

# Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit

Im Studiengang Physik

vorgelegt von

**Sebastian Lindemann**

aus Freiburg im Breisgau

Heidelberg, 2009



# Reinigung und Nachweis von Edelgasen mit miniaturisierten Proportionalzählrohren

Die Diplomarbeit wurde von Sebastian Lindemann

ausgeführt am

Max-Planck-Institut für Kernphysik

unter der Betreuung von

Herrn Prof. Wolfgang Hampel

sowie von

Herrn Prof. Wolfgang Krätschmer



## Zusammenfassung

### Reinigung und Nachweis von Edelgasen mit miniaturisierten Proportionalzählrohren

Chemische Inertheit und hohe Mobilität machen radioaktive Edelgasisotope wie  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{222}\text{Rn}$  zu einer kritischen Untergrundkomponente bei der Suche nach extrem seltenen Ereignissen wie dem neutrinolosen Doppel-Betazerfall, oder den elastischen Stößen von WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) mit Atomkernen.

In dieser Arbeit wird mit Hilfe von miniaturisierten Proportionalzählrohren zum einen das Verhalten des radioaktiven Edelgases Radon bei kryogenen Temperaturen untersucht, zum anderen wird die erste  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätsbestimmung in Luft in Italien durchgeführt.

Messungen der in eine gasförmige Heliumatmosphäre emanierenen  $^{222}\text{Rn}$ -Atome ergeben, dass mindestens 97% der Radonatome an auf Flüssigargon (LAr)-Temperatur gekühlten Edelstahloberflächen ausfrieren. Weiter wird gezeigt, dass nur ein Anteil  $\alpha = (0,33 \pm 0,11)$  der in eine LAr-Atmosphäre emanierenen  $^{222}\text{Rn}$ -Atome an den sich ebenfalls auf LAr-Temperatur befindlichen Edelstahloberflächen ausfriert.

Zur atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätsbestimmung wird eine Methode vorgestellt, die es ermöglicht diese Konzentration in einer Luftprobe bis zu einer Größe von 1 Liter (STP) mit einer minimal zu detektierenden Aktivität von 0,1 mBq bei einer 10-tägigen Datennahme zu bestimmen. Mit dieser Methode wurde die erste atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration Italiens anhand einer in Halle A der Untergrundlabore LNGS (Laboratori Nazionali del Gran Sasso) genommenen Luftprobe zu  $(1,33 \pm 0,16) \text{ Bq/m}^3$  (STP) bestimmt.

## Abstract

### Purification and detection of inert gases using miniaturized proportional counters

Radioactive isotopes of noble gases like  $^{85}\text{Kr}$  and  $^{222}\text{Rn}$  are a critical source of background when searching for extremely rare events, like those of the neutrino-less double beta decay or the interaction of a WIMP (Weakly Interacting Massive Particles) with an atomic nucleus.

Using miniaturized proportional counters, in this thesis both the behavior of the radioactive noble gas Radon at cryogenic temperatures and the atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  activity of air in Italy is studied. Measurements of  $^{222}\text{Rn}$  atoms that are emanated into a gaseous helium atmosphere yield that at least 97% of the initially emanated  $^{222}\text{Rn}$  atoms freeze out on stainless steel surfaces at liquid argon (LAr) temperature. In addition, only a fraction  $\alpha = (0,33 \pm 0,11)$  of the  $^{222}\text{Rn}$  atoms is shown to freeze out on the cooled stainless steel surfaces when emanated into a LAr atmosphere. In order to determine the atmospheric activity of  $^{85}\text{Kr}$  in air, a method is presented that allows for a quantitative  $^{85}\text{Kr}$  detection in 1 liter (STP) air samples. From the measurements, a minimal detectable activity of about 0,1 mBq for 10 days of data taking is obtained. Using the same method, the atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  activity in air sampled at Hall A of the Gran Sasso National Laboratory (LNGS) is - for the first time in Italy - measured to be  $(1,33 \pm 0,16) \text{ Bq/m}^3$  (STP).

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Astroteilchenphysik . . . . .	1
1.2	Allgemeines zu radioaktiven Edelgasnukliden . . . . .	3
1.3	Low-Level-Experimente . . . . .	5
1.3.1	Das Experiment GERDA . . . . .	5
1.3.2	Das Experiment XENON . . . . .	7
<b>2</b>	<b>Edelgasmessungen</b>	<b>9</b>
2.1	Adsorption und Chromatographie . . . . .	9
2.1.1	Adsorption . . . . .	9
2.1.2	Chromatographie . . . . .	10
2.2	Miniaturisierte Proportionalzählrohre . . . . .	12
2.2.1	Aufbau eines Proportionalzählrohres . . . . .	12
2.2.2	Signalentstehung . . . . .	13
2.3	Emanation . . . . .	14
2.4	Edelgasproben . . . . .	16
2.4.1	Luftproben . . . . .	18
2.4.2	Emanationsproben . . . . .	18
2.5	Experimentelle Anlagen . . . . .	18
2.5.1	Anlagen zur Gasmengenreduktion . . . . .	19
2.5.2	Gasline . . . . .	20
<b>3</b>	<b>Radonmessungen</b>	<b>24</b>
3.1	Der GERDA-Kryostat . . . . .	24
3.2	Kalte Emanation . . . . .	26
3.2.1	Versuchsaufbau . . . . .	26
3.2.2	Proben . . . . .	30
3.2.3	Durchführung und Ergebnisse . . . . .	32
3.2.4	Interpretation . . . . .	38
3.3	Konsequenzen für den GERDA-Kryostaten . . . . .	42

<b>4 Kryptonmessungen</b>	<b>44</b>
4.1 Prozedur zur Abtrennung von Krypton aus Luft . . . . .	46
4.2 DAQ: Datennahmesystem und Myonveto . . . . .	49
4.2.1 Verstärkerbox . . . . .	50
4.2.2 Myonveto und Bleiabschirmung . . . . .	50
4.2.3 Datennahme . . . . .	51
4.3 Kalibrierung der Proportionalzählrohre . . . . .	54
4.3.1 Die Cer-Röntgenquelle . . . . .	55
4.3.2 Fit des CeX-Linienspektrums . . . . .	59
4.3.3 Bestimmung der Nachweiseffizienz . . . . .	64
4.4 Charakterisierung von Xe-CH <sub>4</sub> Zählgasmischungen . . . . .	68
4.5 Tests der Messprozedur . . . . .	71
4.5.1 Tests der Reinigungsprozedur . . . . .	71
4.5.2 Tests des Datennahmesystems . . . . .	73
4.6 Ergebnisse der Luftmessungen . . . . .	74
<b>5 Zusammenfassung</b>	<b>77</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>82</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	GERDA-Modell . . . . .	6
1.2	XENON-Modell . . . . .	8
2.1	Diffusions- und rückstoßgetriebene Emanation . . . . .	17
2.2	Gasline . . . . .	21
3.1	Setup der drei Aufbauten für die Messung der „kalten“ Emanation . . . . .	27
3.2	Setup der „kalten“ Emanation mit Nachfüllautomatik . . . . .	28
3.3	Umschüttvorgang . . . . .	29
3.4	Aluminiumfolie und WTh Schweißelektroden . . . . .	31
3.5	100 WTh Elektroden mit LARTRAP . . . . .	32
3.6	Füllen der LARTRAP mit LAr . . . . .	36
4.1	Atmosphärische $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätskonzentration . . . . .	45
4.2	DAQ System . . . . .	49
4.3	Verstärkerbox . . . . .	50
4.4	Myonveto . . . . .	53
4.5	Zerfallsschema von $^{85}\text{Kr}$ . . . . .	54
4.6	Aktiv- und Totvolumen eines Proportionalzählrohres . . . . .	55
4.7	Weglaengenspektrum und Energieverlust . . . . .	56
4.8	CeX Spektrum . . . . .	57
4.9	Linienpektrum der CeX-Eichung . . . . .	60
4.10	Fit eines CeX Eichspektrums . . . . .	63
4.11	Pulshöhenspektrum des $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls . . . . .	65



# Tabellenverzeichnis

1.1	Eigenschaften von $^{85}\text{Kr}$ und $^{222}\text{Rn}$ . . . . .	3
2.1	Kritische Größen von Gasen . . . . .	11
2.2	Rückstoßreichweite eines $^{222}\text{Rn}$ -Ions in Materie . . . . .	17
3.1	$^{222}\text{Rn}$ -Messungen des GERDA-Kryostaten . . . . .	25
3.2	Ergebnisse der Vergleichsmessungen „warme vs. kalte“ Emanation. Für Fel- der, die mit einem „-“ gekennzeichnet sind, wurde aus den im Text genannten Gründen kein Wert gemessen. Der fett hervorgehobene Wert kann nur un- ter Voraussetzung einiger später im Text getroffener Annahmen gewonnen werden und sollte daher unter Vorbehalt gesehen werden. . . . .	33
3.3	Ergebnisse der Messserie „Pumpen“ . . . . .	35
3.4	Ergebnisse der Messserie „Aufwärmen“ . . . . .	35
3.5	Ergebnisse der kalten Emanation in LAr . . . . .	38
4.1	K-Röntgenlinien von Cer und Xenon . . . . .	58
4.2	Effizienzen und Untergrund von #126 und #172 . . . . .	66
4.3	mdA des $^{85}\text{Kr}$ -Systems für verschiedene relative Fehler . . . . .	69
4.4	Vergleich verschiedener Zählgasmischungen . . . . .	70



# Kapitel 1

## Einleitung

### 1.1 Astroteilchenphysik

Kosmologie könnte als die älteste und umfassendste Theorie bezeichnet werden, da sie sich zum Ziel gesetzt hat ein Weltbild zu entwerfen und das Universum als Ganzes zu beschreiben. Damit lassen sich im weiteren Sinne die Physik, die Astronomie, aber auch die Theologie und die Philosophie in einen kosmologischen Gedanken einordnen.

Kosmologie liefert Modelle, die die Entstehung des Universums, seine Vergangenheit, wie auch sein zukünftiges Werden beschreibt. Zu den aufregendsten Erkenntnissen der letzten Zeit zählt dabei die Erkenntnis, dass die Erforschung der Welt im Großen sehr eng mit der Erforschung der Welt im Kleinen verknüpft ist.

Teilchenphysik, bei der die kleinsten Bausteine der uns umgebenden Materie untersucht werden, und Kosmologie sind nun ihrerseits über die Wechselwirkungen dieser kleinsten Bauteile miteinander verbunden, da gerade diese Wechselwirkungen zu einer extrem frühen Phase unseres Universums dessen Entwicklung stark beeinflusst haben. So können kosmologische Modelle sich nur dann dauerhaft halten, wenn die ihnen zugrundeliegenden Eigenschaften der benötigten Materiebausteine nicht im Rahmen von teilchenphysikalischen Experimenten ausgeschlossen werden.

So kann dies zum Beispiel mit der Frage, warum es Materie gibt, gehandhabt werden:

Unter einer perfekten Symmetrie würde man erwarten, dass sich im frühen Universum gleich viel Materie wie Antimaterie bildet. Dies hätte jedoch zur Folge, dass diese sich gegenseitig vernichten würde und es würde im gegenwärtigen Universum nur Strahlung geben – was offensichtlich nicht der Fall ist.

Der (kosmologische) Mechanismus der Leptogenese, der diesen Widerspruch aufzuklären versucht, benötigt Teilchen, die gleichzeitig ihre eigenen Antiteilchen darstellen. Für diese Teilchen kommen Neutrinos in Frage. Der Part der Teilchenphysik besteht nun darin herauszufinden, ob Neutrinos tatsächlich ihre eigenen Antiteilchen sind.

Ein Experiment, das unter anderem diese Frage zu klären versucht, ist das später ausführlicher besprochene Experiment GERDA. Hier wird der neutrinolose Doppel-Betazerfall des  $^{76}\text{Ge}$ -Isotops untersucht, der nur stattfinden kann, falls das Neutrino so genannte Majoranateilchen-Natur besitzt, also sein eigenes Antiteilchen ist.

Falls Zerfallskanäle dieses neutrinolosen Doppel-Betazerfalls existieren, so ist die Wahrscheinlichkeit eines solchen jedoch noch geringer als die eines Doppel-Betazerfalls mit zwei Neutrinos.

Seit etwa zwei Jahrzehnten ist zudem immer deutlicher geworden, dass die Dynamik großer Galaxien und Galaxienhaufen nicht ohne eine neue, „unsichtbare“ Materieform erklärbar ist. Da diese nur sehr schwach mit der uns bekannten baryonischen Materie wechselwirkt, hat sie den Namen Dunkle Materie erhalten.

Um die beobachtete, beschleunigte Expansion unseres Universums erklären zu können, muss neben der baryonischen und der Dunklen Materie zusätzlich die sogenannte Dunkle Energie eingeführt werden. Nach derzeitiger Vorstellung besteht das Universum nur zu 5 % aus der uns bekannten baryonischen Materie, sowie zu 25 % aus Dunkler Materie und zu 70 % aus Dunkler Energie.

Woraus nun die Dunkle Materie besteht, ist bisher nicht geklärt. Eine Reihe kosmologischer Beobachtungen hat jedoch zu der Überzeugung geführt, dass sie aus noch unbekanntem Elementarteilchen besteht. Diese Teilchen sollten in etwa die Masse eines schweren Atomkerns haben. Auch aus der teilchenphysikalischen Sicht erwartet man aus ganz anderen Gründen, dass es Teilchen jenseits des Standardmodells gibt, deren Eigenschaften den für die Dunkle Materie benötigten entspricht.

Da jedoch die Wechselwirkungen dieser Teilchen so gering sind, sind beobachtbare Signale, die bei einer Wechselwirkung mit baryonischer Materie entstehen könnten, sehr selten.

Der neutrinolose Doppel-Betazerfall, wie auch die Suche nach Dunkler Materie sind Beispiele für den Versuch extrem seltene Ereignisse zu beobachten. Sollen Experimente in ihrer Suche erfolgreich sein, so ist es nötig ganz neue Wege der experimentellen Physik zu beschreiten.

Während in experimentellen Beschleunigeranlagen wie dem Large Hadron Collider (LHC) ein immer größeres Problem darin besteht, die anfallenden Datenraten verarbeiten zu können, so ist das große Problem sogenannter Low-Level-Experimente wie GERDA, das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu kontrollieren.

Da die Rate der gesuchten Ereignisse aber extrem gering ist, muss es möglich sein den verwendeten Detektor auf großen Zeitskalen (meist mehrere Jahre) stabil untergrundfrei zu halten. Daraus ergeben sich große Herausforderungen an aktive wie passive Abschirmung vor äußeren Einflüssen (wie der kosmischen Strahlung), sowie an die genaue Selektion der innerhalb dieser Abschirmung verwendeten Materialien.

	$^{85}\text{Kr}$	$^{222}\text{Rn}$
Produktion	$^{235}\text{U}$ -Spaltung	$^{238}\text{U}$ -Reihe ( $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn} + \alpha$ )
Halbwertszeit	10,8 a	3,8 d
Aktivität		
im eigenen, natürlichen Isotopenverhältnis	1,4 MBq/m <sup>3</sup>	∄ stabile Isotope
in Luft	1,5 Bq/m <sup>3</sup>	10 - 100 Bq/m <sup>3</sup> (ortsabhängig)

**Tabelle 1.1:** Eigenschaften der in dieser Arbeit betrachteten radioaktiven Edelgasnuklide  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{222}\text{Rn}$ .

## 1.2 Allgemeines zu radioaktiven Edelgasnukliden

Will man die in der Natur vorkommenden Radionuklide kategorisieren, so kann man beispielsweise eine der folgenden beiden Möglichkeiten wählen: Eine Unterteilung nach ihrem Ursprung und eine nach ihren chemischen Eigenschaften. Die im Folgenden zitierten Daten sind [MPG06] zu entnehmen.

**Nach Ursprung** Radionuklide können primordial vorhandenen, anthropogen geschaffen und durch Aktivierung (meist durch kosmische Strahlung) erzeugt werden. Zu den primordial vorhanden gehören die den zugehörigen Zerfallsreihen den Namen gebenden Ausgangskerne  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$ , sowie alle darauf folgenden Tochternuklide. Alle diese drei natürlichen Zerfallsreihen enden schließlich auf einem stabilen Bleiisotop. Neben diesen Zerfallsketten gibt es einige langlebige leichtere Elemente, die sich ebenfalls in diese Kategorie einteilen lassen, wie beispielsweise das  $^{40}\text{K}$ .

Seit der Mensch in der Lage ist gezielt Atomkerne zu spalten, sammeln sich in der Natur auch diejenigen Spaltprodukte an, deren Halbwertszeit in der gleichen Größenordnung ist, wie die Zeitskala, in der sie produziert werden. Typische Vertreter dieser Klasse sind  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{137}\text{Cs}$ .

Aktivierte Nuklide schließlich können durch Kernreaktion an allen Kernen entstehen. Insbesondere durch kosmische Strahlung aktiviert entstehen so in allen Materialien für Low Background Experimente kritische Verunreinigungen.

**Nach chemischer Eigenschaft** Betrachtet man alternativ die chemischen Eigenschaften der in der Natur vorkommenden Radionuklide, so stellt man fest, dass bis auf das Edelgas Radon alle in den natürlichen Zerfallsreihen von Uran und Thorium vorkommenden Radionuklide metallischen Charakter haben. Für Low Background Experimente wird es also zumindest notwendig sein, Zugriff auf Reinigungs- und Messtechniken für Metalle sowie Edelgase zu haben.

Die drei am häufigsten in der Natur vorkommenden radioaktiven Edelgasnuklide sind  $^{39}\text{Ar}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{222}\text{Rn}$ . Helium und Neon dagegen besitzen gar keine instabilen Nuklide, die eine Halbwertszeit von mehr als nur wenigen Sekunden besitzen. Andere radioaktive Edelgasnuklide sind entweder sehr kurzlebig, oder werden nicht in hinreichend starkem Maße produziert. Neben dem  $^{39}\text{Ar}$  gibt es so zwei weitere radioaktive Argonnuklide, die mit  $t_{1/2} = 35 \text{ d}$  ( $^{37}\text{Ar}$ ) und  $t_{1/2} = 33 \text{ a}$  ( $^{42}\text{Ar}$ ) eine lange Halbwertszeit besitzen. Krypton besitzt neben  $^{85}\text{Kr}$  noch das Nuklid  $^{81}\text{Kr}$  ( $t_{1/2} = 2.3 \cdot 10^5 \text{ a}$ ) mit einer langen Halbwertszeit.  $^{127}\text{Xe}$  ( $t_{1/2} = 27 \text{ d}$ ) ist das langlebigste Nuklid von Xenon, das mit  $^{133}\text{Xe}$  ein weiteres radioaktives Nuklid besitzt, das mit  $t_{1/2} = 5,3 \text{ d}$  zwar kurzlebiger ist, aber häufig als Spaltprodukt von  $^{235}\text{U}$  entsteht und dem somit eine größere Bedeutung zukommt. Radon besitzt schließlich zu dem erwähnten  $^{222}\text{Rn}$  die Nuklide  $^{219}\text{Rn}$  und  $^{220}\text{Rn}$ , die in den beiden anderen natürlichen Zerfallsreihen entstehen und die beide eine Halbwertszeit von unter einer Minute besitzen.

Das radioaktive Edelgas Radon nimmt bei Low Background Experimenten eine gesonderte Stellung ein, da es im Gegensatz zu  $^{39}\text{Ar}$  und  $^{85}\text{Kr}$  nicht direkt in ein stabiles Isotop zerfällt, sondern in jeder der drei Zerfallsketten von einer Reihe  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -strahlenden Isotopen gefolgt wird und somit für nahezu jedes solche Experiment eine potenzielle Untergrundquelle darstellt. Im Vergleich dazu ist  $^{39}\text{Ar}$  ein reiner  $\beta$ -Strahler mit einer Endpunktenergie von 565 keV;  $^{85}\text{Kr}$  ein  $\beta$ -Strahler mit einer Endpunktenergie von 687 keV und einem unterdrückten (0.43 %)  $\gamma$ -Zerfallskanal ( $E_\gamma = 514 \text{ keV}$ ), wie in Abbildung 4.5 gezeigt ist.

Die chemische Inertheit der Edelgase, das heißt die Tatsache, dass Edelgase quasi keine chemischen Bindungen eingehen, ist nun ein zentraler Punkt. Er garantiert einerseits, dass sich diese Edelgase so gut wie nicht fest in Materialgefüge einbauen lassen und sie somit einfacher entfernbar sind. Die Reinigung von Oberflächenverschmutzungen ist somit ebenfalls deutlich einfacher, als dies bei einer Oberflächenkontamination durch metallische radioaktive Isotope der Fall ist, die sich nur durch aggressive Behandlung der Flächen entfernen lassen. Andererseits ist es durch die chemische Inertheit deutlich schwieriger Edelgase von bestimmten Stellen fern zu halten, da die deutlich geringeren zwischenatomaren und -molekularen Kräfte eine stärkere Diffusionsfähigkeit der Edelgase bewirken und sie somit leichter als andere Elemente durch Dichtungen und Mikroleckagen kommen und ein ernsthaftes Kontaminationsproblem darstellen.

Will man Edelgase aus anderen Medien entfernen, so stehen im Wesentlichen die folgenden beiden Methoden zur Verfügung: die Reinigung über das unterschiedliche Löslichkeitsvermögen verschiedener Materialien und die Reinigung durch Adsorption.

Werden zwei Medien miteinander in Kontakt gebracht, so stellt sich im Gleichgewicht ein charakteristisches Konzentrationsverhältnis von in den Medien gelösten Gasen ein. Dies kann ausgenutzt werden, indem das zu reinigende Medium A in Kontakt mit einem Medium B gebracht wird, dessen Gehalt an dem zu reinigenden Edelgas X so niedrig ist, dass Teilchen X von A nach B übergehen, während sich das Gleichgewicht zwischen den beiden Medien einstellt. Die zweite und in dieser Arbeit verwendete Methode der Adsorption wird ausführlich in Abschnitt (2.1) behandelt.

## 1.3 Low-Level-Experimente

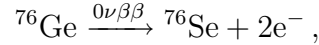
Die in dieser Arbeit durchgeführten Mess- und Reinigungsverfahren von Edelgasen wurden durch konkrete Probleme und offene Fragen speziell des Low-Level-Experiments GERDA (GERmanium Detector Array), sowie durch Fragestellungen zu aktuellen wie zukünftigen und auf flüssig Xenon (LXe) basierenden Experimenten wie XENON angestoßen. Ergebnisse können jedoch Relevanz für die meisten mit flüssig Argon (LAr), beziehungsweise flüssig Xenon arbeitenden Experimente haben.

Deshalb soll im folgenden Abschnitt das  $0\nu\beta\beta$ -Experiment GERDA mit seiner Untergrundproblematik dargestellt werden und dadurch auch die Relevanz für andere auf Flüssigelgasen basierende Low-Level-Experimente aufgezeigt werden.

Im Anschluss daran soll kurz das Experiment XENON erwähnt werden, da hier die Kryptonproblematik besser verständlich wird und so der experimentelle, zweite Teil dieser Arbeit motiviert wird.

### 1.3.1 Das Experiment Gerda

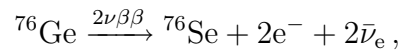
Das GERDA (GERmanium Detector Array) Experiment [GERDA04], das sich in den Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS) in den italienischen Abruzzen in einer Tiefe von etwa  $1400\text{m}^1$  befindet, sucht nach der Existenz des neutrinolosen Doppelbetazerfalls ( $0\nu\beta\beta$ ) von  $^{76}\text{Ge}$



wobei es das  $^{76}\text{Ge}$  sowohl als Target-, als auch als Detektormaterial nutzt. Dieser Zerfall ist aufgrund seiner doppelten Verletzung der Leptonzahlerhaltung vom Standardmodell ausgeschlossen und stellt im Falle seiner Entdeckung einen direkten Nachweis von Physik jenseits des Standardmodells dar.

$^{76}\text{Ge}$  kann nicht durch einen einfachen Betazerfall zerfallen, da die benachbarten Kerne  $^{76}\text{Ga}$  und  $^{76}\text{As}$  energetisch höher liegen.  $^{76}\text{Se}$  liegt jedoch energetisch unterhalb von  $^{76}\text{Ge}$  und somit ist ein doppelter Betazerfall von  $^{76}\text{Ge}$  nach  $^{76}\text{Se}$  möglich.

Der im Standardmodell erlaubte doppelte Betazerfall ( $2\nu\beta\beta$ )



bei dem zwei Neutrinos entstehen, wird in GERDA ein kontinuierliches Summenspektrum der Energien der beiden entstehenden Elektronen erzeugt, da auch die beiden im Zerfall beteiligten Neutrinos Energie und Impuls tragen und undetektiert bleiben. Dieses Summenspektrum würde, im Falle der neutrinolosen Doppel-Betazerfall existiert<sup>2</sup>, von einem

<sup>1</sup>Dies entspricht einer Abschirmung durch das Gestein von etwa 3800 m w.e.. (w.e. = Wasseräquivalent)

<sup>2</sup>In [KKV06] wird ein Signal bei  $Q_{\beta\beta}$  des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfallkanals von  $^{76}\text{Ge}$  bereits mit  $6.4\sigma$  Konfidenzlevel angegeben und die zugehörige Halbwertszeit zu  $T_{1/2}^{0\nu\beta\beta} = (2, 23_{-0,31}^{+0,44}) \cdot 10^{25}$  a bestimmt.



**Abbildung 1.1:** Foto eines GERDA-Modells. Zu sehen ist der prinzipielle Aufbau der nackt in einem mit LAr gefüllten Edelstahl-Kryostaten betriebenen Germaniumdetektoren. Im Kryostaten kann das zusätzlich angebrachte Kupfer deutlich erkannt werden. Mittlerweile ist eine mechanische Barriere gegen eine konvektionsbedingte Fokussierung von  $^{222}\text{Rn}$ -Atomen auf die Detektoren installiert, die in diesem Modell noch nicht vorgesehen war.

scharfen Peak bei einer Energie von  $Q_{\beta\beta} = 2039$  keV überlagert sein, also gerade bei der Endpunktsenergie des  $2\nu\beta\beta$ -Zerfalls.

Um diesen zum neutrinolosen Doppelbetazerfall gehörenden Peak zu vermessen und im besten Fall eine Halbwertszeit für den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfallskanal von  $^{76}\text{Ge}$  angeben zu können, muss der Untergrund um diese Energie genauestens bekannt und so niedrig wie möglich sein. Das Ziel der GERDA - Kollaboration ist im Bereich von  $Q_{\beta\beta}$  einen Untergrund kleiner  $0.01$  Counts/(kg·keV·a) zu erreichen, was bei einer geplanten Exposition von  $15$  kg·a zu einem Limit von  $T_{1/2}^{0\nu\beta\beta} > 2.2 \cdot 10^{25}$  a (90% c.l.) und damit zu einer Überprüfung von [KKV06] nach bereits 1 Jahr Messdauer<sup>3</sup> führt.

Wie in Abbildung 1.1 gezeigt, sieht der experimentelle Aufbau GERDAS vor, die Germaniumkristalle „nackt“, das heißt ohne ein Metallbehältnis geschützt, in flüssigem Argon (LAr) zu betreiben. Das LAr dient dabei sowohl der Kühlung der Germaniumkristalle, als auch der passiven Abschirmung durch äußere Strahlung. Der innere und das LAr beinhaltende Edelstahlkryostat ist seinerseits von einem größeren Tank umgeben. Dieser wird mit Photomultipliern ausgestattet und mit Wasser gefüllt ein aktives Myonveto darstellen.

Wie in 1.2 angeführt, stellt das radioaktive Edelgas  $^{222}\text{Rn}$  eine besonders kritische Untergrundkomponente dar. Zum einen kann das beim  $^{222}\text{Rn}$  Zerfall frei werdende  $\alpha$ -Teilchen, das im flüssigen Argon eine Reichweite von etwas unter einem Millimeter hat, bei detektor-nahem Zerfall im betrachteten Intervall um  $Q_{\beta\beta}$  Energie deponieren. Zum andern können

<sup>3</sup>In Phase I des GERDA Experiments sind  $18$  kg Germanium mit einem Anreicherungsanteil von  $86\%$  an  $^{76}\text{Ge}$  geplant.



auch  $\gamma$ 's der  $^{222}\text{Rn}$ -Tochter  $^{214}\text{Bi}$  mit ihrer größeren Reichweite das Detektorvolumen erreichen und dort Untergrundsignale erzeugen.

Es stellt sich nun die Frage, wie sich die  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation von Bauteilen, die sich innerhalb des Detektorvolumens befinden, bei den vorherrschenden kryogenen Temperaturen im Kryostaten verhält. Es existieren zwar Ideen, mit deren Hilfe versucht wird diese Fragen zu beantworten, diese führen jedoch zu widersprüchlichen Aussagen und eine genaue Analyse der Sachlage ist nötig.

