenigen Meßwerte kaum möglich. Neben den unbekanntem Einflüssen, die sich aus den benutzten Installationen ergeben, ist auch nicht auszuschließen, daß der Stickstoff selbst bei unterschiedlichen Lieferungen unterschiedlich stark kontaminiert ist. Eine besondere Behandlung des Stickstoffs ist jedenfalls erforderlich, z.B. Reinigen des flüssigen Stickstoffs mit Aktivkohlefallen, *Temperature-Cycle-Adsorption*-Systeme oder *Boil-off*-Tanks. Damit sollte es möglich sein, die Kontamination des entnommenen gasförmigen Stickstoffs auf  $1 \mu Bq/m^3$  oder weniger zu reduzieren.

**Gereinigter Stickstoff:** Die Filtrierung des flüssigen Stickstoffs mit einer Aktivkohlefaller hat sich als eine gut durchführbare Reinigungsmöglichkeit erwiesen. Der Tieftemperatur-adsorber („LTA“; siehe Kap. 3.1 und Abb. 3.1) wurde zu Testmessungen in Heidelberg aufgestellt und lieferte bereits in den ersten Testmessungen in Heidelberg Ergebnisse, die deutlich unter denen des ungereinigten Stickstoff lagen. Da nur zwei Messungen durchgeführt wurden, erscheinen die Unterschiede in den Ergebnissen sehr groß. Trotz des Ver-

suchs, die statistischen und die systematischen Fehler möglichst zuverlässig (aber konservativ) abzuschätzen (und damit für die Radonkontamination des Stickstoffs eine möglichst konservative Abschätzung zu erhalten), können die beiden Meßergebnisse keinesfalls als gleich angesehen werden. Möglicherweise sind hier noch Verunreinigungen im Spiel, die allerdings im nachhinein nicht weiter untersucht werden können.

Nicht zu unterschätzen bleibt auch weiterhin, daß sich in dem umfangreichen Prozeß (von der Extraktion bis zum Zählrohrfüllen) noch systematische Fehler verstecken, die wegen der geringen Statistik bisher nicht erkannt wurden. Dabei gilt es besonders zu bedenken, daß die Bedingungen bei der Blankmessung des Verdampfers nicht mit den Bedingungen bei einer Stickstoffmessung übereinstimmen. Bei der Blank-Bestimmung war der Verdampfer warm (Umgebungstemperatur) und innen vollständig mit Helium (gasförmig) gefüllt. Bei einer Messung der Stickstoffkontamination kommt der Verdampfer innen mit flüssigem Stickstoff in Kontakt, wodurch die Temperatur deutlich sinkt (was sich zwar nicht auf die Produktion von Radon, wohl aber auf das Emanationsverhalten aus der Metalloberfläche hemmend auswirkt). Zudem ist ein Teil der Oberfläche jetzt Grenzfläche zu einer flüssigen Phase, was sich an diesen Stellen ebenfalls auf das Verhalten des Radons im Metall des Verdampfers auswirken kann.

Es ist sinnvoll davon auszugehen (wenngleich quantitativ schwer abschätzbar), daß der Blankwert des Verdampfers im Falle einer Stickstoffuntersuchung insgesamt niedriger ist als bei der Blankwertbestimmung. Die Blankmessungen des Verdampfers stellen folglich nur eine Obergrenze dar. Da der Verdampfer in der Installation nach dem LTA folgt, wird sein Beitrag jedenfalls in die Stickstoffprobe eingetragen und kann nicht weiter reduziert, sondern allerhöchsten auf eine größere Gasmenge verteilt werden. Der Verdampferblank bestimmt also die mit den Installationen in Heidelberg meßbare Obergrenze der Größenordnung von  $A \approx 10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ .

**Flaschenstickstoff:** Der Flaschenstickstoff aus dem 12-Flaschen-Gebinde weist mit ca.  $1 - 3 \text{mBq}/\text{m}^3$  eine wesentlich stärkere Kontamination auf. Die Ursachen hierfür sind im Lagerbehälter zu suchen. Die Kontamination *pro Gasmenge* ist entscheidend abhängig vom aktuellen Fülldruck (bzw. *Gasmenge*, dargestellt durch das Produkt  $p \times V$  aus Druck  $p$  und Volumen  $V$ ). Während die Flaschen vor der ersten Messung noch fast voll waren (Fülldruck ca.  $200 \text{bar}$ ), war der Druck vor der zweiten Messung mit etwa  $100 \text{bar}$  nur halb so groß. Zwischen beiden Messungen liegt etwa 1 Monat ( $\approx 8,6 \cdot \tau_{1/2}$ ). Wenn die Kontamination aus dem Stickstoff stammt, müßte sie zu diesem Zeitpunkt weitgehend zerfallen sein. Es existieren also andere Quellen, aus denen das Radon stetig nachwächst, wie z.B. die große Oberfläche der Stahlflaschen oder die Dichtungen des Druckminderers. Geht man davon aus, daß die Stahlflaschen mit einer konstanten (absoluten) Rate Radon emanieren (das sich zu diesem Zeitpunkt bereits nahezu im Gleichgewicht befinden müßte), folgt logischerweise, daß die relative Kontamination (pro  $\text{m}^3$ ) des Stickstoffs bei geringerem Fülldruck höher ist. Das Meßergebnis bestätigt diese Annahme. Das Gebinde produziert insgesamt  $128 \pm 8 \text{mBq}$  Radonemanation.

Eine andere Messung mit einer einzelnen Gasflasche ergab eine Stickstoffkontamination von ca.  $190 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  und ist damit um eine Größenordnung geringer als die eben erwähnten Messungen des Gebindes.

# Kapitel 5

## Meßwerte im LNGS

Trotz mehrfacher Verzögerung bei den Aufbauarbeiten war es schließlich möglich, auch im Gran Sasso Untergrundlabor (LNGS) die Stickstoffinstallationen mit einem vorläufigen Aufbau in Betrieb zu nehmen und ersten Tests zu unterziehen (siehe auch Abb. 3.2 auf Seite 25). Das Meßprogramm litt allerdings noch unter einigen technischen Mängeln, die bis zum Abschluß dieser Arbeit nicht behoben werden konnten. Der Heizverdampfer funktionierte nicht ordnungsgemäß und mehrere der Flansche und Ventile waren undicht, so daß (teilweise deutlich sichtbar) Stickstoff entwich. Es konnte leider nur ein eingeschränktes Meßprogramm durchgeführt werden und die Ergebnisse sind aus den genannten Gründen auch nur als vorläufige Meßergebnisse zu verstehen. Sie sind in der nachfolgenden Tabelle 5.2 zusammengefaßt.

### 5.1 Blankmessungen

Die geplanten (und unerläßlichen) Blankmessungen konnten wegen der vielen Lecks im vorgegeben Zeitraum nicht durchgeführt werden. Eine in die Leitungen und Verdampfer mit ca. 2bar eingelassene Heliumfüllung sank über Nacht vollständig auf Atmosphärendruck ab. Reproduzierbare Ergebnisse waren somit schlicht unmöglich zu erzielen und bleiben Teil zukünftiger Untersuchungen.

Die geplanten Installationen (vergl. Abb. 3.3) bieten für die Zukunft noch eine interessante Option, um die gemessenen Kontaminationswerte genauer einzuschätzen. Die Messungen des Verdampferblanks mit der Anordnung in Heidelberg konnte aus den aufgeführten Gründen nur eine Obergrenze darstellen (Vergl. Abschnitt „Schlußfolgerung“ auf Seite 51). Anders ausgedrückt: subtrahiert man diesen Wert von der gemessenen Aktivität, erscheint der Beitrag des Stickstoffs in der gemessenen Aktivität niedriger als dies der Realität entspricht.

Bei den Installationen im LNGS allerdings kann der *Standard-Purity*-Stickstoff in zwei verschiedenen Konstellationen gemessen werden, nämlich einmal durch die atmosphärischen Verdampfer und einmal durch den Heizverdampfer. Der Heizverdampfer sollte aufgrund einer geringeren Oberfläche und des wesentlich saubereren Materials (elektropoliertes Edelstahl) einen geringeren Blankwert produzieren als die atmosphärischen Verdampfer.

