

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

vorgelegt von
Dipl. Phys. Burkhard Freudiger
aus Nordhorn

Tag der mündlichen Prüfung: 9. Juli 2003

**Untersuchungen zu den
radioaktiven Edelgasnukliden
als Untergrundquellen im
Sonnenneutrino-detektor
BOREXINO**

Gutachter:

Prof. Dr. Till A. Kirsten
Prof. Dr. Ulrich Platt

Untersuchungen zu den radioaktiven Edelgasnukliden als Untergrundquellen im Sonnenneutrinodetektor BOREXINO

Die Erforschung von Neutrinos hat sich als wirkungsvoller Ansatz zur Überprüfung des Standardmodells der Elementarteilchenphysik erwiesen. Die Befunde aller Sonnenneutrinomessungen weisen auf eine nichtverschwindende Ruhemasse hin, wodurch Flavor-Konversion ermöglicht wird. BOREXINO ist ein Szintillationsdetektor, der speziell den Fluß der monoenergetischen ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos aus der solaren pp -Fusionskette spektroskopisch untersuchen soll. Eine experimentelle Herausforderung ist die erforderliche Reduktion des radioaktiven Untergrundes, unter anderem die Vermeidung der in der Umgebungsluft vorkommenden radioaktiven Edelgasnuklide ${}^{222}\text{Rn}$, ${}^{85}\text{Kr}$ und ${}^{39}\text{Ar}$. Sie müssen vor allem aus dem Spülgas Stickstoff entfernt werden. Ansätze zur gaschromatographischen Reinigung werden untersucht. ${}^{222}\text{Rn}$ tritt zudem als Tochter von ${}^{226}\text{Ra}$ in den Detektorkomponenten auf. Mit umfangreichen Emanationsmessungen, mittels bereits bestehender Geräte, kann im Rahmen dieser Arbeit zur Abschätzung des Untergrundes und zur Optimierung des Detektorbetriebes beigetragen werden.

Investigation of radioactive noble gas nuclides as background source in the solar neutrino detector BOREXINO

The investigation of neutrinos has become a powerful approach to test the particle physics standard model. All results of solar neutrino measurements point to a nonvanishing neutrino rest mass, with flavor conversion of propagating neutrinos. The scintillation detector BOREXINO is specially built to spectroscopically measure the flux of the monoenergetic ${}^7\text{Be}$ neutrinos from the solar pp fusion chain. An experimental challenge is the required reduction of radioactive background, in particular the prevention of the radioactive noble gas nuclides ${}^{222}\text{Rn}$, ${}^{85}\text{Kr}$ and ${}^{39}\text{Ar}$, which are present in ambient air. Special requirements are set to nitrogen, used as the purification gas. New approaches for gas chromatography in purification and measurement are applied. Furthermore ${}^{222}\text{Rn}$ is emanated from all detector components by means of emanation from ${}^{226}\text{Ra}$. Numerous emanation measurements were performed, applying existing techniques and devices, to understand the background sources, thus allowing to optimize the detector operations.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Abbildungsverzeichnis	III
Tabellenverzeichnis	V
Zur Einführung	VII
1 Sonnenneutrinophysik	1
1.1 Das Standardmodell der Teilchenphysik	1
1.2 Neutrinos	2
1.3 Sonnenneutrinophysik	4
1.4 Neutrino – Detektoren	7
2 Borexino	11
2.1 Neutrinomessung bei mittleren Energien	11
2.2 Der radioaktive Untergrund	15
2.3 Der Borexino – Detektor	17
2.3.1 Das Gran Sasso – Untergrundlabor	17
2.3.2 Die Detektorarchitektur	17
2.3.3 Die Counting Test Facility	20
2.3.4 Die Detektorperipherie	21
3 Radioaktive Edelgasnuklide	29
3.1 Radon, Krypton und Argon	30
3.2 Andere Gase	34
3.3 Chromatographie und Adsorption	35
3.3.1 Allgemeine Vorbemerkungen	35
3.3.2 Gaschromatographie	36
3.3.3 Ansatz zur Berechnung von Henry–Koeffizienten	37
3.3.4 Adsorption durch van–der–Waals–Wechselwirkung	38
3.3.5 Berechnung des Wechselwirkungskoeffizienten nach Maurer	40
3.4 Adsorptionsmessungen	41
3.4.1 Das Messsystem	41
3.4.2 Verlauf der Messung	42
3.4.3 Das Messsignal	43
3.4.4 Bestimmung des Adsorptionskoeffizienten in Helium	44
3.4.5 Bestimmung des Henry–Koeffizienten bei Adsorption aus Helium	45
3.4.6 Bestimmung des Adsorptionskoeffizienten in Stickstoff	46
3.4.7 Bewertung der Adsorptionsmessungen	48

4	Edelgasmessung mit Proportionalzählrohren	49
4.1	Probennahme: Methoden und Geräte	49
4.2	Probenaufbereitung und Zählrohrfüllen	50
4.3	Die Messelektronik am LNGS	51
4.4	Die elektrostatische Kammer	53
5	Radonmessungen im Detektorumfeld	55
5.1	Einfluss der Emanation auf die Neutrinomessung	56
5.2	Lagertanks 1, 2 und 4	56
5.3	PPO-System: Hoover-Tank 2 und D 330	67
5.4	Module Zero: Tanks und Silikagelsäulen	69
5.5	Skids: Säulen und Wärmetauscher	72
5.6	Filling Station: Tanks und Gasmodul	74
5.7	CTF: Radon im Gaspolster	77
6	Synthetische Luft	81
6.1	Atembares Gas aus Sicherheitsgründen	81
6.2	Emanationsmessungen der Komponenten der Luftversorgung	83
6.3	Abschätzung des Untergrundbeitrages durch das Spülgas	84
6.4	Radonnachweis in der synthetischen Luft	86
6.5	Argon- und Krypton-Gehalt in der synthetischen Luft	86
6.6	Gasaustausch in der Vessel	87
	Zusammenfassung	89
A	Anhang	1
	Tab. A.1: Kennzahlen einiger atmosphärischer Gase	1
	Abb. A.1: ^{238}U – Zerfallskette	2
	Abb. A.2: MOREX-Vakuumsystem	3
	Abb. A.3: Topologie des STRAW	4
	A.1 Gaschromatographie: Grundbegriffe und Formeln	5
	A.2 Berechnung eines scheinbaren Emanationsbeginns	7
	A.3 Gasreinigung in einem beliebigen Volumen	9
	Literaturverzeichnis	13
	Danksagung	23

Abbildungsverzeichnis

1.1	Überlebenswahrscheinlichkeiten für ein solares Elektroneneutrino	4
1.2	MSW-Lösungen im Δm^2 - $\tan^2 \theta$ -Parameterraum	5
1.3	Die Proton-Proton-Fusionskette	5
1.4	Das Sonnenneutrinospektrum	6
2.1	Simuliertes Spektrum in Borexino	12
2.2	Saisonale Variation des Neutrinosignals bei Vakuumoszillation	12
2.3	LNGS – die Experimentierhallen	17
2.4	Der BOREXINO – Detektor	18
2.5	Die Counting Test Facility	21
2.6	Detektorperipherie	22
2.7	Wasserreinigungssystem	23
2.8	Stickstoffversorgungsanlagen	24
2.9	Module Zero	25
2.10	Konzept der Reinigungsanlage „Skids“	26
2.11	Konzept der Filling Station	27
3.1	Übergänge von ^{85}Kr nach ^{85}Rb	32
3.2	Übergänge von ^{37}Ar nach ^{37}Cl bzw. von ^{39}Ar nach ^{39}K	33
3.3	Gaschromatographieanlage	42
3.4	Adsorption an Aktivkohle mit Helium	44
3.5	Bestimmung des Henry-Koeffizienten	45
3.6	Adsorption an Aktivkohle mit Stickstoff	47
3.7	Bestimmung des Henry-Koeffizienten mit Stickstoff	47
4.1	Gasaufbereitung und Zählrohrfüllung	51
4.2	Auslese-Elektronik und Datenaufnahme für Rn-Messungen	52
4.3	Elektrostatische Kammer: Aufbau und Spektrum	53
5.1	Anordnung der Szintillator-Lagertanks	58
5.2	Aktivität von ^{222}Rn im Lagertank 2	64
5.3	Aktivität von ^{222}Rn im Hoover Tank 2	69
5.4	Inspektion des ersten Gasmoduls der Filling Station	75
5.5	Inspektion des zweiten Gasmoduls der Filling Station	76
5.6	Rn im CTF-Blanket	78
6.1	Anschluss der Gasmischanlage	82
6.2	Emanation und Rn-Aktivität durch den Mischtank	84
6.3	Edelgase in der IV	88

A.1	Radioaktive Zerfallskette von ^{238}U	2
A.2	Das Vakuumsystem der MOREX	3
A.3	Topologie des STRAW	4

Tabellenverzeichnis

3.1	Kenngrößen der Gase Radon, Krypton und Argon	30
3.2	Vergleich der drei bedeutendsten Radon-Isotope	30
3.3	Produktionsreaktionen des ^{37}Ar und des ^{39}Ar	33
3.4	Vorhersage von H und α nach den Heliumabsorptionsmessungen	46
3.5	Vorhersage von H und α nach den Stickstoffadsorptionsmessungen	46
5.1	Emanationsmessungen des Lagertanks 1	59
5.2	Vergleich des Lagertank 1 mit den Emanationskammern	62
5.3	Emanationsmessungen des Lagertanks 2	63
5.4	Emanationsmessungen des Lagertanks 4	66
5.5	Emanationsmessungen des Hoover-Tank 2	68
5.6	Radonemanation der Silikagelsäulen des Module Zero	71
5.7	Emanation der anderen Komponenten im Module Zero	72
5.8	Emanationsmessung einzelner Baugruppen der Skids	73
A.1	Kennzahlen einiger atmosphärischer Gase	1

„Hast Du erkannt, wie breit die Erde ist?

Welches ist der Weg dahin, wo das Licht wohnt,

und welches ist die Stätte der Finsternis...?“

Die Bibel, Buch Hiob, 36,18

Zur Einführung

Neutrinos sind Elementarteilchen, deren Existenz 1931 von Wolfgang Pauli postuliert wurde, um die Erhaltungssätze beim β -Zerfall zu retten. Die direkte Messung von (Anti-)Neutrinos gelang erst 25 Jahre später durch F. Reines (Nobelpreis 1995) und C. Cowan. Seitdem hat sich die Neutrino-physik zu einem sehr dynamischen Forschungszweig entwickelt, dessen Erkenntnisse von fundamentaler Bedeutung für das tiefe Verständnis der Naturgesetze in der Elementarteilchenphysik, aber auch in der Astrophysik und Kosmologie geworden sind.

Die Sonne ist die stärkste Neutrinoquelle in unserer Umgebung. Bei der Kernfusion in ihrem Zentrum werden große Mengen niederenergetischer Neutrinos (bis 18 MeV) produziert, deren konstanter Fluss (ca. $10^{10} \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$) auf der Erde messbar ist. Der Aufbau der Sonne, die Energieproduktion und die sukzessive chemische Veränderung sind in den sogenannten „Standard-Sonnen-Modellen“ (SSM) zusammengefaßt. Aus ihnen lässt sich auch der Neutrinofluss dezidiert vorhersagen.

Die bisherigen Beobachtungen von solaren ν_e durch die Experimente Homestake (R. Davis¹ et al.), GALLEX / GNO und SAGE, Kamiokande (M. Koshiba¹ et al.) bzw. Superkamiokande und SNO weisen einen gegenüber der Vorhersage um einen Faktor 2–3 reduzierten Fluss auf (hierfür wurde der Begriff „Sonnenneutrino-Problem“ geprägt). Eichexperimente mit den Detektoren, Beobachtungen von Reaktor-neutrinos und Neutrinos aus der Atmosphäre und weitergehende Beobachtungen der Sonne (Helioseismologie) lassen die Ursache in den Eigenschaften der Neutrinos vermuten. Die bevorzugte Erklärung ist, dass die verschiedenen Neutrinos eine nichtverschwindende Ruhemasse haben, was erlaubt, dass die Flavours ν_e , ν_μ und ν_τ miteinander mischen („oszillieren“).

Verschiedene neue Neutrinodetektoren sind inzwischen im Aufbau, um die Neutrinoeigenschaften besser zu untersuchen. Sie sind sensitiv für alle Flavours, messen in Echtzeit und spektral, mit verbesserter Energieauflösung oder erlauben einfach den Nachweis mit höheren Zählraten als früher. Die Hauptaufgabe des Sonnenneutrinodetektors BOREXINO ist, die von der Sonne emittierten monoenergetischen ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos mittels Neutrino-Elektron-Streuung zu untersuchen. Der Detektor wird derzeit im italienischen Untergrundlabor LNGS in den Abruzzen aufgebaut. Er ist mit einer abgestuften Abschirmung konzipiert, die als unsegmentiertes Targetmaterial 300 t Flüssigszintillator umschließt.

Die erwarteten Zählraten liegen bei BOREXINO bei ca. 30 Neutrinoereignissen pro Tag. Um dieses Signal zu messen, muss der Untergrund durch radioaktive Nuklide trotz einer leistungsstarken Datenanalyse nachhaltig unterdrückt werden. Kosmische Strahlung wird durch Gestein (ca. 3300 m w.e.) abgeschirmt. Besonders störend sind weiterhin die primordialen Nuklide ${}^{238/235}\text{U}$ und ${}^{232}\text{Th}$ (mit ihren Zerfallsprodukten), ${}^{40}\text{K}$, ${}^{14}\text{C}$, ${}^7\text{B}$ und die Edelgase ${}^{222}\text{Rn}$, ${}^{85}\text{Kr}$ und ${}^{39}\text{Ar}$. Möglichkeiten zur Vermeidung und Reinigung wurden mit dem Pilotprojekt COUNTING TEST FACILITY (CTF) untersucht. Im Rahmen dieser Arbeit werden insbesondere Beiträge zur Reduktion des Untergrundes durch die Edelgasnuklide ${}^{222}\text{Rn}$, ${}^{85}\text{Kr}$ und ${}^{39}\text{Ar}$ dargestellt.

¹Eine Hälfte des Physik-Nobelpreis 2002 wurde zu gleichen Teilen R. Davis und M. Koshiba zugesprochen für „bahnbrechende Beiträge zur Astrophysik speziell für den Nachweis kosmischer Neutrinos“.

Kapitel 1

Sonnenneutrino-physik

1.1 Das Standardmodell der Teilchenphysik

Das „Standardmodell“ der Teilchenphysik kennt 24 Teilchen, die als „elementar“ gelten, 6 *Quarks* und 6 *Leptonen* sowie ihre Antiteilchen. Ihre Eigenschaften sind u.a. Masse, Spin, elektromagnetische Ladung und bei den Quarks die Farbladung. Theorien, die die Eigenschaften und Wechselwirkungen beschreiben, genügen den Regeln der Quantenmechanik und der Relativitätstheorie.

Die vier elementaren Wechselwirkungsarten sind der *Elektromagnetismus*, die *Schwache Wechselwirkung*, die *Starke Wechselwirkung* sowie die *Gravitation*. Die Wechselwirkung der Teilchen miteinander wird beschrieben als Austausch von Botenteilchen (sog. „Bosonen“), die Energie, Impuls oder Drehimpuls, Ladung oder ladungsartige Eigenschaften übertragen können. Während die ersten drei Wechselwirkungen direkt zwischen den Elementarteilchen stattfinden, verändert die Gravitation das Raum–Zeit–Kontinuum. Letztere ist wegen ihrer geringen Stärke bei mikroskopischen Massen in der Regel vernachlässigbar klein. Viele Eigenschaften der Bosonen werden von den verschiedenen Theorien sehr elegant vorhergesagt bzw. konnten inzwischen in verschiedensten Experimenten mit hoher Genauigkeit gemessen und verifiziert werden (eine aktuelle und umfassende Zusammenfassung der experimentellen Befunde findet sich bei [PDG02]).

Dieses Standardmodell erklärt zwar die Wechselwirkung, nicht aber die Eigenschaften der Elementarteilchen. Tatsächlich gibt es bis dato keine theoretische Grundlage für sie, so dass sie als empirische Befunde in die Modelle einfließen. Das eröffnet Raum für viele Fragen, etwa: Was ist „Masse“? Warum scheinen die Teilchen in Gruppen („Generationen“) eingeteilt zu sein? Was ist der Unterschied zwischen den geladenen schweren Leptonen e , μ und τ ? Haben Neutrinos eine elektrische Ladung? Gibt es linkshändige Antineutrinos und rechtshändige Neutrinos? Und sind die bekannten Fermionen wirklich elementar?

Es gibt verschiedene Ansätze, die diese Probleme eventuell lösen könnten: Higgsmechanismus, Supersymmetrie, Vereinheitlichung der Naturkräfte (sog. „Grand Unified Theories“ oder GUT's), Stringtheorien etc. Sie unterscheiden sich durch ihre qualitativen und quantitativen Vorhersagen, was ihre Überprüfung im Experiment ermöglichen sollte.

1.2 Neutrinos

Im Standardmodell sind Neutrinos ungeladene Fermionen (Spin $\frac{1}{2}$), die in den drei leptonischen Flavours ν_e , ν_μ und ν_τ auftreten. Sie unterliegen nur der schwachen Wechselwirkung (die Gravitation wird in dieser Betrachtung vernachlässigt). Bei Beobachtungen wurde nur eine feste Helizität (Orientierung des Spin relativ zum Impuls) der Neutrinos festgestellt, sie ist $H(\nu) = -1$ für *Neutrinos* und $H(\bar{\nu}) = +1$ für *Antineutrinos*. Aus der festen Helizität wird allgemein gefolgert, dass sich Neutrinos exakt mit Lichtgeschwindigkeit c fortbewegen, was zwingend voraussetzt, dass sie keine Ruhemasse besitzen.

Die Beobachtung der festen Helizität ist ein rein experimenteller Befund, für den es keine stringente theoretische Grundlage gibt. Ein Neutrino mit nichtverschwindender Ruhemasse würde die Grenzen des Standardmodells der Elementarteilchenphysik aufzeigen und alternative Theorien erfordern. Die Suche nach der Neutrinomasse nimmt folglich in der modernen Physik einen besonderen Platz ein.

Zur Erklärung der experimentellen Befunde gibt es mehrere teilweise konkurrierende theoretische Ansätze, die mehrheitlich von zwei grundsätzlichen Ideen ausgehen:

1. Neutrinos haben eine von Null verschiedene Ruhemasse. Wegen der speziellen Relativitätstheorie müssten folglich Neutrinos beiderlei Helizität beobachtbar sein.
2. Die Flavoreigenzustände der schwachen Wechselwirkung sind nicht gleichzeitig auch die Masseneigenzustände, sondern Mischungen davon. Darum werden die Flavorzustände eines bewegten Neutrinos *oszillieren*, sich also ineinander umwandeln, wenn die Massenzustände jeweils unterschiedliche Massen besitzen.

Genauer heißt das: wenn ein Neutrino z.B. in der Sonne im Elektron-Flavor-Zustand entsteht und sich von seinem Entstehungsort wegbewegt, wird es sich nach einer bestimmten Wegstrecke in einen anderen Flavorzustand, z.B. den myonischen Flavor, umgewandelt haben. Dieser Mechanismus wird analog zur Flavoroszillation im Quark-Sektor (beschrieben durch die Cabibbo–Kobayashi–Maskawa–Mischungsmatrix) formuliert, für den zweidimensionalen Fall¹ (Oszillation zwischen zwei Flavours im Vakuum) stellt sich das mit dem Mischungswinkel θ so dar:

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

Daraus lässt sich nun ausrechnen, wie hoch die Wahrscheinlichkeit ist, ob ein in der Sonne produziertes Neutrino noch in seinem ursprünglichen Flavor vorliegt oder aber in einem anderen Flavor:

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) \propto \sin^2 2\theta \cdot \sin\left(\text{const} \cdot \Delta m^2 \frac{R}{E(\nu_e)}\right) \quad (1.2)$$

Beziehung 1.2 erlaubt die Verknüpfung von Theorie und Experiment über die Parameter $E(\nu)$, R , Δm^2 und θ . R bezeichnet die Laufstrecke des Neutrinos von der Entstehung bis zum Nachweis im Detektor. Die übrigen Größen im Argument lassen sich zusammenfassen zur Oszillationslänge $L \propto E/\Delta m^2$. Der Quotient zwischen R und L bestimmt (bei festem Mischungswinkel θ) die Oszillationswahrscheinlichkeit. Dieser Effekt wird als Vakuum–Oszillation (kurz: „VO“ oder gelegentlich auch „VAC“) bezeichnet ([Pon57]).

¹Die Betrachtungen für 3 Flavor laufen vollkommen analog, sind allerdings etwas umfangreicher, weshalb hier zu Gunsten der Anschaulichkeit auf ihre Darstellung verzichtet wird. Weitergehende Darstellungen finden sich inzwischen in den meisten Lehrbüchern über Teilchenphysik.

Bei einer bestimmten Elektronendichte kann es durch kohärente Vorwärtsstreuung an Elektronen zu einer resonanten Verstärkung der Oszillationswahrscheinlichkeit kommen. Dies wird als MIKHEYEV–SMIRNOW–WOLFENSTEIN–EFFEKT oder kurz „MSW–Effekt“ bezeichnet ([Wol78, Mik85]). L_ν wird ersetzt durch ein effektives L_{matter} , in das die Elektronendichte eingeht und das ebenfalls zu einem modifizierten Mischungswinkel θ_m führt. Die für die Oszillation bedeutsamen Parameter sind abhängig von den Gegebenheiten (im Entstehungsgebiet, bei der Propagation und beim Nachweis). Bei der Sonnenneutrinoforschung zeigen sich speziell zwei Parameterbereiche, die wegen ihrer Unterschiede in θ als LARGE MIXING ANGLE SOLUTION (kurz: „MSW–LMA“) oder als SMALL MIXING ANGLE SOLUTION („MSW–SMA“) bezeichnet werden.

Weiter ist $E(\nu)$ die Energie der Neutrinos. Sie hängt allgemein vom Produktionsmechanismus ab. Im Falle von Beschleunigerexperimenten kann sie in bestimmtem Umfang variiert werden. Anders ist dies im Falle der Sonnenneutrinos, bei denen die Energie von den Fusionsreaktionen (vergl. Abb. 1.3 auf Seite 5) abhängt. Allerdings kann die Nachweisgrenze eines Detektors (z.B. Energieschwellen oder –Fenster, Energieauflösung) als weiterer experimenteller Parameter genutzt werden.

Im Falle von Sonnenneutrinos, die im Zentrum der Sonne entstehen, ist die Laufstrecke R im wesentlichen durch den Durchgang durch Sonnenmaterie und danach durch die Propagation durch den interplanetaren Raum (bis zum Erdbahnradius) gegeben.

1. Beim Durchgang durch die Sonne kann der MSW–Effekt mehr oder weniger stark wirksam werden. Dies führt zu einer Veränderung des Flusses von ν_e .
2. Unter Berücksichtigung der Exzentrizität der elliptischen Erdbahn (Radius $R(1 \pm \epsilon)$) ergibt sich aus rein geometrischen Überlegungen eine Variation des Neutrinoflusses von ca. 7 % (Erdbahneffekt). Dadurch erhält der Fluss der solaren Neutrinos ohne besonderen Aufwand eine zeitliche Signatur, die ermöglicht, ihn vom jahreszeitlich konstanten Untergrund zu unterscheiden. Im Falle der Vakuum–Oszillation könnte der Neutrinofluss abhängig von den Parametern $R(1 + \epsilon) > L_\nu$ bzw. $R(1 - \epsilon) < L_\nu$ aber wesentlich stärkere Variationen aufweisen.
3. Am Tag müssen die Sonnenneutrinos nur eine kurze Strecke durch das Erdreich zurücklegen (≈ 1000 m), während sie in der Nacht die gesamte Erde durchqueren müssen, bevor sie im Detektor gemessen werden können. Im Erdinneren kann der MSW–Effekt zu einer zeitlichen Veränderung des Neutrinoflusses führen (Tag–Nacht–Effekt)².
4. Da die Erdachse gegenüber der Ekliptik um $23,5^\circ$ geneigt ist, wird die Strecke, die die Neutrinos nachts durch die Erde zurücklegen, bis sie den Detektor erreichen, im Winter länger sein als im Sommer (Jahreszeiteffekt). Dieser Effekt ist allerdings der Schwächste unter den Genannten und wird deshalb oft vernachlässigt.

Aufgrund der veränderten Propagationslänge (also der reinen Laufstrecke) und damit verbunden mit den unterschiedlichen Materiedichten, die die Neutrinos durchqueren, unterscheiden sich die theoretischen Vorhersagen für die Oszillations– bzw. Überlebenswahrscheinlichkeiten für solare Elektroneneutrinos (siehe Abb. 1.1). Diese Veränderung sollte im flavorspezifischen Neutrinofluss nachweisbar sein. Die Befunde erlauben Rückschlüsse auf die zwei verbleibenden freien Parameter: Δm^2 ist die Differenz der quadrierten Massen (der Masseneigenzustände) und θ bzw. θ_m der Oszillationswinkel (s. Gl. 1.1).

²Bei Detektoren mit Richtungsauflösung kann die Veränderung in Relation zum Zenitwinkel gesetzt werden. Es zeigt sich, dass die Beobachtung dieses Effektes besonders im Falle der sog. atmosphärischen Neutrinos (also der

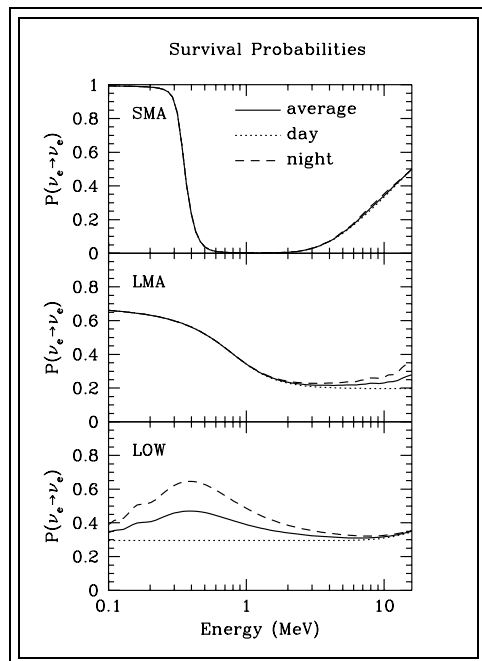


Abbildung 1.1: Überlebenswahrscheinlichkeiten für ein solares Elektronneutrino abhängig von der Energie dargestellt für verschiedene Lösungen des MSW-Effekts. Die für dieses Diagramm angewandten Parameter sind $\Delta m^2 = 0,5 \cdot 10^{-6} eV^2$ und $\sin^2 2\theta = 8,7 \cdot 10^{-3}$ (SMA), $\Delta m^2 = 1,3 \cdot 10^{-5} eV^2$ und $\sin^2 2\theta = 0,63$ (LMA) bzw. $\Delta m^2 = 1,1 \cdot 10^{-7} eV^2$ und $\sin^2 2\theta = 0,83$ (LOW) [Bah97]. Die gestrichelten bzw. gepunkteten Linien zeigen Abweichungen am Tag und in der Nacht gegenüber dem durchschnittlichen Neutrinofluss. Die als „LOW“ bezeichnete Lösung unterscheidet sich von den LMA-Parametern durch eine deutlich kleinere Massendifferenz.

Eine gängige Darstellung der erlaubten Parameterbereiche sind die $\tan^2\theta - \Delta m^2$ -Diagramme (vergl. Abb. 1.2), in denen sich die verschiedenen erlaubten Parameterbereiche (genannt: *Lösungen*) deutlich voneinander unterscheiden lassen. Es ist die Aufgabe der Neutrinoexperimente, die Parameterbereiche weiter einzuzugrenzen und so letztlich aufzuzeigen, welche Theorie die Flavoroszillation zutreffend beschreibt. Für weitergehende Darstellungen der Theorie kann auf verschiedene Lehrbücher verwiesen werden, (u.a. [Bah89, Kla00, Sch97])

1.3 Sonnenneutrino-physik

Seit dem Urknall entstehen und vergehen Sterne, sie bilden die Galaxien, in ihnen werden die schwereren chemischen Elemente produziert. Ein besonderes Beispiel ist die Sonne, der Zentralstern unseres Planetensystems, die wegen der räumlichen Nähe besondere und oft wesentlich detailliertere Beobachtungen erlaubt. Das heutige Wissen über Entstehung, Entwicklung und Aufbau von Sternen basiert u.a. auf einem grundlegenden Verständnis der Sonne, zusammengefasst im „Standardsonnenmodell“ (kurz: SSM, u.a. [Bah89, Bah02] und Verweise darin).

Die Sonne ist ein Hauptreihenstern, der sich seit langer Zeit (ca. $4,6 \cdot 10^9 a$) im quasistatischen Gleichgewicht befindet. Zustandsänderungen laufen nur langsam ab und haben nur sehr geringen Einfluss auf den großräumigen Aufbau.

Die Sonne wird als sphärisch-symmetrische Gaskugel angenommen, die einzige geometrische Variable ist der Radius. Rotation, Massenverlust und Magnetfelder werden in erster Näherung vernachlässigt. Es bildet sich ein Druckgleichgewicht aus zwischen der Gravitation, dem Gasdruck und dem Strahlungsdruck. Der Energiefluss erfolgt über Strahlung, Konvektion und Neutrinoemission. Die initialen Mengenanteile von Wasserstoff (ca. 70%) und Helium (ca. 25%) gehen aus der primordialen Elementsynthese nach dem Urknall hervor.

Neutrinos, die durch Stoßreaktionen der kosmischen Strahlung mit Atomkernen in der oberen Atmosphäre entstehen) von Bedeutung ist.

Abbildung 1.2: Beispiel für $\tan^2\theta - \Delta m^2$ - Parameterdiagramme: Messsignal vergl. mit der Vorhersage (*links*) bzw. Tag-Nacht-Unterschiede (*rechts*). Grün sind die möglichen Ausschlusskonturen des BOREXINO-Experiments, gelb eingezeichnet sind die bis 2003 erwarteten Bereiche, die roten Areale kennzeichnen die Parameterbereiche, der nach der KAMLAND-Analyse ([Kam03]) noch für wahrscheinlich gehalten werden.

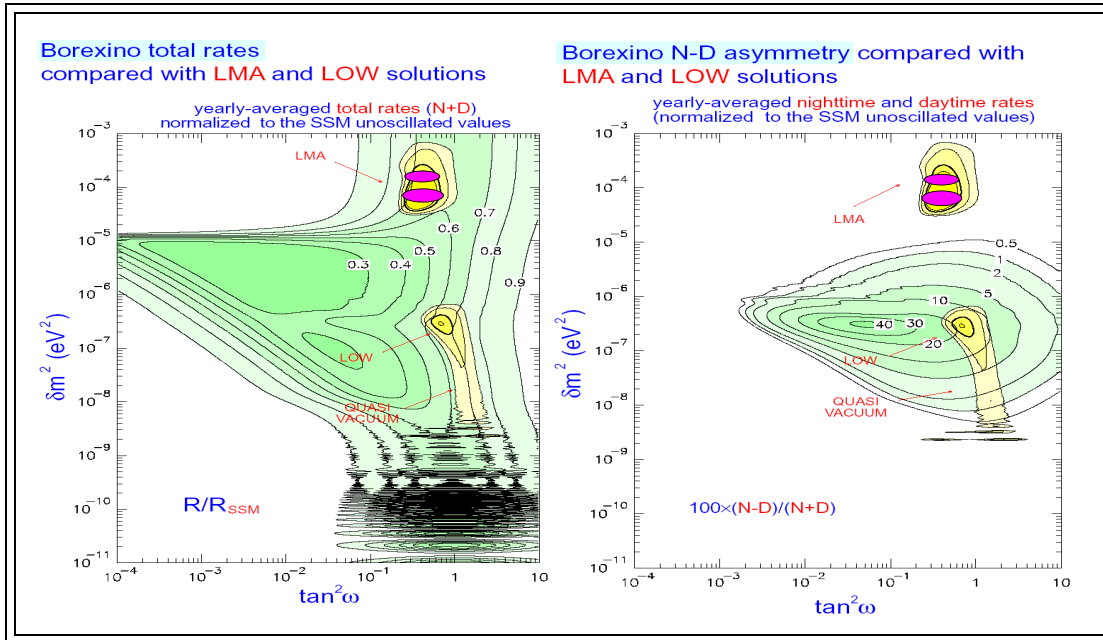
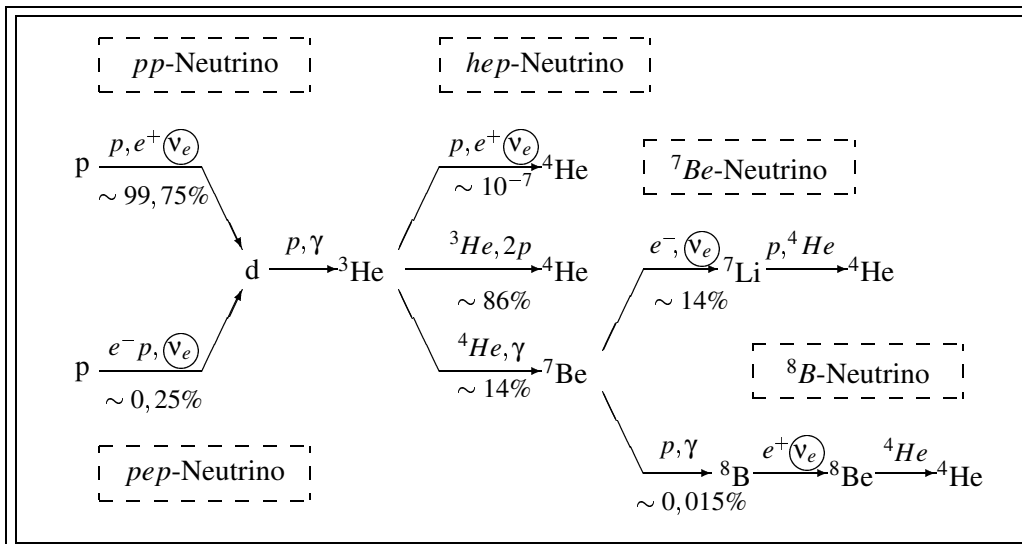


Abbildung 1.3: Die Proton-Proton-Fusionskette: Dargestellt sind die grundlegenden Reaktionen, die dabei auftretenden Neutrinos (eingekreist), die Verzweungsverhältnisse und die Abhängigkeit der einzelnen neutrino produzierenden Reaktionszweige von der Zentraltemperatur der Sonne ([Bet39], [Bah89], [Sch97]).



Die schwereren Elemente stammen aus der Nukleosynthese in Sternen und Supernovae, die das Material zur Bildung des Sonnensystems lieferten. Die Massenanteile werden als empirische Eingabewerte hinzugefügt, dann wird die zeitliche Entwicklung der Sonne im Modell berechnet, bis der heutige Zustand reproduziert wird.

Die Energieproduktion in der Sonne erfolgt durch Kernfusion. Dieser Prozeß, die *Proton-Proton-Fusionskette* (kurz: „pp-Kette“, Abb. 1.3), wurde erstmals von Bethe und Critchfield beschrieben ([Bet39]). Ein weiterer Reaktionsweg ist der *CNO-Zyklus*³.

Die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Reaktionen (und damit die Produktionsraten der einzelnen Neutrinos) hängen in unterschiedlichem Maße von der Temperatur ab. Die am Anfang stehende pp-Fusion hängt mit $T_C^{-1,2}$ nur sehr schwach vom benutzten Sonnenmodell ab. Da bei den in der Sonne herrschenden Bedingungen sowohl der pep-Zweig als auch der CNO-Zyklus stark unterdrückt sind, lässt sich deshalb die Rate der pp-Neutrinos direkt mit der Gesamtleuchtkraft der Sonne verknüpfen.

Die bei der Kernfusion als elektromagnetische Strahlung freigesetzte Energie wird im Sonneninneren vielfach von der Materie gestreut, deshalb kann aus ihr keine Detailinformation über die ursprüngliche Reaktion mehr entnommen werden. Die ebenfalls freiwerdenden Neutrinos hingegen verlassen die Sonne nahezu ungestört und können auf der Erde, wenn auch unter enormen Anstrengungen, nachgewiesen werden.

Um den tatsächlich auf der Erde zu erwartenden Fluss solarer Neutrinos vorherzusagen, müssen verschiedene Modelle kombiniert werden. Die *Sonnenmodelle* umschreiben die astrophysikalischen Parameter im Quellgebiet. Mit Beschleunigerexperimenten werden die Wirkungsquerschnitte und Verzweigungsverhältnisse der einzelnen Fusionsreaktionen experimentell bestimmt. Das *Standardmodell der elektroschwachen Wechselwirkung* beschreibt die Eigenschaften des Neutrinos. Damit lässt sich das erwartete Sonnenneutrinospektrum (Neutrinofluss $\Phi(\nu_e)$ über der Energie der Neutrinos $E(\nu_e)$) quantitativ darstellen (siehe Abb. 1.4).

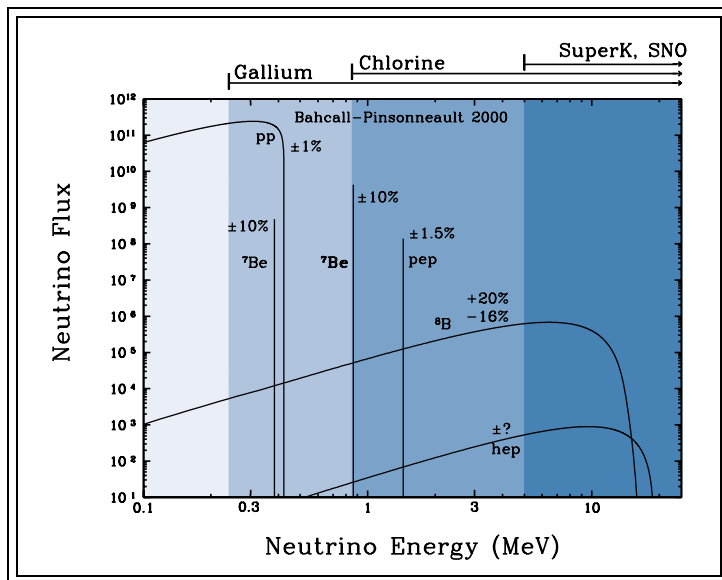


Abbildung 1.4: Das Sonnenneutrinospektrum: dargestellt ist das theoretisch vorhergesagte Neutrinospektrum (Elektronflavor), wie es aufgrund des Standardsonnenmodells ohne Neutrinooszillation am Ort der Erde messbar sein sollte ([Bah01]). Horizontal ist die Energie logarithmisch in MeV aufgetragen, vertikal ist der erwartete Fluss pro cm^2 und sec (für die monoenergetischen Linien) bzw. pro cm^2 , sec und MeV (für die kontinuierlichen Bereiche) aufgetragen.

³Beim CNO-Zyklus (postuliert von Bethe und C.F. v. Weizsäcker) 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 vermutlich nur schwach ausgebildet und wird im folgenden nicht weiter berücksichtigt.

1.4 Neutrino – Detektoren

Zur Messung der Sonnenneutrinos wurden verschiedene Experimente aufgebaut, die im folgenden kurz vorgestellt werden (siehe auch [Kir99]). Vorab sei bemerkt, dass die Sonnenneutrinoexperimente der ersten Generation (HOMESTAKE, GALLEX/GNO und SAGE) konzipiert waren, den Fluss der solaren Elektronenneutrinos integral zu messen; sie haben tatsächlich ein Defizit nachgewiesen. Neuere und zukünftige Experimente (KAMIOKANDE und SUPERKAMIOKANDE, SNO, KAMLAND, BOREXINO) messen den Fluss der Neutrinos spektral und in Echtzeit und sind teilweise auch darauf ausgelegt, das Defizit im Fluss der Elektron-Neutrinos mit einem möglichen Fluss von μ - oder τ -Neutrinos zu vergleichen.

Die radiochemischen Detektoren: Bei radiochemischen Detektoren wird in einer inversen β -Reaktion $n(\nu_e, e^-)p$ des Neutrinos mit einem Atomkern des Targetmaterials ein instabiler Atomkern produziert, der chemisch aus dem Targetmaterial extrahiert wird. Der nachfolgende Zerfall durch Elektroneneinfang $p(e^-, \nu_e)n$ unter Emission von Röntgenquanten bzw. Auger-Elektronen wird mit geeigneten Methoden (z.B. einem Zählrohr) nachgewiesen. Das Targetmaterial muß bestimmten Anforderungen genügen: 1.) der Wirkungsquerschnitt für den Neutrinoeinfang sollte relativ groß sein, 2.) das entstandene Atom sollte aus dem ursprünglichen Targetmaterial extrahierbar sein und 3.) die Rückreaktion sollte in vertretbarer Zeit stattfinden (typische Größenordnung: einige Tage bis wenige Wochen). Die Energieschwelle für den Nachweis kann bei geeigneter Targetwahl sehr niedrig sein, dafür erhält man allerdings bloß ein integrales Messsignal oberhalb dieser Schwelle. Diese Detektoren sind spezifisch empfindlich für den Elektron-Flavor.

Der älteste radiochemische Detektor (und gleichzeitig auch der älteste Sonnenneutrinodektor) ist der CHLOR-DETEKTOR in der Homestake-Mine in South-Dakota (R. Davis et al., [Dav68]), 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. Die Energieschwelle liegt bei $E_\nu \approx 800 \text{ keV}$, so dass hauptsächlich die ^8B -Neutrinos nachweisbar sind. In deutlich geringerem Maß tragen noch die monoenergetischen ^7Be -Neutrinos zum Signal bei.

Die durch solare Elektronenneutrinos hervorgerufenen Reaktionsrate liegt bei $2,56 \pm 0,16(stat) \pm 0,16(sys) SNU^4$ ([Cle98]), verglichen dazu liegt die SSM-Vorhersage bei $7,6 \pm 1,3(stat) \pm 1,1(sys) SNU$ ([Bah01]).

Zwei andere Detektoren, **GNO** ([GNO00]) (vormals **GALLEX**, [GAL92a, GAL92b, GAL95]) und **SAGE** ([Sag99, Sag02]), nutzen als Targetmaterial Gallium mit der Reaktion $^{71}\text{Ga}(\nu_e, e^-)^{71}\text{Ge}$. Die Energieschwelle ist sehr niedrig ($E_\nu = 233 \text{ keV}$), so dass die pp -Neutrinos etwa 58 % des Messsignals ausmachen. Da diese aus der Startreaktion der Fusionskette stammen, kann somit auch prinzipiell der Nachweis erbracht werden, dass die pp -Kette tatsächlich der Energieproduktionsmechanismus in der Sonne ist.

Auch hier liegen die Neutrinoraten deutlich unter der SSM-Vorhersage von $128 \pm 9(stat) \pm 7(sys) SNU$ ([Bah01]), nämlich bei $63,2 \pm 6,4(stat) \pm 3,0(sys) SNU$ (GNO alleine), bzw. $70,8 \pm 4,5(stat) \pm 3,8(sys) SNU$ (kombinierte Analyse von GALLEX und GNO [GNO02]).

Mit dem SAGE-Detektor wurden $70,8^{+5,3}_{-5,2}(stat)^{+3,7}_{-3,2}(sys) SNU$ gemessen ([Sag02]).

Čerenkov-Detektoren: Die Ausbreitungsgeschwindigkeit hochrelativistischer Teilchen kann in einem Medium die lokale Lichtgeschwindigkeit überschreiten, dabei wird Energie in Form elektromagnetischer Strahlung (Čerenkov-Licht) abgegeben, das einen Lichtkegel um den Einfallspunkt

⁴1 SNU = 1 Reaktion pro 10^{36} Targetatome pro Sekunde

vektor des Teilchens ausbildet und dessen Frequenz abhängig ist von der Energie des Teilchens. Čerenkov–Detektoren können also Richtung und Energie bei jedem einzelnen Ereignis in Echtzeit messen. Als Target dienen Materialien, die transparent und preisgünstig in großen Mengen verfügbar sind, z.B. Wasser oder Eis. Nach einer elastischen $\nu - e$ -Streuung wird das Čerenkov–Licht der Elektronen mit Photoelektronenvervielfachern (engl. *Photomultipliertube*, kurz „PMT“) nachgewiesen. $\nu_x - e^-$ -Streuung ist für Neutrinos aller Flavor möglich.

Čerenkovdetektoren eignen sich vor allem zum Nachweis der hochenergetischen Teilchen, beispielsweise der Neutrinos von Supernovae, aus der Atmosphäre oder von Beschleunigern. Deshalb wird die untere Energieschwelle des Detektors, die durch den radioaktiven Untergrund des Mediums bestimmt ist, typischerweise bei einigen *MeV* liegen. Damit können aus dem Sonnenneutrinospektrum nur die ^8B - und die *hep*-Neutrinos gemessen werden, deren Anteil am Neutrinofluss allerdings nur bei 10^{-4} liegt und deren Produktion sehr stark von der Zentraltemperatur der Sonne abhängt.

Dieser Detektortyp wurde z.B. mit den japanischen Experimenten KAMIOKANDE ([SK88]) und der neueren größeren Version SUPERKAMIOKANDE verwirklicht (siehe [SK02] und Quellen darin). Mit beiden Detektoren konnten die ^8B -Neutrinos spektral nachweisen werden. Somit steht fest, dass alle neutrino produzierenden Reaktionen der *pp*-Kette stattfinden, wobei die Wirkungsquerschnitte der Reaktionen $^7\text{Be}(p, \gamma)^8\text{B}$ bzw. $^7\text{Be}(e^-, \nu_e)^7\text{Li}$ in kernphysikalischen Experimenten gemessen werden können und somit die Verzweigungsverhältnisse bekannt sind.

Der mit KAMIOKANDE gemessene Fluss der solaren Elektronenneutrinos war $2,80 \pm 0,19(\text{stat}) \pm 0,33(\text{sys}) \cdot 10^6 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. Verglichen mit der SSM–Vorheresage ergibt das ein Verhältnis von $0,492_{-0,033}^{+0,034}(\text{stat}) \pm 0,058(\text{sys})$ ([Kam96]).

Die Daten der SUPERKAMIOKANDE–Kollaboration liegen bei $2,32 \pm 0,3(\text{stat})_{-0,07}^{+0,08}(\text{sys}) \cdot 10^6 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$, verglichen mit der SSM–Vorheresage ergibt das eine Verhältnis von $0,451 \pm 0,05(\text{stat})_{-0,015}^{+0,016}(\text{sys})$ ([SK02]).

KAMIOKANDE und SUPERKAMIOKANDE haben wesentlich auch zur Untersuchung der atmosphärischen Neutrinos beigetragen, die bei Wechselwirkung kosmischer Strahlung mit Atomen in der oberen Atmosphäre entstehen. Im nachfolgenden Teilchenschauer sollten etwa doppelt so viele ν_μ wie ν_e entstehen. Auch hier traten Abweichungen auf, die die Oszillationshypothese stützen (u.a. [SK98]).

Szintillationsdetektoren: Bei Szintillationsdetektoren findet ebenfalls elastische $\nu_x - e^-$ -Streuung statt (die $\nu - e$ -Streuung ist für Neutrinos aller Flavor möglich, allerdings mit unterschiedlicher Wahrscheinlichkeit). Targetmaterialien sollten deshalb eine hohe Elektronendichte besitzen (das ist u.a. für einige organische Flüssigkeiten zutreffend). Das freigesetzte Elektron (das im Gegensatz zu den Čerenkovdetektoren auch nichtrelativistisch sein kann) stößt an weitere Moleküle des Szintillators und regt sie so an. Die überschüssige Energie wird (mit etwas Zeitverzögerung) als Lichtsignal wieder abgegeben und dieses Lichtsignal mit Photoelektronenvervielfachern registriert. Alle Messsignale zusammen lassen sich also spektral und in Echtzeit analysieren. Sie liefern aber keine Informationen über die Richtung des eingehenden Neutrinos.

Nachteilig ist, dass neutrinoinduzierte Ereignisse keine spezifische Signatur aufweisen, so dass sie nicht von Untergründereignissen (etwa durch radioaktive Kontamination) unterschieden werden können. Darum ist oft ein großer Aufwand nötig, um diese Störquellen zu eliminieren. Gegenüber Festkörpern (Kristalle, Plastik) bieten Flüssigszintillatoren den Vorteil, dass sie einer nachträglichen Reinigung zugänglich sind. Bei einer ausreichenden Reduzierung des radioaktiven Untergrundes sind Energieschwellen weit unterhalb von 1MeV möglich.

Szintillationsdetektoren eignen sich u.a. zum Nachweis von Reaktor-(Anti-)Neutrinos. Beispiele hierfür sind die Experimente CHOOZ [CHO99], PALO VERDE [Pal00] und KAMLAND [Kam03]. Auch die Beobachtungen dieser Experimente bestätigen die Oszillationshypothese.

Der Neutrino-Detektor BOREXINO ist ebenfalls ein solcher Szintillationsdetektor. Ziele, Aufbau und Funktionsweise werden im anschließenden Kapitel 2 umfassend beschrieben.

Hybridtypen: Bei einigen neueren Experimente wird versucht, die Vorteile der einzelnen Typen zu verbinden. So etwa ist bei BOREXINO das Target von einer Wasserabschirmung umgeben, in der Čerenkov-Licht nachgewiesen wird, und die so als aktives Myon-Veto genutzt werden kann.

Das SUDBURY NEUTRINO OBSERVATORY (SNO, [Che85, SNO02a, SNO02b], Messbeginn 1999) in Kanada arbeitet mit schwerem Wasser (D_2O) als Target. Das erlaubt sowohl den Nachweis von Čerenkov-Strahlung nach $\nu_x e^-$ -Streuung von höherenergetischen Neutrinos als auch inelastische Kernstöße mit dem Deuteriumkern des schweren Wassers.

Alle Flavor nehmen an der $\nu_x e^-$ -Streuung teil, wobei der Elektron-Flavor einen etwa 6 mal höheren Wirkungsgrad hat. Darüberhinaus kann man aus diesem Prozess vor allem eine Richtungsinformation ableiten.

Mit allen drei Neutrino flavors sind sog. *Neutral-Current-Ereignisse* (NC) möglich: $\nu_x + d \rightarrow p + n + \nu_x$. Das Neutron wird im Detektor abgebremst („moderiert“); rekombiniert es mit einem anderen Kern, sendet dieser γ -Strahlung aus, die nachgewiesen werden kann. Durch Beimengungen im Wasser (z.B. Salze) kann die Rekombinationsrate und damit das Signal erhöht werden.

Bei den *Charged-Current-Reaktionen* (CC), die nur für den Elektronflavor möglich sind, wird neben Energie, Impuls und Drehimpuls auch noch die Ladung übertragen, $\nu_e + d \rightarrow p + p + e^-$. Das Neutron des Deuteriumkerns wandelt sich um in ein Proton, wobei ein Elektron emittiert wird, um die Ladung und die Leptonenzahl zu erhalten. Dieses Elektron ist wieder durch Čerenkov-Strahlung nachweisbar.

Mit dem SNO-Detektor können also Neutrinos aller Flavor bei unterschiedlichen Energien in Echtzeit und zumindest teilweise mit Richtungsauflösung nachgewiesen werden. Der Fluss der verschiedenen Neutrino flavor kann so mit einem einzigen Detektor quantitativ miteinander verglichen werden. Das SSM sagt einen Neutrinofluss von $5,05 \pm 1,00(stat)_{-0,16}^{+0,20}(sys) \cdot 10^6 cm^{-2} s^{-1}$ ([Bah01]) voraus. Es wird ebenfalls ein reduzierter Fluss an solaren Elektronneutrinos gemessen, nämlich $1,76 \pm 0,05(stat) \pm 0,09(sys) \cdot 10^6 cm^{-2} s^{-1}$. Gleichzeitig konnte der Fluss der Myon- und Tau-Neutrinos gemessen werden zu $3,41 \pm 0,45(stat)_{-0,45}^{+0,48}(sys) \cdot 10^6 cm^{-2} s^{-1}$. Der gesamte Neutrinofluss ist also $5,09_{-0,42}^{+0,44}(stat)_{-0,43}^{+0,46}(sys) \cdot 10^6 cm^{-2} s^{-1}$. Dieser Befund stützt die Oszillationshypothese in beeindruckender Weise.

Die Funktion der Detektoren wurde auf verschiedene Weise überprüft (siehe u.a. [Cle98, GAL98a, GAL98b, Sag99, SK02]). Fehlfunktionen oder Fehlinterpretationen können deshalb weitestgehend ausgeschlossen werden.

Die astrophysikalischen Modell der Sonne werden zunehmend genauer und sind durch die Helioseismologie in beeindruckender Weise bestätigt worden. Astrophysikalische Erklärungen des Neutrino defizits können inzwischen ausgeschlossen werden ([Bah01]).

Globale Analysen (z.B. [Bah02]) favorisieren derzeit den MSW-Effekt mit maximalem Mischungswinkel. Es ist die Aufgabe zukünftiger Neutrino detektoren, die Eigenschaften der Neutrinos näher zu untersuchen, indem sie die Parameter weiter eingrenzen und einen Beitrag liefern zur der Entwicklung und Überprüfung neuer und verbesserter Theorien.

Kapitel 2

Borexino

BOREXINO ist ein Szintillationsdetektor (vgl. Abschnitt 1.4) zur quantitativen Bestimmung des Neutrinoflusses bei mittleren und niedrigen Energien, speziell des ${}^7\text{Be}$ -Neutrinoflusses, der als monoenergetische Linie im Sonnenneutrinospektrum erscheint (vgl. Abb. 1.3 und 1.4 auf Seite 6). In Abschnitt 2.1 werden die physikalischen Ziele und Möglichkeiten des Experimentes diskutiert. Die größte Herausforderung liegt dabei in Reduktion des radioaktiven Untergrundes. Deshalb werden in Abschnitt 2.2 verschiedene Untergrundnuklide beschrieben. Abschließend wird im Abschnitt 2.3 der BOREXINO-Detektor vorgestellt. Diese Darstellung umfasst auch das Pilotprojekt CTF (Abschnitt 2.3.3) sowie die Detektorperipherie (Abschnitt 2.3.4), deren Beitrag zum Untergrund auch Inhalt von Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit ist (Kapitel 5). Weitere umfangreiche Darstellungen finden sich in den Veröffentlichungen der BOREXINO-Kollaboration (siehe u.a. [Ben96, Bor91, Bor96, Bor98a, Bor98b, Bor00, Bor02a, Bor02b, Bor02c, Rag95]).

2.1 Neutrinomessung bei mittleren Energien

Der Neutrinonachweis gelingt mittels elastischer Streuung der Neutrinos an den Elektronen des Szintillators. Das Target sind 300 t unsegmentierter organischer Flüssigkeitszintillator. Das Szintillationslicht wird in Echtzeit mit Photoelektronenvervielfachern detektiert. Die Zahl der Photonen pro Ereignis ist abhängig von der Neutrinoenergie, so dass man ein Spektrum messen kann.

Die Energie der Neutrinos kann ganz oder auch nur teilweise auf den Szintillator übertragen werden. Das ungestörte Spektrum der Neutrinos hat eine Compton-ähnliche Form, d.h. einen nahezu waagerechten Verlauf mit einem stufenartigen Abfall bei der maximalen Energie. Im Fall der ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos ($E = 862\text{keV}$) liegt die maximale Energie des Photonensignals bei $E = 610\text{keV}$ (siehe Abb. 2.1). Zu niedrigeren Energien hin dominiert der radioaktive Untergrund. Für die Datenauswertung ist deshalb das sog. „Neutrino-Fenster“ $250\text{keV} \leq E \leq 800\text{keV}$ definiert worden. Die untere Schwelle ist so gewählt, dass unter Berücksichtigung der begrenzten Energieauflösung die Energie zweier zufällig koinzidenter und dicht beieinander liegender Zerfälle von ${}^{14}\text{C}$ nicht stören.

Wie in den Abschnitten 1.2 und 1.3 dargelegt, ist neben dem totalen Fluss vor allem die zeitliche Variation sowie eine mögliche Verformung des Spektrums (in Abhängigkeit von der Energie) ein Unterscheidungskriterium für die verschiedenen Oszillationsmodelle bzw. deren Parameter.