### 1.3.2 Das Experiment Xenon

„XENON Dark Matter Search“ [XENON05] ist ein in mehrere Phasen aufgeteiltes Programm, das auf direkte Weise versucht WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) nachzuweisen. Diese schwach wechselwirkenden WIMPs könnten einen Großteil der nicht-baryonischen dunklen Materie unseres Universums ausmachen. Das XENON Programm besteht derzeit aus XENON10, XENON100, sowie dem geplanten XENON1T, wobei die auf XENON folgenden Zahlen die Größenordnung der Masse des beim Experiment verwendeten aktiven Volumens<sup>4</sup> in Kilogramm indizieren.

Der Nachweis von Dunkler Materie in Form von WIMPs soll durch elastische Stöße dieser WIMPs am Xenon-Atomkern geschehen. Die somit auf den Atomkern übertragene Energie kann dann durch die 2-phasige (flüssig/gasförmig) TPC (Time Projecting Chamber) nachgewiesen werden. Dabei wird sowohl das im Flüssigxenon (LXe) entstehende Szintillations-signal, als auch das durch Ladungsträgerdrift verspätete Ionisationssignal im gasförmigen Xenon (GXe) ausgewertet. (Sobald die durch die Ionisation entstandenen Elektronen durch das anliegende elektrische Feld in das gasförmige Xenon gelangen, erzeugen sie dort ein zur ursprünglichen Anzahl der bei der Ionisation entstandenen Elektronen proportionales Szintillationssignal, das ebenfalls mit den Photomultipliern ausgelesen wird.)

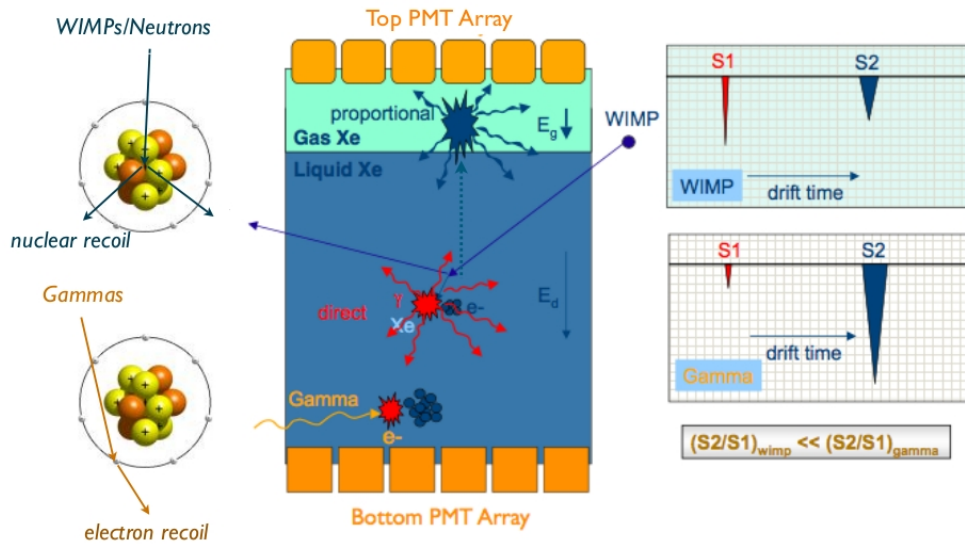
Der große Vorteil einer solchen 2-phasigen TPC ist nun die Möglichkeit Elektron- von Kernrückstößen zu unterscheiden. Aufgrund der unterschiedlichen Geometrie der Trajektorien der beiden verschiedenen Rückstoßteilchen im LXe, sowie der unterschiedlichen Ionisationsdichten, die sie dort hervorrufen, gibt das Verhältnis von langsamem Ionisations- zu schnellem Szintillationssignal Aufschluss darüber, um was für eine Art von Teilchen es sich bei der Energiedeposition handelte.

Da nun der Nachweis von WIMPs über einen elastischen Stoßprozess mit einem Xenon-Kern erfolgen soll, Untergrundereignisse durch Compton-Streuung an Elektronen durch externe Gammas, beziehungsweise Elektronen aus einem Beta-Zerfall entstehen, kann durch diese Technik der Untergrund um etwa 95% [A+02] reduziert werden.

In Abbildung 1.2 ist schematisch das Funktionsprinzip dieser 2-phasigen TPC mit der Möglichkeit der Untergrundreduktion, wie sie weiter oben im Text erläutert ist, dargestellt.

---

<sup>4</sup>Engl.: fiducial volume



**Abbildung 1.2:** Funktionsskizze der 2-phasigen TPC des XENON100-Detektors mit dem Mechanismus der Untergrundreduktion. Ganz links sind die beiden möglichen Rückstoß-Ereignisse gezeigt, die im Detektor ein Signal verursachen. In der Mitte ist die Signalentstehung im LXe (rot), sowie im GXe (blau) gezeigt. Ganz rechts ist dann die Signalausbeute für die beiden prinzipiellen Signale gezeigt. Quelle: [Apr09].

Das derzeitige Ziel von XENON100 ist es bis Ende des Jahres 2009 eine obere Grenze des spin-unabhängigen Wirkungsquerschnittes der WIMP-Xe-Streuung von  $2 \cdot 10^{-45} \text{ cm}^2$  zu erreichen.

Ein WIMP mit einer typischen Energie von 10 GeV - 10 TeV wird im XENON-Detektor eine elastische Rückstoßenergie auf einen Xenon-Atomkern unter 100 keV erzeugen.

Um die oben erwähnten ambitionierten Ziele zu erreichen, reicht die oben beschriebene circa 95%-ige Untergrundreduktion des Verhältnisses aus schnellem Szintillations- und langsamem Ionisationssignal nicht aus, sondern es muss zusätzlich eine detaillierte Auswahl hochreiner (im Sinne der Radioreinheit) Materialien erfolgen.

Wie in Abschnitt 1.2 bereits erwähnt, besitzt Xenon selbst kein radioaktives Isotop mit einer derart langen Halbwertszeit, dass es ein Problem darstellen könnte. Allerdings stellt das  $\beta$ -aktive Kryptonisotop  $^{85}\text{Kr}$  mit seiner Halbwertszeit von 10,8 Jahren eine ernstzunehmende Verunreinigung im Xenon dar. Wird das Ziel der XENON100-Kollaboration einer  $^{85}\text{Kr}$ -Verunreinigung von  $\sim 50 \text{ ppt Kr}$  erreicht, dies entspricht einer vom Krypton induzierten Ereignisrate  $< 1 \text{ ev}/0,5 \text{ yr}$ , so stellt  $^{85}\text{Kr}$  noch immer die größte Untergrundkomponente für Energien unter 200 keVee dar [Apr09].

## Edelgasmessungen

In diesem Kapitel sollen die theoretischen und experimentellen Konzepte vorgestellt werden, auf deren Basis die eigentlichen Edelgasreinigungen und -messungen von Kapitel 3 und 4 durchgeführt wurden, und die den unterschiedlichen experimentellen Aspekten dieser Arbeit einen Rahmen verleihen.

### 2.1 Adsorption und Chromatographie

Der folgende Abschnitt soll die Größe der Henry-Konstante der Adsorption einführen und ihren Einfluss auf das chromatographische Verhalten von Gasen aufzeigen. Die Möglichkeit qualitative Aussagen über das Verhalten unterschiedlicher Gasmischungen zu treffen ist für die folgenden experimentellen Kapitel von entscheidender Bedeutung. Die für diese Arbeit wichtigen und im Folgenden erwähnten Modelle sind detailliert in [Sim03] zu finden, weshalb der interessierte Leser auf diese Arbeit verwiesen sei.

#### 2.1.1 Adsorption

Der erste Abschnitt wird sich nun mit der Adsorption beschäftigen, wobei zunächst eine Begriffsklärung durchgeführt werden soll. Im Anschluss daran wird das für den nächsten Abschnitt der Chromatographie (2.1.2), sowie qualitativ auch in den experimentellen Teilen für die Edelgasreinigung, wichtige Henry-Gesetz eingeführt. Im Weiteren werden kurz Modelle erwähnt, die eine quantitative Aussage über die Größe der Henry-Konstante  $H$  zulassen.

**Begriffsbildung Adsorption** Adsorption meint im Allgemeinen die Anlagerung von Gasen (Flüssigkeiten) an Oberflächen von Festkörpern, wobei der umgekehrte Prozess mit Desorption bezeichnet wird. Das Gas (Flüssigkeit), das sich an der Oberfläche des Festkörpers anlagert, also adsorbiert wird, wird Adsorptiv, der Festkörper Adsorbens genannt. Das von der Oberfläche des Adsorbens adsorbierte Adsorptiv wird Adsorbat genannt. In der Regel ist die Adsorption ein exothermer Vorgang. Anhand der Enthalpie der Adsorption

lassen sich die Begriffe der Physisorption (Enthalpie  $< 25$  kJ/mol : Bindung des Adsorbats an das Adsorbens durch schwache van-der-Waals Kräfte) und der Chemisorption (Enthalpie  $> 40$  kJ/mol : echte chemische Bindung des Adsorbats an das Adsorbens) unterscheiden.

Die Stellen, an denen sich das Adsorptiv am Adsorbens anlagern kann, können eine unterschiedlich starke Bindung ermöglichen, jedoch sind die Unterschiede oft sehr gering.

### Henry-Gesetz

Es lässt sich nun eine (in Anlehnung an das Henrysche Gesetz aus der Theorie der Löslichkeiten Henry-Gesetz genannte) für kleine Partialdrücke gültige Beziehung zwischen adsorbierten Teilchen  $n$  und Partialdruck  $p$  aufstellen:

$$n = H \cdot p, \quad (2.1)$$

wobei  $H$  die Henry-Konstante der adsorbierten Teilchen genannt wird.

Die Ableitung dieser Formel kann beispielsweise über die einfache Theorie der Langmuir-Isothermen [Lan18] erfolgen. Um eine größere Übereinstimmung mit dem Experiment zu erreichen, sind verschiedene weitere Ansätze versucht worden (BET-Isotherme [B+38], vacancy-solution-model [SD80]), von denen hier jedoch lediglich eine empirisch von Maurer et al. [M+01] gefundene Gleichung zitiert werden soll. Mit ihrer Hilfe ist es möglich die Henry-Konstante mit einer gewissen Genauigkeit anzunähern und aus ihr wird die für die folgende Arbeit wichtige Abhängigkeit von  $T_c^i/\sqrt{p_c^i}$  ersichtlich. Diese lautet:

$$H \left[ \frac{\text{mol}}{\text{kg} \cdot \text{Pa}} \right] = \exp \left\{ \left( -0,05 + \frac{81}{T[\text{K}]} \right) \cdot \frac{T_c^i[\text{K}]}{\sqrt{p_c^i[\text{bar}]}} - 17,5 \right\}, \quad (2.2)$$

wobei  $T$  die Temperatur des Adsorbens-Adsorbat-Systems (wir befinden uns ja im thermodynamischen Gleichgewicht) und  $T_c^i$  ( $p_c^i$ ) die kritische Temperatur (den kritischen Druck) des Adsorptivs darstellt.

Ist das Verhältnis  $T_c^i/\sqrt{p_c^i}$  für zwei Gase ähnlich, so besagt das Modell, dass auch das vom Henry-Gesetz beschriebene Adsorptionsverhalten dieser Gase ähnlich sein wird. In Tabelle 2.1 sind für die in dieser Arbeit wichtigen Gase die zugehörigen kritischen Größen aufgelistet.

### 2.1.2 Chromatographie

Wie im vorangehenden Abschnitt bereits erläutert, unterscheiden sich verschiedene Gassysteme in ihrem Adsorptionsverhalten. Diese Tatsache kann mit Hilfe der Chromatographie ausgenutzt werden um eine Auftrennung einer komplexeren Gasmischung in ihre Gaskomponenten zu erreichen.

Das Feld der Chromatographie ist weiter, als es in der für diese Arbeit wichtigen Gas-Adsorptionschromatographie vorgestellt wird. Die Grundidee ist jedoch dieselbe, auch wenn die finale Auftrennung der untersuchten Systeme auf andere Art und Weise als durch das verschiedene Adsorptionsverhalten der einzelnen Komponenten erreicht wird.

Gas	$T_c^i$ [K]	$p_c^i$ [bar]	$T_c^i/\sqrt{p_c^i}$ [ $\frac{\text{K}}{\sqrt{\text{bar}}}$ ]	Referenz
Helium	5,2	2,3	3,4	[Atk99]
Neon	44,4	27,2	8,5	[Atk99]
Wasserstoff	33,2	13,0	9,2	[Atk99]
Argon	150,7	48,6	21,6	[Atk99]
Stickstoff	126,3	34,0	21,6	[Atk99]
Sauerstoff	154,8	50,8	21,7	[Atk99]
Methan	190,6	46,2	28,0	[Atk99]
Krypton	209,4	55,0	28,2	[Atk99]
Kohlenstoffdioxid	304,2	73,8	35,4	[Atk99]
Xenon	289,8	58,8	37,8	[Atk99]
Ethan	305,4	48,8	43,7	[Atk99]
Radon	377,0	62,8	47,6	[Fle09]

**Tabelle 2.1:** In der Tabelle sind die kritischen Temperaturen und Drücke einiger in dieser Arbeit wichtigen Gase zusammengestellt.

## Grundidee der Adsorptionschromatographie

Die Grundidee der Adsorptionschromatographie ist einfach: Das im vorangehenden Abschnitt der Adsorption beschriebene und für jedes Adsorptiv unterschiedliche Gleichgewicht zwischen adsorbierten und desorbierten Teilchen wird ausgenutzt, um für verschiedene Adsorptive eine unterschiedliche Wandergeschwindigkeit über ein Adsorbens zu erhalten.

Angenommen Teilchen eines Gases sind bei einem gewissen Druck in einem Gefäß eingeschlossen und dieses Gefäß hat eine Öffnung zum Vakuum, wobei diese Öffnung durch ein Adsorbens verstopft ist. Die Teilchen in dem Gefäß können nun, bevor sie in das Vakuum gelangen, am Adsorbens adsorbiert werden. Nach einer gewissen immobilen Zeit werden sie wieder desorbiert und bewegen sich aufgrund des Druckgefälles weiter in Richtung Vakuum. Je nach Größe des Adsorbens können sie erneut adsorbiert werden, verweilen wieder immobil, werden abermals desorbiert und wandern weiter. Nach einer für jedes Teilchen individuellen Zeit wird es dann ins Vakuum entweichen.

Befindet sich nun ein Gas, bestehend aus mehreren, verschiedenartigen Komponenten, in dem Gefäß, so wird sich aufgrund der verschiedenen Adsorptionseigenschaften im Mittel eine unterschiedliche Zeit ergeben, bis die jeweiligen Gaskomponenten das Gefäß verlassen und das Vakuum erreicht haben. Es lässt sich so also eine Trennung der Gase erreichen.

In der Praxis wird ein Gasgemisch mit einer festen Flussgeschwindigkeit auf das (große) Adsorbens, das im Folgenden Adsorbenssäule genannt wird, gegeben, von dem eine Komponente nahezu inert ist, dadurch quasi nicht adsorbiert wird und die Adsorbenssäule mit konstanter Geschwindigkeit durchläuft. Diese inerte Komponente (in der Regel handelt es sich dabei um Helium) wird Trägergas genannt und stellt sicher, dass der Druck in der Säule nahezu nicht durch Ad- und Desorptionsprozesse beeinflusst wird.

Über den Ansatz der sogenannten *Bödentheorie*, die den kontinuierlichen Trennprozess

diskretisiert und dabei die Adsorbersäule in  $N$  verschiedene Schichten (sogenannte *Böden*) unterteilt, lässt sich ein wichtiger Zusammenhang zwischen dem reduzierten Retentionsvolumen  $V_{ret}$ , der Adsorbermasse  $m_{ads}$ , der Temperatur  $T$  und der aus dem Abschnitt 2.1.1 bekannten Henry-Konstante  $H$  aufstellen:

$$V_{ret} = H \cdot R \cdot T \cdot m_{ads} . \quad (2.3)$$

Das reduzierte Retentionsvolumen  $V_{ret}$  gibt dabei in etwa die Größe des Volumens an verwendetem Trägergas an, das durch die Adsorbersäule gespült werden muss, bis am anderen Ende der Säule das betrachtete Gas austritt. (Oder genauer gesagt: Das reduzierte Retentionsvolumen  $V_{ret}$  ergibt sich aus dem Produkt des auf Säulentemperatur umgerechneten Volumenstromes  $F$  am Ausgang der Chromatographiesäule mit der reduzierten Retentionszeit  $t'_R$ , wobei die reduzierte Retentionszeit ( $t'_R = t_R - t_M$ ) die im Mittel in der stationären Phase verbrachte Zeit der nicht inerten Gaskomponente angibt. Diese lässt sich aus der Differenz der Zeit  $t_R$ , die zwischen Einlass der Probe und ihrem Maximum am Ende der Säule vergangen ist, und der Zeit  $t_M$  des ungehinderten Durchflusses durch die Säule des inerten Trägergases erhalten.)

Formel (2.3) zusammen mit der empirischen Formel (2.2) für die Henry-Konstante des vorherigen Abschnittes der Adsorption machen nun qualitativ klar, warum mit Hilfe der Adsorptionschromatographie Gase gereinigt werden können. Zudem erlauben sie die Reihenfolge vorherzusagen, mit der ein aus vielen Komponenten bestehendes Gasgemisch eine Chromatographiesäule verlassen wird, so dass einzelne Komponenten gezielt von anderen separiert werden können und somit eine Gastrennung möglich wird.

## 2.2 Miniaturisierte Proportionalzählrohre

Nachdem im vorangehenden Kapitel die Theorie zur Reinigung und Separation von Gasen erläutert wurde, soll in diesem Abschnitt der Fokus auf den später verwendeten Detektor zum Nachweis von nach den Prinzipien der Chromatographie getrennten radioaktiven Edelgasen gelegt werden. Der interessierte Leser sei hier auch auf [Urb89, Leo78], sowie andere gängige Fachliteratur verwiesen.

### 2.2.1 Aufbau eines Proportionalzählrohres

Ein Proportionalzählrohr besteht aus einem gasdichten Gehäuse, sowie einer zylindrischen Kathode und einem dünnen, mittig in dieser Kathode verlaufenden Anodendraht. Zwischen Kathode und Anode liegt eine Hochspannung  $U_{HV}$  an und das Zählrohr ist mit einem geeigneten Zählgas gefüllt.

Ionisierende Strahlung kann nun im Aktivvolumen des Zählrohrs Atome des Zählgases ionisieren, das heißt durch Energieabgabe Elektron-Ion Paare erzeugen. Damit diese Strahlung in das Aktivvolumen gelangen kann, muss ein solches Zählrohr entweder ein

für die Strahlung möglichst durchlässiges Fenster besitzen, wie dies beispielsweise bei einem Geiger-Müller-Zählrohr der Fall ist, oder aber die Quellen der ionisierenden Strahlung müssen direkt in das Zählrohr gefüllt werden.

Diese zweite Möglichkeit des „internal counting“ wird bei den hier verwendeten Zählrohren verfolgt. Um die Quellen ionisierender Strahlung in das Zählrohr füllen zu können, muss das Aktivvolumen folglich eine Öffnung besitzen, die ihrerseits verschließbar ist. Im Fall der verwendeten Zählrohre des Typs HD2 wird das Füllen und Verschließen der Zählrohre durch eine Quecksilbersäule erreicht, die das Zählgas mit den Quellen durch eine dünne Kapillare bis ins Aktivvolumen presst. In Abbildung 4.6 ist eine schematische Zeichnung eines auf diesem Prinzip beruhenden und in Heidelberg entwickelten Zählrohres zu sehen.

Nach der Absorption ionisierender Strahlung fließt im Zählrohr ein zeitabhängiger Strom, der von einem ladungsempfindlichen Vorverstärker aufintegriert wird und nach Durchlaufen weiterer Verstärker und Multiplexer als Spannungssignal ausgegeben wird. Diese Verstärkungskette, sowie die weitere Pulsverarbeitung, gehört jedoch nicht mehr in dieses Kapitel, sondern wird in Abschnitt 4.2 eingehender beschrieben. Im Folgenden soll jedoch die Signalentstehung im Zählrohr selbst genauer betrachtet werden.

### 2.2.2 Signalentstehung

Im Fall der (vereinfacht) coaxialen Zählrohrgeometrie (Anodenradius  $d_A$ , Kathodenradius  $r_K$ ) ergibt sich im Zählrohr eine zylindersymmetrische Feldverteilung. Im Abstand  $r$  von der Anode ergibt sich die elektrische Feldstärke:

$$E(r) = \frac{U_{red}}{r}, \quad \text{mit} \quad U_{red} = \frac{U_{HV}}{\ln(r_K/r_A)}. \quad (2.4)$$

Bei den in dieser Arbeit verwendeten Zählrohren ( $r_K \approx 3 \text{ mm}$ ,  $r_A \approx 6.5 \mu\text{m}$ ,  $U_{HV} \approx 1100 \text{ V}^1$ ) herrscht an der Oberfläche der Anode somit eine elektrische Feldstärke von rund  $3 \cdot 10^5 \text{ V/cm}$ .

**Lawineneffekt** Im Zählrohr passiert nun das Folgende: Werden aufgrund ionisierender Strahlung im Zählgas Ladungsträgerpaare (Elektronen und Ionen) erzeugt, es findet die so genannte *primäre Ionisation* statt, so beginnen die freien Elektroden in Richtung des auf positivem Potential liegenden Anodendrahtes, die positiv geladenen Ionen in Richtung des auf negativem Potential liegenden Kathodendrahtes zu wandern.

In Xenon wird etwa pro 22 eV (in Argon etwa pro 26 eV) [Leo78] absorbiertes Energie ein Ladungsträgerpaar gebildet. Diese Bewegung der primären Ladungsträger induziert somit noch keinen messbaren Strom in den äußeren Stromkreis, da ihre Zahl zu gering ist. Die deutlich „mobileren“ Elektronen kommen nach einer Driftzeit zwischen 0 und 100 ns am Anodendraht an. In der Umgebung des Anodendrahtes ist nun die Feldstärke so groß, dass die Elektronen zwischen zwei Stößen mit Atomen des Zählgases genug kinetische Energie

<sup>1</sup>Dieser Wert gilt für die in dieser Arbeit durchgeführten Kryptonmessungen mit Xe-CH<sub>4</sub> Zählgasgemisch. Die Radonmessungen werden in der Regel bei niedrigeren Hochspannungen um 900 V durchgeführt.



aufnehmen können, um *sekundäre Ladungsträgerpaare* zu erzeugen. Somit erzeugt jedes am Zähldraht ankommende primäre Elektron eine Lawine sekundärer Ladungsträgerpaare.

Durch die Bewegung dieser sekundären Ladungsträger wird nun ein messbares Signal in den äußeren Stromkreis induziert. Aufgrund der deutlich geringeren durchlaufenen Potentialdifferenz tragen jedoch die Sekundärelektronen deutlich weniger zu diesem Signal bei, als die sekundären Ionen, die von sehr nahe der Anode startend bis zur Kathode driften. Der induzierte Stromstoß wird also von einer kleinen und schnellen Komponente der Sekundärelektronendrift begonnen und von einer aufgrund der deutlich geringeren Mobilität der Ionen im Zählgas langsamen aber starken Komponente der Sekundärionendrift abgeschlossen.

**Gasverstärkung** Die Gasverstärkung, das heißt die Anzahl der pro Primärelektron erzeugten und detektierbaren sekundären Ladungsträger, ist stark von dem verwendeten Zählgas und exponentiell von der angelegten Hochspannung  $U_{HV}$  abhängig. In Zählgasen mit hohem Anteil an Molekülen wie Methan können die Primärelektronen in der Gasverstärkungszone außer durch Ionisation auch Energie an Rotations- und Schwingungsfreiheitsgrade abgeben. Darum nimmt die für dieselbe Gasverstärkung nötige Hochspannung mit zunehmendem Anteil dieser Moleküle zu.

**Verlustmechanismen** Es gibt nun zwei Arten von Verlustmechanismen, die die Gasverstärkung zu größeren Energiedepositionen hin vermindern, was zu einer Abweichung der Linearität zwischen im Zählrohr durch ionisierende Strahlung deponierter Energie und Pulshöhe des induzierten Signals in den äußeren Stromkreis führt.

Je größer die Energiedeposition durch ionisierende Strahlung im Zählrohr ist, desto mehr primäre Ladungsträger werden erzeugt. Eine größere Anzahl primärer Ladungsträger bewirkt eine größere sekundäre Ladungsträgerdichte nahe des Anodendrahtes. Diese höhere Dichte an Ladungsträgern hat nun zwei Effekte zur Folge:

1. Mit einer erhöhten Wahrscheinlichkeit rekombinieren die freien Ladungsträger untereinander, bevor sie durch das anliegende Feld getrennt werden.
2. Aufgrund der größeren Anwesenheit speziell der langsam driftenden sekundären Ionen nahe des Anodendrahtes wird die elektrische Feldstärke stärker verändert (*Raumladungseffekt*).

Beide Effekte reduzieren nun die Gasverstärkung, wobei die Stärke der Effekte mit größer werdender Energiedeposition zunimmt. Somit bleiben die detektierten Pulshöhen mit zunehmender Energiedeposition immer stärker hinter dem aus dem linearen Zusammenhang erwarteten Wert zurück.

## 2.3 Emanation

Unter Emanation wird der Austritt eines Atoms (Moleküls) aus einem festen (flüssigen) Medium verstanden. Dieser Austritt geschieht je nach äußeren Umständen (Temperatur,



Druck, etc.) mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit. Ist in dem festen (flüssigen) Medium ein gewisser Vorrat<sup>2</sup> an diesen Atomen (Molekülen) vorhanden, so ergibt sich aus der Summe über die Produkte der Austrittswahrscheinlichkeiten (diese sind natürlich nicht für jedes Atom (Molekül) im Medium gleich) mit der zugehörigen Anzahl an Atomen (Molekülen) eine Emanationsrate.

Im Falle des  $^{222}\text{Rn}$  kann die Größe des Reservoirs aus einer gammaspektroskopischen Untersuchung der Anzahl an  $^{226}\text{Ra}$ -Atomen geschehen, da der Vorrat an  $^{226}\text{Ra}$  selbst mit einer Halbwertszeit von 1602 Jahren im Bezug auf typische Messzeiten konstant ist und somit mit einer konstanten Rate  $^{222}\text{Rn}$ -Atome im betrachteten Medium nachgeliefert werden. Da die Halbwertszeit von  $^{222}\text{Rn}$  weniger als 4 Tage beträgt, kann in guter Näherung von einem konstanten  $^{222}\text{Rn}$ -Reservoir im Medium ausgegangen werden.

Geht man von einer homogenen Verteilung der emanierenden Atome (Moleküle) im Medium aus, so reicht es nun aus die Austrittswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit des Abstandes zur das Medium begrenzenden Oberfläche zu kennen, um die Emanationsrate vorherzusagen<sup>3</sup>.

Die Abhängigkeit der Austrittswahrscheinlichkeit vom Abstand zur Oberfläche ist nun durch die Diffusion des Atoms (Moleküls) im Medium bestimmt. Liegt ein Konzentrationsgefälle<sup>4</sup>  $\partial c/\partial x$  vor, so lässt sich die Teilchenstromdichte  $J$  über das erste Fick'sche Gesetz zu

$$J = -D \frac{\partial c}{\partial x} \quad (2.5)$$

bestimmen, wobei die Proportionalitätskonstante  $D$  Diffusionskoeffizient genannt wird [GM05].

Sind die Konzentrationen der auf Emanation untersuchten Fremdatome (-moleküle) im Medium niedrig, wie das beispielsweise für das die nackten Detektoren kühlende LAr des Low-Level-Experimentes GERDA der Fall ist, so kann die konzentrationsgetriebene Diffusion vernachlässigt werden. Hier kann die Bewegung der einzelnen Fremdatome durch die Selbstdiffusion des Mediums, in dem sie sich befinden, angenähert werden. Der zum Beispiel mit Hilfe der Feldgradienten-NMR [WH02] sehr genau bestimmbare Diffusionskoeffizient lässt sich über  $\sigma^2 = 2D$  in die pro Zeiteinheit mittlere quadratische Verschiebung eines Teilchens umrechnen [Ein05], das heißt die Selbstdiffusion stellt gerade die durch die zufällige thermische Bewegung angetriebene Vermengung der Teilchen dar.

In einem Festkörper ist  $D$  sowohl temperaturabhängig, als auch abhängig von den zwischenatomaren, beziehungsweise -molekularen Kräften des jeweiligen Mediums. Dies lässt sich anhand des Boltzmann-Faktors der statistischen Physik einfach einsehen, da ein mit steigender Temperatur größer werdender Anteil ( $\propto \exp\{-E_g/(k_B \cdot T)\}$ ) solcher Atome

<sup>2</sup>Dieser Vorrat kann natürlich nur begrenzt sein, da auch das Medium selbst eine endliche Ausdehnung hat, erscheint aber in vielen Fällen auf der betrachteten Zeitskala unbegrenzt.