Die meßbaren Blankwerte stellen für sich genommen natürlich ebenfalls nur eine Obergrenze dar, die Differenz zweier mit unterschiedlichen Konstellationen erzeugter Standardstickstoffmessungen (Stickstoff und Blank gemeinsam) ermöglicht aber eine Minimalabschätzung.

Sei  $Blank_{max}(StdV)$  eine Obergrenze für den Blank der atmosphärischen Verdampfer,  $Blank_{max}(HV)$  eine Obergrenze für den Blank des Heizverdampfers und  $A(\text{SPGN})$  die Aktivität des Stickstoffs. Subtrahiert man nach mehreren Messungen des Standardstickstoffs (rechte Seite der Gleichung 5.1) die niedrigeren Blankwerte aus dem Heizverdampfer von den höheren aus den atmosphärischen Verdampfern, erhält man für letztere eine Minimalabschätzung:

$$Blank_{min}(StdV) = \{A(\text{SPGN}) + \text{Blank}(StdV)\} - \{A(\text{SPGN}) + \text{Blank}(HV)\} \quad (5.1)$$

bzw. eine Maximalabschätzung der tatsächlichen Stickstoffkontamination, wenn man diesen minimalen Blank von dem Ergebnis einer Stickstoffmessung abzieht:

$$A_{max}(\text{SPGN}) = \{A(\text{SPGN}) + \text{Blank}(StdV)\} - \text{Blank}_{min}(StdV) . \quad (5.2)$$

Subtrahiert man diesen Maximalwert der Stickstoffkontamination wiederum von einer Messung mit dem Heizverdampfer, erhält man dessen minimalen Blankwert:

$$Blank_{min}(HV) = \{A(\text{SPGN}) + \text{Blank}(HV)\} - A_{max}(\text{SPGN}) . \quad (5.3)$$

Somit könnte für beide Verdampferkonstellationen der Blank als Minimal- und Maximalwert abgeschätzt werden und man erhielte zusätzlich eine Abschätzung für die tatsächliche Kontamination des zu reinigenden Standardstickstoffs.

## 5.2 Nachweiseffizienz und Übertragungswahrscheinlichkeit

Wie bei den Messungen in Heidelberg (vergl. Abschnitt 4.4) wurde auch im LNGS die gesamte Prozedur auf ihre Nachweiseffizienz untersucht. Bedauerlicherweise zeigte sich, daß die Übertragungsrates der Zählrohrfüllanlage nur bei etwas mehr als 17% lag. Eine derartig niedrige Effizienz ist im Prinzip kein Problem, wenn sie ausreichend bekannt ist. Betreibt man jedoch Messungen im Low-Level-Sektor, ist es durchaus relevant, wenn die Zählraten etwa um den Faktor 6 geringer sind als die Zahl der tatsächlich auftretenden Radon-Atome. Die Sammelzeiten müssen dann entsprechend erhöht werden, um eine deutlich über dem Untergrund liegende meßbare Menge an Atomen zu sammeln.

Erfreulich war eine weitere Messung, bei der eine Standard-Lösung an die MoREx angeschlossen wurde. Entsprechend den Messungen in Heidelberg wurde zuerst  $1m^3$  Stickstoff durch die Kohlefalle geblasen, um die Oberfläche der Kohle mit Gas zu bedecken. Nun wurde die Radonemanation aus einer Standardlösung eingebracht und  $30m^3$  Stickstoff hinterher gespült, um die Wanderung der Radon-Atome in der Kohle zu bewirken. Das daraus

resultierende Messergebnis wurde verglichen mit dem erwarteten Meßwert, der sich aus der Standardaktivität und der Aktivität aus dem Stickstoff ergeben müßte. Insgesamt konnten ca. 17% der Aktivität nachgewiesen werden, was mit der Übertragungsrate der Füllanlage übereinstimmt und sie somit erneut bestätigt. Berücksichtigt man diesen Wert, ergibt sich für die MoREx eine Übertragungsrate von ca. 101%, was wiederum in Übereinstimmung ist mit den in Heidelberg durchgeführten Standardmessungen, bei denen einen Übertragungswahrscheinlichkeit von nahezu 100% festgestellt werden konnte (vergl. Kap. 4.4 sowie Tab. 5.1).

Tabelle 5.1: Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit mit Standardaktivitäten an der Zählrohrfüllapparatur und der MoREx im LNGS. Die totale Nachweiswahrscheinlichkeit liegt bei 17,5%; daraus ergibt sich für die MoREx eine Übertragungswahrscheinlichkeit von ca. 101%.

Messung	Füll-Datum	Zählrohr	Nachweiswahrscheinlichkeit
Zählrohrfüllanlage			
127mBq-Standard	30.07.98	# 47	(17,32 ± 0,51) %
13,2mBq-Standard	18.08.98	# 47	(17,56 ± 1,66) %
	Mittelwert		(17,44 ± 1,40) %
MoREx			
127mBq-Standard +	21.08.98	# 47	(17,7 ± 4,0) % absolut
(31 ± 0,1)m <sup>3</sup> SPGN			(101 ± 21) % relativ

Die Abschätzung des Fehlers ist noch relativ grob. Die angenommene Kontamination des Stickstoffs wurde vorerst als gewichteter Mittelwert aus den kurz zuvor ermittelten Meßwerten gebildet. Da diese jedoch eine relativ große Streuung und recht große Fehler aufwiesen, trat bei der Bestimmung der zu erwartenden Aktivität bereits ein Fehler von ca. 21% auf. Dieses Problem wird sich zukünftig hoffentlich lösen, wenn die Anlagen komplett abgedichtet sind (so daß der Blankwert gemessen werden kann), der Heizverdampfer und der Gasheizer durch ein Ventil voneinander getrennt werden und im Anschluß die tatsächlich Radonemanation durch mehrere Messungen erneut bestimmt und bestätigt wird.

### 5.3 Stickstoffmessungen im LNGS

**Stickstoff mit Standardqualität:** Die offensichtlichen technischen Mängel der Stickstoffinstallationen wurden zu Beginn des Abschnitts bereits erwähnt. Dennoch wurden einige Stickstoffproben untersucht, was zuert einmal dem Zweck diente, die Funktionsweise der gesamten Anlage zu erproben und den Umgang mit ihr zu üben. Natürlich war interessant zu untersuchen, ob die Messungen Ergebnisse liefern, die mit den in Heidelberg erzielten Werten einigermaßen vergleichbar sind (vergl. Tab. 4.6 auf Seite 52). Die im LNGS erzielten Meßwerte liegen im Bereich einiger hundert Mikrobecquerel, können allerdings nur als vorläufige Obergrenzen verstanden werden, da der Blank der einzelnen Komponenten der Installationen eine bisher unbekannte Größe ist.

Tabelle 5.2: Ergebnisse der Stickstoffmessungen im LNGS. Die aufgeführten Meßwerte für den Stickstoff aus dem Lagertank sind nur Obergrenzen, da aufgrund der Mängel an den Installationen deren Blank nicht in die Berechnung einbezogen werden konnte.

Gasmenge [ $m^3$ ]	Füll-Datum	Zählrohr	Aktivität [ $\mu Bq/m^3$ ]
SPGN <sub>2</sub> aus Lagertank 2, aufgefüllt am 31.07.98			
Heizverdampfer			
40 ± 0,3	08.08.98	# 53	345 ± 70
SPGN <sub>2</sub> aus Lagertank 2, aufgefüllt am 31.07.98			
hinterer Verdampfer und Gaswärmer			
40 ± 0,3	13.08.98	# 47	230 ± 110
40 ± 0,3	19.08.98	# 55	590 ± 150
SPGN <sub>2</sub> aus Einzelflasche, Reinheit 99,990 %			
9,5 ± 0,3	11.08.98	# 41	50 ± 130
9,5 ± 0,3	14.08.98	# 53	510 ± 150

Die Größenordnung dieser Änderung läßt sich abschätzen, wenn man einen Blankwert annimmt, der vergleichbar mit dem in Heidelberg gemessenen ist, also etwa 20-30 mBq in Sättigung. Die daraus resultierenden Änderungen wären aber nur sehr gering (ca. 10 – 15  $\mu Bq/m^3$ ), so daß die deutlichen Schwankungen der Meßwerte dadurch keinesfalls erklärt werden können. Eine Möglichkeit ist, daß in den Verdampfern vorhandenes Radon beim ersten Eintreffen von flüssigem Stickstoff an die Oberfläche gebunden wird und sich nicht durch Abblasen mehrere Kubikmeter Gas entfernen läßt. Es könnte langsam (im Verlauf der Extraktion) wieder freigesetzt werden und die Messung beeinflussen. Dies zu überprüfen bleibt Ziel zukünftiger Messungen.