Die vorhergesagten Raten im Neutrinofenster von BOREXINO ($250\text{keV} < E < 800\text{keV}$) innerhalb des Fiducial Volumes (100 t Szintillator) liegen nach [Bor02b] abhängig von den jeweiligen Oszillationsparametern bei 55,2 *cpd* (SSM), 29,0 *cpd* (LOW), 30,7 *cpd* (LMA) bzw. 11,7 *cpd*

(SMA). Nach der Veröffentlichung der KAMLAND-Kollaboration, die als noch mögliche Lösung den LMA-Ansatz mit der wahrscheinlichsten Lösung von $\Delta m^2 = 6,9 \cdot 10^{-5} eV^2$ und $\sin^2 2\Theta = 1$ angeben ([Kam03]), hat es neue globale Analysen gegeben, nach denen das in BOREXINO zu erwartende Signal $(64 \pm 2) \%$ der SSM-Vorhersage sein soll, bei weniger als 0,1 % Tag-Nach-Asymmetrie [Bah02]. Die Unsicherheit in der Vorhersage ist durch die Wahl des Vertrauensintervalls um den besten Fit bestimmt. Zudem ist noch zu bemerken, dass die Vorhersage des ${}^7\text{Be}$ -Neutrino-flusses ebenfalls eine Ungenauigkeit von ca. 10 % aufweist ([Bah02]).

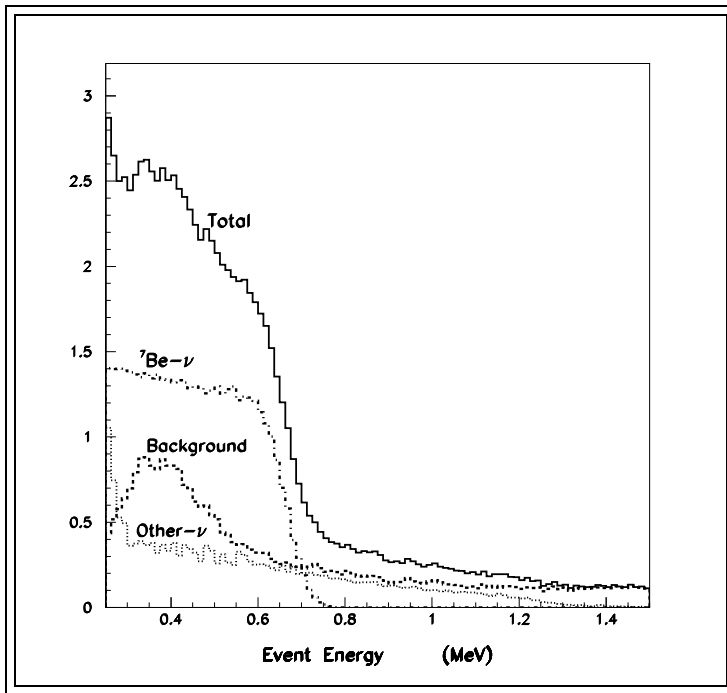


Abbildung 2.1: Simulation des Spektrums (willkürliche Einheiten) in BOREXINO. Eingezeichnet sind die Beiträge der solaren ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos (SSM, keine Oszillation), aller anderen Neutrinos zusammen, des radioaktiven Untergrundes (entsprechend den Spezifikationen) sowie die Summe aller Beiträge ([Bor02b]).

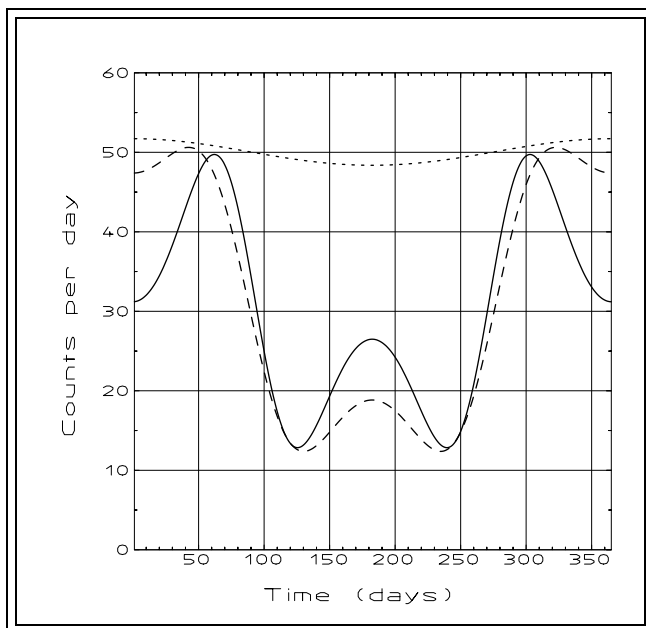


Abbildung 2.2: Bei der Vakuum-Oszillation unterliegt das ${}^7\text{Be}$ -Neutrinosignal starken jahreszeitlichen Schwankungen, die bis zu 75 % der Signalamplitude betragen können. Dies ist hier exemplarisch dargestellt für $\Delta m^2 = 4,2 \times 10^{-10} (eV/c^2)^2$ (—) sowie $\Delta m^2 = 3,2 \times 10^{-10} (eV/c^2)^2$ (- - -) bei voller Mischung ($\sin^2(2\theta) = 1$). Die gepunktete Kurve zeigt die geometrische Variation ($\sim 1/R^2$) ohne Oszillation ([Bor02b]).

pep–Neutrinos / CNO–Zyklus: Wählt man bei der Datenauswertung von BOREXINO das Energiefenster etwas höher, im Bereich $0,8\text{ MeV} \leq E \leq 1,4\text{ MeV}$, so bietet der BOREXINO–Detektor die Möglichkeit, die *pep*–Neutrinos ($E(\nu_{pep}) = 1,44\text{ MeV}$) sowie die Neutrinos aus dem CNO–Zyklus zu messen. Das erwartete Signal liegt bei ca. $1,5\text{ cpd}$, davon etwa $0,9\text{ cpd}$ von den *pep*–Neutrinos ([Hag00]). Diese Messung ist ausgesprochen attraktiv, weil das Verzweungsverhältnis der beiden Startreaktionen (*pp* und *pep*) des SSM recht gut bekannt ist und die Produktion der *pp*–Neutrinos weitestgehend modelunabhängig ist (vergl. Abb. 1.4). Die Unterdrückung des $\nu(^7\text{Be})$ –Flusses gegenüber der Startreaktion könnte also allein mit dem Signal von BOREXINO gemessen werden. Die Unterscheidung zwischen den monoenergetischen *pep*–Neutrinos und CNO–Neutrinos mit kontinuierlicher Energie ist möglich über die Formanalyse des Spektrums. Die Schwierigkeit dieser Messung besteht im Untergrund, speziell aus Zerfällen des ^{11}C , das nach Myonenstößen am Szintillator produziert wird. Die daraus resultierende Untergrundraten beträgt ca. $7\text{--}10\text{ cpd}$ (100t) $^{-1}$. Die Halbwertszeit $T_{1/2} = 20,38\text{ min}$ ist zu lang, um eine sinnvolle Totzeit zu definieren. Besser lässt sich der Untergrund reduzieren durch eine effektives Myon–Veto und eine gute Spurrekonstruktion.

Supernova–Antineutrinos: Sobald ein Stern nicht mehr genügend Brennstoff zur Verfügung hat, kollabiert er unter seiner eigenen Schwerkraft. Bei diesem Kollaps wirft er einen Teil seiner äußeren Hülle ab, und das Material im Kern wird nahezu vollständig in Neutronen umgewandelt. Die dabei produzierten Anti–Neutrinos sind mit den heutigen Detektoren nachweisbar (zu den Beobachtungen von SN 1987 A in der großen Magellanschen Wolke mit den Detektoren IMB und KAMIOKANDE siehe beispielsweise [Bio87, SK87, SK88]).

Der Hauptanteil des Signals bei BOREXINO wird aus der inversen β –Reaktion $\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$ an den Protonen (Wasserstoff) des Szintillators bestehen, mit dem anschließenden Signal der e^+ –Vernichtung sowie dem Zerfall des Neutrons. Aus der zeitlichen Verteilung der eingehenden Neutrinos kann man unter Berücksichtigung der räumlichen Ausdehnung der Supernova und der Entfernung eine Obergrenze für Laufzeitunterschiede bestimmen, die gemäß der speziellen Relativitätstheorie Rückschlüsse auf Massenunterschiede zulässt. Bei BOREXINO wäre im Falle einer Supernova von $3 \times 10^{53}\text{ erg}$ in 10 kpc Entfernung mit ca. 80 derartigen Ereignissen zu rechnen ([Cad02a]). Gleichermaßen können Neutrinos und Antineutrinos über Reaktionen der Schwachen Wechselwirkung an ^{12}C streuen und den Atomkern anregen (neutraler Strom: $^{12}\text{C}(\bar{\nu}_x, \bar{\nu}'_x)^{12}\text{C}^*$) oder in ^{12}B bzw. ^{12}N umwandeln (geladener Strom: $n(\bar{\nu}_e, e^-)p$, $p(\nu_e, e^+)n$). Da diese Prozesse flavorspezifisch sind, lassen sich damit ebenfalls die Oszillationsparameter eingrenzen ([Cad02a, Bea02]).

Künstliche Neutrinoquellen in BOREXINO: Auch im BOREXINO–Projekt ist vorgesehen, eine künstliche Neutrinoquelle nahe an den Detektor heranzubringen. Aufgrund der Erfahrungen der GALLEX–Kollaboration bietet sich ein Eichexperiment mit ^{51}Cr an ([GAL98a]). Die Elektroneneinfangreaktion $^{51}\text{Cr}(e^-, \nu_e)^{51}\text{V}$ ($T_{1/2} = 27,7\text{ d}$) ist besonders geeignet, weil monoenergetische Neutrinos mit $0,75\text{ MeV}$ (90 %) und $0,43\text{ MeV}$ (10 %) emittiert werden, die gut im Neutrinofenster liegen.

Ein weiteres Nuklidssystem, dass sich für Quellexperimente anbietet, ist $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Yb} + (e^- + \bar{\nu}_e)$ ($T_{1/2} \approx 28,5\text{ a}$) mit dem anschließenden Zerfall $^{90}\text{Yb} \rightarrow ^{90}\text{Zr} + (e^- + \bar{\nu}_e)$ ($T_{1/2} = 64,1\text{ h}$). Beide Zerfälle liefern Antineutrinos mit einer kontinuierlichen Energieverteilung. Bei beiden Experimenten sollten Quellstärken von $1\text{--}2\text{ MCi}$ vorhanden sein.

Die direkte Messung von (Anti–)Neutrinos aus künstlichen Quellen ist sicherlich ein schöner Konsistenztest, allerdings stehen zur Detektorkalibration andere und genauere Methoden zur

Verfügung (einige Eichprozeduren werden in Kap. 2.3.2 vorgestellt). Der Doppeltest mit den genannten Quellen erlaubt aber, noch einen weiteren Aspekt der Neutrinophysik zu untersuchen. Wenn Neutrinos ein magnetisches Moment besitzen, dann könnten sie in einem äußeren magnetischen Feld (z.B. innerhalb der Sonne) möglicherweise ihre Helizität verändern. Neutrinos würden rechtshändig (bzw. Antineutrinos linkshändig) und somit *steril*, d.h. sie nähmen nicht mehr an Reaktionen der Schwachen Wechselwirkung teil. Dieser Spin-Flip-Mechanismus ist in der Vergangenheit auch als Erklärung des Defizits bei den Sonnenneutrinoeobachtungen erwogen worden.

Sofern (Anti-)Neutrinos ein magnetisches Moment besitzen, würde dies bei BOREXINO sichtbar, da der Wirkungsquerschnitt für die Elektronstreuung neben dem Beitrag der Schwachen Wechselwirkung jetzt auch einen elektromagnetischen Beitrag bekäme und deshalb eine Erhöhung der Ereignisrate beobachtet werden könnte. Je nach Größe dieses Überschusses könnte BOREXINO das magnetische Moment von Neutrinos messen (zwischen $0,2 \leq \mu_\nu / (10^{-10} \mu_B) \leq 0,6$) bzw. bei Nichtbeobachtung eine Obergrenze in der entsprechenden Größenordnung ableiten ([Ian99]).

Antineutrinos aus der Erde: In geophysikalischen Modellen der Erde ist eine wesentliche Ursache für die Dynamik des Planeten die Wärme, die durch radioaktive Prozesse im Inneren produziert wird. Etwa 90 % dieser Energie entstammt den Zerfallsketten des primordialen ^{238}U und ^{232}Th . Nimmt man an, dass diese Nuklide ähnlich häufig und ähnlich verteilt auftreten wie im übrigen Sonnensystem, kann man die Energieproduktion berechnen. Die Ergebnisse stimmen jedoch mit den Beobachtungen nicht überein. Bezüglich der Elementverteilung hat also zwischen Erdmantel und Erdkruste eine Differenzierung stattgefunden. Ein observatorischer Zugang zu dieser Verteilung ist die Beobachtung der ‘geologischen’ Antineutrinos niedriger und mittlerer Energien ($0 - 3,3 \text{ MeV}$), die beim β -Zerfall in der Erde entstehen. Zum Nachweis eignen sich besonders die mit protonenreichen Flüssigszintillatoren gefüllten Detektoren mittels der Reaktion $\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$. Dieser Themenkreis ist speziell für die Detektoren BOREXINO und KAMLAND in [Rag98] diskutiert.

$\beta\beta$ -Zerfall: Einige Theorien behandeln den Fall, dass Neutrinos sog. *Majorana*-Teilchen sind. Das bedeutet vor allem, dass es keinen intrinsischen Unterschied zwischen Teilchen und Antiteilchen gibt. Eine Möglichkeit, dies im Experiment zu überprüfen, ist der doppelte Betazerfall. Bei bestimmten Kernen ist der einfache Betazerfall ${}^A_Z N^{A-Z} \rightarrow {}^A_{Z+1} N^{A-Z+1} + e^- + \bar{\nu}_e$ aus energetischen Gründen verboten, erlaubt ist jedoch der doppelte Betazerfall ${}^A_Z N^{A-Z} \rightarrow {}^A_{Z+2} N^{A-Z+2} + 2e^- + 2\bar{\nu}_e$ (kurz geschrieben: $2\nu\beta\beta$). Ist nun das Neutrino sein eigenes Antiteilchen ($\nu = \bar{\nu}$), ist theoretisch auch ein neutrinoloser Doppelbetazerfall ($0\nu\beta\beta$) möglich: ${}^A_Z N^{A-Z} \rightarrow {}^A_{Z+2} N^{A-Z+2} + 2e^-$. Die komplette Zerfallsenergie wird dann zu gleichen Teilen auf die beiden β -Teilchen verteilt, folglich gibt es am Endpunkt des Spektrums eine diskrete Linie (siehe u.a. die Lehrbücher [Sch97, Kla00]).

Mit BOREXINO könnte man ein großvolumiges $0\nu\beta\beta$ -Experiment durchführen. Dazu löst man ^{136}Xe im Szintillator ([Cac00]). Alternativ dazu wurden auch Experimente mit ^{116}Cd oder ^{100}Mo vorgeschlagen ([Bel01]).

Long-Baseline-Experimente: Wie im Kap. 1.3 erläutert, hängt die Neutrinooszillation wesentlich von dem Quotienten L/E aus der Oszillationslänge und der Neutrinoenergie ab (vergl. Gl. 1.2 auf Seite 2). Dieser Parameter läßt auch im irdischen Maßstab Messungen zu, z.B. mit (Anti-)Neutrinos von Kernreaktoren oder auch von Beschleunigern. Verschiedene Experimente (z.B. CHOOZ, KARMEN, KAMLAND, K2K, LSND, MINIBOONE, PALOVERDE, etc.) verfolgen diese Idee. Von Vorteil ist insbesondere, dass der Neutrinofluss recht genau bekannt ist, da er unmittelbar mit der Reaktorleistung bzw. mit der Luminosität des Beschleunigers verknüpft ist. Zudem kann man Messsignal und Untergrund sehr gut diskriminieren, da man den Neutrinofluss im Prinzip abschalten kann (z.B. wenn die Reaktoren mit neuen Brennstäben beschickt werden, oder durch Taktung des Beschleunigers).

Auch BOREXINO erlaubt die Messungen von Reaktor–Antineutrinos mittels inverser β –Reaktionen an den Protonen des Szintillators bei einer Energieschwelle von $1,8 \text{ MeV}$. Da in Italien selbst keine kommerziellen Kernkraftwerke existieren, ist die Basislänge zu den nächsten Reaktoren in der Größenordnung von ca. 800 km , was eine Überprüfung der Oszilationsparameter im Bereich $\Delta m^2 > 10^{-6} \text{ eV}^2$ und $\sin^2 2\theta > 0,3$ erlaubt. Der Untergrund dieser Messung besteht im wesentlichen aus geologischen Antineutrinos (U, Th in der Erdkruste) sowie Relikten von Supernovae und eventuell solaren Antineutrinos ([Sch99]).

2.2 Der radioaktive Untergrund

Bei einem einfachen Szintillationsereignis ist zunächst nicht erkennbar, ob es durch ein Neutrino oder durch ein α , β oder sonstiges Strahlungsteilchen hervorgerufen wurde. Die Datenanalyse erlaubt nur eine gewisse Differenzierung. Dazu dient etwa das Myon–Veto oder die Messung von Koinzidenzen (z.B. β – γ –Koinzidenzen bei angeregten Zuständen, Koinzidenzen in Zerfallsketten, Pulsformanalyse). In der Regel kann man so aber nur einen gewissen Anteil der Ereignisse direkt identifizieren, der Rest bleibt und kann nur statistisch abgezogen werden. Das bedeutet gleichermaßen, dass die Datenaufnahme und –verarbeitung mit diesem überflüssigen Signal zusätzlich belastet wird. Etwas schlichter gesagt: der Detektor wird durch diesen Untergrund geblendet.

Deshalb ist *a priori* die Reduzierung des radioaktiven Untergrundes von elementarer Bedeutung für den Erfolg des Experiments. Ansätze hierzu sind die Unter–Tage–Installation (siehe Abschn. 2.3.1), Abschirmung des tatsächlichen Targets durch eine geeignete Detektorarchitektur („graded shielding“, siehe Abschnitt 2.3.2), systematische Auswahl geeigneter (d.h. nuklidspezifisch) hochreiner Materialien, präzise und saubere Verarbeitung und nicht zuletzt geeignete Reinigungsmaßnahmen.

An dieser Stelle der Argumentation wird der Einfluss des Detektors und aller verwendeten Materialien auf das Messsignal erkennbar. Jedes Material enthält in Spuren radioaktive Nuklide, die im allgemeinen unbedeutend sind, im Bereich der Low–Level–Messtechnik aber Gewicht bekommen. Einige wenige durch die Erfahrungen früherer Experimente plausible Überlegungen führen relativ schnell zu bestimmten „heißen Kandidaten“, die von vornherein in Betracht gezogen werden sollten. Iterativ werden diese Quellen identifiziert, lokalisiert und die Möglichkeiten der Reinigung oder Vermeidung durch Abschirmung oder die Auswahl geeigneter Materialien entwickelt. Gelegentlich führt dieser Prozeß erst zu einer Verbesserung der Messtechnik, die erlaubt, weitere Quellen auszumachen und zu bekämpfen.

Aus den primordialen Zerfallsreihen von ^{235}U , ^{238}U und ^{232}Th stammen unterschiedliche radioaktive Nuklide, die als Spurenelemente an nahezu allen Stellen des Detektors auftreten. Ihr Einfluss auf den Untergrund hängt neben ihrer absoluten Menge und ihrem Ort vor allem von den Halbwertszeiten ab. Nuklide, die in wenigen Stunden zerfallen, können getrost ignoriert werden, da der von ihnen produzierte Untergrund typischerweise nach wenigen Tagen durch den Zerfall auf ein vertretbares Maß abgesunken ist (sofern sie nicht durch langlebige Mutternuklide ständig nachproduziert werden). Haben sie hingegen Halbwertszeiten von mehreren Jahren, müssen sie auf jeden Fall vermieden werden, da man auf das Abklingen dieser Zerfallsreihen nicht warten kann. Zerfallsreihen bieten aber auch Vorteile: 1.) sie sind oft durch Koinzidenzen und zeitliche Verläufe im Messsignal identifizierbar; 2) oft kann man zwar das gefährliche Element nicht entfernen, wohl aber ein in der Reihe vorher stehendes Element, was letztlich den selben Effekt hat. Im Design des BOREXINO–Detektors ist vorgesehen, dass der Gehalt an Uran und Thorium im Szintillator 10^{-16} g/g nicht überschreitet. Da das säkulare Gleichgewicht der Zerfallsketten gestört ist, wird zusätzlich für ^{226}Ra eine Obergrenze von 10^{-22} g/g (Uran–Äquivalent) gefordert.

^{40}K gehört mit $1,28 \cdot 10^9 a$ Halbwertszeit ebenfalls zum primordialen Untergrund, der nahezu überall zu finden ist, besonders in den metallischen Detektorkomponenten und im Glas der Photomultiplier. Desweiteren kann es im Szintillator gelöst sein. Gemäß dem Detektordesign liegt hierfür die zulässige Obergrenze bei 10^{-14} g/g .

^{14}C entsteht kosmogen in der Reaktion $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ am Luftstickstoff. Es zerfällt als β^- -Strahler mit $T_{1/2} = 5730 a$ und einer Energie von $0,156 \text{ MeV}$. Es wird durch Photosynthese im Pflanzenmaterial eingebaut und über die Nahrungskette von Tieren aufgenommen. Es existiert folglich auch im Mineralöl, das als Rohstoff für den Szintillator benutzt wird, und ist untrennbar in die Kohlenwasserstoffmoleküle eingebaut. Der einzige wirksame Schutz vor ^{14}C ist, geologisch altes Rohöl zu benutzen, da hier nur noch die nukleogene Produktion von ^{14}C beiträgt. Vor dem Detektorbetrieb muss eine vorsichtige Materialselektion durchgeführt werden (wobei auch ^{14}C -Einträge aus der Verarbeitung gefunden werden). Die Design-Obergrenze für das Verhältnis $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ liegt bei 10^{-18} . Es ist eine der wesentlichen Aufgaben für den Testdetektor CTF (siehe Abschnitt 2.3.3), den Szintillator unmittelbar nach der Anlieferung im LNGS auf seinen ^{14}C -Gehalt zu untersuchen ([Bor98c, DiC03]).

^7Be entsteht im Szintillator durch Reaktionen thermischer Neutronen am Kohlenstoff (z.B. $^{12}\text{C}(n,\alpha nn)^7\text{Be}$ oder $^{12}\text{C}(p,\alpha np)^7\text{Be}$). ^7Be zerfällt durch Elektroneneinfang¹, wobei 10 % der Zerfälle γ -Strahlung von 478 keV produzieren. Das kosmogen im ursprünglichen Mineralöl produzierte ^7Be sollte aufgrund der geringen Halbwertszeit ($T_{1/2} = 53,29 \text{ d}$) längst zerfallen sein. Eine erneute kosmogene Produktion von ^7Be ist zu erwarten, solange der Szintillator bzw. die dafür notwendigen Rohstoffe überirdisch sind, also bei der Förderung, Transport und Lagerung des Rohöls sowie bei der Produktion, Transport und Lagerung des daraus hergestellten Szintillators. Es wurde allerdings gezeigt, dass der ^7Be -Gehalt des Szintillators durch Destillation sehr effektiv reduziert werden konnte ([Vog96]). Zur Vermeidung erfolgt also Destillation direkt nach der Szintillatorherstellung in der Raffinerie, anschließend schnellstmöglicher Transport in das Untergrundlabor und Lagerung dort sowie eine erneute Destillation des Szintillators unmittelbar vor dem Einfüllen in den Detektor. Gemäß dem Detektordesign liegt hierfür die zulässige Obergrenze bei 10^{-26} g/g .

^{39}Ar , ^{85}Kr und ^{222}Rn sind radioaktive Edelgasnuklide, die aus der Umgebungsluft in den Detektor eingetragen werden. ^{39}Ar entsteht im wesentlichen kosmogen, während ^{85}Kr anthropogen in die Atmosphäre entlassen wird. ^{222}Rn entstammt der Kette des primordialen ^{238}U , es kann deshalb sowohl aus der Atmosphäre eindringen, als auch durch Emanation von Detektormaterialien freigesetzt werden. Das Verhältnis, mit dem die Edelgasnuklide in BOREXINO und in der CTF auftreten, kann ein wichtiger Indikator sein bei der Frage, ob ein Leck vorliegt oder ob die Kontamination auf anderem Wege in den Detektor gelangt ist. Die drei Edelgase, ihr Einfluss auf den Messbetrieb, die Möglichkeiten der vorherigen quantitativen Bestimmung und ihre Beseitigung werden in den weiteren Kapiteln 3 und 5 noch ausführlicher behandelt.

Neutronen werden bei den verschiedensten Zerfällen in den umliegenden Felswänden produziert und sind Teil der kosmischen Strahlung. Sie werden durch die Wasserabschirmung abgeschirmt.

Myonen stammen aus der kosmischen Strahlung. Sie werden durch die Gesteinsabdeckung stark abgeschirmt, zudem kann man um den Detektor ein wirkungsvolles Myon-Veto aufbauen.

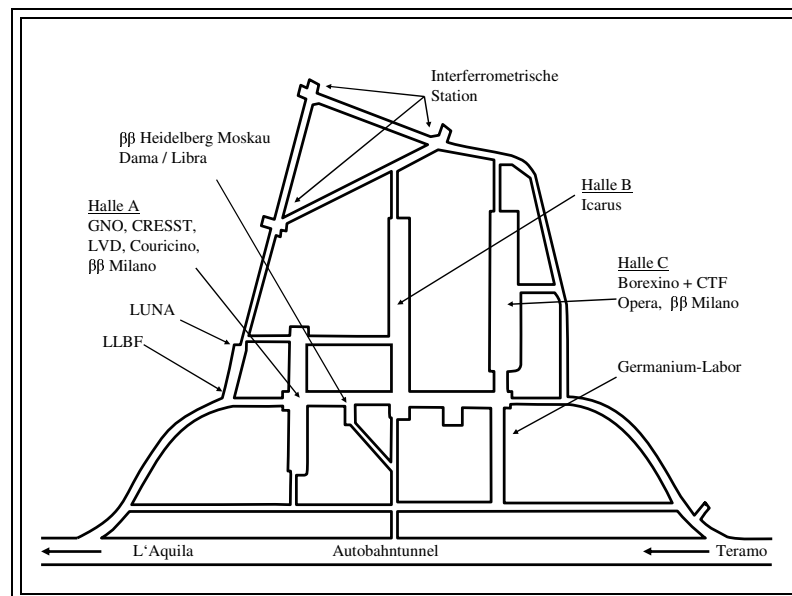
¹Die Besonderheit dieses Signals besteht darin, dass hier exakt die gleiche Reaktion stattfindet, wie auch in der Sonne. Es werden also „nichtsolare“ ^7Be -Neutrinos produziert. Allerdings ist der ν -Fluss zu gering, um für den Untergrund relevant zu sein.

2.3 Der Borexino – Detektor

2.3.1 Das Gran Sasso – Untergrundlabor

Die *Laboratori Nazionali del Gran Sasso* (LNGS) liegen bei Assergi (AQ) in Italien, am Fuße des Gran-Sasso-Massivs, der höchsten Erhebung der Abruzzen. Die Autobahn A 24 wird mit einem ca. 11 km langen Tunnel unterhalb des Corno Grande durch den Berg geführt. Ausserhalb des Tunnels befinden sich Bürogebäude, Werkstätten etc., im Tunnel sind 3 große Experimentierhallen in den Fels gesprengt und mit der nötigen Infrastruktur versehen. Die Überdeckung mit ca. 1400 m Gestein entspricht einer Abschirmung vor der kosmischen Strahlung von ca. 3300 m Wasseräquivalent (*m.w.e.*). Abb. 2.3 zeigt einen Plan der Experimentierhallen. BOREXINO wird in der Halle C aufgebaut, wo auch zunächst als Pilotprojekt die COUNTING TEST FACILITY (siehe Abschnitt 2.3.3) aufgebaut worden ist, in der viele Probleme im Vorfeld untersucht wurden und grundlegend die physikalische wie technische Durchführbarkeit eines Experiments wie BOREXINO festgestellt wurde. Seit 1997 befinden sich der BOREXINO-Detektor sowie die dazugehörigen Versorgungssysteme (Szintillator, Wasser, Gas, Strom, Elektronik, Brandschutz etc.) im Aufbau.

Abbildung 2.3:
Lageplan der Experimentierhallen im Gran Sasso Untergrundlabor LNGS (Aufsicht)



2.3.2 Die Detektorarchitektur

Der zweite Ansatz bei der Untergrundreduktion ist die Detektorarchitektur. Die Lichtemission eines Szintillationsereignisses ist isotrop, man kann deshalb zwar den Ort des Ereignisses messen, nicht aber die Richtung des auslösenden Teilchens. Vorteilhaft für den Nachweis und die Rekonstruktion ist eine kugelförmige Targetgeometrie, die durch mehrere Lagen Abschirmung vor Störstrahlung geschützt ist. Dabei werden die Reinheitsanforderungen von aussen nach innen zunehmen strenger, weshalb man von einer abgestuften Abschirmung („*graded shielding*“) spricht. Dies ist in der eingangs erwähnten Literatur mehrfach umfangreich beschrieben, weshalb an dieser Stelle nur noch einmal die grobe Struktur erläutert werden soll (siehe auch Abb. 2.4).

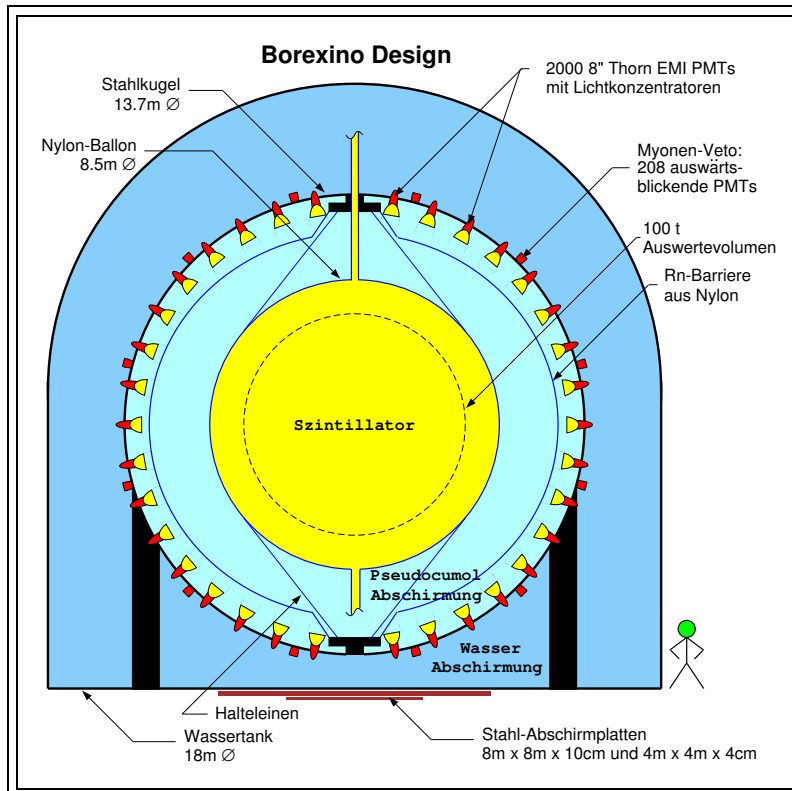


Abbildung 2.4:
Der BOREXINO–
Detektor: die Skizze
zeigt den äußeren
Tank, die *Stainless
Steel Sphere* mit den
Photomultipliertubes
und den doppelten
Nylon–Ballon.

Der äußere Tank ist aus rostfreiem Stahl mit 18 m Durchmesser und einer maximalen Höhe von 16,7 m. Innerhalb des Tanks befindet sich eine ebenfalls aus rostfreien Stahl gefertigte Kugelsphäre (*Stainless Steel Sphere*, im folgenden kurz: SSS) mit 13,7 m Durchmesser. Sie dient nicht nur zur Abschirmung, sondern ist auch Halterung für die Photomultiplier.

Der Zwischenraum ist mit 3000 m³ hochreinem Wasser gefüllt. Damit erhält der Detektor eine erste Abschirmung vor der lokalen Streustrahlung, die hauptsächlich aus γ -Strahlung und Neutronen von den Tunnelwänden besteht. Im übrigen sind auf der SSS 400 PMT's montiert, die als Myonveto genutzt werden. 200 davon messen die Čerenkovstrahlung kosmischer Myonen im äußeren Wassertank, 200 beobachten den Innenraum der SSS.

Die Wasserabschirmung am Boden des Detektors beträgt nur 1 m, was durch eine Stahlplatte von 14 cm Dicke ausgeglichen wird. Unter dem Detektor ist ein Gang eingerichtet, durch den künstliche Neutrinoquellen möglichst nah an den Detektorkern herangebracht werden können (vergl. Kap. 2.1). Ebenfalls in Bodennähe befindet sich ein großes Tor, durch das man während der Aufbauphase vom vorgelagerten Reinraum aus in das Innere des Detektors gelangen kann.

Das Innere der SSS stellt den eigentlichen Detektor dar. Sie ist gefüllt mit dem Targetmaterial Pseudocumul (*1,2,4-Trimethylbenzol*, C₆H₃(CH₃)₃, im folgenden kurz: PC), das durch zwei Nylonballons noch einmal unterteilt wird. Sie werden als *Inner Vessel* (im folgenden kurz: IV) und *Outer Vessel* (im folgenden kurz: OV) bezeichnet. Das OV soll in der Abschirmung die Konvektion von radioaktiven Gasen unterdrücken. Speziell ist hier das Radon zu nennen, das von den PMT's, Kabeln und anderen Bauteilen emaniert wird.

Das Inner Vessel hat einen Durchmesser von 8,5 m und enthält ca. 300 t PC, wobei hier als Leuchtstoff (Fluor) ca. 1,5 g/l PPO (*2,5-Diphenyloxazol*) zugesetzt sind (dieses PC–PPO–Gemisch ist der eigentliche Szintillator). Da auch am Rand des IV noch störende Untergrundereignisse auftreten könnten, wird nur das innerste Volumen des IV als sog. *Fiducial Volume* zur Datenauswertung herangezogen (ca. 100 t Szintillator).

Der Bereich zwischen den Nylonballons wird als *Inner Buffer* (IB), der zwischen dem OV und der SSS als *Outer Buffer* (OB) bezeichnet. Im *Buffer* enthält das PC kein Fluor mehr, stattdessen ist als *Quencher* Dimethylphthalat (kurz: DMP) beigefügt, um die Szintillation innerhalb des Buffers zu unterdrücken.

Die Detektion des Szintillationslichtes erfolgt durch 1800 Photoelektronenvervielfacher („*Photo-Multiplier-Tubes*“, kurz: PMT's), die auf der SSS montiert sind. Sie sind aus besonders strahlungsarmem Glas hergestellt. Zudem sind sie mit metallenen Lichtkonzentratoren ausgestattet, wodurch die optische Flächenabdeckung auf ca. 30 % erhöht werden kann. Das Messignal wird über Kabel durch den Wassertank nach außen geführt. Die Anbringung der PMT's und ihre Versiegelung ist so ausgelegt, dass die Geräte sowohl in Wasser wie auch in PC über lange Zeit arbeiten können, ohne Schaden zu nehmen. Die durchschnittliche Signaleffizienz liegt bei ca. 400 Photoelektronen MeV^{-1} , wodurch eine mittlere Energieauflösung von ca. 5 % (bei 660 keV) möglich wird. Gleichzeitig wird eine Ortsauflösung von $\leq 10\text{ cm}$ angestrebt ([Bor02b, Dos00, Man01]).

Zur Eichung des Detektors stehen Laser zur Verfügung, deren Licht mit Lichtleiterfasern gezielt auf einzelne PMT's gelenkt werden kann. Weiterhin ist eine Eichung mit LED's möglich. Eine besondere Form ist die Eichung mit radioaktiven Quellen, die in kleinen Glasphiolen eingefasst sind und von oben in das Innere des Detektors gelassen werden können. Das Gestänge, an dem die Quelle befestigt ist, besitzt ein Gelenk, so dass die Quelle an jeden Ort innerhalb der IV geführt werden kann. Die Phiolen können z.B. mit ^{222}Rn dotierten Szintillator enthalten, so dass man die Kette der Tochternuklide unter realen Bedingungen ausmessen kann (u.a. [Gög01, Man01]).

Besonderheiten während der Aufbauphase

Die Reinheitsanforderungen, die an den Detektor gestellt werden, können nur erfüllt werden, wenn Untergrundquellen bereits während der Konstruktionsphase konsequent identifiziert und vermieden werden. Neben der Entwicklung geeigneter Reinigungsprozeduren bedarf es deshalb auch einer umfangreichen Materialelektion, und auch hierfür mussten die Kontrollmethoden teilweise erst entwickelt werden, die sich oft sogar auf alle Fertigungs- und Entwicklungsanlagen sowie auf alle beteiligten Transport- und Lagerkapazitäten auch außerhalb der unmittelbaren Detektorperipherie am LNGS ausweiteten. Die BOREXINO-Kollaboration hat hier beeindruckende Erfolge erzielen können; sie sind ausführlich in [Bor02c] und den dort angegebenen Quellen beschrieben. Speziell sei aber an dieser Stelle noch auf die γ -Spektroskopie (u.a. [His01, Ned98, Ned00]), Emanationsmessungen und Untersuchung von Stickstoff und Wasser ([Buc01, Fre98, Heu00, Lau96, Rau99, Rau00, Sim00, Woj00, Zuz02a, Zuz02b]) sowie auf die Neutronenaktivierungsanalyse ([Gol93, Nef96, Hen99]) hingewiesen.

In manchen Fällen konkurrieren Arbeitsorganisation, Logistik, Sicherheitsaspekte und Reinheitsanforderungen unmittelbar miteinander. Ein Beispiel hierfür ist die Installation des Nylon-Vessel-Systems. Aufgrund der Größe und des Gewichtes des Vessels muss während der Installation am Boden der Stahlsphäre ausreichend Freiraum bleiben, die letzten PMT's können also erst installiert werden, nachdem der Ballon aufgeblasen wurde. Um das Personal bei diesen Arbeiten nicht zu gefährden, muss das Gas, mit dem das Vessel aufgeblasen wird, atembar sein, sollte aber gleichzeitig möglichst wenig Radon enthalten. Die zu diesem Zweck installierte Gasanlage wird in Kapitel 6 (ab Seite 81) vorgestellt.

Schlussendlich wurde die Datenaufnahme zu verschiedenen Zeitpunkten Tests unterzogen (die sog. „*Air-Runs*“). Sie dienen zunächst natürlich der unmittelbaren Funktionsprüfung, später auch der Überprüfung der Energie-, Orts- und Zeitauflösung. Nach dem Füllen des Detektors mit Wasser ist dann noch ein weiterer Test (*Water Run*) möglich. Die dadurch entwickelte Kenntnis der

Elektronik und Datenaufnahme erlaubt, bereits während des Szintillatorfüllens erste Messungen durchzuführen².

Anforderungen eines großen Chemieexperiments

Neben der Teilchen- und Astrophysik, die den eigentlichen Grund des Experimentes darstellt, besteht die große Herausforderung darin, die nötigen Reinheitsanforderungen in großem Maßstab und für mehrere teilweise sehr verschiedene Medien zu erfüllen. Zunächst einmal ist da der Szintillator, der in das Innerste gefüllt wird, als zweites die Pufferlösung, die zwischen Vessel und Stahlkugel kommt. Das dritte Medium ist Wasser, das in der CTF als Abschirmung dient, das in BOREXINO den äußeren Detektor füllt, das vor dem Szintillatorfüllen auch den inneren Detektor ausfüllt, und das bei beiden Detektoren zur Szintillatorreinigung genutzt wird. Schließlich benötigt man als viertes Medium Gase, im speziellen Stickstoff unterschiedlicher Reinheit, der zum Ausblasen und Trocknen verschiedener Tanks, als Gaspolster oder auch zum Gegenstromspülen bei der Wasser- und Szintillatorreinigung verwandt wird.

Alle Medien müssen in ausreichender Menge und in der gewünschten Qualität zur Verfügung stehen. Zu diesem Zweck gibt es eine ganze Bandbreite von Versorgungseinrichtungen und Reinigungsanlagen, die in unmittelbarer Detektornähe aufgebaut sind. Die Szintillatorreinigung erfolgt mittels Filterung, Destillation, Wasserextraktion, Silikagel-Säulenreinigung und Gegenstromgasspülen mit Stickstoff. Die Wasserreinigung erfolgt durch Deionisation, inverse Osmose und ebenfalls durch Gegenstromgasspülen. Der Stickstoff wird durch Kryoadsorption gereinigt. Einige Details sind nachfolgend in Abschnitt 2.3.4 dargestellt.

2.3.3 Die Counting Test Facility

Da der Betrieb des BOREXINO-Detektors sehr komplex ist und noch dazu in einzelnen Aspekten nie vorher erreichte Reinheitsgrade angestrebt werden, war es sinnvoll, Prozeduren und Detektormaterialien in einem Prototyp zu testen. Dieser als COUNTING TEST FACILITY (kurz: CTF) bezeichnete Detektor ist BOREXINO im Konzept ähnlich, jedoch etwas kleiner und etwas vereinfacht.

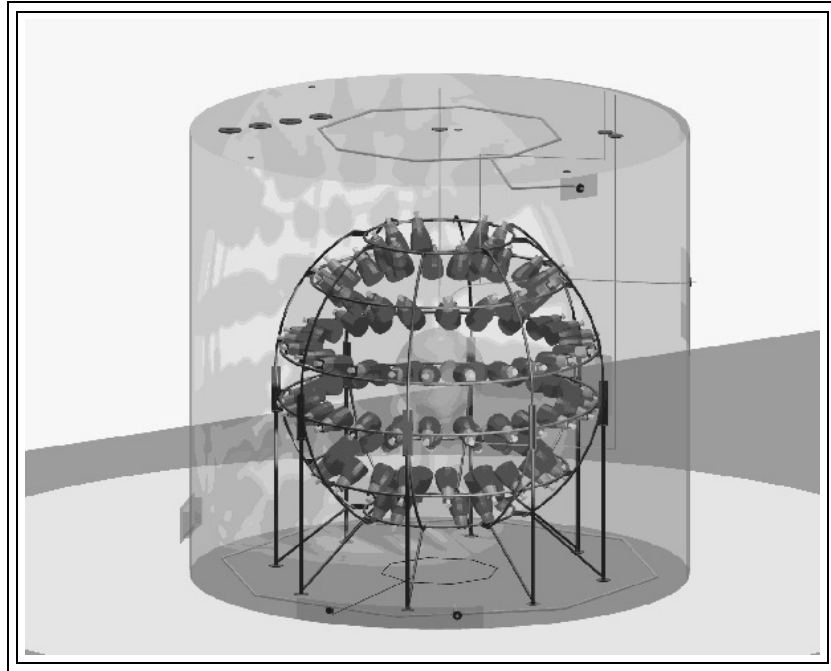
In einem zylindrischen Stahltank mit 11 m Durchmesser und 10 m Höhe steht eine Stahlstruktur, die 100 Photomultiplier trägt. Im Inneren befindet sich eine Nylonblase, die den Szintillator enthält, der übrige Tank ist mit Wasser gefüllt. Die Wände sind mit dem Kunstharz *Permatex* (Markenname) gestrichen, dies dient dem Korrosionsschutz, aber auch um den Tank abzdunkeln und Reflexion zu unterdrücken.

Mit der CTF wurden und werden eine ganze Bandbreite von Fragestellungen untersucht, u.a.:

- Machbarkeit des Detektordesigns und Entwicklung von Detektorkomponenten (z.B. Photomultiplier, einfaches und doppeltes Nylon-Vessel, Myonveto, Liquid-Handling-System),
- Test der beiden möglichen Szintillatoren PC (Pseudocumol) und PXE (Phenyl-Xylyl-Ethan), Untersuchung der optischen Eigenschaften, Signalqualität, chemische Stabilität etc.,

²Grundsätzlich könnte man bereits während des Füllens mit den Neutrinomessungen beginnen, wahrscheinlich wird zu diesem Zeitpunkt aber der radioaktive Untergrund und das noch im Szintillator gelöste Wasser die Neutrinomessung zunächst vereiteln. Allerdings können die gewonnenen Messdaten zu einer detaillierten in-situ Studie des Untergrundes genutzt werden.

Abbildung 2.5:
die COUNTING TEST
FACILITY (CTF),
Prototyp für den
BOREXINO–Detektor.
Gezeigt ist der äus-
sere Tank, die offene
Stahlträgerstruktur mit
den Photoelektronen-
vervielfachern und das
Nylon–Vessel.



- Überprüfung der Reinheit verschiedener Detektormaterialien und des Szintillators (z.B. ^{14}C , ^{238}U , ^{232}Th oder ^{40}K),
- Möglichkeiten der Szintillatorreinigung (Wasserextraktion, Säulenreinigung, Destillation und Stickstoffspülen),
- Studium des Szintillatorsignals, Lichtausbeute, Energie- und Ortsauflösung, α - β -Diskriminierung, etc.
- Entwicklung des Datenaufnahmesystems.

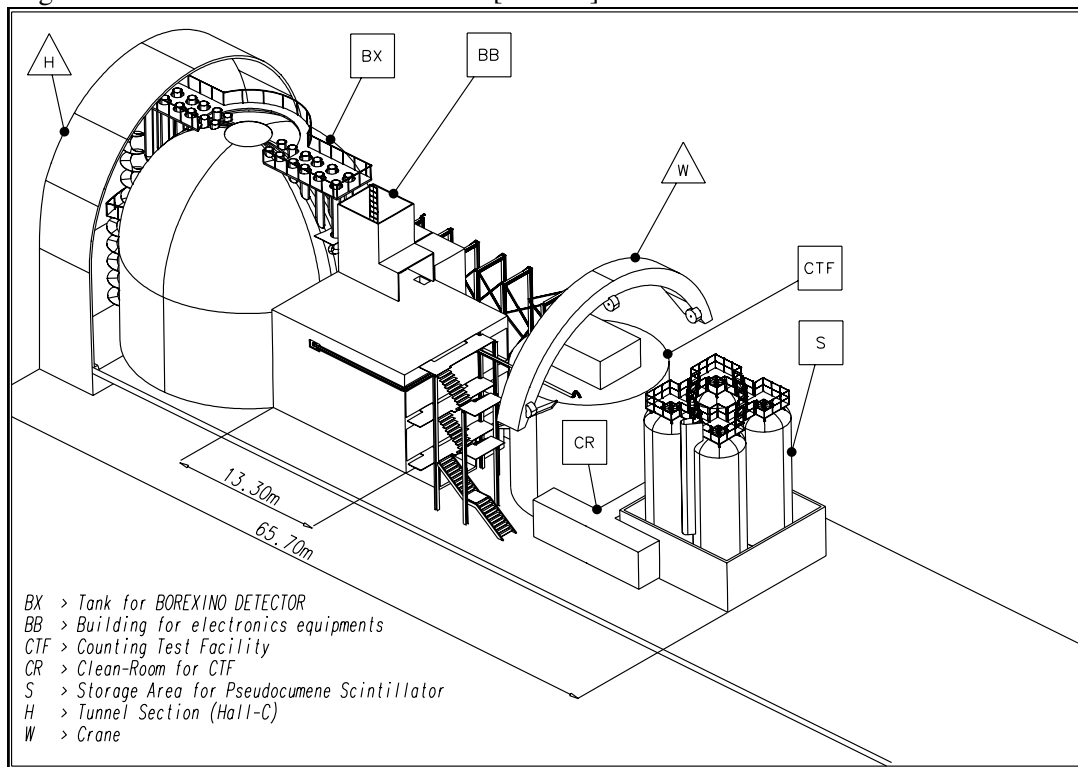
Die Messperiode CTF I verlief 1995–1997, Messperiode CTF II fand 1999 statt, seit November 2001 läuft die Messperiode CTF III. Eine umfassende Darstellung der einzelnen Entwicklungen würde an dieser Stelle den Rahmen sprengen, es sei deshalb auf die Publikationen der Kollaboration verwiesen ([Bor96]–[Bor02c] sowie [DiC03]).

2.3.4 Die Detektorperipherie

Nicht allein der Detektor selbst beeinflusst das Messsignal. Auch die gesamte Peripherie liefert einen entscheidenden Beitrag. Der Szintillator wird in einer Raffinerie hergestellt. Da die vorhandenen Transport- und Lagerstätten nicht den notwendigen Reinheitsanforderungen genügen, wird er nach der Produktion an einer eigens angefertigten Ladestation mit Stickstoff durchgespült (was hauptsächlich den aus der Luft gelösten Sauerstoff austreibt) und dann direkt in speziell angefertigte Tanks gefüllt, um zum LNGS transportiert zu werden. In Halle C werden die Tanks entladen und das PC in die Lagertanks gefüllt. Die Szintillatorreinigung erfolgt in den „Skids“ bzw. im „Module Zero“, zum Mischen von Szintillator und Fluor dient das „PPO-System“. Mit der „Filling Station“ wird der Szintillator in den Detektor gefüllt.

Neben dem PC werden bei BOREXINO noch zwei weitere Medien eingesetzt, nämlich Wasser und Gase, speziell Stickstoff. Beide Medien werden in separaten Anlagen in Detektornähe gereinigt.

Abbildung 2.6: Die Detektorperipherie des BOREXINO-Experiments: Skizze der verschiedenen Anlagen und Module in Halle C des LNGS [Bor02b]



Transporttanks: Die Reinheitsanforderungen für BOREXINO sind derartig hoch, dass schon beim Transport des Szintillators von der Raffinerie der Firma POLIMERI EUROPA in Sarroch (Sardinien; die Anlage war bis 2001 im Besitz von ENICHEM) zum LNGS besondere Tanks benutzt werden müssen. Dazu wurden speziell 4 Transporttanks (genannt „Isotanks“) aus elektropoliertem Edelstahl angefertigt, jeweils mit einem Volumen von ca. 20 m^3 . Sie sind Überdrucktauglich (bis zu 4 bar). Nach der Transportphase können sie zusätzlich zu den Lagertanks (s.u.) als Lagerkapazität genutzt werden.

Lagertanks: Aus verschiedenen Gründen ist es notwendig, unter Tage in unmittelbarer Detektornähe Lagerkapazitäten für den Szintillator einzurichten. Grundsätzlich sollte der Szintillator (ca. 300 t) nur so kurz wie möglich überirdisch gelagert werden und nach der Anlieferung den Tunnel möglichst nicht wieder verlassen, um die Bildung kosmogener Nuklide (z.B. ^7Be oder ^{11}C) zu reduzieren. Der zweite und nicht minder relevante Grund ist die Logistik von insgesamt ca. 1100 t Pufferlösung, die angeliefert, gereinigt, mit dem DMP³ vermischt und eingefüllt werden muss. Die Logistik umfasst etwa 70 Lieferungen mit den Isotanks und wird sich voraussichtlich über 6–7 Monate hinziehen. Durch den Einsatz des Quenchers kann der Untergrund der in der Pufferlösung kosmogon produzierten Nuklide wirkungsvoll reduziert werden, so dass eine Lagerung auch außerhalb des Tunnels über längere Zeit vertretbar ist.

Bei BOREXINO stehen 4 Edelstahltanks („Storage Vessel“) mit einem Volumen von jeweils 114 m^3 zur Verfügung. Einer der Tanks (Nr. 1) ist mit einem Spülarms (engl. *Sparger*) ausgerüstet, mittels dessen der Tankinhalt mit Stickstoff gespült werden kann. Der mögliche Gasfluss durch den Sparger liegt bei weniger als $10 \text{ m}^3/\text{h}$, damit ist man aber in der Lage, schon vorab Sauerstoff und

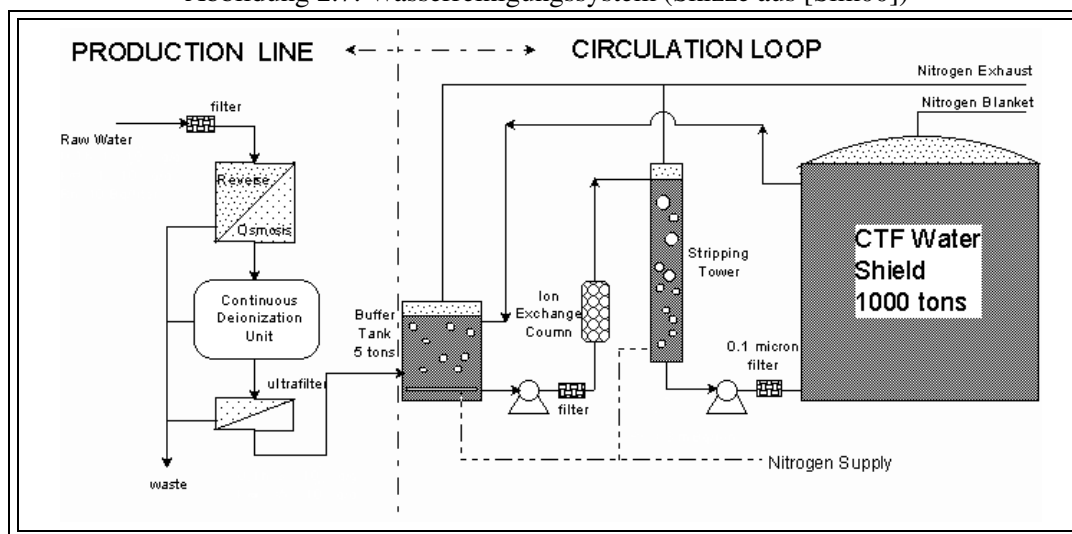
³DMP = „Dimethylphthalat“, wird der Pufferlösung beigefügt, um im Bereich der aktiven Abschirmung die Szintillation zu unterdrücken.

ev. Krypton aus dem Szintillator zu entfernen. Innerhalb des Tanks befindliches ^{222}Rn wird jedoch schneller zerfallen und kann an dieser Stelle nicht effizient ausgetrieben werden. Deshalb ist zunächst davon auszugehen, dass das Radon, das sich durch Eintrag mit dem Szintillator oder durch Emanation aus den Tanks im Szintillator befindet, vollständig in die Tochternuklide und damit binnen Kürze auch in ^{210}Pb umgewandelt wird. Darum waren auch diese Tanks Gegenstand genauer Messungen (siehe Kap. 5.2)

Wasserversorgung: Der zweite wesentliche Bestandteil von BOREXINO ist Wasser. Wasser dient als äußere Abschirmung bei BOREXINO und in der CTF. Vor dem eigentlichen PC-Füllen der SSS wird der Detektor mit Wasser gefüllt. Es wird bei der Wasserextraktion in den Skids benötigt und dient an vielen Stellen zum Reinigen der Detektorgruppen. Das Wasser sollte den bei BOREXINO üblichen Reinheitsanforderungen genügen. Darum wurde eine eigene Wasseraufbereitungsanlage aufgebaut ([Bal96]). Die Wasserreinigung beinhaltet Filterung, Deionisation, inverse Osmose und Stickstoffspülen. Der Gehalt von Radium und Radon sollte relativ niedrig sein, typische Werte liegen z.Zt. bei ca. $200\text{--}800\text{ mBq/m}^3$ ^{222}Rn und $1\text{--}5\text{ mBq/m}^3$ ^{226}Ra bei einer Produktionsrate von $2\text{ m}^3/\text{h}$. Die Schwankungen sind durch unterschiedliche Reinigungsprozeduren und Flüsse zu begründen. Untersuchungen hierzu sind in [Lau96, Sim00, Sim03a] dargestellt.

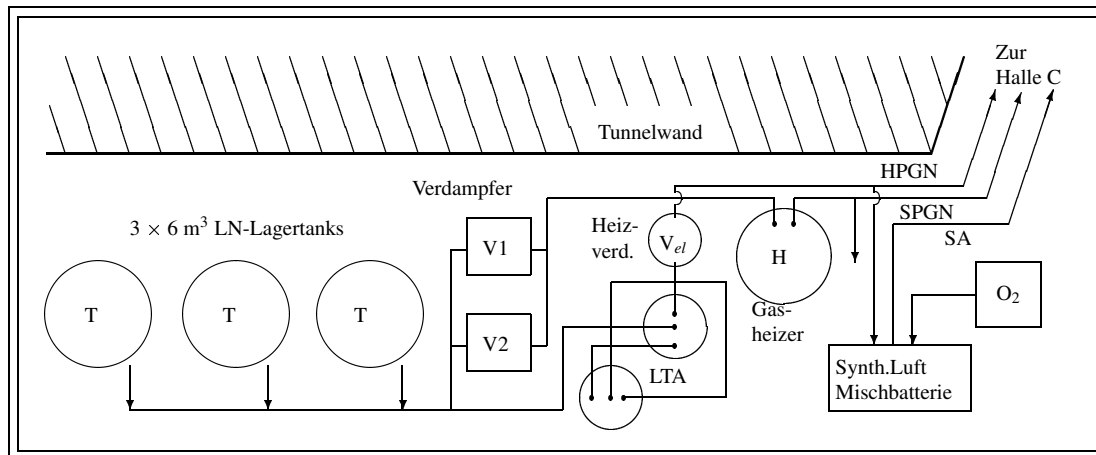
Eine mögliche Untergrundquelle stellen die Ablagerung von Radium- bzw. Radontöchtern auf und im Nylon der Vessel während des Wasserfüllens des Detektors dar. Deshalb ist vorgesehen, die Anlage noch zu verbessern.