<sup>3</sup>Da diese Abhängigkeit in den meisten Fällen jedoch nur unzureichend bekannt ist und viele auf ihre Emanation untersuchte Bauteile nicht als homogene Medien angesetzt werden können, ist eine direkte Messung (siehe Abschnitt 2.4.2) die einzig verbleibende Möglichkeit die Emanation zuverlässig zu bestimmen.

<sup>4</sup>Zur Veranschaulichung soll hier nur der eindimensionale Fall betrachtet werden.

(Moleküle) die je nach vorliegender Bindung benötigte Energie  $E_g$  zur Verfügung hat, um im Festkörper von einer Fehlstelle zur nächsten zu wandern. Je höher nun diese benötigte Energie liegt, desto unwahrscheinlicher ist also ein Wandern.

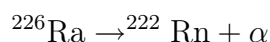
Dieses Argument macht auch sofort einsichtig, warum die Diffusionskonstante in kovalent, metallisch oder durch Ionen gebundenen Medien wie Metalle und Salze deutlich niedriger ist, als zum Beispiel in Medien bestehend aus großen organischen Molekülen, die untereinander nur schwach gebunden sind, und warum speziell inerte Edelgase viel besser „wandern“, als Elemente, die starke chemische Bindungen eingehen.

Da nun im Falle des  $^{222}\text{Rn}$ , das eine Halbwertszeit von 3,8 Tagen besitzt, eine Diffusion nicht beliebig lange fortschreiten kann, sondern mit dem Zerfall des  $^{222}\text{Rn}$ -Atoms endet, kann eine Diffusionslänge  $l$  eingeführt werden, die die Zerfallskonstante  $\lambda$  mit der Diffusionskonstanten  $D$  im jeweiligen Medium verknüpft:

$$l = \sqrt{\frac{D}{\lambda}}. \quad (2.6)$$

Diese Länge gibt nun in einer ersten Näherung ein Maß dafür an, wie groß der zur Emanation beitragende Rand eines Festkörpers ist.

Für in radioaktiven Zerfällen entstehende Atome wie  $^{222}\text{Rn}$  gibt es einen weiteren Mechanismus, der eine Emanation bedingt. So entsteht in dem Zerfall



aus einem  $^{226}\text{Ra}$ -Atom ein  $^{222}\text{Rn}$ -Atom und ein  $\alpha$ -Teilchen. Die frei werdende Energie verteilt sich dabei unter Erhaltung von Energie und Impuls zum größten Teil auf das  $\alpha$ -Teilchen, aber auch der schwere  $^{222}\text{Rn}$ -Kern bekommt bei diesem Zerfall durch den Rückstoß eine Energie von etwa 85 keV. In einem Medium verliert der  $^{222}\text{Rn}$ -Kern diese Energie schnell durch Stöße, wird bei diesem Prozess jedoch eine gewisse Strecke weit bewegt. Je nach Kernladungszahl und Dichte des Mediums trägt somit ein unterschiedlich großer Teil nahe der Oberfläche zur Emanation bei. In Tabelle 2.2 sind einige Reichweiten eines 85 keV  $^{222}\text{Rn}$ -Ions angegeben. In Abbildung 2.1 sind die beiden die Emanation radioaktiver Zerfallsprodukte bewirkenden Mechanismen am Beispiel des  $^{222}\text{Rn}$  schematisch skizziert.

## 2.4 Edelgasproben

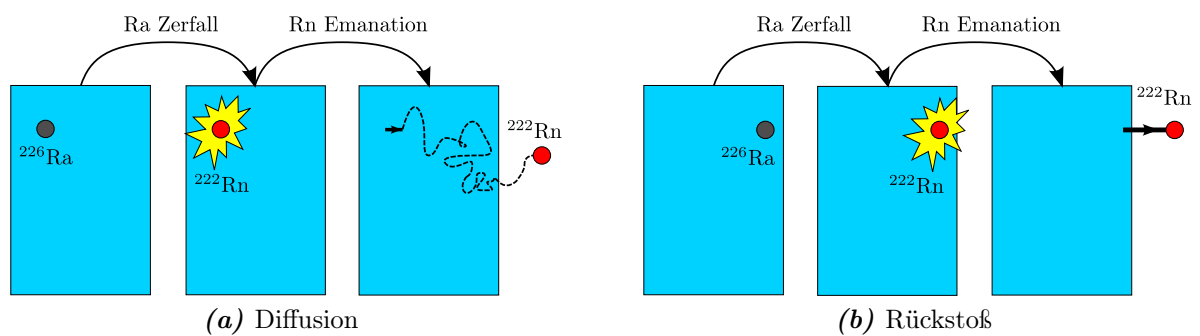
In diesem Abschnitt sollen kurz die beiden unterschiedlichen Typen an Edelgasproben besprochen werden, das heißt wie sie präpariert, gereinigt und vermessen wurden, ohne dabei jedoch zu tief ins Detail<sup>5</sup> zu gehen.

---

<sup>5</sup>Weitere Informationen zur experimentellen Durchführung sind in Abschnitt 2.5.2, sowie in den jeweiligen experimentellen Kapiteln 3 und 4 zu finden.

Material	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Reichweite [Å]
Aluminium	2,702	340
Eisen	7,866	145
Edelstahl (typisch)	8,0	142
Wolfram	19,35	91
NaCl	2,165	459
BaCl <sub>2</sub>	3,098	447
Polyethylen	0,93	712
Teflon	2,20	398
Helium (gas)	$0,18 \cdot 10^{-3}$	$395,16 \cdot 10^4$
Argon (gas)	$1,784 \cdot 10^{-3}$	$63,5 \cdot 10^4$
Argon (flüssig)	1,393	765

**Table 2.2:** In der Tabelle ist die Reichweite eines beim  $^{226}\text{Ra}$ -Zerfalls entstehenden  $^{222}\text{Rn}$ -Ions mit einer kinetischen Energie von etwa 85 keV für einige ausgewählte Materialien angegeben. Quelle: [Zie08]



**Abbildung 2.1:** In der Graphik ist (a) die diffusionsgetriebene und (b) die rückstoßgetriebene Diffusion am Beispiel eines  $^{222}\text{Rn}$ -Atoms/Ions verdeutlicht.

### 2.4.1 Luftproben

Das Interesse ist hier auf den absoluten Wert der Aktivität des untersuchten Edelgases am jeweilig untersuchten Ort gerichtet, wie er ohne besondere zusätzliche Anstrengungen ihn zu senken gemessen werden kann.

In dieser Arbeit wurde speziell das Edelgasnuklid  $^{85}\text{Kr}$ <sup>6</sup> auf diese Eigenschaft hin untersucht. In Untergrundlaboren wie den LNGS ist die  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation des abschirmenden Gesteinmaterials von Interesse, da durch mögliche Luftlecks der Experimente eine  $^{222}\text{Rn}$ -Kontamination eintreten kann. (Solche Untersuchungen wurden in dieser Arbeit jedoch nicht angestellt; zudem sind bereits deutlich einfacher zu handhabende Messmethoden bei den hier erwarteten hohen Aktivitäten ausreichend sensitiv.)

### 2.4.2 Emanationsproben

Emanationsmessungen werden bei Proben durchgeführt, bei denen der Verdacht besteht, dass sie eine (konstante<sup>7</sup>) Menge des Edelgases an die Umgebung abgeben. Dies ist speziell dann der Fall, wenn sie eine gewisse Verunreinigung durch ein langlebiges Radionuklid aufweisen, das in seiner Zerfallsfolge das gesuchte Edelgasnuklid beinhaltet, wie dies beispielsweise für das Edelgasnuklid  $^{222}\text{Rn}$  mit seinem metallischen Vorgängernuklid  $^{226}\text{Ra}$  der Fall ist. Diese Nuklide gehören der natürlichen Zerfallskette des  $^{238}\text{U}$  an und kommen somit in den meisten Materialien in Spuren vor.

Eine weitere Emanationsprobe, wie sie ebenfalls mit den in dieser Arbeit entwickelten Methoden gemessen werden kann, kann aus dem Zerfall des  $^{83}\text{Rb}$  nach  $^{83m}\text{Kr}$  (siehe [KCMM09]) gewonnen werden. Die in diesem Zusammenhang von der XENON Kollaboration gestellte Frage war, ob  $^{83}\text{Rb}$  aus der für die Kalibrierung verwendeten Quelle in das mit LXe gefüllte Aktivvolumen des XENON Detektors gelangen kann [M<sup>+</sup>09].

## 2.5 Experimentelle Anlagen

Dieses Kapitel soll den experimentellen Anlagen gelten, mit deren Hilfe es möglich ist oben beschriebene Edelgas(-Emanations)-Proben in ihre zu untersuchenden Bestandteile aufzutrennen. Da dies für Krypton ein aufwendiger Prozess ist, wird dieser detailliert in 4.1 beschrieben. Hier sollen die prinzipiellen Möglichkeiten der Apparaturen an Hand der in den letzten Jahren standardisierten Abtrennung von Radon beschrieben werden. Radon lässt sich relativ einfach auch aus großen Gasmengen herausfiltern, da es von den Edelgasen das „unedelste“ in der Hinsicht ist, dass es sich speziell mit Aktivkohle gut adsorbieren lässt.

---

<sup>6</sup>Da  $^{85}\text{Kr}$  als Spaltprodukt von  $^{235}\text{U}$  in Kernreaktoren anfällt, wird dieses in größeren Mengen bei der Wiederaufbereitung von Kernbrennstäben frei und gelangt in die Atmosphäre. Es ist jedoch nicht in einer der drei natürlichen Zerfallsketten vorhanden, so dass die in 2.4.2 beschriebene Emanationsmessung von  $^{85}\text{Kr}$  nicht sinnvoll ist.

<sup>7</sup>Da beispielsweise die Halbwertszeit von  $^{226}\text{Ra}$  etwa 1600 Jahren beträgt, kann auf der Zeitskala der Experimente die Zerfallsrate als konstant angenommen werden.

Um Radonverunreinigungen aus einem Gas wie Stickstoff oder Helium zu reinigen, muss das Gas im Wesentlichen nur durch ein gekühltes (Temperatur  $\lesssim -120^\circ\text{C}$ ) und adsorbergefülltes Rohr (im Folgenden Falle genannt) geleitet werden. Die Retentionsvolumina von Radon in einer Aktivkohlefalle bei  $-196^\circ\text{C}$  (Flüssigstickstoff ( $\text{LN}_2$ )-Temperatur), das heißt die Gasmenge, die gereinigt werden kann, bevor Radon ebenfalls wieder aus der adsorbergefüllten Falle tritt, sind sehr groß, so dass hier nur Obergrenzen angegeben werden können (siehe [Sim03]). Probleme können lediglich durch zusätzliche Verunreinigungen entstehen, die ihrerseits die Adsorptionseigenschaften der Aktivkohlefallen für Radon verändern.

### 2.5.1 Anlagen zur Gasmengenreduktion

Um die Emanation größerer Materialien zu messen gibt es am MPIK Heidelberg eine fest installierte, komplett metallgedichtete Edelstahleinheit (Emanationsanlage), die aus zwei elektropolierten und öffnenbaren Emanationskesseln (20 und 80 l Volumen) besteht [Wie06]. Diese Emanationsanlage lässt sich mit einem extern anzuschließenden Gas (in der Regel Helium) spülen, das mit Hilfe einer ersten abnehmbaren Aktivkohlefalle gereinigt werden kann. Da alle in diesem Zusammenhang verwendeten Aktivkohlefallen selbst eine potentielle Kontaminationsquelle darstellen, wurden sie mit großer Sorgfalt ausgesucht und insbesondere auf ihren  $^{226}\text{Ra}$ -Gehalt und damit verbundenen  $^{222}\text{Rn}$ -Gehalt getestet. Die gewählte synthetische Aktivkohle hat eine  $^{222}\text{Rn}$ -Emanationsrate von  $\sim 300 \mu\text{Bq/kg}$  [H<sup>+</sup>00]. Dieser Gasstrom kann nun auf verschiedenen Wegen an den beiden Kesseln vorbei, beziehungsweise bei Bedarf durch sie hindurch (sowohl getrennt, als auch gemeinsam) geleitet werden. Bevor dieser Gasstrom dann entweder durch ein Ventil direkt in die Atmosphäre geblasen, oder von einem Scroll- und Turbopumpensystem gepumpt wird, kann er durch ein erneutes Fallensystem geleitet werden. Dieses besteht aus einer optionalen Wasserfalle<sup>8</sup>, an deren großer Oberfläche – im Falle sie wird gekühlt – Wasser aus dem Gasstrom kondensiert, und einer zweiten mobilen Aktivkohlefalle. Die Anlage ist zudem mit Druck- und Vakuumsensoren, sowie einem Flussmesser ausgestattet.

Soll nun die Emanation einer Probe in einem der beiden Edelstahlkessel gemessen werden, so wird diese zunächst in den Kessel eingebracht. Nachdem dieser wieder dicht verschlossen ist, kann er mit Hilfe des Pumpensystems evakuiert werden. Danach wird in der Regel ein kleiner Heliumstrom durch die erste Aktivkohlefalle (Heliumfalle) und durch den Kessel eingestellt und dabei die Heliumfalle bei etwa  $200^\circ\text{C}$  ausgeheizt. Bei diesem Prozess desorbieren in der Aktivkohle festgehaltene Verunreinigungen, werden mit dem Gasstrom mitgenommen und schließlich abgepumpt. Im Emanationskessel verbliebene Verunreinigungen werden in diesem Prozess ebenfalls reduziert. Nach etwa einer halben Stunde kann die Heliumfalle als sauber angenommen werden und wird einem Kältebad ausgesetzt. (Dieses Kältebad besteht im Falle von Helium und Stickstoff als Trägergase aus  $\text{LN}_2$ .) Verunreinigungen des angeschlossenen Trägergases werden nun in der Heliumfalle desorbiert und die Emanationsanlage weiter mit nun sauberem Trägergas gespült. Um diesen Reinigungs-

---

<sup>8</sup>Diese optionale Wasserfalle ist als einziges Bauteil nicht aus Edelstahl gefertigt und metallgedichtet.

vorgang zu beschleunigen, kann nun der Emanationskessel mehrfach (2-3 Mal) mit etwa 1 bar des Trägergases gefüllt werden, dann der Gasfluss gestoppt und der Kessel erneut evakuiert werden. (Wurde der Kessel mit 1 bar des Trägergases gefüllt und anschließend auf 1 mbar evakuiert, so sind folglich die im Gas mobilen Verunreinigungen um einen Faktor 1000 reduziert worden.)

Nachdem nun der Kessel als  $^{222}\text{Rn}$ -sauber angesehen werden kann, wird er ein letztes Mal mit Trägergas gefüllt. (In der Regel wird mit einem leichten Überdruck gefüllt, um im Falle einer unbemerkten Leckage nicht  $^{222}\text{Rn}$ -schmutzige Raumluft zu „pumpen“. Dafür wird ein geringer Verlust der Probe in Kauf genommen.) Die Probe ist nun vorbereitet.

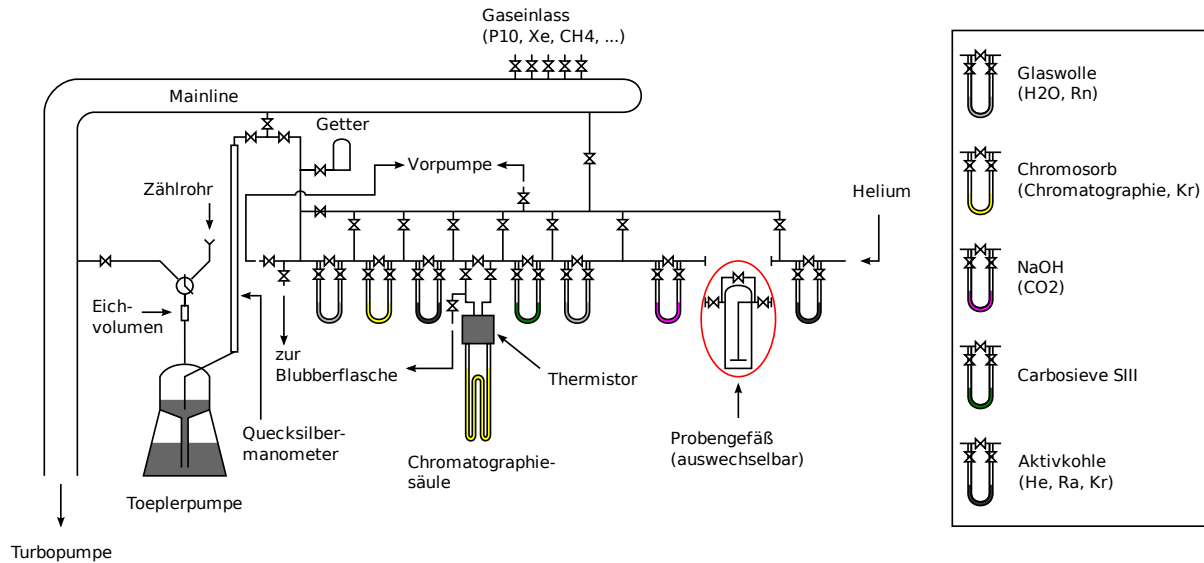
Zur Extraktion dieser Probe aus dem Emanationskessel wird erneut ein Trägergasfluss durch die Heliumfalle, sowie nun auch die zweite portable Aktivkohlefalle, die im Folgenden mit Radonfalle bezeichnet wird, eingestellt. Beide Aktivkohlefallen werden erneut auf etwa  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$  ausgeheizt um ihre Verunreinigungen zu beseitigen. Wie zuvor wird nach etwa 30 Minuten die Heliumfalle einem Kältebad ausgesetzt und von nun an die noch beheizte Radonfalle mit sauberem Trägergas für ebenfalls etwa 30 Minuten gespült. Die Radonfalle kann nun ihrerseits einem Kältebad ausgesetzt werden. Nachdem sich in der Radonfalle die Temperatur des Kältebades eingestellt hat, kann nun der Trägergasstrom gestoppt und der Emanationskessel zur Radonfalle hin geöffnet werden. Das Probenvolumen kann nun durch die Radonfalle hindurch mit Hilfe des Pumpsystems abgepumpt werden.  $^{222}\text{Rn}$ -Atome, die möglicherweise emaniert wurden, werden dabei in der Radonfalle desorbiert. Bei Bedarf kann der Emanationskessel erneut mit sauberem Trägergas gefüllt und erneut durch die Radonfalle gepumpt werden. Zum Schluss werden die Ventile der Radonfalle geschlossen und die  $^{222}\text{Rn}$ -Probe ist gesichert.

Das  $^{222}\text{Rn}$ , sowie möglicherweise von der Probe zusätzlich zum Radon emanierte Gase, befinden sich nun in der transportablen Radonfalle. Um diese nun von der Falle in die miniaturisierten Proportionalzählrohre zu transferieren, wird die im Folgenden beschriebene Glasapparatur (Gasline) benutzt.

### 2.5.2 Gasline

In Abbildung 2.2 ist eine schematische Zeichnung der in diesem Abschnitt erläuterten Gasline zu sehen. Dabei sind die unterschiedlichen Adsorbenzien der Fallen farblich unterschieden und im rechten Bildrand deren Verwendung stichwortartig angegeben.

Die Gasline lässt sich grob in zwei Teile trennen: Einen Teil zum Auftrennen, Reinigen und Zurückhalten von Gaskomponenten (in der Skizze ist dies der rechte Teil), sowie einen Teil, der zur quantitativen Mengenbestimmung eines Gases, sowie zum Befüllen des Zählrohres mit der Probe und einem zusätzlichen Zählgasgemisch geeignet ist. (Dieser Teil ist in der Skizze links abgebildet.)



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung der zur Gastrennung verwendeten Apparatur. Die in den Fallen verwendeten Adsorber sind durch unterschiedliche Farbwahl gekennzeichnet und deren Verwendungen während einer standardisierten Gasreinigungsprozedur im linken Bildrand erwähnt. Messgeräte, wie Flussmesser, sowie Druck- und Vakuummessgeräte, sind in dieser Skizze nicht vermerkt.

Der erst erwähnte Teil besteht zur Aufbereitung der Probe aus sieben mit unterschiedlichen Adsorbentien gefüllten Fallen, einer Chromatographiesäule mit Thermistor, der Möglichkeit ein externes Probengefäß anzuschließen, sowie einem Anschluss für ein externes Trägergas. Die Chromatographiesäule mit dem Thermistor wird in diesem Abschnitt nicht weiter erwähnt werden, dafür soll auf den Abschnitt der Kryptonreinigung 4.1 verwiesen sein, wo diese ausführlich besprochen werden.

Aufgrund der Vielzahl an Fallen gefüllt mit verschiedenen Adsorbentien, sowie ausgestattet mit der Möglichkeit davon gezielt Fallen auf unterschiedlichste Weise, in unterschiedlichster Reihenfolge und bei unterschiedlichsten Temperaturen zu benutzen, bietet diese Apparatur ein breites Spektrum an Anwendungsmöglichkeiten. Da in dieser Arbeit lediglich die Möglichkeiten der Radon- und Kryptonabtrennung genutzt wurden und da letztere ausführlich im Abschnitt 4.1 diskutiert wird, soll hier nur die Möglichkeit der Radonabtrennung erläutert werden.

**Prinzip der Radonabtrennung** An den Anschluss des externen Probengefäßes kann nun ein beliebiges evakuierbares Gefäß mit einem Volumen (Größenordnung von wenigen Litern) angeschlossen werden. Ist es nötig mit größeren Volumina zu arbeiten, kann die im vorherigen Abschnitt 2.5.1 besprochene Emanationsanlage benutzt werden. Dort wird die Gasmenge so reduziert, dass vom zu untersuchenden Probegas nichts verloren wird. Das so in einer transportablen Aktivkohlefaller gespeicherte Gas kann nun ebenfalls in Form der Aktivkohlefaller selbst an die Gasline angeschlossen werden, wo das gespeicherte Gas



durch Erhitzen der Falle erneut mobil gemacht wird und durch einen Trägergasstrom in die Gasline geleitet werden kann.

Bevor mit der Extraktion der Probe aus ihrem Gefäß (beziehungsweise der transportablen Aktivkohlefalle) begonnen wird, müssen, wie im vorangehenden Abschnitt der Emanationsanlage 2.5.1 geschehen, die benötigten Fallen von potentiellen Verunreinigungen gesäubert werden. Hierzu werden die Fallen ebenfalls erhitzt und unter einem andauernden Trägergasfluss gespült. Das Trägergas kann, wie zuvor, durch eine eigene Aktivkohlefalle (Heliumfalle) gesäubert werden, bevor damit die anderen Fallen gespült werden. Dazu wird erneut zuerst die Heliumfalle für etwa 30 Minuten unter ständigem Trägergasfluss ausgeheizt und im Anschluss in LN<sub>2</sub> gekühlt.

Für die Radonabtrennung werden neben der zur Reinigung des Trägergases benötigten Heliumfalle eine weitere Aktivkohle-Falle benötigt, in der das Radon in einem ersten Schritt zurückgehalten wird. Je nach Probenart kann diese zuerst von ihrem Wasser- und CO<sub>2</sub>-Gehalt gereinigt werden, indem sie durch eine NaOH-Falle (dort reagiert CO<sub>2</sub> in Anwesenheit von Feuchtigkeit mit NaOH und wird so gebunden) und anschließend durch eine auf etwa -30 °C gekühlte und mit Silikagel, beziehungsweise Glaswolle gefüllte Falle (H<sub>2</sub>O kondensiert und friert an der Oberfläche dieser Adsorbentien aus, während Radon diese ohne adsorbiert zu werden passieren kann) geleitet wird. Im Anschluss kann das Radon zuerst durch Überfrieren<sup>9</sup> auf eine im Sinne ihres Retentionsvolumens kleinere Falle, gefüllt mit Glaswolle und etwas Chromosorb (Radonfalle), dann durch kurzes Einstellen eines Trägergasflusses transferiert werden. Um die Menge des sich noch immer in dieser Falle befindlichen Trägergases zu minimieren, kann diese mit Vor- und Turbopumpe bepumpt werden. Um diesen Schritt effektiver zu machen, kann das LN<sub>2</sub>-Kältebad gegen ein Kältebad aus maximal kaltem flüssigem Alkohol (Schmelztemperatur Ethanol -114 °C [BGI08]) getauscht werden. Das Trägergas lässt sich so besser aus der Falle entfernen, während Radon noch immer desorbiert bleibt. Von dort kann die Probe nun in den zweiten Teil der Gasline gelangen.

In diesem zweiten Teil der Gasline wird ohne Trägergasstrom gearbeitet. Dieser Teil beginnt mit einem von einer Zirkon-Aluminium-Getterpumpe begrenzten Volumen. Durch Verbinden der Radonfalle mit diesem Volumen und Erhitzen der Radonfalle werden die zuvor in der Falle desorbierten Gase mobil. Die in einem früheren Schritt durch Ausheizen und Bepumpen vorbereitete Getterpumpe kann nun zugeschaltet werden. Die meisten chemisch aktiven Gase werden dabei an ihrer Oberfläche zersetzt und in den Zirkon-Aluminium-Materialverband eingebaut. Im Anschluss an diese Prozedur bleiben nur noch Edelgase übrig. Da jedoch außer dem Radon beim Bepumpen der Radonfalle im kalten Ethanolbad keines der anderen Edelgase in dieser zurückgeblieben sein sollte (siehe Formel (2.2) und (2.3), sowie Tabelle 2.1), ist nun im Wesentlichen Radon in diesem Volumen

---

<sup>9</sup>Werden zwei mit Adsorbentien gefüllte Fallen verbunden und dann die die Probe enthaltende Falle erhitzt, während die andere einem Kältebad ausgesetzt bleibt, so wird von Überfrieren gesprochen. Da in der erhitzten Falle die Probe desorbiert wird und sie in der gekühlten Falle erneut adsorbiert wird, kann so ein trägergasfreier Transport erreicht werden.



verblieben. Nachdem die Getterpumpe ausgekühlt ist (Methan wird zwar von dieser nur schlecht zersetzt, jedoch in merklichem Ausmaß), kann die zuvor mit Hilfe der Toeplerpumpe, einem Eichvolumen und dem Quecksilbermanometer bestimmte Menge<sup>10</sup> des für das Proportionalzählrohr verwendeten Zählgases in das Toeplervolumen gelassen werden. Dort vermischt es sich mit der Radonprobe und kann erneut mit Hilfe der Toeplerpumpe in dem Eichvolumen transferiert und gesammelt werden. Von dort aus kann es nun in ein in Abschnitt 2.2 beschriebenes miniaturisiertes Proportionalzählrohr gefüllt werden, wo ein Teil des Quecksilbers aus der Toeplerpumpe zum Abdichten des Probengases im Zählrohr benutzt wird.

---

<sup>10</sup>Gasmengen von etwa  $0,05 \text{ cm}^3$  können mit Hilfe der Toeplerpumpe, dieses Eichvolumens und des Quecksilbermanometers mit 5-10%iger Genauigkeit bestimmt werden [Sim03].

## Radonmessungen

Das folgende Kapitel befasst sich mit  $^{222}\text{Rn}$ -Emanationsmessungen, die aufgrund einer Frage durchgeführt wurden, die im Rahmen des GERDA-Experiments aufkam. Das Ergebnis dieser Messungen könnte aber auch Konsequenzen für andere Experimente haben, die wie GERDA um einen niedrigen durch Radionuklide induzierten Untergrund bei kryogenen Flüssigedelgasen bemüht sind.

Bei dem angesprochenen Problem handelt es sich um die bis dato unbeantwortete Frage, wie sich Radon in kryogenen Flüssigedelgasen verhält. Bis zum Zeitpunkt dieser Arbeit wurde noch kein Experiment erdacht und durchgeführt, das diese Frage eindeutig hätte klären können. Modelle, die versuchen dieses Verhalten vorherzusagen, existieren nur in begrenzter Form und sind widersprüchlich.

Da die Konsequenzen einer  $^{222}\text{Rn}$ -Kontamination für ein Low-Level-Experiment wie GERDA jedoch fatal sind, ist es von großem Interesse das Radonverhalten bei kryogenen Temperaturen vorherzusagen und so die richtigen Vorkehrungen treffen zu können.

### 3.1 Der Gerda-Kryostat

Die in den folgenden Abschnitten erläuterte Messserie wurde von dem konkreten Problem der  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation des GERDA-Kryostaten angestoßen.

Wie bereits erwähnt lautet das erklärte Ziel der GERDA-Kollaboration den Untergrund signifikant unter den derzeit in vergleichbaren Experimenten erreichten zu drücken; so soll in jeder der drei geplanten Phasen von GERDA der Untergrund um eine Größenordnung fallen. Das heißt, die zum Zeitpunkt dieser Arbeit sich kurz vor ihrem Start befindende Phase I soll einen Untergrund von  $0,01 \text{ cts}/(\text{kg}\cdot\text{keV}\cdot\text{yr})$  erreichen; Phase II soll diesen Wert dann in den Bereich von  $10^{-3} \text{ cts}/(\text{kg}\cdot\text{keV}\cdot\text{yr})$  bringen und Phase III schließlich auf  $10^{-4} \text{ cts}/(\text{kg}\cdot\text{keV}\cdot\text{yr})$  reduzieren.