**Flaschenstickstoff:** Genau wie in Heidelberg wurde auch im LNGS Flaschenstickstoff auf seine Kontamination mit Radon untersucht. Dabei ist vor allem zu bemerken, daß die untersuchten Flaschen bereits am 14. 5. 98 geliefert worden sind, so daß etwa 3 Monate zwischen Lieferung und Messung vergangen sind. Das im Stickstoff enthaltenen Radon ist in der Zwischenzeit zerfallen und die gemessene Radonkontamination läßt sich ausschließlich auf die den Lagerbehälter, also die Flasche, das Ventil, den Druckminderer und die Dichtungen zurückführen. Bei beiden Messungen wurde derselbe Druckminderer benutzt, weshalb die Meßbedingungen als nahezu identisch angenommen werden konnten. Die erste Messung ist innerhalb der Fehler mit dem Meßergebnis aus Heidelberg vergleichbar. Die zweite Messung liegt deutlich höher. Abgesehen von der bereits erwähnten Quelle „Behälter“ ist als weitere Schwachstelle anzusehen, daß die Flaschen über eine kleines Stück Gummischlauch mit der MoREx verbunden waren, der jedesmal neu montiert wurde. Die Vakuumpqualität war deshalb deutlich schlechter als bei einer Stahlrohrverbindung, so daß kleinste Lecks nicht auszuschließen sind. Dieses Problem läßt sich nur teilweise beheben. Auch wenn die Flasche vakuumdicht an die Anlage angeschlossen werden kann, ist die Vakuumdichtigkeit der Druckminderer immer noch fraglich.

Dazu kommt, daß der Gasvorrat einfach zu gering ist, um durch Abblasen von Stickstoff den Blank noch weiter zu reduzieren.

**Proben mit dem Heizverdampfer und gereinigter Stickstoff:** Da der Heizverdampfer nicht ordnungsgemäß arbeitete und der Defekt nicht ohne größeren Aufwand behoben werden konnte, war es nicht möglich, die durchgeführte Messung von *Standard Purity* Stickstoff mit dem Heizverdampfer unter kontrollierten Bedingungen zu wiederholen und das Ergebnis zu überprüfen. Dies wird zukünftig noch durchzuführen sein. Aus demselben Grund waren Messungen von mit dem LTA gereinigtem Stickstoff nicht durchführbar, da sie zwingend den Einsatz des Heizverdampfers notwendig machen.

## 5.4 Anmerkung zu den Meßwerten

Viele Meßwerte erscheinen auf den ersten Blick innerhalb der Fehler gut miteinander verträglich. Tatsächlich haben sich aber sowohl bei den Messungen in Heidelberg und als auch bei den Messungen im LNGS immer wieder Werte eingestellt, die trotz großer Fehler deutlich von den übrigen Meßwerten abweichen.

Die Interpretation dieses Phänomens kann noch nicht abschließend erfolgen. Insbesondere darf dieses Ergebnis keinesfalls als Evidenz für unterschiedliche Meßwerte, also als unterschiedliche Kontaminationsgrade des Stickstoffs gewertet werden. Die Zahl der Messungen ist einfach zu gering, um eine ordentliche Statistik aufzustellen und weitere noch nicht identifizierte systematische Unsicherheiten näher einzugrenzen.

Die Messungen in Heidelberg wurden teilweise nur einmal wiederholt und sind inzwischen nicht mehr wiederholbar, weil die Anlagen zum LNGS gebracht wurden. Tatsächlich wurden die Messungen in Heidelberg primär zu Testzwecken durchgeführt; das Meßprogramm wurde später ausgeweitet, um die Zeitverzögerung beim Aufbau der Versorgungsanlagen im LNGS zu überbrücken.

Auch im LNGS konnte aus den weiter oben erwähnten Gründen nur ein eingeschränktes Meßprogramm durchgeführt werden. Angesichts der weiter oben gemachten Ausführungen über den Meßfehler, den Einfluß der empirischen Größen (wie etwa die Blanks oder die Übertragungswahrscheinlichkeiten) sowie der „instrumentellen Probleme“ (z.B. Lecks) ist es aber sicher bisher noch nicht ausgeschlossen, daß auch systematische Fehler existieren, die bisher nicht oder zu wenig bekannt sind und die sich bei einer geringen Statistik nur schwer identifizieren lassen.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung

BOREXINO ist ein Sonnenneutrino-Detektor der neuesten Generation, der speziell entworfen wurde, um die von der Sonne emittierten monoenergetischen  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos mittels Neutrino-Elektron-Streuung spektral und in Echtzeit zu untersuchen (siehe Kap. 1). Der Nachweis dieser Neutrinos kann aber nur gelingen, wenn der im Umfeld des Detektors auftretenden radioaktive Untergrund drastisch reduziert wird. Vor allem das radioaktive Edelgas Radon, speziell das Nuklid  ${}^{222}\text{Rn}$ , erhöht den Untergrund weit über das gewünschte Maß. Darüberhinaus besteht die Gefahr, daß das Radon in einzelne Materialien (wie etwa das Nylon des Inner Vessel) hineindiffundiert und sich dort nach dem Zerfall die metallischen Tochternuklide (besonders  ${}^{210}\text{Pb}$  mit einer Halbwertszeit von  $\tau_{1/2} = 22,3a$ ) festsetzen und den Detektorbetrieb stören (siehe Kap 2).

Im Rahmen des Borexino-Pilotprojektes CTF (Counting Test Facility) konnte gezeigt werden, daß die Radonkonzentration in Flüssigkeiten wie dem Szintillator oder dem Abschirmwasser durch Spülen mit sauberem Stickstoff bis auf das Kontaminationsniveau des Stickstoffs reduziert werden kann (siehe Kap. 2 sowie weitere Ausführungen in [Lau96]). Deshalb ist es das Ziel, möglichst radonfreien Stickstoff zu bekommen. Methoden zur Stickstoffreinigung sowie zum Nachweis der Radonkontamination des Stickstoffs müssen entwickelt und auf ihre Eignung untersucht werden.

Die bereits in der Konstruktion befindliche „**Mobile Radon-Extraktions-Anlage**“ (kurz: **MoREx**) wurde in der Endmontage betreut (siehe Kap. 3), die ersten Testmessungen durchgeführt (siehe Kap. 4) und der regulären Meßbetrieb unmittelbar am Detektor (bzw. im Umfeld der Versorgungsanlagen des Borexino-Detektors) vorbereitet und mit provisorischen Stickstoffinstallationen eingeleitet (siehe Kap. 5).

MoREx dient zur Extraktion von geringsten Mengen Radon aus großen Mengen gasförmigen Stickstoffs. Dazu wird der Stickstoff durch eine große Aktivkohlekühlfalle geleitet und das Radon an der Oberfläche adsorbiert. Die dabei benutzten Instrumente und der Verlauf der Extraktions- und Meßprozedur werden detailliert beschrieben (siehe Kap. 3). Die Aktivität vieler Kubikmeter Gas wird aufsummiert, um meßbare absolute Aktivitäten zu erhalten. So ist möglich, sehr geringe relative Kontaminationswerte (wenige Radonatome *pro Kubikmeter*) nachzuweisen (siehe Kapitel 4 und 5).