Abbildung 2.7: Wasserreinigungssystem (Skizze aus [Sim00])



Hochreiner Stickstoff: Viele Prozesse und Geräte aus der Detektorperipherie von BOREXINO und der CTF nutzen Stickstoff als Spül- und Reinigungsgas. Dabei werden an den Stickstoff selbst sehr strenge Reinheitsanforderungen gestellt, da er unmittelbar mit dem Szintillator und dem Wasser der Abschirmung in Berührung kommt. Zudem wird zur Installation der *Inner Vessel* (IV) besonders radonarme aber atembare Luft benötigt. Um diese Anforderung logistisch zu bewältigen, wurde im Untergrundlabor eine zentrale Stickstoffversorgung aufgebaut, die geeignet ist, die einzelnen Arbeitsbereiche über einen längeren Zeitraum mit Stickstoff bekannter und konstant niedriger Rn-Kontamination zu versorgen (siehe Abb. 2.8 auf Seite 24).

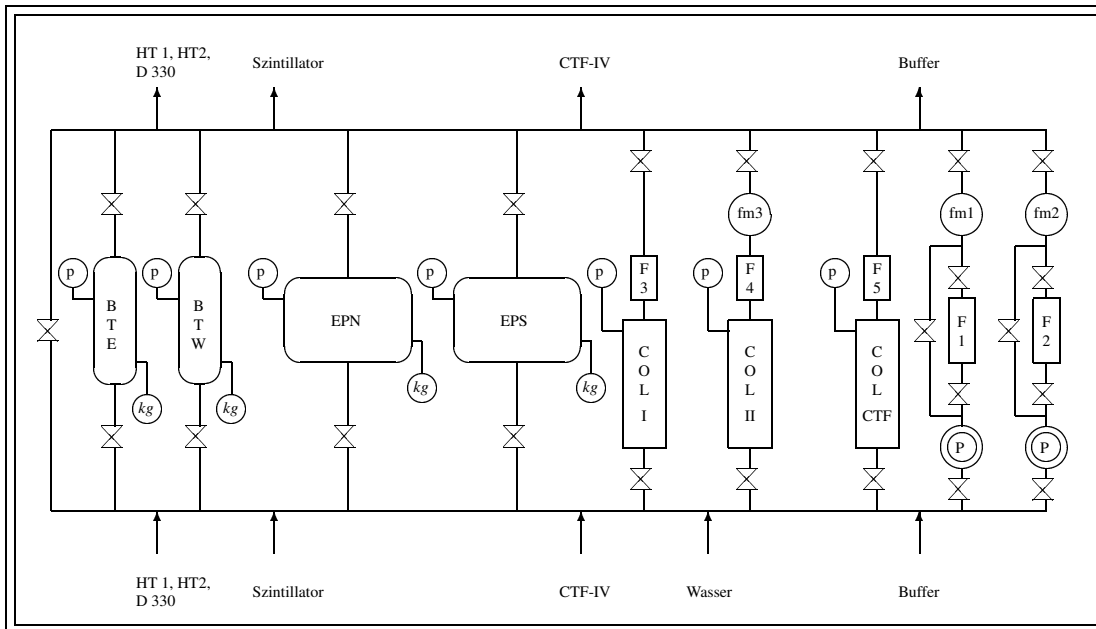
Abbildung 2.8: Skizze des Stickstoffversorgungsanlagen für das BOREXINO–Experiment. Die Anlagen sind außerhalb der Halle C in der LKW–Durchfahrt aufgebaut, um die Logistik zu ermöglichen. Sie bestehen aus 3 Tanks (T) mit jeweils 6 m^3 Volumen zur Lagerung von Flüssigstickstoff, den beiden Tieftemperaturadsorbern (LTA), zwei konventionellen Verdampfern (V) und einem elektrisch betriebenen Verdampfer (V_{el}), dem Gasheizer sowie der Mischanlage für die synthetische Luft.



Die Anlage liefert Stickstoff in zwei unterschiedlichen Reinheitsgraden (bezüglich der Radon-Kontamination): *High Purity* (HPN₂) bei $< 1\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und *Standard Purity* (SPN₂) bei ca. $100 - 300\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Der Stickstoff wird in 3 konventionellen Tanks (je $6\ \text{m}^3$) flüssig gelagert und kann für die Standardqualität in handelsüblichen atmosphärischen Verdampfern verdampft werden. Anschließend wird die Gasleitung durch ein Wasserbad geführt, so dass das Gas konstant temperiert werden kann. *High-Purity*-Stickstoff erhält man, indem der flüssige Stickstoff durch eine große Aktivkohlefall geleitet wird („Low-Temperatur-Adsorber“ oder kurz „LTA“, $V_{\text{Kohle}} = 11,5\ \ell$, $L = 125\text{ cm}$), um ihn von Radon und anderen Verunreinigungen (z.B. CO₂ etc.) zu reinigen. Danach wird die Gasleitung durch ein Wasserbad geführt und der Stickstoff so verdampft und relativ konstant temperiert. Zur Reinigung stand zunächst nur ein LTA zur Verfügung, im Jahr 2001 wurde dann der zweite LTA installiert. Das ermöglicht kontinuierlichen Betrieb auch während der Regenerationszyklen der Adsorberfallen. In [Fre98, Heu00, Rau99] sind Entwicklung und Aufbau der Anlagen und Prozesse umfassend geschildert; die Versorgung mit synthetischer Luft wird in Kap. 6 dargestellt.

Szintillatorreinigung im „Module Zero“: „Module Zero“ ist die Bezeichnung für ein weiteres Liquid-Handling-System, das insbesondere im Vorfeld und in Zusammenhang mit der CTF erfolgreich eingesetzt wurde. Es enthält neben den obligaten Kontroll- und Regeleinrichtungen, Filtern und Pumpen verschiedene Tanks (2 elektropolierte Edelpahl tanks (kurz: EP-Tanks) mit jeweils ca. $7,5\ \text{m}^3$ Volumen sowie zwei Buffertanks mit ca. $1,2\ \text{m}^3$ Volumen) und zwei Reinigungssäulen, die mit Silikagel (Kieselgel) gefüllt sind. Damit ermöglicht das Module Zero alternativ zu den anderen Modulen, die wesentlichen Schritte der Szintillatorbehandlung uneingeschränkt durchzuführen. Dies umfasst das Anmischen der Masterlösung (für die Beimengung des PPO in den Szintillator), die Szintillatorreinigung mit der Säule, Stickstoffspülen in den Buffertanks und das Beschicken des Detektors (siehe [Gög01, Gri00, Nie00] und Quellen darin).

Abbildung 2.9: Blockdiagramm der Szintillatorreinigungsanlagen „Module 0“ mit den beiden Buffer Tanks („BTE“ für East und „BTW“ für West), den EP-Tanks (Nord „EPN“ und Süd „EPS“) und den Silikagelsäulen („COL“). Weitere Elemente sind Filter („F“), Flussmesser („fm“), Druckanzeiger („p“), Pumpen („P“) und Wägezellen zur Füllstandsmessung („kg“).



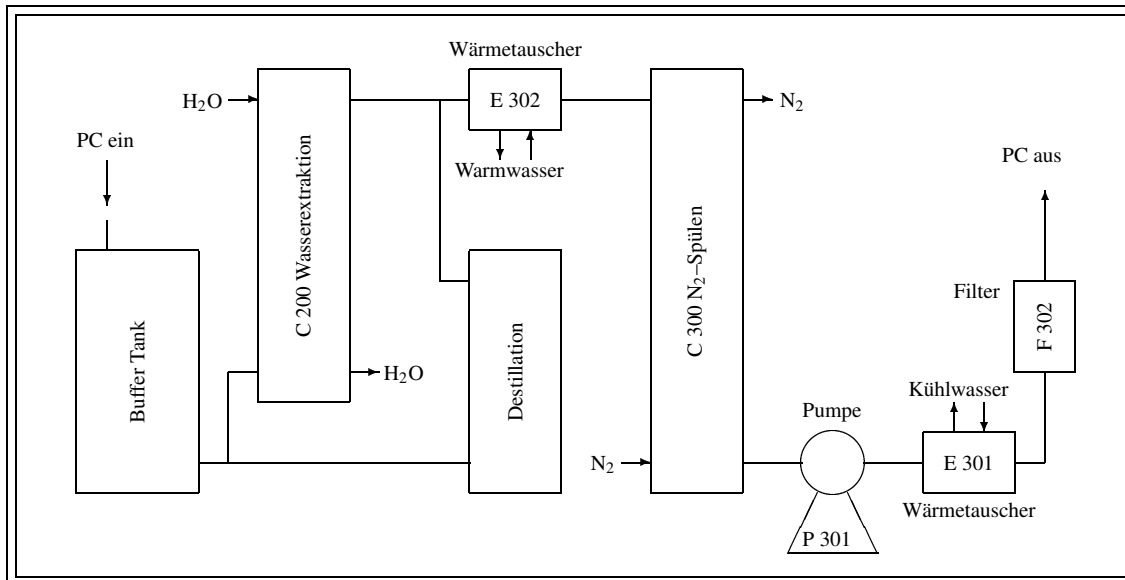
Szintillatorreinigung in den „Skids“: Mit „Skids“ (*engl.*: Hemmschuh) wird ein ganzes Modul bezeichnet, das verschiedene Komponenten zur Szintillatorbehandlung enthält [Ben96, Ben98]. Auch hier gibt es wieder verschiedene Kontroll- und Regelgeräte, Filter (typischerweise mit Teflon-Kartuschen), Pumpen und Wärmetauscher. Als Haupteinheiten enthält es eine Destillationsseinheit sowie jeweils eine Säule zum Gegenstromspülen mit Wasser bzw. Stickstoff; die Grundstruktur des Aufbaus ist in Abb. 2.10 skizziert. Die Säulen sind zusätzlich mit Stahlblechpaketen gefüllt, die die innere Oberfläche vergrößern und so die Reinigungseffizienz steigern. Säulen und Leitungen sind aus electropolierem Edelstahl.

Der Szintillator wird vom „Interconnection pannel“ (der Verbindungsstelle zwischen den Detektor- und Reinigungsmodulen) angeliefert, der Buffertank erlaubt die Entkopplung des Flusses. Filter reinigen den Szintillator von Partikel-Verunreinigungen. In der Destillation sollen verschiedene organische Moleküle, aber auch schwere Metallkomplexverbindungen zurückgehalten werden.

Bei der „Wasserextraktion“, also dem Gegenstromspülen mit Wasser in der Säule C 200, wechseln Metallionen (U, Th, Ra, ^7Be , ^{40}K) in die Wasserphase, aber auch $^{14}\text{CO}_2$ wird gebunden, indem es Kohlensäure bildet. Wasserextraktion und Destillation können alternativ betrieben werden.

Da bei hohen Temperaturen die Löslichkeit von Gasen geringer ist, wird der Szintillator mit dem Wärmetauscher E 302 erwärmt, so dass gasförmige Kontaminationen (^{222}Rn , ^{39}Ar , ^{85}Kr , O) mittels Stickstoff leichter ausgetrieben werden. Anschließend wird der Szintillator mit dem Wärmetauscher E 301 wieder auf Umgebungstemperatur abgekühlt. E 301 ist gleichzeitig Teil der Temperaturkontrolle des Detektors, die nötig ist, um Konvektion aufgrund von Temperaturgradienten zu vermeiden. Danach wird der Szintillator mit der Pumpe P 301 durch Filter F 302 wieder an das Interconnection Pannel zurückgepumpt, von wo aus er weitergeleitet werden kann, z.B. an die Filling Station.

Abbildung 2.10: Konzept der Szintillatorreinigungsanlagen („Skids“) für das BOREXINO-Experiment. Wasserextraktion oder Destillation werden alternativ betrieben. Pumpen und Filter wurden der Übersichtlichkeit wegen nicht eingezeichnet, ausgenommen sind P 301 und F 302, da sie in Flussrichtung hinter der Stickstoffsäule eingebaut sind und sie deshalb in Emanationsmessungen geprüft wurden. Die einzelnen Baugruppen sind im Text beschrieben.



Es hat sich herausgestellt, dass die Konzentration von ^{85}Kr auch im hochreinen Stickstoff zu hoch ist und deshalb die Konzentration im Szintillator durch Stickstoffspülen alleine nicht auf das geforderte Maß reduziert werden kann. Ein Ansatz, dem entgegen zu wirken und die Reinigungseffizienz zu verbessern, ist, den Spülprozess zu einem Niederdruck-Dampf-Spülen („*Low-Pressure Steam Degassification*“) umzubauen. Dabei wird dem Spülgas Wasserdampf beigemischt und der Spülprozess bei Unterdruck vorgenommen. Diese Methode erlaubt zudem eine sehr feine Steuerung der Feuchtigkeit (d.h. des Wassergehalts) des Szintillators, was nötig ist, damit das Nylon der Vessel nicht brüchig wird.

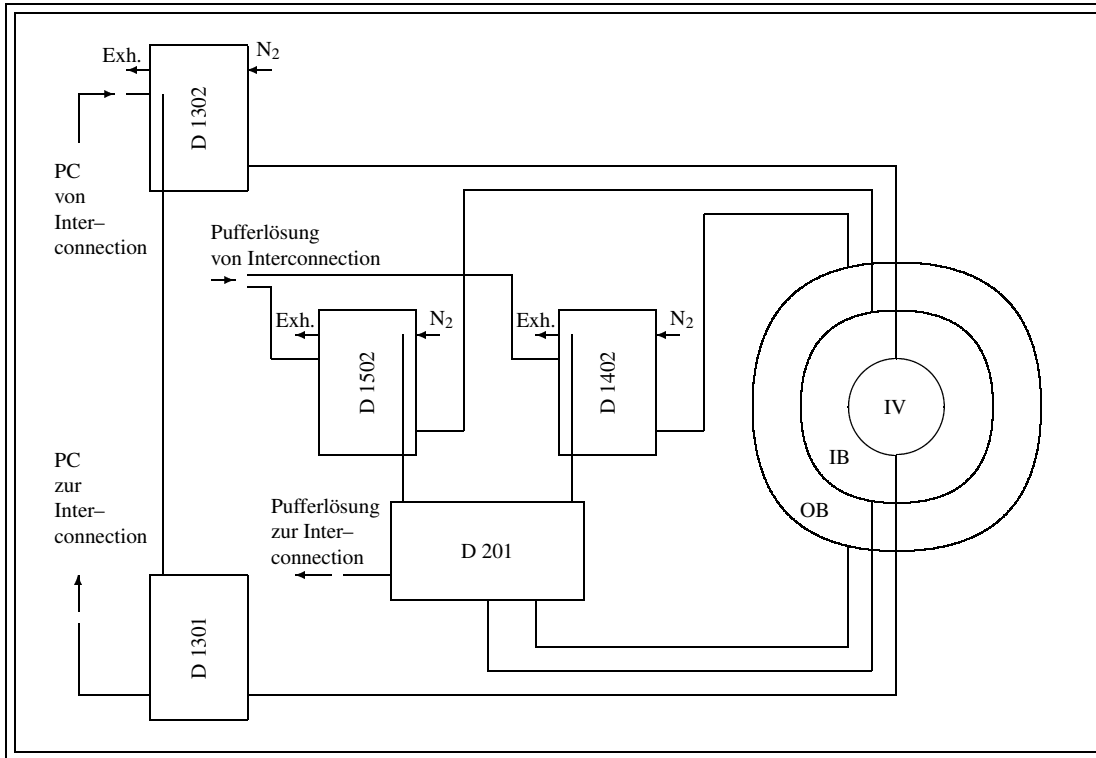
Die N_2 -Spülsäule stellt die letzte Reinigungsstufe dar. Alle danach im Leitungsverlauf angeschlossenen Geräte und Module tragen mindestens durch Emanation zur erneuten Verunreinigung des Szintillators bei. Deshalb wurden auch diese Bauteile in Emanationsmessungen untersucht (siehe Abschnitt 5.5, Seite 72).

PPO-System : An einer Stelle des Liquid-Handling-Systems muss das Flour PPO im Szintillator PC gelöst werden. Das geschieht in den zwei sog. Hoover-Tanks, die jeweils ca $2,1 \text{ m}^3$ Volumen haben. Das Mischen und Lösen des PPO im PC erfolgt im Hoover-Tank 1, der dafür mit einem Einfülltrichter sowie einen Mixer ausgestattet ist. Da hier in jedem Fall noch Außenluft in die Lösung gelangt, ist eine Emanationsmessung wenig sinnvoll.

Hoover-Tank 2 (kurz HT 2) hingegen dient zum zwischenzeitlichen Lagern der Masterlösung, was etwa 4-6 Wochen andauern wird. Deshalb war die Emanation zu bestimmen (siehe Abschnitt 5.3).

Innerhalb des PPO-Systems befindet sich weiterhin ein Stahltank mit der Nummer D 330. Es handelt sich hierbei um einen Drucktank (zugelassen bis 3 bar) mit einem Volumen von $1,58 \text{ m}^3$, der ebenfalls als Zwischenspeicher für die Master-Lösung dient.

Abbildung 2.11: Konzept der Fillingstation: die verschiedenen Bereiche (Inner Vessel (IV), Innere (IB) und äussere (OB) Abschirmung) werden jeweils durch die *Head Tanks* D 1302, D 1402 und D 1502 beladen, und nach unten zu den Tanks D 201 (beide Bufferbereiche) und D 1301 (IV) entladen. Die Head Tanks sind jeweils mit einem Stickstoffblanket versehen.



Filling Station: Das Füllen des Detektors mit Flüssigkeit (sowohl Wasser als auch Szintillator) ist ein sehr sensibler Vorgang, da dabei in den drei durch die Nylonblasen getrennten Detektorvolumina innerhalb der Stahlsphäre (IV, IB, OB) gleichzeitig zunächst mit Gasen und später mit Flüssigkeit manövriert wird. Dabei wirken auf die Nylonblasen anfänglich der Gasdruck sowie später die Gravitationskraft des Wassers und beim abschließenden PC-Füllen bilden sich aufgrund der unterschiedlichen Dichte Auftriebskräfte. Ist der Detektor gefüllt, führt die Zugabe oder Entnahme von Szintillator, wie sie z.B. für die Reinigung nötig ist, ebenfalls zu einer mechanischen Belastung der Vessel. Um die Belastung für das Vesselsystem möglichst gering zu halten, muss der Füllprozess vom allgemeinen Liquid Handling entkoppelt werden. Diese Druck- und Flussentkopplung geschieht in der „Filling Station“. Sie beinhaltet neben den obligaten Sensoren vor allem die sog. *Head Tanks* (D 1302 für IV, D 1402 für IB und D 1502 für OB), aus denen heraus die einzelnen Bereiche gefüllt werden, sowie die sog. *Overflow Tanks* (D 1301 für IV und D 201 für IB und OB), die überschüssige Flüssigkeit aufnehmen, bevor diese an das Interconnection Panel zurückgeleitet wird. Da alle genannten Tanks im Prozessablauf nach den letzten Reinigungsstufen eingebaut sind, wird das in ihnen emanierte Radon unmittelbar in den Detektor geleitet, wo die Tochternuklide akkumulieren. Im Bereich der Abschirmung mag das weniger kritisch sein, für die Szintillatortanks D 1301 und D 1302 ist eine Emanationsmessung aber zwingend erforderlich (siehe Abschnitt 5.6).

Kapitel 3

Radioaktive Edelgasnuklide

Wie in Kap. 2.2 erläutert, tragen die radioaktiven Edelgasnuklide zum Untergrund von BOREXINO bei. Neben der Vermeidung der verschiedenen Quellen (Lecks, Kontaminationen, Emanation) ist deshalb auch eine regelmäßige Reinigung der Detektorkomponenten (Szintillator, Wasser) mittels Stickstoff–Gegenstrom–Spülen nötig. Dabei wird angenommen, dass alle erwähnten Edelgase mit hinreichend reinem Stickstoff bis auf Gleichgewichtskonzentration aus den Detektorkomponenten herausgespült werden können.

Bezüglich Radon sind Reinigungsansätze und Messmethoden bereits ausgereift und umfangreich beschrieben. Diese Kenntnisse sollen im weiteren auch für die beiden anderen Edelgase zur Anwendung kommen. Einleitend werden im Abschnitt 3.1 die in der Literatur bekannten Informationen über die radioaktiven Edelgase sowie ihre physikalischen und chemischen Eigenschaften zusammengefasst. In Abschnitt 3.2 werden noch einige andere Gase beschrieben, die im Rahmen des BOREXINO–Experiments von Bedeutung sind. Abschnitt 3.3 beinhaltet einige grundlegende und theoretische Darstellungen zu Adsorption und Gaschromatographie und führt zu einer empirischen Beziehung zur Vorhersage des Henry–Koeffizienten. Im abschließenden Abschnitt 3.4 werden Adsorptionsmessungen vorgestellt, die mit verschiedenen Gasen an der bei BOREXINO eingesetzten Aktivkohle durchgeführt wurden. Aus diesen Messungen werden Parameter abgeleitet, die zusammen mit der vorherigen Herleitung Vorhersagen für den Henry–Koeffizienten und den Adsorptionskoeffizienten erlauben.

Einige Kenngrößen von Rn, Kr und Ar sowie der bei BOREXINO relevanten Nuklide ^{222}Rn , ^{85}Kr und ^{39}Ar sind in Tabelle 3.1 dargestellt. Die Energie des ^{222}Rn – α –Zerfalls ist dort in Klammern gesetzt, weil nicht unbedingt der Radonzerfall, sondern vor allem die daraus resultierenden Tochterisotope bei BOREXINO stören. Die zulässigen Obergrenzen für Kr und Ar sind berechnet für ≤ 1 cpd im Fiducial Volume im Neutrinofenster (250–800 keV) unter der Annahme von 100 % Nachweiswahrscheinlichkeit und unter Berücksichtigung der Löslichkeiten in N_2 bzw. PC sowie Gleichgewichtsbedingungen beim Spülen. Weitere thermodynamische Daten verschiedener Gase finden sich in Tab. A.1 im Anhang.

Tabelle 3.1: Einige Kenngrößen der Gase Radon, Krypton und Argon sowie der bei BOREXINO als Untergrund relevanten Nuklide ([Bli94, Fir96, FZK95, Wea75, Heu76]). Weitere Erläuterungen im Text.

Element	Radon	Krypton	Argon
Volumenanteil in der Atmosphäre	10^{-19}	$1,14 \cdot 10^{-6}$	0,00934
# bekannte / stabile Isotope	22 / 0	25 / 6	15 / 3
relevante Untergrundnuklide	^{222}Rn	^{85}Kr	^{39}Ar
Halbwertszeiten $T_{1/2}$	3,8235 d	10,76 a	269 a
Zerfallsart	α	β^- (γ)	β^-
Begleitende Gammalinie	–	0,43 %, 514 keV	–
Energie	(5,49 MeV)	173 keV	565 keV
Aktivität in Luft [Bq/m^3]	10-100	1,1	10^{-3}
erl. Aktivität in HPN_2 [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	< 1	< 0,16	< 0,5
erl. Konzentration in HPN_2 (STP)	$\frac{0,48 \text{Atome } ^{222}\text{Rn}}{\text{m}^3}$	< 0,16 ppt	< 0,36 ppm

3.1 Radon, Krypton und Argon

Radon: Das radioaktive Edelgas Radon stellt eine der zentralen Herausforderungen für das BOREXINO-Experiment dar. Es wurde deshalb in der Vergangenheit schon mehrfach behandelt in Diplomarbeiten ([Fre98, Sim00, Buc01]), Dissertationen ([Lau96, Rau99, Zuz02a]), speziellen Veröffentlichungen ([Heu95, Heu00, Rau00, Woj00, Sim03a, Zuz02b]) und den allgemeinen Veröffentlichungen der Kollaboration ([Bor91, Ben96, Bor98a, Bor98b, Bor00, Bor02b, Bor02c]). Die im Folgenden zusammengetragenen Informationen entstammen diesen Arbeiten, kernphysikalische Größen sind [FZK95] entnommen, weitere wertvolle Hinweise bezüglich der Gaschromatographie von Radon in Aktivkohle finden sich bei [Bru76].

Tabelle 3.2: Vergleich der drei bedeutendsten Radon-Isotope [FZK95].

Zerfallsreihe (Ursprung)	^{235}U	^{232}Th	^{238}U
Halbwertszeit	$7,038 \cdot 10^8 \text{ a}$	$1,405 \cdot 10^{10} \text{ a}$	$4,4687 \cdot 10^9 \text{ a}$
Radonnuklid	^{219}Rn	^{220}Rn	^{222}Rn
Halbwertszeit $T_{1/2}$	3,96 s	55,6 s	3,825 d
α -Energie [MeV]	6,82 (79,4 %)	6,29	5,49
	6,55 (12,9 %)		
	6,43 (7,5 %)		
längstlebigstes Tochternuklid	^{211}Pb	^{212}Pb	^{210}Pb
Halbwertszeit $T_{1/2}$	36,1 min	10,64 h	22,3 a
β -Energie [MeV]	1,4	0,3; 0,6	0,02; 0,06

Radon stammt aus den drei primordialen Zerfallsketten von ^{235}U , ^{232}Th und ^{238}U . Es ist chemisch inaktiv, allerdings 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 3.2). 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 Bq/m^3 mit starken Schwankungen, abhängig vom Luftdruck, der Luftfeuchtigkeit und der Belüftung [Lau96]).

^{219}Rn aus der Zerfallsreihe von ^{235}U kann bei den vorliegenden Betrachtungen vernachlässigt werden. Die Isotopenhäufigkeit von $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ beträgt 1 : 138. Die Halbwertszeit von ^{219}Rn ist mit $3,96 \text{ s}$ zu kurz, als das dieses Nuklid nennenswert bis zum Detektor wandern könnte. Das Tochternuklid mit der längsten Halbwertszeit ist ^{211}Pb ($36,1 \text{ min}$), so dass nach etwa 6 Stunden der Untergrund aus den Tochternukliden dieses Zerfalls um 3 Größenordnungen abgesunken ist. Außerdem erlauben die Halbwertszeiten der übrigen Tochternuklide (Millisekunden bis Minuten), durch geeignete Datenanalyse diesen Untergrund zu identifizieren und anschließend vom Messsignal abzuziehen.

^{220}Rn aus der Zerfallsreihe von ^{232}Th tritt in vergleichbarer Häufigkeit auf wie ^{222}Rn . Es zerfällt jedoch innerhalb weniger Stunden und hat keine langlebigen Tochternuklide, die sich im Detektor anreichern könnten. Aus der Umgebungsluft stammendes ^{220}Rn stellt demnach keine Gefahr für den Detektorbetrieb dar. Es ist also nur darauf zu achten, dass die Kontamination mit den Mutterelementen Th und Ra möglichst gering ist.

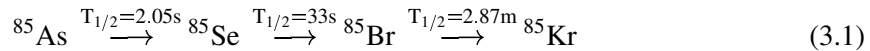
^{222}Rn aus der Zerfallsreihe von ^{238}U ist das Nuklid mit der größten Häufigkeit. Es zerfällt als α -Strahler mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 3,8235 \text{ d}$. Innerhalb weniger Stunden bildet sich in der Kette der ^{222}Rn -Töchter ein Gleichgewicht, das zunächst zur Akkumulation von ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,3 \text{ a}$) führt. Die vollständige Zerfallsreihe ist in Abb. A.1 (Seite 2 des Anhangs) wiedergegeben.

Die erste große Kontaminationsgefahr entsteht beim Aufbau des Detektors. Aus diesem Grunde wurden im Vorfeld in einem umfangreichen Messprogramm alle benutzten Teile (z.B. Dichtringe, Kabel) und Materialien (Stahl, Nylon) auf ihre Radonemanation und ihr Verhalten als Barriere gegen Radondiffusion untersucht. Weiterhin sind beim Aufbau des Detektors die Oberflächen ungeschützt der Umgebungsluft ausgesetzt. Das gasförmige Radon kann in die Materialien eindiffundieren. Zerfällt es dort, können die verbleibenden Tochternuklide in die Kristall- bzw. Molekülstrukturen eingebaut werden. Das metallische ^{210}Pb kann sich auf diese Weise festsetzen und ist anschließend nur schwer oder auch gar nicht mehr zu entfernen. Dieses Phänomen ist insbesondere für den Nylonballon von Bedeutung. Darum wurde das Nylonvessel unter Reinraumbedingungen zusammengebaut, wobei der Rn-Gehalt der Reinraumluft durch Aktivkohleadsorber reduziert wurde ([Poc99]). Zum Einbau des Vessels wird ebenfalls radonarmes Gas zur Verfügung gestellt (siehe Kapitel 6).

Radon kann durch verschiedene Materialien (z.B. Dichtungen oder Kunststoffgehäuse) hindurch diffundieren und wird unablässig und von allen Detektorkomponenten durch Emanation freigesetzt. Befindet es sich einmal in der Flüssigkeit (Szintillator, Wasser), kann es mit dieser weiter transportiert werden, weshalb auch Quellen, die außerhalb des Detektors liegen, in erheblichem Maße zur Erhöhung des Untergrundes beitragen können. Vorteilhaft ist allerdings, dass das Gegenstromgasspülen mit sauberem Stickstoff eine geeignete Methode ist, den Radongehalt im Szintillator und im Wasser auf das gewünschte Maß zu reduzieren und so auch die Akkumulation der Tochternuklide wirksam zu unterdrücken.

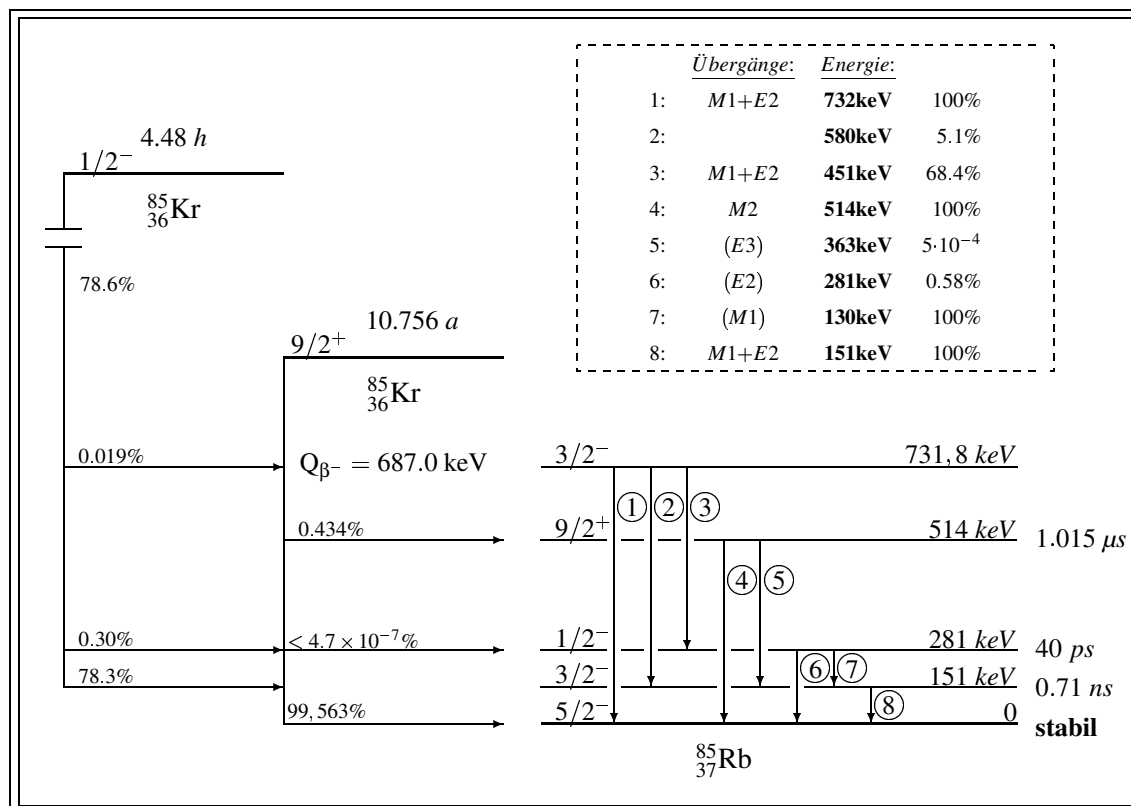
Krypton: Das Edelgas Krypton kommt mit einem durchschnittlichen Volumenanteil von $1,14 \cdot 10^{-6}$ in der normalen Atmosphäre vor. Es gibt 25 bekannte und davon 6 stabile Nuklide. Mengemäßig machen die Nuklide ^{84}Kr (57 %) und ^{86}Kr (17,3 %) den Hauptanteil aus, gefolgt von den Nukliden ^{82}Kr (11,6 %) und ^{83}Kr (11,5 %).

Nur ca. 1 % des heutzutage in der Atmosphäre befindlichen ^{85}Kr ist natürlichen Ursprungs (aus der Reaktion $^{84}\text{Kr}(n, \gamma)^{85}\text{Kr}$). Der Rest ist antropogen. Es entstammt der atomaren Wiederaufbereitung und zu einem minderen Teil den Kernwaffentests der vergangenen Jahrzehnte. Es entsteht über eine Reihe von β^- -Zerfällen mit kurzen Halbwertszeiten ($\leq \text{min}$) aus ^{85}As , das durch Spaltung von ^{235}U in Anwesenheit thermischen Neutronen gebildet wird (Spaltausbeute 1,318 % ([FZK95])).



Ca. 78 % des ^{85}Kr entstehen mit Kernspin $1/2^-$ und zerfallen mit $T_{1/2} = 4,48 \text{ h}$ durch β^- -Zerfall zu ^{85}Rb . Der verbleibende Rest (ca. 22 %) hat auf Grund des hohen Kernspins ($9/2^+$) eine deutlich längere Halbwertszeit von $T_{1/2} = 10,756 \text{ a}$. Mit einem Verzweungsverhältnis von 0,434 % der Zerfälle des langlebigen Isomers wird ein metastabiler Zustand $^{85\text{m}}\text{Rb}$ bevölkert, der mit einer Halbwertszeit von $1,015 \mu\text{s}$ durch γ -Emission (514 keV) in den Grundzustand übergeht (siehe Abb 3.1). Diese $\beta - \gamma$ -Koinzidenz erlaubt in BOREXINO eine explizite Untergrundidentifikation.

Abbildung 3.1: Übergänge von ^{85}Kr nach ^{85}Rb [Fir96]. Angegeben ist Kernspin und Parität J^π , die Energie der einzelnen Niveaus (in [keV]), die jeweiligen Verzweungsverhältnisse und die Halbwertszeit.



Die Aktivität von ^{85}Kr in der Luft liegt im Mittel bei $1,1 \text{ Bq/m}^3$, unterliegt jedoch starken Schwankungen nach oberirdischen Kernwaffentests sowie durch die Produktionszyklen der kerntechnischen Industrie. Tatsächlich dient Krypton als Indikator für Aktivitäten der Kerntechnischen Industrie und der Militärs und der Gehalt in der Atmosphäre wird im Rahmen des „Comprehensive Test Ban Treaty“ (Überwachung der Kernwaffen-Teststop-Vereinbarungen) weltweit kontrolliert. Global ist eine relativ gleichmäßige jährliche Zunahme von ca. 25 mBq/m^3 zu verzeichnen ([Wei92, Bie98]).

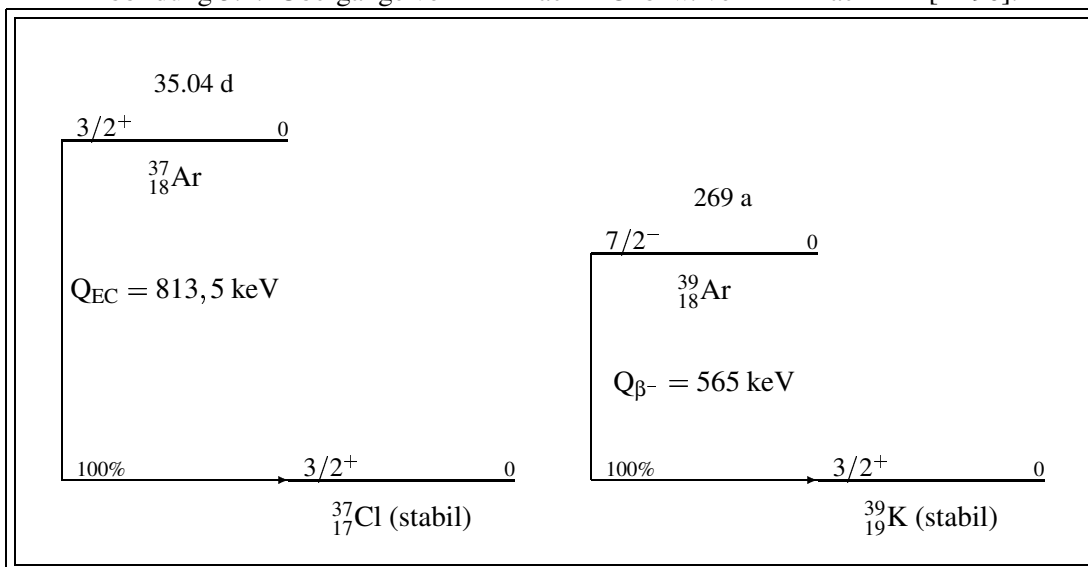
In der ersten Messperiode der CTF kam es während des Füllens zu Kontakt mit Außenluft. In der Folge wurde die γ -Koinzidenz mit einer Rate von $(1,3 \pm 0,3) \text{ cpd}$ gemessen, was etwa $(300 \pm 70) \text{ cpd}$ an β^- -Ereignissen entspricht. Stickstoffspülen reduzierte diese Rate auf Werte unterhalb der Nachweisgrenze ([Gal98, Bor96, Bor98a]).

Argon: Das Edelgas Argon ist mit einem Volumenanteil von 0,934 % das dritthäufigste Gas in den unteren Atmosphärenschichten (vgl. Tab. A.1 im Anhang auf Seite 1). Es sind 15 Nuklide bekannt, von denen 3 stabil sind: ^{40}Ar (Volumenanteil: 99,6 %), ^{36}Ar (0,337 %) und ^{38}Ar (0,063 %).

Tabelle 3.3: Produktionsreaktionen des ^{37}Ar und des ^{39}Ar ([MDH87])

produziertes Ar-Isotop	Targetelement		
	Calcium	Kalium	Argon
^{37}Ar	$^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$	$^{39}\text{K}(n, nd)^{37}\text{Ar}$	$^{36}\text{Ar}(n, \gamma)^{37}\text{Ar}$
^{39}Ar	$^{42}\text{Ca}(n, \alpha)^{39}\text{Ar}$	$^{39}\text{K}(n, p)^{39}\text{Ar}$	$^{38}\text{Ar}(n, \gamma)^{39}\text{Ar}$
	$^{43}\text{Ca}(n, n\alpha)^{39}\text{Ar}$	$^{40}\text{K}(n, d)^{39}\text{Ar}$	$^{40}\text{Ar}(n, d)^{39}\text{Cl}(\beta^-)^{39}\text{Ar}$

Abbildung 3.2: Übergänge von ^{37}Ar nach ^{37}Cl bzw. von ^{39}Ar nach ^{39}K [Fir96].



Von speziellem Interesse sind im Umfeld von BOREXINO die radioaktiven Nuklide ^{37}Ar und ^{39}Ar . Beide Isotope entstehen hauptsächlich kosmogen, wobei verschiedene Prozesse möglich sind (siehe Tabelle 3.3 sowie [Bli94, Wea75, Heu76]). ^{37}Ar zerfällt durch γ -losen Elektroneneinfang ($Q = 813,5\text{keV}$) mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 35,1\text{ d}$. ^{39}Ar hingegen zerfällt über β^- -Emission ($0,6\text{ MeV}$) mit der deutlich längeren Halbwertszeit von $T_{1/2} = 269\text{ a}$. Da beide Nuklide direkt in den Grundzustand zerfallen, existiert keine Signatur (Koinzidenz), die bei BOREXINO eine Identifikation des Ereignisses erlauben würde.

3.2 Andere Gase

Im BOREXINO-Experiment und speziell bei der Untersuchung der oben vorgestellten radioaktiven Edelgase treten noch einige weitere Gase auf, die zum besseren Verständnis und der Vollständigkeit halber an dieser Stelle kurz angesprochen werden sollen. Einige thermodynamische Eigenschaften der genannten Gase sind Tabelle A.1 (Seite 1 im Anhang) zu entnehmen.

Stickstoff (N_2) wird für BOREXINO an verschiedenen Stellen als Reinigungs- und Spülgas eingesetzt, unter anderem auch bei der Reinigung des Szintillators und des Wassers sowie als Blanket in verschiedenen Tanks. Er muß selbst hinreichend sauber sein ($A(^{222}\text{Rn}) \leq 1\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$), weshalb eine separate Versorgungs- und Reinigungsanlage im Untergrundlabor aufgebaut worden ist (siehe Abschnitt 8 „Stickstoffanlagen“ auf Seite 23). In der Regel diente N_2 bei den Emanationsmessungen der Detektoranlagen als Trägergas. Die stabilen Isotope sind ^{14}N (99,63 %) und ^{15}N (0,37 %). Die instabilen Isotope sind ^{12}N (β^+ , 16,4 MeV, 11,0 ms), ^{13}N (β^+ , 1,2 MeV, 9,96 m), ^{16}N (β^- , 4,3 MeV, 7,13 s), ^{17}N (β^- , 3,2 MeV, 4,17 s) und ^{18}N (β^- , 9,4 MeV, 0,63 s); wegen der sehr kurzen Halbwertszeiten sind sie aber bei BOREXINO nicht von Bedeutung.

Aus der Atmosphäre stammt **Sauerstoff** (O_2); die radioaktiven Isotope sind für BOREXINO nicht von Bedeutung, allerdings führt die Präsenz von Sauerstoff zu einer Verschlechterung der optischen Eigenschaften des Szintillators. Durch intensives Stickstoffspülen kann dieser Sauerstoff jedoch entfernt werden.

Es gibt manche Ähnlichkeit zwischen O_2 und N_2 , etwa Masse und Größe des Moleküls, oder die nicht weit auseinander liegenden Siede- und Schmelztemperaturen. Ausserdem werden N_2 , Argon und O_2 typischerweise in den gleichen Anlagen produziert. Dazu wird Luft getrocknet, gefiltert, verflüssigt und anschließend durch Rektifikation (fraktionierte Destillation) die einzelnen Gase voneinander getrennt. Es ist deshalb im N_2 immer mit kleinen Beimengungen von Ar und O_2 zu rechnen, die Reinheit hängt wesentlich von den Produktionsbedingungen in der Anlage des Herstellers ab.

Die Präsenz des atmosphärischen Gases **Kohlendioxid** (CO_2) ist immer dann zu erwarten, wenn Lecks auftreten. Dadurch ist grundsätzlich der Eintrag von ^{14}C in den Detektor denkbar. Bei den Edelgasmessungen stört CO_2 im Gasgemisch, da es zum einen die Oberfläche der Adsorber belegt und später im Zählrohr die Elektronenlawine ablöscht („Quenching“). Deshalb wird es bei der Probenaufbereitung mittels einer Natriumhydroxid-Falle und mit Getterabsorption aus dem Probengas entfernt (siehe Kapitel 4.2).

Das Edelgas **Helium** (He) wird im Detektorumfeld gelegentlich als Indikator bei Lecktests eingesetzt, ansonsten aber weitestgehend vermieden, da es durch das Glas der PMT's diffundiert und diese damit zerstört. Bei den Edelgasmessungen dient es allerdings als Trägergas während der Probenpräparation.

Das Edelgas **Neon** (Ne) wird wie Stickstoff durch Luftzerlegung gewonnen, auch wenn es nur in Spuren in der Atmosphäre vorkommt. Die deutlich geringere Siedetemperatur erlaubt jedoch eine sehr effiziente Trennung der Gase. Für den Untergrund von BOREXINO ist es vernachlässigbar, da im Detektor selbst keine Quellen sind, und die einzelnen Isotope mit sehr kurzen Halbwertszeiten ($< \text{min}$) zerfallen.

Das mehrheitlich anthropogen produzierte **Xenon** (Xe) (aus Kernkraftwerken, Wiederaufbereitung, Kernwaffenexplosionen etc.) kommt mit einem Volumenanteil von ca. 10^{-7} in der Atmosphäre vor [Bie98, Bli94, Wea75]. Die Isotope sind eher kurzlebig, die längste Halbwertszeit haben ^{127}Xe (37 d, EC) und ^{133}Xe (5,25 d, β^-), alle übrigen Isotope sind entweder stabil (^{124}Xe , ^{126}Xe , ^{128}Xe , ^{129}Xe , ^{130}Xe , ^{131}Xe , ^{132}Xe , ^{134}Xe , ^{136}Xe) oder haben Halbwertszeiten in der Größenordnung von Stunden oder weniger.

Für Xenon gibt es allerdings einige Anwendungen: es läßt sich im Detektorumfeld einfach als Tracer einsetzen, z.B. bei massenspektrometrischen Tests der Reinigungsverfahren; es ist dabei als Edelgas chemisch inert, leicht abtrennbar, stellt keine radioaktive Kontaminationsgefahr dar und ist auch für die beteiligten Geräte (z.B. die PMT's) nicht gefährlich. Es ist weiterhin einsetzbar als Zählgas in den Proportionalzählrohren (wie etwa bei GNO). Außerdem ist das Nuklid ^{136}Xe als Kandidat zur Beobachtung des neutrinolosen Doppelbeta-Zerfalls im Gespräch ([Bor02b, Cac00]).

3.3 Chromatographie und Adsorption

3.3.1 Allgemeine Vorbemerkungen

Die Trennung von Gasen zum Zwecke der Reinigung oder des messtechnischen Nachweises erfolgt bei BOREXINO in der Regel mittels chromatographischer Adsorption an festen Adsorbentien (Aktivkohle, Molekularsiebe, Kupferwolle o.ä.)

Bei der Gaschromatographie werden Gasatome und -moleküle, die über die Oberfläche eines Festkörpers fließen, mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit an dieser Oberfläche haften bleiben bzw. sich wieder von ihr lösen. Verschiedene teils makroskopische Größen sind dabei von Bedeutung, z.B. die zu adsorbierende Gasart (damit auch die Größe der Moleküle bzw. -Atome) und der herrschende (Partial-)Druck, das Adsorbentmaterial an sich, seine Oberfläche (sie sollte idealerweise möglichst groß sein) und deren Beschaffenheit (etwa Porenstrukturen) und die Temperatur.

Damit wird klar, dass die Adsorption für verschiedene Gase i.a. unterschiedlich ist. Leitet man zwei Gase durch eine Adsorbentkolonne, werden sich die verschiedenen Gasarten darin unterschiedlich schnell fortbewegen. Der Prozess der Adsorption und Desorption läßt sich nun recht anschaulich als „mittlere Wandergeschwindigkeit“ der verschiedenen Gase durch die Falle beschreiben. Sie ist abhängig von Trägergas und Probegas, Druck und Gasgeschwindigkeit in der Säule, Temperatur, Adsorbentmaterial, Packungsdichte etc.

Wegen der unterschiedlichen Wandergeschwindigkeiten lassen sich Gasgemische in ihre unterschiedlichen Komponenten auftrennen. Dieser Effekt kann genutzt werden, um ein Trägergas von verunreinigenden Spuren zu reinigen oder aber Spurengase zwecks ihres Nachweises aus einem Trägergas zu extrahieren oder aber ein Gasgemisch in seine Komponenten aufzuspalten. Das Design einer Chromatographiesäule ist dabei der jeweiligen Anwendung anzupassen.

Die zu extrahierenden Komponenten sind im vorliegenden Fall die Edelgase Radon, Krypton und

Argon (wegen der radioaktiven Nuklide ^{222}Rn , ^{85}Kr und ^{39}Ar). Als Trägergase kommen Stickstoff und Helium in Betracht (siehe Abschnitt 3.2).

Bei BOREXINO hat sich in der Vergangenheit insbesondere die Kombination von gaschromatographischen Methoden der Probenaufbereitung mit anschließendem internen Nachweis in miniaturisierten Proportionalzählrohren als erfolgreiche Strategie erwiesen, so dass hier auf einen großen Erfahrungsschatz zurückgegriffen werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit wurde deshalb der Schwerpunkt mehr auf die Anwendung der entwickelten Geräte zur Untersuchung der Radon-Emanation aus der Detektorperipherie (Lagertanks, Reinigungsmodule etc.) und aus einzelnen Materialproben gelegt. Dies ist umfangreich in Kapitel 5 dargestellt.

Argon und Krypton hingegen waren bisher nicht Gegenstand der Untersuchung, weshalb zunächst systematische Vorarbeiten geleistet werden mussten. Das beinhaltete insbesondere die Untersuchung der gaschromatographischen Eigenschaften, speziell sollte der Adsorptionskoeffizienten auf Aktivkohle abhängig von Temperatur und Trägergas experimentell ermittelt werden. Mit den im Abschnitt 3.4 dargestellten Untersuchungen konnten die systematischen Kenntnisse vertieft und weitere Entwicklungsschritte eingeleitet werden.

3.3.2 Gaschromatographie

In den nachfolgenden Abschnitten werden verschiedene Grundbegriffe der Gaschromatographie benutzt. Eine Liste der relevanten Termini ist im Abschnitt A.1 auf Seite 5 des Anhangs gegeben, wobei die Nomenklatur im wesentlichen [Ett96] folgt. Darüberhinaus können sie in entsprechenden Lehrbüchern nachgeschlagen werden. Zusätzlich soll an dieser Stelle auf [Kis85] hingewiesen werden, wo eine umfangreiche Sammlung experimenteller Daten aufgeführt und verglichen wird.

Für die dargestellten Messungen bedarf es einer Verknüpfung zwischen den thermodynamischen Größen (Druck, Temperatur, Volumen) und säulenspezifischen Größen (etwa: Adsorbermasse, Durchflusszeit). Dies gelingt im *Henryschen Gesetz*. Aus den experimentellen Daten wird der Henry-Koeffizient ermittelt, mit einem empirischen Modell verglichen und Prognosen daraus abgeleitet.

Im Falle eines geringen Partialdrucks eines Adsorptivs beschreibt das Henrysche Gesetz den Zusammenhang zwischen Partialdruck p_M und der Menge des Adsorbates n_S (in *mol*) relativ zur Masse des Adsorbens m_{Ads} (in *kg*) als Proportionalität mit dem Henry-Koeffizienten H :

$$n = \frac{n_S}{m_{Ads}} = H \cdot p_M \quad \Leftrightarrow \quad p_M = \frac{n_S}{m_{Ads} \cdot H} \quad (3.2)$$

Der Index M steht für die mobile Phase, also das Gas über dem Adsorbens, während S die stationäre Phase, also das auf der Oberfläche des Festkörpers gebundene Adsorbat, bezeichnet. Der Zusammenhang zwischen p_M im Volumen V_M im Adsorbtiv über einem Adsorbens ist gegeben über die die Molzahl

$$n_M = \frac{p_M \cdot V_M}{R \cdot T} = \frac{V_M}{R \cdot T} \cdot \frac{n_S}{m_{Ads} \cdot H} \quad (3.3)$$

Diese Gleichung enthält alle entscheidenden Größen: den Henry-Koeffizient, Masse und Volumen der Säule sowie die thermodynamischen Bedingungen zum Zeitpunkt der Adsorption. Umformung liefert den Quotienten n_S/n_M , der als *Adsorptionskoeffizient* α bezeichnet wird.

$$\alpha(T) := \frac{n_S}{n_M} = H \cdot R \cdot T \cdot \frac{m_{Ads}}{V_M} = H \cdot R \cdot T \cdot \frac{m_{Ads}}{V_{Säule} - V_{Ads}} \quad (3.4)$$

Oft ist der Henry–Koeffizient nicht bekannt und soll erst durch eine Messung bestimmt werden. Eine weitere Schwierigkeit stellt im Alltag oft die genaue Bestimmung der Volumina des Adsorbens V_{Ads} bzw. der mobilen Phase V_M dar. Das kann man umgehen, indem man die Gleichung etwas umschreibt und an dieser Stelle das *Retentionsvolumen* V_R einführt:

$$V_R := \alpha(T) \cdot (V_{S\u00e4ule} - V_{Ads}) = \alpha(T) \cdot V_M = H \cdot R \cdot T \cdot m_{Ads} \quad (3.5)$$

Der linke Teil der Gleichung 3.5 kann nun so umgeformt werden, dass ausschließlich Gr\u00f6\u00dfen auftauchen, die experimentell leicht zug\u00e4nglich sind, n\u00e4mlich

$$\alpha(T) = \frac{V_R(T)}{V_M} = \frac{t_R(T) \cdot \Phi}{t_M(T) \cdot \Phi} = \frac{t_R(T)}{V_M / \Phi} \quad (3.6)$$

Sowohl f\u00fcr das Durchflussvolumen V_M wie auch f\u00fcr das Retentionsvolumen V_R gilt grunds\u00e4tzlich $V = \Phi \cdot t$. Nutzt man dies und setzt α nun wiederum in den rechten Teil der Gleichung 3.5 ein, so erh\u00e4lt man eine direkte Beziehung zwischen H und den schon bekannten Messgr\u00f6\u00dfen:

$$H(T) \left[\frac{\text{mol}}{\text{kg} \cdot \text{Pa}} \right] = \frac{V_R}{R \cdot T \cdot m_{Ads}} = \frac{\Phi \cdot t_R(T)}{R \cdot T \cdot m_{Ads}} \quad (3.7)$$

3.3.3 Ansatz zur Berechnung von Henry–Koeffizienten

Der Ansatz zur Berechnung des Henry–Koeffizienten ist die Gleichsetzung der chemischen Potentiale des Gases, das als Adsorbat auf der Oberfl\u00e4che des Adsorbens gebunden ist, und des Gases, das als Adsorptiv dar\u00fcber hinwegstreicht (Gleichgewichtsbedingung). Dabei ist μ° das chemische Potential eines idealen Gases bei Normbedingungen, mit dem Term $kT \cdot \ln(p/p^\circ)$ findet die Anpassung an die realen Bedingungen (T, p) statt. In der Gasphase (Index M) finden nur die idealen Gas–Wechselwirkungen statt, in der adsorbierten Phase (Index S) m\u00fcssen auch die Wechselwirkungen des Adsorbates mit dem Festk\u00f6rper ber\u00fccksichtigt werden. Dies geschieht durch das zus\u00e4tzliche Potential $\phi(z)$ abh\u00e4ngig vom Abstand z . Da durch die Adsorption die Zahl der Teilchen in einem bestimmten Volumenelement erh\u00f6ht wird, steigt der Druck dort um den Betrag $RT \cdot dn/dV^S$. Die Gleichsetzung der Potentiale f\u00fchrt zu

$$\begin{aligned} \mu^M &= \mu^S \\ \Leftrightarrow \mu^{\circ,M} + kT \cdot \ln\left(\frac{p}{p^\circ}\right) &= \mu^{\circ,S} + kT \cdot \ln\left(\frac{p + \frac{RT \cdot dn}{dV^S}}{p^\circ}\right) + \phi(z) \end{aligned} \quad (3.8)$$

Die Gleichung liefert offensichtlich eine Beziehung zwischen der Teilchenzahl n und dem Druck p , also den Gr\u00f6\u00dfen, die im Henryschen Gesetz miteinander verkn\u00fcft sind.

$$\mu^{\circ,S} + kT \cdot \ln\left(\frac{p + \frac{RT \cdot dn}{dV^S}}{p^\circ}\right) + \phi(z) = \mu^{\circ,M} + kT \cdot \ln\left(\frac{p}{p^\circ}\right) \quad (3.9)$$

$$\Leftrightarrow \ln\left(\frac{p + \frac{RT \cdot dn}{dV^S}}{p^\circ}\right) = \frac{1}{kT} (\mu^{\circ,M} - \mu^{\circ,S} - \phi(z)) + \ln\left(\frac{p}{p^\circ}\right) \quad (3.10)$$

$$\Leftrightarrow \quad \frac{p + \frac{RT \cdot dn}{dV^s}}{p^\circ} = \frac{p}{p^\circ} \cdot \exp \left\{ \frac{\mu^{\circ,M} - \mu^{\circ,S} - \phi(z)}{kT} \right\} \quad (3.11)$$

$$\Leftrightarrow \quad \frac{dn}{p} = \frac{dV^s}{RT} \cdot \left(\exp \left\{ \frac{\mu^{\circ,M} - \mu^{\circ,S} - \phi(z)}{kT} \right\} - 1 \right) \quad (3.12)$$

Unter der Annahme einer ebenen, energetisch homogenen Oberfläche des Adsorbens (genannt: „BET–Fläche“ nach [Bru38], diese Größe ist materialspezifisch) kann man das Volumen noch genauer definieren als das Produkt der Oberfläche und des senkrechten Abstands dz : $dV^s = S_{BET} \cdot dz$.

$$\frac{dn}{p} = \frac{S_{BET}}{RT} \cdot \left(\exp \left\{ \frac{\mu^{\circ,M} - \mu^{\circ,S} - \phi(z)}{kT} \right\} - 1 \right) dz \quad (3.13)$$

Nachfolgend integriert man über alle n und alle z , wobei die Terme von $\mu^{\circ,M}$ und $\mu^{\circ,S}$ in die Integrationskonstante eingehen (und so eliminiert werden). Es ist also:

$$\Leftrightarrow H = \frac{n}{p} = \frac{\int_{n=0}^{n_{max}} dn}{p} = \frac{S_{BET}}{RT} \cdot \int_{z=0}^{z_{max}} \left(\exp \left\{ \frac{-\phi(z)}{kT} \right\} - 1 \right) dz \quad (3.14)$$

Der Henry–Koeffizient H ist also eine Funktion der Temperatur und der Wechselwirkungsenergie Φ eines Adsorbateilchens mit dem Adsorbens. Für $\phi(z)$ gibt es verschiedene Ansätze, etwa den von Steele ([Ste74]) mit einem Lennard-Jones-Potential oder das erweiterte Leerstellen-Lösungsmodell ([Suw80]). Beide Modelle sollen hier nicht weiter diskutiert werden.