Monte-Carlo-Simulationsstudien (MAGE [GERDA09]) haben mit dem (möglicherweise noch unterschätzten (siehe Tabelle 3.1)) Wert von  $30 \text{ mBq}$   $^{222}\text{Rn}$ -Emanation des Kryostaten unter der Annahme einer homogenen Verteilung des Radon im Flüssigargon (LAr) des Kryostaten einen Untergrundindex um  $\mathcal{Q}_{\beta\beta}$  von etwa  $4 \cdot 10^{-4} \text{ cts}/(\text{kg} \cdot \text{keV} \cdot \text{yr})$  für Phase I

Messung	Sättigungsaktivität des Kryostaten [mBq]	Beschreibung
November 07	$(23, 3 \pm 3, 6)$	Erster Aufbau und Reinigung
März 08	$(13, 7 \pm 1, 9)$	zusätzliche Reinigung
Juni 08	$(34, 4 \pm 6, 0)$	Einbringen des Kupfers
November 08	$(30, 6 \pm 2, 4)$	Reinigung des Kupfers und der Stahloberflächen
September 09	$(54, 7 \pm 3, 5)$	Installation von „Shroud“, „Mani- fold“, „Compensator“ und der kryo- genen Gaszuleitungen

**Tabelle 3.1:** Zusammenfassung der  $^{222}\text{Rn}$ -Emanationsmessungen des GERDA-Kryostaten [GERDA09]

ergeben, der von einem Antikoinzidenz-Cut um 15% reduziert werden kann.

Das Szenario der homogenen  $^{222}\text{Rn}$ -Verteilung ist aufgrund von Konvektion im Tank wahrscheinlich nicht gerechtfertigt. Erneute Simulationsstudien, die diesen Sachverhalt berücksichtigen, resultieren in einem Untergrundindex von etwa  $2 \cdot 10^{-3} \text{cts}/(\text{kg} \cdot \text{keV} \cdot \text{yr})$  (Phase I, keine Cuts) bei einer Emanationsrate des Kryostaten von 30 mBq [GERDA09].

Um die konvektionsbedingte mögliche Fokussierung der vom Kryostat emanierten Radon-Atome auf die Detektoren zu vermeiden, wurde eine mechanische Barriere aus einer dünnen und reinen Kupferfolie („Shroud“) vorgeschlagen, die am Hals des Kryostaten montiert die konvektionsbedingte Fokussierung von sich möglicherweise im Flüssigargon (LAr) befindlichen  $^{222}\text{Rn}$ -Atomen auf die Detektoren verhindern soll, indem sie das Radon nicht näher als 40 cm an die Detektoren kommen lässt.

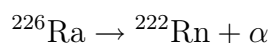
Simulationen, die diese Shroud berücksichtigen, ergeben nun einen von 30 mBq  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation des Kryostaten hervorgerufenen Untergrundindex um  $Q_{\beta\beta}$  von  $1, 5 \cdot 10^{-4} \text{cts}/(\text{kg} \cdot \text{keV} \cdot \text{yr})$  (Phase I, keine Cuts), was – in Kontrast zu dem simulierten Wert ohne Shroud – für GERDA akzeptabel wäre [GERDA09].

Im Gegensatz zu den Testmessungen unterscheidet sich das Emanationsszenario des GERDA-Kryostaten grundlegend vom Szenario des eigentlichen Experimentes. Damit stellt sich nun die Frage, wie die gemessenen und in Tabelle 3.1 gelisteten Daten mit dem für die Simulation verwendeten Wert verglichen werden können.

Während nämlich die Testmessungen allesamt bei Raumtemperatur und gasförmigem Stickstoff als Trägermedium für das Radon durchgeführt wurden, wird im eigentlichen GERDA-Experiment der Kryostat mit etwa  $70 \text{ m}^3$  flüssigem Argon gefüllt sein (siehe Abschnitt 1.3.1), was ein Übertragen der bei den Testmessungen gewonnenen Daten a priori nicht rechtfertigt.

## 3.2 Kalte Emanation

Um dieses von der Problematik des GERDA-Kryostaten angestoßene, aber allgemeinere Problem (siehe beispielsweise [DEAP/CLEAN09, WARP]), des Verhaltens von im Zerfall



entstehendem Radon in kryogenem Argon zu untersuchen, wurden die im Folgenden beschriebenen Untersuchungen angestellt.

### 3.2.1 Versuchsaufbau

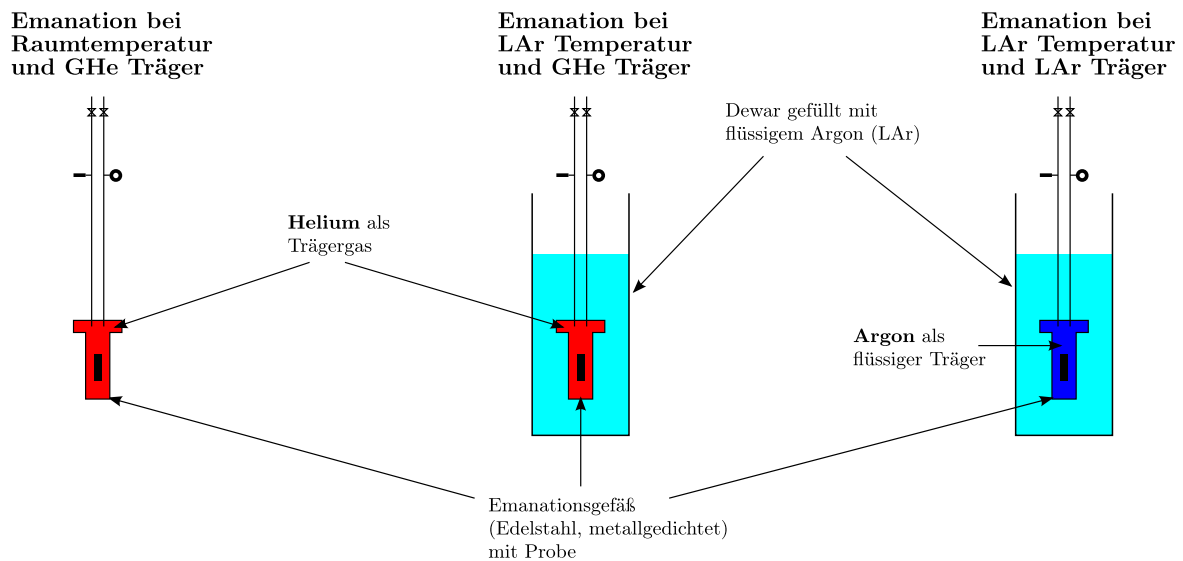
Damit die Möglichkeit einer Übertragung der Testmessungen bei Raumtemperatur und gasförmigem Trägermedium gegeben ist, wurde eine Messserie konzipiert, deren Versuchsaufbau so gewählt ist, dass sowohl die normale „warme“ Emanation, als auch beide Fälle der „kalten“ Emanation bestimmt werden können.

Aufgrund der Wichtigkeit für dieses Kapitel sind hier (siehe auch Abbildung 3.1) die drei Fälle der Emanation zusammengefasst:

- **Warme Emanation:** Diese entspricht dem Standardemanationsszenario. Eine Probe wird in eine luftdichte und (radon-) saubere Atmosphäre eines Trägergases gebracht (in der Regel Helium) und emaniert dort für eine gewisse Zeit bei Raumtemperatur (RT) Radon. Da sich der ganze Messaufbau bei RT befindet, sind auch die Wände des Gefäßes, in dem sich die Probe mit dem Trägergas befindet, wie auch die Probe und das Gas selbst, „warm“.
- **Kalte Emanation:**
  - *Gasförmiges Trägermedium:* Wie im vorherigen Fall wird die Probe in ein luftdichtes und mit einer sauberen Gasatmosphäre gefülltes Gefäß eingebracht. In diesem Fall wird jedoch das Gefäß selbst nicht der Laborumgebung ausgesetzt, sondern in ein LAr-Bad getaucht. Das Gefäß, das Trägergas, sowie die Probe befinden sich also auf LAr-Temperatur. Damit das Trägermedium bei dieser Temperatur gasförmig bleibt, wird Helium (GHe) verwendet.
  - *Flüssiges Trägermedium:* Auch in diesem Fall muss die Probe in ein abgeschlossenes und sauberes System gebracht, von einem Trägermedium umgeben und auf LAr-Temperatur gekühlt werden. Diesmal handelt es sich jedoch nicht um einen gasförmigen Träger, sondern um einen flüssigen. Da hier speziell das GERDA-Szenario simuliert werden soll, ist dieser Träger LAr.

### Anforderungen an den Versuchsaufbau

Die verwendete Falle muss sich sowohl mit gasförmigem Helium, als auch mit flüssigem Argon befüllen lassen. Sie muss radondicht, also vakuumdicht sein, damit weder Radon

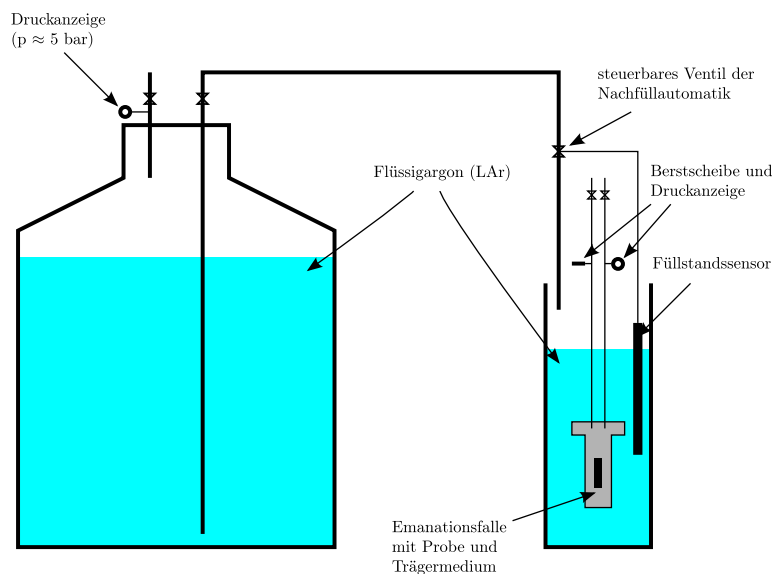


**Abbildung 3.1:** In der Skizze sind die drei verschiedenen Messszenarien dargestellt. Damit eine Vorhersage für das Verhalten von Radon im gefüllten GERDA-Kryostaten möglich wird, wurden sie der Reihe nach mit den jeweiligen Proben durchlaufen.

Das sind zuerst eine „normale“, warme Emanationsmessung mit Helium als Trägergas, danach eine Emanationsmessung mit kalten Oberflächen und noch immer gasförmigem Helium als Träger und schließlich eine kalte Messung mit flüssigem Argon, in das das Radon emaniert wird („GERDA-Szenario“).

entweichen, noch Radon aus der Umgebungsluft in die Apparatur dringen kann. Zudem muss es möglich sein, das Trägermedium so aus der Falle extrahieren zu können, dass ein Erwärmen der Probe ausgeschlossen werden kann. Dies ist besonders wichtig, da sonst nicht sichergestellt werden kann, dass Radonatome, die sich im ungestörten, kalten Medium möglicherweise nicht im Trägermedium befinden, durch Wärmezufuhr aus der Probe diffundieren, oder von der Oberfläche lösen und in das extrahierte und auf seinen  $^{222}\text{Rn}$ -Gehalt getestete Trägermedium gelangen.

Die Forderung der Radondichtheit, sowie die, das gasförmige Trägergas Helium aus der gekühlten Falle zu extrahieren, ohne dabei die Probe zu erwärmen, lässt sich relativ einfach erfüllen. Dazu sind die Falle sowie alle Ventile und Dichtungen aus Metall gefertigt und das Gesamtsystem ist nach dem finalen Aufbau auf seine Vakuumdichtheit hin geprüft. Die Gasextraktion bei kalten Oberflächen ist so arrangiert, dass die Falle während der gesamten Extraktionszeit, wie auch schon während der Emanationszeit, einem Flüssigargonbad ausgesetzt bleibt und sich somit nicht erwärmen kann. Hierzu ist ein zusätzliches, mit flüssigem Argon gefülltes, Dewar-Gefäß (im Folgenden mit Dewar abgekürzt) mit dem eigentlichen zur Kühlung der Probe verwendeten Dewar verbunden und mit einem Füllstandssensor versehen. Unterschreitet der Argonfüllstand im Dewar, der die Kühlung der Probe bewirkt, ein voreingestelltes Niveau, so öffnet ein Ventil und es wird Flüssigargon in das Kühldewar nachgefüllt. Da es sich herausstellt, dass die Verdampfungsrate des Argon relativ gering ist, ist ein Befüllen während der Extraktion des Trägergases nicht nötig. Die



**Abbildung 3.2:** In obiger Abbildung ist der prinzipielle Aufbau skizziert, wie er für die Messreihe der „kalten“ Emanation verwendet wurde. Trägermedium kann sowohl gasförmiges Helium, wie auch flüssiges Argon sein. Das vom Füllstandssensor gesteuerte Ventil der Nachfüllautomatik stellt sicher, dass die Emanationsfalle stets mit flüssigem Argon bedeckt und somit gekühlt ist.

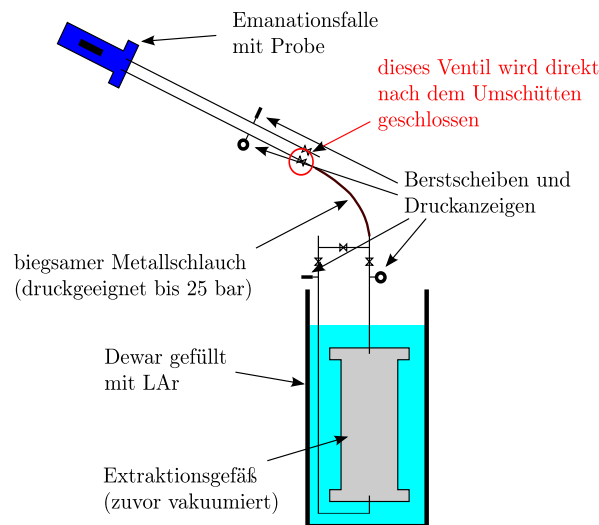
auf ihre korrekte Funktion hin getestete Nachfüllautomatik garantiert jedoch die Kühlung auch während der Wochenenden. In Abbildung 3.2 ist eine schematische Zeichnung dieser Nachfüllautomatik zu sehen.

### Flüssigargonextraktion

Das schwierigere Problem ist die Flüssigargonextraktion. Durch ein Erwärmen der Falle mit dem darin befindlichen flüssigen Argon kann zwar auf einfache Weise genug Druck erzeugt werden, um das restliche, noch flüssige Argon durch ein dafür angebrachtes Auslassventil zu extrahieren, allerdings ist so nicht garantiert, dass zuvor immobile Radonotope, die beispielsweise noch in der Probe oder auf den kalten Oberflächen sitzen könnten, durch die Wärmezufuhr mobil gemacht und so mitextrahiert werden.

Ein von außen künstlich erzeugter Druck auf das flüssige Argon, der mittels einer Druckflasche angebracht werden könnte, birgt das Risiko einer Kontamination. Zudem ist es nur sehr schwer möglich alle Verbindungen, durch die das flüssige Argon gedrückt werden soll, so zu kühlen, dass das Argon an keiner Stelle in die Gasphase übergeht. Wäre dies doch der Fall, so würde das sich stark ausdehnende Argon einen großen Gegendruck entwickeln, der mit der externen Druckversorgung stets kompensiert werden müsste.

In dem hier beschriebenen Versuchsaufbau wurde eine andere Variante der Flüssigargonextraktion gewählt. Diese ist in Abbildung 3.3 skizziert. Das auf seinen Radongehalt zu untersuchende flüssige Argon wird aus der Emanationsfalle in einen größeren, ebenfalls me-



**Abbildung 3.3:** Skizze des Umschüttvorgangs, wie er bei der Messreihe der kalten Emanation mit flüssigem Argon als Träger verwendet wurde. Das mit dem roten Kreis markierte Ventil wird unmittelbar nach dem Umschüttvorgang geschlossen. Das gesamte Volumen unterhalb dieses Ventils einschließlich des Emanationsgefäßes wird im Anschluss aufgewärmt, die Radonotope aus dem so entstehenden Argongas mit den in 2.5.2 beschriebenen Techniken herausgefiltert und mittels der miniaturisierten Proportionalzählrohre (siehe 2.2) gezählt.

tallgedichteten, leckgetesteten, evakuierten und gekühlten Extraktionsbehälter umgeschüttet. Somit kann in kurzer Zeit nahezu das gesamte flüssige Argon aus der Emanationsfalle extrahiert werden, ohne dabei die Probe und die kalten Oberflächen zu erwärmen.

Damit der Umschüttvorgang möglichst schnell durchzuführen ist, wurden alle Ventile und Verbindungen zwischen der Emanationsfalle und dem Extraktionsbehälter mit 1/2" Bauteilen versehen, deren großer Durchmesser ein schnelles Umfüllen ermöglicht.

Befindet sich das flüssige Argon nach dem Umschütten dann außerhalb der Emanationsfalle, so wird das in Abbildung 3.3 rot markierte Ventil geschlossen<sup>1</sup>. Es entstehen somit zwei getrennte Volumina, die beide auf ihre <sup>222</sup>Rn-Aktivität untersucht werden können. Im Folgenden ist mit der LAr Aktivität diejenige Aktivität gemeint, die bei der Messung des Extraktionsbehälters erhalten wird, und mit der Aktivität des Restgases diejenige Aktivität, die für das aus der aufgewärmten Emanationsfalle extrahierte Gas gemessen wird.

<sup>1</sup>Da ein Teil des Argongases sich beim Umschütten erwärmt und dabei in die Gasphase übergeht, der Verbindungsschlauch durch den Kontakt mit dem flüssigen Argon aber auch schon kalt ist, könnten Radonotope, die ursprünglich im Flüssigargon gelöst waren, in der Gasphase an der kalten Oberfläche des Verbindungsschlauches ausfrieren.

Würde man andererseits so lange warten, bis die Emanationsfalle warm genug ist, dass ein Rückfrieren unwahrscheinlich wird, so würde das Problem entstehen, dass die möglicherweise schon während der Emanationszeit aus dem flüssigen Argon heraus an den Oberflächen ausgefrorenen Radonotope in das kalte Extraktionsgefäß gefroren würden. Deshalb muss bei der später folgenden Extraktion der Radonotope aus dem aufgewärmten Argongas auch der Verbindungsschlauch involviert sein.

Im Folgenden soll nun vorgestellt werden, nach welchen Kriterien die Proben ausgewählt wurden, anhand derer das Problem der kalten Emanation untersucht werden sollte. In diesem Kontext werden auch kurz diejenigen Proben vorgestellt, bei denen sich im Nachhinein herausstellte, dass sie nicht die gewünschten Eigenschaften aufweisen. Am Ende dieser Untersuchungen steht schließlich eine Probe, die für passend erachtet wird.

### 3.2.2 Proben

Soll das Problem des GERDA-Kryostaten in einem Laboraufbau simuliert werden, so besteht das erste Problem darin, eine Probe zu finden, die die Eigenschaften des großen GERDA-Kryostaten auf kleinere Dimensionen konzentriert. Dies hat folgende Gründe:

- Der Experimentierplatz im Labor ist begrenzt
- Argon (benötigt für Kühlung und Träger) ist teuer
- Argon vervielfacht sein Volumen (beim Übergang LAr (87 K) nach GAr (288 K) um einen Faktor 830 [FHM<sup>+</sup>06]) und seine Handhabung in großen Mengen ist kompliziert<sup>2</sup>.

Die gesuchte Probe muss also „handhabbare“ Ausmaße, gleichzeitig aber eine möglichst hohe Radonemanation besitzen, damit auch eine starke Reduktion der effektiven Emanation, das heißt der sich im Trägermedium befindlichen Radonatome, noch nachweisbar ist.

Wie in Abschnitt 2.3 erläutert, gibt es zwei Mechanismen, die zur <sup>222</sup>Rn-Emanation beitragen. Dies ist zum einen die stark temperaturabhängige Diffusion von <sup>222</sup>Rn, zum anderen ist dies die so genannte Rückstoßemanation. Dabei bewirkt der Rückstoß, den das <sup>222</sup>Rn-Ion beim  $\alpha$ -Zerfall des <sup>226</sup>Ra-Atoms bekommt, dass das oberflächennahe <sup>222</sup>Rn aus dem Verbund herausgestoßen werden kann, also emaniert wird. (Typische Reichweiten des <sup>222</sup>Rn-Ions mit einer Rückstoßenergie von etwa 85 keV in Festkörpern liegen in der Größenordnung von einigen hundert Ångström [Zie08].)

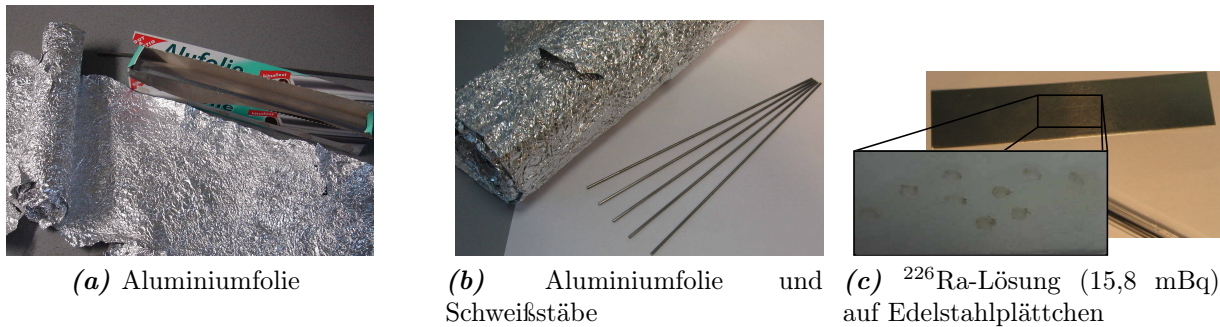
Im schlechtesten Fall könnte also die gesamte <sup>222</sup>Rn-Emanation des GERDA-Kryostaten rückstoßgetrieben sein und damit auch bei tiefen Temperaturen die selbe Anzahl an <sup>222</sup>Rn-Atomen pro Zeiteinheit aus den Oberflächen emaniert werden. (Durch die starke Temperaturabhängigkeit der Diffusion wäre bei LAr-Temperatur ansonsten die Emanationsrate stark reduziert.)

Um nun den schlechtesten Fall möglichst gut simulieren zu können, also den mit der identischen <sup>222</sup>Rn-Emanationsrate auch bei tiefen Temperaturen, muss folglich der dominante Teil der <sup>222</sup>Rn-Emanation rückstoßgetrieben sein.

---

<sup>2</sup>Sollte zum Beispiel aus dem mit etwa 70 m<sup>3</sup> LAr gefüllten GERDA-Kryostaten unter der Annahme von 30 mBq homogen verteiltem <sup>222</sup>Rn eine Probe zur Bestimmung der Aktivität entnommen werden, so muss diese Probe bei einer Nachweisgrenze von etwa 50  $\mu$ Bq ein Volumen von etwa 150 Litern haben. Allein die Entnahme einer solchen Argonmenge ist, wenn überhaupt, nur sehr schwer realisierbar. Zudem entspricht die Reinigung von 150 Litern LAr der Reinigung von 125 m<sup>3</sup>, was eine sehr ambitionierte und aufwendige Aufgabe ist.





**Abbildung 3.4:** Foto der Haushaltsaluminiumfolie mit einer Oberfläche von etwa  $2,2 \text{ m}^2$ , sowie fünf der WTh Schweißelektroden.

Zusammenfassend muss die gesuchte Probe also die folgenden Eigenschaften besitzen:

- kleine Dimensionen
- hohe Radonemanation (Größenordnung mBq bis Bq)
- rückstoßdominierte Emanation (vernachlässigbare  $^{222}\text{Rn}$ -Diffusionslänge)
- metallische Matrix (GERDA-Kryostat ist aus Edelstahl)

Im Folgenden sind nun die einzelnen Proben vorgestellt, die während dieser Arbeit auf Tauglichkeit in obigem Sinne untersucht wurden.

**Aluminiumfolie** Hierbei handelt es sich um eine einfache Haushaltsaluminiumfolie. Um eine große Oberfläche bei kleinem Probenvolumen zu erhalten, wurde die Folie, wie in Abbildung 3.4a gezeigt, zuerst zerknittert und dann locker aufgerollt. (Die Folie aufgerollt zu belassen, würde zwar das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen deutlich erhöhen, a priori ist so aber nicht sichergestellt, dass die Zwischenräume zwischen den einzelnen Lagen ausreichen, um die emanierten  $^{222}\text{Rn}$ -Atome komplett extrahieren zu können.) Die vermessene Probe hat eine Masse von 38 g, eine Oberfläche von  $2,2 \text{ m}^2$  und eine Folienstärke von  $12,5 \mu\text{m}$ .

**Schweißelektroden** Motiviert durch die hohe  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation von Schweißnähten, die mit thorierten Elektroden gefertigt wurden, und die Vermutung, dass bei der Anreicherung der Elektroden mit Thorium auch ein größerer Anteil an Elementen der  $^{235}\text{U}$  Reihe mit in den Werkstoff gelangen könnte, wurden hier zwei Proben mit einmal 3 thorierten Wolframelektroden (WTh) mit  $\varnothing 3 \text{ mm}$ , sowie einmal 5 WTh Elektroden mit  $\varnothing 1 \text{ mm}$  und jeweils einer Länge von 175 mm zusammengestellt. Die Elektroden stammen aus einem alten Vorrat des MPIK Heidelberg, weshalb keine genauen Daten bezüglich des Thoriumgehaltes der Proben verfügbar sind. Aufgrund der orangenen Farbkodierung und der betreffenden ISO-Norm [Int04] kann jedoch davon ausgegangen werden, dass sie zwischen 3,8% - 4,2% Thoriumdioxid ( $\text{ThO}_2$ ) enthalten. Dieses ist homogen in den Schweißelektroden verteilt [OJ73]. Ein Foto dieser Proben ist in Abb. 3.4b zu sehen.



*Abbildung 3.5:* 100 WTh Elektroden mit LARTRAP

**Auf Edelstahlplättchen aufgetropfte Radium-Lösung** In der Hoffnung eine Probe zu erhalten, die sowohl eine hohe  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation, als auch eine reine Oberflächenkontamination aufweist und somit durch Rückstoßemanation dominiert ist, wurde auf ein kleines Edelstahlplättchen eine Radiumlösung aufgetropft. Bei der verwendeten Lösung handelt es sich um eine wässrige  $\text{HCl-BaCl}_2$ -Lösung mit einer  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität von  $0,69 \text{ Bq/g}$ . Wie in [Abbildung 3.4c](#) zu sehen ist, wurde so in mehreren kleineren Tropfen eine Gesamtaktivität von  $15,8 \text{ mBq}$  auf das Edelstahlplättchen pipetiert.

**100 WTh Schweißelektroden** Aufgrund der Erfahrungen mit den oben genannten Proben der  $\text{ThO}_2$  enthaltenden Wolframschweißelektroden wurde eine größere Menge an WTh Schweißelektroden gekauft, deren Aktivität aufgrund der größeren Anzahl höher, sowie deren Thoriumgehalt besser bekannt sein sollte. Es wurden so 100 Wolframelektroden mit einem Thoriumgehalt zwischen  $3,8\%$  und  $4,2\%$ , einer Länge von  $175 \text{ mm}$  und einem Durchmesser von  $1 \text{ mm}$  benutzt.

Mit der spezifischen Aktivität von Thoriumdioxid von  $3700 \text{ Bq/g}$  [[Lit01](#)] ergibt sich eine  $^{232}\text{Th}$ -Aktivität der Elektroden von etwa  $37 \text{ kBq}$ . Aufgrund des hohen Comptonuntergrundes der Thoriumlinien einer solchen Aktivität blieb der Versuch, mit Hilfe einer Germanium-Gammaspektroskopie den im Vergleich zum  $^{232}\text{Th}$ - niedrigen  $^{226}\text{Ra}$ -Gehalt zu bestimmen, erfolglos. Nachdem die orangene, den Thoriumgehalt indizierende Farbe [[Int04](#)] entfernt wurde, betrug das Gesamtgewicht der 100 Elektroden  $(249,45 \pm 0,05) \text{ g}$ . In [Abbildung 3.5](#) sind die Elektroden zusammen mit der bei der Messung verwendeten Falle (LARTRAP) gezeigt.