Alle beteiligten Geräte wurden auf ihre Radonemanation untersucht (sog. Blankmessungen), wobei sowohl Sättigungswerte bestimmt wurden als auch der absolute Blankbeitrag einer normalen Extraktionsprozedur (vergl. Tab. 4.2 auf Seite 47). Dieser Wert ist mit ca.  $20 \pm 20 \mu\text{Bq}$  als sehr niedrig zu betrachten.

Die totale Nachweiswahrscheinlichkeit wurde mehrfach mit bekannten Standardaktivitäten überprüft. Dabei konnte nachgewiesen werden, daß alle Radonotope, die von einer Probe in die MoREx eingehen, auch später im Zählrohr nachgewiesen werden können (98,5 % Effizienz; vergl. Tab. 4.5 auf Seite 50).

Die Funktionsfähigkeit der MoREx konnte bereits bei den Testmessungen in Heidelberg gezeigt werden (s. Kap. 4). Proben aus der Gasphase des Lagertanks zeigten eine Kontamination von ca.  $50 - 100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Eine Probe aus der flüssigen Phase war mit ca.  $170 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  belastet (vergl. Tab. 4.6 auf Seite 52).

Gereinigter Stickstoff wurde mit den Testinstallationen in Heidelberg zweimal gemessen. Es ergaben sich Meßwerte der Größenordnung  $10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , womit die Meßgrenze ca. 2 Größenordnungen unter den bisherigen Werten [Lau96] liegt (vergl. Tab. 4.6 auf Seite 52). Die erhoffte Meßgrenze von  $1 \mu\text{Bq}(\text{Radon})/\text{m}^3(\text{N}_2)$  konnte mit den Testinstallationen in Heidelberg nicht erreicht werden, da es sich bei den benutzten Komponenten (Tank, Verdampfer) nur um handelsübliche Geräte handelt, bei deren Anschaffung kein Wert auf eine besonders geringe Radon-Emanation gelegt wurde. Als besonders gravierend wirkte sich dabei der Blank des Verdampfers aus (vergl. Tab. 4.2 auf Seite 47), der die nicht weiter unterschreitbare Grenze bestimmte.

Ebenfalls wurden handelsübliche Stickstoff-Gasflaschen der Qualität 5.0 (99,9990 % Reinheit) untersucht. Dabei konnte gezeigt werden, daß die gemessene Kontamination vor allem auf die Materialien des Lagerbehälters (Stahlflasche, Ventil, Dichtungen etc.) zurückzuführen ist. Die relative Kontamination (pro  $\text{m}^3$ ) schwankt folglich auch abhängig vom Fülldruck. Die Untersuchung einer einzelnen 50l-Flasche ergab einen Meßwert von ca.  $190 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Ein 12-Flaschen-Gebinde ergab Meßwerte im Bereich  $1,1 - 2,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . (vergl. Tab. 4.6 auf Seite 52).

Im Laboratorio Nazionale del Gran Sasso wurden die Stickstoffversorgungsanlagen für Boraxino in einer vorläufigen Konstellation aufgestellt (vergl. Abb. 3.2 und 3.3), um auch dort die Qualität des Stickstoffs zu untersuchen. Die dabei ermittelten Meßwerte der Radonkontamination im *Standard Purity* Stickstoff lagen vergleichsweise hoch (einige  $100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ), wobei sie aufgrund fehlender Blankmessungen und mehrere Lecks in den Leitungen nur als grobe obere Abschätzung verstanden werden dürfen (vergl. Tab. 5.2 auf Seite 57).

Zwei Gasflaschen (Qualität 5.0) wurden untersucht, wobei Meßwerte von  $50 \pm 129 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  und  $513 \pm 150 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  festgestellt wurden (vergl. Tab. 5.2 auf Seite 57).

Die Nachweiswahrscheinlichkeit wurde an der Zählrohrfüllanlage sowie für die gesamte Prozedur der Radonextraktion mit der MoREx getestet. Dabei ergab sich leider für die Zählrohrfüllanlage nur eine unerwartet niedrige Übertragungsrate von 17%. Die vollständige Übertragungsrate der MoREx konnte wiederum bestätigt werden (vergl. Tab. 5.1 auf Seite 56).

Für die Zukunft ist vor allem ein reguläres Meßprogramm anzustreben. Viele Wiederholungen der durchgeführten Messungen erhöhen die Routine im Umgang mit der Anlage und führen zu einer besseren Reproduzierbarkeit der Ergebnisse. Die Komplexität der gesamten Prozedur birgt mit den verschiedenen Schritten viele Momente, die den Meßwert verfälschen können (Blanks, Übertragungsdefizite, Lecks) bzw. nicht vollständig reproduzierbar machen. Es ist zum jetzigen Zeitpunkt nicht ausgeschlossen, daß das Ergebnis noch durch systematische Fehler beeinflusst wird, die erst bei besserer Statistik genauer identifiziert werden können. Daraus resultiert derzeit noch ein relativ großer Fehler, der hoffentlich bei weiteren Messungen reduziert werden kann.



# Anhang A

## Tabellen

### A.1 Technische Daten der MoREx

Tabelle A.1: Technische Daten der MoREx, Teil I

Rahmengröße: l = 2,50 m b = 0,90 m h = 1,55 m	Platzbedarf: l = 4,30 m b = 3,40 m h = 2,00 m	Masse: $m \approx 650\text{kg}$
Vakuundleitungen	Material: Innendurchmesser: Druckbereich:	Elektropol. rostfreier Stahl 0,5 cm - 2 cm $10^{-8}\text{bar} < p < 6\text{bar}$
Heliumleitung	Eintritt in die Line vor dem Partikelfilter	mit Aktivkohlefall
Vorpumpen	VARIAN Scroll Pumpe (Im Eingangsbereich) Alcatel Membranpumpe (Vorvakuum für Turbopumpe und am Ausgang der MoREx)	$p_{min} = 10^{-2}\text{mbar}$ (an der Pirani-Röhre) $p_{min} \approx 10^{-4}\text{mbar}$
Turbopumpe TPU050 (Pfeiffer)	Druck (an der Penning-Sonde)	$p \approx 4 \cdot 10^{-6}\text{mbar}$ (auch bei geöffneten Fallen)
Pirani-Vakuumsonde Penningvac-Vakuumsonde	Thermovac TR 201/205/206 PR 25/35/36 (im Zentralbereich)	$p = 10^{-3} - 10^3\text{mbar}$ $p = 10^{-10} - 10^{-3}\text{mbar}$ Leybold AG, Köln
Multifunktions-Display Baratron Vakuumsonde	Combivac CM 31 Datametrics Barocel Pressuresensor Typ 600A-100T-R12-H21x-4 Typ 600A-1000T-R12-H21x-4	am Ausgang der MoREx $0\text{Torr} < p < 100\text{Torr}$ $0\text{Torr} < p < 1000\text{Torr}$
Manometer	Typ 3A001 DIN 16008 öl- und fettfrei	$-1\text{bar} \leq p \leq 6\text{bar}$ am Stickstoffeingang und in beiden Kohlefallen
Gasflußmesser	Metallkonus-Flußmesser D10A5487EA 9609N1478/1	Bailey, Fischer & Porter

Tabelle A.2: Technische Daten der MoREx, Teil II

Feuchtigkeitfilter	(leer)	(im Kessel)
Partikelfilter	Milipore Watguard II Teflon, F-40 Inline für Partikel $\leq 0,003\mu\text{m}$	l: 12 cm $\varnothing = 38,48\text{cm}^2$
Getterpumpe Kartusche	SAES SORB-AC GP100-MK4-4 SAES SORB-AC C100-MK2-ST707  Arbeitsdruck	70% Zr, 10% Vd und 20% Fe nach 100 % Aktivierung (450°C, 45 min) $10^{-4}\text{mbar} - 10^{-12}\text{mbar}$
Aktivkohlefallen  Aktivkohle F3 & F4 Carbo-Act International F3: 0,85-1,18 mm, 800 – 1000m <sup>2</sup> /g F4: 1,18-2,8 mm, 800m <sup>2</sup> /g Volumenanteil: F3:F4 = 1:2	Fallen I + II  Kesselfalle  Transportfalle	m = (156,4 ± 1,0) g V = 1257 cm <sup>3</sup> $\varnothing = 80\text{ mm}$ A = 50,265 cm <sup>2</sup> h = 250 mm m = (60,9 ± 1,0) g V = 750 cm <sup>3</sup> $\varnothing = 55\text{ mm}$ A = 23,758 cm <sup>2</sup> h = 220 mm m = (0,8 ± 0,05) g V = 3,387 cm <sup>3</sup> $\varnothing = 14\text{ mm}$ A = 1,539 cm <sup>2</sup> h = 22 mm

## A.2 Meßergebnisse

Tabelle A.3: Blanks der Zählrohrfüllapparatur in Heidelberg: In der oberen Hälfte sind die Meßergebnisse in Sättigung eingetragen. In der unteren Hälfte sind Kontrollmessungen aufgelistet (nachdem die Füllanlage zuvor durch eine hohe Aktivität belastet war, wurde mit den aufgeführten Messungen untersucht, ob und wieviel Radon in der Anlage zurückgeblieben war. Der Anteil liegt bei ca. 1%).