Stattdessen wird nachfolgend der Ansatz von Maurer *et al.* [Mau00, Mau01] besprochen, an dessen Ende der Henry–Koeffizient in Abhängigkeit der kritischen Temperatur und des kritischen Drucks des Adsorptivs in einer empirischen Formel bestimmt werden kann.

3.3.4 Adsorption durch van–der–Waals–Wechselwirkung

Die Adsorption eines Gases auf einer Oberfläche wird als van–der–Waals–Wechselwirkung zwischen zwei unterschiedlichen Teilchen eines gemischten Gases betrachtet. Die Adsorbateilchen werden als sphärisch (Radius σ) angenommen mit einem einzigen Wechselwirkungszentrum in der Mitte (diese deutliche Vereinfachung mag für Edelgase noch recht naheliegend erscheinen, wird aber darüberhinaus zunächst auch bei Molekülen angewandt). Wechselwirkungen der Adsorbateilchen untereinander werden vernachlässigt. Es gilt also die van–der–Waals–Zustandsgleichung für reale Gase:

$$\left(p + \frac{an^2}{V^2} \right) \cdot (V - bn) = n RT \quad (3.15)$$

Dabei werden die zwischenmolekularen Kräfte als Druck durch den Term an^2/V^2 beschrieben, während man mit dem Faktor b die endliche Größe der Moleküle berücksichtigt. Bei einer bestimmten Temperatur bildet die Isotherme $p(V)$ einen Sattelpunkt aus; an dieser Stelle bezeichnet man die Größen als *kritisch* (Index C). Aus der Ableitung $\frac{dp_C}{dV_C}|_{T_C} = 0$ folgt:

$$a = \frac{27 (RT_C)^2}{64 p_C} \quad \text{sowie} \quad b = \frac{RT_C}{8 p_C} \quad (3.16)$$

In dem hier diskutierten Ansatz können sich die sphärischen Teilchen nicht weiter annähern als ihr Radius σ_i . Daraus resultiert pro Atom ein Volumen von $(4\pi\sigma_i^3/3)$ bzw. $(2\pi\sigma_i^3/3)$ pro Paar. Mit der Avogadro-Konstante N_A ist also

$$b = N_A \cdot V = \frac{2\pi}{3} \cdot N_A \sigma_i^3 \quad (3.17)$$

a kann aus dem chemischen Potential $\mu_G(\phi)$ hergeleitet werden.

$$\mu_G = \mu_G^\circ + RT \ln\left(\frac{p}{p^\circ}\right) + \int_{r=\sigma}^{\infty} \left[-\frac{C}{r^6} \rho N_A^2 4\pi r^2\right] dr \quad (3.18)$$

Dabei ist wieder μ_G° das chemische Potential eines idealen Gases bei Normbedingungen und der zweite Term die Anpassung an die realen Bedingungen (T, p), während der dritte Term die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Teilchen beschreibt. Dabei wird ein anziehendes Potential $\phi(r) = (-C/r^6)$ (Sutherland-Potential) mit der Wechselwirkungskonstante C und dem Teilchenabstand r angenommen.

Zwischen μ_G und p gibt es die grundlegende Beziehung mit der Teilchendichte ρ

$$\left(\frac{\partial \mu_G}{\partial p}\right)_T = \left(\frac{\partial \mu_G}{\partial \rho}\right)_T \left(\frac{\partial \rho}{\partial p}\right)_T = \frac{V}{n} = \frac{1}{\rho} \quad , \quad (3.19)$$

aus der hervorgeht, dass

$$p = \int_{\rho=0}^{\rho} \left[\frac{\partial p}{\partial \rho}\right]_T d\rho = \int_{\rho=0}^{\rho} \rho \left[\frac{\partial \mu_G}{\partial \rho}\right]_T d\rho \quad (3.20)$$

Einsetzen von ρ und p in Gl. 3.18 und ausführen der Integration liefert eine neue Beziehung der Form

$$\left(p + \frac{an^2}{V^2}\right) \cdot \frac{V}{n} = nRT \quad \text{mit} \quad a = \frac{2\pi N_A^2 C}{3 \sigma^3} \quad (3.21)$$

Umformen der Gleichungen 3.16, 3.17 und 3.21 liefert den Durchmesser der van-der-Waals-Sphäre (σ) und die Wechselwirkungskonstante C in Abhängigkeit von den kritischen Größen:

$$\sigma = \sqrt[3]{\frac{3}{16\pi} \frac{kT_C}{p_C}} \quad \text{sowie} \quad C = \frac{243}{2048\pi^2} \frac{(kT_C)^3}{p_C^2} \quad (3.22)$$

3.3.5 Berechnung des Wechselwirkungskoeffizienten nach Maurer

In der weiteren Herleitung nutzen Maurer et al. auch das für die van-der-Waals-Wechselwirkung zwischen dem Adsorbat und dem Adsorbens typische Sutherland-artige Potential mit der Abstandsvariablen ξ (Abstand der Zentren beider Teilchen) und der Wechselwirkungskonstante $C_{k,l}$ für eine zweiphasige Teilchenmischung:

$$\phi_{k,l}(\xi) = -\frac{C_{k,l}}{\xi^6} \quad \text{falls } \xi \geq \sigma_{k,l} \quad (3.23)$$

$$\phi_{k,l}(\xi) \rightarrow \infty \quad \text{falls } \xi < \sigma_{k,l} \quad (3.24)$$

Bei Anziehung zwischen gleichen Teilchen wäre $C_{i,i}$ gegeben durch Gleichung 3.22. Hier wird nun berücksichtigt, dass man unterschiedliche Teilchen i und j hat. Im folgenden steht der Konvention folgend i für das Gas und j für das Adsorbens. Man benutzt dann einen modifizierten van-der-Waals-Parameter $a_{i,j}$ ($a_{i,i}$ bzw. $a_{j,j}$ sind die Parameter der ungemischten Stoffe) und nimmt als Durchmesser $\sigma_{i,j}$ das arithmetische Mittel der beiden Sphärendurchmesser:

$$a_{i,j} = \sqrt{a_{i,i} a_{j,j}} = \frac{2\pi N_A^2 C_{i,j}}{3 \sigma_{i,j}^3} \quad \text{sowie} \quad \sigma_{i,j} = \frac{1}{2} (\sigma_{i,i} + \sigma_{j,j}) \quad (3.25)$$

Offensichtlich gilt mit Gl. 3.16 und Gl. 3.21

$$a_{i,i} = \frac{27}{64} \cdot \frac{(RT_{C,i})^2}{p_{C,i}} \quad \text{und} \quad a_{j,j} = \frac{2\pi \cdot N_A^2 \cdot C_{j,j}}{3 \cdot \sigma_{j,j}^3} \quad \text{und} \quad \sigma_{i,i} = \sqrt[3]{\frac{3}{16\pi} \frac{kT_{C,i}}{p_{C,i}}} \quad (3.26)$$

$\sigma_{j,j}$ wird der Literatur entnommen, für Aktivkohle wie für Graphit ist nach [Bon64]:

$$\sigma_{j,j} = \sigma_{Gr,Gr} = \sigma_{AC,AC} = 3,40 \cdot 10^{-10} \text{ m} \quad (3.27)$$

Zur vollständigen Lösung fehlt noch die Wechselwirkungskonstante $C_{j,j}$ des Adsorbens. Diese Größe kann auf die Hamaker-Konstante $A_{H,j}$ zurückgeführt werden ([Ham37]), die aus verschiedenen unabhängigen Messmethoden (z.B. aus der Rasterkraftmikroskopie oder aus der Rheologie) gewonnen werden kann. Maurer et al. geben für Aktivkohle einen Wert von $A_{H,AC} = 6,0 \cdot 10^{-20} \text{ J}$ an.

Beide Größen sind verknüpft mit der Volumendichte ρ_j des festen Stoffes über:

$$C_{j,j} = \frac{A_{H,j}}{\pi^2 \cdot \rho_j^2} \quad (3.28)$$

Alle Terme werden nun in in Gl. 3.25 eingesetzt und anschließend $C_{i,j}$ isoliert:

$$a_{i,j} = \sqrt{a_{i,i} \cdot a_{j,j}} = \sqrt{\frac{27}{64} \cdot \frac{(RT_{C,i})^2}{p_{C,i}}} \cdot \sqrt{\frac{2\pi \cdot N_A^2 \cdot C_{j,j}}{3 \cdot \sigma_{j,j}^3}} \quad (3.29)$$

$$(3.30)$$

$$\begin{aligned} \Leftrightarrow \quad \frac{2\pi N_A^2 C_{i,j}}{3 \sigma_{i,j}^3} &= \sqrt{\frac{9 \cdot (N_A \cdot RT_{C,i})^2 \cdot A_{H,j}}{32\pi \cdot p_{C,i} \cdot \sigma_{j,j}^3 \cdot \rho_j^2}} \\ &= \frac{3 \cdot (N_A \cdot RT_C^i)}{4 \cdot \rho_j} \sqrt{\frac{A_{H,j}}{2\pi p_C^i \sigma_{j,j}^3}} \end{aligned} \quad (3.31)$$

$$\begin{aligned} \Leftrightarrow \quad C_{i,j} &= \frac{9 \cdot R \cdot \sigma_{i,j}^3}{8 \cdot \rho_j \cdot N_A} \cdot \sqrt{\frac{A_{H,j}}{2\pi^3 \sigma_{j,j}^3}} \cdot \frac{T_{C,i}}{\sqrt{p_{C,i}}} \\ &= \frac{9 \cdot R \cdot (\sigma_{i,i} + \sigma_{j,j})^3}{64 \cdot \rho_j \cdot N_A} \cdot \sqrt{\frac{A_{H,j}}{2\pi^3 \sigma_{j,j}^3}} \cdot \frac{T_{C,i}}{\sqrt{p_{C,i}}} \end{aligned} \quad (3.32)$$

Mit dem Wechselwirkungskoeffizienten $C_{i,j} \sim T_{C,i}/\sqrt{p_{C,i}}$ kann nun in das Potential $\phi_{i,j}(\xi)$ berechnet werden. Dieses Potential setzt man in Gl. 3.14 ein, um den Henry-Koeffizienten zu berechnen. Dabei integriert man zunächst über alle Teilchen in einer Ebene des Adsorbens und summiert anschließend über alle Ebenen. Maurer et al. führen diese Diskussion noch weiter aus, behandeln quantitativ die Grenzen der numerischen Näherung und beschreiben verschiedene Kombinationen von Adsorbentien und über 20 verschiedenen Gasen. Am Ende leiten sie aus den Messdaten eine empirische Formel ab, mit der Henry-Koeffizienten für verschiedene Gase einfach vorhergesagt werden können. Sie hat die Form:

$$H \left[\frac{\text{mol}}{\text{kg} \cdot \text{Pa}} \right] = \exp \left\{ \left(k_1 + \frac{k_2}{T[\text{K}]} \right) \cdot \frac{T_{C,i}[\text{K}]}{\sqrt{p_{C,i}[\text{bar}]}} - k_3 \right\} \quad (3.33)$$

mit den Parametern $k_1 = 0,05$, $k_2 = 81$ und $k_3 = 17,5$. Im nachfolgenden Abschnitt 3.4 werden Adsorptionsmessungen von unterschiedlichen Gasen an Aktivkohle beschrieben. Es kann gezeigt werden, dass die Messergebnisse in zufriedenstellender Übereinstimmung mit der Vorhersage der Formel 3.33 sind.

3.4 Adsorptionsmessungen

3.4.1 Das Messsystem

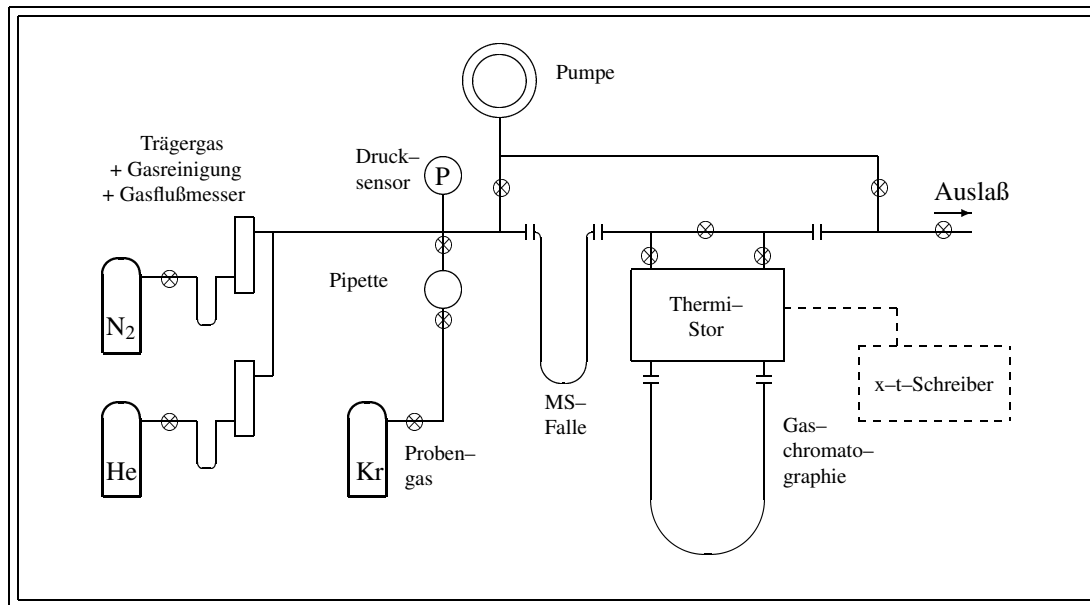
Abb. 3.3 zeigt eine Skizze der Anlage, mit der die Adsorptionsmessungen unternommen wurden. Sie besteht neben der üblichen Ausstattung (Pumpe, Druckanzeiger) hauptsächlich aus einer Gaschromatographiesäule und dem Wärme-Leitfähigkeits-Detektor.

Die Gaschromatographiesäule ist ein Glasröhrchen mit 0,6 cm Durchmesser, das über eine Länge von ca. 34,2 cm gefüllt ist mit 1,22 g Aktivkohle (Typ 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 1:2). Die Füllichte ist folglich $\rho = 0,126 \text{ g/cm}^3$ bei einem Volumen von $V = 9,7 \text{ cm}^3$.

Über der Kühlfalle angebracht ist der Wärme-Leitfähigkeits-Detektor¹ (WLD, auch TCD für engl. *Thermal Conductivity Detector*; siehe auch die Darstellung in [Sch92], Seite 45ff). Es handelt sich dabei im Wesentlichen um eine kleine Metallkugel, die an einem feinen Drahtfilament im Gasstrom aufgehängt ist. Mit der Zusammensetzung eines vorbeiströmenden Gases ändert sich

¹Modell: GOWMAC Instruments: power supply Model 40-402; 8000 Ω thermistors 13-502, mount 9225j

Abbildung 3.3: Anlage zur Messung des Adsorptionsverhaltens von verschiedenen Gasen. Als Trägergas dienen He oder N₂. Die Chromatographiesäule war mit 1,22 g Aktivkohle (Carboact F3/F4) gefüllt.



dessen Wärmeleitfähigkeit, es wird mehr oder weniger Wärme von der Kugel abgeleitet, die Kugel ändert also geringfügig ihre Temperatur und damit auch den elektrischen Widerstand. Es ist in beiden Schenkeln des Thermistors jeweils eine Kugel eingebaut, so dass die an ihnen anliegende Spannung über eine Wheatstone'sche Brückenschaltung abgeglichen werden kann. Veränderungen im Gas führen zu einem messbaren Spannungssignal. Zwischen dem Ausgangssignal ΔU und der im Trägergas enthaltenen Substanzmenge besteht folgende Beziehung:

$$\Delta U = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \cdot \frac{I_0}{2} \cdot \frac{R_1}{R + R_1} \cdot \beta \cdot (T - T_0) \quad (3.34)$$

mit

I_0	Strom der Thermistorheizung
R, R_1	Widerstände in der Wheatstone'schen Brücke
β	Temperaturkoeffizient des Widerstandes
$(T - T_0)$	Temperaturdifferenz zwischen Thermistor und Detektorblock
λ	Wärmeleitfähigkeit des Trägergases
$\Delta\lambda$	Differenz der Wärmeleitfähigkeiten von Spurengas und Trägergas

3.4.2 Verlauf der Messung

Die Anlage wird evakuiert und die Chromatographiesäule ausgeheizt, um sie von Verunreinigungen zu befreien. Im nächsten Schritt wird das Trägergas eingelassen, ein konstanter Gasfluss eingestellt und die Chromatographiesäule mit einem Kältebad (z.B. Eiswasser, Alkohol, Flüssigstickstoff) auf die gewünschte Temperatur gebracht und möglichst konstant temperiert. Wenn sich die Bedingungen stabilisiert haben (was bis zu 30 Minuten dauern kann), muss der Heizstrom des Thermistors so abgeglichen werden, dass man auf dem Schreiber eine einigermaßen stabile Null-Linie erhält.

Für die Einbringung des Probengases gibt es zwei Ansätze. Zum einen kann man einfach die Testpipette öffnen. Das hat den Vorteil, dass das Probengas im wesentlichen die gleiche Temperatur hat wie das Trägergas. Nachteilig ist, dass das Eichvolumen einem Appendix gleich an den Gasstrom angeschlossen ist. Das Probengas wird also nicht zu einem definierten *Zeitpunkt* in den Gasstrom entlassen, sondern wird noch längere Zeit nach dem Öffnen des Ventils einen recht unkontrollierten Konzentrationsverlauf ausbilden.

Der zweite Weg ist, das Probengas auf die im Gasstrom liegende Falle (sie war mit dem Molekülsieb Chromosorb gefüllt) aufzufrieren und durch gezieltes Heizen mit einem Wärmebad wieder freizusetzen. Vorteilhaft ist bei dieser Methode, dass die Menge des Probengases recht genau definiert werden kann und außerdem anzunehmen ist, dass das Probengas in einem gegenüber dem Messverlauf als kurz anzusehenden Zeitraum freigesetzt wird. Allerdings muss zum Einbringen des Probengases der Trägergasstrom unterbrochen werden, und der Temperaturwechsel an der Falle verändert auch die Temperatur des Trägergases, so dass mit hoher Wahrscheinlichkeit die Kalibrierung des Thermistorstroms nachgeregelt werden muss. In der Praxis erwies sich der erstgenannte Ansatz als brauchbarer.

3.4.3 Das Messsignal

Die eigentliche Messgröße ist die Veränderung der Wärmeleitfähigkeit des Gases, das durch den Thermistor streicht (siehe Gl 3.34). Diese hängt allerdings neben der Zusammensetzung von verschiedenen weiteren Faktoren ab, wie etwa dem Druck, der Temperatur oder dem Fluss des Trägergases. Im Messprozess und speziell in der genutzten Anlage überlagern sich also mehrere Effekte, die im Folgenden kurz diskutiert werden sollen.

a) Es ist im allgemeinen davon auszugehen, dass der statische Druck des Gases in der Testpipette anders ist als der dynamische Druck des Trägergases. Öffnet man die Pipette, um das Testgas in die Anlage zu entlassen, entsteht eine kurzfristige Druckänderung, die mit Schallgeschwindigkeit durch die gesamte Gassäule wandert und die sich im Eingangs- wie im Ausgangsschenkel des Thermistors als kurzes und frühes Signal abzeichnet (binnen der ersten 3 Sekunden, typisch ca. 1 mV).

b) Das Gasgemisch wandert mit dem Trägergasfluss ($\Phi(T)$) durch die Anlage (ca. 30 s, abh. von Φ) und durchläuft den Eingangsschenkel des Thermistors. Es tritt ein Signal auf, das relativ groß ist (bis zu 30 mV), da noch alle Komponenten des Gasgemisches gemeinsam dazu beitragen. Das Maximum dieses Peaks definiert den Startzeitpunkt $T = 0$. Wegen der Topologie der Anlage (Appendix) hat schon dieser Peak einen erkennbaren Schwanz (Größenordnung Minuten).

c) Im Adsorber wird das Gasgemisch aufgespalten. Die einzelnen Gaskomponenten sollten dann im optimalen Fall als relativ klar begrenzte Maxima auftreten, wobei die Signalamplitude jetzt verglichen mit dem Eingangssignal in die andere Richtung läuft. Zusätzlich zu der unter b) aufgeführten Verschmierung tritt dabei noch Dispersion auf. Deshalb wird das Messsignal gegenüber dem Eingangssignal flacher (in den vorliegenden Messungen typischerweise um einen Faktor 10 kleiner), aber auch breiter sein.

Durch den Auftrag mit dem x-t-Schreiber wird die Zeit $\Delta t(T) = t_R(T)$ zwischen dem dem Maximum des Eingangspeaks und dem Peak-Maximum bestimmt und unter Berücksichtigung der Laufstrecke und der Adsorberlänge ℓ mit der Trägergasgeschwindigkeit u_0 verglichen. Daraus wird der Adsorptionskoeffizient bei einer bestimmten Temperatur ermittelt: $\alpha(T) = \ell/t_R(T) \cdot 1/u_0$.

Zur Abschätzung des Messfehlers in der Laufzeit wurde auf halber Höhe des Peakmaximums die Peakbreite bestimmt. Wegen der asymmetrischen Form bleibt dieser Fehler allerdings rela-

tiv grob. Die Temperaturmessung des Wärmebades wurde mit unterschiedlichen Thermometern vorgenommen. Etwaige Ungenauigkeiten sollten hier zunächst vernachlässigbar erscheinen. Allerdings konnte je nach Messdauer die Temperatur nicht immer absolut konstant gehalten werden. Dieser Abweichung wird durch einen absoluten Fehler von 3 °C Rechnung getragen. Abweichungen aufgrund des variablen Luftdrucks im Labor bzw. aufgrund des Druckabfalls in der Adsorbiersäule wurden nicht registriert.

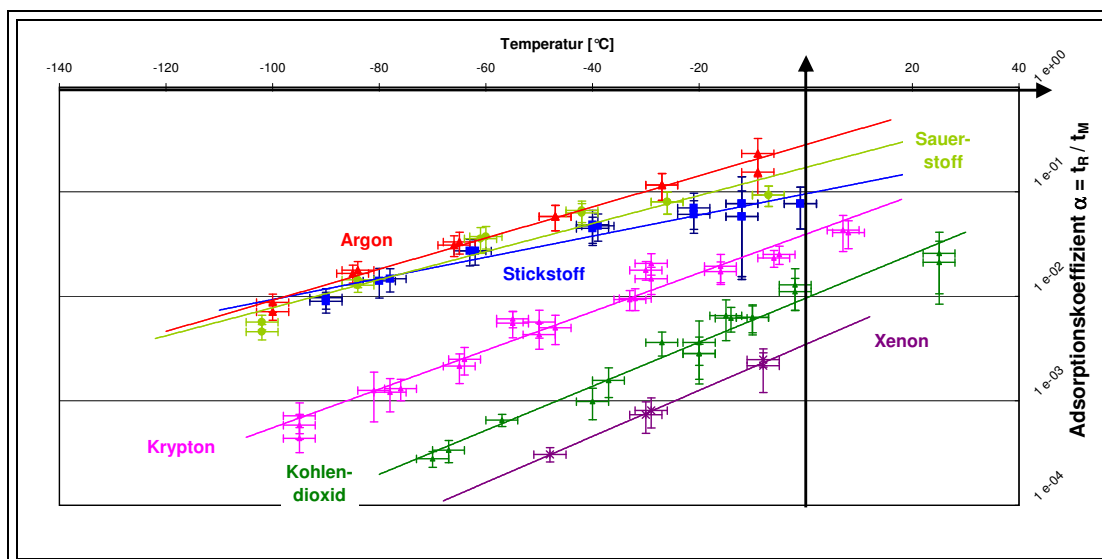
3.4.4 Bestimmung des Adsorptionskoeffizienten in Helium

In der beschriebenen Weise wurden mehrerer Messreihen durchgeführt. Mit Helium als Trägergas wurden N₂, O₂, CO₂ sowie Ar, Kr und Xe im Temperaturbereich $-100^{\circ}\text{C} \leq T \leq 0^{\circ}\text{C}$ untersucht. Gemäß der Theorie ist der Adsorptionskoeffizient $\alpha \propto \exp\{E_B/kT\}$ mit der Bindungenergie E_B und der Boltzmann-Konstanten k . (Eine zusammenfassende Herleitung findet sich u.a. auf Seite 41 ff in [Rau99]). In einer halblogarithmischen Auftragung (in Abhängigkeit von der Adsorbieretemperatur T) sollten die Daten also einem linearen Verlauf folgen. Das ist in Abb. 3.4 wiedergegeben.

Zunächst einmal läßt sich aus dem Diagramm ablesen, dass sich die Daten wie erwartet um die gerade Trendlinie gruppieren. Alle Trendlinien haben ähnliche Steigungen.

Aus dieser Systematik fällt die Trendlinie für N₂ augenscheinlich etwas heraus. Das kann zunächst dadurch erklärt werden, dass die Messwerte bei hohen Temperaturen (-20 °C bis 0 °C) bei der Bestimmung der Trendlinie überbewertet wurden. Tatsächlich stellen diese Datenpunkte die Ergebnisse der ersten Messungen dar, in denen der Messprozess noch trainiert und optimiert wurde. Da die Stickstoffdaten hier aber nur qualitativ von Bedeutung sind, stört dies die weitere Interpretation der Ergebnisse nicht.

Abbildung 3.4: Ergebnis der Adsorptionsmessungen verschiedener Gase an Aktivkohle CarboAct F3/F4 mit Helium als Trägergas im Temperaturbereich $-100^{\circ}\text{C} \leq T \leq 0^{\circ}\text{C}$. Dargestellt sind die Messergebnisse für N₂ (+), O₂ (+), Ar (+), Kr (+), CO₂ (+) und Xe (+).



Deutlich erkennbar wird die Ähnlichkeit von N₂, O₂ und Ar, was angesichts der thermodynamischen Eigenschaften (siehe Tabelle A.1) nicht verwundert. Die Trennung von Ar und Kr aus einem Heliumstrom mittels Adsorption (z.B. bei der Probenaufbereitung) scheint möglich, wenn

anschließend N_2 und O_2 durch Getterabsorption entfernt werden. Schon diese Messungen zeigen mit beeindruckender Deutlichkeit, dass die Tieftemperaturadsorber (LTA's) in der Stickstoffanlage nicht geeignet sind, Argon aus dem Stickstoff zu entfernen.

3.4.5 Bestimmung des Henry-Koeffizienten bei Adsorption aus Helium

Entsprechend der Gl. 3.7, die in Abschnitt 3.3.2 hergeleitet wurde, kann aus den Messdaten der Henry-Koeffizient direkt ermittelt werden. Die Ergebnisse werden gegen $1/T$ aufgetragen. In diese Daten hinein wurde eine Trendlinie gelegt, die sich nach [Mau00] aus der empirischen Formel Gl. 3.33 berechnet. Die Konstanten sind $k_1 = -0,05$, $k_2 = 80,5$ und $k_3 = 16,3$. Sie unterscheiden sich damit nur unwesentlich von den von Maurer bestimmten Werten ($k_1 = -0,05$, $k_2 = 81$ und $k_3 = 17,0$). Ebenfalls wird Gl. 3.33 benutzt, um mit den aus der Messung hervorgehenden Parametern eine Vorhersage des Henrykoeffizienten von Radon zu treffen. Die zugehörige Trendlinie ist zusätzlich in Abb. 3.5 eingezeichnet.

Die geringfügige Abweichung der Parameter k_1 , k_2 und k_3 von der zitierten Quelle kann auf unterschiedliche Ursachen zurückgeführt werden. Das Maurer-Modell bezieht sich auf die Adsorption eines reinen Gases, bei Gasgemischen ist natürlich auch mit der Besetzung der Adsorber-Oberfläche durch das Primärgas zu rechnen. Helium als Primärgas wirkt hier sicherlich noch recht schwach störend. Gleichermassen ist zu berücksichtigen, dass der Gasdruck in der Anlage etwa Atmosphärendruck entsprach und folglich in der Säule selbst das Gas noch zusätzlich komprimiert wurde. Die für das Henrysche Gesetz nötige Annahme des niedrigen Partialdrucks ist bei den vorliegenden Messungen sicher nur unzureichend erfüllt gewesen. Berücksichtigt man diese Umstände, ist die Übereinstimmung ausgesprochen zufriedenstellend.

Mit den Gleichungen 3.33 und 3.4 lässt sich nun für verschiedene Gase bei -196°C der Henry-Koeffizient und der Adsorptionskoeffizient für die benutzte Falle ausrechnen (Tabelle 3.4).

Abbildung 3.5: Bestimmung des Henry-Koeffizienten für Ar, Kr, CO_2 und Xe sowie Vorhersage für Rn aus der Adsorptionsmessung mit Helium an CarboAct F3/F4 Aktivkohle.

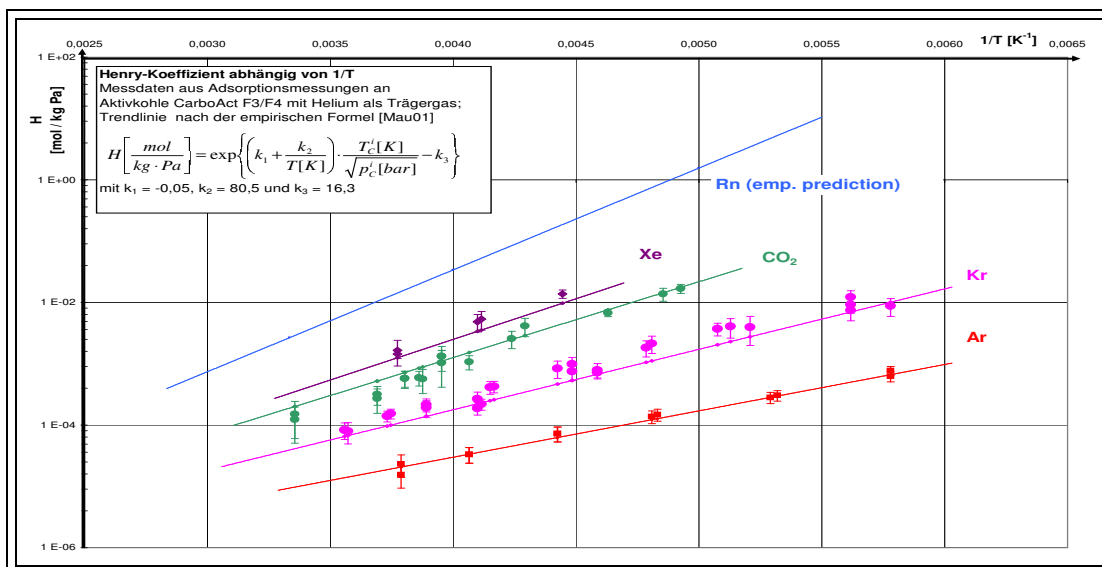


Tabelle 3.4: Vorhersage der Henry-Koeffizienten H nach Gleichung 3.33 (mit den aus der Messung hervorgegangenen Parametern $k_1 = -0,05$, $k_2 = 80,5$ und $k_3 = 16,3$) sowie der Adsorptionskoeffizienten α (berechnet nach Gl. 3.4) bei $T = 77\text{ K}$ für verschiedene Gase bei Adsorption auf Aktivkohle CarbonAct F3/F4 aus einem inerten Primärgas.

Stoff	$H [\frac{\text{mol}}{\text{kg}\cdot\text{Pa}}]$	α
N ₂	162	$13,1 \cdot 10^6$
Ar	187	$15,1 \cdot 10^6$
O ₂	216	$17,5 \cdot 10^6$
Kr	128.000	$10,3 \cdot 10^9$
CO ₂	$0,165 \cdot 10^9$	$13,4 \cdot 10^{12}$
Xe	$2,03 \cdot 10^9$	$164 \cdot 10^{12}$
Rn	$28,5 \cdot 10^{12}$	$2,3 \cdot 10^{18}$

3.4.6 Bestimmung des Adsorptionskoeffizienten in Stickstoff

Eine zweite Serie von Messungen wurde mit N₂ als Trägergas gemacht. Hier wurden nur Ar, Kr und CO₂ untersucht, wegen der zuvor beobachteten Ähnlichkeit wurde auf die Untersuchung von Sauerstoff verzichtet. Die Messreihen sind in Abb. 3.6 dargestellt.

Die Adsorption aus N₂ ist insgesamt deutlich schwächer als aus He. Das ist auch zu erwarten, da N₂ sicherlich nicht als *inertes* Primärgas angesehen werden kann. Ar wird nur sehr schwach aus N₂ adsorbiert und der Adsorptionskoeffizient ändert sich mit sinkender Temperatur nur marginal. Eine Trennung beider Gase durch Adsorption erscheint angesichts der Messdaten ausgesprochen schwierig. Auch für Kr ist die Adsorption deutlich geringer als mit dem Trägergas Helium. Natürlich kann auch mit diesen Daten wieder der Henry-Koeffizient entsprechend Gl. 3.4 ermittelt werden. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.7 dargestellt. Die Daten folgen wiederum einer geraden Trendlinie. Beim Anfitzen der Formel Gl. 3.33 lassen sich die Parameter k_1 , k_2 und k_3 allerdings jetzt nicht mehr global definieren und müssen für jedes einzelne Element ermittelt werden.

Tabelle 3.5: Vorhersage der Henry-Koeffizienten H nach Gleichung 3.33 (mit den aus der Messung hervorgegangenen Parametern $k_1 = -0,0001$, $k_2 = 55$ für Kr und CO₂ bzw. $k_2 = 50$ für Argon und $k_3 = 14,2$) und des Adsorptionskoeffizienten α nach Gleichung 3.4 bei $T = 77\text{ K}$ für verschiedene Gase bei Adsorption auf Aktivkohle CarbonAct F3/F4 aus dem Trägergas Stickstoff.

Stoff	$H [\frac{\text{mol}}{\text{kg}\cdot\text{Pa}}]$	α
Ar	0,30	0,45
Kr	15	162
CO ₂	1.120	$2,2 \cdot 10^4$
Rn	$8,8 \cdot 10^7$	$7,1 \cdot 10^{12}$

Abbildung 3.6: Adsorption verschiedener Gase an CarboAct F3/F4 Aktivkohle mit Stickstoff als Trägergas im Temperaturbereich $-100^{\circ}\text{C} \leq T \leq 0^{\circ}\text{C}$. Dargestellt sind die Messergebnisse für Ar (+), Kr (+) und CO_2 (+).

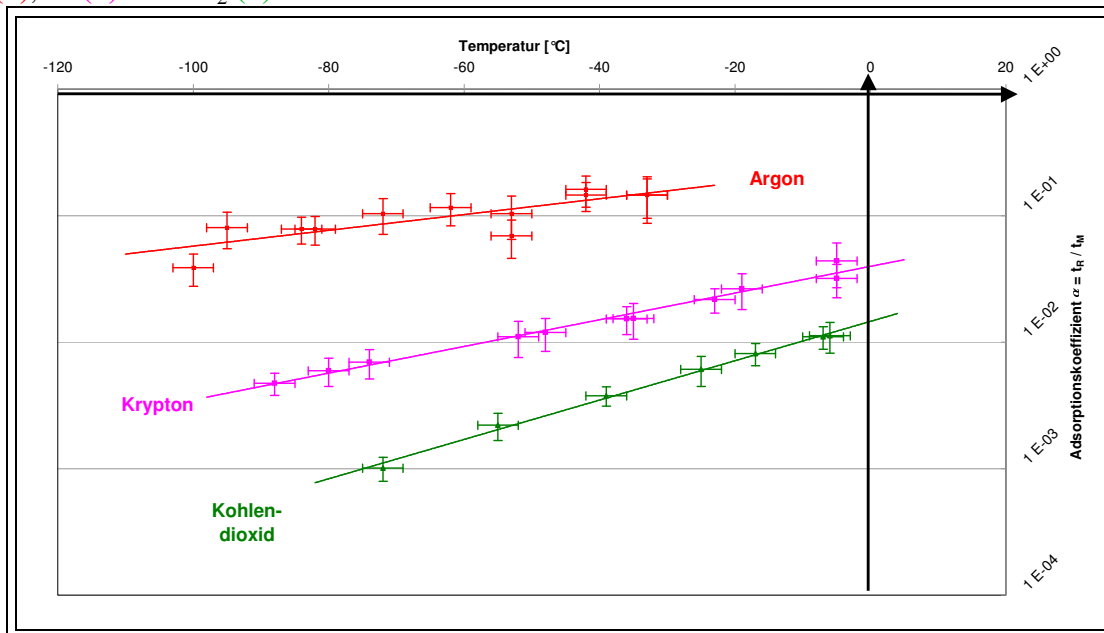
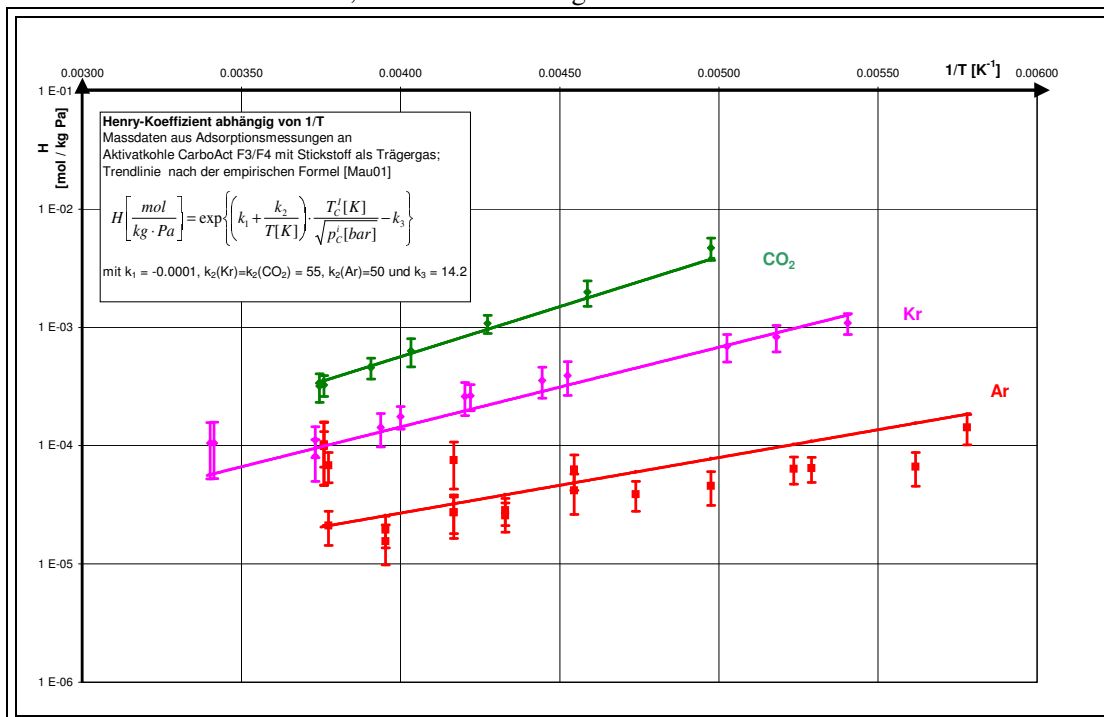


Abbildung 3.7: Bestimmung des Henry-Koeffizienten aus der Adsorptionsmessung mit Stickstoff an CarboAct F3/F4 Aktivkohle; nähere Erläuterungen im Text



3.4.7 Bewertung der Adsorptionsmessungen

Die Ergebnisse der hier vorgestellten Adsorptionsmessungen werden zufriedenstellend gestützt durch die zuvor ausgeführten theoretischen Grundlagen. Es konnte bereits mit dem eingesetzten Laboraufbau gezeigt werden, dass die kryogene Adsorption an Aktivkohle, wie sie mit den LTA's in den Stickstoffanlagen von BOREXINO zur Reduktion des Radongehalts im Stickstoff eingesetzt wird, zur Bekämpfung von Argon und Krypton nicht ausreichen wird. Eine Verringerung der Konzentrationen, die 2-3 Größenordnungen umfassen müsste ([Zuz03]), ist für Argon überhaupt nicht zu erwarten, und wird im Fall von Krypton mit den bestehenden Anlagen nur in der Zeitspanne von Stunden aufrecht zu erhalten sein. Dass ist angesichts der zu erwartenden Prozessabläufe bei BOREXINO keine praktikable Lösung. Zur Unterdrückung der Untergrundnuklide ^{39}Ar und ^{85}Kr müssen also grundsätzlich andere Strategien eingesetzt werden, etwa die Versorgung mit hinreichend reinem Rohmaterial oder aber zusätzliche Anstrengungen bei der Szintillatorbehandlung. Eine weitergehende Behandlung dieser Thematik ist in [Sim03b, Zuz03] zu finden.

Kapitel 4

Edelgasmessung mit Proportionalzählrohren

Zum Nachweis kleiner Radioaktivitätsmengen stehen miniaturisierte Proportionalzählrohre zur Verfügung, die sich besonders für den Nachweis radioaktiver Gase eignen. Erste Entwicklungen solcher Zählrohre wurden für das Chlor-Experiment vorgenommen ([Cle98, Dav68, Kum72]). Recht bald zeigte sich, dass sie auch zum Nachweis von kosmogenem Argon in Meteoritenproben eingesetzt werden konnten ([Heu76]). Die GALLEX-Collaboration hat die Entwicklung vorangetrieben. Diese Zählrohre wurden eigentlich zur Messung von β -Aktivitäten entwickelt und optimiert (Beispiel ist der Elektroneneinfang bei $^{37}\text{Ar}(e^-, \nu_e)^{37}\text{Cl}$ und $^{71}\text{Ge}(e^-, \nu_e)^{71}\text{Ge}$). Deshalb müssen sie eine hohe Energieauflösung und wegen der zu erwartenden niedrigen Zählraten nur einen sehr geringen Eigenuntergrund haben. Die Entwicklung der Zählrohre ist ausführlich behandelt und beispielsweise in [Pla89, Rau95, Win93] beschrieben, so dass an dieser Stelle auf weitere Ausführungen verzichtet werden kann. Am MPI für Kernphysik in Heidelberg (MPI K) stehen für die Messungen Zählrohre vom Typ HD-II zur Verfügung, während am LNGS mehrere Zählrohre vom sog. „Davis-Typ“ genutzt werden.

Im vorhergehenden Kapitel 3 wurden einige grundlegende Informationen über die radioaktiven Edelgasnuklide ^{222}Rn , ^{85}Kr und ^{39}Ar zusammengefasst und die Fragestellung der Adsorption dieser und anderer Gase an Aktivkohle diskutiert. Jetzt soll kurz zusammengefasst werden, wie bei quantitativen Messungen die Adsorption zur Probennahme und -aufbereitung eingesetzt wird. Im Hinblick auf die vielfältigen Emanationsmessungen im Umfeld des BOREXINO-Detektors, die in Kapitel 5 ausführlich behandelt werden, werden im Abschnitt 4.1 speziell die bereits bestehenden Geräte und Anlagen zum Sammeln von ^{222}Rn vorgestellt. In Abschnitt 4.2 wird die Probenaufbereitung geschildert, während in Abschnitt 4.3 das Datenaufnahmesystem am LNGS vorgestellt wird.

4.1 Probennahme: Methoden und Geräte

Der Einsatz von Zählrohre bei Low-Level-Radonmessungen ist schon früher beschrieben worden ([Buc01, Fre98, Lau96, Rau99, Sim00, Zuz02a]). Das Konzept ist, dass man das Radon in geeigneter Weise in ein Trägergas überträgt und anschließend in verschiedenen Schritten, u.a. Kryoadsorption an Aktivkohlen, die Gasproben aufbereitet. Die einzelnen Schritte der Probenaufbereitung sind dabei individuell abhängig von der Art und Form des zu untersuchenden Objektes (Gas, Flüssigkeit, Feststoff) und dem Ziel der Untersuchung (Bestimmung von Kontamination,

Emanation oder Diffusion; Nachweis von ^{222}Rn oder ^{226}Ra). Probengefäß, Adsorber- und Chromatographiesäulen sowie Zählsystem müssen darauf abgestimmt sein. Der Einfluss der Probenahme und Probenaufbereitung auf das Messsignal sollte möglichst gering und gut bekannt sein. Um dies zu gewährleisten, werden regelmäßig sog. *Blank-Runs*, also komplette Messprozeduren ohne Probe, durchgeführt.

Zur Untersuchung großer Gasmengen eignet sich das Analysegerät MOREX, bei dem Radon in mit Aktivkohle gefüllten Kühlfallen ($V = 1,2 \ell$) adsorbiert wird, bevor erste Reinigungsschritte unternommen werden ([Fre98, Rau99, Heu00]). Die Details dieser Anlage sind in Abb. A.2 (Seite 3 im Anhang) dargestellt. Eine Neuentwicklung (genannt MOREXINO) hat eine etwas kleinere Aktivkohlefalle ($V = 0,75 \ell$) und ist insgesamt etwas kompakter und handlicher gebaut. Während mit MOREX nur Gasproben untersucht werden können, wurde MOREXINO so konstruiert, dass auch die Probennahme aus flüssigem Stickstoff möglich ist.

Für feste Materialproben (z.B. Stahl, Nylon, PMT's) stehen am MPI K zwei Edelstahl-Kammern (80ℓ und 20ℓ) zur Verfügung; die Proben werden vakuumdicht in eine Kammer eingeschlossen und nach einigen Tagen das emanierte Radon mit einem Trägergas ausgetrieben und mit einer Aktivkohlefalle gesammelt [Rau99, Rau00, Zuz02a, Zuz02b].

Für die Untersuchung des Radon- bzw. Radiumgehalts von Wasserproben steht das Messsystem STRAW („System for Radon Assay of Water“) zur Verfügung, das in der Wasseranlage von BOR-EXINO aufgebaut ist ([Sim00, Sim03a], siehe auch Abb. A.3 auf Seite 4 des Anhangs). Auch dieses System, ein Edelstahltank von 420ℓ Volumen, ist im eigentlichen Sinne eine Emanationskammer. Mit eigens installierten Leitungen besteht die Möglichkeit, Proben an verschiedenen Stellen des Wasseraufbereitungsprozesses, aber auch direkt aus der CTF-Wasserabschirmung, zu entnehmen.

Bei Emanationsmessungen an Baugruppen in der Detektorperipherie kommt es gelegentlich vor, dass z.B. aus Platzgründen keines der genannten Geräte einsetzbar ist. Dann wird lediglich eine Kohlefalle angeschlossen. Derartige Messungen sind in [Buc01] beschrieben.

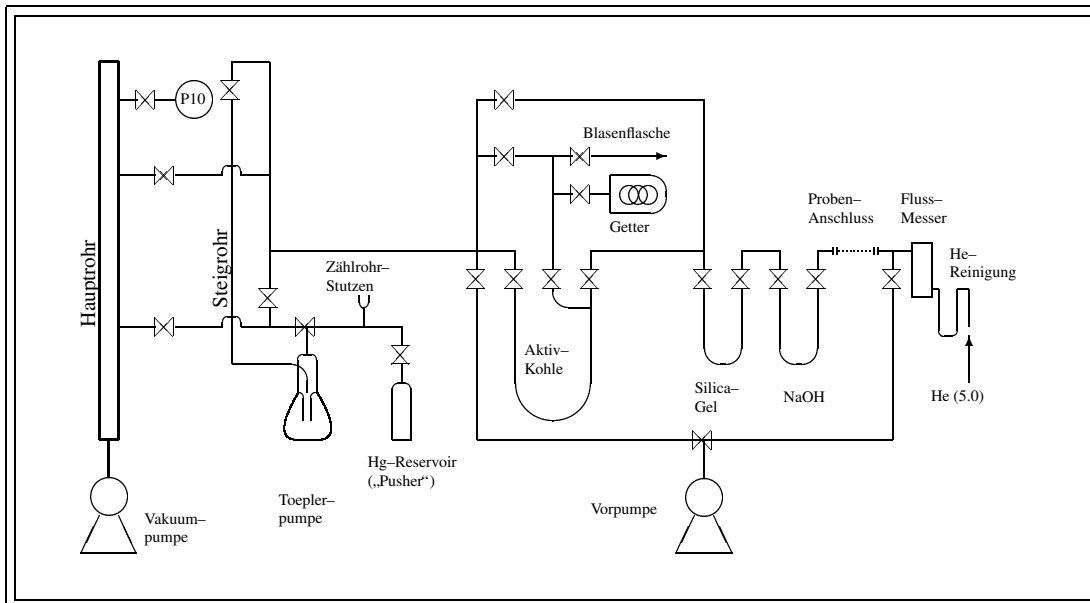
In jedem Fall ist das Ende des Probennahmeprozesses, dass das Radon in einer Adsorberfalle gesammelt und dort vakuumdicht eingeschlossen ist. In der Regel ist diese Gasprobe allerdings noch mit anderen Komponenten verunreinigt, z.B. Trägergas (N_2), Restfeuchte (H_2O) oder organischen Ausgasungen (CO_2 etc.) von Kunststoffkomponenten. Diese Gase müssen vor dem Zählrohrnachweis erst entfernt werden. Dazu schließt man die Adsorberfallen an die Probenaufbereitungsanlage an.

Zur Untersuchung kleinerer Materialproben (z.B. Dichtringe, Silicagel, Aktivkohle, Schweiss-Schlacke, Wasser mit hoher Aktivität, ^{226}Ra -Standardaktivitäten) steht eine Reihe von unterschiedlich großen Glasgefäßen zur Verfügung, die Volumina reichen von 100 ml bis zu 2ℓ . Sie können direkt an die Probenaufbereitungsanlage angeschlossen werden.

4.2 Probenaufbereitung und Zählrohrfüllen

Zur Probenaufbereitung dienen Vakuum-Apparaturen aus Glas, die mit verschiedenen Adsorberfallen ausgestattet sind. Abb. 4.1 zeigt exemplarisch den Aufbau der Anlage, mit der am LNGS Gasproben zur Radonmessung bearbeitet werden. Als Trägergas dient Helium, das in einer eigenen Aktivkohlefalle ($-196 \text{ }^\circ\text{C}$) gereinigt wird. Die Kühlfalle mit der Probe wird angeschlossen und der Bypass der Falle evakuiert und mehrfach mit Helium gespült, um die beim Anschließen eingetragene Umgebungsluft zu entfernen. Danach wird die gesamte Anlage bei Unterdruck mit Helium gespült und die Silicagelfalle sowie die Aktivkohlefalle ausgeheizt.

Abbildung 4.1: Anlage zur gaschromatographischen Probenaufbereitung und zum Zählrohrfüllen (am LNGS). Diese Anlage erlaubt insbesondere die Abtrennung von Radon aus einer Probe.



Gleichermaßen wird ein Zählrohr auf den dafür vorgesehenen Stutzen aufgesetzt, geleert, ev. einige Male mit sauberem Gas (P10, s.u.) gespült, evakuiert und ausgeheizt. Ist die Anlage hinreichend gereinigt, startet der Transfer. Die Adsorberfalle mit der Probe wird geheizt (ca. 200 °C) und die Probe mit Helium übertragen. Eine mit NaOH gefüllte Falle soll in einem ersten Schritt CO₂ zurückhalten. Eine Silikagelfalle dient zum Abscheiden von Feuchtigkeit. Das Radon wird auf einer kleinen Aktivkohlefalle gesammelt. Um die verbleibenden Verunreinigungen zu entfernen, wird nach dem Transfer die Verbindung von der Aktivkohlefalle zu einem Getter (Zr/Al/Fe) geöffnet; der Getter absorbiert N₂, O₂, aber auch ev. noch vorhandene organische Moleküle (z.B. Ausgasungen bei Kunststoffproben) etc. Edelgase werden durch den Getter nicht angegriffen, so dass diese (und speziell natürlich das Radon) weiterhin frei in der Falle verbleiben.

Die Getterabsorption ist der letzte Reinigungsschritt, bevor das Zählrohr gefüllt wird. Dazu muss man das Rn in der Aktivkohlefalle mit dem Zählgas mischen. Als Zählgas wird kommerzielles „P10“ (90 % Ar, 10 % CH₄) benutzt. Während der Getter abkühlt, wird in der Toeplerpumpe soviel P10 abgemessen, dass der Gasdruck im Zählrohr idealerweise 1 bar beträgt. Das P10 wird nun über das Steigrohr zur Aktivkohle gelassen, um zunächst als Trägergas zu dienen und das Radon von der Aktivkohle wegzutragen. Alles Gas wird durch mehrfaches pumpen im Eichvolumen der Toeplerpumpe gesammelt. Mit dem Quecksilberpegel, der an der Skala des Steigrohrs abgelesen werden kann, wird die tatsächliche Gasmenge bestimmt, bevor die Probe mit der Quecksilbersäule in das Zählrohr gedrückt wird. Damit ist die Probenaufbereitung beendet, das Zählrohr kann an die Messelektronik angeschlossen werden.

4.3 Die Messelektronik am LNGS

Die für die Radonmessungen eingesetzte Messelektronik steht im sog. „Radonlabor“ im 1. Stock des Big Building West (BBW) in Halle C des LNGS. Da dieses System lediglich zum Nachweis der α -Zerfälle eingesetzt wird, ist es relativ einfach aufgebaut (siehe Abb 4.2).

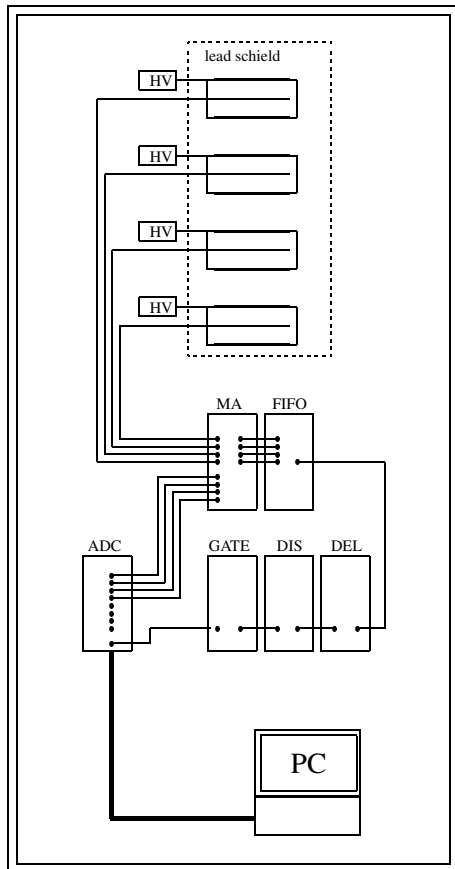


Abbildung 4.2: Auslese-Elektronik und Datenaufnahme für Radonmessungen am LNGS: Die Zählrohre werden in Vorverstärkerboxen (nicht eingezeichnet) eingebaut, die in die Bleiabschirmung geschoben werden (oberer Teil der Skizze). Die einzelnen Elektronikbausteine (NIM-Module) sind Hauptverstärker (Main Amplifier, MA), linear Fan-In-Fan-Out (FIFO), Delay (DEL), Diskriminator (DIS) und Dual Gate (GATE). Der ADC steckt in einem CAMAC-Rahmen, der die Daten an einen Personal-Computer (PC) weiterleitet.