### 3.2.3 Durchführung und Ergebnisse

Die Durchführung des Experimentes, das heißt die Extraktion, das Füllen der Zählrohre, sowie die Datennahme, entspricht im Wesentlichen der in [Abschnitt 2.5.2](#) beschriebenen Prozedur. Sofern abweichend davon gearbeitet wurde, ist dies bei der jeweiligen Messung mit angegeben. Ergebnisse sind immer auf den Sättigungswert extrapoliert, der sich einstellt, sobald Zerfall der  $^{222}\text{Rn}$ -Atome und die als konstant angenommene Emanation von

$^{222}\text{Rn}$ Emanation	gasförmiger Träger		flüssiger Träger
	Raumtemperatur	LAr Temperatur	LAr Temperatur
Al Folie (2,2 m <sup>2</sup> )	< 0,12 mBq	-	-
Schweißelektroden (3 Stück)	(0,13 ± 0,01) mBq	-	-
Al Folie und Schweißelektroden (5 Stück)	(0,14 ± 0,01) mBq	-	-
$^{226}\text{Ra}$ Lösung (15,8 mBq) auf Edelstahlplättchen	(1,4 ± 0,2) mBq	< 0,014 mBq	-
100 thorierte Schweißelektroden (4% ThO <sub>2</sub> )	(1,5 ± 0,2) mBq	< 0,04 mBq	<b>(1,0 ± 0,1) mBq</b>

**Tabelle 3.2:** Ergebnisse der Vergleichsmessungen „warme vs. kalte“ Emanation. Für Felder, die mit einem „-“ gekennzeichnet sind, wurde aus den im Text genannten Gründen kein Wert gemessen. Der fett hervorgehobene Wert kann nur unter Voraussetzung einiger später im Text getroffener Annahmen gewonnen werden und sollte daher unter Vorbehalt gesehen werden.

$^{222}\text{Rn}$ -Atomen aus der Probe sich gerade kompensieren.

Tabelle 3.2 listet die Ergebnisse der Messserien für die drei in 3.1 vorgestellten Szenarien auf. Dabei handelt es sich nicht um die Ergebnisse der Einzelmessungen, sondern stets um Mittelwerte von typischerweise drei Messungen. Nur mit der letzten Probe (100 WTh Elektroden) wurde die komplette Messserie durchgeführt. Bei den übrigen Proben stellte sich schon zu einem früheren Zeitpunkt heraus, dass ein Weiterführen der Messserie zu keinen neuen Erkenntnissen führen würde.

## Warme Emanation

**Emanation bei Raumtemperatur mit GHe-Träger** Für die Aktivität der Haushaltsaluminiumfolie konnte nur eine Obergrenze der  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation von 0,12 mBq angegeben werden. (Dies entspricht einer auf die Oberfläche normierten Obergrenze der  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation von 55  $\mu\text{Bq}/\text{m}^2$ .)

Die Messung der Probe mit den 3 thorierten Wolframelektroden ( $\varnothing$  3 mm, Länge 175 mm) ergab eine Aktivität von (0,13 ± 0,01) mBq, weshalb WTh Elektroden in diesem Zusammenhang als prinzipiell gute Probe angesehen wurden, jedoch die Aktivität dieser Elektrodenanzahl nicht ausreichend erschien.

Parallel zur Probe mit den 3 WTh Elektroden wurde eine Probe bestehend aus den anderen 5 WTh Elektroden ( $\varnothing$  1 mm, Länge 175 mm) zusammen mit der anfangs untersuchten Aluminiumfolie<sup>3</sup> gemessen. Die Aktivität, vergleichbar mit der Probe der 3 dickeren WTh

<sup>3</sup>Die Aluminiumfolie, deren Aktivität allein zu gering ausfiel, soll dabei die metallische Oberfläche ver-

Elektroden, betrug  $(0,14 \pm 0,01)$  mBq.

Die  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation des Edelstahlplättchens, das mit einer Aktivität von etwa 16 mBq einer wässrigen  $^{226}\text{Ra}$ -Lösung kontaminiert wurde, konnte nur zu  $(1,4 \pm 0,2)$  mBq bestimmt werden. Diese Tatsache, sowie diejenige, dass schon mit bloßem Auge die Stellen ausgemacht werden können, wo die  $^{226}\text{Ra}$ -Lösung auf das Metall getropft wurde (Abb. 3.4c), legen die Vermutung nahe, dass keine reine  $^{226}\text{Ra}$ -Oberflächenkontamination erfolgte<sup>4</sup>.

Die  $^{222}\text{Rn}$ -Sättigungsaktivität der Probe bestehend aus 100  $\text{ThO}_2$  enthaltenden Wolframelektroden wurde schließlich zu  $(1,5 \pm 0,2)$  mBq bestimmt. Dieser Wert entspricht zwar nicht der erwarteten Erhöhung um einen Faktor 20 (lediglich um einen Faktor 10 im Vergleich zur Emanation der 5 gleichdimensionierten WTh Elektroden), da bei diesen jedoch die Herkunft nicht mehr bekannt ist, könnte der Faktor 2 in der  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation pro Wolframelektrode aus den unterschiedlichen Produktionsverfahren der Elektroden herrühren.

#### Kalte Emanation

**Emanation bei LAr-Kühlung mit GHe-Träger** Wie bereits erwähnt, wurde hierzu der Probenbehälter mit sauberem Helium gefüllt und während der kompletten Emanationszeit zur Kühlung in Flüssigargon gestellt. Zur Extraktion des Trägergases wurde der Probenbehälter an die Gasline angeschlossen, wobei der Probenbehälter auch während der Extraktion immer dem LAr-Bad ausgesetzt blieb.

Für die Aktivitäten von sowohl der  $^{226}\text{Ra}$ -Lösung, als auch der 100 WTh Elektroden kann bei diesem Emanationsszenario nur eine Obergrenze angegeben werden. Diese beträgt 0,014 mBq ( $^{226}\text{Ra}$ -Lösung) und 0,04 mBq (WTh Elektroden).

Um Aufschluss darüber zu erhalten, weshalb bei den beiden mit kalter Oberfläche gemessenen Proben die Radonaktivität im Trägergas so stark abnimmt, wurden zwei weitere Testserien durchgeführt, die im Folgenden erklärt werden.

**Spülen und Pumpen** Dieser Test wurde durch eine in [WZ08] geschilderte Erfahrung motiviert, dass es möglich ist Radon aus einem Gasstrom an einer kalten Oberfläche auszufrieren und später durch Pumpen wieder von dieser zu entfernen. Nachdem die Probe in einem Flüssigargonbad mit Helium als Trägergas die übliche Zeit  $^{222}\text{Rn}$  emanieren konnte, wurde dazu bei der Extraktion nur mit Helium gespült, nicht aber an der Probe gepumpt. Im Vergleich dazu wurden Messungen durchgeführt, bei denen für etwa fünf bis zehn Minuten am Probenbehälter durch die Aktivkohle hindurch gepumpt wurde, nachdem für die übliche halbe Stunde das Trägergas aus dem Probenbehälter mit Helium herausgespült wurde. Die Ergebnisse dieses Tests sind in 3.3 aufgelistet.

---

größern, was bei den kalte Emanationsmessungen interessant sein könnte.

<sup>4</sup>Als Konsequenz der Unwissenheit über die Art dieser Kontamination ( $\text{BaCl}_2$ -Kristalllagen auf Edelstahlplättchen; durch Säure aufgeätzte Metalloberfläche und so in tiefere Lagen eingearbeitete  $^{226}\text{Ra}$ -Atome), wurde diese Probe nicht mehr mit einem LAr Träger vermessen.

Spülen und Pumpen	Spülen und Pumpen	Nur Spülen
$^{226}\text{Ra}$ Lösung (15,8 mBq) auf Edelstahlplättchen	< 0,02 mBq	<0.014 mBq
100 thorierte Schweißelektroden ( $\sim 4\%$ $\text{ThO}_2$ )	< 0,04 mBq	< 0,04 mBq

**Tabelle 3.3:** Ergebnisse der Messserie „Pumpen“. Die Emanation sowie die Extraktion fanden bei LAr Temperatur statt. Einmal wurde bei der Extraktion sowohl mit Helium gespült, als auch am Ende an dem Probenbehälter gepumpt. Bei der zweiten Messserie wurde bei der Extraktion nur mit Helium gespült, nicht aber an der Probe gepumpt.

**Aufwärmen** Der während der kompletten Emanationszeit durch ein Flüssigargonbad kalt gehaltene Probenbehälter wurde kurz vor der Extraktion aus dem Argonbad entfernt und für circa drei Stunden in Zimmerluft auf Raumtemperatur (RT) gebracht. Nach dieser im Vergleich zur Emanation kurzen Zeit wurde dann die Extraktion des Trägergases begonnen. Hierzu wurde zunächst für eine halbe Stunde mit Helium gespült, danach das restliche Helium aus dem Probenbehälter gepumpt. Die zu diesem Versuch gehörenden Messdaten sind in Tabelle 3.4 aufgelistet.

### Emanation bei LAr-Kühlung mit LAr-Träger

Dieser letzte Teil der Messserie wurde nur noch für die Probe der 100 WTh Elektroden durchgeführt, da diese die in Abschnitt 3.2.2 geforderten Kriterien am besten erfüllten.

**Vorbereitung der LArTrap und Füllen mit LAr** Für diese Messungen wurde zunächst der Probenbehälter (LARTRAP) mit dem Aufbewahrungstank für das flüssige Argon verbunden und die Verbindungsschläuche ab dem zum Aufbewahrungstank gehörenden Auslassventil einschließlich der LARTRAP für etwa eine Stunde ausgeheizt und dabei mit Argon aus dem Aufbewahrungstank durch den Verbindungsschlauch und durch die LARTRAP gespült. Das Auslassventil des Aufbewahrungstanks wurde dabei gerade so weit ge-

Aufwärmen	Extraktion bei Raumtemp.	
	Emanation bei Raumtemp.	Emanation bei LAr Temp.
$^{226}\text{Ra}$ Lösung (16 mBq) auf Edelstahlplättchen	$(1,4 \pm 0,2)$ mBq	$(1,7 \pm 0,2)$ mBq
100 thorierte Schweißelektroden ( $\sim 4\%$ $\text{ThO}_2$ )	$(1,5 \pm 0,2)$ mBq	$(1,2 \pm 0,1)$ mBq

**Tabelle 3.4:** Ergebnisse der Messserie „Aufwärmen“. Die Emanation fand bei LAr Temperatur statt. Circa drei Stunden vor der Extraktion wurde dann das LAr Bad entfernt und später das aufgewärmte Trägergas extrahiert.



**Abbildung 3.6:** Im Foto ist der Füllvorgang der LARTRAP mit LAr zu sehen. An der Aluminiumfolie, die um den Verbindungsschlauch zwischen dem großen LAr-Vorratstank auf der linken Seite und der LARTRAP, die sich in diesem Bild bereits in ihrem Kühldewar befindet, kann noch erkannt werden, ab wo das System vor dem Füllen ausgeheizt wurde.

öffnet, dass die Heizleistung des den Verbindungsschlauch zwischen Auslassventil und des die LARTRAP wärmenden Heizbandes stets ausreichte, dass das Argon stets im gasförmigen Zustand durch den Schlauch strömte. In Abbildung 3.6 ist ein Foto dieses Aufbaus zu sehen. Nach der Reinigung der Verbindungen und der Falle LARTRAP selbst wurde (ohne den Argonfluss zu verändern) das Heizen gestoppt und die LARTRAP durch Eintauchen in ein LAr Bad abgekühlt. Nach etwa 20 Minuten konnten dann alle Ventile geschlossen werden, da die LARTRAP mit LAr gefüllt war.

**Bestimmung der LAr-Menge in der LArTrap** Die Menge des LAr, die so in die LARTRAP gefüllt wurde, wird bestimmt indem die LARTRAP vor und nach dem Füllen gewogen wird. Da die Falle jedoch nicht ohne weiteres aus ihrer LAr-Kühlung genommen werden kann<sup>5</sup>, da sich das LAr bei Raumtemperatur um den erwähnten Faktor von 830 ausdehnen würde, wurde ein kleines, mit einer minimalen Menge an LAr gefülltes Dewar auf der verwendeten Waage platziert und die LARTRAP während der Wägung in diesem gekühlt. Die Masse des gefüllten Dewars von etwa 10 kg wurde anschließend genau bestimmt und mit der Gesamtmasse verrechnet.

**Emanation und Extraktion** Zur Emanation wird der so gefüllte Probenbehälter zur ständigen Kühlung in seinem LAr-Bad belassen. Die Extraktion des LAr aus der LARTRAP wird dann, wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, durch Umschütten in einen ausgeheizten, evakuierten und gekühlten Extraktionsbehälter erreicht, der schließlich aufgewärmt wird.

---

<sup>5</sup>Zur Sicherheit ist die LARTRAP mit einer Berstscheibe versehen, die bereits bei 18 ( $\pm 10\%$ ) bar Überdruck auslöst.



Das nun gasförmige Argon wird anschließend von den möglicherweise vorhandenen  $^{222}\text{Rn}$ -Atomen in einer gekühlten Aktivkohlefalle gereinigt. Die sich in dieser Aktivkohlefalle befindlichen  $^{222}\text{Rn}$ -Atome werden dann, wie üblich und in Abschnitt 2.5.2 beschrieben, mit Hilfe der Gasline in ein miniaturisiertes Proportionalzählrohr gefüllt und ihre Aktivität wird bestimmt. Das Restgas, das nach dem Umschütten des LAr aus der LARTRAP in den Extraktionsbehälter in der LARTRAP verbleibt, kann danach gesondert gemessen werden.

**Blank** Um zu demonstrieren, dass die Reinheit des direkt aus dem Vorratstank entnommenen und nicht extra gereinigten Argons für diese Messung ausreichend ist, sowie um zu zeigen, dass sich bei dieser Prozedur kein Radon aus der Umgebung ansammelt und gezählt wird, wurden für eine Blankmessung die 100 WTh Elektroden aus der LARTRAP entfernt und die oben beschriebene Prozedur mit dem leeren Probenbehälter durchgeführt.

Die gefundenen Aktivitäten sowohl des LAr, als auch des Restgases, waren dabei so niedrig, dass lediglich Obergrenzen der Aktivität angegeben werden können. Diese Obergrenzen betragen  $32\mu\text{Bq}$  für das LAr und  $25\mu\text{Bq}$  für das Restgas.

**Ergebnisse** Die aus drei Messungen entstandenen Ergebnisse sind in Tabelle 3.5 zusammengestellt. Zur späteren Interpretation sind die Volumina der einzelnen Teile der LARTRAP interessant:

- zylindrisches Hauptvolumen:  $(245 \pm 6)$  ml
- Volumen der 100 thorierten Schweißelektroden:  $(13,7 \pm 0,3)$  ml
- Volumen, bis Elektroden vollständig bedeckt sind:  $(220 \pm 6)$  ml  
(abzüglich dem Volumen der Schweißelektroden:  $(206 \pm 6)$  ml)
- Volumen der Rohre (begrenzt durch Ventile, Berstscheibe und Druckmessgerät):  
 $(57 \pm 5)$  ml

Die Genauigkeit dieser Angaben ist relativ schlecht, da der Übergang von einem in das andere Volumen natürlich nicht scharf begrenzt ist. Das Volumen der Rohre ist nicht komplett in LAr eingetaucht und es herrscht somit dort ein starker Temperaturgradient. Das zylindrische Hauptvolumen dagegen ist immer ganz in das LAr-Bad getaucht.

Zu den einzelnen Messungen sollen an dieser Stelle noch ein paar Worte gesagt werden:

1. Bei der ersten Messung wurde nur das umgeschüttete LAr, nicht aber das in der LARTRAP verbliebene Restgas gemessen. Die gefundene Aktivität beträgt  $(1,0 \pm 0,1)$  mBq.
2. Bei der zweiten Messung wurde sowohl das umgeschüttete LAr, als auch das in der LARTRAP verbliebene Restgas gemessen. Im Nachhinein stellte sich heraus, dass die LARTRAP vor der Messung geöffnet wurde und beim Wiederverschließen kein neuer Kupferdichtring benutzt wurde. Beim Befüllen des Zählrohres wurde zudem viel Gas bemerkt (der Getter musste deutlich länger zugeschalten werden, als bei den übrigen Messungen). Dies lässt eine undichte Stelle und Luft in der Argonprobe vermuten.

Kalte Emanation in LAr	Füllmenge LAr		Aktivität [mBq]	
	absolut [ml]	WTh bedeckt	Restgas	LAr
1. Messung (25.09.09)	$216 \pm 7$	100%	-	$1,0 \pm 0,1$
2. Messung (28.10.09)	$144 \pm 7$	70%	$(1,8 \pm 0,2)$	$(0,64 \pm 0,07)$
Blank (10.11.09)	$164 \pm 7$	-	$< 0,025$	$< 0,032$
3. Messung (24.11.09)	$205 \pm 7$	99,5%	$(7,9 \pm 0,5)$	$1,0 \pm 0,1$

**Tabelle 3.5:** In der Tabelle sind in chronologischer Reihenfolge (Datum der Extraktion in Klammern) die einzelnen  $^{222}\text{Rn}$ -Emanationsmessungen der 100 WTh Elektroden in Ar angegeben. Die Menge des gefüllten LAr ist einmal absolut in ml und einmal relativ zum Volumen angegeben, das benötigt wird um die Schweißelektroden komplett mit LAr zu bedecken.

- Hier wurden die thorierten Schweißelektroden aus der LARTRAP entfernt und so nur der Beitrag der Aktivität im LAr, sowie im Restgas gemessen, der aufgrund des verwendeten Argons und der Messprozedur zustande kommt. Wie oben erwähnt können nur Obergrenzen dieser Aktivitäten angegeben werden.
- Bei der dritten Messung wurde für das Argonrestgas in der LARTRAP eine Aktivität von  $(7,9 \pm 0,5)$  mBq und für das umgeschüttete LAr eine Aktivität von  $(1,0 \pm 0,1)$  mBq gemessen. Direkt nach der Aktivitätsbestimmung des Restgases wurde das für diese Messung verwendete Zählrohr (#68) für eine Untergrundmessung vorbereitet und so ein Defekt festgestellt (Untergrund von 1800 Ereignissen pro Tag). Das daraufhin untersuchte Spektrum, das bei der Aktivitätsbestimmung des Restgases aufgenommen wurde, zeigte keine typische  $^{222}\text{Rn}$ -Charakteristik.

Aus den oben angeführten Gründen sind die Messungen in Tabelle 3.5 geklammert, bei denen der Verdacht besteht, dass ihr Ergebnis verfälscht ist.

### 3.2.4 Interpretation

Im folgenden Abschnitt soll versucht werden eine Interpretation der bei der Messserie der kalten Emanation gewonnenen Daten zu finden. Es wird dabei zunächst auf die Emanationsergebnisse bei Raumtemperatur eingegangen, dann sollen die Daten der Emanation bei LAr-Kühlung besprochen werden, sowie der zusätzlichen Messreihen „Spülen und Pumpen“ und „Aufwärmen“ und zum Schluss die Ergebnisse bei LAr Kühlung und LAr als Trägermedium der  $^{222}\text{Rn}$ -Atome interpretiert werden.

#### Emanation und Extraktion bei Raumtemperatur

Hier lieferte die Aluminiumfolie ein enttäuschendes Ergebnis. Wie bereits erwähnt, gilt normales Aluminium als für Low-Level Experimente ungeeignet<sup>6</sup>. In Hinsicht auf die  $^{222}\text{Rn}$ -

<sup>6</sup>Mündliches Statement von M. Wojcik.



Emanation konnte dies für die in dieser Arbeit vermessene Probe (38 g) – aus unserer Sicht leider – nicht bestätigt werden.

Die Emanation der  $^{226}\text{Ra}$ -haltigen  $\text{HCl-BaCl}_2$ -Lösung, die auf ein Metallplättchen aufgeträufelt wurde, liegt um einen Faktor 5 niedriger, als eine erste (naive) Abschätzung vermuten ließ<sup>7</sup>. Hierfür könnten zwei Möglichkeiten in Frage kommen. Zum einen könnten die  $^{226}\text{Ra}$ -Atome, nachdem das Wasser der  $\text{BaCl}_2$ -Lösung auf dem Metallplättchen verdunstet ist, in ein  $\text{BaCl}_2$ -Ionengitter als Fehlstellen eingebaut worden sein. Die Tatsache, dass die entstehenden Radonatome aufgrund der starken Ionenbindung nicht weit im  $\text{BaCl}_2$  diffundieren können, könnte diesen Effekt ausmachen. Eine Rechnung (SRIM 2008 [Zie08]) ergibt für die Reichweite der beim  $^{226}\text{Ra}$ -Zerfall entstehenden  $^{222}\text{Rn}$ -Ionen mit  $E_{\text{kin}} \approx 85$  keV zu etwa 45 nm, bei einer Gleichverteilung des  $\text{BaCl}_2$  auf alle Tropfen sollte die Salzstruktur<sup>8</sup> etwa 500 nm hoch sein, was diesen Effekt erklären könnte.

Eine zweite Erklärungsmöglichkeit wäre, dass beim Ätzen durch die wässrige  $\text{BaCl}_2$  und  $^{226}\text{Ra}$  enthaltende Salzsäurelösung die Metallstruktur angegriffen und dadurch  $^{226}\text{Ra}$ -Atome so tief in den Edelstahl eingearbeitet wurden, dass die Rückstoßenergie beim  $^{226}\text{Ra}$ -Zerfall für einen Großteil der  $^{222}\text{Rn}$ -Ionen nicht ausreicht um sie aus dem Metall zu entfernen.

### Emanation bei LAr-Kühlung mit GHe-Träger

Aufgrund der starken chemischen Bindungen in Metallen (und Salzen), sollte die Diffusionslänge von  $^{222}\text{Rn}$  viel kürzer sein als in organischen Stoffen, die aus untereinander nur schwach chemisch gebundenen großen Molekülen bestehen. Es sollte folglich davon ausgegangen werden können, dass die Emanation der WTh Elektroden, sowie der  $^{226}\text{Ra}$ -Lösung auf dem Edelstahlplättchen nicht diffusions-, sondern rückstoßgetrieben ist. Da die beim Zerfall auf das  $^{222}\text{Rn}$ -Ion übertragene Energie von etwa 85 keV groß gegen die thermische Energie ist ( $E_{\text{thermisch}} \approx 1/40$  eV), sollte die Emanationsrate der Proben temperaturunabhängig sein. Da jedoch die Aktivität des bei gekühlter Probe und gekühltem Probenbehälter extrahierten Trägergases stark reduziert ist, bleibt als Erklärung nur, dass die  $^{222}\text{Rn}$ -Atome auf der kalten Probe und auf den kalten Oberflächen der Wände des Probenbehälters sitzen und dort „ausgefroren“ sind. Diese Vermutung lässt sich durch [WZ08] untermauern.

**Aufwärmen** Nach dem Aufwärmen des während der Emanation kalt gehaltenen Probenbehälters mit Probe wird im Trägergas eine im Bereich der ursprünglichen (normale Emanationsmessung) Aktivität gemessen. Unter der Hypothese die Aktivität der Aufwärmessung und der normalen Emanationsmessung seien gleich, lässt sich eine neue Größe  $D$ , nämlich die Differenz der beiden Aktivitäten einführen. Diese sollte nun um Null normalverteilt sein.

<sup>7</sup>Nur etwa die Hälfte der  $^{222}\text{Rn}$ -Ionen bekommt beim  $^{226}\text{Ra}$ -Zerfall einen Impuls in Richtung des Gasvolumens, die andere Hälfte wird etwas tiefer in das Probeninnere injiziert. (Die Reichweite der  $^{222}\text{Rn}$ -Ionen ( $E_{\text{kin}} \approx 85$  keV) beträgt in Edelstahl etwa 15 nm [Zie08]).

<sup>8</sup>Etwa  $2 \mu\text{g BaCl}_2$ ; Größe der Tropfen auf dem Edelstahlplättchen etwa  $1\text{cm}^2$ ; Dichte  $\text{BaCl}_2$  (trocken)  $\rho = 3,8 \text{g/cm}^3$ .

Für die auf das Edelstahlplättchen aufgetropfte  $^{226}\text{Ra}$ -Lösung ergibt sich diese Größe zu  $D = (0,30 \pm 0,28)$  mBq und ist damit innerhalb von  $1,06\sigma$  (28,9% c.l.) mit Null verträglich. Analog ergibt sich für die aus 100 thorierten Schweißelektroden bestehende Probe die Größe zu  $D = (0,30 \pm 0,22)$  mBq. Sie ist damit innerhalb von  $1,34\sigma$  (18,0% c.l.) mit Null verträglich. (Für die Daten siehe Tabelle 3.4.)

Aufgrund der in der Einleitung (2.3) erwähnten Überlegungen, die eine vernachlässigbare Diffusionslänge von Radon in Metallen (und Salzen) nahe legen, ist ein solches Ergebnis mit einer temperaturbedingten Zunahme der Diffusionslänge und einem Ansammeln von  $^{222}\text{Rn}$  im Trägergas durch eine schnelle Diffusion [WZ08] nicht zu erklären. Es bleibt somit die naheliegende Erklärung der bei LAr-Temperatur an den kalten Oberflächen ausgefrorenen und bei Raumtemperatur wieder mobilen  $^{222}\text{Rn}$ -Atome.

**Spülen und Pumpen** Wie bereits erwähnt, konnte in [WZ08] gezeigt werden, dass  $^{222}\text{Rn}$ -Atome ausgefroren, aber auch wieder von den kalten Oberflächen abgepumpt werden können. Dies konnte in dieser Arbeit bei dem verwendeten Setup nicht reproduziert werden.

Mögliche Erklärungen hierfür könnten in der kürzeren Pumpdauer ( $\approx 5$ -10 Minuten) und der niedrigeren Aktivität gefunden werden, die bei diesem Experiment gewählt wurden. Da zur kürzeren Pumpdauer die Pumpleistung am kalten Gefäß durch die relativ langen und dünnen Schläuche (1/4") deutlich geringer war, als dies beim Vergleichsexperiment [WZ08] der Fall gewesen ist, könnte ein Pumpeffekt schlicht nicht sichtbar geworden sein.

**Fazit** Im Vergleich zur Emanation bei Raumtemperatur frieren die in eine gasförmige Heliumatmosphäre emanierten  $^{226}\text{Ra}$ -Atome an den auf LAr-Temperatur gekühlten Edelstahloberflächen aus. Es ergibt sich ein Reduktionsfaktor, der größer ist als 37,5 (für die WTh-Elektroden), beziehungsweise größer ist als 100 ( $^{226}\text{Ra}$ -Lösung auf Edelstahlplättchen).

### Emanation bei LAr-Kühlung mit LAr-Träger

**Volle Aktivität im LAr** Werden die erwähnten Indizien akzeptiert und die in Tabelle 3.5 geklammerten Werte als Messfehler interpretiert, so ergibt sich die im flüssigen Argon gefundene Aktivität unter Mittelwertbildung der 1. und 3. Messung zu  $(1,0 \pm 0,7)$  mBq. (Die Blank-Messung hat gezeigt, dass die Aktivität des Aufbaus mit dem verwendeten Argon vernachlässigt werden kann.)

Unter der Annahme, dass die im LAr gefundene Aktivität mit derjenigen übereinstimmt, die bei Raumtemperatur und gasförmigem Helium als Trägergas gemessen wird, kann erneut die Differenz  $D$  beider Aktivitäten gebildet werden. Diese sollte im Falle, dass die getroffene Annahme korrekt ist, normalverteilt um Null sein. Sie ergibt sich zu:

$$D = (0,50 \pm 0,22) \text{ mBq}.$$

Dies ist eine Abweichung um  $2,24\sigma$ , was einem Konfidenzlevel von nur 2,51% entspricht.

Werden die Indizien, die für eine Luftkontamination in der 2. Messung sprechen, nicht akzeptiert und soll versucht werden, das Ergebnis mit einem Ausfrieren der  $^{222}\text{Rn}$ -Atome an den kalten Oberflächen zu erklären, wie dies bei der kalten Emanation mit gasförmigem Helium als Trägergas gemacht wurde, so führt dies schnell zu Schwierigkeiten:

Angenommen ein Teil der emanierten  $^{222}\text{Rn}$ -Atome sei im LAr gelöst, während der andere Teil an den Wänden im Laufe der Emanationszeit ausfror, beim Umschütten an diesen fest saß und damit nicht extrahiert wurde. Durch das Abtrennen der LARTRAP nach dem Umschütten und das anschließende Aufwärmen auf Zimmertemperatur müssten diese  $^{222}\text{Rn}$ -Atome wieder mobil geworden sein und wären ins Zählrohr gefüllt worden, wo sie dann das Signal produziert hätten. Da dieser Prozess mit etwa 2 Stunden schnell gegenüber der Halbwertszeit von  $^{222}\text{Rn}$  ist, steigt in dieser Zeit die Aktivität aufgrund der andauernden Emanation nur unmerklich und damit vernachlässigbar<sup>9</sup> an. Somit sollte die Summe der im LAr und der im Restgas gemessenen Aktivitäten gleich der totalen Emanation sein. Diese mit  $S$  bezeichnete Summe beträgt

$$S = (2,44 \pm 0,21) \text{ mBq}.$$

Setzen wir nun voraus, dass die warme Emanation und die totale kalte Emanation  $S$  gleich sind, so sollte erneut die Differenz  $D$  beider um Null normalverteilt sein. Es ergibt sich:

$$D = (0,94 \pm 0,29) \text{ mBq}.$$

Dies entspricht nun einer Abweichung um  $3,24\sigma$ , was zu einem Konfidenzlevel von 0,12% führt.