Sample	Nr.	Füll-zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{Füll}$ )	Akt. [ $\mu Bq$ ]	Fehler	
Blank der	1	01.07.97 16:00	99,5%	54 ± 15	27,3%	
Zählrohr- füllanlage	4	22.07.97 18:05	99,4%	72 ± 18	24,3%	
	5	25.07.97 19:20	99,5%	115 ± 24	20,5%	
	22	26.0.97 13:12	99,4%	47 ± 13	26,8%	
	31	05.11.97 14:05	99,5%	16 ± 7	44,8%	<b>Gew. Mittelwert</b>
	100	06.05.98 17:00	99,5%	58 ± 16	27,8%	37,3 ± 3,5 $\mu Bq$
<b>Blank der Komponenten nach Standard (ohne ausheizen)</b>						
MS-Falle	11	13.08.97 18:00	15,1%	198 ± 44	22,2%	
	57	02.01.98 19:10	99,4%	379 ± 86	22,7%	
Rn-Falle + Geiger	56	02.01.98 17:50	99,4%	477 ± 97	20,3%	
H <sub>2</sub> O-Falle	66	12.01.98 17:02	99,2%	1410 ± 700	17%	
<b>Blank der Füllanlage nach Standard (236,6 ± 3,8 mBq)</b>						
ohne ausheizen	37	19.11.97 17:07	99,5%	693 ± 57		
mit ausheizen	54	31.12.97 11:54	99,4%	55 ± 23	42,7%	

Tabelle A.4: Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit der Zählrohrfüllapparatur in Heidelberg. Die Radon-Emanation einer Radiumchloridlösung ( $A = 236,6 \pm 3,8 mBq$ ) wurde mit unterschiedlichen Zählrohren gemessen.

Zähl- rohr	Nr.	Füll-zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{Füll}$ )	Akt. [mBq]	Fehler	$Eff_{Tot}$ [%]
# 125 SC	53	30.12.97 18:15	75,4%	237,3 ± 5,6	2,4%	147,4 ± 2,9
# 124 SC	55	02.01.98 17:18	41,1%	233,0 ± 6,3	2,7%	144,7 ± 3,5
# 172 SF	61	07.01.98 15:00	57,3%	239,4 ± 5,9	2,5%	148,7 ± 3,2
# 131 SC	65	12.01.98 15:35	57,9%	239 ± 5,9	2,5%	148,5 ± 3,1
<b>stat. Mittelwert:</b>						147,4 ± 1,8

Tabelle A.5: Blanks der einzelnen Komponenten der MoREx. Der Wert der simulierten Extraktionsprozedur gibt den tatsächlichen Untergrund einer Extraktion an. Alle übrigen Werte sind Sättigungswerte.

Sample	Nr.	Füll-zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{Füll}$ )	Akt. [ $\mu Bq$ ]	Fehler	
Getter	46	09.12.97 16:45	47,8%	234 ± 81	34,6%	
(vorher ausgeheizt)	64	09.01.98 18:25	99,3%	49 ± 26	52,1 %	
Filter	6	30.07.97 21:40	21,8%	-54 ± 124	228,2%	
	12	18.08.97 20:35	56,4%	155 ± 69	44,8%	
	85	06.03.98 18:30	74,8 %	43 ± 29	67,8 %	
Kesselfalle	8	05.08.97 20:35	72,1%	1,5 ± 48	3123,1 %	
	16	01.09.97 20:15	91,7%	8 ± 37	487,6%	
Aktivkohlefalle I	84	05.03.98 17:55	68,4%	70 ± 33	47,6 %	
Aktivkohlefalle II	3	11.07.97 16:20	54,7%	97 ± 68	70,0%	
	13	19.08.97 20:20	62,7%	33 ± 57	175,2%	
	63	08.01.98 16:00	96,6%	31 ± 26	83,2%	gew. Mittelwert 49,2 ± 14,8 $\mu Bq$
	82	27.02.98 17:50	95,2%	51 ± 24	48,2 %	39,2 ± 22,8 $\mu Bq/g$
Verdampfer	86	09.03.98 17:40	55,9%	28600 ± 1180	4,1 %	
	92	18.03.98 00:15	49,3%	19840 ± 1110	5,6 %	
Cu-Leitung	91	16.03.98 21:55	39,4%	410 ± 92	22,4 %	
normale Prozedur 1 atm N <sub>2</sub> in Falle 2 (ca 1h)	33	12.11.97 01:15	99,2%	19 ± 20	104,4%	

Tabelle A.6: Messung der Übertragungsrate der MoREx mit Standardaktivitäten.

Sample	Nr.	Füll-zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{Füll}$ )	Akt. [ $mBq$ ]	Fehler	Übertragungsrate [%]
Standard 1 134,6 mBq + 30 m <sup>3</sup> N <sub>2</sub>	36	19.11.97 14:30	81,0%	136,2 ± 7,7	3,4%	93,4 ± 5,3
Standard 2 237 mBq + 38 m <sup>3</sup> N <sub>2</sub>	70	17.01.98 17:15	38,6%	119,8 ± 8,5	2,3%	103,4 ± 7,3

Tabelle A.7: Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit im LNGS. Die Totale Nachweiswahrscheinlichkeit der Zählrohrfüllanlage sowie die Übertragungsrate der MoREx sind hier in einer Tabelle zusammengefaßt.

Sample	Nr.	Füll-zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{F\ddot{u}ll}$ )	Akt. [mBq]	Fehler	Übertragungsrate [%]
ZR-Füllanlage 127mBq-Standard	009(gs)	30.07.98 18:40	97,3%	$21,9 \pm 3,6$	2,8%	$17,32 \pm 0,51$
ZR-Füllanlage 13,2mBq-Standard	017(gs)	18.08.98 18:40	97,7%	$2,32 \pm 0,79$	2,8%	$17,56 \pm 1,66$
<b>stat. Mittelwert:</b>						$17,44 \pm 1,40$
MoREx 127mBq + 31m <sup>3</sup> SPGN	019(gs)	21.01.98 19:10	80,4%	$19,2 \pm 2,4$	2,3%	$17,7 \pm 3,7\%$ absolut 101 ± 21 relativ

Tabelle A.8: Emanationsmessungen: Sättigungswerte der Radonemanation einzelner Materialien und Komponenten.