Die Zählrohre (bis zu 4 gleichzeitig) werden in Kupferboxen mit den nötigen Vorverstärkern eingebaut und an die nötige Hochspannung angeschlossen. Die Boxen werden in eine passive Bleiabschirmung¹ gesteckt. Die Signale der Vorverstärker werden an einen Hauptverstärker (Main Amplifier, MA) geleitet, von wo sie an einen Analog-Digital-Wandler (ADC) weitergeleitet werden. Erreicht ein Signal den Hauptverstärker, gibt dieser ebenfalls einen Puls an die Triggerschleife, die aus einem linear Fan-In-Fan-Out (FIFO), einem Delay (DEL), einem Diskriminator (DIS) und einem Dual Gate (GATE) besteht.

Der ADC steckt in einem CAMAC-Rahmen, der die Daten an einen Personal-Computer weiterleitet. Hier werden die Messdaten aufgezeichnet. Registriert wird der Zeitpunkt eines Ereignisses sowie dessen Energie. Zur Untergrundreduktion wird eine Schwelle von ca. 50 keV gesetzt. Die Zeitinformation hilft insbesondere zur Identifikation elektronischer Störungen („Cross-Talk“, aber auch bei Spannungsschwankungen im Netz). Gelegentlich treten auch Störungen auf, wenn die Zeitspanne zwischen dem Einschalten der HV und dem Messbeginn zu gering war. Normalerweise dauern diese Anfangseffekte aber nur wenige Minuten, die überschüssigen Ereignisse können dann anhand der Zeitinformation aus den Daten herausgefiltert werden.

Der gesamte Prozess von der Probenahme, über die Probenaufbereitung bis hin zur Datenaufnahme mit den Zählrohren ist recht langwierig (er kann sich teilweise über 2 Tage erstrecken). Der Vorteil allerdings ist, dass die Zählrohre einen sehr niedrigen Untergrund haben. Er ist natürlich für jedes Zählrohr individuell verschieden, im Bereich von $0,5 - 15 \text{ cpd}$, und steigt mit der Zeit wegen der Ablagerung der Radontöchter. Bei regelmäßiger Überprüfung ist das gut genug, um Aktivitäten im Bereich von einigen zehn Microbecquerel nachzuweisen.

¹Bei Messungen von α -Zerfällen genügt eine passive Abschirmung, da die Energie des Zerfalls deutlich über dem Untergrund liegt und entsprechende Schwellen gesetzt werden können. Erst zum Nachweis von β -Zerfällen ist es sinnvoll, eine aktive Abschirmung aufzubauen, z.B. mit einem Plastikszintillator oder einen NaJ-Kristall, um ein Myon-induzierte Ereignisse zu diskriminieren.

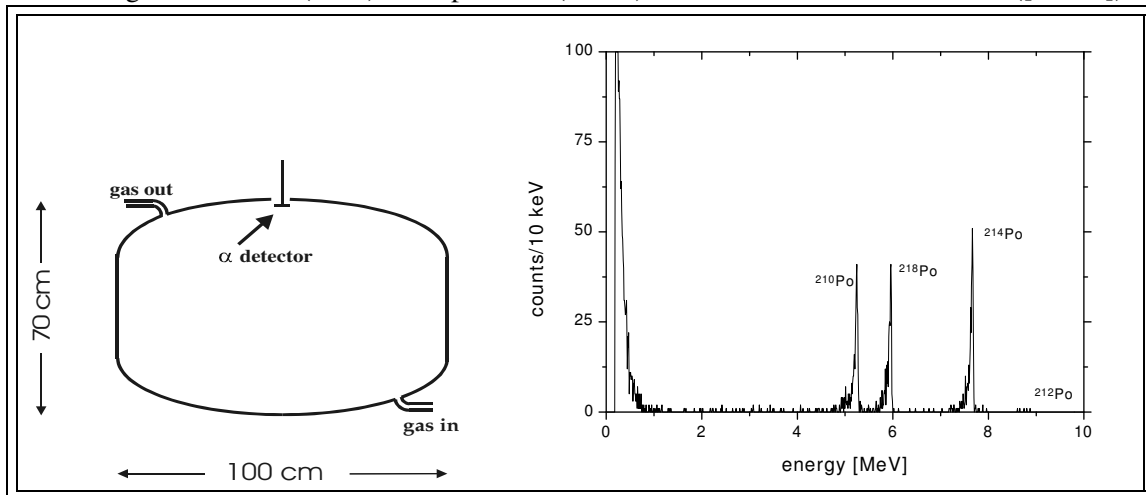
4.4 Die elektrostatische Kammer

Der Vorteil in den zuvor geschilderten Messverfahren mittels Adsorption und Zählrohrnachweis ist sicherlich die beeindruckend niedrige Nachweisgrenze. Der Preis dafür ist allerdings, dass man immer nur einzelne Proben nehmen kann und die Probenaufbereitung sehr aufwendig und auch störanfällig ist.

Für die routinemäßige Überwachung der Radonaktivität in Gasen steht ein weiteres Gerät zur Verfügung, eine elektrostatische Kammer (engl: *Electrostatic Chamber*, kurz ELCH), die in [Kik01] beschrieben ist. Es handelt sich dabei um einen Tank von 420 ℓ Volumen, in dem eine PIN-Diode eingebaut ist. Zwischen Tankwand und der Diode liegt ein Hochspannungsfeld an (typischerweise 30 kV), so dass nach dem Zerfall des Radon die hochionisierten Tochternuklide auf der Diode gesammelt werden. Dort zerfallen sie, wobei die Energie gemessen wird. Zur Auswertung werden die Peaks von ^{218}Po (7,67 MeV) und ^{214}Po (6,0 MeV) herangezogen. Der Peak von ^{212}Po (8,8 MeV) kann als Indikator für die Reinheit des Gases bezüglich Außenluft genutzt werden. Aufbau und Spektrum sind in Abb. 4.3 dargestellt.

Der Detektor ist ziemlich robust und relativ komfortabel zu bedienen. Er erlaubt kontinuierliche Überwachung von Gasströmen bei Flüssen von ca. 0,1 – 0,5 m^3/h , feuchtes Gas wird zuvor durch eine Kondensationssäule geleitet und dort getrocknet. Die Nachweisgrenze liegt in der Größenordnung von ca. 0,1 mBq/m^3 . Allerdings können auch problemlos Aktivitäten gemessen werden, die 4 Größenordnungen darüber liegen. Eine Erhöhung des Untergrundes geht davon nicht aus, und einfaches Spülen mit sauberem Gas reicht anschließend vollkommen aus, um den Detektor wieder zu reinigen.

Abbildung 4.3: Aufbau (links) und Spektrum (rechts) der Elektrostatischen Kammer ([Kik01]).



Kapitel 5

Radonmessungen im Detektorumfeld

Die besondere Reinheit der bei BOREXINO eingesetzten Materialien, insbesondere des flüssigen Szintillators, ist von enormer Wichtigkeit. Trotz größter Anstrengungen ist dabei nicht zu erwarten, dass die gewünschte Reinheit bereits bei der Lieferung der Materialien besteht oder ab der Lieferung für lange Zeit (mehrere Jahre) erhalten bleibt. Die einzelnen Komponenten müssen regelmäßig gereinigt werden, weshalb an die gesamte Peripherie des Detektors (Reinigungsanlagen, Lagertanks etc.) die gleichen Reinheitsanforderungen gestellt werden wie an den Detektor selbst. Vor allem der Szintillator, aber auch die Abschirmung, dürfen durch Lagerung oder Behandlung weder ihre optischen Eigenschaften verlieren noch radioaktiv kontaminiert werden. Besonders gefährlich zeigt sich hier einmal mehr die Kontamination mit Radon, welches aus den Anlagen emaniert.

Der Radon-Nachweis verläuft nach einem relativ einfachen Muster: die zu untersuchende Anlage wird gereinigt und mit hochreinem Stickstoff durchgespült. Die Kontamination des Stickstoffs ist aus regelmäßigen Messungen bekannt und konstant gering ($A \leq 0,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$). Nachdem ein vollständiger Volumenaustausch in der Anlage stattgefunden hat, wird sie vakuumdicht verschlossen. Nach frühestens einer Woche (ca. $2 \times T_{1/2}({}^{222}\text{Rn})$) wird das Gas aus der Anlage durch eine Aktivkohlefalle gepumpt und das darin befindliche Radon gesammelt. Sofern es sich um größere Volumina handelt oder die Volumina nicht evakuiert werden können, besteht alternativ die Möglichkeit, Gasproben definierter Größe zu entnehmen.

Anschließend wird die Probe, wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, aufbereitet und das Radon ins Zählrohr gefüllt. Das Messsignal setzt sich dann zusammen aus dem Radongehalt des Stickstoffs (der allerdings vernachlässigbar klein sein sollte), der Radonemanation der untersuchten Anlage sowie dem Blankwert der sonstigen beteiligten Anlagen (z.B. Leitungen, Aktivkohlefalle etc.) und der Füllprozedur.

Nachfolgend werden die Messungen verschiedener Anlagen beschrieben (vergl. hierzu auch die Darstellung im Abschnitt 2.3.4). Im einzelnen sind dies die Lagertanks (Abschnitt 5.2), Hoover-tank 2 und Tank D 330 im PPO System (Abschnitt 5.3), die Tanks und Säulen im Module Zero (Abschnitt 5.4) und in den Skids (Abschnitt 5.5). Weiterhin werden Messungen vom Gassystem der Fillingstation (Abschnitt 5.6) und die Überwachung des Gaspolsters der CTF (Abschnitt 5.7) besprochen.

5.1 Einfluss der Emanation auf die Neutrinomessung

Der Beitrag der Emanation zum allgemeinen Untergrund von BOREXINO ist natürlich für jedes einzelne Bauteil individuell zu bestimmen, da die Prozessabläufe und damit die Kontaktzeiten von Bauteil und Szintillator unterschiedlich sind. Die Berechnung verläuft aber immer nach dem gleichen Muster, weshalb sie einmal allgemein skizziert werden soll. Bei den hier vorgestellten Messungen wird die Emanation bestimmt, also die Freisetzung von ^{222}Rn -Atomen in einer bestimmten Zeit, ausgedrückt als Sättigungsaktivität A_{sat} , typischerweise in der Einheit $mBq = 10^{-3}s^{-1}$. Je nach Prozessdauer wird also eine bestimmte Menge N an Radon-Atomen in den Szintillator entlassen, die nach kurzer Zeit zu ^{210}Pb zerfallen sind. Die Aktivität von ^{210}Pb berechnet sich aus dem Zerfallsgesetz $A = \lambda \cdot N$. weiterhin wird für die Abschätzung angenommen, dass sich die Tochternuklide mit dem ^{210}Pb im Gleichgewicht befinden, also $A_{ges} = 3 \times A(^{210}\text{Pb})$

Die Zerfallsenergie des ^{210}Pb ist mit $0,015 \text{ MeV}$ deutlich unterhalb der Energieschwelle, dieser Zerfall trägt also nicht selbst zum Untergrund bei. Das Spektrum des β^- -Zerfalls von ^{210}Bi mit der maximalen Energie von $E_{max} = 1,17 \text{ MeV}$ überlagert das Neutrinofenster ($250 - 800 \text{ keV}$) vollständig. Es wird wegen der Energieschwellen aber nur der Anteil ε zur Zählrate beitragen. Zur Berechnung der Form des Spektrums wird auf [Beh69] verwiesen, für die weiteren Abschätzungen wird $\varepsilon(^{210}\text{Bi}) = 0,75$ benutzt. Die Energie des α -Zerfalls von ^{210}Po beträgt $E = 5,3 \text{ MeV}$, wegen des Quenching-Effekts liegt das Szintillationssignal bei $(395 \pm 10) \text{ keV}$ vollständig im Neutrinofenster ([Gög01]). Durch die α/β -Diskrimination (in der nachfolgenden Formel als δ bezeichnet) können diese Ereignisse aber zu einem sehr hohen Prozentsatz (90-99 %, [Bor02b]) identifiziert werden. Zur Berechnung wird in dieser Arbeit von $\delta = 0,95$ ausgegangen. Also ist der Untergrundzählrate R :

$$R = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}(^{210}\text{Pb})} \cdot (\varepsilon + (1 - \delta)) \cdot N(^{210}\text{Pb}) \quad (5.1)$$

Der Fehler berechnet sich durch einfache Gauß'sche Fehlerfortpflanzung.

Wie in Abschnitt 2.1 dargelegt, liegt der erwartete Messwert des Neutrinosignals für die LMA-Lösung bei ca. 30 cpd , mit einer Unsicherheit der Vorhersage des ^7Be -Neutrinoflusses im Bereich von 10 % oder 3 cpd . Bei einem angestrebten Verhältnis 10 : 1 von Signal und Untergrund müssen also die verschiedenen Untergrundbeiträge gleich oder besser noch kleiner als die erwähnte Unsicherheit der Vorhersage sein. Für die meisten Abschätzungen wird als sinnvolle und leicht zu handhabende Rechengröße mit $R = (1,0 \pm 0,5) \text{ cpd}$ gearbeitet.

5.2 Lagertanks 1, 2 und 4

Die Emanation der Lagertanks kann einen nennenswerten Beitrag zum Untergrund des Neutrinosignals in BOREXINO liefern. Der Szintillator wird nach der Anlieferung auf jeden Fall umfangreich gereinigt. Es stellt sich aber die Frage, ob und mit welchen zeitlichen Begrenzungen die Lagertanks auch als Zwischenspeicher für den bereits gereinigten Szintillator genutzt werden können. Da bei Lagerzeiten, die die Halbwertszeit von Radon deutlich übersteigen, mit einer nennenswerten Akkumulation der Tochternuklide (^{210}Pb) zu rechnen ist. Die Kenntnis darüber geht unmittelbar ein in die Entscheidung über Strategie und Zeitskalen bei der Szintillatorreinigung und beim Detektorfüllen.

Die Anordnung und Verbindung der Tanks ist in Bild 5.1 dargestellt. Jeder Tank hat ein Volumen

von ca. 114 m^3 , die innere Oberfläche der Tankwände beträgt ca. 138 m^2 (In dieser Zahl sind die Füllstandsanzeiger sowie verschiedene Flansche und Rohranschlüsse nicht berücksichtigt). Die Ergebnisse der im folgenden ausführlich dargelegten Messungen sind in Tab. 5.1 (Seite 59) zusammengefasst.

Präparation der Tanks: Die Oberfläche der Tanks wurde zunächst makroskopisch gereinigt (Spülen mit deionisiertem Wasser), anschließend wurde mit Stickstoff gespült, um Radon aus dem Tank auszutreiben.

Im Anhang wird ausführlich dargelegt, dass die Radonmenge in einem großen Volumen von verschiedenen Parametern abhängt, wie etwa der Anfangsaktivität A_0 , der Emanation (als Sättigungsaktivität A_{sat}), der Radonkontamination im Spülgas (A_{N_2}) oder der Gasaustauschrate κ bei einem bestimmten Spülgasfluss Φ . Die Gleichung A.26 (Seite 10 im Anhang) erlaubt die Berechnung der Aktivität im Tank zu einem bestimmten Zeitpunkt t abhängig von den genannten Größen; die Gleichung lautet:

$$A(t) = \left(A_0 - \frac{A_{N_2} \cdot \Phi + \lambda A_{sat}}{\kappa + \lambda} \right) \cdot e^{-(\kappa + \lambda) \cdot t} + \frac{A_{N_2} \cdot \Phi + \lambda A_{sat}}{\kappa + \lambda}. \quad (5.2)$$

Mit ihr lässt sich also explizit berechnen, wie lange ein Tank gespült werden muss, um das in ihm enthaltene Radon auf einen Minimalwert zu reduzieren. Um den Einfluss der einzelnen Größen abzuschätzen, wurden verschiedene Szenarien durchgerechnet.

1. Als Anfangsbedingung sei der Tank mit Umgebungsluft gefüllt, es ist dann $A_0 = a_{Luft} \cdot V_0 = 50 \text{ Bq/m}^3 \cdot 114 \text{ m}^3 \approx 5700 \text{ Bq}$. Als Spülgas dient der hochreine Stickstoff, dessen Aktivität bei $A_{N_2} \approx 1 \mu\text{Bq/m}^3$ liegt. Der Gasfluss kann mit $\Phi = 120 \text{ m}^3/\text{d} = 5 \text{ m}^3/\text{h}$ angenommen werden. Weiterhin wird (vorerst zum Zwecke der Abschätzung) eine Sättigungsaktivität von $A_{sat} = 45 \text{ mBq}$ für den ganzen Tank angenommen.

Nach 12 Tagen Spülen erreicht man eine Gesamtaktivität von $8,7 \text{ mBq}$, ab dem 16. Tag ist die Aktivität auf $6,7 \text{ mBq}$ gesunken. Dieser Wert kann bei den gegebenen Größen nicht weiter reduziert werden. Es ist also $A(t = 16 \text{ d}) \approx A_\infty = 6,7 \text{ mBq}$.

2. Beim zweiten Ansatz wird angenommen, der Tank sei anfänglich nicht mehr mit Luft gefüllt, sondern enthalte synthetisches Gas (das z.B. für Helium-Lecktests eingefüllt wurde). Das Volumen sei zu $3/4$ mit HPN₂ gefüllt, das letzte $1/4$ sei Helium, das aus der flüssigen Phase verdampft wurde. Der Anteil von Luft sei weniger als 1%. Somit ergibt sich $A_0 \approx 100 \text{ mBq}$. Φ ist wieder $120 \text{ m}^3/\text{d}$, A_{sat} sei wieder 45 mBq . Nach 9 Tagen erreicht man $A(t = 9 \text{ d}) = 8,2 \text{ mBq}$, nach 13 Tagen ist $A(t = 13 \text{ d}) \approx A_\infty = 6,7 \text{ mBq}$.

Verfahrenstests: Bei Emanationsmessungen untersucht man im Idealfall ein Volumen (Tank, Kammer etc.), das nicht zu groß (bis zu einigen 100ℓ) und am besten druckbeständig (von Vakuum bis zu einigen *bar* Überdruck) ist. Es erlaubt einen hohen Gasdurchlass, so dass das Volumen in kurzer Zeit mehrfach vollständig ausgespült werden kann. Das Radon wird dabei mit einem geeigneten Trägergas ausgespült und mit einer Adsorberfalle gesammelt (vergl. Abschnitt 4.1); anschließend verläuft die reguläre Probenaufbereitung und die Zerfallsmessung (vergl. Abschnitt 4.2). Bei den Lagertanks ist die Situation grundlegend anders, da sie bei Gasfüllung lediglich für einen Überdruck von ca. 150 mbar ausgelegt sind, was dazu führt, dass auf der Eingangsseite der Falle kein nennenswerter Überdruck herzustellen war und stattdessen am Ausgang der Falle gepumpt werden musste. Deshalb war vor Beginn der eigentlichen Messung wichtig, die Verfahrensweise auszuprobieren.

Abbildung 5.1: Anordnung der Szintillator-Lagertanks in Halle C mit den Verbindungsleitungen am Boden (Ring A und B) und in ca. 180 cm Höhe (Ring C und D).

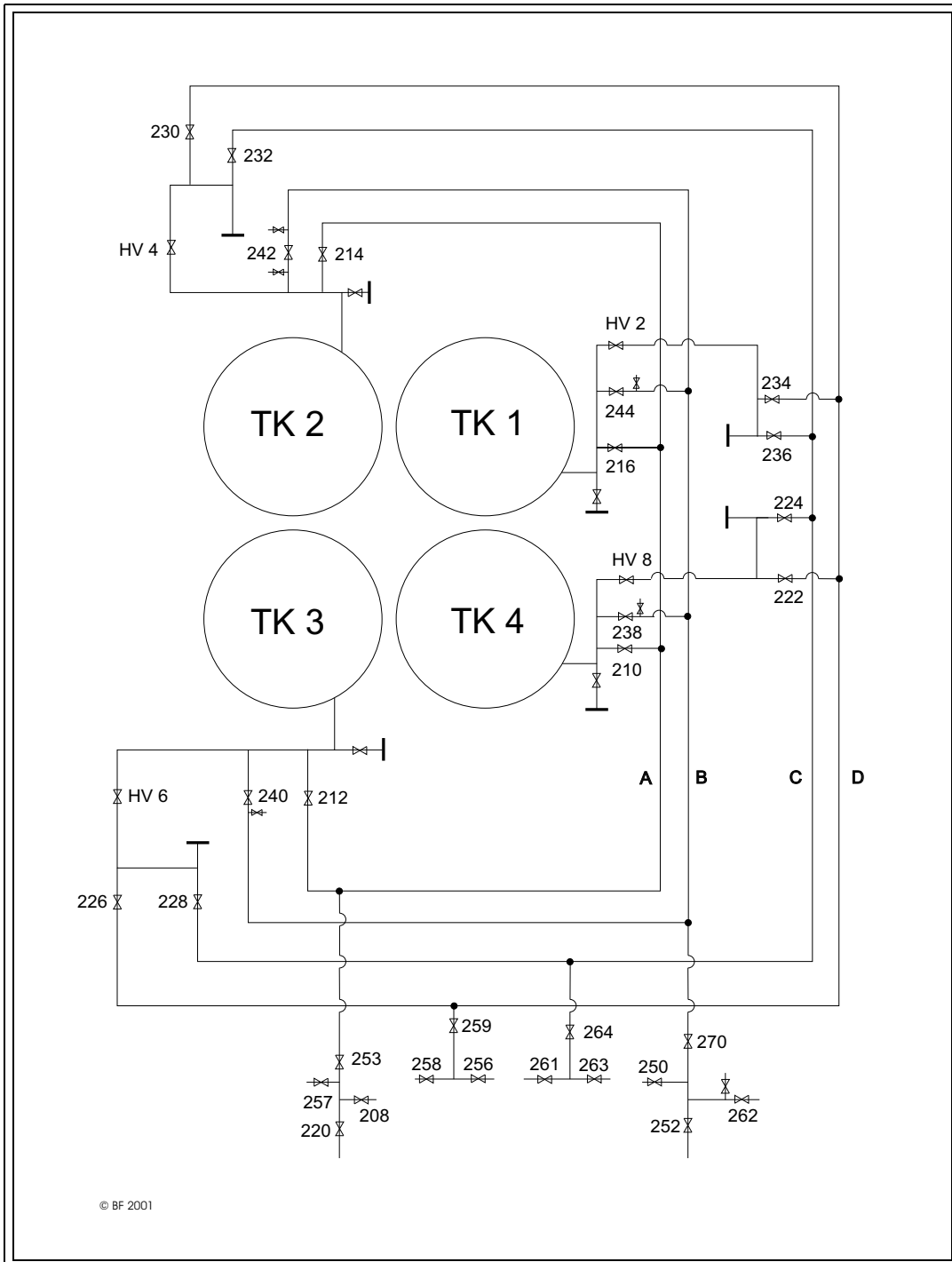


Tabelle 5.1: Messungen der ^{222}Rn Emanation des Szintillator-Lagertanks 1.

Probe Nr.	186	189	196	198	199	201	204
Beginn der Emanation T_0	04.03.01 09:29	12.03.01 09:56	10.05.01 09:30	10.05.01 20:56	10.05.01 23:38	12.05.01 12:31	13.05.01 08:51
Scheinbarer Beginn d. Em. T_0'							
Ende der Extraktion	10.03.01 11:30	15.03.01 13:40	22.05.01 00:33	23.05.01 14:45	24.05.01 01:45	25.05.01 15:40	27.05.01 12:40
Druck p im Tank [bar]	1,1	1,13	1,091	1,077	1,075	1,039	1,022
Füllmenge $p \times V$ [$\text{m}^3 \text{bar}$]	125,2	128,6	124,1	122,6	122,3	118,3	116,3
Probengröße dV_i [m^3]	3,5	1	1,55	0,27	4,02	1,99	1,07
Gasfluss [m^3/h]	—	—	0,55 - 0,07	0,2 - 0,0	0,5 - 0,4	0,47	0,47
Fälle	AC II	CU + RT	CU + RT II	RT I	CU + RT I	CU + RT I	CU + RT III
Zählrohr	#55	#51 / #41	#50	#53	#55	#50	#55
Füllzeitpunkt	11.03.01.13:53	16.03.01 13:53	22.05.01 15:25	23.05.01 19:42	24.05.01 17:20	25.05.01 19:15	27.05.01 17:15
^{222}Rn -Aktivität in der Probe [mBq]	$11 \pm 0,8$	$1,9 \pm 0,4$	$0,50 \pm 0,09$	$0,11 \pm 0,04$	$56,0 \pm 1,7$	221 ± 7	417 ± 26
^{222}Rn -Aktivität im Tank in Sättigung [mBq]	400 ± 30	240 ± 50	40 ± 7	49 ± 16	1.700 ± 50	13.000 ± 400	45.600 ± 2.800
ableitbare ^{210}Pb -Aktivität im Tank nach 100 Tagen Lagerung [$\text{d} \text{pd}$]	288 ± 20	176 ± 36	29 ± 5	36 ± 11	—	—	—

Bei Probe 186 und 189 wurde der Tank jeweils neu gefüllt, die Proben 196, 198, 199, 201 und 204 waren nacheinander folgende Extraktionen derselben Tankfüllung. „Beginn der Emanation“ ist der Moment, wenn der Tank gefüllt ist und verschlossen wird. Ab jetzt entsteht das Radon-Signal des Tanks mit allen angeschlossenen Ventilen, Flanschen, offenen Leitungen etc. — Bei Probe 196 und den nachfolgenden Extraktionen wurde jeweils Radon aus dem Tank entnommen. Die Entnahme muß bei der jeweils nachfolgenden Probe berücksichtigt werden, was dadurch geschehen kann, dass der Beginn der Emanationsphase T_0 in der Berechnung durch eine modifizierte Startzeit T_0' (scheinbarer Beginn der Emanation) ersetzt wird (vergl. Abschnitt A.2 im Anhang). — „Ende der Extraktion“ ist der Moment, wenn die Aktivkohlefälle geschlossen wird. — Das bekannte Volumen des Tanks und der Druck darin erlauben die Berechnung der Gasmenge $p \times V$, hier angegeben als m^3 bei Atmosphärendruck. — Der „Füllzeitpunkt“ beschreibt das Ende der Probepreparation. Die jetzt im Zählrohr nachweisbaren Zerfälle erlauben die Berechnung der „Aktivität in der Probe“. Von dieser Zahl muss man die verschiedenen kleinen und wohlbekannten Blank-Beiträge abziehen und das Ergebnis mit den Nachwahrscheinlichkeiten, Probengröße und den Zeitverläufen der einzelnen Prozessschritte wichten, um schließlich die Radonaktivität in Sättigung im ganzen Tank zu bestimmen.

Bei der ersten Testmessung (Probe Nr. 186¹) war der Tank noch nicht in seiner endgültigen Konfiguration, einzelne Flansche waren nur provisorisch montiert, und insbesondere war der Tank noch nicht gereinigt. Der Tank wurde etwa mit dem dreifachen seines Volumens mit hochreinem Stickstoff gespült und danach mit ca. 100 *mbar* Überdruck verschlossen. Druckablesung war möglich an einem Manometer, das oben auf dem Tank angebracht war. Zur Extraktion wurde das Analysensystem MOREX (siehe Abschnitt 4.1 auf Seite 49 sowie Abb. A.2 auf Seite 3 im Anhang) mittels eines flexiblen Stahlschlauchs am Flansch hinter V 252 angeschlossen. Die beteiligten Leitungen (Ring B) wurden zur Reinigung mehrfach mit Helium gefüllt und leergepumpt. Zur Extraktion wurde das Gas durch V 244, Ring B, V 270 und V 252 zur MOREX und dort durch die Falle AC II gepumpt. Dieses Verfahren erwies sich als nicht geeignet, was hauptsächlich an der Konstruktion der MOREX lag. Sie ist gebaut, um bei hohen Gasflüssen (bis 20 m^3/h) und bei Überdruck (bis 6 *bar*) das Radon zu sammeln. Der eingebaute Gasflussmesser zur Bestimmung der Probengröße ist, um die Probe nicht zusätzlich zu kontaminieren, hinter den Fallen und außerhalb des Hochvakuumbereichs montiert. Zum einen war es nicht ohne umfangreiche Umbauten möglich, die Pumpe vakuumdicht an den Flussmesser anzuschließen. Nicht minder kommt zum Tragen, dass der Flussmesser bei Unterdruck nicht funktioniert und deshalb die Probengröße nur unzureichend bestimmt werden kann. Leider war auch das erwähnte Manometer undicht, so dass auch hier keine brauchbare Information abgelesen werden konnte.

Für den nächsten Versuch (Probe 189) wurde der Tank erneut über Nacht mit Stickstoff gespült und mit Überdruck gefüllt. Das in der vorherigen Extraktion als undicht erkannte Manometer war nun durch ein Ventil abgesperrt, so dass die Anlage als dicht angesehen werden konnte. Ein Polyamid-Schlauch wurde von einer der Flansche auf dem Kopf des Tanks an das Wasser-Untersuchungssystem STRAW angeschlossen, wobei für die Radonmessungen der Lagertanks lediglich die Fallen des STRAW verwendet wurden, der Emanationskessel selbst blieb unberührt. Der Schlauch wurde zur Reinigung mehrfach mit Stickstoff gefüllt und leergepumpt. Die Extraktion verlief vom Tank durch den Schlauch, durch eine Feuchtigkeitsfalle (gefüllt mit Kupferwolle und gekühlt auf -55°C) hin zur Aktivkohlefalle (-196°C). Die Gasprobe wurde durch die Fallen hindurch gepumpt und anschließend die Probengröße in einem kommerziellen Gasometer bestimmt.

1. Messreihe: Nachdem der Tank 1 im Mai 2001 endgültig fertig und mit allen Flanschen und Ventilen ausgerüstet war, wurde er mit deionisiertem Wasser gereinigt, anschließend mit 600 m^3 regulärem und 1200 m^3 hochreinem Stickstoff gespült, danach mit 1091 *mbar* Stickstoff gefüllt, versiegelt und einige Tage stehen gelassen. Bedauerlicherweise war das bereits erwähnte Manometer am Kopf des Tanks nur während des Spülens und Füllens mit dem Gasvolumen verbunden, danach wurde das vorgelagerte Ventil geschlossen und das Manometer zwecks Reparatur abmontiert, weshalb es während der gesamten Messreihe keine unabhängige Druckinformation gab.

Für die erste Extraktion (Probe 196) wurde eine Kupferleitung am Blindflansch nahe V 236 angeschlossen. Das Leitungssystem wurde über Nacht mit Stickstoff gespült (abgeleitet durch Ring C), ebenfalls wurden die Fallen über Nacht ausgeheizt und gespült. Zur Extraktion wurde das Magnetventil HV 2 geöffnet und die Gasprobe aus dem Tank durch die Kupferleitung, die Feuchtigkeitsfalle (-55°C) und die Aktivkohlefalle (RT II) gepumpt.

Um den kleinen Durchmesser (4 *mm*) der Kupferleitung während des Pumpens zu vermeiden, wurde für die nächste Extraktion (Probe 198) die Kupferleitung an einen Seitenausgang des Ventils V 244 angeschlossen, Ring B wurde über Nacht gespült, ebenso die Aktivkohlefalle. Vor der Extraktion wurde die Falle an den Probenanschluß des Ventils V 262 angeschlossen, gefolgt wieder

¹Die Nummer entstammt der fortlaufenden Nummerierung der Radonmessungen, die am LNGS seit Juli 1998 durchgeführt wurden.

von der Pumpe und dem Gasometer. Ein stark nachlassender Gasfluss führte dazu, dass die Extraktion nach ca. $0,27 \text{ m}^3$ abgebrochen werden musste. Eine denkbare Erklärung ist Restfeuchtigkeit im Probengas, die in der Aktivkohlefalle gefror und diese damit „verstopfte“, da im Gegensatz zur Anordnung von Probe 196 hier keine zusätzliche Feuchtigkeitsfalle benutzt wurde. Die kleine Probengröße bewirkte dann auch einen vergleichsweise große Unsicherheit im Ergebnis.

Aus der vorherigen Messung ergab sich klar die Notwendigkeit, das Probengas zusätzlich zu trocknen. Darum wurde unmittelbar im Anschluß an die 2. Extraktion eine andere Aktivkohlefalle an den STRAW angeschlossen und eine weitere Probe genommen (aus dem Tank durch V 244, das Probenventil bei V 244 und die Kupferleitung, durch die Kupferwolle- und die Aktivkohlefalle zur Pumpe).

Die Probe war mit ca. 4 m^3 die größte. Die Aktivität der Probe ist signifikant höher als zuvor (Faktor 500). Als Ursache hierfür war denkbar, dass Lecks oder Kontamination a) im Tank, b) während der Extraktion, c) in der Adsorberfalle oder d) bei der Probenpräparation oder beim Zählrohrfüllen auftraten.

Setzt man in der Außenluft der Halle C eine mittlere Rn-Aktivität von 50 Bq/m^3 voraus, betrachtet das erste Szenario (Leck im Tank) und nimmt eine homogene Verteilung auf das komplette Gasvolumen an, würde das Ergebnis dem Radongehalt von 34 l Außenluft entsprechen. Nimmt man eine Kontamination der Falle während der Extraktion an, entspricht die Aktivität einer Radonmenge von ca. 1 l . Eine anschließend durchgeführte Probenpräparation einer anderen Messung ergab keine Hinweise auf Undichtigkeiten an der Zählrohrfüllanlage.

Am folgenden Tag wurde eine erneute Extraktion in exakt derselben Konfiguration durchgeführt. Um die Wiederholung von Verfahrensfehlern zu vermeiden, wurde die Probenpräparation durch einen anderen Experimentator vorgenommen. Die Probenaktivität war wiederum deutlich (etwa eine Größenordnung) höher als zuvor. Im Leckszenario entspräche dies 4 l angesaugter Luft während der Extraktion oder ca. $1/4 \text{ m}^3$ Außenluft auf den Tank verteilt.

Unmittelbar im Anschluß wurde die Probenpräparation durch einen Blankrun mit der Aktivkohlefalle RT I überprüft. Das Ergebnis war etwas höher als normal, was sich aber durch Restaktivität in der Kohlefalle erklären läßt, da bei der vorherigen Präparation die Falle nicht ganz die übliche Extraktionstemperatur von 200°C erreicht hatte. Eine nachfolgende Blankmessung der Füllapparatur (ohne die Aktivkohlefalle RT I) zeigte keine erhöhte Aktivität.

Um auszuschließen, dass ein Leck in der Aktivkohlekühlfalle RT I diese hohen Werte verursacht, wurde eine 5. Extraktion auf gleichem Wege durchgeführt, jetzt jedoch mit der Falle RT III. Erneut ist das Ergebnis höher als zuvor (entsprechend dem Radongehalt von $7,7 \text{ l}$ Luft während der Extraktion oder ca. 1 m^3 auf den Tank verteilt).

Zwischenergebnis: Mit zwei Testextraktionen wurde gezeigt, dass die Methode der Volumenextraktion vernünftige Ergebnisse liefert. Da der Tank zu dem Zeitpunkt zum Teil noch mit provisorischen Dichtungen versehen und insbesondere noch nicht endgültig gereinigt worden war, sind die aus diesen Messungen ableitbaren Radon-Sättigungswerte von einigen 100 mBq nicht als endgültige Resultate zu betrachten. Sie erlauben allerdings eine Bewertung der Reinigungsleistung (s.u.).

Die ersten beiden Extraktionen liefern Resultate von einigen 10 mBq , die allerdings mit Unsicherheiten behaftet sind. Bei Probe 196 verlief die Probenpräparation nicht ganz optimal, und Probe 198 ist sehr klein verglichen mit dem Tankvolumen und auch deutlich kleiner als die anderen Proben.

Die Herkunft der Feuchtigkeit, die zum Abbruch der zweiten Extraktion führte, konnte nicht geklärt werden. Auch wenn Stickstoff als Spülgas sicherlich sehr gut trocknen sollte, ist nicht auszuschließen, dass noch kleine Wasserreservoirs in Ritzen oder Ecken oder aber im Ringleitungssystem verblieben sind.

Die nachfolgenden Ergebnisse (Proben 199, 201 und 204) sind um Größenordnungen höher und folgen einem klar ansteigenden Trend, was ein typisches Zeichen für ein Leck ist. Angesichts der zusätzlichen Messungen sowie verschiedener Lecktests war davon auszugehen, dass das Problem nicht im Umfeld der Extraktion oder der Probenaufbereitung auftrat. Bei einer nachfolgenden umfangreichen Lecksuche im gesamten System der Lagertanks konnte neben einigen kleineren Lecks an Flanschen und Ventilen insbesondere festgestellt werden, dass die Berstscheibe des Tanks ein massives Leck aufwies, dass für den Anstieg der Messwerte verantwortlich war.

Somit lassen sich nur die ersten beiden Messungen zur Ermittlung der Sättigungsaktivität von ^{222}Rn für den Tank 1 heranziehen. Wegen der geschilderten Unsicherheiten wird zunächst lediglich die eine Obergrenze von $< 60\text{mBq}$ daraus abgeleitet. Diese Obergrenze wird herangezogen zur Abschätzung der Produktion von Radon-Töchtern, speziell ^{210}Pb . Es ist

$$A(^{210}\text{Pb}) = [A_{\text{sat}}(^{222}\text{Rn}) \cdot \{1 - \exp(-\lambda(^{210}\text{Pb}) \cdot t)\}]$$

Bei einer Lagerung von 114m^3 Szintillator im Tank über 100 Tage ergibt sich quantitativ eine Obergrenze für ^{210}Pb von 44d^{-1} im gesamten Tank oder $0,4\text{d}^{-1}\text{m}^3$ im Szintillators.

Zur weiteren Bewertung der Ergebnisse finden sich in der Tabelle 5.2 die ^{222}Rn -Sättigungsaktivitäten der beiden Heidelberger Emanationskammern und des STRAW sowie die daraus errechnete spezifische Aktivität pro Oberfläche, aus der wiederum Werte für einen Tank von der Größe des Lagertanks hochskaliert wurden. Die genannten Kammern wurden so entwickelt, gebaut und behandelt, dass der von ihnen ausgehende Untergrund die Messungen möglichst wenig stört. Eine weitere Reduktion ihres Untergrundes wäre wahrscheinlich nur mit erheblichem Mehraufwand möglich gewesen. Die Abschätzung beschreibt die Größenordnung (ohne Berücksichtigung von Messfehlern). Weiterhin wird die Tasche vernachlässigt, dass das Verhältnis der Oberfläche zu Ventilen und Flanschen bei den einzelnen Systemen individuell verschieden ist und im Falle der Lagertanks die beste Relation aufweisen sollte.

Tabelle 5.2: Vergleich der Sättigungsaktivität von ^{222}Rn beim Lagertank TK 1 und den Emanationskammern in Heidelberg und am LNGS absolut, bezogen auf die Oberfläche sowie hochskaliert auf die Größe des Tanks.

System	A [mBq]	A_{rel} [mBq/m ²]	A_{skaliert} [mBq]
kleine Emanationskammer	0,064	0,25	35
große Emanationskammer	0,25	0,20	28
STRAW	1,49	0,38	52
Lagertank TK 1	< 60	< 0,43	< 60

Die spezifischen Aktivitäten bzw. die daraus abgeleiteten skalierten Aktivitäten unterscheiden sich bei den Emanationskammern nicht wesentlich von dem Ergebnis des Tanks 1. Das bestätigt zunächst einmal, dass die aus den Messungen abgeleitete Obergrenze in der richtigen Größenordnung liegt. Vergleicht man weiter die angegebenen Werte mit den Ergebnissen der Testmessungen ($(394 \pm 28) \text{ mBq}$ bzw. $(249 \pm 40) \text{ mBq}$), so scheint die vorgenommene Reinigung (Spülen mit deionisiertem Wasser und anschließend mit Stickstoff) die Radonaktivität des Tanks um eine Faktor 5 - 10 verbessert zu haben. Ein Vergleich der Zahlen untereinander legt allerdings nahe, dass eine wesentliche Verbesserung der Reinheit auch nach erneuter intensiver Reinigung kaum zu erwarten ist.

2. Messreihe: In der nächsten Messreihe wurde Tank 2 untersucht. Gegenüber den vorherigen Messungen sind einige Modifikationen vorgenommen worden. (i) Die Berstscheiben, eine der Leckstellen bei der vorherigen Untersuchungen, waren noch einmal entfernt und durch Blindflansche aus Stahl ersetzt worden. (ii) Um die Probennahme einfacher zu gestalten und insbesondere den störenden Einfluss der Ringleitungen zu vermeiden, sind zusätzliche Probenventile angebracht worden (relevant für die Messung war vor allem das Probenventil an V 242). (iii) Zudem ist direkt unter dem Tank noch ein zusätzliches Ventil eingebaut worden, das im Notfall die Möglichkeit liefern soll, den Tank ferngesteuert pneumatisch zu verschließen. Wegen dieser und anderer Arbeiten am gesamten Lagertanksystem stand die Messung unter Zeitdruck, so dass nicht gewartet werden konnte, bis sich das Radon im Tank in Sättigung befand. Um trotzdem die Emanation des Tanks sinnvoll abschätzen zu können, blieb nur die Möglichkeit, den Radongehalt im Tank zu bestimmten Zeitpunkten zu messen und die Messergebnisse mit einer aus der Gleichung A.26 (Seite 10 im Anhang) abgeleiteten Vorhersage zu vergleichen.

Tabelle 5.3: Messungen der ^{222}Rn Emanation des Szintillator-Lagertanks 2.

Probe Nr.	222	223	225
Beginn der Emanation	28.07.01 17:35		
Scheinbarer Beginn d.Em.		28.07.01 15:57	28.07.01 17:37
Ende der Extraktion	29.07.01 13:45	31.07.01 13:45	02.08.01 13:50
Druck p im Tank [bar]	1,1	1,05	1,03
Gasmenge $p \times V$ im Tank [$\text{m}^3 \text{bar}$]	124,4	122,1	120,1
Probengröße V_i [m^3]	2,27	2,03	2,08
Gasfluß [m^3/h]	0,6	0,6	0,6
Falle	CU + RT III	CU + RT III	CU + RT III
Zählrohr	#57	#55	#57
Füllzeitpunkt	29.07.01 18:18	31.07.01 19:45	02.08.01 19:20
^{222}Rn -Aktivität in der Probe [mBq]	$0,085 \pm 0,034$	$0,48 \pm 0,08$	$0,31 \pm 0,05$
^{222}Rn -Aktivität im Tank [mBq]	$4,7 \pm 1,9$	29 ± 5	18 ± 3
Alle Proben waren aufeinander folgende Extraktionen derselben Tankfüllung. Im Übrigen ist die Definition der einzelnen Messgrößen entsprechend der Tabelle 5.1.			

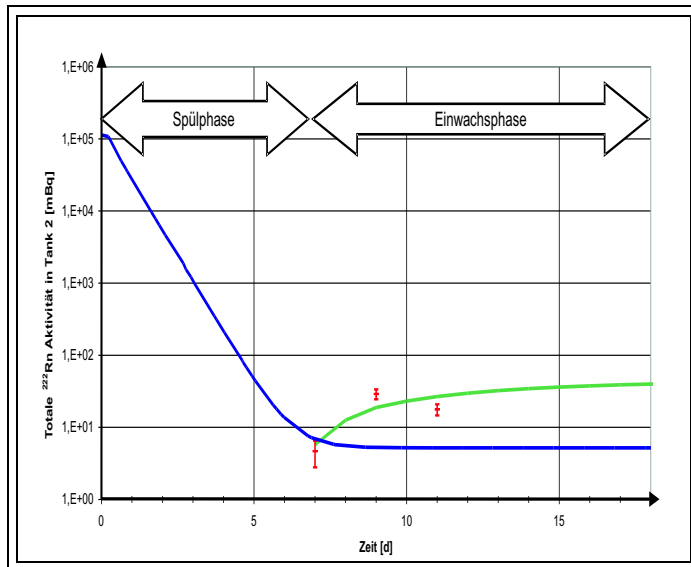


Abbildung 5.2: Modellvorhersage und Messungen des Radongehalts im Lagertank 2. Die blaue Kurve beschreibt die Reduktion während des Spülens mit Stickstoff, die grüne Kurve beschreibt das Einwachsen des Radons nach dem Spülende bis zur Sättigungsaktivität (hier mit 45 mBq angenommen). Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Messungen (grüne Datenpunkte) eingetragen.

Die Messergebnisse kann man vergleichen mit einer Vorhersage, die mit der schon erwähnten Gleichung A.26 angestellt werden kann. Der Tank war im Vorfeld bereits einmal mit HPN_2 gespült worden, außerdem waren etwa 20 % Helium für Lecktests beigemischt. etwa 2 % des Gasvolumens enthalten Umgebungsluft. Die Anfangsaktivität im Tank ist folglich nicht größer als 1 Bq/m^3 . Dann wurde mit HPN_2 gespült, wobei die ausgetauschte Gasmenge regelmäßig protokolliert wurde. Da der Spülgasfluss relativ hoch war (im Mittel $\Phi = 159,7 \text{ m}^3/\text{d} \Leftrightarrow \kappa = 1,41$), konnte in 7,6 d das 10,7-fache des Tankvolumens durchgeblasen werden. Als Sättigungsaktivität wird $A_{\text{sat}}(\text{TK 2}) = (45 \pm 8) \text{ mBq}$ angenommen, die Spülgasaktivität liegt bei $A(\text{N}_2) = 1 \mu\text{Bq/m}^3$. Diese Parameter führen in Abb. 5.2 zu der blauen Kurve. Sie zeigt deutlich, dass nach den ausgeführten ca. 8 Tagen Spülen die verbleibende Aktivität nicht mehr nennenswert reduziert werden kann und der Spülprozess beendet werden konnte. Die verbleibende Aktivität zerfällt, während durch Emanation neue Aktivität aufgebaut wird: dies ist in der grünen Kurve sichtbar.

Direkt nach Spülende wurde eine erste Gasprobe (Probe 222) extrahiert, ebenfalls am 3. Tag (Probe 223) und am 5. Tag (Probe 225) nach Spülende (die genauen Daten finden sich in Tabelle 5.3). die Datenpunkte sind ebenfalls in das Diagramm eingezeichnet.

Daraus lassen sich nun verschiedene Schlussfolgerungen ziehen.

- Die zur Abschätzung herangezogene Gleichung A.26 erlaubt im Rahmen der experimentellen Unsicherheiten sinnvolle Vorhersagen für die Zeitskalen, die zum Spülen von Tanks nötig sind.
- Die abgeschätzte Sättigungsaktivität (45 mBq) ist in akzeptabler Übereinstimmung (gleiche Größenordnung) mit der Obergrenze, die nach der ersten Messreihe für den Tank 1 abgeschätzt wurde. Auch wenn es sich um zwei unterschiedliche Proben handelt, kann dies als Bestätigung der ersten Messreihe gesehen werden.
- Das Ergebnisse beider Messreihen sind um Größenordnungen höher, als man es allein aus der Emanation des Stahls vermuten würde. Es muss also zusätzliche Quellen geben, von denen nicht automatisch erwartet werden kann, dass sie in beiden Tanks gleichermassen auftreten. Die Tatsache, dass beide Messreihen vergleichbare Befunde aufweisen, lässt allerdings vermuten, dass in den beiden Tanks das Radon aus den gleichen Quellen stammt. Neben der Diffusion (z.B. durch die Dichtungen an Flanschen und Ventilen) sind spezielle „Produzenten“ des Radons zu vermuten. Die verschiedenen fest eingebauten Steuer- und

Kontrollgeräte sind hier sicher in Betracht zu ziehen, aber auch Dichtungen, sofern sie aus ungeeigneten Materialien hergestellt wurden, und nicht zuletzt die Schweißnähte (mit einer Gesamtlänge von ca. 50 m pro Tank). Tatsächlich ist beim Design sowie bei der Konstruktion und Montage der Tanks dieser Aspekt nicht besonders beachtet worden, jedenfalls sind weder spezielle Untersuchungen zum Radonbeitrag aus den einzelnen Komponenten unternommen worden, noch haben bisherige Erkenntnisse bei der Materialauswahl besonders Berücksichtigung gefunden. Betrachtet man den Vergleich mit den Emanationskammern (Tabelle 5.2), müssen die Messergebnisse jedoch als zufriedenstellend angesehen werden.

- Die BOREXINO-Kollaboration stand nach diesen Messungen vor der Entscheidung, entweder das Design der Lagertanks neu zu evaluieren und durch mögliche Änderungen Zeitverzug in Größenordnung mehrerer Monate in Kauf zu nehmen, oder aber dafür zu sorgen, dass der Szintillator in jedem Fall, auch nach kurzer Lagerzeit, eine geeignete Reinigung erfährt. Es wurde entschieden, die Reinigungsstrategien den Umständen anzupassen.

3. Messreihe: In einer weiteren Messreihe wurde Tank 4 untersucht, der sich zum Zeitpunkt der Messungen in der vermeintlich „endgültigen“ Konfiguration befinden sollte, so dass keine technischen Modifikationen mehr vorgesehen waren. Unter dem Tank war ein großes Absperrventil angebracht, das im Allgemeinen verschlossen ist und so den Tank und die Leitungen voneinander trennt. Es war auch während der Emanationmessungen geschlossen. Abgesehen von den fest im Tank eingebauten Füllstandsmessern sind also diesmal die Tankwände (mitsamt der Schweißnähte), 10 kleine Flansche (mitsamt den angeschlossenen Leitungsstücken bis zum nächsten Ventil) sowie der Flansch des Einstiegslochs („Man Hole“) als Radon-Quelle zu verstehen.

Am 21.12.2001 12:00 h wurde begonnen, den Tank mit Stickstoff zu spülen, der Gasfluss war anfänglich ca. $5,4 \text{ m}^3/\text{h}$ ($130 \text{ m}^3/\text{d}$). Am 26.12.2001 mußte der Spülvorgang nach 440 m^3 unterbrochen werden, da nicht genügend Stickstoff zur Verfügung stand. Am 29.12.2001 um 19:00 h wurde erneut damit begonnen, den Tank zu spülen, diesmal mit ca. $9 \text{ m}^3/\text{h}$, bis zum 04.01.2002 um 19:00 h wurden insgesamt weitere 1231 m^3 durch den Tank gespült. Aus der Gleichung A.26, die schon in den vorherigen Messreihen zu vernünftigen Abschätzungen geführt hat, lässt sich abschätzen, dass zu diesem Zeitpunkt keine wesentliche Reduzierung der Restaktivität mehr zu erwarten ist. Der Tank wurde mit einem leichten Überdruck von ca. 135 mbar verschlossen.

Die erste Extraktion fand am 14.01.2002 statt, seit dem Abschluss des Tanks waren also 9,8 d vergangen, was 2,6 Halbwertszeiten entspricht. Von der beim Spülende im Tank verbliebenen Aktivität sind also nur noch ca. 17 % übrig, während die Aktivität auf Grund der Emanation ca. 83 % der Sättigungsaktivität erreicht hat. Darum kann im Gegensatz zu der Messreihe bei Tank 2 auf die Bewertung der Messergebnisse durch Vergleich mit der Modellannahme verzichtet werden und aus den Messungen unmittelbar die Sättigungsaktivität bestimmt werden. Die zweite Extraktion erfolgte am 17.01.2002, eine dritte Messung wurde am 19.01.2002 durchgeführt.

Als Probennahmestelle diente ein Ventil am Mittelflansch auf dem Kopf des Tanks. In einem dahinterliegenden noch einmal durch ein Ventil abgesperrten Rohr war ein Drucksensor angebracht, anschließend wurde hier ein Kupferrohr angebracht, das zum STRAW hinunterführte. Dort wurde das Gas in der Falle mit Kupferwolle getrocknet und das Radon in einer Aktivkohlefalle gesammelt. Die einzelnen Messergebnisse sind in Tabelle 5.4 zusammengefasst. Die Bezeichnungen und Berechnungsweise sind analog zu Tab. 5.1. Im Unterschied zu früheren Messreihen existiert jetzt jedoch eine gemessene Druckinformation (die auch mit der errechneten Gasmenge übereinstimmt). Die bei den Einzelmessungen angegebenen Fehler sind wiederum eine Mischung aus verschiedenen statistischen Fehlern der Messung und Blanks, die zum Ergebnis beitragen.

Tabelle 5.4: Messungen der ^{222}Rn Emanation des Szintillator-Lagertanks 4.

Probe Nr.	270	273	275
Beginn der Emanation	04.01.2002 19:00		
Scheinbarer Beginn d.Em.		05.01.2002 07:01	06.01.02 04:11
Ende der Extraktion	14.01.2002 13:15	17.01.02 20:05	19.01.02 20:45
Druck p im Tank [bar]	1,140	1,120	1,090
Gasmenge $p \times V$ im Tank [$m^3 bar$]	129,0	126,8	123,4
Probengröße dV_i [m^3]	2,51	2,52	3,75
Gasfluss [m^3/h]	0,9	0,9	0,9
Falle	CU + RT V	CU + RT V	CU + RT V
Zählrohr	#50	#50	#53
Füllzeitpunkt	14.01.02 18:26	18.01.02 18:40	20.01.02 15:30
^{222}Rn -Aktivität in der Probe [mBq]	$0,51 \pm 0,08$	$0,46 \pm 0,08$	$0,46 \pm 0,09$
^{222}Rn -Aktivität im Tank in Sättigung [mBq]	$31,8 \pm 5,2$	$25,6 \pm 4,4$	$16,6 \pm 3,2$
ableitbare ^{210}Pb -Aktivität im Tank nach 100 Tagen Lagerung [dpa]	23 ± 4	19 ± 3	12 ± 2
Alle Proben waren aufeinander folgende Extraktionen derselben Tankfüllung. Im Übrigen ist die Definition der einzelnen Messgrößen entsprechend der Tabelle 5.1.			

Die in den Proben angesammelten Aktivitäten mögen auf den ersten Blick gleich erscheinen. Dieser Eindruck täuscht jedoch, da die Probengröße bewusst so gewählt wurde, dass eine messbare Aktivität zustande kommt, die zum einen groß genug ist, um im Zweifelsfall die Probenbearbeitung erst am nachfolgenden Tag durchzuführen und immer noch eine messbare Aktivität zu haben, die deutlich über dem Blank der Füllprozedur liegt, die aber andererseits nicht zu groß ist, da zwangsläufig bei jeder Messung der Untergrund der Zählrohre vergrößert wird. Bei genauerer Betrachtung erweisen sich Probenaktivitäten von $0,5 \text{ mBq}$ als recht sinnvoller Kompromiss. Bei der ersten Probe wurde die geeignete Probengröße schlicht geschätzt, wohingegen bei den nachfolgenden Proben Hochrechnungen aufgrund der vorherigen Messung möglich wurden.

Die ersten beiden Zahlen sind gut konsistent, der dritte Wert erscheint etwas zu niedrig. Hier mag eine Rolle spielen, dass sich mögliche Blankbeiträge des Leitungssystems und der Messapparatur auf eine größere Probe verteilen und deshalb weniger ins Gewicht fallen. Dieser systematische Einfluss konnte jedoch in der gegebenen Zeit nicht abschließend untersucht werden.

Dennoch können die 3 Messwerte als statistisch miteinander vereinbar angesehen werden, so dass aus den drei Messdaten der Mittelwert mit einfacher Standardabweichung (24 ± 5) mBq ermittelt wird. Das Ergebnis bestätigt wiederum die Größenordnung der vorherigen Messreihen, wobei in Tank 4 die Sättigungsaktivität nur etwa halb so groß ist verglichen mit Tank 1 und 2. Das mag einfach statistisch begründet sein, könnte aber auch daran liegen, dass Tank 1 und Tank 2 zum Zeitpunkt der Messung noch nicht in der endgültigen Konfiguration präsentiert wurden. Weiterhin ist davon auszugehen, dass die Leitungsanschlüsse unten am Tank bei den vorherigen Messungen jedesmal auch mit zum Messergebnis beitrugen, was diesmal nicht der Fall war.

Im zeitlichen Zusammenhang mit dieser Messreihe stellte sich heraus, dass die in den Flanschen verwendeten Helicoflex-Dichtungen nicht den Spezifikationen entsprachen; die Helium-Leckrate der Flansche lag mit ca. $10^{-6} \text{ ml mbar sec}^{-1}$ ca. 2 Größenordnungen höher als eigentlich vorgesehen.

Um den Einfluss dieses Effekts zu quantifizieren, wurde ein zur Verfügung stehender Flansch mit entsprechenden Blindkappen, einem Ventil und einem VCR-Anschluss versehen, so dass der Radoneintrag (also Emanation plus Leckrate) separat gemessen werden konnte. Hochgerechnet auf die Sättigung ergab sich $(0,1 \pm 0,1) \text{ mBq}$. Bei 10 solcher Flansche pro Tank ergäbe sich daraus ein Radon-Eintrag von $\approx 2,4 \text{ mBq}$ (90 % C.L.). Die Flansche tragen demnach maximal zu 10 % zur gemessenen Radon-Kontamination bei. Umfangreiche Modifikationen an den Flanschen, z.B. eine zusätzliche Abschirmung und Umspülen mit Schutzgas, würden daher keine nennenswerte Verbesserung erwarten lassen.