Versuchen wir nun den bei der 2. Messung bestimmten Wert für die Aktivität des umgeschütteten LAr allein, das heißt unter Vernachlässigung des für die Aktivität des Restgases bestimmten Wertes, zu interpretieren:

Mit dem Ergebnis der kalten Emanation bei gasförmigem Träger wissen wir (siehe Abschnitt 3.2.4), dass emanierte  $^{222}\text{Rn}$ -Atome an kalten Oberflächen ausfrieren. Nehmen wir einmal an, die  $^{226}\text{Ra}$ -Atome seien in den thorierten Schweißelektroden genau wie das Thoriumoxid [OJ73] homogen verteilt. Nun können wir weiter voraussetzen, dass oberhalb des LAr von den Elektroden emanierte  $^{222}\text{Rn}$ -Atome nur eine gasförmige Argonatmosphäre sehen und sich hier wie zuvor im gasförmigen Helium verhalten, also an den Wänden ausfrieren. Da die vom gasförmigen Argon aus sichtbare Oberfläche des LAr deutlich geringer ist als die nicht mit LAr bedeckte, aber dennoch kalte Edelstahloberfläche der LARTRAP (aufgrund des Füllstandes von weniger als 70% bei dieser Messung ergibt sich selbst unter Vernachlässigung der Rohre ein Verhältnis von  $O_{\text{LAr}}/O_{\text{Stahl}} \approx 0,15$ ), könnten wir annehmen, dass etwa 85 % der oberhalb des LAr-Füllstandes emanierten  $^{222}\text{Rn}$ -Atome nicht ebenfalls im LAr „gelöst“ werden, sondern an den kalten Oberflächen ausfrieren. Somit

<sup>9</sup>Selbst unter der Annahme einer maximal möglichen Aktivitätszunahme in diesen 2 Stunden wäre lediglich eine Korrektur um  $15 \mu\text{Bq}$  nötig.

würden sie beim Umschütten nicht extrahiert werden. Bei einer Gesamtaktivität der Elektroden von 1,5 mBq blieben somit noch

$$(0,7 + 0,3 \cdot 0,15) \cdot (1,5 \pm 0,2) \text{ mBq} = (1,12 \pm 0,15) \text{ mBq}$$

im LAr zurück. (Der Fehler des Verhältnisses  $O_{LAr}/O_{Stahl}$  wird hierfür auf 33% geschätzt.)

Soll dieser Wert mit dem experimentellen Wert von  $(0,64 \pm 0,07) \text{ mBq}$  übereinstimmen, so muss (wie zuvor) die Differenz  $D$  beider um Null normalverteilt sein. Es ergibt sich:

$$D = (0,48 \pm 0,17) \text{ mBq}.$$

Dies entspricht einer Abweichung von  $2,82\sigma$ , was in einem Konfidenzlevel von nur 0,48% resultiert.

**Geringere Aktivität im LAr** Nehmen wir dagegen an, dass *nicht* die volle Aktivität, die im LAr emaniert wird, auch in diesem bleibt, sondern der Bruchteil  $\alpha$ , mit

$$\alpha = 1 - \frac{\text{Aktivität im LAr bei kalter Em. (1. + 2. Messung)}}{\text{Aktivität im GHe bei warmer Em.}} = 0,33 \pm 0,11,$$

der  $^{222}\text{Rn}$ -Atome auch im LAr an den kalten Edelstahlwänden ausfriert, so ergibt sich der Erwartungswert für die 2. Messung zu

$$(1 - \alpha) \cdot (0,7 + 0,3 \cdot 0,15) \cdot (1,5 \pm 0,2) \text{ mBq} = (0,75 \pm 0,16) \text{ mBq}.$$

Auch hier sollte nun die Differenz  $D$  zwischen Erwartung und Messung normalverteilt um Null sein. Die Differenz ergibt sich in diesem Fall zu

$$D = (0,11 \pm 0,17) \text{ mBq},$$

was innerhalb von  $0,63\sigma$  mit Null verträglich ist.

Da jedoch nicht genug Indizien vorliegen, die erklären, warum bei der 2. Messung nur die Aktivität des Restgases falsch, die des LAr jedoch korrekt bestimmt worden sein sollte, ist eine Bestimmung des Koeffizienten  $\alpha$  (streng genommen) nicht möglich.

### 3.3 Konsequenzen für den Gerda-Kryostaten

Als Ergebnisse der kalten Emanation erhalten wir:

- Werden  $^{222}\text{Rn}$ -Atome von kalten (LAr-Temperatur) Edelstahloberflächen in eine gasförmige Atmosphäre (GHe) emaniert, so frieren mindestens 97% an diesen Oberflächen aus und sind *nicht* (im Helium) mobil.

- Werden  $^{222}\text{Rn}$ -Atome von kalten (LAr-Temperatur) Edelstahloberflächen in eine flüssige Atmosphäre (LAr) emaniert, so friert der große Anteil *nicht* wie zuvor an den kalten Oberflächen aus, sondern ist im LAr mobil.

Damit können wir für den GERDA-Kryostaten schlussfolgern:

- Werden  $^{222}\text{Rn}$ -Atome oberhalb des LAr-Füllstandes emaniert, so können diese Atome an den kalten Edelstahloberflächen des Kryostaten ausfrieren, sind damit nicht im LAr mobil und stellen kein Untergrundproblem dar. (Dabei ist jedoch nicht nur das Verhältnis der beiden Oberflächen von kaltem Edelstahl zu sichtbarem LAr ausschlaggebend, sondern auch die Wahrscheinlichkeit, dass ein  $^{222}\text{Rn}$ -Atom bei Kontakt mit einer solchen dort ausfriert. Über solche Wahrscheinlichkeiten liegen jedoch keine Daten vor.)
- Werden  $^{222}\text{Rn}$ -Atome unterhalb des LAr-Füllstandes emaniert, so frieren sie mit großer Wahrscheinlichkeit nicht wieder an den Edelstahlwänden aus, sondern sind im LAr mobil. (Für den Anteil  $\alpha$  der an den Wänden ausgefrorenen  $^{222}\text{Rn}$ -Atome könnte der Wert  $\alpha = 0,33 \pm 0,11$  angegeben werden.)

**Fazit** Es sollte davon ausgegangen werden, dass die bei warmer Emanation gemessenen Werte der  $^{222}\text{Rn}$ -Aktivität (siehe Tabelle 3.1) auf die kalte Emanation des GERDA-Szenarios übertragen werden müssen; dass sich also die ganze, warm bestimmte  $^{222}\text{Rn}$ -Aktivität mobil im LAr des GERDA-Kryostaten befinden wird.

## Kryptonmessungen

Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) gibt die gegenwärtige von  $^{85}\text{Kr}$  ausgehende atmosphärische Aktivitätskonzentration in Luft zu  $1,5 \text{ Bq/m}^3$  für Zentraleuropa an [BSS09]. Die vom BfS veröffentlichten Daten ihrer Messstation (Schauinsland, nahe Freiburg) sind vergleichshalber in Abbildung 4 dargestellt. Gut erkennbar ist sowohl der über mehrere Jahrzehnte bis 2003 ansteigende und dann stagnierende Mittelwert, als auch die auf Wiederaufbereitungszyklen der Anlagen La Hague (Frankreich) und Sellafield (Großbritannien) zurückzuführende Erhöhungen dieser Aktivitätskonzentration um bis zu einen Faktor 3.

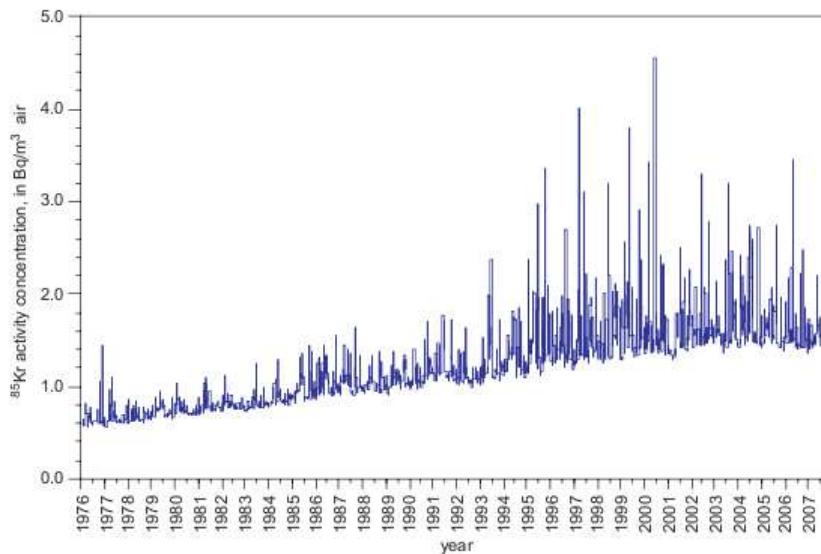
Das BfS geht zwar von einem für ganz Zentraleuropa im Wesentlichen konstanten Wert dieser atmosphärischen Aktivitätskonzentration aus, jedoch wurde bis zum Zeitpunkt dieser Arbeit noch nie eine italienische Luftprobe auf ihren  $^{85}\text{Kr}$ -Gehalt untersucht. Es bleiben also Zweifel, ob der Luftaustausch über die Alpen hinweg tatsächlich als „schnell“ gegen die Halbwertszeit des  $^{85}\text{Kr}$  von etwa 10,8 Jahren angenommen werden kann. Da jedoch Low-Level-Experimente wie XENON oder BOREXINO sehr empfindlich auf  $^{85}\text{Kr}$  in ihrem Detektor sind, ist es von großem Interesse einen genauen Wert der atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätskonzentration zu kennen.

Ein Vorteil der in dieser Arbeit entwickelten Methode gegenüber den üblichen Methoden zur Bestimmung der  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration ist die deutlich geringere Luftprobengröße, die benötigt wird. Während andere Methoden Proben von vielen Kubikmetern benötigen<sup>1</sup>, kommt die im Folgenden beschriebene Methode mit einer Luftprobe von etwa 1 Liter (STP) aus.

In diesem Kapitel soll eine Charakterisierung der in dieser Arbeit entwickelten Krypton Messprozedur gegeben werden, die es erlaubt den  $^{85}\text{Kr}$ -Gehalt in Luft zu bestimmen. Dazu wird im ersten Abschnitt eine genaue Prozedur angegeben, mit der es möglich ist aus einer Luftprobe mit Hilfe von Gaschromatographie Krypton abzutrennen (Abschnitt 4.1). Die hier entwickelte Prozedur ist nicht sensitiv auf ein spezielles Kryptonisotop. Damit eignet

---

<sup>1</sup>Der Deutsche Wetterdienst filtert beispielsweise auf der Zugspitze über einen Zeitraum von 7 Tagen etwa  $10 \text{ m}^3$  Luft um schließlich mit etwa 7 ml Krypton (natürliches Isotopenverhältnis) messen zu können [SDF<sup>+</sup>04].



**Abbildung 4.1:** Atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätskonzentration des Probenortes Schauinsland nahe Freiburg gemessen vom Bundesamt für Strahlenschutz. Quelle: [BSS09].

sie sich zum Beispiel auch für die Abtrennung von  $^{83m}\text{Kr}$  (Halbwertszeit von 1,83 Stunden), wie sie bei dem erwähnten (siehe Abschnitt 1.3.2 und 2.4.2) für das XENON-Experiment wichtigen Test auf eine mögliche  $^{83}\text{Rb}$ -Emanation ihrer  $^{83m}\text{Kr}$ -Eichquelle<sup>2</sup> Anwendung findet.

Die darauf folgenden Abschnitte befassen sich dann mit der Detektion durch die am MPIK Heidelberg entwickelten miniaturisierten Proportionalzählrohre von Elektronen, die mit einer Endpunktsenergie von 687 keV beim Zerfall von  $^{85}\text{Kr}$  entstehen. Hier wird zunächst das Datennahmesystem mit dem Myonveto vorgestellt (Abschnitt 4.2) und dann die Energiekalibrierung (Abschnitt 4.3) und das zugehörige neue Zählgas (Abschnitt 4.4) charakterisiert.

In einem weiteren Abschnitt werden Testverfahren erläutert, mit deren Hilfe es möglich war die Reinigungsprozedur des Kryptons aus der Luft mit der angeschlossenen Datennahme zu evaluieren (Abschnitt 4.5).

Im letzten Abschnitt sind dann Ergebnisse von Messungen des  $^{85}\text{Kr}$ -Gehaltes in Luft von den Messorten MPIK (Heidelberg) und Hall A (LNGS, Italien) angegeben (Abschnitt 4.6).

<sup>2</sup>Bei dieser Eichquelle handelt es sich um ein Molekularsieb, das bei der Herstellung der Quelle mit einer  $^{83}\text{Rb}$ -Lösung benetzt wurde. Beim Zerfall des  $^{83}\text{Rb}$  (siehe [KMMM09]) entsteht das zur Kalibrierung verwendete  $^{83m}\text{Kr}$ .

## 4.1 Prozedur zur Abtrennung von Krypton aus Luft

Nachdem die theoretischen Grundlagen, auf denen die Chromatographie beruht, in 2.1.2 besprochen wurden, soll hier nun die spezielle Prozedur angegeben werden, mit der es unter Verwendung der bereits im Abschnitt 2.5.2 beschriebenen Gasline am MPIK Heidelberg (Noblegas-Line) und der Gasline im Zählrohrlabor der LNGS (Gerda-Line) (eine schematische Zeichnung beider Gaslines ist in Abbildung 2.2 zu finden) möglich ist aus einer Luftmenge von etwa einem Liter das Krypton abzutrennen und schließlich in eines der miniaturisierten Proportionalzählrohre zu füllen.

**Präparation der Probe** Um einen definierten Anfangszustand zu erhalten, wird vor der Messung der Probenbehälter (im Falle dieser Arbeit ein Glaskolben mit  $(1,250 \pm 0,003)$  l Volumen) evakuiert, dann an den Ort gebracht, von dem die Luftprobe genommen werden soll, und schließlich zur Atmosphäre hin geöffnet. Somit stellt sich der aktuelle Luftdruck auch im Glaskolben ein.

**Transfer der Probe auf die Aktivkohle** Der Probenbehälter wird nun an die Gasline angeschlossen und die Fallen, der Getter, etc. werden wie gewohnt vorbereitet (siehe Abschnitt 2.5). Danach wird die Luftprobe langsam<sup>3</sup> durch die zuvor mit flüssig Argon (LAr) gekühlte Aktivkohle gepumpt. Das Probenvolumen kann nun (je nach dem zuvor beim Pumpen erreichten Druck) ein paar Mal mit gereinigtem Helium gefüllt werden und erneut durch die Aktivkohle abgepumpt werden. Dabei muss die Aktivkohle stets mit flüssig Argon gekühlt sein. Auf diese Weise kann bereits ein Großteil des Stickstoffs aus der Probe entfernt werden.

**Transfer der Probe von der Aktivkohle auf die Chromatographiesäule** Die Aktivkohlefalle wird nun mit der Chromatographiesäule, die selbst rechtzeitig in flüssiges Argon getaucht wurde, verbunden und die Aktivkohle erwärmt. Dadurch wird das Gas in der Aktivkohle mobil und friert auf der kalten Chromatographiesäule wieder aus. Nachdem die Aktivkohle heiß ist und etwa 15 Minuten vergangen sind, wird nun ein kleiner Heliumfluss von der Aktivkohle durch die Chromatographiesäule eingestellt und bei Erreichen eines leichten Überdrucks in der Line im Vergleich zum aktuellen Luftdruck durch ein mit Öl gefülltes Glasgefäß in die Atmosphäre geleitet. (Größe und Häufigkeit der im Öl des Glasgefäßes entstehenden Gasbläschen lassen einen qualitativen Rückschluss auf den Gasfluss zu. Dieser Vorgang wird im Folgenden blubbern, sowie das zugehörige Glasgefäß Blubberflasche genannt.) Streng genommen beginnt die Chromatographie des von der Luftprobe übrig gebliebenen Gases mit Einstellen dieses Heliumflusses. Bei Flüssigargontemperatur wandern jedoch die Komponenten in der Chromatographiesäule noch so langsam (siehe Abschnitt 2.1.2 und [Sim03]), dass diese Tatsache ignoriert werden kann.

---

<sup>3</sup>Etwa für 2 bis 3 Minuten, bis ein Druck von einigen mbar erreicht ist.



**Chromatographie** Nach etwa 15 Minuten Heliumfluss von der Aktivkohlefalle durch die Chromatographiesäule kann davon ausgegangen werden, dass sich nun alles Krypton auf der Chromatographiesäule befindet. Nun kann die eigentliche Chromatographie begonnen werden. Dazu muss der Heliumstrom so umgeleitet werden, dass er an der Chromosorb-Falle vorbei fließt, da diese später zum „Fangen“ des Krypton verwendet wird, die anderen noch in der Probe vorhandenen Gaskomponenten aber nicht adsorbieren soll. Aufgrund der Geometrie der Gaslines kann dazu nicht mehr durch die Aktivkohle gespült werden. Zudem muss ein vom ersten verschiedenes Ventil benutzt werden, um den Heliumstrom (mit den schon durchgebrochenen Gaskomponenten) durch die Blubberflasche aus der Line zu spülen.

Der Fluss wird nun auf 10 Einheiten (entsprechend 0,054 l/min) an der Noblegas-Line, beziehungsweise 3,5 Einheiten an der Gerda-Line eingestellt und der x-y-Schreiber, der den zeitlichen Verlauf auf der x-Achse und die Spannung des Thermistors<sup>4</sup> auf der y-Achse aufträgt, sowie die Spannungsversorgung des Thermistors eingeschaltet. Da der erwartete Durchbruch proportional ist zu

$$V_{ret} \propto T \cdot \exp\left(\frac{b}{T}\right) \xrightarrow{T \rightarrow 0} \infty$$

(siehe (2.2) und (2.3); der Faktor  $b$  ist dabei von den kritischen Größen des betrachteten Gases abhängig), spielt es auch hier (fast) keine Rolle, wie lange für diese vorbereitenden Schritte benötigt wird, denn das Krypton ist in der auf Flüssigargontemperatur gekühlten Chromosorb-Falle quasi unbeweglich.

Nun wird die Flüssigargonkühlung durch ein Alkoholbad mit einer maximal kalten Temperatur von etwa  $-110\text{ °C}$ <sup>5</sup> ersetzt. Dieser Schritt sollte so schnell gehen, dass sich die Chromatographiesäule nicht über die  $-110\text{ °C}$  erwärmt. Nach circa 1-2 Minuten werden nun zuerst das  $\text{N}_2$  und dann das  $\text{O}_2$ <sup>6</sup> durchbrechen, was zu einem deutlichen Ausschlag

---

<sup>4</sup>GOW-MAC Thermal Conductivity Cell. Dieser Detektor registriert eine Veränderung in der thermischen Leitfähigkeit des aus der Chromatographiesäule herausströmenden Gases (Samplegas) im Vergleich zum einströmenden Gas (Referenzgas). Dies ist ein Indikator für eine Beimischung eines neuen Gases zum Trägergas Helium, das im Vergleich zu den meisten Gasen eine hohe thermische Leitfähigkeit besitzt.

Der Detektor registriert diese relative Veränderung der thermischen Leitfähigkeit, indem er die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit ausnutzt. Typischerweise wird dazu im Strom des Referenzgases, wie auch im Strom des Samplegases ein Draht (dünne Glühwendel) durch einen elektrischen Strom erwärmt. Das vorbeiströmende Gas kühlt dabei beide Drähte ab. Mittels beispielsweise einer Brückenschaltung kann dann das Verhältnis der beiden Widerstände verglichen und als Spannungssignal ausgegeben werden.

Kommt im Samplegas eine neue Gaskomponente durch einen Gasdurchbruch in der Chromatographiesäule hinzu, so verändert sich die thermische Leitfähigkeit, damit verändert sich die Temperatur im dem Samplegasstrom ausgesetzten Draht, sein Widerstand verändert sich durch diesen Temperaturanstieg und das das Widerstandsverhältnis indizierende Spannungssignal lässt einen x-y-Schreiber ausschlagen.

<sup>5</sup>Die Schmelztemperatur von Ethanol beträgt  $-114\text{ °C}$  [BGI08]

<sup>6</sup>Zeitlich kurz vor dem Sauerstoffdurchbruch liegt der Argondurchbruch. Die zeitliche Trennung der Gase ist jedoch nicht ausreichend (der Argonpeak ist im Vergleich zum Sauerstoffpeak klein ( $\simeq 1/21$ )), so dass ein Argonpeak nur bei künstlicher Zugabe von Argon sichtbar wird und ansonsten komplett vom Sauerstoff überdeckt ist.

des x-y-Schreibers führt und gut beobachtbar ist. Hat die vom x-y-Schreiber indizierte thermische Leitfähigkeit wieder ihren Ausgangswert erreicht, was etwa nach 15 Minuten der Fall ist, so kann das etwa  $-110\text{ }^{\circ}\text{C}$  kalte gegen ein  $-55\text{ }^{\circ}\text{C}$  kaltes Alkoholbad getauscht werden. In den folgenden 1-2 Minuten kann (bei fein genug eingestellter Sensitivität) ein kleiner und auf einen Durchbruch des noch in der Chromosorb-Falle verbliebenen<sup>7</sup>  $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$  zurück zu führender Ausschlag des x-y-Schreibers beobachtet werden.

Spätestens nach diesen 2 Minuten sollte mit der Kryptonsammlung begonnen werden. Dazu wird der Gasstrom nun durch die im Vorfeld rechtzeitig auf Flüssigargontemperatur gekühlte Chromosorb-Falle geleitet. Das Krypton (aber auch andere Gaskomponenten wie beispielsweise Radon) haben bei dieser Temperatur in der Falle wieder sehr große Durchbruchzeiten, so dass die Kryptonsammlung problemlos für eine halbe Stunde fortgesetzt werden kann.

Um das nun möglicherweise noch in der Chromatographiesäule verbliebene Krypton in die Chromosorb-Falle zu bekommen, kann nun das ursprünglich  $-55\text{ }^{\circ}\text{C}$  kalte Alkoholbad, dessen Temperatur aufgrund der zuvor deutlich kälteren Chromatographiesäule um etwa  $10\text{ }^{\circ}\text{C}$  gefallen ist, gegen ein  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$  kaltes Alkoholbad getauscht werden. Nach weiteren 5 Minuten sollte dann die Kryptonsammlung beendet werden, indem der Gasstrom wieder um die jetzt geschlossene Chromosorb-Falle geleitet wird. Der wichtige Teil der Chromatographie ist damit beendet.

Entfernt man schließlich die Alkoholbadkühlung, damit sich die Chromatographiesäule auf Raumtemperatur erwärmen kann, so ist nach etwa 3 Minuten ein deutlicher  $\text{CO}_2$  Durchbruch sichtbar.

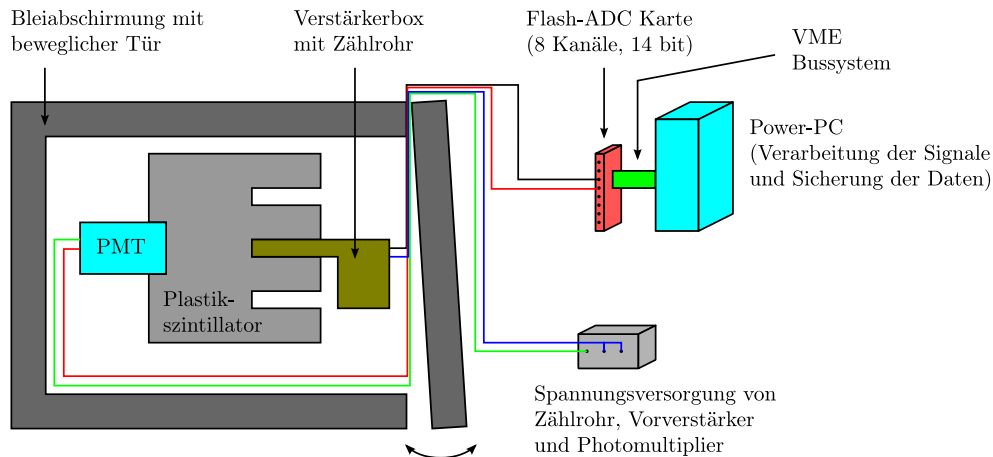
**Transfer von der Chromosorb-Falle in die Toeplerpumpe** Als letzten Schritt muss nun das von der Luft abgetrennte und in der Chromosorb-Falle gespeicherte Krypton von restlichen etwaigen Verunreinigungen gesäubert und in die Toeplerpumpe transferiert werden, wo entweder seine Gasmenge direkt bestimmt wird, oder es mit Zählgas gemischt und in ein Zählrohr gefüllt werden kann.

Dazu wird zunächst das mit in der Chromosorb-Falle eingeschlossene Trägergas Helium abgepumpt (zuerst mit der Vorvakuumpumpe, dann durch die Main-Line mit der Turbopumpe), wobei sich die Falle jederzeit in der Flüssigargonkühlung befindet. Danach kann die Chromosorb-Falle mit dem präparierten Gettervolumen verbunden und aufgewärmt werden. Nach etwa einer halben Stunde Aufwärmen und einer Temperatur der Chromosorb-Falle von etwa  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$  kann der Getter für etwa 15 Minuten zugeschaltet werden<sup>8</sup>. Handelt es sich um eine makroskopische Menge Krypton, so kann nun begonnen werden das Krypton aus dem durch Chromosorb-Falle und Getter begrenzten Volumen zu toeplern und zu vermessen. Soll eine mikroskopische Menge Krypton mit Hilfe der miniaturisierten Propor-

---

<sup>7</sup>Die zeitlichen Durchbruchskurven sind nicht symmetrisch, sondern besitzen ein Tail zu großen Zeiten hin und sind zusätzlich relativ breit. Das heißt, auch nach längerer Wartezeit befindet sich noch immer eine Fraktion des Gases in der Chromatographiesäule. Dieser Anteil führt bei einer erneuten Temperaturerhöhung zu einem weiteren „Peak“.

<sup>8</sup>Je nach Druckentwicklung muss der Getter auch schon früher zugeschaltet, beziehungsweise kann schon nach weniger als 15 Minuten wieder abgeschaltet werden.



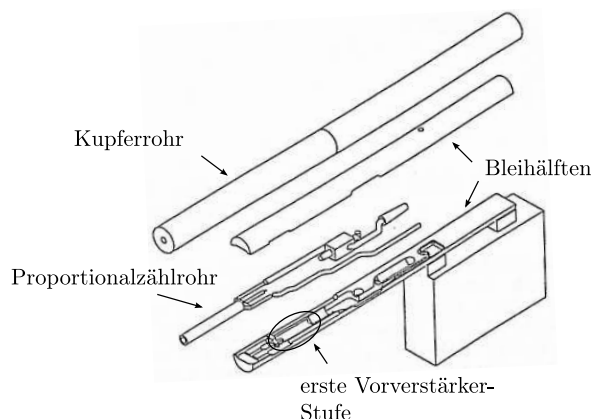
**Abbildung 4.2:** Schematische Darstellung des für die Datennahme verwendeten Systems, wie es im Low Level Labor des MPIK Heidelberg aufgebaut wurde.

tionalzählrohre vermessen werden, so sollte vor dem Einlassen des Zählgases in das besagte Volumen abgewartet werden, bis der Getter auf Raumtemperatur abgekühlt ist (etwa 20 Minuten), da sonst auch ein Teil des sich im Zählgas befindlichen Methans vom Getter zurückgehalten wird und sich so die Eigenschaften des Zählgases verändern können.

## 4.2 DAQ: Datennahmesystem und Myonveto

Im Folgenden soll nun die Hardware beschrieben werden, mit der die durch Chromatographie von der Luft getrennten (Abschnitt 4.1) und in die miniaturisierten Proportionalzählrohre (Abschnitt 2.2) gefüllten  $^{85}\text{Kr}$ -Proben quantitativ vermessen werden können. Dieses System lässt sich in die drei Untersysteme Verstärkerbox (Abschnitt 4.2.1), Bleiabschirmung mit Myonveto-System (Abschnitt 4.2.2) und Datennahme (Abschnitt 4.2.3) aufteilen. Eine schematische Darstellung des Systems, wie es im Low-Level-Labor am MPIK Heidelberg in einer Tiefe von 15m w.e. installiert wurde, ist in Abbildung 4.2 zu sehen.

Neben diesem Setup wurde auch ein ehemals vom GNO Experiment benutztes Labor in den Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS) wieder in Betrieb genommen. Der dort verwendete Messaufbau ist mit dem in Abbildung 4.2 beschriebenen identisch. Es ist jedoch zusätzlich möglich, das von der Bleiabschirmung begrenzte Volumen von der Raumluft zu trennen und mit sauberem Stickstoff zu spülen. Dadurch kann die sonst hohe  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentration vom Aktivvolumen des Zählrohres ferngehalten werden. Zudem ist eine Cer Röntgenquelle, wie sie in Abschnitt 4.3.1 beschrieben wird, in die Bleiabschirmung integriert und mit einem Schrittmotor ausgestattet, so dass zu jeder Zeit und ohne das jeweilige Zählrohr aus der Abschirmung zu entfernen, das Zählrohr kalibriert werden kann [Heu94]. Da sich dieses Labor in einer Tiefe von etwa 3800 m w.e. befindet, ist der Myonenfluss bereits um 6 Größenordnungen reduziert [Heu93] (im LLL am MPIK dagegen nur um 1-2 Größenordnungen) und somit ist hier kein aktives Myonveto in Betrieb.