Sample	Nr.	Füll-zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{F\ddot{u}ll}$ )	Akt. [µBq]	Fehler	relative Aktivität
Silicagel + Stärke	75	10.02.98 14:59	70,3%	$1.147 \pm 115$	10,0%	$10,9 \pm 1,1$ mBq/kg
	76	13.02.98 16:00	41,3%	$1.072 \pm 129$	12,0%	$10,2 \pm 1,2$ mBq/kg
PTFCE 302	119	06.07.98 20:55	42,6%	$138 \pm 87$	82,3%	$-40 \pm 420$ µBq/m <sup>2</sup>
	123	10.07.98 16:00	49,8%	$128 \pm 55$	42,9%	$-80 \pm 290$ µBq/m <sup>2</sup>
Sicherheits- ventil 0,5bar	114	23.06.98 13:45	65,2%	$93 \pm 38$	40,7%	
	117	01.07.98 14:40	74,7%	$58 \pm 32$	55,1%	
3 m Federbalg	008(gs)	28.07.98 19:07	51,4 %	$146 \pm 310$	212,2%	
	010(gs)	01.08.98 19:05	51,4 %	$379 \pm 351$	92,7%	
FLOWSTAT Drosselventil	118	03.07.98 17:30	26,7%	$91 \pm 85$	93,4%	
	121	08.07.98 16:55	58,5%	$56 \pm 40$	71,0%	
	124	13.07.98 16:35	80,3%	$103 \pm 39$	37,6%	

Tabelle A.9: Ergebnisse der mit MoREx in Heidelberg durchgeführten Stickstoffuntersuchungen.

Sample	Nr.	Füll- zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{P\text{füll}}$ )	Akt. [ $\mu Bq$ ]	Fehler	Aktivität [ $\mu Bq/m^3$ ]
SPGN aus der Gasphase des Lagertanks						
$(36 \pm 3)m^3$	27	25.10.97 01:30	92,8%	$3110 \pm 135$	4,3%	$73,2 \pm 10,2$
Tank aufgefüllt am 13.11.97						
$(45 \pm 0,1)m^3$	34	15.11.97 01:30	90,6%	$2690 \pm 150$	4,2%	$48,1 \pm 3,3$
$(50 \pm 0,1)m^3$	39	27.11.97 15:20	81,2%	$3660 \pm 170$	4,6%	$54 \pm 6$
SPGN aus der flüssigen Phase des Lagertanks						
$(106 \pm 0,5)m^3$	95	25.03.98 02:20	79,4%	$18520 \pm 730$	3,9%	$144 \pm 14$
HPGN aus der flüssigen Phase des Tanks, gereinigt im LTA (111 Aktivkohle)						
$102 m^3$	87	13.03.97 01:30	93,9%	$799 \pm 79$	9,9%	$2 \pm 2$
$103 m^3$	97	27.03.98 22:20	80,3%	$3490 \pm 130$	3,9%	$25 \pm 3$
SPGN aus 12-Flaschen-Gebinde, $\approx 200$ bar Anfangsdruck						
$(40 \pm 0,1)m^3$	49	12.12.97 16:10	81,5%	$49800 \pm 1600$	3,2%	$1038 \pm 100$
$(\approx 100$ bar Anfangsdruck) $20 m^3$	68	14.01.98 13:10	82,0%	$48200 \pm 1500$	3,1%	$2096 \pm 194$
(Gesamtaktivität des Gebindes $\approx 128 \pm 8mBq$ )						
SPGN aus einer einzelnen Gasflasche, $\approx 200$ bar Anfangsdruck						
$10,7 m^3$	94	21.03.98 23:55	77,8%	$2030 \pm 15$	6,2%	$189 \pm 12$

Tabelle A.10: Ergebnisse der mit der MoREX im LNGS durchgeführten Stickstoffuntersuchungen. Die Werte des SPGN aus dem Tank sind Obergrenzen, da der Blank Installationen (z.B. Verdampfer) noch nicht bestimmt werden konnte.

Sample	Nr.	Füll- zeitpunkt	%d.Sätt.-Akt. (ZR, $t_{P\text{füll}}$ )	Akt. [ $\mu Bq$ ]	Fehler	Aktivität [ $\mu Bq/m^3$ ]
SPGN (Tank 2 (aufgefüllt am 31.07.98) und Heizverdampfer)						
$(40 \pm 0,3)m^3$	012(gs)	08.08.98 17:20	83,5%	$13700 \pm 3040$	22,3%	$342 \pm 76$
SPGN (Tank 2 (aufgefüllt am 31.07.98), hinterer atmosphärischer Verdampfer, Gasheizer)						
$(40 \pm 0,5)m^3$	015	13.08.98 19:05	79,4%	$9290 \pm 4470$	48,1%	$232 \pm 112$
$(40 \pm 0,5)m^3$	018	19.08.98 19:05	81,0%	$23400 \pm 5870$	23,4%	$584 \pm 147$
SPGN (Einzelflaschen, $\approx 190$ bar Anfangsdruck)						
$9,5 m^3$	013	11.08.98 17:20	82,4%	$478 \pm 1230$	256%	$50 \pm 129$
$9,5 m^3$	016	14.08.98 20:12	80,3%	$4870 \pm 1430$	27,1%	$513 \pm 150$

# Literaturverzeichnis

- [Bah89] J.N. Bahcall:  
*Neutrino-Astrophysics*,  
Cambridge University Press, New York, 1989
- [Bah96] J.N. Bahcall:  
*Solar Neutrinos: Where We Are, Where We Are Going*,  
Astrophysical Journal **467**, 475 (1996)  
sowie im WorldWideWeb:  
*Solar Neutrino Viewgraphes - The three solar neutrino problems*  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/SNviewgraphes/snviewgraphes.html>
- [BP92] J.N. Bahcall, M.H. Pinsonneault:  
*Standart Solar Models, With and Without Helium Diffusion,  
and the Solar Neutrino Problem*,  
Review of Modern Physics 64 (1992) 885
- [BP95] J.N. Bahcall, M.H. Pinsonneault:  
*Solar Models with Helium and heavy Element Diffusion*,  
Review of Modern Physics D 67 (4) 781-808 (1995)
- [BP98] J.N. Bahcall, S. Basu, M.H. Pinsonneault:  
*How uncertain are solar neutrino predictions*,  
submitted to Elsevier Preprint, astro-ph/9805135, 24. Mai 1998  
sowie im WorldWideWeb:  
*Solar Neutrino Viewgraphes - The three solar neutrino problems*  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/SNviewgraphes/snviewgraphes.html>
- [BaK97] J.N. Bahcall, P.I. Krastev:  
*Does the sun appear brighter at night in neutrinos?*  
Physics Review C 56 (1997) 2839,  
sowie im WorldWideWeb:  
*John Bahcall Homepage - Solar Neutrino Viewgraphs*  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/SNviewgraphes/MSWallowed4bw.ps>.
- [BaK98] J.N. Bahcall, P.I. Krastev:  
*Do hep neutrinos affect the solar neutrino energy spectrum?*  
submitted to Elsevier Preprint, hep-ph/9807525 v2, 30. Juli 1998  
sowie im WorldWideWeb:  
*John Bahcall Homepage - Solar Neutrino Viewgraphs*  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/Papers/Preprints/HEP/paper.ps>

- [BKS98] J.N. Bahcall, P.I. Krastev, A.Yu. Smirnov:  
*Where do we stand with solar neutrino oscillations?*  
submitted to Elsevier Preprint, hep-ph/9807216v2, 4. August 1998  
sowie: *Neutrino Oscillation - New physics in solar neutrino experiments?*  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/Papers/Preprints/SKplus/paper.ps>
- [Ben96] J. Benzinger, F.P. Calaprice, M.C. Chen, R.A. Eisenstein, R.B. Vogelaar:  
*Proposal for the Borexino Solar Neutrino Experiment*,  
Princeton University, Princeton, New Jersey, USA,  
research proposal to the NSF, 1996
- [Bet39] H.A. Bethe:  
*Energy Production in Stars*,  
Physics Review 55 (1939) 434-456,
- [Bli94] C. Bliefert:  
*Umwelchemie*,  
VCH, Weinheim 1994
- [Boc88] R. Bocanegra, P.K. Hopke:  
*Radon adsorption on activated carbon and the effect of some airborne contaminants*,  
Sci. Tot. Env. 76 (1988) 193
- [Bon94] S. Bonetti et al.:  
*222-Rn emission from some materials in the CTF*,  
interner BOREXINO-Report, 1994
- [Bor91] G. Alimonti et al. (Borexino-Collaboration):  
*BOREXINO at Gran Sasso -*  
*Proposal for a real time detector for low energy solar neutrinos*,  
ed. by G. Bellini et al., Univ. Milano, R. Raghavan, AT&T Bell Labs.,  
August 1991
- [Bor97] G. Alimonti et. al. (Borexino-Collaboration):  
*Status Report on the Borexino experiment*,  
Interner Borexino-Report, Dezember 1997
- [Bor98I] G. Alimonti et. al. (Borexino-Collaboration):  
*Ultra-low background measurement in a large volume underground experiment*,  
Astroparticle Physics 8 (1998) 141
- [Bor98II] G. Alimonti et. al. (Borexino-Collaboration):  
*A large scale low background liquid scintillator detector:*  
*The Counting Test Facility at Gran Sasso*,  
Nuclear Instruments and Methodes A 406 (1998) 411
- [Bru76] M. Bruns:  
*Gas-Chromatographie mit Radon-222*,  
Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1976