Die Emanation der Lagertanks ist tatsächlich eine nennenswerte Untergrundquelle. Zur Abschätzung sei hier einmal eine Sättigungsaktivität von 40 mBq für jeden der Tanks angenommen, 3 Tanks liefern also zusammen 120 mBq . Bei einer hypothetischen Lagerzeit von 18 Monaten führt dies zu einer Bleibakkumulation von $5,6 \cdot 10^6$ Atomen. Würde man den Szintillator ohne weitere Reinigung in den Detektor füllen, würde diese Aktivität einem Untergrund von 128 cpd (im Fiducial Volume im Neutrinofenster) bedeuten. Es ist deshalb als wesentliches Ergebnis der hier vorgenommenen Messungen zu sehen, dass eine effiziente Reinigungsprozedur zur Reduzierung der Radontöchter in jedem Fall erforderlich ist und der bereits gereinigte Szintillator nicht mehr mit den Lagertanks in Berührung kommen sollte.

5.3 PPO-System: Hoover-Tank 2 und D 330

Innerhalb des PPO-Systems (vergl. Seite 26 im Abschnitt 2.3.4) wurden Messungen am einem Tank mit der Bezeichnung D 330 sowie am sog. Hoover-Tank 2 vorgenommen.

D 330 hat ein Volumen von $1,58 \text{ m}^3$ und ist ein Druckbehälter, kann also sowohl mit Überdruck befüllt als auch zur Extraktion weit unter Atmosphärendruck abgepumpt werden. Die Emanationsmessungen ergaben $(4,8 \pm 0,5) \text{ mBq}$ (Probe 296) und $(7,8 \pm 1,0) \text{ mBq}$ (Probe 305), der gewichtete Mittelwert davon ist $(6,3 \pm 0,5) \text{ mBq}$. Bei einem Vergleich mit den in Tabelle 5.2 (Seite 62) angegebenen Werten muss dieses Ergebnis jedenfalls als akzeptabel für einen Tanks dieser Bauart und Größe eingestuft werden. Wieweit davon eine Kontamination des Szintillators ausgeht, hängt letztlich stark von den Operationen, den damit verbundenen Kontaktzeiten und der anschließenden weiteren Behandlung des Szintillators bzw. der Master-Lösung ab und lässt sich an dieser Stelle nicht abschließend quantifizieren.

Hoover-Tank 2 (kurz HT 2, $V = 2,1 \text{ m}^3$) ist zum zwischenzeitlichen Lagern der Masterlösung für einen Zeitraum von etwa 4–6 Wochen vorgesehen ist. Erste Messungen (Proben 309, 312 und 313) führten zu keinem konsistenten Ergebnis, danach wurden verschiedene mechanische Arbeiten an den Tanks vorgenommen (Beseitigung von Lecks an den Berstscheiben etc.). In einer zweiten Messreihe konnten dann konsistente Resultate erzielt werden. Tabelle 5.5 gibt die Details der Messung wieder.

Da HT 2 kein Druckbehälter ist, der Tank konnte nur mit maximal 200 mbar Überdruck belastet werden, war bei der Präparation nur ein vergleichsweise geringer Gasfluss von ca. $0,1 \text{ m}^3$ möglich. Es ist also damit zu rechnen gewesen, dass auch nach langem Spülen eine messbare Radonkonzentration in der Gasfüllung verbleibt (entsprechend der Argumentation im Abschnitt A.3 im Anhang).

Tabelle 5.5: Ergebnis der Messungen des ^{222}Rn aus Emanation am Hoover-Tank 2 im PPO-System.

Probe Nr.	309	312	313	317	319
Beginn der Emanation	25.04.02 17:00	29.04.02 15:11	10.06.02 10:30	28.06.02 10:30	01.07.02 22:10*
Ende der Extraktion				08.07.02 12:30	13.07.02 13:05
Druck p im Tank [bar]	1,165	1,12	1,12	1,2	1,035
Gasmenge $p \times V$ im Tank [$m^3\text{bar}$]	2,445	2,352	2,352	2,52	2,17
Probengröße dV_i [m^3]	0,44	0,35	0,35	0,35	0,18
Gasfluß [m^3/h]				0,17	0,09
Falle				CU + RT V	CU + RT V
Zählrohr	#53	#50	#50	#53	#50
Füllzeitpunkt	30.04.02 12:55	02.05.02 12:35	15.06.02 17:04	08.07.02 18:12	13.07.02 18:59
^{222}Rn in der Probe [mBq]	126 ± 7	$19,5 \pm 4,6$	36 ± 2	$0,11 \pm 0,03$	$0,14 \pm 0,04$
^{222}Rn im Tank [mBq] in Sättigung bei Extraktion	700 ± 40	130 ± 30	250 ± 10	$0,8 \pm 0,3$	$1,8 \pm 0,6$

Die Proben 309, 312 und 313 wurden jeweils nach separater Präparation des Tanks gezogen. Die Probennahme erfolgte durch H. Simgen. Die Proben 317 und 319 waren aufeinander folgende Extraktionen derselben Tankfüllung. Darum ist bei Probe 319 anstelle des Emanationsbeginns der *scheinbarer* Emanationsbeginn (*) gegeben. Im Übrigen ist die Definition der einzelnen Messgrößen entsprechend der Tabelle 5.1.

Zwischen dem Ende des Spülvorgangs und der ersten Extraktion lagen 234 h (das sind $9\text{ d } 18\text{ h}$, also ca. $2,6\text{ Rn-Halbwertszeiten}$). Die zum Spülene noch im Tank verbliebene Restaktivität sollte auf 17% ihres ursprünglichen Wertes zerfallen sein, während inzwischen 83% des Sättigungswertes durch Emanation erreicht sein sollten. In einem ersten Näherungsansatz kann man also hier die Sättigungsaktivität direkt aus der Volumenskalierung und der Einwachskurve berechnen:

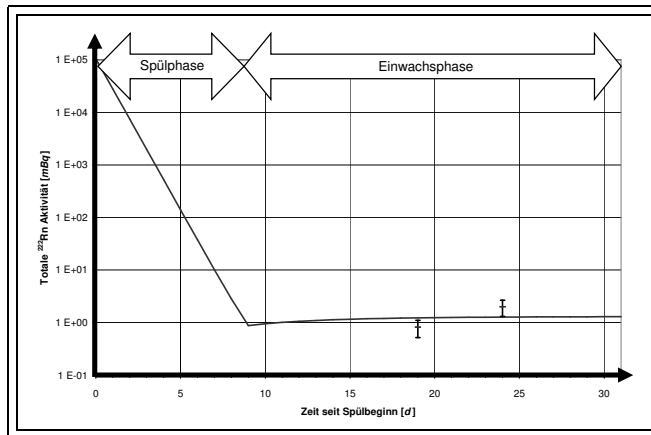
$$A_{\text{sat}} = A_{\text{Probe}} \cdot \frac{V_{\text{Tank}}}{V_{\text{Probe}}} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot (t-t_0)})$$

Gleichermaßen konnten, um Beschädigungen am System durch Unterdruck zu vermeiden und die Extraktionszeit in vertretbarem Rahmen zu halten, nur Proben gezogen werden, die etwa $10\text{--}20\%$ des Tankvolumens ausmachten. Bei der zweiten Extraktion aus dem gleichen Gasvolumen ist die Mengentnahme während der ersten Extraktion natürlich zu berücksichtigen (siehe die Darstellung im Abschnitt A.2 im Anhang).

Der gewichtete Mittelwert der beiden Messergebnisse (317 und 319) ist $(1,2 \pm 0,3)\text{ mBq}$. Bei einer achtwöchigen Lagerzeit wird dadurch eine ^{210}Pb -Aktivität von $(5,7 \pm 1,4)\mu\text{Bq}$ bzw. $(2,7 \pm 0,7)\text{ mBq}/m^3$ aufgebaut, die dann auf den gesamten Szintillator ($300m^3$) verteilt eine Belastung von $(9,1 \pm 2,3)\text{ nBq}/m^3$ ausmachen. Das sind bei homogener Verteilung $(0,08 + -0,02)\text{ cpd}$ im Fiducial Volume (ohne Cuts). Damit kann der Hoovertank als unkritisch unter dem Aspekt der Radonemanation angesehen werden.

Die gemessene Aktivität kann zusammen mit den anderen Parametern ebenfalls in die Modellgleichung A.26 eingesetzt werden. Dabei ist das Volumen $V = 2,1\text{ m}^3$, die Anfangsaktivität $A_0 = 50\text{ Bq/m}^3 \cdot V = 105\text{ Bq}$ und der Spülgasfluss $\Phi = 0,1\text{ m}^3/\text{h} = 2,4\text{ m}^3/\text{d}$. Die Spülzeit beträgt ca. 9,75 Tage. Danach zerfällt die Restaktivität und die Radonkonzentration aus Emanation wächst bis zur Sättigungsaktivität ein. Der Verlauf der Radonkonzentration im Tank ist in Abb. 5.3 dargestellt, ebenfalls sind zum Vergleich die Datenpunkte der Messungen 317 und 319 eingezeichnet. Die Kurve bestätigt sehr anschaulich die immer wieder angewandte Faustregel, dass ein Tank „radonfrei“ ist, wenn er mit dem zehnfachen seines Volumens mit sauberem Gas durchspült wird.

Abbildung 5.3: Modelvorhersage und Messungen des Radongehalts im Hoover Tank 2. Die Kurve beschreibt die Reduktion der Aktivität während des Spülens mit Stickstoff sowie das anschließende Einwachsen des Radons bis zur Sättigungsaktivität. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Messungen (Datenpunkte) eingetragen.



5.4 Module Zero: Tanks und Silikagelsäulen

Zentrales Element des Module Zero sind die beiden mit Silikagel gefüllten Säulen, die zur Szintillatorreinigung eingesetzt werden können. Emanationsmessungen einer Silikagelprobe von 45,5 g ergaben eine Obergrenze von $\leq 1,2\text{ mBq/kg}$ ([Buc01]), was bei jeweils 30 kg pro Säule einer Emanation von $\leq 72\text{ mBq}$ entspricht. Messungen eines Säulengehäuses² ergaben $(0,61 \pm 0,08)\text{ mBq}$ (Probe 613) bzw. $(0,57 \pm 0,06)\text{ mBq}$ (Probe 614), also gemittelt $(0,59 \pm 0,05)\text{ mBq}$.

Die vollständige und endgültige Installation beinhaltet weiterhin über und unter dem Silikagel je eine Filterplatte aus Teflon, je einen elektronischen Drucksensor³, ein Filtergehäuse mit einer Millipore-Teflonkartusche sowie bei Säule 2 noch ein Massenflussmesser⁴. Die Säulen sind über verschiedene Leitungen in das Module Zero eingebunden.

Beide Säulen wurden in der kompletten und endgültigen Installation gemessen. Das Silikagel war noch frisch, war also bisher nicht mit PC in Berührung gekommen, darüberhinaus kann nicht ausgeschlossen werden, dass das Silikagel während des Befüllens eine unbekannte Menge Luftfeuchtigkeit adsorbiert hat. Zur Preparation wurden die Säulen mehrere Stunden bei hohem Fluss (ca. $5\text{ m}^3/\text{h}$) mit HPN_2 gespült.

Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 5.6 wiedergegeben. Die Emanation der Säule 2 liegt bei ca. 5 mBq . Zieht man den Messwert des Säulengehäuses ab (s.o.), und nimmt man ferner an, dass das gesamte übrige Radon vom Silikagel stammt, so ergibt sich für die Emanation eine neue Obergrenze von $\leq 0,2\text{ mBq/kg}$.

²Gemessen am MPI für Kernphysik in Heidelberg

³Modell: Endress + Hauser *cerebar S* Drucktransmitter PMP 731

⁴Modell: Endress + Hauser *promass 63 F*

Die Ursache für die deutlich nach oben abweichenden Messergebnisse der Proben 341 und 343 waren zunächst nicht klar. Um Fehler in der Probennahme auszuschließen, wurde bei Probe 343 ein Stahlschlauch mit VCR-Anschlüssen verwendet, um die Swagelok-Anschlüsse der Kupferleitung zu vermeiden. In Probe 345 wurde zudem eine andere Falle (RT III) verwendet, um auch an dieser Stelle des Extraktionsprozesses Artefakte auszuschließen. In einer weitergehenden Inspektion zeigte sich, dass ein Druckmessgerät in der Säule defekt war und ausgetauscht werden mußte. Bei der Gelegenheit wurden auch die große Flansche noch einmal nachgezogen, die Säule erneut auf Lecks getestet und frisch präpariert. Die anschließende Messung 352 lieferte ein noch besseres Ergebnis.

Es war zu erwarten, dass beide Säulen leicht unterschiedliche Messergebnisse liefern. Nur die Säule 2 hat einen Flussmesser, zudem unterscheidet sich in den Säulen die Korngröße des Silikagels. Da aber für beide Säulen zufriedenstellende Resultate nachgewiesen wurden, und der Unterschied für den weiteren Verlauf des Experiments keine nennenswerte Bedeutung hat, wurde dieser Frage nicht weiter nachgegangen.

Ein Einfluss auf das Messergebnis von BOREXINO ist zum jetzigen Zeitpunkt nur hypothetisch zu berechnen, da die engültige Reinigungsstrategie noch nicht entschieden sind. Jedenfalls aber ist der Fluss durch die Säulen mit $0,2\text{ m}^3/\text{h}$ spezifiziert, die Kontaktzeit beträgt also ca. 5 h . In dieser Zeit werden $3,7\%$ der Sättigungsaktivität abgegeben (also ca. $75\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$). Es ist allerdings nicht davon auszugehen, dass daraus eine nennenswerte Akkumulation der Tochternuklide entsteht, weil der Szintillator (oder die Masterlösung) nach der Reinigung mit der Säule zunächst in die Puffer-tanks gefüllt werden, wo er mit Stickstoff durchgespült wird. Damit kann für beide Säulen gezeigt werden, dass sie die Spezifikation erfüllen und unter dem Gesichtspunkt der Radonemanation als „sauber“ anzusehen sind.

Auch für die Tanks des Module Zero wurde die Emanation bestimmt. Eigentlich sind alle Tanks als Drucktanks ausgelegt, sie hätten also idealerweise mit Gas (Stickstoff) zur Emanationsmessung präpariert werden können. Sie waren allerdings zum Zeitpunkt der Messung (Winter 2001/02) in den Detektorbetrieb eingebunden und deshalb mit einem dreiphasiges Gemisch aus Wasser und PC und einem Blanket aus Stickstoff gefüllt. Eine Reinigung der Anlagen wäre sehr umfangreich und zeitaufwendig gewesen. Es erschien schneller realisierbar, die Tanks einige Zeit stehen zu lassen und das durch Emanation entstandene Radon aus der Wasserfüllung zu extrahieren. Die entsprechenden Messungen wurden mit dem STRAW durchgeführt. Die Berechnung der Sättigungsaktivität gestaltet sich etwas komplizierter, da das Radon in der Wasserprobe mit dem Volumenanteil des Wassers gewichtet werden muss. Ausserdem ist zu beachten, dass die Löslichkeiten von Rn in Wasser, Stickstoff und PC unterschiedlich sind. Die Konzentrationsverhältnisse sind

$$s_1 = \frac{C_{PC}}{C_{N_2}} = 11 \quad s_2 = \frac{C_{H_2O}}{C_{N_2}} = 0,33 \quad s_1 = \frac{s_2}{s_1} = \frac{C_{H_2O}}{C_{PC}} = 0,033 \quad (5.3)$$

Ausserdem ist das ^{226}Ra im Wasser zu berücksichtigen, dass ebenfalls ^{222}Rn produziert.

$$A_{ges} = A(\text{Eman}) + A_{H_2O}(^{226}\text{Ra}) = A(N_2) + A(PC) + A(H_2O) \quad (5.4)$$

$$= V_{N_2} \cdot C_{N_2} + V_{PC} \cdot C_{PC} + V_{H_2O} \cdot C_{H_2O} \quad (5.5)$$

$$= C_{H_2O} \left(\frac{V_{N_2}}{s_2} + \frac{V_{PC}}{s_3} + V_{H_2O} \right) \quad (5.6)$$

Tabelle 5.6: Ergebnis der Messungen des ^{222}Rn aus Emanation der Silicagelsäulen im Modul 0.

Probe Nr. Säule	341 I	343 I	345 I	352 I	337 II	339 II
Beginn der Emanation	12.09.02 18:10	22.10.02 * 13:06 *	27.10.02 * 16:19 *	10.12.02 18:05	12.09.02 18:10	20.10.02 * 10:21 *
Ende der Extraktion	31.10.02 17:55	02.11.02 12:58	08.11.02 12:45	18.12.02 12:21	29.10.02 15:08	30.10.02 12:07
Druck p in der Säule [bar]	1,98	1,50	1,05	1,93	1,98	1,50
Druckdifferenz Δp	0,46	0,48	0,45	0,57	0,46	0,48
Anschluß	Kupferrohr	Stahlschlauch	Stahlschlauch	Stahlschlauch	Stahlschlauch	Stahlschlauch
Fälle	RT V	RT V	RT III	RT III	RT V	RT V
Zählrohr	#53	#53	#53	#55	#50	#53
Füllzeitpunkt	01.11.02 14:40	02.11.02 17:20	08.11.02 19:06	18.12.02 20:40	29.10.02 20:25	20.10.02 18:45
^{222}Rn in der Probe [mBq]	$13,5 \pm 1,4$	$9,7 \pm 0,5$	$1,2 \pm 0,1$	$0,42 \pm 0,11$	$1,0 \pm 0,2$	$1,1 \pm 0,1$
^{222}Rn in der Säule [mBq] in Sättigung	72 ± 40	47 ± 3	$4,7 \pm 0,5$	$2,4 \pm 0,6$	$5,3 \pm 0,8$	$5,3 \pm 0,7$

Beide Säulen waren zu Beginn (12.09.02 18:10) mit 2,44 bar Stickstoff gefüllt.
Wie schon bei den anderen Messungen, muss auch hier die teilweise Entnahme von Aktivität bei den einzelnen Extraktionen berücksichtigt werden, weshalb die mit * gekennzeichneten Daten den *scheinbaren Emanationsbeginn* gemäß Abschnitt A.2 (Anhang) darstellen. Im Übrigen ist die Definition der einzelnen Messgrößen entsprechend der Tabelle 5.1.
Probe 352 erfolgte nach erneuter Preparation.

Zur Messung wurde C_{H_2O} bestimmt. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 5.7 zusammengefasst. Die verglichen mit anderen Tanks hohe Emanation der EP-Tanks von ca. 70 mBq mag zunächst auffallen, allerdings wurde bei der Konstruktion der Tanks kein besonderer Wert auf die Verwendung emanationsarmer Materialien gelegt. Das ist darin begründet, dass die EP-Tanks nicht zur dauerhaften Lagerung genutzt werden und zudem ausschließlich am Beginn des Reinigungsprozesses stehen und keinesfalls aus ihnen heraus Szintillator direkt in die CTF oder in BOREXINO gefüllt werden soll.

Die Emanation des Buffertank ist ebenfalls zufriedenstellend niedrig, in ihm findet keine dauerhafte Lagerung statt, und während der Szintillatoroperation kann der Radongehalt durch Stickstoffspülen wirksam reduziert werden. Alle Geräte weisen eine für den Detektorbetrieb ausreichend niedrige Emanation auf.

Tabelle 5.7: Emanationsmessungen der Tanks und einiger anderer Komponenten im Module Zero.

Bauteil	A_{sat} [mBq]	Kommentar
Buffer Tank West	$3,7 \pm 1,4$	Probe 274, $A_{H_2O}(^{226}\text{Ra}) = (1,0 \pm 0.5)$ mBq; $0,83 \text{ m}^3 \text{ H}_2\text{O}$, $0,35 \text{ m}^3 \text{ PC}$ und $0,1 \text{ m}^3 \text{ N}_2$
EP Tank Nord	65 ± 10	Probe 272, $A_{H_2O}(^{226}\text{Ra}) = (1,0 \pm 0.5)$ mBq; $6,6 \text{ m}^3 \text{ H}_2\text{O}$ und $1,1 \text{ m}^3 \text{ N}_2$
EP Tank Süd	77 ± 12	Probe 276, $A_{H_2O}(^{226}\text{Ra}) = (1,0 \pm 0.5)$ mBq; $5,2 \text{ m}^3 \text{ H}_2\text{O}$, $0,9 \text{ m}^3 \text{ PC}$ und $1,6 \text{ m}^3 \text{ N}_2$
Niederdruckleitung im N_2 -System	$< 0,088$	[Buc01], Seite 46
Pressure Head	$< 0,033$	[Buc01], Seite 46

5.5 Skids: Säulen und Wärmetauscher

Emanationsmessungen von den einzelnen Komponenten der Skids wurden zunächst von C. Buck durchgeführt (siehe Kap. 3.3.3. in [Buc01]) und dann gemeinschaftlich fortgesetzt. Die nachstehende Tabelle 5.8 gibt einen Überblick über alle Messungen.

Bemerkenswert hoch sind die Messergebnisse der beiden Wärmetauscher (E 302 und E 301), die beide zunächst eine Aktivität von ca. 30 mBq aufwiesen. Eine detaillierte Untersuchung mit mehreren Messungen ergab dann, dass die Schweißnähte im Kopf dieser Geräte die Quelle der Emanation sind. Der Kopf für E 301 (der in Prozessverlauf nach der Stickstoffsäule liegt) wurde daraufhin neugebaut, indem er aus einem massiven Stück herausgefräst wurde. In einer erneuten Messung erwies sich die Emanation nun um 2 Größenordnungen kleiner. Damit erfüllte auch E 301 die Anforderungen. Ein Neubau des Kopfes von E 302 wurde von der Kollaboration als nicht so dringend erforderlich eingestuft, da er im Prozessablauf unmittelbar vor der Stickstoffsäule liegt und so das dort entstandene Radon gleich wieder mit extrahiert wird.

Als ausgesprochen sauber sind die beiden Spülsäulen zu bewerten, die ja durch die Stahlpackungen eine sehr große Oberfläche enthalten. Die relative Emanation ist in beiden Fällen $(8,1 \pm 0,4) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Besonders im Vergleich mit den in Tabelle 5.2 (Seite 62) angegebenen Werten beeindrucken diese Ergebnisse. Erklärbar werden sie durch die Konstruktion des Bauteils:

Tabelle 5.8: Emanationsmessungen an einzelnen Baugruppen der Skids. Die Auflistung folgt von oben nach unten dem Prozessverlauf, mit dem der Szintillator während der Reinigung durch die einzelnen Komponenten läuft.

Bauteil	Dimensionen	A_{sat} [mBq]
Buffer tank		$0,74 \pm 0,09$ [Buc01], Seite 46
Wasserextraktionssäule C 200 gefüllt mit 24 Stahlblechpackungen	$L = 800\text{ cm}$ $r = 15,5\text{ cm}$ $V = 600\ell$ $A = 608\text{ m}^2$	$4,9 \pm 0,3$
1 Stahlpackung für C 200	$A = 25\text{ m}^2$	$< 0,083$ [Buc01], Seite 46
Wärmetauscher E 302		30 ± 5
Stickstoffsäule C 300 gefüllt mit 26 Stahlblechpackungen	$L = 900\text{ cm}$ $r = 8\text{ cm}$ $V = 200\ell$ $A = 280\text{ m}^2$	$2,27 \pm 0,14$ [Buc01], Seite 46
Wärmetauscher E 301 (ursprüngliche Konfiguration)		30 ± 1
Wärmetauscher E 301 (Kopf neugebaut)		$0,3 \pm 0,1$
Pumpe P 301 (Trebor Pump)		$0,4 \pm 0,2$
Millipore Teflon Filter F 302		6 ± 2

Die Säule ist im wesentlichen ein langes Rohr, das nur am Kopf und am Fuß vergleichsweise kurze Schweißnähte hat. Die Ventile sind bereits durch Elektronenstrahlschweißen angebracht, so dass kein Elektrodenmaterial in die Schweißnähte eingeht. Für die Stahlblechpackungen ist das Blech mehrfach gefaltet und wird dann durch einfache Schweißpunkte zusammengehalten (auch hier wird kein Elektrodenmaterial eingetragen). Die Packungen selbst sind nur von der Größe des Säulendurchmessers ($r = 15,5\text{ cm}$), sie können also nach der Produktion in handelsüblichen Reinigungsgeräten (etwa Ultraschallbäder) sehr gut von Oberflächenkontaminationen befreit werden.

Die übrigen Messwerte sind als unkritisch zu bewerten. Bei optimalem Prozessverlauf beträgt die Reinigungsleistung der Anlage $1\text{ m}^3/h$, die daraus resultierende Kontaktzeit des Szintillators mit der Wassersäule ist 36 min , die Kontaktzeit mit der Stickstoffsäule ist etwa 12 min . Die in dieser Zeit freigesetzte ^{222}Rn -Aktivität entspricht $0,4\%$ bzw. $0,2\%$ der Sättigungsaktivität, bei gleichzeitiger deutlicher Reduzierung durch das Stickstoffspülen. Die Belastung des Szintillators mit ^{222}Rn liegt im Bereich von $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ oder darunter, ist also vergleichbar mit dem maximalen Eintrag aus dem Stickstoff. Die gemessene Emanation des Filters ist unerwartet hoch, verglichen etwa mit dem Teflonfilter in der Stickstoffleitung ($(0,31 \pm 0,10)\text{ mBq}$, [Buc01], Seite 49). Sie korrespondiert mit einer Radonbelastung des Szintillators von etwa $30\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (bei der angenommenen Reinigungsleistung von $1\text{ m}^3/h$). Eine erneute Messung nach einem Wechsel der Filterkartusche sollte zukünftig dringend noch in Betracht gezogen werden.

Geht man davon aus, dass das Detektorfüllen mit der optimalen Prozessgeschwindigkeit von $1\text{ m}^3/h$ abläuft und dabei keine wesentlichen Unterbrechungen stattfinden, bedeutet das für das Füllen der Stahlkugel eine Prozessdauer von $1400\text{ h} = 5,04 \cdot 10^6\text{ s}$. Die Emanation der Komponenten vor der Stickstoffsäule wird durch das Stickstoffspülen effizient ausgetrieben, alle Komponenten

ten hinter der der Stickstoffsäule tragen uneingeschränkt zum Detektoruntergrund bei, zusammen ist also die Freisetzung von ^{222}Rn $A_{\text{sat}} = (6,7 \pm 2,0)s^{-1}$. Mit der Gleichung 5.1 errechnet sich daraus eine Untergrundrate von $(0,76 \pm 0,23) \text{cpd}$ im Fiducial Volume im Neutrino-Fenster. Damit lässt sich abschließend sagen, dass sämtliche relevanten Komponenten der Skids untersucht wurden und die Skids unter dem Aspekt der Emanation von ^{222}Rn für den Detektorbetrieb im planmässigen Einsatz keine Gefahr darstellt.

5.6 Filling Station: Tanks und Gasmodul

Die Filling Station ist der Teil des Liquid-Handling-Systems, in dem der gereinigte Szintillator ankommt, um in die Vessel gefüllt zu werden (vergl. Abschnitt 8). Die an dieser Stelle auftretenden Kontaminationen werden durch nichts mehr zurückgehalten und gehen ungehindert in das Innerste des Detektors. Emanationsmessungen sind deshalb zwingend erforderlich, insbesondere für die beiden Tanks D 1302 (*Inner Vessel Head Tank*) und D 1301 (*Inner Vessel Overflow Tank*).

Bedauerlicherweise konnten diese Messungen bisher noch nicht durchgeführt werden, da die gesamte Filling Station nicht vor Mitte 2003 komplett installiert und gereinigt sein wird. Zum jetzigen Zeitpunkt bereits fertiggestellt und installiert ist das Gasversorgungsmodul, das einer Inspektion unterzogen wurde.

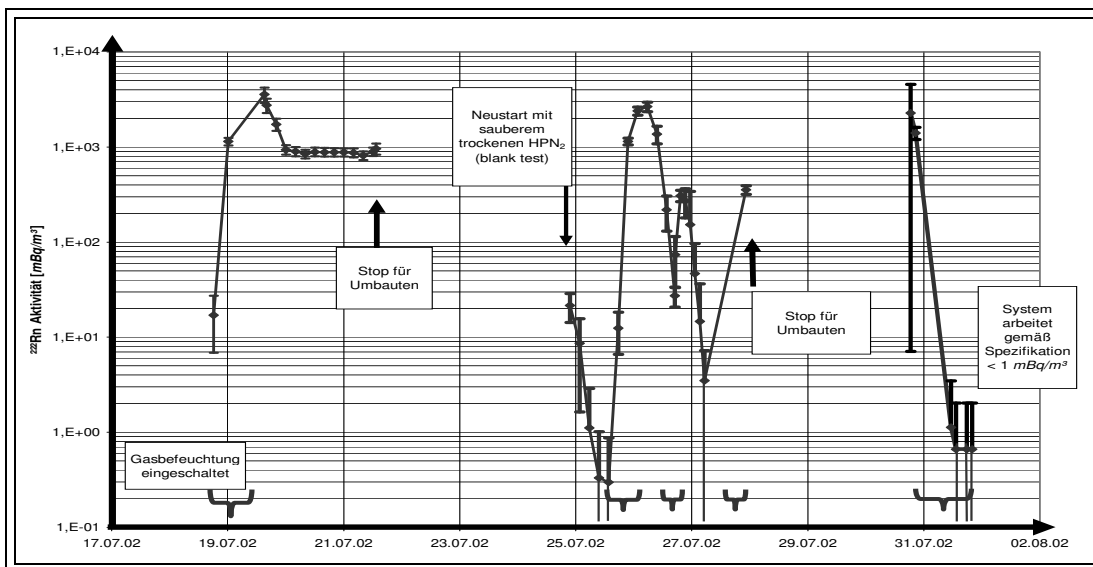
Das Gassystem der Filling Station: Das Vessel-System wird unmittelbar nach der Installation mit synthetischer Luft (siehe Kap. 6) bzw. mit N_2 aufgeblasen. Hierzu ist in der Filling Station ein Gassystem enthalten, mit dem Druck und Gasfluss geregelt werden. Es erlaubt zusätzlich, das eingeblasene Gas zu befeuchten, damit das Nylon nicht austrocknet und brüchig wird. Für den letztgenannten Zweck enthält das Gasmodul ein Wasserreservior, das zur Radonreduzierung mit Stickstoff gespült werden kann und zudem ein Heizaggregat enthält. Die Feuchtigkeit kann von dort durch eine permeable Teflonmembran in den Gasstrom gelassen werden.

Dieses Gassystem wurde zur Kontrolle während der ersten Inbetriebnahme mit der elektrostatischen Kammer (siehe Abschnitt 4.4) überwacht. Die Spezifikation für das Spülgas ist $0,1 \text{mBq}/\text{m}^3$ (^{222}Rn), entsprechend der SPGN $_2$ -Qualität, wobei angesichts des während des Wasserfüllens eingebrachten ^{222}Rn diese Spezifikation sicherlich sehr konservativ gewählt ist.

1. Messreihe: Eine erste Messreihe mit dem Gasmodul wurde im Sommer 2002 durchgeführt. Zunächst wurde eine geeignete Verbindung zur elektrostatischen Kammer hergestellt. eine Kupferleitung erschien als ausreichend sauber, Mit einem Durchmesser von $(1/2'')$ konnte gewährleistet werden, dass das Rohr nicht durch Wassertropfen verstopft, was den Gasfluss unterbrochen hätte. HPN $_2$ wurde am Gasmodul vorbei zum Detektor geführt, um ihn zu reinigen. Nachdem das durch die Arbeiten am Gerät eingetragene Luft-Radon binnen weniger Stunden ausgespült war, wurde das Befeuchtungsmodul einbezogen und eine erste Messung unternommen (siehe Abb. 5.4). Die gemessene Aktivität stieg auf ca. $1 \text{Bq}/\text{m}^3$, was auf Lecks zurückzuführen war. Die Lecks wurden verschlossen (was einige Zeit in Anspruch nahm), danach wurde zunächst wieder trockener Stickstoff durch das System gelassen. Nach weniger als einem Tag war das Messsignal des Detektors auf unter $1 \text{mBq}/\text{m}^3$ reduziert worden. Die an dieser Stelle im Diagramm verzeichneten großen Fehler sind vor allem statistischer Natur aufgrund geringer Zählraten bei gleichzeitig kurzen Messperioden. Angesichts der Messwerte, die um einige Größenordnungen variieren, stört dies aber nicht.

Dann wurde am 25.07.2002 erneut mit dem Befeuchten der Luft begonnen, was einen erneuten Anstieg des Radongehalts bewirkte. In den folgenden Tagen wurde mehrfach zwischen trockenem und feuchtem Modus gewechselt und einzelne Schwachstellen ausgemerzt.

Abbildung 5.4: Bestimmung des Radongehalts vom Spülgas aus dem Gasmodul der Filling Station während der ersten Inbetriebnahme.

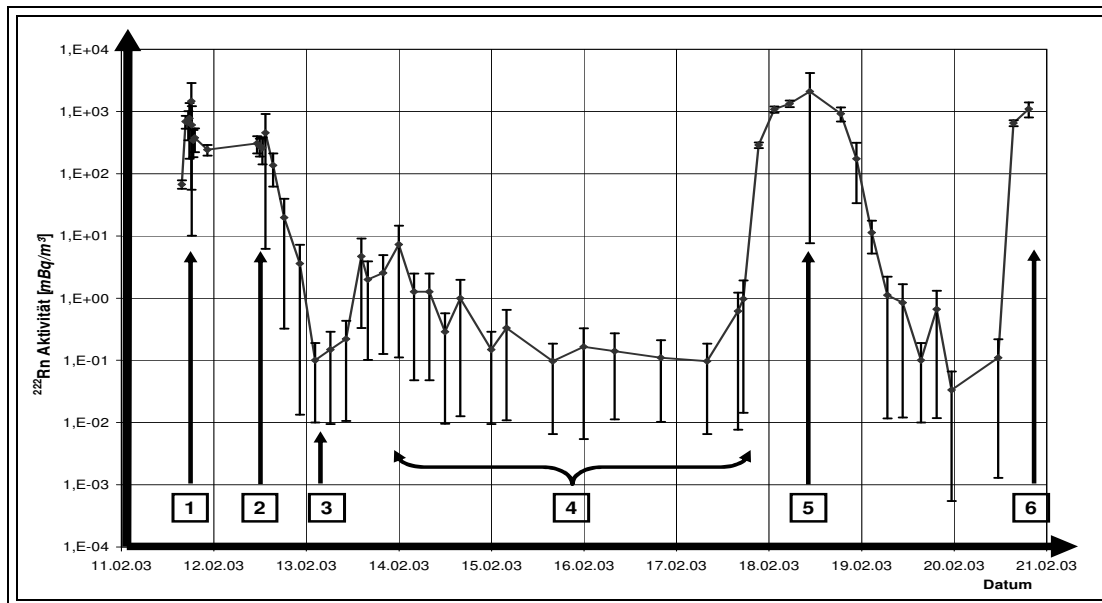


Am 31.07.02 konnte dann endlich auch im feuchtem Gas ein Radongehalt von weniger als 1 mBq/m^3 gemessen werden. Die Messungen lassen erkennen, dass das Gassystem die Spezifikationen erfüllt (wenngleich die kurze Beobachtungszeit hier nur eine vorläufige Aussage zulässt). Bedauerlicherweise musste das bereits gemessene System später aus technischen Gründen ersetzt werden, so dass die hier aufgeführte Messung keine endgültige Aussage in Bezug auf den Betrieb von BOREXINO zulässt.

2. Messreihe mit dem neuen Gasmodul: Das neue Modul wurde im Winter 2002/2003 aufgestellt und konnte im Februar 2003 noch einer Inspektion unterzogen werden. Als Spülgas wurde wieder HPN_2 genutzt. Der Verlauf der Messungen ist in Abb. 5.5 dargestellt. Da der Detektor bei einem Gasfluss von einigen $0,1 \text{ m}^3/\text{h}$ arbeitet, das Gasmodul aber für wesentlich höhere Flüsse konzipiert ist, wurde das Probengas an einem Sample-Port ($1/4''$ -VCR-Anschluss) eines großen Ventils abgegriffen und mit der Kupferleitung ($1/2''$) zur elektrostatischen Kammer geleitet. Das übrige Gas floss durch ein großes Rohr ab.

Nach dem Anschließen des Gasmoduls war noch restliches Lufradon zu messen. Um dieses auszuspülen, wurde HPN_2 durch den Bypass des Gasmoduls zum Detektor geleitet. Zum Messbeginn lag die ^{222}Rn -Konzentration bei $(70 \pm 10) \text{ mBq/m}^3$ (Punkt 1 im Diagramm). Der Gasfluss wurde auf ca. $4 \text{ m}^3/\text{h}$ einreguliert und das Gas durch das große Rohr ($r = 1''$) abgeleitet. Es zeigte sich, dass die Konzentration relativ schnell ein Niveau von ca. 600 mBq/m^3 erreicht. Das lässt sich recht gut dadurch erklären, dass der Gasfluss im Ausgangsrohr zu gering war und Radon aus der Luft zurückdiffundierte: bei einem Rohr mit $r = 1''$ und $\Phi = 4 \text{ m}^3/\text{h}$ ist die Gasgeschwindigkeit des Stickstoff ca. $0,61 \text{ m/s}$. Umgekehrt ist die wahrscheinlichste Geschwindigkeit der Maxwellverteilung von Radon bei $v_w(290 \text{ K}) \approx 150 \text{ m/s}$, der Quotient beider Geschwindigkeiten ist ca. 250; multipliziert man die gemessenen $0,6 \text{ Bq/m}^3$ damit, erhält man einen Radonkonzentration von ca. 150 Bq/m^3 . Konzentrationen um ca. 100 Bq/m^3 werden in Halle C regelmäßig gemessen, die schnelle Abschätzung ist also bis auf einen Faktor 2 korrekt. Deshalb wurde zum Zeitpunkt 2 der große Ausgang geschlossen, der Gasfluss wieder reduziert und zunächst nur eine kleine Menge Gas durch den Detektor geleitet. Über Nacht konnte der Detektor freigespült werden, so dass zum Zeitpunkt 3 Konzentrationen der Größenordnung $0,1 \text{ mBq/m}^3$ (entsprechend der Spezifikation) gemessen wurden.

Abbildung 5.5: Bestimmung des Radongehalts im angefeuchteten Spülgas, wie es vom Gasmodul der Filling Station angeliefert wird. Daten der Messreihe mit dem neuen Modul.



Der Gasfluss wurde nun so eingestellt, dass keine Kontamination zu erwarten war, dann wurde das Befeuchtungsmodul (das Teflon-Membransystem) in den Gasstrom geschaltet. In der Periode 4 wurden die einzelnen Parameter des Gasmoduls (Fluss, Feuchtigkeit, Wassertemperatur) erstmalig ausgetestet. Messwerte unter 1 mBq/m^3 wurden angestrebt und mehrfach erreicht. Diese Tests waren jedoch nicht als Präzisionsmessung gedacht, bei der die Spezifikation erreicht oder gar unterschritten würde. Auffällig ist der rasante Anstieg (Punkt 5). Hier wurde das Messergebnis wieder durch Umgebungsluft kontaminiert, die durch eine kaputte Dichtung eindringen konnte. Nachdem dieses Problem behoben war, wurde der Detektor wieder freigespült. Das Ende der Messreihe (Punkt 6) ist wieder ein Anstieg zu verzeichnen, der allerdings als Artefakt gewertet werden muss. Leider konnte der Kondensator vor dem Detektor nicht alle Feuchtigkeit aus dem Gas zurückhalten, so dass Feuchtigkeit auch in die Kammer des Detektors gelangte und dort als Quencher die Sammeleffizienz massiv beeinträchtigte. Die Messreihe wurde deshalb an dieser Stelle abgebrochen und der Detektor zunächst mit trockenem HPN₂ gespült.

Auch wenn beide Messreihen aus unterschiedlichen Gründen frühzeitig abgebrochen wurden, zeigen sie doch mit hinreichender Deutlichkeit, dass das Gasmodul der Fillingstation und der Gasbefeuchtungsprozess die Spezifikationen in Bezug auf ²²²Rn erreichen werden. Als wesentlich kritischer erwies sich aus der zweiten Messreihe die Diffusion von Luft-Radon gegen den Gasstrom. Eine ungeschickte Topologie der Gasleitungen, vor allem auch beim Aufblasen und anschließenden Durchspülen des Vessel, kann zu schweren Kontaminationen führen, die sämtliche vorherigen Bemühungen zur Einhaltung der Spezifikationen zunichte machen.

Weiterhin konnte sehr schön demonstriert werden, dass die elektrostatische Kammer ein geeigneter Detektor ist, um das Aufblasen und Gasspülen des Nylonballons zu überwachen (vergl. Abschnitt 6.4 auf Seite 86). Insbesondere zeigen die Daten, dass mit der Kammer die *Veränderung* der Radonkonzentration im Probengas in sehr kurzer Zeit und dynamisch über mehrere Größenordnungen hinweg beobachtet werden kann.

5.7 CTF: Radon im Gaspolster

Radon und dessen Tochternuklide stellen auch in der COUNTING TEST FACILITY (siehe Abschnitt 2.3.3 auf Seite 20) eine wesentliche Untergrundquelle dar. Es emaniert aus den Detektormaterialien (Tank, Permatex, Wasser, Nylonvessel) oder wird durch Manöver (Umfüllen und Wasserzirkulation, neue Szintillatorproben, Reinigungstests etc.) direkt in den Detektor eingebracht.

Bei BOREXINO befindet sich auf beiden Seiten des Nylonvessel PC, das Vessel dient dazu, das Target-PC vom Buffer-PC zu separieren, PC und Wasser werden durch die Stahlkugel getrennt. Die Architektur der CTF ist an dieser Stelle nicht vergleichbar mit BOREXINO: hier ist das *Inner Vessel* nicht nur der „Behälter“ für den Szintillator, sondern gleichzeitig Grenzschicht zwischen Szintillator und Abschirmwasser. Kritisch ist zu betrachten, dass die Diffusion von Radon durch Nylon stark mit der Feuchtigkeit des Nylonfilms variiert (zu den entsprechenden Untersuchungen des Diffusionskoeffizienten sei auf [Woj00, Zuz02a, Zuz02b] verwiesen). Es ist also davon auszugehen, dass auch das zusätzliche Nylonvessel, das die Abschirmung noch einmal unterteilt, keine wirkliche Radonsperre darstellt, wohl aber die konvektiven Umschichtungen im Abschirmwasser vom Inner Vessel abhalten kann.

Deshalb muß dafür gesorgt werden, dass der Radongehalt im Abschirmwasser der CTF dauerhaft niedrig ist. Untersuchungen zu ^{226}Ra und ^{222}Rn im Wasser sind in [Sim00, Sim03a] beschrieben. Aus ihnen geht hervor, dass der Gehalt an ^{226}Ra im Wasser, das von der Wasseranlage gereinigt wird, bei ca. $1\text{--}3\text{ mBq/m}^3$ liegt. Der Gehalt an Radon hingegen schwankt abhängig von den operationellen Bedingungen der Anlage (Wasserfluss, N_2 -Fluss beim Sparging), um mehrerer Größenordnungen zwischen einigen mBq/m^3 bis zu Bq/m^3 . Proben des Wassers aus der CTF ergaben einen Radongehalt von mindestens 5 mBq/m^3 , mit stark ansteigenden Konzentrationen in Wandnähe.

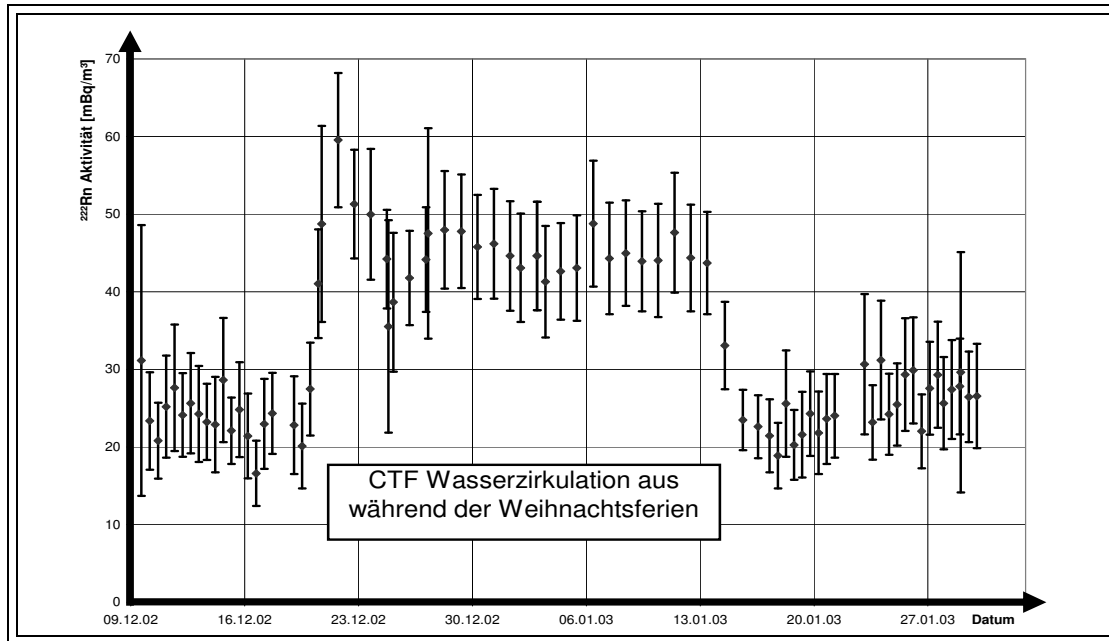
Neben der eigentlichen CTF-Datenauswertung und den in [Sim00, Sim03a] beschriebenen Wasserproben bestand die Möglichkeit, eine zusätzliche Überwachung des Radongehalts im Gaspolster (*Blanket*) über dem Wasser durchzuführen. Das Blanket wird mit einigen m^3/h Stickstoff (Standardqualität) durchspült⁵. Am Ausgang des Blankets kann ein Radonmonitor angeschlossen werden. Hierfür wird, wenn keine anderen Messungen anliegen, die elektrostatische Kammer (siehe auch Abschnitt 4.4) benutzt, die hinreichend sensitiv ist und die kontinuierlich und ohne aufwendige Betreuung arbeitet. Im Regelfall schwanken die Messdaten um einen Mittelwert von ca. $20\text{--}30\text{ mBq/m}^3$.

Ein besonders auffälliger Verlauf konnte in der Periode Dezember 2002 bis Januar 2003 beobachtet werden, während der wegen der Weihnachtsfeiertage die Wasserzirkulation der CTF abgeschaltet wurde (Siehe Abb. 5.6). Zur Interpretation dieser Messwerte reicht bereits ein einfaches Modell mit einige wenige Annahmen. Betrachten wir die CTF als Tank, der mit zwei Phasen (Wasser, N_2) gefüllt ist und in dem Radon durch Emanation entsteht und durch Experimentierhandlungen bewegt, also ein- oder ausgetragen oder zirkuliert wird. Die CTF wird vereinfacht beschrieben als Zylinder mit $5,5\text{ m}$ Radius und 10 m Höhe. Daraus ergibt sich eine Gesamtoberfläche von 536 m^2 und ein Gesamtvolumen von 950 m^3 . Weiterhin ist beim Inner Vessel $r_{IV} = 1,05\text{ m}$ und $V_{IV} = 4,85\text{ m}^3$. Das Blanket hat eine Höhe von 10 cm , also $V_B = 9,5\text{ m}^3$, verbleibt $V_{\text{Wasser}} = 936\text{ m}^3$.

Die gesamte Radonproduktion in der CTF setzt sich aus verschiedenen Komponenten zusammen. Die Wandbeschichtung aus *Permatex* liefert durch Emanation etwa $(25 \pm 5)\text{ mBq/m}^2$ ([Rau99]), was zu einer totalen Aktivität von ca. $13,4\text{ Bq}$ führt. Weiterhin wird für das Wasser (ca. 950 m^3) ein

⁵Erst im März 2003 wurde am Ausgang ein Flussmesser installiert, vorher gab es keine quantitative Überwachung. Das Blanket hat je nach Wasserhöhe ca. 15 m^3 Volumen. Bei ein Gasfluss von $5\text{ m}^3/\text{h}$ ist die Gasaustauschrate $\kappa \approx 8\text{ d}^{-1}$ dominant gegenüber der Zerfallskonstante $\lambda(^{222}\text{Rn}) \approx 0,181\text{ d}^{-1}$.

Abbildung 5.6: Überwachung des Radongehalts vom Spülgas des CTF Blanket. Dargestellt ist die Periode Dezember 2002 bis Januar 2003, während der wegen der Weihnachtsfeiertage der Wasserzirkulation der CTF abgeschaltet wurde. Das wurde auch an der Radonkonzentration des Blanket sichtbar. Weitere Erörterungen siehe Text.



Radiumgehalt von $1,5 \text{ mBq/m}^3$ angenommen, was nach einigen Tagen Einwachszeit etwa $1,4 \text{ Bq}$ liefert. Der Beitrag der anderen Bauteile (PMT's, Kabel etc.) sowie des Stickstoff im Blanket ist dagegen vernachlässigbar.

Mit den genannten Werten lässt sich für ein statisches Szenario die gesamte Radonmenge innerhalb der CTF errechnen, nämlich ca. 15 Bq total oder unter der (naiven) Annahme einer gleichmäßigen Verteilung ca. 16 mBq/m^3 (im Blanket, im Wasser und im PC in der Vessel). Messungen im CTF-Wasser liegen etwas niedriger (s.o.), während das Blanket typischerweise höhere Konzentrationen aufweist.

Tatsächlich neigt das Radon dazu, aus dem Wasser in den Stickstoff überzugehen, ein Prozess, der allerdings nur an der Grenzschicht (Wasseroberfläche und einige wenige Diffusionslängen) stattfindet. Die Löslichkeit unterscheidet sich etwa um einen Faktor 3 zugunsten des Stickstoff⁶.

Auch wenn das Model sehr grob ist, lassen sich einige Punkte daran sehr schön zeigen. Eine Variation der Blankethöhe (z.B. zwischen 1 cm und 200 cm), gleichbedeutend mit einer Veränderung des Wasserstandes, hat nur marginale Auswirkungen auf den Radongehalt und die Verteilung innerhalb der CTF. Ein wesentlicher Einfluss auf die Gesamtmenge ist durch den Radongehalt im Wasser gegeben. Die Verteilung innerhalb des Detektors wird hingegen durch den Verteilungskoeffizient stark mit beeinflusst. Der Austausch wird unterstützt durch großräumige Umschichtungen des Wassers, also entweder Konvektion oder experimentelle Prozesse (Neuzugabe von Wasser, Umschichten des Wassers (Loop) o.ä.). Wasser aus dem Loop ist zudem mit Stickstoff gespült, der Radongehalt ist dadurch auf einen Wert der Größenordnung $0,1 \text{ mBq/m}^3$ reduziert [Sim00]. Es findet also eine effiziente Verdünnung des Radongehalts im Wasser statt.

⁶Wird z.B. in einer Spülsäule eine endliche Menge Wasser mit unendlich viel Stickstoff durchspült, wird das Verhältnis der Radonkonzentration im Grenzfall langer Zeit $[C]_{N_2}/[C]_{H_2O} \approx 4$. In der Realität (die CTF ist keine ideale Spülsäule) ist es sicherlich sinnvoll, hier einen kleineren *effektiven* Verteilungskoeffizienten, z.B. 3 anzunehmen.

Zur zeitlichen Entwicklung der Veränderungen der Rn-Konzentration lässt sich mit diesen simplen Annahmen zunächst nichts aussagen. Verschiedene Prozesse überlagern sich, etwa das Einwachsen von Rn durch Ra im Wasser (dominiert durch die Halbwertszeit $T_{1/2} = 3,8235 d$). Verdünnen des Radongehalts durch „sauberes“ Wasser aus der Zirkulation bedeutet mit einem Fluss von ca. $2 m^3/h \approx 50 m^3/d$ einen Volumenaustausch von ca. 5 % täglich. Nicht zu unterschätzen ist die Durchmischung des Wassers durch Konvektion. Geschwindigkeiten von $1 mm/sec$ wurden gemessen (C. Salvo 2003), das sind umgerechnet $84,6 m/d$, also etwa der achtfachen Tankhöhe. Es kommt also die gesamte Wassermenge ausgiebig mit dem Blanket in Berührung (bei stillstehendem Wasser würde nur das Radon aus der Grenzschicht in das Blanket hineindifundieren; die Diffusionslänge ist $2,58 cm$ [Hac79]). Die Kombination der Effekte legt nahe, dass Veränderungen in weniger als einem Tag im Blanket messbar werden, was durch die Beobachtung bestätigt wird.

Das Radon im Blanket hat sicherlich keinen direkten Einfluss auf das Messsignal der CTF, da der Abstand groß genug ist und das Gas sehr schnell ausgetauscht wird. Wichtiger ist vielmehr der umgekehrte Schluss, dass sich eine wie auch immer herbeigeführte Erhöhung des Radongehalts in relativ kurzer Zeit auch in der Konzentration im Blanket zeigt. Der Radonmonitor ist hierfür ein brauchbares Überwachungsgerät.

Kapitel 6

Synthetische Luft für die Inner Vessel

Technische und organisatorische Gründe führten dazu, dass der Einbau des Inner Vessel und der Einbau der Photomultiplier zeitlich miteinander verknüpft wurden. Zunächst werden am oberen Ende der Stainless Steel Sphere beginnend ca. 90 % der Photomultiplier montiert. Danach wird das System des doppelten Nylonballons eingebaut und aufgeblasen („Inflation“), Lecktests vorgenommen und erst abschließend die unteren Ringe an Photomultipliern (insgesamt 154) montiert. Anschließend wird die Stahlsphäre verschlossen und Inner Vessel (IV), Inner Buffer (IB) und Outer Buffer (OB) mit Stickstoff durchspült. Das Gas, mit dem die Nylonballons aufgeblasen und gespült werden, soll eine möglichst geringe Konzentration an Radon haben, um Ablagerungen der Zerfallsprodukte im oder auf dem Nylon zu reduzieren. Dazu wäre am besten der hochreine Stickstoff (HPN₂) geeignet. Da nach dem Aufblasen der IV aber noch weitere Arbeiten innerhalb der Stahlsphäre vorgenommen werden, muss aus Sicherheitsgründen gewährleistet sein, dass bei einem Riss des Vessel Personen, die zu diesem Zeitpunkt in der Stahlsphäre arbeiten, nicht ersticken. Individuelle Atemschutzsysteme (Maske mit Pressluftflaschen), die nur prophylaktisch, dafür aber während der gesamten Einsatzzeit getragen werden müssten, wurden als ungeeignet angesehen, insbesondere unter den sowieso schon erschwerten Bedingungen innerhalb der Stahlsphäre (gekrümmter Boden, beengt durch die empfindlichen PMT's, Reinraum). Als Alternative wurde entschieden, das Vessel mit atembarem Gas aufzublasen und zu spülen, bis die Arbeiten abgeschlossen sind. Das Gas muss also eine Sauerstoffkonzentration von 18–23 % aufweisen.