**Abbildung 4.3:** Schematische Darstellung eines Zählrohres in der dafür vorgesehenen Verstärkerbox mit der Blei- und Kupferabschirmung. (Quelle: [Heu94])

### 4.2.1 Verstärkerbox

Die in Abbildung 4.3 gezeigte Verstärkerbox erfüllt die Aufgaben das Zählrohr mit der nötigen Hochspannung zu versorgen, sowie in unmittelbarer Nähe<sup>9</sup> zum Aktivvolumen (siehe Abbildung 4.6) die Signale zu verstärken. Außerdem ist es durch die spezielle Form der Zählrohre möglich, in der Verstärkerbox eine Bleiabschirmung zu installieren, die einen direkten Sichtkontakt zwischen dem fettgedichteten Hahn, der dem Einlass des Zählgases in das Zählrohr dient, sowie der ersten Verstärkerstufe und dem Aktivvolumen zu verhindern. Somit kann Gammastrahlung, die im Fett oder den elektronischen Bauteilen des Verstärkers durch dortige Verunreinigung mit radioaktiven Isotopen entsteht, vom Aktivvolumen abgeschirmt werden. Die aus Blei und Kupfer aufgebaute Verstärkerbox dient zudem einer ersten Abschirmung vor Umgebungsradioaktivität, wie auch einer ersten Unterdrückung des Myonenuntergrundes. Zudem erreicht sie die für das Myonveto wichtige Tatsache, dass im Zählrohr durch radioaktiven Zerfall entstandene geladene Teilchen spätestens in der Kupfer-Blei-Ummantelung absorbiert werden, nicht aber in den Plastiksintillator gelangen, wo sie sonst ihr eigenes Vetosignal generieren könnten.

### 4.2.2 Myonveto und Bleiabschirmung

Um das sehr sensitive Zählrohr vor äußerer Radioaktivität, speziell aber vor der Penetration von geladenen Myonen, die eine dem Betazerfall von  $^{85}\text{Kr}$  ähnliche Signatur hinterlassen würden, zu schützen, wird das Zählrohr zur Datennahme in das Low-Level-Labor (LLL) des MPIK Heidelberg gebracht, und dort in einen von einer Bleiabschirmung umgebenen Plastiksintillator mit Bohrlöchern für die Zählrohre eingebaut.

<sup>9</sup>Das Signal muss so verstärkt werden, dass sich bis zur Datennahme einkoppelnde Störsignale im Vergleich zu echten Signalen vernachlässigbare Amplituden haben. Je früher also das Signal verstärkt wird, desto weniger Störsignale werden eingefangen und mitverstärkt.

Die den Plastikszintillator umgebende Bleiabschirmung kann durch eine bewegliche Tür geöffnet und geschlossen werden, so dass die Zählrohre leicht gewechselt werden können und sie dennoch während der Messzeit gut vor äußerer Radioaktivität geschützt sind.

Wie in Abbildung 4.2 dargestellt, werden die durch Energiedeposition geladener Teilchen im Plastikszintillator erzeugten Photonen von einem Photomultiplier ausgelesen und das Signal an die elektronische Datennahme weitergeleitet.

### 4.2.3 Datennahme

Eine Flash-ADC Karte (SIS3301) bildet zusammen mit einem VME PowerPC das Herz der elektronischen Datennahme. Die Flash-ADC (FADC) Karte ist mit dem PowerPC über ein VME Bussystem (beide Module befinden sich in einem VME Crate) verbunden, das einen schnellen Transfer größerer Datenmengen sicherstellt, die aufgrund der gewählten Logik trotz der geringen Ereignisrate anfallen. Im Folgenden soll die der Datennahme zugrunde liegende Logik näher erläutert, sowie einige Eigenschaften der die FADC Karte steuernden Software erwähnt werden. Für nähere Details sei auf [SIS04, Kih07] verwiesen.

#### Die Logik der Datennahme

Das Interesse gilt in erster Linie Ereignissen, die im Zählrohr entstehen. Darum ist das System so aufgesetzt, dass nur Ereignisse einen Trigger auslösen können, die im Zählrohr stattfinden. Da aber solche Ereignisse auch durch Energiedeposition eines Myons im Zählrohr ausgelöst werden können, diese Ereignisse aber nicht von speziellem Interesse sind, wird in Koinzidenz zu einem Zählrohrereignis geprüft, ob in einem gewissen Zeitfenster auch ein Ereignis im Plastikszintillator stattgefunden hat.

Dieses Zeitfenster muss so gewählt werden, dass im Falle eines Myonevents im Zählrohr das Signal vom Photomultiplier schon anliegt. Es darf aber nicht so groß gewählt werden, dass aufgrund von Myonen, die zwar ein Signal im Plastikszintillator erzeugen, nicht aber im Zählrohr, die Totzeit des Systems einen kritischen Wert erreicht. Bei dem gewählten Setup (Fläche des Plastikszintillators senkrecht zum Myonenfluss  $\approx 0,6 \text{ m}^2$ ) im LLL des MPIK Heidelberg beträgt die Rate mit der der Photomultiplier Ereignisse im Plastikszintillator ausliest etwa 100 Hz. Da Zählrohrsignal und zugehöriges Photomultipliersignal bei einem Myonereignis innerhalb einer Pagelänge<sup>10</sup> der FADC Karte registriert werden, (dies

---

<sup>10</sup>Wie in [SIS04] beschrieben, ist die FADC Karte mit einem internen Speicher (Buffer) ausgestattet, der für jeden der 8 Kanäle aus zwei Bänken mit jeweils 128k Speichergröße besteht und die je nach Bedarf in bis zu 1000 Pages unterteilt werden können. (In der hier verwendeten Konfiguration wurde die Größe einer Page auf 2048 gesetzt.) Diese Pages werden im Kreis mit einer Frequenz von 100 MHz beschrieben, das heißt alle 10 ns wird eine Spannung mit 14 bit Genauigkeit ausgelesen und in den Buffer geschrieben. Falls nun ein Spannungsverlauf in einem der Kanäle den für jeden Kanal unterschiedlich einstellbaren Triggerkriterien entspricht, wird die Triggerzeit relativ zum letzten Datentransfer gespeichert und nach einer fest definierten Zeit – in unserem Fall  $2000 \cdot 10 \text{ ns}$  – die nächste Page begonnen im Kreis beschrieben zu werden. Somit stehen nach einem Triggersignal in einer Page noch  $48 \cdot 10 \text{ ns}$  „Vergangenheit“, das heißt der Teil des Signals, der den Trigger noch nicht ausgelöst hat, und  $20 \mu\text{s}$  des Signals nachdem der Trigger ausgelöst wurde. Sollen die Ereignisse aus der FADC Karte ausgelesen werden, so wird

wurde für das System getestet und ist nicht a priori klar,) beträgt die Totzeit gerade eine Pagelänge, also  $2048 \cdot 10 \text{ ns} = 20,48 \text{ ms}$ , was bei einer Myonenrate von 100 Hz zu einem Verlust „echter“ Ereignisse aufgrund der Totzeit von 0,2% führt.

Die FADC Karte besitzt eine interne Logik, die die Anzahl der den Trigger auslösenden Ereignisse zählt und die nach einem Datentransfer über den VME Bus auf Null gesetzt wird. Dieser Zählstand kann von dem auf dem PowerPC betriebenen Programm in regelmäßigen Abständen abgefragt werden um zu erfahren, ob bereits ein Datentransfer gestartet werden soll. Auch kann im Falle von sehr vielen Ereignissen Rückmeldung darüber erhalten werden, falls der Buffer der FADC Karte diese Ereignisse nicht mehr verlustfrei speichern konnte.

Wurde eine vom Benutzer festzulegende Anzahl an Ereignissen im Buffer der FADC Karte registriert, so wird ein Datentransfer gestartet und die noch unbearbeiteten Daten werden lokal im Arbeitsspeicher des PowerPC abgespeichert. Per Software werden die Ereignisse nun bearbeitet. Dazu wird mit Hilfe eines mathematischen Algorithmus zuerst die Form der Pulse geglättet und gestaucht<sup>11</sup>, dann wird die Höhe der Untergrundlinie (Baseline) bestimmt und somit aus dem geformten Puls unter Abzug der Baseline die Pulshöhe bestimmt. Diese Pulshöhe wird dann in eine externe Datei zusammen mit der Triggerzeit und dem Kanal (1-8) geschrieben. Somit gibt die in der Datei vermerkte Pulshöhe nicht direkt die von der FADC Karte gemessene Spannung wieder, sondern ist ein Produkt des Pulsshapings.

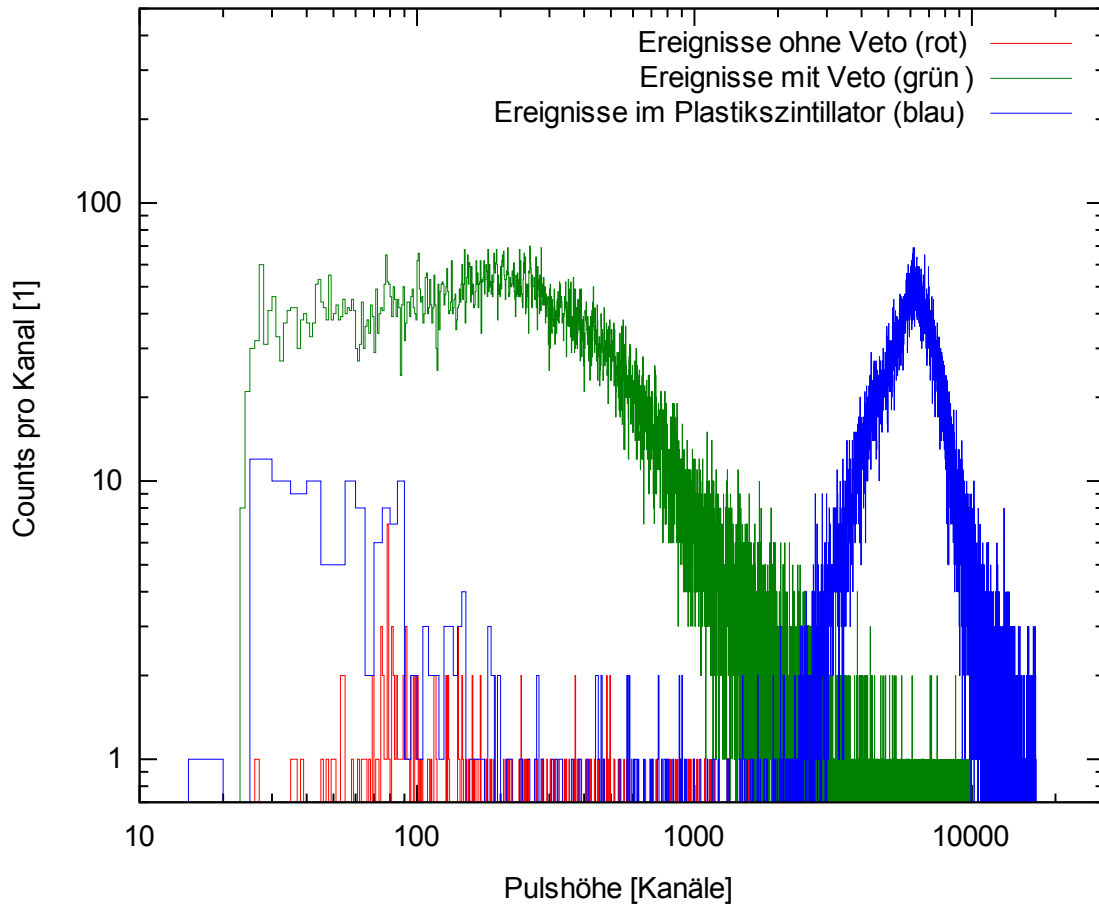
**Ereignisdatei** Sind an der FADC Karte nur zwei der acht Kanäle durch das Zählrohr und den Photomultiplier belegt, so gibt es zum Stand dieser Arbeit zwei mögliche Eintragungen in der Datei, in der auf das Proportionalzählrohr getriggerte Ereignisse festgehalten sind. Im ersten Fall gibt es zu einem Zählrohrereignis kein Vetosignal. Dann ist die Triggerzeit mit der geschapeten Pulshöhe und dem Kanal, an dem das Zählrohr angeschlossen ist und in dem das Ereignis detektiert wurde, vermerkt. Im zweiten Fall ist sowohl ein eben beschriebenes Zählrohrsignal, als auch ein Vetosignal des Photomultipliers in der Datei vermerkt. Da nur der Kanal, an dem das Zählrohr angeschlossen ist, ein Triggersignal generieren kann, ist in letzterem Fall die in der Datei vermerkte Zeit für das Ereignis im Zählrohr die selbe, wie die Zeit des Vetosignals<sup>12</sup>, jedoch sind Amplitude des Pulses und Kanal verschieden. Es kann nun im Nachhinein entschieden werden, ob alle Zählrohrereignisse, oder nur diejenigen ohne ein Veto gewertet werden. In Abbildung 4.4 sind die beiden Fälle gezeigt, bei denen einmal nur die Ereignisse ohne Veto (rot) und dann nur diejenigen mit Veto (grün) gewertet wurden.

---

nun die eben inaktive Bank beschrieben und die eben aktive Bank kann ausgelesen werden, ohne dass Ereignisse verloren gehen.

<sup>11</sup>Pulsshaping: Integrator und Differentiator mit einstellbaren Zeitkonstanten, die auf die jeweiligen Bedürfnisse hin optimiert wurden. Im Fall der <sup>85</sup>Kr-DAQ wurden sie von der <sup>222</sup>Rn-DAQ übernommen, wo sie gute Ergebnisse liefern.

<sup>12</sup>Eine zeitliche Auflösung unterhalb der Pagelänge von 20.48 ms könnte erreicht werden, indem die relative Lage der geschapeten Maxima von Zählrohrsignal und Vetosignal verglichen wird. Da dies jedoch nicht nötig erschien, ist nicht realisiert.



**Abbildung 4.4:** In der Abbildung ist die Leistung des Myonvetos dargestellt. In rot sind dabei die Zählrohrereignisse mit Myonveto gezeigt, die das resultierende Untergrund-Spektrum des Zählrohres darstellen und sich aus Ereignissen von Myonen, die kein Vetosignal ausgelöst haben, Kernzerfällen innerhalb des Zählrohres mit geringer Energiedeposition und elektronischem Rauschen zusammensetzen. In grün sind dann die Ereignisse gezeigt, die auch im Plastiksintillator Energie deponiert und dadurch ein Vetosignal ausgelöst haben. In blau ist schließlich das Pulshöhenspektrum des von den Photomultipliern aufgenommenen Lichts gezeigt, das im Plastiksintillator durch Energiedeposition von (hauptsächlich) kosmischen Myonen erzeugt wurde.

Die rote und die grüne Kurve besitzen dabei dieselbe Energieeichung. Das Signal (blau) von Photomultiplier und Plastiksintillator besitzt seine eigene Energiekalibrierung, die mit der des Zählrohres nichts zu tun hat. Da ein Signal des Plastiksintillators nur in Koinzidenz zu einem Signal im Zählrohr aufgenommen wird, im Wesentlichen also nur von kosmischen Myonen erzeugt wird, die sowohl durch den Plastiksintillator, als auch durch das Aktivvolumen des Zählrohres dringen, legen diese Myonen im Zählrohr stets einen vergleichbaren Weg zurück und ihr Energieverlustspektrum (blau) erinnert an einen Peak.



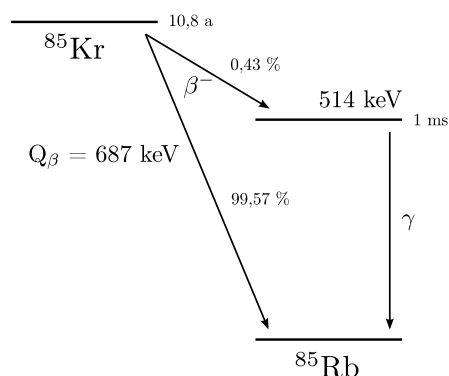


Abbildung 4.5: Die wichtigsten Zerfallskanäle von  $^{85}\text{Kr}$  mit seiner Endpunktsenergie von 687 keV.

### 4.3 Kalibrierung der Proportionalzählrohre

Um eine Aussage über die absolute Aktivität einer Probe machen zu können, muss der für die Messung benutzte Detektor zunächst auf sein Antwortverhalten auf die jeweiligen Ereignisse untersucht werden. Dazu gehört zunächst die Kenntnis der Wahrscheinlichkeit, dass ein Event vom Detektor überhaupt wahrgenommen wird. Diese ist die mit  $\epsilon$  bezeichnete Effizienz des Detektors. Zum anderen muss eine Möglichkeit gefunden werden sicherzustellen, dass die äußeren Bedingungen konstant - beziehungsweise gut genug bekannt - sind, damit die einzelnen Messungen reproduzierbar und untereinander vergleichbar sind.

Um die Effizienz zu bestimmen, mit der das jeweilige Proportionalitätszählrohr die beim  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfall emittierten Elektronen nachweist, müssen verschiedene Faktoren berücksichtigt werden. Zum einen ist es nicht möglich, eine Probe so in das Zählrohr zu füllen und zu speichern, dass sie sich komplett im Aktivvolumen des Zählrohres befindet. In Abb. 4.6 ist dieser Sachverhalt vergrößert dargestellt. Dieser geometrische Grund macht es also prinzipiell unmöglich eine Effizienz von 100% zu erreichen<sup>13</sup>.

Der zweite, nun physikalische Effekt, der die Effizienz verringert, ist der, dass ein Elektron im Zählgas des miniaturisierten Proportionalzählrohres nur einen Teil seiner Energie deponiert<sup>14</sup>. Dieser Anteil hängt sowohl von der Weglänge, die das Elektron im Aktivvolumen des Zählrohres durchfliegt, als auch von seiner absoluten Energie zum jeweiligen Zeitpunkt ab. In Abb. 4.7 sind eine Monte-Carlo (MC)-Simulation der Weglängenverteilung in einem vereinfacht zylindrisch angenäherten Zählrohr, sowie die Energieverlustkurve eines Elektrons beim Durchgang durch Xenon gezeigt. Es kann so leicht eingesehen werden, dass ein größerer Anteil der Elektronen nicht seine volle Energie im Aktivvolumen

<sup>13</sup>Durch Betazerfall geht  $^{85}\text{Kr}$  in das stabile  $^{85}\text{Rb}$  über (siehe Abb. 4.5), das heißt ein  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfall wird von keinen weiteren Tochterzerfällen gefolgt, die ihrerseits zum Nachweis von  $^{85}\text{Kr}$  genutzt werden könnten und somit zu einer Effizienz von über 100% führen könnten, wie dies für  $^{222}\text{Rn}$  der Fall ist.

<sup>14</sup>Ionisation ist in dem Energiebereich des hier betrachteten  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls mit einer Endpunktsenergie von unter 700 keV der dominante Prozess, bei dem das Elektron seine Energie verliert.



deponieren wird.

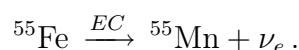
Um reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten muss nun eine feste Energieschwelle gesetzt werden, ab der Events als  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfälle gewertet werden. Da die mittlere Energie, die für die Erzeugung eines Primärelektron - Loch - Paares benötigt wird, für Argon etwa 26 eV und für Xenon etwa 22 eV beträgt [Leo78], kann diese Schwelle bei der Arbeit mit argon- oder xenongefüllten Zählrohren nicht viel niedriger als bei einigen hundert eV liegen, was mit einer geringeren Nachweeffizienz bezahlt werden muss. (Näheres zur Festlegung dieses Energiefensters in Abschnitt 4.3.3.)

### 4.3.1 Die Cer-Röntgenquelle

Im folgenden Abschnitt soll die Cer-Röntgenquelle (CeX) besprochen werden, mit deren Hilfe es möglich war eine gute Energiekalibrierung im Niederenergiebereich (300 eV bis etwa 10 keV) zu erreichen.

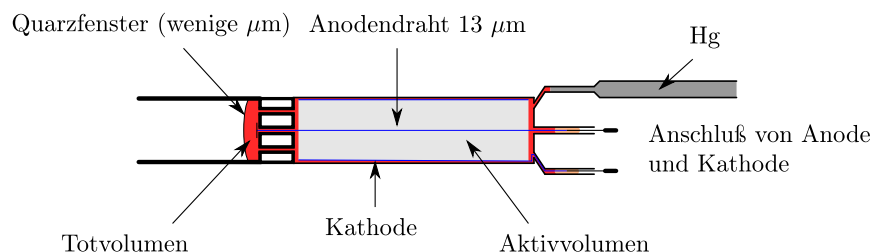
Es ist nicht möglich eine Energiekalibrierung einmalig zu bestimmen und – ohne sie erneut zu überprüfen – als fest zu erachten. Auch wenn es möglich ist die das Zählrohr versorgende Hochspannung  $U_{HV}$  konstant zu halten, so variiert doch der Druck eines jeden Zählrohres nach seiner Füllung. Dies bewirkt nun unter anderem, dass sich die mittlere freie Weglänge eines Primärelektrons im Zählrohr verändert. Dies wiederum verändert die Gasverstärkung und eine erneute Energiekalibrierung wird nötig.

In der Vergangenheit wurde dazu eine für Radonmessungen vollkommen ausreichende Kalibrierung mit einer  $^{55}\text{Fe}$  Quelle durchgeführt.  $^{55}\text{Fe}$  zerfällt durch Elektroneneinfang

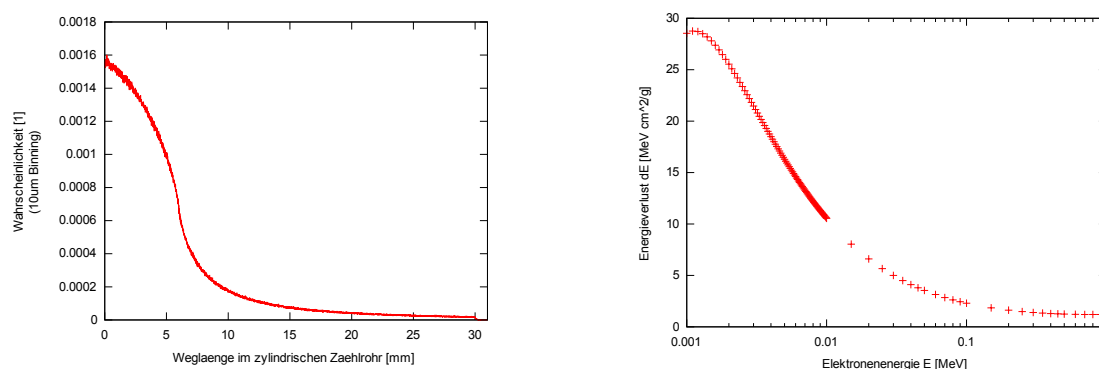


Dabei wird die charakteristische Röntgenstrahlung von  $^{55}\text{Mn}$  emittiert, wobei die dominanten  $K_\alpha$  Linien eine mittlere Energie von 5,9 keV haben.

Um eine bessere Energieeichnung für niedrigere Energien zu erhalten, wurde für die Kryptonmessungen dieser Arbeit auf ein Eichverfahren mit einer Cer Röntgenquelle umgestellt,



**Abbildung 4.6:** In der schematischen Darstellung eines Proportionalzählrohres sind in hellgrau das Aktivvolumen, sowie in rot das Totvolumen markiert, wobei die Grenze zwischen Aktiv- und Totvolumen in Realität nicht so scharf verlaufen. Typischerweise beträgt das Totvolumen eines solchen miniaturisierten Proportionalzählrohres 10% bis 15%.



(a) MC-Simulation der Weglängenverteilung in zylindrischem Zählrohr

(b) Energieverlustkurve eines Elektrons in Xenon

**Abbildung 4.7:** In der Abbildung ist (a) ein simuliertes Weglängenspektrum in einem zylindrischen Zählrohr (Länge 3 cm und Durchmesser 6 mm) und (b) der Energieverlust eines Elektrons beim Durchgang durch Xenon gezeigt [EH70, NIS09].

wie es bereits bei den Sonnenneutrinoexperimenten GALLEX und GNO genutzt wurde [Urb89, Kae03].

Um dieses Eichverfahren zu nutzen, muss das bis dato bei der Radonmessung verwendete Zählgas P10<sup>15</sup> auf ein xenonhaltiges Zählgasgemisch umgestellt werden. Da in der Vergangenheit gute Erfahrungen mit einem 10%igen Anteil an Methan (CH<sub>4</sub>) gemacht wurde und bei Tests mit 5% bis 15% CH<sub>4</sub>-Anteil keine wesentlichen Unterschiede in Auflösung und Linearität festgestellt wurden (siehe hierzu Tabelle 4.4), wurde eine Mischung von 90% Xenon und 10% Methan verwendet.

### Linienpektrum der CeX Quelle

Ein exemplarisches Linienpektrum der Cer Röntgenquelle, das mit einem xenongefüllten (90%Xe-10%CH<sub>4</sub>) Zählrohr gemessen wurde, ist in Abbildung 4.8 gezeigt. Dieses Spektrum setzt sich aus folgenden, für die Eichung verwendeten Linien zusammen:

Es gibt zum einen (die für die Eichung wichtigsten) vier Konversationslinien der Cer-Röntgenstrahlen am Xenon, die sich aus vielen, weniger intensiven Linien zusammensetzen und sich aufgrund der begrenzten Energieauflösung in Gruppen mit Schwerpunkten bei 0,3 keV, 1,1 keV, 5,0 keV und 9,7 keV zusammenfassen lassen. In Tabelle 4.1 sind die für diesen Prozess wichtigen K<sub>α</sub> Linien der eingehenden charakteristischen Röntgenstrahlung von Cer, sowie der für den Konversionsmechanismus wichtigen K<sub>α</sub> Linien des Xenon angegeben.

Zudem gibt es bei 34,6 keV und 39,4 keV Linien<sup>16</sup>, die gerade den nicht am Xenon

<sup>15</sup>P10 ist eine Zählgas Mischung, die zu 90% aus Argon und 10% aus Methan besteht.

<sup>16</sup>Diese K-Linien des Cer sind in Abbildung 4.8 gerade nicht mehr zu erkennen, da bei der gewählten

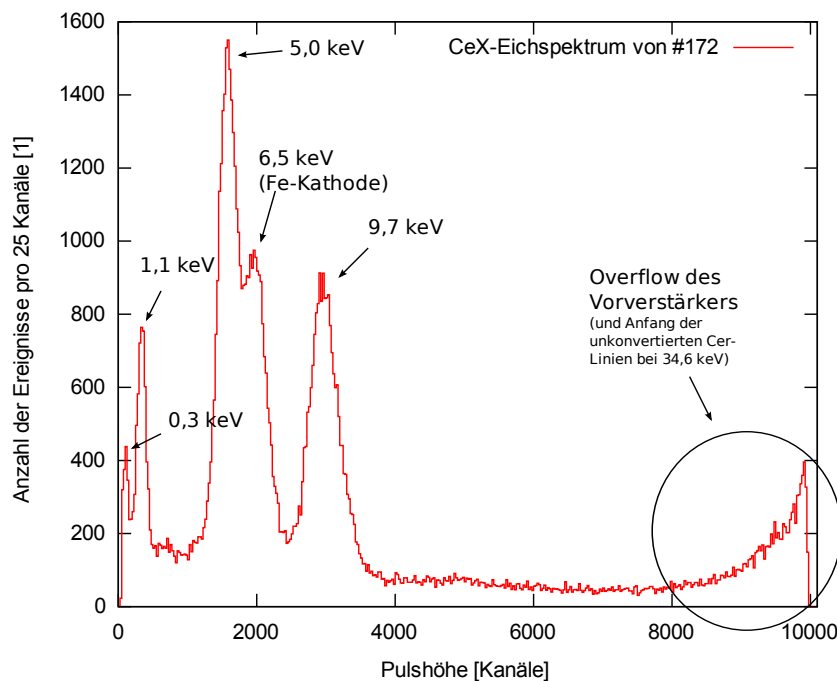


Abbildung 4.8: Spektrum eines mit Xe-CH<sub>4</sub> gefüllten und mit der CeX-Quelle geeichten Zählrohres.

konvertierten  $K_{\alpha}$ - und  $K_{\beta}$ -Energien des Cer entsprechen, aber ebenfalls mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit innerhalb des Aktivvolumens absorbiert werden.

Als letzte, und nur bei Zählrohren mit Eisenkathode auftretende Komponente, gibt es eine Anregung durch Cer-Röntgenquanten der K-Linien des Eisen. Dies führt zu einem Peak bei 6,5 keV.