- [BXN98II] Borexino-Kollaboration:  
Borexino-News, Februar 1998
- [Cal95] E. Calabresu, N. Ferrari, G. Fiorentini, M. Lissia:  
*Just so? Vacuum oscillations and MSW: an update,*  
Astroparticle Physics 4 (1995) 159
- [Cri97] M. Cribier (for the Gallex Collaboration):  
*Present final results of GALLEX,*  
Vortrag bei „Topics of Astroparticle and Underground Physics 97“  
LNGS, Assergi, September 1997, sowie:  
*Results of the whole GALLEX experiment,*  
Nuclear Physics B (Proc.Suppl.) 70 (1999) 284–291
- [Fre98] B. Freudiger:  
*MoREx-Documentation and User Manual,*  
MPI Kernphysik, Heidelberg 1998
- [Foc94] R. Fockenbrock:  
*Beiträge zur Eichung der im solaren Neutrino-Experiment GALLEX verwendeten  
HD-II Proportionalzählrohre,*  
Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1994
- [FZK95] W. Seelmann-Eggebert et al.:  
*Nuklidkarte,*  
Forschungszentrum Karlsruhe, 6. Auflage, 1995
- [GAL96] GALLEX-Collaboration, W. Hampel et. al.:  
*GALLEX solar neutrino observations: results for GALLEX III,*  
Physics Letters B, 1996
- [GAL98I] Gallex-Collaboration, W. Hampel et. al.:  
*Final Results of  $^{51}\text{Cr}$ -Source experiments in GALLEX,*  
Physics Letters B 420 (1998) 114-126
- [GAL98II] Gallex-Collaboration, W. Hampel et. al.:  
*Verification test of the GALLEX solar neutrino detector,  
with  $^{71}\text{Ge}$  produced in-situ from the beta-decay of  $^{71}\text{As}$ ,*  
submitted to Physics Letters B, May 1998
- [Gia97] M. Giammarchi:  
*Low background liquid scintillator in Borexino,*  
Vortrag bei „National Workshop on Dark Matter“, Triest, Italien, Dezember 1997  
sowie im WorldWideWeb:  
<http://www.almime.mi.infn.it/html/papers/index.html>
- [Gol93] T. Goldbrunner:  
*Untersuchung zur Eigenradioaktivität des Sonnenneutrino-Experiments Borexino,*  
Diplomarbeit, Technische Universität München, 1993
- [GONG98] GONG-Collaboration:  
*Global Oscillation Network Group Homepage,*  
Im WorldWideWeb: <http://helios.tuc.noao.edu.gonghome.html>

- [HaL98] N. Hata, P. Langacker:  
*Implications of solar neutrino experiments,*  
Im WorldWideWeb: <http://dept.physics.upenn.edu/~www/neutrino/ssm.html>
- [Ham87] W. Hampel:  
*Zur Interpretation des mit einem Gallium-Detektor meßbaren  
Sonnenneutrino-Signals,*  
Habilitationsschrift, Universität Heidelberg, 1987
- [HCP75] R.C. Weast (Editor):  
*Handbook of Chemistry and Physics,*  
CRC-Press, Cleveland, Ohio, 55. Edition 1974-1975
- [Heu95] G. Heusser:  
*Low-radioactivity background techniques,*  
Annual Review of Nuclear and Particle Science, 1995, 45, Seiten 543-90
- [Heu97] G. Heusser:  
*persönliche Mitteilungen 1997 – 1998*
- [Kir97] T. Kirsten:  
*Gallez Solar Neutrino Results,*  
Proceedings of the Erice School on Nuclear Physics, 19th cours, 16.-24.9.1997  
„Neutrinos in Astro, Particle and Nuclear Physics“  
sowie: Progress of Nuclear and Particle Physics, 40 (1998) 85-99
- [Kop92] H. Kopka:  
*L<sup>A</sup>T<sub>E</sub>X: eine Einführung,*  
Addison-Wesley, Bonn, München, Paris, 4. überarb. u. erw. Aufl., 1992
- [Kuc88] H. Kuchling:  
*Physik - Formeln und Gesetze,*  
Buch- und Zeit Verlags-GmbH, Köln, 20. Auflage 1988
- [Kum72] F.H. Kummer, R.W. Stoenner, R. Davis jr.:  
*Construction of miniaturize low level proportional counters,*  
BNL 16972, Upton N.Y., Brookhaven National Lab., 1972
- [Lau96] M. Laubenstein:  
*Messung von 222-Rn und 226-Ra im Rahmen der Counting Test Facility des  
Sonnenneutrinoexperimentes BOREXINO,*  
Dissertation, Universität Heidelberg, 1996
- [Len87] A. Lenzing:  
*Konzeption und Aufbau einer Anlage zur Bestimmung des Radiumgehaltes von  
Galliumchloridlösung im Rahmen des Gallium-Solar-Neutrino-Experiments,*  
Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1987

- [Ned98] H. Neder:  
*Ein Low-Level-Germanium-Spektrometer:  
Aufbau, erste Messungen und Simulationen,*  
Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1998
- [Nef96] M. Neff:  
*Untersuchungen zum Untergrund durch Radioaktivität und kosmische Strahlung  
im Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO,*  
Diplomarbeit, Technische Universität München, 1996
- [Pla89] R. Plaga:  
*Proportionalzählrohre mit geformter Siliziumkathode und damit zusammen-  
hängende Beiträge zum Gallium-Solar-Neutrino Experiment,*  
Dissertation, Universität Heidelberg, 1989
- [Pel98] J. Peltoniemi:  
*The Ultimate Neutrino Page,*  
regelmäßig aktualisierte Zusammenfassung und Darstellung der experimentellen  
und theoretischen Daten für atmosphärische, solare und Supernova-Neutrinos;  
im WorldWideWeb: <http://www.physics.helsinki.fi/neutrino/>
- [Pro96] B. Prokosch:  
*Aufbau eines Low-Level-Germaniumspektrometers mit Simulationsrechnungen zur  
Nachweiswahrscheinlichkeit,*  
Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1996
- [Rag95] R.S. Raghavan:  
*Solar Neutrinos - From Puzzle to Paradoxon,*  
Science 267 (1995) 45
- [Rau95] W. Rau:  
*Entwicklung und Bau eines neuen Typs von GALLEX-Zählrohren und Untersu-  
chung zu den Daten des NaJ-Paarspektrometers,*  
Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1995
- [Rau97] W. Rau:  
*persönliche Mitteilungen 1997 - 1998*
- [Rei59] F. Reines, C.L. Cowan:  
Physics Review 113 (1959) 446
- [Sch97] N. Schmitz:  
*Neutrino-physik,*  
Teubner Studienbücher: Physik, Stuttgart 1997
- [SK98] Superkamiokande:  
*Homepage der Superkamiokande-Kollaboration, im WorldWideWeb:*  
<http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/index.html>
- [SNC97] W. Hampel (Ed.) et al.:  
*Proceedings of 4. International Solar Neutrino Conference,*  
MPI Kernphysik, Heidelberg, 1997

- [Tur93] S. Turck-Chiéze, W. Däppen, E. Fossat, J. Provost, E. Schatzmann, D. Vignaud:  
*The solar interior*,  
Physics Reports Vol. 230 No.2-4; North Holland 8/1993
- [Win88] R. Wink:  
*Low-Level  $^{71}\text{Ge}$ -Nachweis*,  
Dissertation, Universität Heidelberg, 1988
- [Win93] R. Wink, P. Anselmann, D. Dörflinger, W. Hampel, G. Heusser, T. Kirsten,  
P. Mögel, E. Pernicka, R. Plaga, C. Schlosser:  
*The miniaturized proportional counter HD-II(Fe)/(Si) for the GALLEX solar  
neutrino experiment*,  
Nuclear Instruments and Methodes A 329 (1993) 541
- [Woj98] M. Wojcik, G. Zuzel:  
*Adsorption of radon from liquid nitrogen stream on charcoal*,  
Vortrag, Borexino Meeting, Perugia, May 1998  
sowie persönliche Mitteilungen

Diese Diplomarbeit wurde geschrieben mit L<sup>A</sup>T<sub>E</sub>X 2 $\epsilon$  [Kop92].