6.1 Atembares Gas aus Sicherheitsgründen

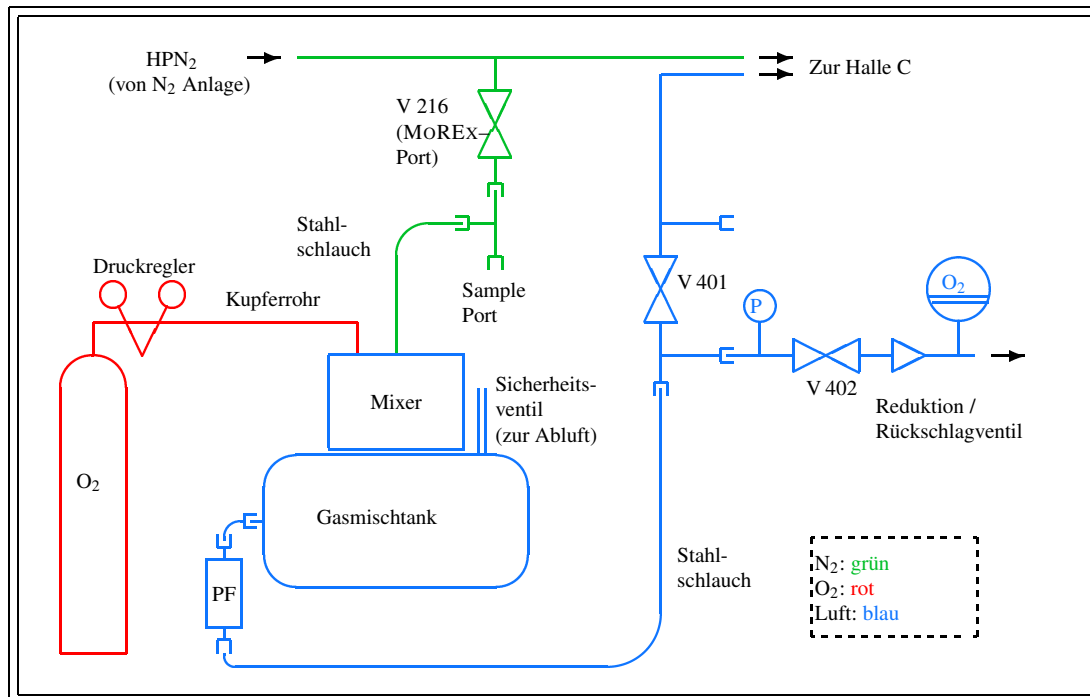
Die Bereitstellung atembarer Luft kann auf verschiedenen Wegen erfolgen, allerdings muss das Kriterium der Radonkonzentration mit berücksichtigt werden, so dass an dieser Stelle Logistik, Reinigungsprozeduren und Sicherheitsaspekte gemeinsam beachtet werden müssen.

Die Reinigung von Luft (z.B. Umgebungsluft oder Pressluft) durch Kryoadsorption, analog zu dem beim Stickstoff verfolgten Ansatz mit den Tieftemperaturadsorbentien, führt unweigerlich dazu, dass Sauerstoff in der Reinigungsanlage kondensiert. Drei Konsequenzen ergeben sich daraus: 1) flüssiger Sauerstoff erhöht die Explosions- und Brandgefahr und sollte deshalb vermieden werden; 2) größere Mengen flüssigen Sauerstoffs in einer Reinigungssäule bergen die Gefahr, dass die Aktivkohle durch Oxidation irreversibel degeneriert und 3) die Kondensation des Sauerstoffs in einer Adsorbentensäule kann zu einer Veränderung der Gaszusammensetzung führen, so dass das angestrebte Kriterium „atembar“ möglicherweise nicht mehr erfüllt ist. Deshalb sollte diese Lösung vermieden werden.

Alternativ ist die Bereitstellung von Atemluft in Gasflaschen denkbar. Mit 4 Flaschengebinden (4×16 Flaschen zu je $0,05 \text{ m}^3 \times 200 \text{ bar} = 640 \text{ m}^3$) könnten IV und IB aufgeblasen werden. Diese Lösung wurde jedoch verworfen, da Druckgasflaschen erfahrungsgemäß eine nennenswerte Emanation aufweisen (siehe [Fre98, Rau99]) und die Messergebnisse im folgendenden Abschnitt 6.2) und somit die Rn-Konzentration im Spülgas abhängig vom Gasfluss nicht immer auf gleichmäßig niedrigem Niveau gehalten werden kann.

Letztlich bot sich an, ein kommerzielles Gasmischsystem einzusetzen, in dem HPN₂ aus der Stickstoffversorgung mit Sauerstoff aus einem Druckgasflaschengebinde vermischt wird. Das Mischgerät (WITT MG 50 – 2 ME) wird im Jahr 2003 in die Stickstoffanlagen integriert (vergl. auch Abb. 2.8 auf Seite 24); die Details der Einbindung sind in Abb. 6.1 dargestellt. Die Versorgung der Halle C mit synthetischer Luft erfolgt durch eine separate Gasleitung, die zusammen mit den Versorgungsleitungen für SPN₂ und HPN₂ installiert worden war. Der Gasdruck, der zum Aufblasen des Vessel nötig wird, beträgt 5 bar bei einem angestrebten maximalen Gasfluss von $40 \text{ m}^3/\text{h}$ (STP).

Abbildung 6.1: Anschluss des Gasmischsystems an die Stickstoffanlage zur Bereitstellung atembare synthetischer Luft mit niedriger Radonkonzentration.



6.2 Emanationsmessungen der Komponenten der Luftversorgung

Da keine weiteren Reinigungsschritte erfolgen, wird das in den Sauerstoffflaschen und in der Luftmischanlage durch Emanation auftretende Radon komplett zum Detektor weitergeleitet werden, wo die Tochternuklide akkumulieren. Deshalb war mit Emanationsmessungen zu überprüfen, ob die bereitgestellten Geräte den Anforderungen genügen.

Das erste Flaschengebinde (Matrikel-Nr. 282/16) wurde speziell für die Emanationsmessung mit Helium gefüllt. Zwei Messungen, die beide mit MOREX durchgeführt wurden, lieferten konsistente Ergebnisse (Sample 285: $A_{sat} = (27 \pm 1) \text{ mBq}$, Sample 290: $A_{sat} = (24 \pm 1) \text{ mBq}$).

Das zweite Flaschengebinde (Matrikel-Nr. A.047.16) wurde ebenfalls untersucht, wobei im Messprozess einige Schwierigkeiten auftraten. Auch dieses Gebinde war für die Messung speziell mit Helium gefüllt worden und hatte mehrere Wochen gestanden, so dass die Sättigung erreicht war. Für die erste Probe (Sample 326: $A_{sat} = (5,8 \pm 0,5) \text{ mBq}$) wurde etwa die Hälfte der Gasfüllung mit MOREX gesammelt. Die zweite Probe ging beim Zählrohrfüllen wegen eines Lecks im Dreiwegehahn über der Toepler-Pumpe verloren. Da die Flaschen anschließend nur noch etwa 5 bar Fülldruck hatten, wurde ein dritte Probe (Sample 353) mit einer kleinen Adsorberfalle (vergl. Abschnitt 4.1, in dieser Messung: RT V) genommen, wobei jetzt die Kohlefalle ein Leck hatte. Schlussendlich wurde für die vierte Probe eine andere Kohlefalle (RT I) an den Seiteneingang von MOREX angeschlossen und über eine Kupferleitung mit dem Flaschengebinde verbunden. Gereinigtes Helium wurde durch die gekühlte Falle und die Kupferleitung in das Gebinde gedrückt (bis zu einem Druck von 5,2 bar) und anschließend wieder herausgepumpt (bis knapp über Atmosphärendruck), so dass etwa 80 % des enthaltenen Radons in der Falle gesammelt werden konnten. Unter den gegebenen Umständen konnte so in akzeptabler Weise gezeigt werden, dass auch dieses Gebinde eine ausreichend niedrige Emanation hat (Sample 357: $A_{sat} = (14,9 \pm 2,2) \text{ mBq}$).

Das emantierte Radon aus diesen Flaschen wird vollständig in das Gasgemisch eingehen. Der Füllstand der Flaschen sowie der benötigte Gasfluss entscheiden über die daraus resultierende Konzentration. Wenn die Flaschen fast leer sind (z.B. 10 bar Fülldruck, entspricht $8 \text{ m}^3 \text{ STP}$) und wegen längerer Lagerzeit die Radonkonzentration in Sättigung ist ($A_{sat} \approx 25 \text{ mBq}$), ergibt das in der synthetischen Luft (20 % O_2) eine Konzentration von ca. $0,6 \text{ mBq/m}^3$. Das ist etwa eine halbe Größenordnung über der Spezifikation. Es ist deshalb streng darauf zu achten, dass die Flaschen schneller entleert werden als das Radon nachwächst, oder andernfalls der Fülldruck nicht zu weit absinkt, um die Konzentration möglichst gering zu halten.

Weiterhin wurde der zum Mischsystem gehörige Puffertank (100 ℓ) gemessen (Sample 315: $(4,28 \pm 0,23) \text{ mBq}$; Sample 318: $(2,05 \pm 0,16) \text{ mBq}$; Sample 322: $(2,48 \pm 0,36) \text{ mBq}$). Der Beitrag dieser Emanation auf die Rn-Konzentration in der synthetischen Luft hängt natürlich stark vom Gasfluss ab. Während der Inflation ($\Phi \geq 10 \text{ m}^3/\text{h}$) wird er sicher vernachlässigbar sein, zumal man den Tank vor Beginn der Aktivitäten mehrfach durchspülen kann.

Kritischer ist die Emanation bei lang anhaltendem Spülen mit niedrigem Gasfluss. Eine quantitative Abschätzung ist mittels Gleichung A.26 (Seite 10 im Anhang) leicht möglich. Es sei hier exemplarisch angenommen, dass die Gesamtaktivität im Mixer anfänglich mit der Sättigungsaktivität (3 mBq) im Gleichgewicht sei, und dann, z.B. zu Beginn eines Arbeitstages, mit einem Gasverbrauch von $0,1 \text{ m}^3/\text{h}$ gearbeitet wird. Erst nach 6 Stunden ist die relative Aktivität auf ca. $0,4 \text{ mBq/m}^3$ gesunken und nimmt kurz darauf einen konstanten Wert von ca. $0,33 \text{ mBq/m}^3$ an. Um die Spezifikationen zu erfüllen, muss deshalb mit einem Gasfluss von mindestens $0,5 \text{ m}^3/\text{h}$ gearbeitet werden. Eine regelmäßige Überwachung des Radongehalts in der synthetischen Luft ist jedenfalls zwingend erforderlich. Erste Messungen des Radongehalts in der synthetische Luft sollen unmittelbar nach Installation vorgenommen werden (siehe Abschnitt 6.4).

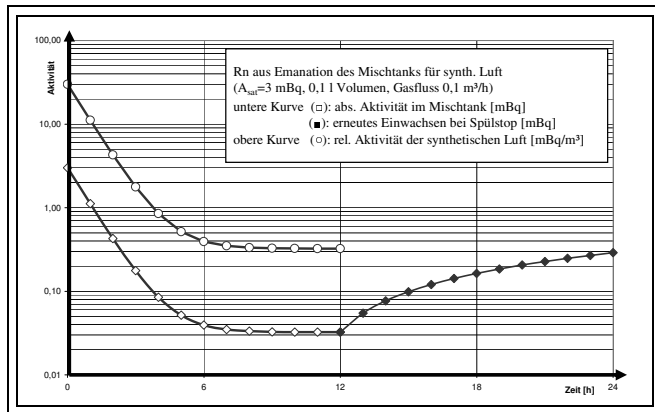


Abbildung 6.2: Radon im Mischtank der Luftanlage, beginnend bei Sättigungsaktivität, mit einem Gasverbrauch von $0,1 \text{ m}^3/\text{h}$: die untere Kurve (◻) zeigt die Gesamtmenge an ^{222}Rn im Tank (in mBq) während der Entnahme bzw. nach Entnahmestop, die obere Kurve (○) die Konzentration in der Luft (in mBq/m^3).

6.3 Abschätzung des Untergrundes durch ^{210}Pb aus dem ^{222}Rn des Spülgases

Die Nylonfolie des Inner Vessel und des Outer Vessel wurden unter Reinraumbedingungen produziert, verarbeitet und verpackt ([Poc99]) sowie unter Schutzgas transportiert. Beim Einbau in die SSS wäre die Nylonfolie erstmals wieder und für längere Zeit schutzlos der Umgebungsluft ausgesetzt; ^{222}Rn kann in das Nylon hinein diffundieren und dort zerfallen, so dass die Tochternuklide im Nylon akkumulieren. Diese Einlagerung ist einer nachträglichen Reinigung nicht mehr zugänglich, sie ist also ein konstanter Untergrund, der insbesondere die Größe des Fiducial Volumes nennenswert beeinflussen kann.

Ebenfalls ist zu erwarten, dass sich die Radontöchter auf der Oberfläche des Nylon ablagern, von wo sie später durch den Szintillator wieder abgelöst werden könnten. Um diese Kontamination zu minimieren, sollte die Radonexposition des Inner Vessel möglichst gering gehalten werden. Die diesbezüglichen Konsequenzen der Inflation mit synthetischer Luft und des nachfolgenden Gasspülens werden im folgenden abgeschätzt.

Im Idealfall geschieht das Aufblasen der beiden Vessel mit dem maximal möglichen Fluss von $40 \text{ m}^3/\text{h}$ in kürzester Zeit, also in etwas mehr als 15 Stunden¹. Nach der Montage und der Inflation werden an beiden Vessels Lecktests vorgenommen (ca. 1 Woche), dann die letzten 154 PMT's eingebaut (ca. 3–4 Wochen), zusammen wird hierfür ein Zeitraum von 50 Tagen angenommen, in dem die Vessel mit deutlich reduziertem Fluss von etwa $10 \text{ m}^3/\text{d}$ gespült und dadurch vor allem auch der Druck reguliert wird. Weiterhin sei der Einfachheit halber eine homogene Durchmischung des Gases angenommen.

Der Radongehalt des Spülgases (inkl. 1% SF_6 für Lecktests) entsprechend SPN₂-Qualität mit $a_{\text{SA}} = 0,1 \text{ mBq}/\text{m}^3$. Die Dimensionen (Radius R , Volumen V und Oberfläche O) der Vessel sind $R_{\text{OV}} = 5,25 \text{ m}$, $V_{\text{OV}} = 606,2 \text{ m}^3$, $O_{\text{OV}} = 346 \text{ m}^2$, $R_{\text{IV}} = 4,25 \text{ m}$, $V_{\text{IV}} = 321,6 \text{ m}^3$, $O_{\text{IV}} = 227 \text{ m}^2$ und $V_{\text{IB}} = 284,6 \text{ m}^3$.

¹Diese Annahme ist in der Relität zwar nicht einzuhalten, weil das Vesselsystem nicht nur aufgeblasen wird, sondern gleichzeitig noch verschieden Gerüste und Haltevorrichtungen abgebaut werden müssen. Diese Tatsache beeinflusst aber die nachfolgende Abschätzung nicht.

Somit folgt für die Gesamtmenge an ^{222}Rn (ausgedrückt als Aktivität), die durch das Füllen und Spülen in die Vessel eingetragen wird:

$$(a_{SA} \cdot V)_{\text{Füllen}} + (a_{SA} \cdot \Phi \cdot t)_{\text{Spülen}} \quad (6.1)$$

$$= (0,1 \text{ mBq/m}^3 \times 321 \text{ m}^3) + (0,1 \text{ mBq/m}^3 \times 10 \text{ m}^3/d \times 50d) \quad (6.2)$$

$$\approx (32 + 50) \text{ mBq} = 82 \text{ mBq} \quad (6.3)$$

Analog folgt für den Bereich des Inner Buffer, also zwischen IV und OV $(28 + 50) \text{ mBq} = 78 \text{ mBq}$.

Die tägliche Volumenaustauschrate ist $10 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1} / 606 \text{ m}^3 = 0,0165$, also etwa 1,6 %. Das gesamte Volumen wird einmal $61d \approx 16 \times T_{1/2}$ nachgefüllt. Eingebrachenes Radon wird also vollständig innerhalb der Vessel zerfallen und die Tochternuklide (^{210}Pb) auf der Nylonoberfläche hinterlassen. Im Bereich des Inner Buffer betrifft dies sowohl die innere Oberfläche des Outer Vessel als auch die äußere Oberfläche des Inner Vessel, die 40 % der zur Verfügung stehenden Oberfläche darstellt.

$$A_{Pb}(IV) = \frac{\lambda_{Pb}}{\lambda_{Rn}} \cdot A_{Rn} = \frac{3,8235 d}{22,3 a} \cdot 82 \text{ mBq} = 38,5 \mu\text{Bq} \quad (6.4)$$

$$A_{Pb}(IB) = \frac{\lambda_{Pb}}{\lambda_{Rn}} \cdot A_{Rn} \cdot \frac{O(IV)}{O(IV + OV)} = \frac{3,8235 d}{22,3 a} \cdot 78 \text{ mBq} \cdot 40\% \quad (6.5)$$

$$= 14,5 \mu\text{Bq} \quad (6.6)$$

Das Inner Vessel erfährt also durch die Inflation und das Spülen mit synthetischer Luft insgesamt eine Bleikontamination von $53 \mu\text{Bq}$ bzw. umgerechnet $4,6 \text{ cpd}$.

Da die Nylonblase kein starres Gebilde ist, reagiert sie natürlich in gewissem Umfang auf Schwankungen des äußeren Luftdrucks, die vor allem auch in der Höhenlage des Gran Sasso spontan auftreten können. Druckschwankungen von $\Delta p = 20 \text{ mbar}$ führen zu Expansion oder Kontraktion der Gasvolumina in der Größe von 2 %, verbunden mit einer messbaren Verformung des Vessel und damit einer messbaren Veränderung der mechanischen Kräfte. Das System der doppelten Nylonblasen kann diesen Kräften aber nur bedingt nachgeben, deshalb muss der Innendruck der drei Volumina regelmässig überwacht und bei Bedarf zu jedem Zeitpunkt der Inflation, des Spülens oder des Füllens mit hinreichender Präzision nachgeregelt werden. Dies erfolgt durch eine vermehrte Zugabe von synthetischer Luft. In Gl. 6.1 kommt dies zum Ausdruck durch ein verändertes Φ . Da die Volumenaustauschrate klein ist (ca. Faktor 10) verglichen mit der Zerfallskonstante von Radon, bleiben alle Zerfallsprodukte innerhalb der Vessel, man kann also nicht davon ausgehen, dass sich positive und negative Druckveränderungen kompensieren. Folglich vergrößert sich insgesamt das Gewicht des rechten Klammersausdruck der Gleichung 6.2.

Die dargelegte Abschätzung liefert hauptsächlich die Größenordnung, und keine präzise Vorhersage. Das erscheint auch dieser Stelle nicht weiter nötig: bei einer angestrebten Ortsauflösung $\leq 30 \text{ cm}$ und einem Abstand des Fiducial Volume zum Vessel von etwa $1,25 \text{ m}$ wird die Unterdrückung der Untergrundeignisse etwa 99,7 % betragen (D. Franco, 2003).

Im nächsten Schritt nach der Inflation wird der Detektor mit Wasser gefüllt, wobei das Wasser einen Radiumgehalt von $A(^{226}\text{Ra}) \approx 1 \text{ mBq/m}^3$ hat. Abschätzungen (G. Zuzel 2002) haben ergeben, dass die Ablagerung des Radiums aus dem Wasser auf die Folie bei BOREXINO wahrscheinlich einen Untergund von ca. 3 cpd (im FV) verursachen. Somit stellt die Gasfüllung eine deutlich geringere Kontaminationsquelle dar, als die nachfolgend ohnehin stattfindenden Prozesse.

6.4 Radonnachweis in der synthetischen Luft

Die Messung von Rn-Kontaminationen in Luft ist im Prinzip mit gaschromatographischen Methoden (Adsorption auf Aktivkohle) möglich. Da Luft im Wesentlichen aus N_2 , O_2 und Ar besteht und sich diese Gase bei Chromatographie mit Aktivkohle ziemlich ähnlich verhalten (vergl. Abschnitt 3.4), sollte man davon ausgehen können, dass die Adsorption von Radon aus Luft ziemlich gleich der aus Stickstoff ist. Wegen der Aktivität von etwa $0,1 \text{ mBq}/m^3$ sollten Proben von 10–20 m^3 vollkommen ausreichen, um ein nennenswertes Signal zu erlangen. Das wäre im Prinzip problemlos mit einer der bestehenden Analysegeräte (MOREX oder MOREXINO) zu bewältigen, selbst mit einer einfachen Aktivkohlefaller („RT“) könnte man eine solche Probe nehmen (vergl. Abschnitt 4.1).

Es ist aber aus früheren Messungen von Gasproben bekannt, dass auch ein nennenswerter Teil des Gases selbst von der Kohle adsorbiert wird, sich dort möglicherweise sogar kleine Mengen verflüssigen. Im Falle von Stickstoff ist dies unkritisch, man hat lediglich die Druckentwicklung innerhalb der Falle zu beachten. Die Probleme, die sich bei Anwesenheit von Sauerstoff ergeben, sind bereits zu Beginn dieses Kapitels (Seite 81) erläutert worden und gelten hier ebenfalls. Deshalb sind alternative Nachweistechiken zu bevorzugen. Da der Radongehalt zudem auch langfristig (über mehrere Tage) überwacht werden soll, ist die elektrostatische Kammer (siehe Abschnitt 4.4) ein geeigneter Monitor. Die Kammer ist oben auf der CTF aufgebaut, die Probennahme erfolgt z.B. an der Gasleitung direkt am Übergabepunkt, dem Anschluss südlich des Module Zero. Die Verbindung dahin kann mit einer einfachen Kupferleitung erfolgen. Ebenfalls bietet das Gasmodul der Filling Station einen Ausgang, an dem die Leitung angeschlossen werden kann (vergl. Abschnitt 5.6). Damit kann während des gesamten Vorgangs der Inflation und der anschließenden Spülzeit der Radongehalt der synthetischen Luft überwacht werden.

6.5 Argon- und Krypton-Gehalt in der synthetischen Luft

Mit wenigen kurzen Überlegungen kann gezeigt werden, dass in der synthetischen Luft enthaltenes ^{39}Ar und ^{85}Kr keinen Einfluss auf den späteren Detektorbetrieb hat. Von zentraler Bedeutung in dieser Argumentation ist, dass es bei beiden Nukliden keine radioaktiven Töchter gibt, die eine langfristige Kontamination darstellen könnten. Damit verbleiben also nur noch die Spuren von Ar und Kr selbst, die während der einzelnen Phasen bis zur Inbetriebnahme des Detektors auftreten und in den Detektor gelangen. Es darf von jeder Phase also nur soviel übrig bleiben, dass es gegenüber dem Eintrag in der nächsten Phase vernachlässigbar ist. Diese Phasen sind:

- a) Installation der Vessel in der SSS: in allen Bereichen befindet sich noch die lediglich staubfreie Luft der SSS, Argon und Krypton sind in allen Bereichen mit der Umgebungsluft der Halle C im Gleichgewicht.
- b) Inflation mit synthetischer Luft (78 % N_2 , 21 % O_2 , 1 % SF_6): während der Inflation kommen nur die Beiträge aus dem Stickstoff und aus dem Sauerstoff in die inneren Vesselbereiche (IV und IB).
- c) Lecktests, PMT-Montage: auch in dieser sicherlich über Wochen andauernden Phase ist die SSS noch offen zur Aussenluft, wegen der großen Diffusionslänge der Edelgase in feuchtem Nylon wird sich in kurzer Zeit ($\leq 1 d$) in allen Gasbereichen wieder ein Gleichgewicht mit der Umgebungsluft einstellen.

- d) Ausspülen der 3 Bereiche IV, IB und OB mit HPN₂: nach dem Abschluss der Tests und Arbeiten müssen alle 3 Gasbereiche (IV, IB und OB) mit HPN₂ ausgespült werden, um O₂ und SF₆ auszutreiben (siehe Abschnitt 6.6). In dieser Phase wird sich die Konzentration der Edelgase der im HPN₂ anpassen. Ar und Kr, das in das Nylon hineindiffundiert ist, kann dieses jetzt verlassen, wenn die Konzentration ausserhalb unter einen Gleichgewichtswert sinkt.
- e) Wasserfüllen des Detektors: das Wasser wurde in der Wasserversorgungsanlage und ev. noch zusätzlich in den Skids mit HPN₂ gestrippt, es wird von unten in den Detektor eingefüllt, während durch die Head Tanks der Gasdruck geregelt wird. Wegen der Feuchtigkeit (jetzt natürlich 100 %) wird sich die Diffusionslänge der Edelgase im Nylon noch einmal erhöhen, so dass die Nylonblasen noch durchlässiger werden. Insgesamt wird sich unter Berücksichtigung der Löslichkeit in allen drei Bereichen eine Gleichgewichtskonzentration mit dem Stickstoff einstellen.
- f) PC-Füllen: das Wasser wird nach unten abgelassen, gleichzeitig wird von oben durch die Head Tanks PC in den Detektor eingefüllt (volumetrischer Austausch). Die Füllprozedur wird mehrere Monate in Anspruch nehmen. Wegen des Gasspülens in den Skids und wegen der Gaspolster in den Head Tanks der Filling Station ist wiederum Gleichgewichtsbedingung mit dem Stickstoff zu erwarten.
- g) Reinigungszyklen: Während der langen Kontaktzeit beim Füllen des Szintillators hat sich Wasser im Szintillator gelöst. Diese Feuchtigkeit muss aus dem Szintillator wieder entfernt werden, da sie Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften des Nylons und auf die optischen Eigenschaften des Szintillators hat. Die Reinigung erfolgt durch Destillation, vor allem aber durch Stickstoffspülen. Wiederum wird sich also ein Gleichgewicht mit dem Stickstoff entsprechend den Löslichkeiten ausbilden. Um die Reinigung zu optimieren, wird die Stickstoffsäule der Skids modifiziert, so dass zukünftig *Low-Pressure-Steam-Stripping* möglich ist. Die Zugabe von Dampf zum Stickstoff bei gleichzeitigem Unterdruck am Kopf der Säule soll die Reinigungseffizienz signifikant verbessern.

Da während der Haupteinsatzphase der synthetischen Luft gleichzeitig die SSS „offen“ zur Umgebungsluft ist, und anschließend mehrfach Gleichgewichtsbedingungen mit dem Stickstoff eintreten werden, ist klar, dass die Konzentration von Ar und Kr und damit der Gehalt an ³⁹Ar und ⁸⁵Kr in der synthetischen Luft keine Rolle spielt. Letztenendes wird ausschließlich die Konzentration der Nuklide im HPN₂ von Bedeutung sein.

6.6 Überwachung des Gasaustauschs in der Vessel

Den Gasaustauschprozeß (Punkt „d“ in der vorangegangenen Liste) kann man im Prinzip ähnlich betrachten wie die Spülvorgänge bei Emanationsmessungen, auch dabei gilt der Ansatz Gleichung A.26 (Seite 10 im Anhang). Wegen der deutlich längeren Halbwertszeiten des ³⁹Ar und ⁸⁵Kr dominiert allerdings die Gasaustauschrates gegenüber dem Zerfall ($\kappa > \lambda$). Radon kann in diesem Fall als Tracer benutzt werden, die Überwachung ist mit der elektrostatischen Kammer möglich.

Zusätzlich kann die Konzentration von O₂ und SF₆ im Restgas als weiterer Tracer dienen, die mit einem geeigneten Massenspektrometer (Lecktester) nachgewiesen wird.

Es ist das gesamte Volumen der Stahlkugel auszuspülen ($V = V_{SSS} = 1400\text{m}^3$), wobei die einzelnen Bereiche in Serie durchspült werden. Der Einfachheit halber sei der maximal mögliche Gasfluss ($\Phi_{max} = 40\text{m}^3/\text{h}$) angenommen.

Die Konzentrationen der einzelnen Nuklide sind

Nuklid	Anfangsaktivität [Bq/m ³]	Spülgasaktivität [μBq/m ³]	Konzentration im Spülgas
³⁹ Ar	0,01	14	10 ppm Ar/N ₂
⁸⁵ Kr	1	30	30 ppt Kr/N ₂
²²² Rn	42,8	1	–

Die Anfangsaktivitäten entsprechen den mittleren Werten der Umgebungsluft, für Ar und Kr sind sie in allen Volumina gleich angenommen, Radon ist innerhalb des Vessel bereits stark reduziert, so dass eine mittlere Aktivität von 75 Bq/m³ im Outer Buffer zu dem angegebenen Startwert führt. Die angegebenen Aktivitäten im Spülgas folgen aus Messungen des derzeit verfügbaren HPN₂ ([Zuz03])².

Der prognostizierte Verlauf der Reinigung der Stahlsphäre ist in Abb. 6.3 dargestellt. Angegeben ist die Aktivität der einzelnen Nuklide ²²²Rn, ⁸⁵Kr und ³⁹Ar in mBq/m³ bei homogener Verteilung in der SSS. Daraus läßt sich ablesen, dass die Menge an Ar, Kr, und mit ihnen O₂ und SF₆ innerhalb der SSS vor dem Wasserfüllen durch Spülen mit sauberem Gas drastisch reduziert werden kann. Als Zeitskala für diesen Prozessabschnitt sind 3–4 Wochen anzusetzen, abhängig natürlich vom Spülgasfluss. Der dominierende Faktor ist sicherlich die Kontamination des Spülgas. Sie definiert vor allem die schließlich erreichte Reinheit der Gasfüllung, hat dabei aber nur einen unwesentlichen Einfluss auf die nötige Spüldauer.

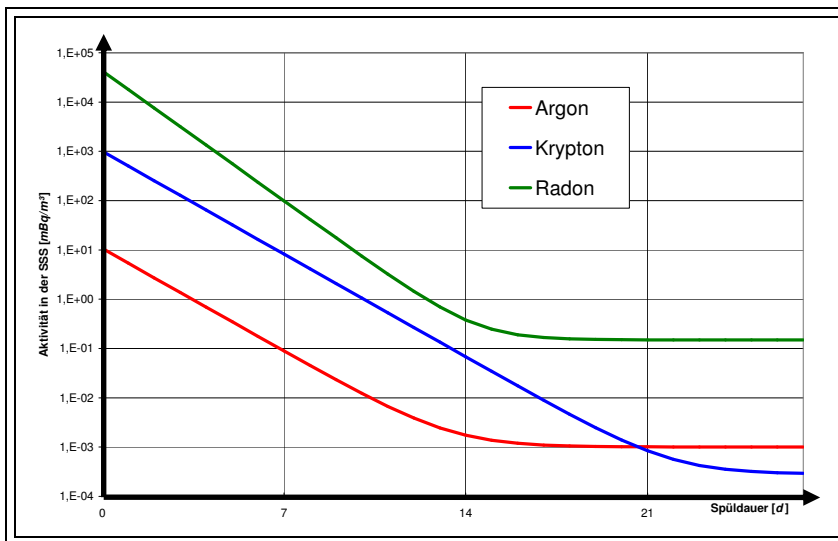


Abbildung 6.3: Trendlinie für den Gehalt an ²²²Rn, ⁸⁵Kr und ³⁹Ar in der SSS während des Spülens mit HPN₂.

²Die Umrechnung der Aktivitäten in Konzentrationen erfolgt einfach über $C[\frac{^{85}Kr}{N_2}] = C[\frac{^{85}Kr}{Kr}] \cdot C[\frac{Kr}{N_2}]$ (analog für Argon), also $1 ppm \frac{Ar}{N_2} = 10^{-6} \frac{Ar}{N_2} \cdot 1,4 Bq/m^3 \frac{^{39}Ar}{Ar} = 1,4 \mu Bq/m^3$ und $1 ppt \frac{Kr}{N_2} = 10^{-12} \frac{Kr}{N_2} \cdot 1,1 MBq/m^3 \frac{^{85}Kr}{Kr} = 1,1 \mu Bq/m^3$.

Zusammenfassung

Die Neutrinoastrophysik hat sich im ausgehenden 20. Jahrhundert zu einem sehr dynamischen Forschungszweig entwickelt, dessen Erkenntnisse von fundamentaler Bedeutung für ein tieferes Verständnis der Naturgesetze sind (siehe Kap. 1). Die Hauptaufgabe des Sonnenneutrinodetektors BOREXINO ist, die von der Sonne emittierten monoenergetischen ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos mittels elastischer $\nu_x - e^-$ -Streuung spektral und in Echtzeit zu untersuchen (siehe Kap. 2). Der Nachweis der Neutrinos kann aber nur gelingen, wenn der im Umfeld des Detektors auftretende radioaktive Untergrund drastisch reduziert wird.

Vor allem die atmosphärisch auftretenden radioaktiven Edelgasnuklide ${}^{39}\text{Ar}$, ${}^{85}\text{Kr}$ und ${}^{222}\text{Rn}$ sind deutlich sichtbarer Teil des Untergrundes. Mit den in dieser Arbeit zusammengefassten Untersuchungen wurde ein wesentlicher Beitrag in der Bekämpfung dieses Untergrundes geleistet.

${}^{39}\text{Ar}$ zerfällt als β^- -Emitter zum stabilen Tochternuklid ${}^{39}\text{K}$. Es gibt keine zerfallsspezifische Signatur, mit der dieser Untergrund bei der Datenauswertung diskriminiert werden kann. ${}^{85}\text{Kr}$ ist ebenfalls ein β^- -Strahler, beim Zerfall zum stabilen ${}^{85}\text{Rb}$ wird allerdings mit ca. 0,4 % ein angeregter Zustand bevölkert, der über γ -Emission in den Grundzustand übergeht. Diese winzige β - γ -Koinzidenz erlaubt immerhin eine nachträgliche statistische Reduktion des Untergrundes, ist aber mit großen Unsicherheiten behaftet.

In Kapitel 3 werden die Gase detailliert besprochen. In Abschnitt 3.1 und 3.2 sind die Eigenschaften verschiedener Gase zusammengefasst und ihre Rolle innerhalb des BOREXINO-Experimentes angesprochen. Im nachfolgenden Abschnitt 3.3 wird Gaschromatographie und Adsorption unter theoretischen Gesichtspunkten diskutiert und ein Modell vorgestellt, dass die Vorhersage des Henry-Koeffizienten erlaubt. Im Vergleich mit eigenen Adsorptionsmessungen kann im Abschnitt 3.4 gezeigt werden, dass dieses Modell auch auf die bei BOREXINO eingesetzten Adsorbentmaterialien anwendbar ist. Mit einem kleinen Laboraufbau konnte für die Gase O_2 , N_2 , CO_2 , Ar , Kr und Xe mit He als Trägergas und für Ar , Kr und CO_2 mit N_2 als Trägergas der Adsorptionskoeffizient im Temperaturbereich $-100^\circ\text{C} \leq T \leq 0^\circ\text{C}$ gemessen werden. Zentrales Ergebnis dieser Messungen ist, dass die Adsorptionseinheit (LTA) in der Stickstoffanlage nicht geeignet ist, den Stickstoff in hinreichendem Masse von Argon und Krypton zu befreien. Weitere umfangreiche Untersuchungen zu diesem Thema haben sich nach diesen Messungen als nötig erwiesen.

${}^{222}\text{Rn}$ ist ein α -Emitter. Dieser Zerfall ließe sich noch durch Pulsformanalyse diskriminieren und die Halbwertszeit von $3,8235\text{d}$ ist auch eher kurz. Aufgrund seiner Halbwertszeit kann es aber große Strecken zurücklegen bzw. mit den Detektorflüssigkeiten mitbewegt werden. Der Zerfall der Tochternuklide (besonders ${}^{210}\text{Pb}$ mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 22,3\text{a}$) kann an Orten stattfinden, die weit vom Herkunftsort des Radon entfernt sind. Es besteht ferner die Gefahr, dass das Radon in einzelne Materialien (speziell das Nylon des Inner Vessel) hineindiffundiert und sich dort nach dem Zerfall die metallischen Tochternuklide festsetzen und den Detektorbetrieb langfristig stören (siehe Kap. 2).

Ein umfangreicher Teil dieser Arbeit widmet sich den Messungen der Rn–Emanation aus verschiedenen Subsystemen des BOREXINO–Experiments. In Kapitel 4 werden die eingesetzten Messgeräte und Methoden vorgestellt. Die Messergebnisse finden sich in Kapitel 5.

In einer längeren Messreihe wurde die Emanation der Lagertanks 1, 2 und 4 bestimmt (Kap. 5.2). Die Emanation liegt bei einigen 10 mBq und ist damit so hoch, dass die Akkumulation der Radontöchter eine nennenswerte Größenordnung annimmt. Die Möglichkeit der technischen Nachbesserung der Geräte wurde nach Kollaborationsentscheid verworfen, deshalb sind in jedem Fall die Szintillatorreinigungsprozeduren den Umständen anzupassen. Vor allem ist die Zwischenlagerung von gereinigtem Szintillator auf sehr kurze Zeitspannen zu begrenzen.

Weitere Messungen wurden im PPO–System durchgeführt (Kap. 5.3). Die Emanation des Tanks D 330 liegt bei $(6,0 \pm 0,5)\text{ mBq}$ in Sättigung und ist für einen Tank dieser Bauart und Größe akzeptabel. Die Emanation des Hoover–Tank 2, der zur zwischenzeitlichen Lagerung der Masterlösung dient, liegt bei $(1,2 \pm 0,3)\text{ mBq}$ und stellt ebenfalls keine besondere Kontaminationsgefahr für den Szintillator dar.

Im Module Zero (Kap. 5.4) wurden die beiden EP–Tanks untersucht. Die Emanationsrate lag bei beiden bei ca. 70 mBq . Da Szintillator nur in diese Tanks gefüllt wird, um aus ihnen heraus der Reinigung zugeführt zu werden, kann die gemessene Emanationsrate jedoch als unkritisch betrachtet werden. Von besonderem Interesse waren Emanationsmessungen der beiden Silikagel–Säulen, die im Module Zero zur Szintillatorreinigung zur Verfügung stehen. Die Aktivität von Säule 2 liegt bei ca. 5 mBq , Säule 1 liegt noch etwas darunter. Aus den Messwerten konnte eine neue Obergrenze für die Emanation des Silikagel abgeschätzt werden, nämlich $0,2\text{ mBq/kg}$, diese Grenze liegt um einen Faktor 6 unter früheren Messungen. Die Emanation des Buffertanks (West), die mit $(3,7 \pm 1,4)\text{ mBq}$ gemessen wurde, ist ebenso als akzeptabel anzusehen, zumal dieser Tank als Stickstoffspültank eingesetzt wird und deshalb bei regulären Operationen weit vom Sättigungsszenario entfernt ist. Bei den regulären Prozessabläufen geht von den Komponenten des Module Zero keine Kontamination des Szintillators aus.

In den Skids (Kap. 5.5) haben sich die beiden Spülsäulen, die wegen der in ihnen enthaltenen Stahlblechpackungen Oberflächen im Bereich einiger Hundert Quadratmeter haben, als überraschend sauber erwiesen, nämlich $(2,27 \pm 1,14)\text{ mBq}$ bei der Stickstoffsäule und $(4,9 \pm 0,3)\text{ mBq}$ bei der Wassersäule. Die von ihnen ausgehende Emanation ist so gering, dass sie vergleichbar wird mit dem Eintrag durch den Stickstoff. Die beiden Wärmetauscher wiesen zunächst sehr hohe Emanationsraten auf, die Ursache konnten nach umfangreichen Untersuchungen die Schweißnähte identifiziert werden, die mit ungeeigneten Schweißelektroden gearbeitet waren. Ein Neubau der kritischen Komponente war unumgänglich, führte aber zu einer deutlich verminderten Emanation. Der Wärmetauscher hinter der Stickstoffsäule emaniert mit einer Rate von $(0,3 \pm 0,1)\text{ mBq}$. In der gleichen Größenordnung liegt die Emanation der Treborpumpe, $(0,4 \pm 0,2)\text{ mBq}$. Der Partikelfilter hingegen zeigte eine überraschend hohe Emanation von $(6 \pm 2)\text{ mBq}$. Dieses Bauteil ist noch einmal auf Lecks und Verschmutzung zu überprüfen. Nach den vorliegenden Messungen liegt der Beitrag durch Emanation der Skids als Gesamtsystem zum Unterrund der Neutrinomessung bei $(0,76 \pm 0,23)\text{ cpd}$ in 100 t ($250 - 800\text{ keV}$) und erfüllt damit die Anforderungen.

Innerhalb der Filling Station konnten auf Grund zeitlicher Entwicklungen bei der Installation bis jetzt keine Emanationsmessungen vorgenommen werden, speziell der *Head Tank* D 1302 und der *Overflow Tank* D 1301 werden zukünftig zwingend noch zu untersuchen sein. Das Gasversorgungsmodul wurde in Betrieb genommen, es konnte in einer mit N_2 durchgeführten Messreihe gezeigt werden, dass das durch dieses Modul angefeuchtete Gas die Spezifikation von $0,1\text{ mBq/m}^3$ erfüllt (Abschnitt 5.6). Durch eine zufällige Beobachtung konnte während der durchgeführten Messreihe noch einmal deutlich die Kontaminationsgefahr aufgezeigt werden, die von Radon aus

der Umgebungsluft ausgeht. Bei zu geringem Gasfluss in der Ausgangsleitung kann Radon gegen den Gasstrom zurückdiffundieren und so in ein vermeintlich geschütztes Volumen eindringen kann. Diese Gefahr ist beim Spülen der Vessel unbedingt zu beachten.

Die Gesamtschau der in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wird helfen, zukünftigen Entwicklungen von Tanks und Reinigungsanlagen in Hinblick auf eine niedrige Emanationsrate zu optimieren. Diese gilt für Materialauswahl sowie Konstruktion und Reinigungsprozeduren.

Eine neue Herausforderung innerhalb des BOREXINO-Experiments, die noch nirgendwo sonst in vergleichbarer Form aufgetreten war, ist die Versorgung mit atembarem und gleichzeitig radonarmem Gas. Dieses atembare Gas wird aus Sicherheitsgründen benötigt, wenn nach Abschluss der Installation des Inner Vessel die letzten Photomultiplier in den Detektor eingebaut werden. Zur Herstellung der synthetischen Luft wird HPN_2 aus der Stickstoffanlage mit Sauerstoff aus Gasflaschen gemischt. Die Einbindung des Gasmischers in die Stickstoffanlage wird vorgestellt (Abschnitt 6.1).

Die Emanation der benutzen Bauteile wurde untersucht und keine kritischen Werte ermittelt. Mit den ermittelten Messwerte wird abgeschätzt, wie weit die Einhaltung der Spezifikation von $0,1 \text{ mBq}/\text{m}^3$ in der synthetischen Luft abhängig ist von den Betriebsparametern. Ein Mindestgasfluss von $0,5 \text{ m}^3/\text{h}$ muss empfohlen werden. Im übrigen wird angesichts der durchgeführten Abschätzung eine regelmäßige Überwachung des Radongehalts in der Luft, z.B. mit der elektrostatischen Kammer, dringend angeraten (Abschnitt 6.2).

Der Niederschlag des durch die Inflation und das Gasspülen in das Vessel eingebrachten ^{210}Pb auf die Oberfläche des Inner Vessel und die davon ausgehende Aktivität wird abgeschätzt. Der Untergrund liegt bei ca. $5 \text{ cpd}/227 \text{ m}^2$, wobei aufgrund der geometrischen Cuts weit weniger als ein Prozent noch als Untergrund erscheinen. Von diesem Prozess ist also keine Beeinträchtigung der Neutrinomessung zu erwarten (Abschnitt 6.3).

Abschließend wird diskutiert, dass nach Beendigung der Arbeiten innerhalb der Stahlsphäre in jedem Fall über längere Zeit die Stahlsphäre und das Vesselssystem mit sauberem Gas (HPN_2) gespült werden muss, um Ar und Kr, aber auch restliches O_2 und SF_6 aus der Gasfüllung auszutreiben. Zeitskalen von 3 bis 4 Wochen erscheinen realistisch. Es wird eine Methode vorgeschlagen, Radon bei diesem Spülprozess als Indikator für den Gasaustausch zu nutzen (Abschnitt 6.6).

Anhang A

Anhang

Tabelle A.1: Kennzahlen einiger atmosphärischer Gase: durchschnittlicher Anteil in der trockenen Atmosphäre nahe der Erdoberfläche, Dichte (ρ bei Normbedingungen: 1013mbar, 0°C), Siede- und Schmelztemperatur (T_b bzw T_m) sowie für ausgewählte Gase die kritische Temperatur T_C und den kritischen Druck p_C . Die Spurengase (unterer Tabellenteil) machen insgesamt weniger als 0,038 % des Gesamtvolumens aus ([Bli94, Wea75]).

Gas	Volumenanteil an normaler Luft	ρ_{Norm} [g/l]	T_b [°C]	T_m [°C]	T_C [K]	p_C [bar]
N ₂	78,084%	1,2506	-195,5	-209,86	126,2	34,5
O ₂	20,946%	1,429	-182,962	-218,4	155,2	50,8
Ar	0,934%	1,7837	-185,7	-189,2	150,8	48,6
CO ₂	$345 \cdot 10^{-6}$	1,98	-78,5 ^{sub}	-56,6 ^(5,6atm)	304	73,8
Ne	$18,18 \cdot 10^{-6}$	0,8990	-246,048	-248,67		
He	$5,24 \cdot 10^{-6}$	0,175	-268,934	< -272,2 ^(26atm)		
CH ₄	$2 \cdot 10^{-6}$	1,2506	-164	-182,48		
Kr	$1,14 \cdot 10^{-6}$	3,733	-152,30	-156,6	209,4	55,2
H ₂	$0,5 \cdot 10^{-6}$	0,0898	-252,87	-259,15		
N ₂ O	$0,3 \cdot 10^{-6}$	1,977	-88,5	-90,8		
Xe	$0,087 \cdot 10^{-6}$	0,009	-107,1	-111,9	289,7	58,4
CO	$30 - 250 \cdot 10^{-9}$	0,7909	-191,5	-205,05		
NO ₂	$10 - 100 \cdot 10^{-9}$	1,4494	21,2	-11,2		
NO	$5 - 100 \cdot 10^{-9}$	1,342	-151,8	-163,3		
SO ₂	$< 1 - 50 \cdot 10^{-9}$	2,927	-10	-72,2		
NH ₃	$0,1 - 1 \cdot 10^{-9}$	0,8906 ^{boil.p.}	-33,34	-77,73		
HCHO	$0,1 - 1 \cdot 10^{-9}$	0,815	-21	-92		
Rn	10^{-19}	9,73	-61,8	-71	377	63

Abbildung A.1: Radioaktive Zerfallskette von ^{238}U mit Art, Energie und Halbwertszeit der Zerfälle. Es sind nur die Zerfallskanäle mit einer Zerfallswahrscheinlichkeit von mehr als 1% angegeben, begleitende γ -Strahlung wurde nicht berücksichtigt, bei β -Zerfällen ist die angegebene Energie die Maximalenergie [FZK95].

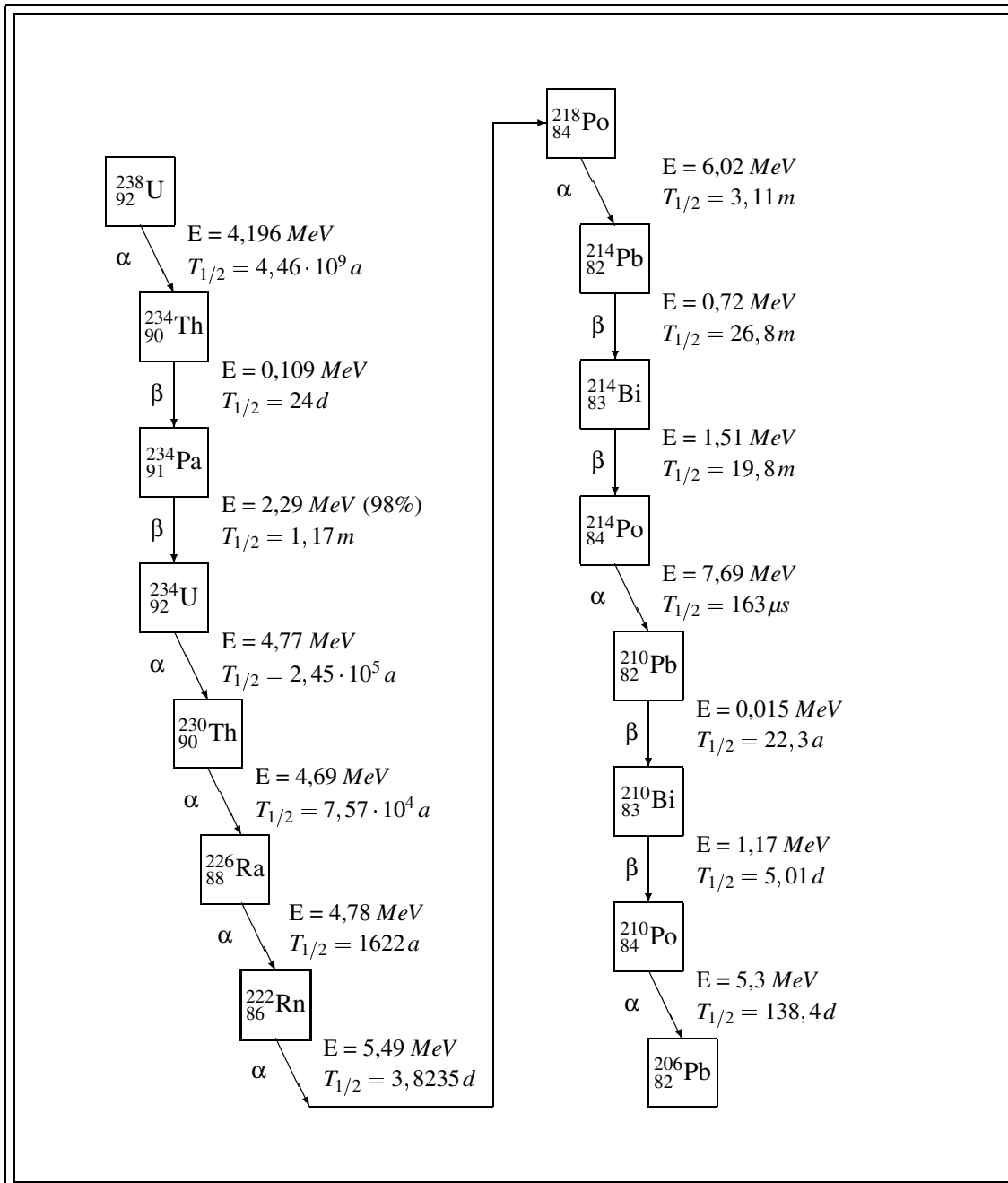


Abbildung A.2: Das Vakuumsystem der „Mobilen Radon-Extraktionsanlage“ MOREX: alle Gasleitungen mit Kühlfallen, Getter, Gasflussmesser und allen Ventilen (nach [Fre98]).

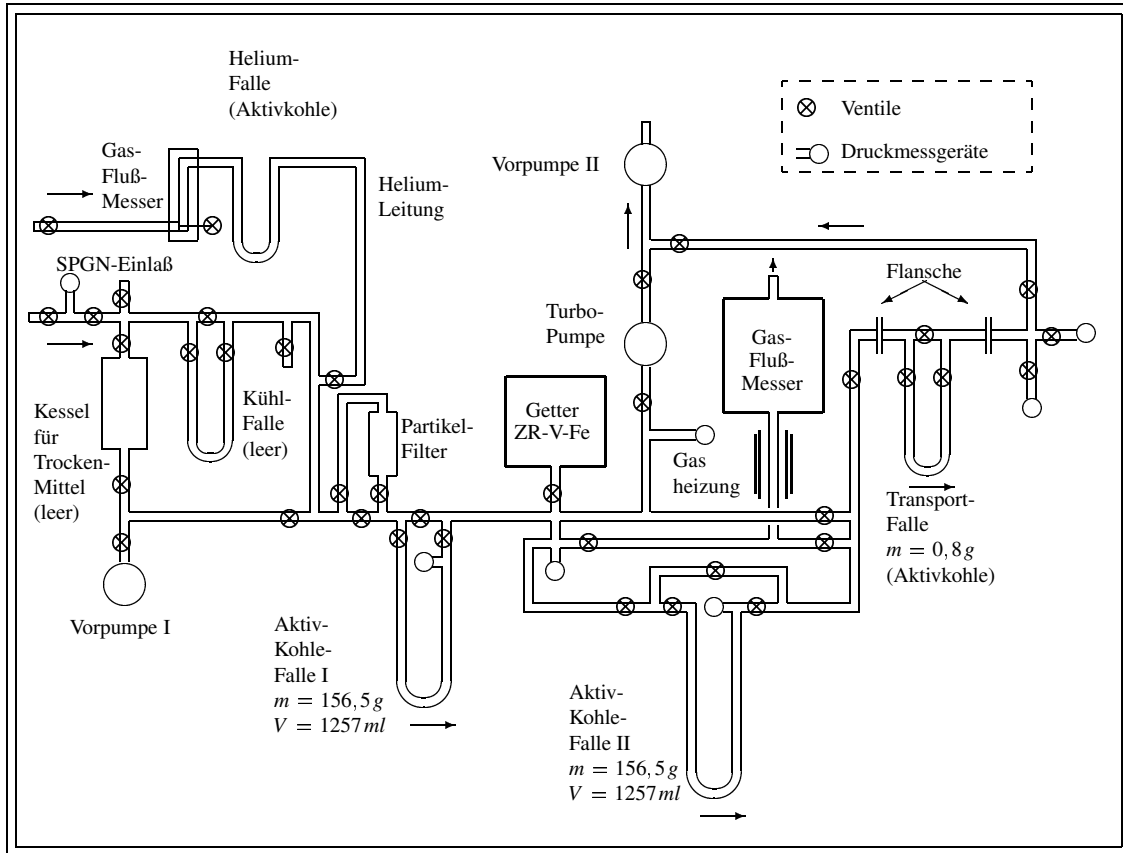
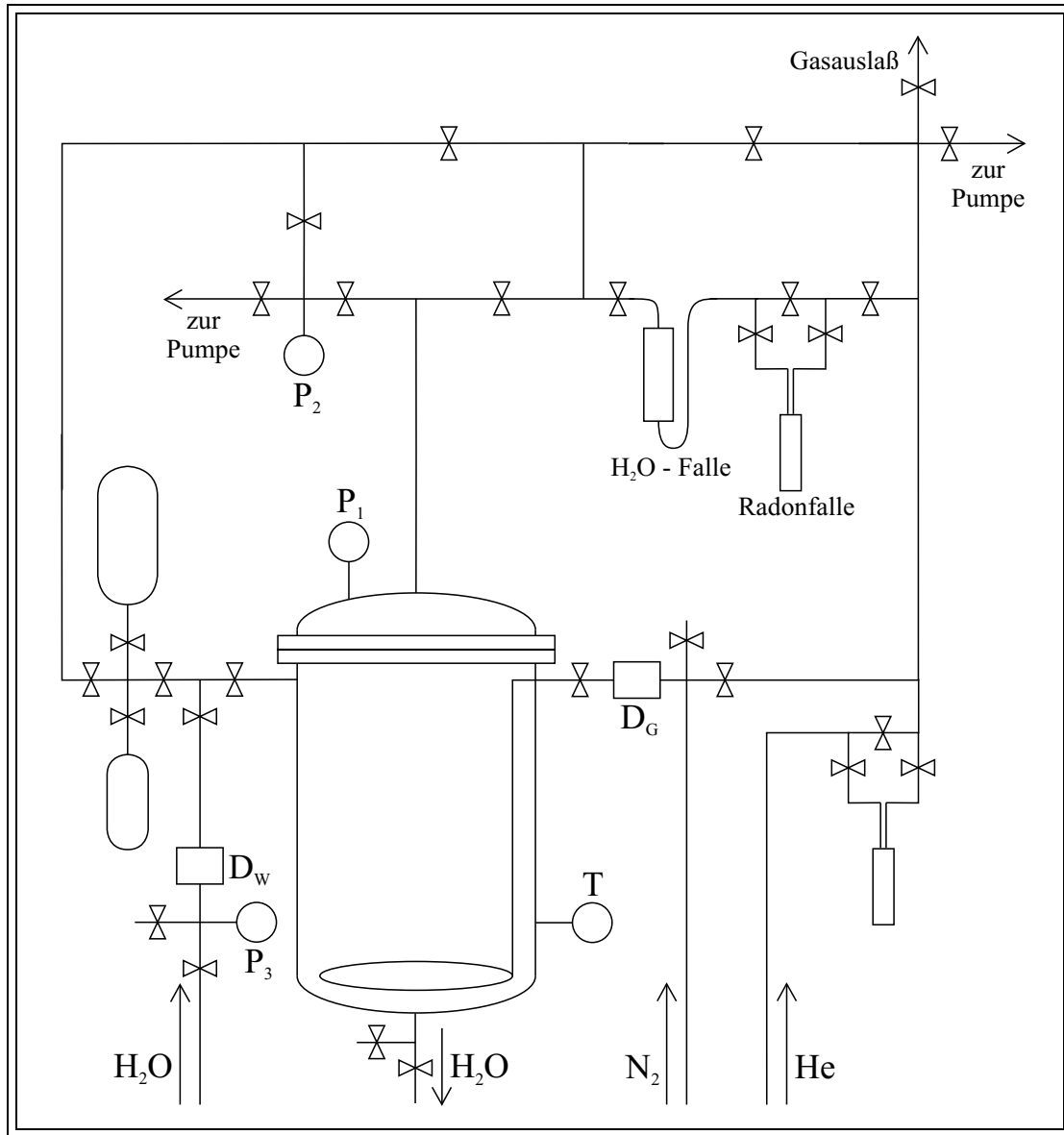


Abbildung A.3: STRAW („System for Radon Assay of Water“): Topologie des Emanationstanks und der angeschlossenen Vakuumleitungen ([Sim00, Sim03a]). Die Bezeichnungen sind „D“ für Durchflussmesser (Wasser und N₂), „P“ für Druckmesser und „T“ für Theormometer.



A.1 Gaschromatographie: Grundbegriffe und Formeln

Um die Übersichtlichkeit im Textteil zu erhöhen, werden im folgenden die Grundbegriffe der Gaschromatographie als Liste zusammengefasst. Die angewandte Nomenklatur folgt im wesentlichen [Ett96], ebenfalls sei zum weiteren Studium der Theorie auf [Sai81] verwiesen. Eine umfangreiche Sammlung experimenteller Befunde findet sich in [Kis85].

Säule: Hohlvolumen (oft zylindrisch), durch das ein Stoff hindurchgeleitet wird und in dem bestimmte Prozesse oder chemische Reaktionen stattfinden. Die Prozesse können beeinflusst werden (z.B. in Effizienz oder Geschwindigkeit), indem die Säule mit geeigneten Materialien (z.B. Katalysatoren, Adsorbentien) gefüllt wird.

Adsorption: Prozess der Anlagerung von Atomen auf einer beliebigen Oberfläche. Die Adsorption kann in zwei verschiedenen Formen auftreten. Bei der *Physisorption* wirken zwischen dem Gas und der Oberfläche vor allem van-der-Waals-Kräfte und Dipol-Dipol-Wechselwirkungen, die Enthalpie des Bindungsprozesse ist in der Regel weniger als 25 kJ/mol . Bei der *Chemisorption* finden tatsächlich Übergänge in den Elektronenhüllen von Adsorber und Adsorbens statt, die Reaktionsenthalpie wird deshalb in der Regel größer als 40 kJ/mol sein.

Desorption: Prozess der Ablösung von Atomen von einer beliebigen Oberfläche.

Adsorbens: Festkörper, auf dessen Oberfläche die Adsorption stattfindet.

Die Oberfläche kann verschiedene Strukturen haben, etwa als „glatte“ atomare Monolage, als Monolagen, die ungeordnet ineinander gefaltet und verschachtelt sind, oder aber ein Kristallgitter mit Poren in der Größe einzelnen Gitterzellen.

Diese Unterscheidung spielt vor allem bei der thermodynamischen Betrachtung eine Rolle, wie sie in den Abschnitten 3.3.2 – 3.3.5 behandelt wird.

Adsorptiv: Gasatome, die sich mit einer bestimmten Geschwindigkeit frei über eine Oberfläche bewegen.

Adsorbat: Gasatome, die durch Adsorption auf einer Oberfläche gebunden wurden.

Primärgas: Trägergas; bei Gaschromatographie geht es häufig darum, ein Gasgemisch in seine Komponenten aufzutrennen, etwa zur Reinigung oder beim quantitativen Nachweis. Das Primärgas ist dann das Gas, in dem ein oder mehrere andere Gase als Komponenten enthalten sind.

Binärgas: Spurengas; eine oder mehrere Komponenten, die in deutlich kleineren Mengenanteilen als das Primärgas in einem Gasgemisch enthalten sind und die aus diesem mittels Chromatographie herausgelöst werden sollen.

Analyten: Die Komponenten, die sich als Binärgase (Spurengas) im Strom eines möglichst inerten Primärgases (Trägergas) mitbewegen und von diesem zu trennen sind. Sie verteilen sich auf zwei verschiedene Phasen, die *mobile* und die *stationäre* Phase.

Mobile Phase: der Anteil des Analyten, der sich als *Adsorptiv* mit dem Trägergasstrom oder auch frei über der Oberfläche bewegt.

Stationäre Phase: der Anteil des Analyten, der als *Adsorbat* aus dem Adsorptiv heraus auf der Oberfläche gebunden wird. Die Atome (oder Moleküle) können dort entweder einzeln aufsitzen, oder ganze Monolagen, Cluster oder auch Haufenstrukturen ausbilden. Bewegung des Adsorbats auf der Oberfläche (ohne diese zu verlassen) ist nicht ausgeschlossen, sie ist allerdings nicht korreliert mit dem Binärgasstrom, verläuft also statistisch in alle Richtungen gleichermaßen. Noch dazu sollte sie im Mittel deutlich kleiner sein, so dass sie vernachlässigt werden kann.

Chromatogramm: Am Ende einer Säule kann man mit einem geeigneten Detektor die Gasmenge bestimmen, die zu einem bestimmten Zeitpunkt die Säule passiert. Den graphischen Auftrag dieser Messung bezeichnet man als Chromatogramm.

Verteilungskoeffizient: Im Gleichgewicht von Adsorption und Desorption kann man die Verteilung des Analyten i auf die beiden Phasen als Quotient der Konzentrationen ausdrücken. Mit $W_{i(S)}$ und $W_{i(M)}$ als Masse des Analyten i und V_S bzw. V_M als Volumen in der indizierten Phase ist

$$K = \frac{C_S}{C_M} = \frac{W_{i(S)}/V_S}{W_{i(M)}/V_M} = \frac{W_{i(S)}}{W_{i(M)}} \cdot \frac{V_M}{V_S}$$

Dieser Koeffizient ist eine Funktion des Sättigungsdampfdrucks (p^0), des Aktivitätskoeffizienten des Analyten (γ^0) in der stationären Phase, der Dichte (ρ_S), der Molmasse (M_S) der stationären Phase und der absoluten Säulentemperatur (T_C); R ist die Gaskonstante:

$$K = \frac{\rho_S \cdot R \cdot T_C}{p^0 \cdot \gamma^0 \cdot M_S}$$

Durchflussvolumen: $V_M = t_M \cdot \Phi_C(T) = t_M \cdot \{\bar{u}_0 \cdot A_C\} = t_M \cdot \{(j \cdot u_0) \cdot (\epsilon \cdot \pi r^2)\}$
 Volumen eines Analyten in der mobilen Phase mit

t_M	Durchflusszeit des Primärgases durch die Säule auch genannt: <i>Retentionszeit der inerten Komponente</i> oder: <i>Retentionszeit des nicht zurückgehaltenen Analyten</i>
Φ_C	Gasfluss des Primärgases durch die Säule
r_C, L_C, A_C	Radius, Länge und geometrische Querschnittsfläche der Säule
$\bar{u}_0 = u_0 \cdot j = L/t_M$	mittlere Gasgeschwindigkeit
v_0	Gasgeschwindigkeit des Primärgases in der Säule
j	Kompressionskorrekturfaktor
$\epsilon = V_0/V_C$	<i>Zwischenkornporosität</i> d.h. das Verhältnis des zur Verfügung stehenden freien Volumens V_0 zwischen dem Adsorbens und dem Volumen V_C des Adsorbens

Retentionszeit t_R : Die Zeit zwischen dem Einlass der Probe am Beginn der Säule und ihrem Maximum am Ende der Säule.

reduzierte Retentionszeit: $t'_R = t_R - t_M$
 Differenz zwischen Retentionszeit des Analyten und der Durchflusszeit ;
 sie ist die Zeit, in der der Analyt in der stationären Phase verbringt.

Retentionsvolumen: $V_R = t_R \cdot \Phi(T)$
 Produkt aus Retentionszeit t_R und dem Volumenstrom $\Phi(T)$ (bei Säulentemperatur T)

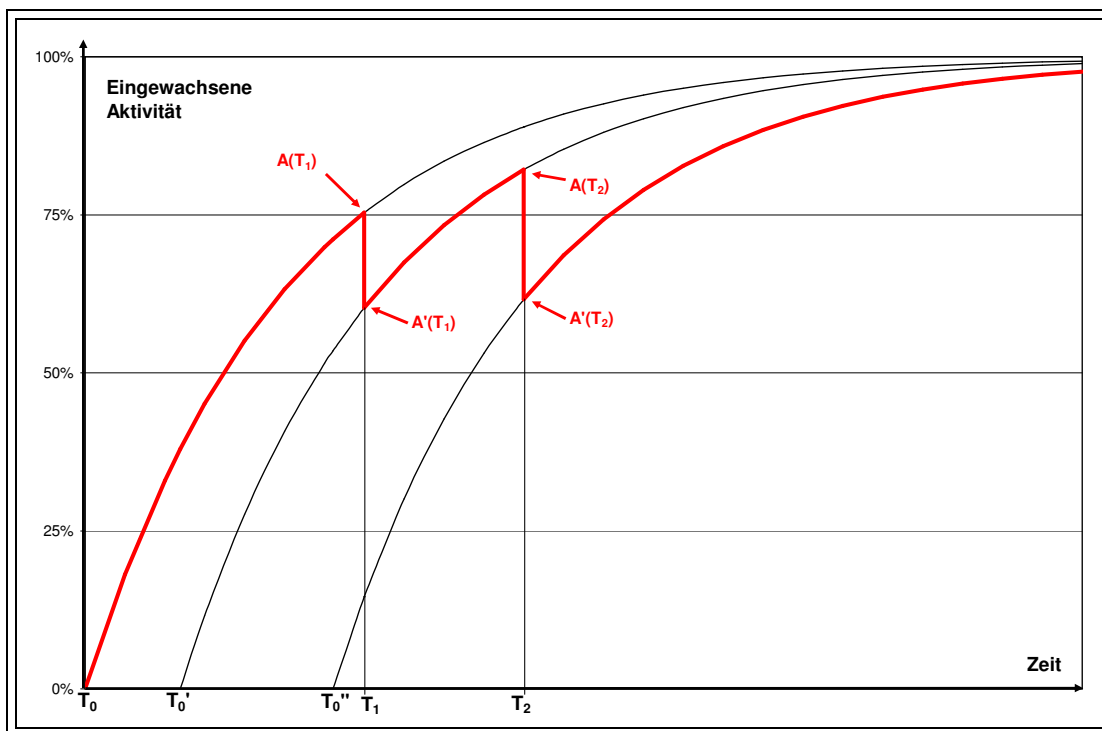
reduziertes Retentionsvolumen: $V'_R = t'_R \cdot \Phi(T)$
 Produkt aus der reduzierten Retentionszeit t'_R und dem Volumenstrom $\Phi(T)$ (bei Säulentemperatur T)

spezifisches Retentionsvolumen: $V_g = V'_R/m$
 Quotient des Retentionsvolumens mit der Gesamtmasse m des Adsorbens.

Peakbreite, Peakfläche, Peaksymmetrie: Größen zur Beschreibung der geometrischen Form eines Chromatogramms. Für eine genauere Behandlung dieser Größen sei auf [Ett96] verwiesen, da sie in dieser Arbeit nicht genutzt werden.

A.2 Berechnung eines scheinbaren Emanationsbeginns bei mehrfacher Extraktion aus einem geschlossenen Volumen

Gelegentlich kommt es vor, dass zur Bestimmung der Emanation in einem Tank nicht der gesamte Gasinhalt entnommen werden kann, z.B. weil der Tank keine großen Druckunterschiede verträgt oder weil die Extraktionszeit übermäßig lange dauern würde. Bei einer Extraktion wird also nur eine Teilmenge der Gasfüllung entnommen, gleichbedeutend wird nur eine Teilmenge Radon aus dem Tank extrahiert. Will man anschließend eine weitere Extraktion aus diesem Tank vornehmen, muss dies berücksichtigt werden. Eine geeignete Berechnungsmethode ist, den Startzeitpunkt der Emanation zu modifizieren.



Sei der Tank anfänglich ($t = T_0$) radonfrei, dann wächst bis zu einem bestimmten Zeitpunkt $T_1 > T_0$ die Aktivität $A(T_1)$ durch Emanation exponentiell an (λ ist die Zerfallskonstante).

$$A(T_1) = A_{sat} \cdot \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0)}\right) \quad (\text{A.1})$$

Zum Zeitpunkt T_1 wird eine Gasmenge $dV_1 = V_0 - V_1$ aus dem Tank entnommen und damit die im Tank befindliche Aktivität um den Faktor $(V_0 - dV_1)/V_0 = 1 - dV_1/V_0 = V_1/V_0$ verringert. Es ist also nach der Extraktion

$$A'(T_1) = A_{sat} \cdot \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0)}\right) \cdot \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{A.2})$$

Bei einer zweiten Extraktion zum Zeitpunkt T_2 ist diese Entnahme zu berücksichtigen. Die nach der 1. Extraktion (T_1) noch verbliebende Aktivität $A'(T_1)$ ist genau so groß, als hätte die Emanation erst zum Zeitpunkt T_0' begonnen. Gleichsetzung liefert:

$$A_{sat} \cdot \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0')}\right) = A_{sat} \cdot \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0)}\right) \cdot \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{A.3})$$

Aus dieser Gleichung kann man T'_0 isolieren:

$$1 - e^{-\lambda(T_1 - T'_0)} = \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0)}\right) \cdot \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{A.4})$$

$$\Leftrightarrow T'_0 = T_1 + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0)}\right) \cdot \frac{V_1}{V_0} \right] \quad (\text{A.5})$$

Mit $T_1 > T_0$ und $V_0 > V_1$ gilt

$$e^{-\lambda\Delta T} \in]0, 1[\Rightarrow 1 - e^{-\lambda\Delta T} \in]0, 1[\Rightarrow (1 - e^{-\lambda\Delta T}) \cdot V_1/V_0 \in]0, 1[, \quad (\text{A.6})$$

der Logarithmus wird also negativ, folglich ist $T'_0 < T_1$, wie es sein sollte.

Folgt nach der zweiten Extraktion, bei der die Radonmenge um den Faktor V_2/V_1 reduziert wird, eine dritte Extraktion zum Zeitpunkt T_3 , so muss analog T''_0 bestimmt werden:

$$1 - \exp\{-\lambda(T_2 - T''_0)\} = (1 - \exp\{-\lambda(T_2 - T'_0)\}) \cdot \frac{V_2}{V_1} \quad (\text{A.7})$$

$$\Leftrightarrow T''_0 = T_2 + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - (1 - \exp\{-\lambda(T_2 - T'_0)\}) \cdot \frac{V_2}{V_1} \right]. \quad (\text{A.8})$$

Einsetzen von T'_0 und anschließende Umformung liefert für T''_0 eine analytische Lösung.

$$T''_0 = T_1 + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - \frac{V_2}{V_1} \cdot (1 - \exp\{-\lambda(T_2 - T'_0)\}) \right] \quad (\text{A.9})$$

$$= T_1 + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - \frac{V_2}{V_1} \cdot \left(1 - \exp\left\{-\lambda\left(T_2 - T_1 + \frac{1}{\lambda} \ln[\dots]\right)\right\} \right) \right] \quad (\text{A.10})$$

$$= T_1 + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - \frac{V_2}{V_1} \cdot \left(1 - \frac{\exp\{-\lambda(T_2 - T_1)\}}{[\dots]} \right) \right] \quad (\text{A.11})$$

$$= T_1 + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - \frac{V_2}{V_1} \cdot \left(1 - \frac{\exp\{-\lambda(T_2 - T_1)\}}{\left[1 - \left(1 - \frac{V_1}{V_0} \exp\{-\lambda(T_1 - T_0)\} \right) \right]} \right) \right]. \quad (\text{A.12})$$

Diese Rechnung wird für jede weitere Extraktion umfangreicher, weshalb man die scheinbaren Startzeiten einfacher (und trotzdem mit ausreichender Genauigkeit) rekursiv mit einem Tabellenkalkulationsprogramm ausrechnet. Allgemein ist dann die Berechnungsformel mit dem Index n

$$1 - \exp\{-\lambda(T_n - T_0^n)\} = (1 - \exp\{-\lambda(T_n - T_0^{n-1})\}) \cdot \frac{V_n}{V_{n-1}} \quad (\text{A.13})$$

$$\Leftrightarrow T_0^n = T_{n-1} + \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 - (1 - \exp\{-\lambda(T_n - T_0^{n-1})\}) \cdot \frac{V_n}{V_{n-1}} \right]. \quad (\text{A.14})$$

Dieses T_0^n ist dann einfach wieder in eine Gleichung der Form A.1 einzusetzen und nach A_{sat} umzuformen:

$$A_{sat} = A(T_N) \cdot \left(1 - e^{-\lambda(T_n - T_0^n)} \right)^{-1} \quad (\text{A.15})$$

Grundsätzlich equivalent zu dem dargestellten Ansatz ist die Berechnung über den Weg

$$A'(T_1) = A_{sat} \left(1 - e^{-\lambda(T_1 - T_0)} \right) \cdot \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{A.16})$$

$$A(T_2) = A'(T_1) \cdot e^{-\lambda(T_2 - T_1)} + A_{sat} \left(1 - e^{-\lambda(T_2 - T_1)} \right), \quad (\text{A.17})$$

allerdings steigt die Zahl der Summanden mit jeder weiteren Extraktion. In Tabellenkalkulationsprogrammen sind die Gleichungen A.14 und A.15 hingegen einfach anwendbar.

A.3 Gasreinigung in einem beliebigen Volumen

Eine typische Situation bei BOREXINO ist, dass die Radonotope sich als Kontamination in der Gasphase in einem geschlossenen Volumen (z.B. Emanationskammer, Lagertank, Kühlfalle etc.) befinden. Aus diesem Volumen sollen sie entweder zwecks Reinigung ausgespült oder für eine Messung extrahiert werden. Gesucht ist ein allgemeiner Formalismus, der eine Abschätzung der Radioaktivität $A(t)$ dieses Volumens ausgehend von bestimmten Anfangsbedingungen erlaubt.

Das Volumen sei anfänglich makroskopisch sauber, trocken und ohne Lecks. Mit einem geeigneten Spülgas (z.B. Stickstoff) wird eventuell noch enthaltenes Radon aus dem Volumen ausgespült. Nach dem Spülen wird das Volumen verschlossen und einige Tage stehen gelassen, bis neues Radon aus Emanation zu einer messbaren Menge eingewachsen ist: $A(t) = A_0 \cdot (1 - \exp(-\lambda \cdot \Delta t))$. Der Einfachheit halber sei angenommen, dass das Radon im Gasvolumen homogen verteilt ist (dass also auch bei großen Volumina keine Gradienten ausgebildet sind).

Die anschließende Probenahme erfolgt bei kleinen Volumina wie Kühlfällen, Flaschen etc. durch erneutes Gasspülen. Da hier die Volumenaustauschrate κ in der Größenordnung 1 min^{-1} liegt, ist es sicherlich möglich, in kurzer Zeit das enthaltene Gas rückstandsfrei auszutauschen und alles Radon zu extrahieren, so dass hier $A_0 = A(t=0) \approx 0$ in guter Näherung angenommen werden kann.

Bei großen Volumina (z.B. die Lagertanks) ist die Situation etwas schwieriger, da in der Regel nur kleine Gasmengen ($\leq 5\%$ von V_0) durch Pumpen extrahiert werden und daraus die Gesamtbelastung im Volumen abgeschätzt wird. Auch liegt κ bei 1 d^{-1} und ist somit in der Größenordnung von λ . Abhängig von den Anfangsgrößen wird die Aktivität im Tank bei konstantem Spülen irgendwann einen konstanten Wert einnehmen, der unter der Sättigungsaktivität liegen sollte, aber höher sein kann als die spezifische Spülgasaktivität (da mehr produziert wird, als durch Verdünnung oder Zerfall verschwindet); deshalb ist also $A_{N_2} < A(t) < A_{sat}$ und insbesondere $A(t) \neq 0$.

Wenn also bei Bestimmung der Sättigungsaktivität die Probenentnahme (wie auch immer sie geschieht) deutlich vor Erreichen der Sättigung durchgeführt wird, ist diese Restaktivität im Tank zu berücksichtigen. Daraus lassen sich zwei Fragen ableiten, deren allgemeine Lösung gesucht wird:

- 1 Welche Aktivität ist nach einer bestimmten Zeit des Spülens noch im Volumen?
Wie lange braucht man danach noch, bis die Sättigungsaktivität erreicht ist?
- 2 Wie lange und mit welchem Fluss muss man spülen, um die Aktivität in einem Volumen unter einen bestimmten Wert zu drücken?

Als Rechengrößen und Einheiten erscheinen:

V_0	Volumen des Tanks [m^3]
$\Phi = \Delta V / \Delta t$	Spülgasfluss [m^3/d]
$\kappa = \Phi / V_0$	Volumenaustauschrate / Spülkoeffizient [$1/d$]
	Ist das Volumen V_0 (Querschnittsfläche $Ar \Leftrightarrow \Phi = v \cdot Ar$) nicht leer, sondern mit einem Adsorber mit einem temperaturabhängigen Adsorptionskoeffizienten $\alpha(T) = v(Rn)/v(N_2)$ gefüllt, folgt $\kappa'(T) = v_{Rn} \cdot \frac{Ar}{V_0} = \alpha(T) \cdot v_{N_2} \cdot \frac{Ar}{V_0} = \alpha(T) \cdot \frac{\Phi}{V_0} = \alpha(T) \cdot \kappa$
λ	Zerfallskonstante; $\lambda^{222}\text{Rn} \approx 0,1813 \text{ d}^{-1}$
a_{Luft}	Aktivität der Umgebungsluft [mBq/m^3]
A_0	Anfangsaktivität im Volumen [mBq]
	Oft gilt $A_0 = a_{Luft} \cdot V_0 + A_{sat}$
$n = N / \Delta V = a_{N_2} / \lambda$	Zahl der Radonotope in bestimmtem Volumen des Spülgases
$a_{N_2} = A_{N_2} / \Delta V$	spezifische Aktivität des Spülgases [mBq/m^3]
A_{sat}	Sättigungsaktivität des zu untersuchenden Volumens [mBq]

A.3. Gasreinigung in einem beliebigen Volumen

Man betrachte zunächst den Eintrag von Radon durch den Stickstoff mit einer konstanten Radonkonzentration n und einem konstanten Φ sowie ebenfalls die Emanation:

$$dN_{N_2} = n \cdot \Phi \cdot dt = \frac{a_{N_2}}{\lambda} \cdot \Phi \cdot dt \quad \text{und} \quad dN_{em} = A_{sat} dt. \quad (\text{A.18})$$

Die Zahl der Radonatome im Tank wird reduziert durch die Verdünnung mit der Volumenaustauschrate κ und den radioaktive Zerfall

$$dN_{gas} = -\kappa \cdot N(t) dt \quad \text{und} \quad dN_{rad} = -\lambda \cdot N(t) dt. \quad (\text{A.19})$$

Nach Addition aller Beiträge ergibt sich

$$\frac{dN}{dt} = n \cdot \Phi + A_{sat} - (\kappa + \lambda) \cdot N(t) \quad (\text{A.20})$$

Um diese inhomogene Differentialgleichung der Struktur $y' = q + py$ mit $p = -(\kappa + \lambda)$, $P(t) = p \cdot t$, $q = n \cdot \Phi + A_{sat}$ und $Q(t) = q \cdot t$ zu lösen, folgt man dem allgemeinen Ansatz

$$y = const \cdot e^{P(t)} + \int_0^t q(\tilde{t}) \cdot e^{(P(t)-P(\tilde{t}))} d\tilde{t} \quad (\text{A.21})$$

Also in diesem Fall

$$N(t) = const \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} + \int_0^t [(n \cdot \Phi + A_{sat}) \cdot e^{-(\kappa+\lambda)(t-\tilde{t})}] d\tilde{t} \quad (\text{A.22})$$

$$= const \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} + (n \cdot \Phi + A_{sat}) \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} \cdot \int_0^t e^{(\kappa+\lambda)\tilde{t}} d\tilde{t} \quad (\text{A.23})$$

$$= const \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} + (n \cdot \Phi + A_{sat}) \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} \cdot \frac{1}{\kappa + \lambda} \cdot [e^{(\kappa+\lambda)t} - 1] \quad (\text{A.24})$$

$$= const \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} + \frac{n \cdot \Phi + A_{sat}}{\kappa + \lambda} \cdot [1 - e^{-(\kappa+\lambda)t}] \quad (\text{A.25})$$

Für $t = 0$ ist natürlich $N_0 := N(t=0) = const.$; einsetzen in die Gleichung und anschließende Multiplikation mit λ liefert

$$\begin{aligned} A(t) &= A_0 \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} + \frac{a_{N_2} \cdot \Phi + \lambda A_{sat}}{\kappa + \lambda} [1 - e^{-(\kappa+\lambda)t}] \\ &= \left(A_0 - \frac{a_{N_2} \cdot \Phi + \lambda A_{sat}}{\kappa + \lambda} \right) \cdot e^{-(\kappa+\lambda)t} + \frac{a_{N_2} \cdot \Phi + \lambda A_{sat}}{\kappa + \lambda} \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

Entsprechend ist

$$A(t=0) = A_0 \quad \text{und} \quad A(t=\infty) = \frac{a_{N_2} \cdot \Phi + \lambda A_{sat}}{\kappa + \lambda} \quad (\text{A.27})$$

Für $t = \infty$ und $a_{N_2} V_0 \ll A_{sat}$ dominiert bei kleinem Gasfluss ($\kappa < \lambda$) oder aber bei starkem Einfluss des Adsorbers ($\alpha(T) \ll 1 \Leftrightarrow \kappa' = \alpha(T)\kappa \ll \kappa$) die Sättigungsaktivität:

$$\begin{aligned} A_{\kappa < \lambda}(t = \infty) &= \frac{\lambda \cdot A_{sat}}{\lambda + \kappa} + \frac{a_{N_2} \cdot V_0 \cdot \kappa}{\kappa + \lambda} \approx \left(1 - \frac{\kappa}{\lambda}\right) \cdot A_{sat} + \frac{\kappa}{\lambda} \cdot a_{N_2} \cdot V_0 \\ &\approx A_{sat} + \frac{\kappa}{\lambda} (a_{N_2} \cdot V_0 - A_{sat}) \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

Bei starkem Spülen ($\kappa > \lambda$) wird die Spülgaskontamination dominierend. Ist diese gering und $\lambda/\kappa \ll 1$, wird es insbesondere möglich, dass die Aktivität im Volumen deutlich unterhalb der Sättigungsaktivität gehalten werden kann.

$$A_{\kappa \gg \lambda}(t = \infty) \approx \frac{a_{N_2} \cdot \Phi}{\kappa} + \frac{\lambda}{\kappa} \cdot A_{sat} \approx a_{N_2} \cdot V_0 + \frac{\lambda}{\kappa} \cdot A_{sat} \quad (\text{A.29})$$

Entfernt man sich von dem Grenzfall einer unendlichen Spüldauer und nimmt an, dass zu einer bestimmten Zeit $t = t_{end}$ der Spülvorgang abgebrochen wird, muss die noch im Tank befindliche Menge Radon zerfallen und zudem neues Radon bis zur Sättigungsaktivität einwachsen. Dies gibt die Gleichung A.26 ebenfalls sinnvoll wieder, wenn man annimmt, dass ab diesem Moment $\Phi = \kappa = 0$ gilt:

$$\begin{aligned} A(t > t_{end}) &= (A(t_{end}) - A_{sat}) \cdot e^{-\lambda \cdot t} + A_{sat} \\ &= A(t_{end}) \cdot e^{-\lambda \cdot t} + A_{sat} (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

bzw.

$$\begin{aligned} A(t > t_{end}) &= A_{sat} \left(\frac{A(t_{end})}{A_{sat}} - 1 \right) \cdot e^{-\lambda \cdot t} + A_{sat} \\ &= A_{sat} \left[1 - \left(1 + \frac{A(t_{end})}{A_{sat}} \right) \cdot e^{-\lambda \cdot t} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

Weiterhin lässt sich bei konstantem Spülen aus dem Radongehalt des ausfließenden Spülgases A_{out} (in $[mBq/m^3]$) bei Kenntnis der übrigen Größen die Sättigungsaktivität A_{sat} bestimmen als

$$A_{sat} = \left(\frac{A_{out}(t) \cdot V_0 - A_0 \cdot e^{-(\kappa+\lambda) \cdot t}}{1 - e^{-(\kappa+\lambda) \cdot t}} \right) \cdot \frac{\kappa + \lambda}{\lambda} - \frac{a_{N_2} \cdot \Phi}{\lambda} \quad (\text{A.32})$$

Die Berücksichtigung von Leckraten geschieht durch einen zusätzlichen Beitrag in der Gleichung A.18 der Form

$$dN_{Leck} = A_{Leck} dt \quad \text{bzw.} \quad dN_{Leck} = \varepsilon \cdot N(t) dt \quad (\text{A.33})$$

Aus $(\kappa + \lambda)$ wird dann an allen Stellen $(\kappa + \lambda - \varepsilon)$. In der Regel wird diese Korrektur jedoch vernachlässigt.

Die ausgeführten Rechnungen lassen sich prinzipiell für alle radioaktiven Edelgase anstellen, also auch für ^{85}Kr oder ^{39}Ar . Hierbei ist allerdings zu bemerken, dass diese Nuklide nicht aus primordialen Zerfallsketten stammen und so in den zu untersuchenden Geräten keine intrinsische Produktion (durch Emanation) stattfindet. Mathematisch lässt sich das ausdrücken, indem die Sättigungsaktivität mit Null gleichgesetzt wird. Gleichung A.26 wird dann zu

$$A(t) = \left(A_0 - \frac{a_{N_2} \cdot \Phi}{\kappa + \lambda} \right) \cdot e^{-(\kappa + \lambda) \cdot t} + \frac{a_{N_2} \cdot \Phi}{\kappa + \lambda} \quad (\text{A.34})$$

Entsprechend ist

$$A(t = \infty) = \frac{a_{N_2} \cdot \Phi}{\kappa + \lambda} \quad (\text{A.35})$$

Literaturverzeichnis

- [Bah89] J.N. Bahcall:
Neutrino-Astrophysics,
Cambridge University Press, New York, 1989
- [Bah97] J.N. Bahcall, P.I. Krastev:
Does the sun appear brighter at night in neutrinos,
Phys. Rev. C 56 (1997) 2839–2857 ,
- [Bah01] J.N. Bahcall, M.H. Pinsonneault, S. Basu:
Solar Models: current epoch and time dependences, neutrinos, and helioseismology
Astroph. J. 555 (2001) 990–1012
- [Bah02] J.N. Bahcall, M.C. Gonzales-Garcia, C. Pena-Garay:
Solar Neutrinos before and After Kamland
J. High Energy Phys. 0302 (2003) 009
- [Bal96] M. Balata, L. Cadonati, M. Laubenstein, G. Heusser, M. Giammarchi, R. Scardaoni, V. Torri,
G.Cecchet, A. de Bari, A. Perotti:
*The water purification system for the low background counting test facility of the
Borexino experiment at Gran Sasso*,
Nucl. Instr. & Meth. A 370 (1996) 605–608
- [Bea02] J.F. Beacom, W.M. Farr, P.Vogl:
Detection of Supernova Neutrinos by Neutrino–Proton Elastic Scattering,
Phys. Rev. D 66 (2002) 033001
- [Beh69] H. Behrens, J. Jänecke:
Nummerische Tabellen für Beta–Zerfälle und Elektronen-Einfang,
Landolt–Börnstein, Neue Serie Vol. I. Band 4, Springer Verlag, Berlin 1969
- [Bel01] G. Bellini et. al:
*High Sensitivity double beta decay study of ^{116}Cd and ^{100}Mo
with BOREXINO Counting Test Facility (CAMEO project)*,
Eur. Phys. J. C 19 (2001) 43–55
- [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
- [Ben98] J. Benzinger et. al:
A scintillator purification system for a large scale solar neutrino experiment,
Nucl. Instr. & Meth. A 417 (1998) 278–296
- [Bet39] H.A. Bethe:
Energy Production in Stars,
Phys. Rev. C 55 (1939) 434–456

- [Bie98] J. Bieringer:
Radioaktive Stoffe in der Luft, (Kapitel 6 in: Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 1994 und 1995 - Daten und Bewertung (BfS-SCHR-16/98),)
Bericht der Leitstelle des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz,
zusammengestellt von Lothar Kramerer
- [Bio87] R. Bionta et al.:
Observation of Neutrino burst in coincidence with supernova 1987A in the Large Magelanic Cloud,
Phys. Rev. Let. 58 (1987) 1494
- [Bli94] C. Bliefert:
Umweltchemie,
VCH, Weinheim 1994
- [Bon64] A. Bondi:
Van der Waals volumes and radii,
J.Chem.Phys. 68 (1964) 441-445
- [Bor91] BOREXINO – Kollaboration: (G. Alimonti et al.):
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
- [Bor96] BOREXINO – Kollaboration (G. Bellini et al.):
The Borexino experiment and the results of the Counting Test Facility,
Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 48 (1996) 363-369
- [Bor98a] BOREXINO – Kollaboration (G. Alimonti et al.):
Ultra-low background measurement in a large volume underground experiment,
Astropart. Phys. 8 (1998) 141-157
- [Bor98b] BOREXINO – Kollaboration (G. Alimonti et al.):
A large scale low background liquid scintillator detector:
The Counting Test Facility at Gran Sasso,
Nucl. Instr. & Meth. A 406 (1998) 411-426
- [Bor98c] BOREXINO – Kollaboration (G. Alimonti et al.):
Measurement of the ¹⁴C abundance in a low-background liquid scintillator,
Phys. Lett. B 422 (1998) 349-358
- [Bor00] BOREXINO – Kollaboration (G. Alimonti et al.):
Light propagation in a large volume liquid scintillator,
Nucl. Instr. & Meth. A 440 (2000) 360-371
- [Bor02a] BOREXINO – Kollaboration (H. Back et al.):
Search for electron decay mode $e \rightarrow \gamma + \nu$ with prototype of Borexino detector,
Phys. Lett. B 525 (2002) 29-40
- [Bor02b] BOREXINO – Kollaboration (G. Alimonti et al.):
The science and technology of Borexino:
A Real Time Detector for Low Energy Solar Neutrinos,
Astropart. Phys. 16(3) (2002) 205-234 ,
- [Bor02c] BOREXINO – Kollaboration (C. Arpesella et al.):
Measurements of extremely low radioactivity levels in BOREXINO
Astropart. Phys. 18 (2002) 1-25 ,
- [Bow99] T.W. Bowyer, K.H. Abel, C.W. Hubbard, M.E. Panisko, P.L. Reeder, R.C. Thompson,
R.A Warner:
Field testing of collection and measurement of radioxenon for the Comprehensive Test Ban Treaty,
Journal of Radioanalytic and Nuclear Chemistry 240(1) (1999) 109-122 ,

- [Bru38] S. Brunauer, P.H. Emmet, E. Teller:
Adsorption of Gases in Multimolecular Layers,
J. Am. Chem. Soc. 60 (1938) 309-319
- [Bru76] M. Bruns:
Gas-Chromatographie mit Radon-222,
Diplomarbeit, Institut für Umweltphysik, Universität Heidelberg, 1976
- [Buc01] C. Buck:
Radon-Messungen bei Borexino,
Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 2001
- [Cac00] B. Caccianiga, M.G. Giammarcchi:
*Neutrinoless double beta decay with Xe-136 in BOREXINO
and the BOREXINO Counting Test Facility*,
Astropart. Phys. 14 (2000) 15-31
- [Cad02a] L. Cadonati, F.C. Calaprice, M.C. Chen:
Supernova neutrino detection with Borexino,
Astropart. Phys. 16 (2002) 361-372
- [Cal95] E. Calabrese, N. Ferrari, G. Fiorentini, M. Lissia:
Just so? Vacuum oscillations and MSW: an update,
Astropart. Phys. 4 (1995) 159-175
- [Cle98] B.T. Cleveland et al.:
Measurement of the solar electron neutrino flux with the homestake chlorine detector,
Astroph. J. 496 (1998) 505-526
- [Che85] H.H. Chen:
Direct Approach to Resolve the Solar Neutrino Problem,
Phys. Rev. Lett. 55 (1985) 1534-1536
- [CHO99] CHOOZ Kollaboration (M. Apollonio et al.):
Limits on Neutrino Oscillation from the CHOOZ Experiment,
Phys. Lett. B 466 (1999) 415
Auch: CHOOZ Kollaboration (M. Apollonio et al.):
Search for neutrino oscillation on a long-baseline at the CHOOZ nuclear power station,
Eur. Phys. J. C27 (2003) 331-374
- [Dav68] R. Davis Jr., D.S. Harmer, K.C. Hoffman:
Search for neutrinos from the sun,
Phys. Rev. Lett. 20 (1968) 1205-1209
- [DiC03] A. Di Credico für die BOREXINO – Kollaboration:
CTF latest results in view of the Borexino experiment,
Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 118 (2003) 447
- [Dos00] R. Dossi, A. Ianni, G. Ranucci, O.Ju. Smirnov:
Methodes for precise photoelectron counting with Photomultipliers,
Nucl. Instr. & Meth. A 451 (2000) 623-637
- [Ett96] L. Ettre, J.V. Hinshaw, L. Rohrschneider:
Grundbegriffe und Gleichungen der Gaschromatographie
Hüttig GmbH, Heidelberg 1996,
- [Fir96] R.B. Firestone, V.S. Shirley (Edit.) et al.:
Table of Isotopes
8. Auflage, John Wiley, New York (NY), USA, 1996
- [Fre98] B. Freudiger:
Untersuchung von Radon in flüssigem Stickstoff,
Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 1998

- [FZK95] W. Seelmann-Eggebert et al.:
Nuklidkarte,
Forschungszentrum Karlsruhe, 6. Auflage, 1995
- [GAL92a] Gallex – Kollaboration (P. Anselmann et. al.):
Solar neutrinos observed by GALLEX at Gran Sasso,
Phys. Lett. B 285(4) (1992) 376-389
- [GAL92b] Gallex – Kollaboration (P. Anselmann et. al.):
Implication of the GALLEX determination of the solar neutrino flux,
Phys. Lett. B 285(4) (1992) 376-389
- [GAL95] Gallex – Kollaboration (P. Anselmann et. al.):
Update of GALLEX solar neutrino results and implications,
Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 38 (1995) 68-76
- [GAL98a] Gallex – Kollaboration (W. Hampel et. al.):
Final Results of ^{51}Cr -Source experiments in GALLEX,
Phys. Lett. B 420 (1998) 114-126
- [GAL98b] Gallex – Kollaboration, (W. Hampel et. al.):
Verification test of the GALLEX solar neutrino detector with ^{71}Ge produced in-situ from the beta decay of ^{71}As ,
Phys. Lett. B 436 (1998) 158–173
- [Gal98] C. Galbiati:
Data Taking and Analysis of the Counting Test Facility of Borexino,
Dissertation, Universität Mailand, 1998
- [GNO00] GNO – Kollaboration (M. Altmann et al.):
GNO solar neutrino observations: results for GNO I,
Phys. Lett. B 490(1-2) (2000) 16-26
- [GNO02] T. Kirsten für die GNO – Kollaboration:
Progress in GNO,
Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 118 (2002) 33–38
- [Gög01] M. Göger–Neff:
Development of a Liquid Scintillator and of Data Analysis Methods for BOREXINO,
Dissertation, Technische Universität München, 2001
- [Gol93] T. Goldbrunner:
Untersuchung zur Eigenradioaktivität des Sonnenneutrino-Experiments Borexino,
Diplomarbeit, Technische Universität München, 1993
- [Gri00] C. Grieb:
Untersuchungen zur Szintillatorreinigung mit Kieselgel, Studien zum Untergrund und Vakuum-Neutrinooszillation in Borexino,
Diplomarbeit, Technische Universität München, 2000
- [Hac79] J. Hackenbusch:
Eine Methode zur Bestimmung des Diffusions-, Löslichkeits- und Permeabilitätskonstanten von ^{222}Rn in Wasser und Meerwasser,
Staatsexamensarbeit, Institut für Umweltphysik, Universität Heidelberg, 1979
- [Hag00] T. Hagner, R.v. Hentig, B. Heisinger, L. Oberauer, S. Schönert, F.v. Feilitzsch, E. Nolte:
Myon-induced production of radioactive isotopes in scintillation detectors,
Astropart. Phys. 14 (2000) 33–47
- [Ham37] H.C. Hamaker:
The London–van der Waals Attraction between Spherical Particles,
Physics 4 (1937) 1058–1072

- [Hen99] R.v. Hentig:
*Determination of Radioactive Trace Elements in Ultra Low Background Detectors
by Means of Neutron Activation Analysis,*
Czech. J. Phys. 49 Suppl. S1 (1999) 277–286
- [Heu76] G. Heusser, O.A. Schaeffer:
 ^{37}Ar und ^{39}Ar in meteorites and the spatial cosmic ray gradient,
Earth and Planetary Science Letters 33 (1977) 420-427
- [Heu93] G. Heusser, :
Background in ionizing detection - illustrated by Ge-spectrometry,
Proceedings of 3rd international summer school on „Low-Level Measurements of Radioactivity
in the Environment: Technics and Applications“, Huelva, Spain 1993, edited by M. Garcia-León
and R. Garcia-Tenorio, World Scientific, Singapore, 1994
- [Heu95] G. Heusser:
Low-radioactivity background techniques,
Annual Review of Nuclear and Particle Science 45 (1995) 543-590
- [Heu00] G. Heusser, W. Rau, B. Freudiger, M. Laubenstein, M. Balata, T. Kirsten:
 *^{222}Rn detection technique at the $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ range in nitrogen gas
and a new Rn purification technique for liquid nitrogen,*
Appl. Rad. & Isot. 53(3) (2000) 691-695
- [His01] M. Hißmann:
Low-Level-Germanium-Spektrometer – Simulation,
Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max–Planck–Institut für Kernphysik, Heidelberg 2001
- [Ian99] A. Ianni, D. Montanino:
The ^{51}Cr and ^{90}Sr sources in BOREXINO as tools for neutrino magnetic moment searches,
Astropart. Phys. 10 (1999) 331–338
- [Kam96] Kamiokande – Kollaboration (Y. Fukuda et al.):
Solar Neutrino Data Covering Solar Cycle 22,
Phys. Rev. Let. 77 (1996) 1683–1686
- [Kam03] KamLAND – Kollaboration (A. Suzuki et al.):
First results from KamLAND: Evidence for Reactor Anti–Electron Neutrino Dissappearance,
Phys. Rev. Let. 90 (2003) 021802
- [Kik01] J. Kiko:
Detector for ^{222}Rn measurement in air an the $1 \text{ mBq}/\text{m}^3$ level,
Nucl. Instr. & Meth. A 460(2-3) (2001) 272–277
- [Kir99] T.A. Kirsten:
Solar neutrino experiments: results and implications,
Rev. Mod. Phys. 71 (1999) 1213–1232
- [Kis85] A.V. Kiselev, Ja.I. Jašin:
Gas– und Flüssigkeits–Adsorptionschromatographie
VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin (DDR),
sowie Dr. Alfred Hüttig Verlag GmbH, Heidelberg 1985
- [Kla00] H.V. Klapdor-Kleingrothaus, K. Zuber:
Particle Astrophysics,
Institute for Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 2000 (2. Edition)
- [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 und Max–Planck–Institut für Kernphysik, Heidelberg 1996

- [Leo94] W.R. Leo:
Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments,
Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2nd Ed., 1994
- [Man01] J.C. Manaira:
Calibration and Monitoring for the Borexino Solar Neutrino Experiment,
Dissertation, Faculdade de Ciências da Universidade de Lisboa, 2001
- [Mau00] S. Maurer:
Prediction of Single-Component Adsorption Equilibria,
Dissertation, Lehrst. f. Feststoff- und Grenzflächenverfahrenstechnik, Technische Universität München, 2000
Herbert Utz Verlag, München 2000
- [Mau01] S. Maurer, A. Mersmann, W. Peukert:
Henry Coefficients of Adsorption predicted from solid Hamaker Constants,
Chemical Engineering Science 56 (2001) 3443-3253
- [MDH87] I. McDougall, T.M. Harrison:
Geochronology and Thermochronology by the $^{40}\text{Ar} / ^{39}\text{Ar}$ -Methode,
Oxford University Press, New York, USA. 1987
- [Mik85] S.P. Mikheyev, A. Yu. Smirnov:
Resonance enhancement of oscillations in matter and solar neutrino spectroscopy,
Sov. J. Nucl. Phys. 42 (1985) 913–917
- [Ned98] H. Neder:
Ein Low-Level-Germanium-Spektrometer: Aufbau, erste Messungen und Simulationen,
Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 1998
- [Ned00] H. Neder, G. Heusser, M. Laubenstein:
*Low level gamma-ray germanium-secrometer to measure very low
primordial radionuclide concentration*,
Appl. Rad. & Isot. 53(1-2) (2000) 191–195
- [Nef96] M. Neff:
*Untersuchungen zum Untergrund durch Radioaktivität und kosmische Strahlung
im Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO*,
Diplomarbeit, Technische Universität München, 1996
- [Nie00] L. Niedermeier:
*Untersuchungen zur Reinheit von Scintillatorkomponenten
im Rahmen des solaren Neutrinoexperiment BOREXINO*,
Diplomarbeit, Technische Universität München, 2000
- [Pal00] PALO VERDE – Kollaboration (F. Boehm et al.):
Final Results from the Palo verde Neutrino Oscillation Experiment,
Phys. Rev. D 64 (2001) 112001
- [PDG02] Particle Data Group (K. Hagiwara et al.):
The Review of Particle Physics,
Phys. Rev. D 66 (2002) 010001
- [Pla89] R. Plaga:
*Proportionalzählrohre mit geformter Siliziumkathode und damit zusammenhängende Beiträge
zum Gallium-Solar-Neutrino Experiment*,
Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 1989
- [Poc99] A. Pocar:
Radon Filtering from Air (October 1999); *Measurement of Leak Rates of the Princeton University
Clean Room for the Borexino Solar Neutrino Experiment* (July 2000); *Characterization the of the
Flows and Presure Drops in the Tubing of the Radon Filter* (September 2000),
Experimental Project Writeup, Princeton University,
Die Dokumente sind verfügbar unter <http://borex.princeton.edu/reports/>

- [Pon57] B. Pontecorvo:
J. Expt. & Theoret. Phys. 33 (1957) 549
- [Rag95] R.S. Raghavan:
Solar Neutrinos - From Puzzle to Paradoxon,
Science 267 (1995) 45
- [Rag98] R.S. Raghavan, S. Schönert, S. Enomoto, J. Shirai, F. Suekane, A. Suzuki:
Measuring the Global Radioactivity in the Earth by Multidetector Antineutrino Spectroscopy,
Phys. Rev. Let. 80(3) (1998) 635-638
- [Rau95] W. Rau:
Entwicklung und Bau eines neuen Typs von GALLEX-Zählrohren und Untersuchung zu den Daten des NaJ-Paarspektrometers,
Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 1995
- [Rau99] W. Rau:
Low-Level-Radonmessungen für das Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO,
Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 1999
- [Rau00] W. Rau, G. Heusser:
 ^{222}Rn emanation measurements at extremely low activities,
Appl. Rad. & Isot. 53(1-2) (2000) 371-375
- [Rei88] R.C. Reid, J.M. Prausnitz, B.E. Poling:
The properties of gases and liquids,
NcGraw-Hill, New York, USA, 1988
- [Sag99] SAGE – Kollaboration (J.N. Abdurashitov et al.):
Measurement of Solar Neutrino Capture Rate with Gallium Metal,
Phys. Rev. C 60 (1999) 055801
- [Sag02] SAGE – Kollaboration (J.N. Abdurashitov et al.):
Measurement of Solar Neutrino Capture Rate by the Russian-American Gallium Solar Neutrino Experiment During one Half of the 22-Year Cycle of Solar Activity,
J. Exp & Theor. Phys. 95 (2002) 181–193
- [Sai81] A.S. Said:
Theorie und Mathematics of Chromatography,
Dr. Alfred Hüttig Verlag GmbH, Heidelberg 1981
- [Sch92] C. Schlosser:
Germanium-Ausbeutekontrolle und Charakterisierung von Untergrundbeiträgen im GALLEX Sonnenneutrino-Experiment,
Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 1992
- [Sch97] N. Schmitz:
Neutrino-physik,
Teubner Studienbücher: Physik, Stuttgart 1997
- [Sch99] S. Schönert:
Probing the Solar MSW Large Mixing Angle Solution with Terrestrial $\bar{\nu}_e$ from European Nuclear Reactors with BOREXINO,
Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 70 (1999) 195–198
- [Sim00] H. Simgen:
Messung von ^{222}Rn und ^{226}Ra in Wasser im Rahmen des Sonnenneutrinoexperimentes BOREXINO,
Diplomarbeit, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 2000
- [Sim03a] H. Simgen, C. Buck, G. Heusser, M. Laubenstein, W. Rau:
A new system for the radon and radium assay of water used in the BOREXINO solar neutrino experiment,
Nucl. Instr. & Meth. A 497(2-3) (2003) 407–413 ,

- [Sim03b] H. Simgen:
Hochempfindlicher Nachweis radioaktiver Edelgasnuklide und natürlicher Radionuklide aus der Uran-Zerfallsreihe,
Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg 2003
(eingereicht)
- [SK87] SUPERKAMIOKANDE – Kollaboration (K. Hirata et al.):
Observation of a neutrino burst from the supernova 1987A,
Phys. Rev. Let. 58 (1987) 1490–1493
- [SK88] SUPERKAMIOKANDE – Kollaboration (K. Hirata et al.):
Observation in the Kamiokande-II detector of the neutrino burst from supernova SN1987A,
Phys. Rev. D 38 (1988) 448–458
- [SK98] SUPERKAMIOKANDE – Kollaboration (T. Kajita et al.):
Atmospheric neutrino results from Super-Kamiokande and Kamiokande - Evidence for ν_{μ} oscillation -,
Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.) 77 (1999) 123–1832
- [SK02] SUPERKAMIOKANDE – Kollaboration (S. Fukuda et al.):
Determination of Solar Neutrino Oscillation Parameters using 1496 Days of Superkamiokande-I-Data,
Phys. Lett. B 539 (2002) 179–187
sowie: *Solar ^8B and hep Neutrino Measurements from 1258 Days of Super-Kamiokande Data*,
Phys. Rev. Let. 86 (2002) 5651–5655
- [SNC97] W. Hampel (Ed.) et al.:
Proceedings of 4. International Solar Neutrino Conference,
MPI Kernphysik, Heidelberg, 1997
- [SNO02a] SNO – Kollaboration (Q.R. Ahmad et al.):
Direct Evidence for Neutrino Flavor Transition from Neutral-Current Interactions in the Sudbury Neutrino Observatory,
Phys. Rev. Let. 89 (2002) 011301
- [SNO02b] SNO – Kollaboration (Q.R. Ahmad et al.):
Measurements of Day and Night Neutrino Spectra at SNO and Constrains on Neutrino Mixing Parameters,
Phys. Rev. Let. 89 (2002) 011302
- [Ste74] W.A. Steele:
Interaction of gases with solid surfaces,
Pergamon Press, Oxford, GB, 1974
- [Suw80] S. Suwanayeeun, R.P. Danner:
A Gas Adsorption Isotherm Equation Based on Vacancy Solution Theory,
AIChE J. 26(1) (1980) 68–75
- [Und96] D. W. Underhill:
The adsorption of argon, krypton and xenon on activated charcoal,
Health Physics 71(2) (1996) 160–166
- [Vog96] R. B. Vogelaar, J. Benzinger, F.P. Calaprice, N. Darnton:
Removal of cosmogenic ^7Be from Scintillators,
Nucl. Instr. & Meth. A 372 (1996) 59–62
- [Wea75] R.C. Weast (Editor):
Handbook of Chemistry and Physics,
CRC-Press, Cleveland, Ohio, 55. Edition 1974–1975
- [Wei92] W. Weiss, H. Sartorius, H. Stockburger:
Global distribution of atmospheric ^{85}Kr - a database for the verification of transport and mixing models,
Proceedings Consultants' Meeting on Isotopes of Noble Gases as Tracers in Environmental Studies, Vienna 1989, page 29, Vienna IAEA (1992)

- [Win88] R. Wink:
Low-Level ^{71}Ge -Nachweis,
Dissertation, Universität Heidelberg und Max-Planck-Institut für Kernphysik, 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,
Nucl. Instr. & Meth. A 329 (1993) 541–50
- [Wol78] L. Wolfenstein:
Neutrino oscillation in matter,
Phys. Rev. D 17 (1978) 2369–2374
- [Woj00] M. Wójcik, W. Wlazolek, G. Zuzel, G. Heusser:
Radon diffusion through polymer membranes used in the solar neutrino experiment BOREXINO,
Nucl. Instr. & Meth. A 449 (2000) 158–177
- [Zae98] M. Zähringer:
Beitrag des IAR zur Verifikation des Vertrages über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen,
Jahresbericht 1997 des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS), Institut für Atmosphärische Radioaktivität, Fachbereich Strahlenhygiene, Wissenschaftliche Kurzberichte, Seite 83, Salzgitter 1998
- [Zuz02a] G. Zuzel:
 ^{226}Ra in the nylon scintillator as a background source in the Solar Neutrino Experiment BOREXINO,
Dissertation, Max-Planck-Institut für Kernphysik (Heidelberg) und Jagellonian University (Kraków, Polen), Kraków 2002
- [Zuz02b] G. Zuzel, M. Wójcik, C. Buck, W. Rau, G. Heusser:
Ultra-traces of ^{226}Ra in nylon used in the BOREXINO solar neutrino experiment,
Nucl. Instr. & Meth. A 498 (2003) 240–255
- [Zuz03] G. Zuzel et al.:
Ar and Kr in nitrogen measured by mass spectrometry,
Vortrag T 605.5, DPG-Frühjahrstagung, Aachen, März 2003, sowie
Investigation of Ar and Kr in nitrogen for the Borexino experiment,
Poster KH 15.3, DPG-Frühjahrstagung, Tübingen, März 2003

Danksagung

In deinen Händen hältst du, liebe(r) Leser(in), Papier und Druckerschwärze, Zeugnis und (hoffentlich) krönender Abschluß einer turbulenten und spannenden (Lehr-)Zeit in der Welt der Wissenschaft. Was nicht in Maß und Zahl zu fassen ist, ist der Anteil Dritter am Erfolg dieser Periode.

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

Mein Doktorvater Herr Prof. Dr. Till Kirsten ermöglichte mir, im internationalen Kreis junger und junggebliebener Wissenschaftler bei einem faszinierenden Projekt mitzuarbeiten, Erfahrungen zu sammeln und regelmäßig im LNGS zum Einsatz zu kommen. Freiheit und Rückhalt auch in schweren Zeiten haben mir geholfen, das angestrebte Ziel zu erreichen.

Ich danke Herrn Prof. Gianpaolo Bellini (Universität und INFN Mailand, Sprecher der BOREXINO-Kollaboration), dass er mich im Rahmen des Marie-Curie-Fellowship-Programms der EU als Stipendiat vorgeschlagen und ans LNGS eingeladen hat.

Mein Dank gilt allen Kolleginnen und Kollegen, speziell der Heidelberger Mannschaft: Christian Buck, Dr. Martina Falter, Prof. Dr. Wolfgang Hampel, Dr. Johann Handt, Dr. Francis Xavier Hartmann, Dr. Gerd Heusser, Michael Hißmann, Dr. Jens Hopp, Florian Kaether, Dr. Jürgen Kiko, Dr. Thierry Lassere, Dr. Matthias Laubenstein, Dario Motta, Hermino Neder, Dr. Josefa Oehm, Peter Peiffer, Dr. Wolfgang Rau, Dr. Elisa Resconi, Dr. Georg Rugel, Dr. Stefan Schönert, Hardy Simgen und Dr. Grzegorz Zuzel für ihre Mitarbeit und Hilfe, Geduld und Zuversicht, lehrreiche und/oder interessante Diskussionen und Gespräche am Tage oder zu späterer Stunde, Kleinteile überlassen, gelegentliches Zählrohrfüllen, vom Bus abholen, Dolmetschen, Kost und Logis, Korrekturlesen, ... oder einfach nur für freundschaftliches von-der-Arbeit-Abhalten.

Liebe, geduldige und hilfreiche Nachbarn waren Ruth Alberts, Erich Borger, Erhard Burkert, Peter Mögel, Hannes Richter und Ute Schwan, auch wenn ich zum x-ten mal wegen irgendeiner Kleinigkeit zu ihnen kam. Ich danke allen Mitarbeitern der Institutswerkstätten, die bei der Verwirklichung der Ideen unverzichtbar waren und die gute Arbeit geleistet haben.

Mein Dank gilt den Kollegen Ludwig Niedermeier und Christian Lendvai von der TU München, die mir in ihrem Apartment in L'Aquila Unterkunft gewährten und mit denen ich nach des Tages Mühen so manche Pizza und den einen oder anderen Amaro vernichtet habe.

I wish to thank all members of the various collaborations at LNGS, esp. BOREXINO, GALLEX / GNO and LENS, for many fascinating and motivating conversations about physics, geography, history, religion, politics, ... and for many strongly motivating drinks.

Manchmal geht das Leben verrückte Wege – dann ist es gut, wenn man Freunde hat, auf die man sich verlassen kann. Mein besonderer Dank gilt Jörg und Susanne, Norman und Cordelia, Hartwig und Esther, Murphy, Günter, Georg und Markus.

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

Vivat Academia!