## Die BOREXINO - Kollaboration

*Raju S. Raghavan,*  
AT&T Bell-Laboratories, Lucent Technologies  
Murray Hill NJ, USA

*L. Cser, D. Kiss, Istvan Manno, G. Marx*  
Research Institute for particle and Nuclear Physics, KFKI-RMKI,  
Budapest, Ungarn

*Flavio Gatti, V. Lagomarsino, Giulio Manuzio, Paolo Musico, Armida Nostro,*  
*A. Razeto, Elisa Resconi, C. Salvo, Gemma Testera, Sandro Vitale,*  
Universita de Genova e INFN,  
Genua, Italien

*Oleg Smirnov, Albert Sotnikov, Oleg Zaimidoroga,*  
Joint Institut of Nuclear Research,  
Dubna, Russland

*Martin Wojcik, G. Zuzel*  
Uniwersytet Jagoiellonski,  
Krakow, Polen

*Christina Arpesella, Marco Balata, A. Falgiani, A. Goretti, Aldo Ianni,*  
*Matthias Laubenstein, S. Nisi, Roberto Tartaglia,*  
INFN - Laboratori Nazionali del Gran Sasso,  
Assergi (AQ), Italien

*Burkhard Freudiger, Wolfgang Hampel, Johann Handt, Gerd Heusser,*  
*Jürgen Kiko, Till Kirsten, Hermino Neder, Wolfgang Rau, Yuriy Zakharov<sup>1</sup>*  
Max-Planck-Institut für Kernphysik,  
Heidelberg, Deutschland.

*Gianluca Alimonti, Gianpaulo Bellini (spokesman), Silvia Bonetti, A. Brigatti,*  
*Barbara Caccianiga, Roberto Dossi, Christiano Galbiati, A. Garagiola,*  
*Marco G. Giammarchi, Danilo Giugni, Alexej Golubchikov, Frank X. Hartman,*  
*G. Korga, Paulo Lombardi, Stefano Magni, Sandra Malvezzi, José Maneira,*  
*Emanuela Meroni, L. Perasso, G. Pieri, Gioacchino Ranucci, P. Saggese,*  
*Roberto Scardaoni,*  
Dipartimento di Fisica, Universita di Milano e INFN,  
Mailand, Italien

---

<sup>1</sup>ständige Adresse: INR, Troitsk, Russland

*Franz von Feilitzsch, Caren Hagner, Tanja Hagner, Roger von Hentig,  
E. Kellner, Günther Korschinek, Marianne Neff,  
Lothar Oberauer, Steffan Schönert, Karl Heinz Schuhbeck,*  
Physik Department E15, Technische Universität München,  
Garching b. München, Deutschland

*Martin Deutsch,*  
Massachusetts Institute of Technology,  
Cambridge, MA, USA

*Robert Eisenstein,*  
National Science Foundation,  
Arlington, VA, USA

*Giorgio Cecchet, Antonio De Bari, Angelo Perotti, Giuseppe Sau,*  
Universita di Pavia & INFN,  
Pavia, Italien

*Fausto Elisei, Ugo Mazzucato, Fausto Masetti*  
Universita di Perugia,  
Perugia, Italien

*Jay Benzinger, Michael Johnson, Frank P. Calaprice, Marc Chen,  
Laura Cadonati, Richard Fernholz, R. Parsells, R. Walls*  
University of Princeton,  
Princeton, NJ, USA

*Robert Bruce Vogelaar,*  
Virginia Polytechnic Institute and State University  
Blacksburg, VA, USA

# Danksagung

Eine experimentelle Diplomarbeit, wie sie hier dargestellt wurde, läßt sich in heutiger Zeit nicht allein auf die Arbeitsleistung des Kandidaten zurückführen. Gruppen und Einzelpersonen haben in unterschiedlichem Umfang mit zum Gelingen beigetragen.

Ich danke der Max-Planck-Gesellschaft und insbesondere dem Direktorium des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg für die guten äußeren Bedingungen, unter denen die Arbeit stattfand.

Herr Prof. Dr. Till Kirsten ermöglichte mir, im internationalen Kreis junger und junggebliebener Wissenschaftler bei einem faszinierenden Projekt mitzuarbeiten, Erfahrungen zu sammeln und mehrfach im LNGS zum Einsatz zu kommen.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Wolfgang Hampel für seine Vorlesungen, in denen er mein Interesse für die Teilchenastrophysik geweckt hat, für die Betreuung dieser Arbeit und die vielen Einblicke, die ich durch ihn in die Welt der Sonnenneutrino-physik gewinnen konnte.

Herr Dr. Gerd Heusser war immer da, wenn es „zur Sache ging“. An seinen reichhaltigen Erfahrungsschatz der Experimentierkunst teilhaben zu dürfen, war und ist immer wieder aufs Neue spannend und lehrreich.

Viele Stunden habe ich mit Herrn Dipl.Phys. Wolfgang Rau verbracht. Ich habe seine Geduld wohl manchmal ziemlich auf die Probe gestellt (manchmal fällt der Groschen eben langsam... doch er fällt!). Dafür, für seine ständige Hilfsbereitschaft und seine hilfreichen Anregungen bei der Fertigstellung dieser Arbeit danke ich ihm.

Herr Dipl.Phys. Hermino Nader hatte „das Glück“, mit mir das Büro zu teilen. Durch ihn habe ich viel Hilfe erfahren, wenn der Computer mal wieder nicht tat, was er sollte. Und er fand die Zeit, diese Arbeit noch zu redigieren.

Am LNGS durfte ich auf die freundliche Unterstützung von Herrn Dr. Matthias Laubenstein und Herrn Dipl.Phys. Johann Handt zurückgreifen: Dolmetschen, Organisieren, Fahrdienste, ein Dach über dem Kopf und gefüllte Zählrohre haben mir die Arbeit unheimlich erleichtert.

Liebe und geduldige Nachbarn waren die Herren Erich Borger, Erhard Burkert, Peter Mögel und Hannes Richter, auch wenn ich zum x-ten mal wegen irgendeiner Kleinigkeit zu ihnen kam.

Ich danke den Herren Dieter Dörflinger und allen Mitarbeitern der Werkstatt, die bei der Verwirklichung der Ideen unverzichtbar waren und die gute Arbeit geleistet haben.

I wish to thank all members of the BOREXINO-Collaboration, the GALLEX-Collaboration and the GNO-Collaboration for many fascinating and motivating conversations about physics, geography, history, religion, politics, ....

Mit den Herren Dipl.Phys. Markus Fiebig, Dipl.Phys. Georg Guthermuth und Michael Kollak verbindet mich Freundschaft seit dem ersten Tag im Hörsaal. Ohne die gemeinsamen Lerngruppen, Reisen, Teestunden, Besuche im Pub, Büffelei vor den Prüfungen und andere schöne Dinge wäre das Studium sicher verdammt langweilig geworden.

Zu guter Letzt danke ich meinen Eltern, Herrn Hans-Joachim und Frau Uta Freudiger. Sie haben mich während meiner ganzen Studienzeit unterstützt, finanziert, ermutigt und an mich geglaubt.