Durch Randeffekte (Inhomogenität des elektrischen Feldes an den Rändern des durch die Kathode begrenzten Aktivvolumens), sowie durch nicht vollständige Energiedeposition geladener Teilchen (Elektronen) im Zählrohr wird dieses Spektrum speziell zu niedrigen Energien hin verwischt und erhält einen nur durch die oben erwähnten Mechanismen nicht erklärbaren Offset.

Im Folgenden soll nun kurz der Konversionsmechanismus der Cer-Röntgenquanten am Xenon beschrieben werden. Alle dabei verwendeten Zahlenwerte stammen aus [EH70].

**Der Konversionsmechanismus** In der Hochspannung der Röntgenquelle werden Elektronen beschleunigt und erzeugen durch Bremsstrahlung und Ionisation ein für die Anode der Röntgenquelle charakteristisches Spektrum an Röntgenquanten. Ein Teil dieser Photonen wird dann auf das Cer-Target fokussiert, wo Elektronen aus unterschiedlichen Schalen der Cer-Atome ionisiert werden. Diese Löcher können nun wiederum durch Aussenden von Röntgenquanten mit einer für die Differenz der einzelnen Energieniveaus im Cer-

---

Hochspannung der Vorverstärker bei Pulshöhen in Sättigung geht, die einer Energiedeposition von etwa 30 keV im Zählrohr entsprechen.

Linie	Cer		Xenon	
	Energie (keV)	rel.Intensität	Energie (keV)	rel.Intensität
$K_{\alpha 2}$	34.279	54.7	29.459	54.1
$K_{\alpha 1}$	34.720	100	29.779	100
$K_{\beta 3}$	39.170	9.7	33.564	9.39
$K_{\beta 1}$	39.258	18.8	33.625	18.2
$K_{\beta 5/1}$	39.542	0.115	33.875	0.092
$K_{\beta 5/2}$	39.560	0.157	33.889	0.127
$K_{\beta 2/1}$	40.222	2.06	34.409	1.88
$K_{\beta 2/2}$	40.239	3.99	34.418	3.65
$K_{\beta 4/1,2}$	40.338	0.057	34.498	0.041
$K_{\beta 2/3,4}$	40.428	0.862	34.552	0.67
K-Abs.Kante	40.443		34.561	

*Tabelle 4.1:* Die K-Röntgenlinien von Cer und Xenon

Atom charakteristischen Energie mit Elektronen höherer Schalen gefüllt werden. So entstandene und für Cer charakteristische Photonen, deren Energie jedoch unterhalb der K-Absorptionskante ( $E_{\text{Abs.Kante}} = 34.561 \text{ keV}$ ) von Xenon liegt, haben nun im Xenongas eine große Reichweite, so dass sie mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht innerhalb des Aktivvolumens absorbiert werden, sondern ohne dort Energie zu deponieren entweichen.

Liegt die Energie  $E_{\gamma}$  dieser Photonen aber oberhalb dieser Grenze, so steigt die Absorptionswahrscheinlichkeit stark an. Der Großteil (82%) der so absorbierten Photonen ( $E_{\gamma} > E_{\text{Abs.Kante}}$ ) ionisiert in einem Photoeffekt an einem K-Elektron ein Xenonatom, wobei ein freies Elektron mit der Energie  $E_{e_{\text{photo}}}^{-} = E_{\gamma} - E_{\text{K}}$ <sup>17</sup> und ein Loch in der K-Schale entsteht. Das Loch in der K-Schale wird mit einer Wahrscheinlichkeit von 89% durch K-Röntgenstrahlung der Energie  $E_{\text{XeK}}$  gefüllt. Das dabei entstehende Loch in einer höheren Schale wird nun mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 90% strahlungslos durch Auger- (und Coster-Kronig-) Übergänge gefüllt. Die dabei entstehenden Elektronen haben in der Summe nun die Energie  $E_{\text{Auger}} = E_{\text{Abs.Kante}} - E_{\text{XeK}}$ .

Im Zählrohr werden nun das Photoelektron der Energie  $E_{e_{\text{photo}}}^{-}$ , sowie die bei strahlungslosen Übergängen entstandenen Elektronen mit der Summe an kinetischer Energie von  $E_{\text{Auger}}$  nachgewiesen. Es wird also mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 70% ( $0.82 \cdot 0.89 \cdot 0.97 \approx 0.7$ ) eine Gesamtenergie von

$$E_{\text{Ionis.}} = E_{e_{\text{photo}}}^{-} + E_{\text{Auger}}$$

im Zählgas deponiert.

<sup>17</sup> $E_{\text{K}}$  indiziert den Betrag der Bindungsenergie des am Photoeffekt beteiligten Elektrons der K-Schale.

Für das am stärksten gebundene Elektron der K-Schale gilt natürlich  $E_{\text{K}} = E_{\text{Abs.Kante}}$ .

### 4.3.2 Fit des CeX-Linienspektrums

Aus den in Tabelle 4.1 angegebenen Werten kann nun, wie oben erklärt, das volle Linienspektrum konstruiert werden, das von den Cer-Röntgenquanten im mit Xenon gefüllten Zählrohr erzeugt wird. In Abbildung 4.9 sind diese Linien mit ihrer jeweiligen relativen Intensität (normiert auf die stärkste Linie des Spektrums) abgebildet.

Um nun eine Energieeichung der im Zählrohr erzeugten Pulshöhen zu erzielen, wird vor jeder Messung eine Hochspannung fest eingestellt und dann mit der CeX-Quelle ein Spektrum erzeugt. Für die Energieeichung ist nun die Lage der einzelnen eine Gruppe erzeugenden Linien wichtig. Nimmt man die Pulsform jeder einzelnen Linie als gaußförmig an

$$\gamma_i(x; a_i, \sigma_i, \mu_i) = a_i \cdot \exp\left(-\frac{(x - \mu_i)^2}{2\sigma_i^2}\right),$$

so ergibt sich der Schwerpunkt einer aus vielen einzelnen Linien unterschiedlicher Intensität bestehender Gruppenlinie (gewichtetes Mittel) zu

$$\mu_\Gamma = \frac{\sum_i a_i \cdot \mu_i}{\sum_i a_i}.$$

Um den Fit nicht zu kompliziert zu machen und dennoch der Form der Gruppenlinien gerecht zu werden, wird zuerst die Form der Gruppenlinie aus den sie bildenden Linien zusammen gesetzt. Dazu wird die relative Lage, sowie die relative Intensität der einzelnen Linien untereinander, der Theorie entnommen und festgehalten, die absolute Position im Pulshöhenraum, Breite und Amplitude aber durch den Fit bestimmt. Die zu fittende Funktion lautet somit

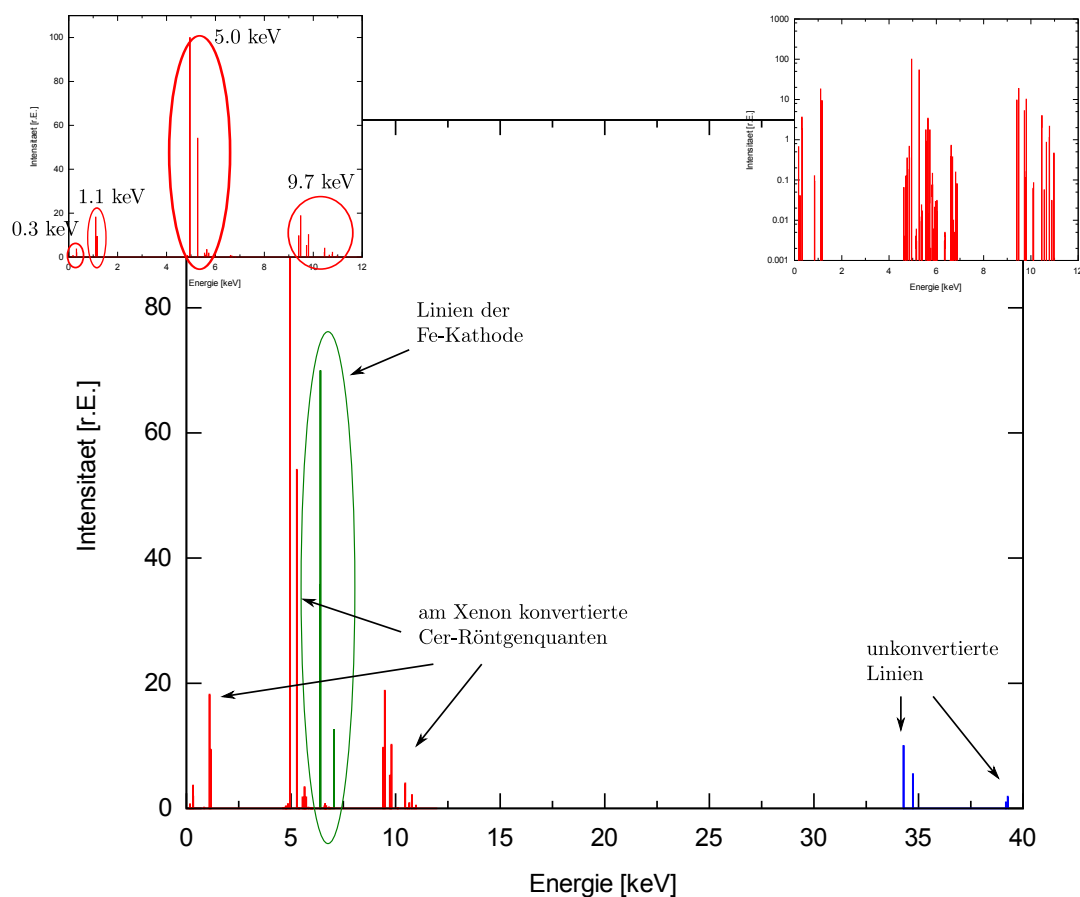
$$\Gamma(x; A, \sigma^\Gamma, \mu^\Gamma) = A \cdot \sum_i \gamma_i(x; a_i, \sigma^\Gamma, \alpha_i \cdot \mu^\Gamma) \quad (4.1)$$

$$\text{mit } \alpha_i = \frac{\mu_i}{\mu^\Gamma},$$

wobei nun für jede Gruppenlinie nur die drei Parameter  $A$ ,  $\sigma^\Gamma$  und  $\mu^\Gamma$  vom Fit bestimmt werden müssen. (Hierbei wird vernachlässigt, dass die Breite der einzelnen Linien, die zu einer Gruppenlinie zusammen gesetzt werden, mit zunehmender Pulshöhe ansteigt.) Dabei gibt  $\alpha_i$  die theoretisch zu bestimmende, relative Lage im Energieraum der  $i$ -ten Linie zum Schwerpunkt der Gruppenlinie an.

Die Amplituden  $A$  der einzelnen Gruppenlinien werden jeweils neu gefittet, obwohl die relativen Höhen aus der Theorie bekannt sein könnten. Dies hat die folgenden Gründe:

Die relative Höhe der Konversationslinien zu den nichtkonvertierten Linien bei 34.6 keV und 39.4 keV muss verschieden sein, da für ein „Konversionsereignis“ das Photon mit der Energie knapp unter der K-Absorptionskante des Argon dem Zählgas entweicht, während für eine volle Energiedeposition der Cer-Röntgenstrahlung dieses Photon gerade nicht entweichen darf. Diese Wahrscheinlichkeit ist aber stark abhängig von der Beleuchtungsgeometrie, die von Zählrohr zu Zählrohr und von Eichung zu Eichung verschieden ist.



**Abbildung 4.9:** In der Abbildung sind die bei der CeX-Eichung eines mit Xenon gefüllten Zählrohres deponierten Energien eingezeichnet. Die roten Linien entstehen durch den in 4.3.1 beschriebenen Konversionsmechanismus. Unkonvertierte Röntgenquanten erzeugen die deutlich schwächeren, blau eingezeichneten Linien. Die grünen Linien schließlich treten nur bei Zählrohren mit Eisenkathoden auf. Sie haben gerade die Energien der charakteristischen Röntgenstrahlung von Eisen. Das heißt, durch die Cer-Röntgenquanten ionisiert finden hier (hauptsächlich K-) Schalenübergänge im Eisen statt. In den beiden kleineren Bildern sind sowohl die Konversionslinien zu den vier Gruppenlinien zusammengefasst, als auch die für den Fit verwendeten Konversionslinien in logarithmischer Skala aufgetragen.

Für die relative Amplitude der Eisenlinie im Falle einer Fe-Kathode gilt ähnliches. Sie ist ebenfalls stark von der Geometrie der Bestrahlung abhängig<sup>18</sup>.

Die unterschiedlichen relativen Amplituden der einzelnen Konversionslinien lassen sich auf die für verschiedene Photonenenergien  $E_\gamma$  unterschiedlichen Wirkungsquerschnitte für Wechselwirkungen mit dem Xenongas (siehe auch hier [EH70]) zurückführen.

Da sich im Falle einer Fe-Kathode der Konversionspeak bei 5.0 keV und der Peak des Eisens bei 6.5 keV aufgrund der begrenzten Energieauflösung nicht trennen lassen, ist es sinnvoll diesen Doppelpack als Summe

$$\Gamma_{5.0}(x; A, \sigma^{\Gamma_{5.0}}, \mu^{\Gamma_{5.0}}) + \Gamma_{\text{Fe}}(x; A, \sigma^{\Gamma_{\text{Fe}}}, \mu^{\Gamma_{\text{Fe}}})$$

mit sechs freien Parametern zu fiten. (Falls auch die Konversionslinie bei 0.3 keV sichtbar ist, kann es auch hier sinnvoll sein, die 0.3 keV und die 1.1 keV gemeinsam zu fiten.)

**Vereinfachung** Um den Fit eine weitere Stufe zu vereinfachen, wurde allein die Linienbreite des 9,7 keV Peaks vom Fit bestimmt und daraus die Breite der anderen Linien errechnet. Es wurde also *nicht* jedes Mal die Linienbreite  $\sigma$  als freier Parameter dem Fit übergeben. Dass dies möglich ist, ist a priori nicht klar. Es zeigt sich vielmehr, dass durch die getroffenen Annahmen die Qualität des Fits verbessert wird.

Aus der Linienbreite  $\sigma(9,7\text{keV})$  der den Gruppenpeak bei 9,7 keV erzeugenden Linien lassen sich die restlichen Linienbreiten  $\sigma^i$  unter Verwendung der folgenden Überlegung erhalten:

Wie bereits erwähnt, ist die durchschnittliche Energie  $w$  um ein Ladungsträgerpaar zu erzeugen fest und somit werden bei einer Energiedeposition  $E$  im Zählrohr gerade  $J = E/w$  primäre Ladungsträger erzeugt. Wird nur ein Teil der Energie eines ionisierenden Teilchens im Zählrohr absorbiert, so ist die Anzahl der das Signal erzeugenden Ladungsträgerpaare poissonverteilt und die Varianz ergibt sich zu

$$\sigma^2 = J.$$

Da bei der betrachteten Eichung aber die volle Energie der Elektronen absorbiert wird, ist die Annahme einer Poissonstatistik streng genommen falsch. Dennoch kann die Varianz auch in diesem Fall berechnet werden und ergibt sich zu

$$\sigma^2 = F \cdot J,$$

mit dem Fano Faktor  $F$  [Leo78]. Dieser Faktor ist eine Funktion all der fundamentalen Prozesse, die zu einem Energietransfer im Detektor führen können und wird für eine spezielle

---

<sup>18</sup>Bei einem Vergleich mit den in axialer Richtung eingestrahnten Eichspektren (im Gegensatz dazu wurden die am MPI für Kernphysik in Heidelberg gewonnenen Eichspektren dieser Arbeit im rechten Winkel zur Zählrohrachse beleuchtet), wie sie bei GALLEX und GNO [Urb89] entstanden, wird dies deutlich.

Zählgasmischung bei einer gewählten Hochspannung als konstant vorausgesetzt. Definieren wir die Auflösung unseres Detektors zu  $R = \Delta E/E$ , wobei  $\Delta E$  das FWHM (full width at half maximum) einer Linie angibt, und erinnern wir daran, dass die Standardabweichung  $\sigma$  einer Gaußverteilung und das FWHM einfach über einen Faktor 2,35 zusammenhängen, so ergibt sich die Auflösung zu

$$R = 2,35 \frac{\sqrt{F \cdot J}}{J} = 2,35 \sqrt{\frac{F \cdot w}{E}}. \quad (4.2)$$

Erfüllen nun Energiedeposition  $E$  und Pulshöhe  $\mu$  (im Channelraum) eine ideale Proportionalität und nehmen wir an, die Auflösung eines fest gewählten Zählrohres bei einer speziellen Hochspannung und Zählgasmischung sei im betrachteten Energiebereich konstant, so ist  $\sigma^i/\sqrt{\mu^i[\text{Ch}]}$  proportional zur Auflösung  $R$  und damit selbst konstant.

Das heißt dieser Wert kann einmal durch den Fit bestimmt (in unserem Fall an Hand der markanten 9,7 keV Linie) auf die anderen Linien übertragen werden und so den Fit vereinfachen.

Um die Qualität des Fits weiter etwas zu verbessern, kann zu den für die Energiekalibrierung wichtigen Linien der Untergrund als linear abfallend angenommen werden. Dies führt speziell im Bereich zwischen den einzelnen Peaks zwar immer noch zu Abweichungen<sup>19</sup>, die für die Energieeichung hier jedoch keine bedeutende Rolle spielen und deshalb vernachlässigt werden. In Abbildung 4.10 ist ein solches Fitergebnis dargestellt.

## Energiekalibrierung

Im Idealfall sind nach einem solchen Fit die im Zählrohr erzeugten Pulshöhen zu sieben verschiedenen Energie (0.3, 1.1, 5.0, 6.5, 9.7, 34.6 und 39.4 keV) bekannt<sup>20</sup>. Trägt man nun die durch den Fit gewonnen Pulshöhen gegen ihre zugehörigen und aus der Literatur bekannten Energiedepositionen auf, so kann eine Ausgleichsfunktion angepasst werden, mit deren Hilfe das in erster Näherung im Proportionalitätsbereich betriebene Zählrohr geeicht ist.

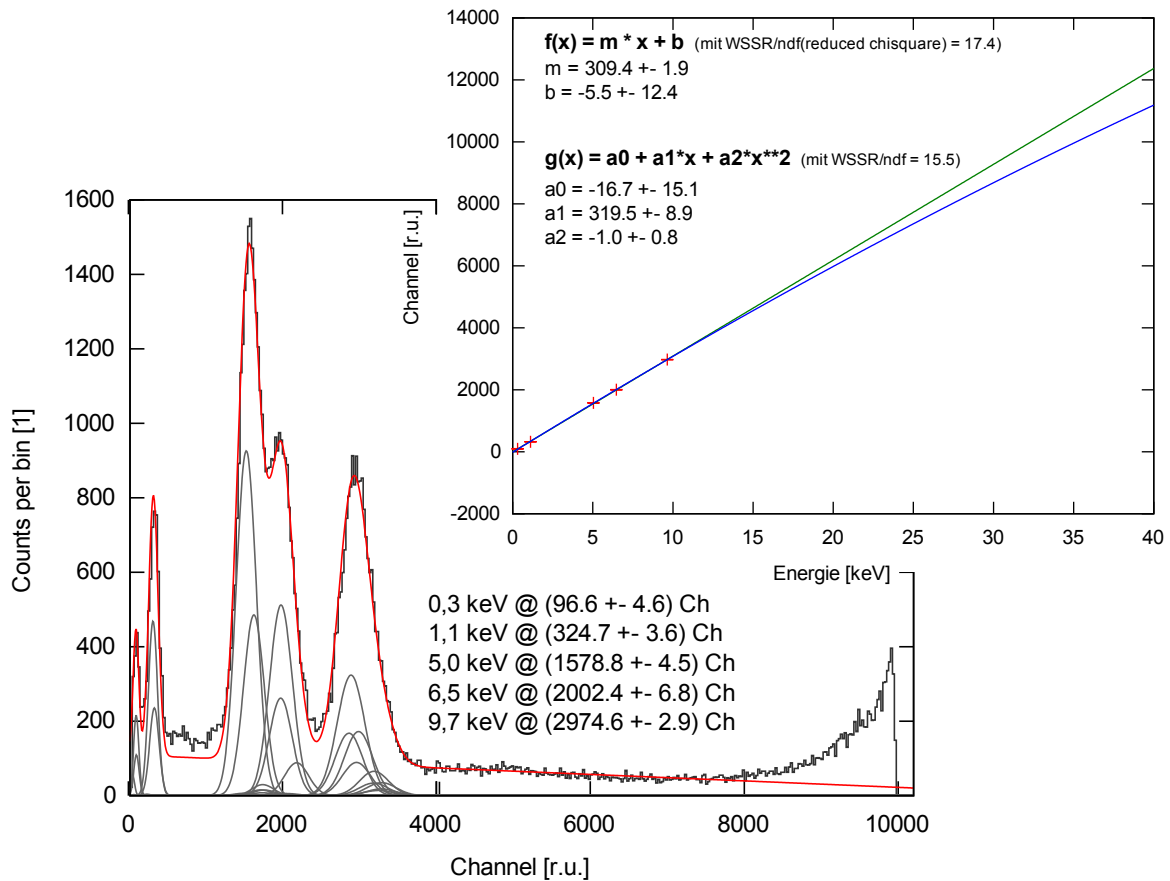
Wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, werden mit steigender Hochspannung Korrekturterme nötig, die die Abweichung von einer idealen Proportionalität berücksichtigen, um die Energieeichung auch auf große Pulshöhen übertragen zu können.

---

<sup>19</sup>Wie in [Kae03] beschrieben, führen Randeffekte, bei denen ein Großteil, aber nicht die volle Energie, der Konversionsereignisse im Zählrohr deponiert werden, zu einer stufenweisen Erhöhung der Untergrundlinie zu niedrigeren Energien hin.

<sup>20</sup>Aufgrund des begrenzten dynamischen Bereiches des Vorverstärkers ist in der Regel jedoch entweder die Verstärkung des 0.3 keV Gruppenpeaks zu gering, dafür sind die unkonvertierten Ereignisse bei 34,6 keV und 39,4 keV sichtbar, oder die Gasverstärkung ist so hoch, dass zwar der 0.3 keV Peak sichtbar wird, dafür aber die Pulshöhen der unkonvertierten Ereignisse bereits einen Overflow des Vorverstärkers auslösen und nicht zur Energiekalibrierung herangezogen werden können.





**Abbildung 4.10:** Unten: Fit eines CeX Eichspektrums. In dunkelgrau ist das gemessene CeX Eichspektrum (je 25 Kanäle sind zu einem Bin zusammengefasst) und in rot der Fit dargestellt. Die hellgrauen Kurven sind die die jeweiligen Gruppenpeaks erzeugenden, gaußverbreiterten Konversionslinien der Cer Linien am Xenon. Oben: Aus den im ersten Fit bestimmten Lagen der Pulshöhen gefittete Ausgleichsfunktionen (grün: linear, blau: quadratisch) zur Extrapolation der Energieeichung.

Da nun die Anzahl der  $^{85}\text{Kr}$ -Ereignisse im Zählrohr mit zunehmender Energiedeposition abnehmen, ist es a priori nicht klar, wie das Pulshöhenfenster gesetzt werden muss, um ein best mögliches Verhalten des Detektionssystems zu erreichen. Das Setzen dieses Pulshöhen-, beziehungsweise Energiefensters wird im Folgenden auch Cut genannt. Anhand der minimal zu detektierenden Aktivität (mdA), die mathematisch im nächsten Abschnitt behandelt wird, soll im Folgenden eine Möglichkeit gegeben werden, den Detektor zu optimieren. Anhand dieser minimal zu detektierenden Aktivität ist es zudem möglich verschiedene, auch auf unterschiedlichen physikalischen Prinzipien beruhende, Detektoren untereinander zu vergleichen. Zuvor soll jedoch kurz erörtert werden, welche Vor- und Nachteile sich aus den einzelnen Möglichkeiten Cuts zu setzen für die Effizienz  $\epsilon$  der  $^{85}\text{Kr}$ -Detektion ergeben.

### 4.3.3 Bestimmung der Nachweiseffizienz

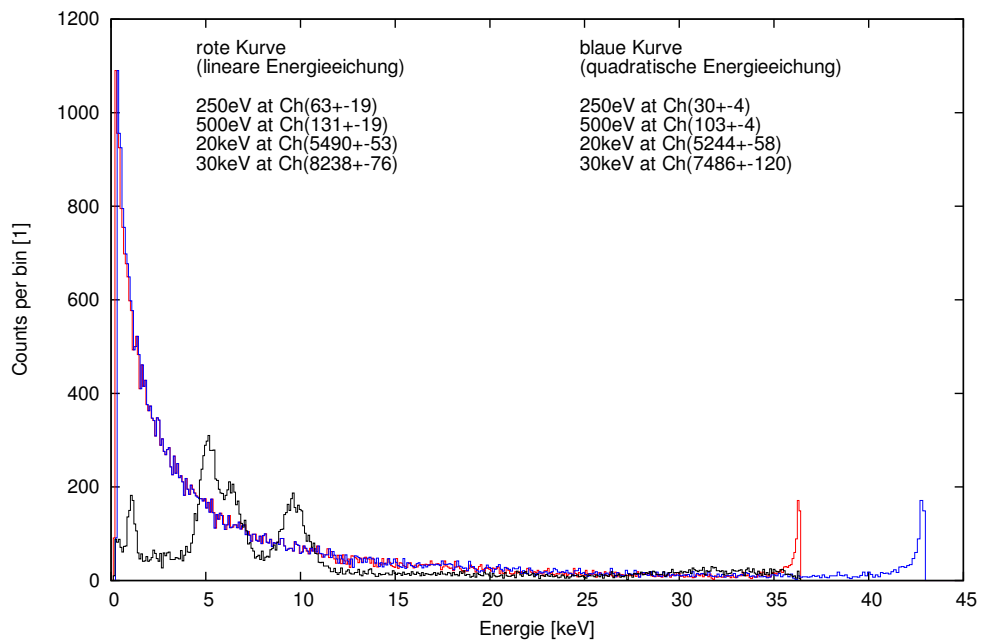
Um eine quantitative Aussage der Aktivität einer gemessenen Probe machen zu können, muss die Nachweiseffizienz des Detektors – in unserem Fall der miniaturisierten Proportionalzählrohre – bekannt sein. Nachdem in den vorangehenden Abschnitten die Energiegleichung unserer Detektoren erläutert wurde, kann nun die Effizienzbestimmung der  $^{85}\text{Kr}$ -Detektion der Zählrohre angegangen werden. Diese ist stark davon abhängig, wie Cuts gesetzt werden, das heißt davon, wie eine Pulshöhe aussehen muss, damit sie als Zerfallsereignis von  $^{85}\text{Kr}$  gewertet wird.

Um das Pulshöhenfenster (Cuts) zur Identifizierung eines  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls optimal zu setzen, muss ein Mittelweg zwischen der Minimierung des Untergrundes im betrachteten Fenster (hier ist ein möglichst kleines Pulshöhenfenster favorisiert) und der Maximierung der Effizienz (möglichst großes Pulshöhenfenster) gefunden werden. Aufgrund der mit zunehmender Energiedeposition größer werdenden Unsicherheit der Kalibrierung, steigt aber auch der Fehler der Effizienz mit höherliegendem oberem Cut.

In Tabelle 4.2 sind für das Zählrohr #126, sowie für das Zählrohr #172 die durch die verschiedenen Cuts und unter Verwendung einer am MPIK Heidelberg durch Germanium-Gammaspektroskopie zu  $(31 \pm 3)$  Bq bestimmten Referenzquelle [Web09] entstehenden Effizienzen  $\epsilon$  angegeben. Zudem ist der mit dem in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Myonveto im LLL des MPIK erreichte Untergrund dieser Zählrohre für die jeweiligen Cuts angegeben. In Abbildung 4.11 ist exemplarisch ein bei der Effizienzmessung aufgenommenes  $\beta$ -Spektrum des  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls mit zugehörigem CeX-Eichspektrum gezeigt.

#### Minimal zu detektierende Aktivität (mdA)

Um ein System mit all seinen charakterisierenden Parametern wie Effizienzen, Untergrund und zugehörigen Fehlern mit anderen Systemen, die möglicherweise auf komplett verschiedenen physikalischen Prinzipien beruhen, vergleichen zu können, bietet es sich an eine



**Abbildung 4.11:** Pulshöhenspektrum des  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls mit zugehörigem CeX-Eichspektrum. Anhand des Vergleichs zwischen roter (lineare Ausgleichsfunktion) und blauer (quadratische Ausgleichsfunktion) ist der Einfluss der Nichtlinearität speziell auf höhere Energien gut zu erkennen.

Zählrohr	Energiefenster [keV] (quad. Extrapolation)	Effizienz $\epsilon$ (absolut [%])	Untergrund [cts/day]
#126	0,30 – 20	65,9 ( $\pm 9,9\%$ )	6,90 $\pm$ 0,51
	– 30	68,4 ( $\pm 9,9\%$ )	6,99 $\pm$ 0,54
	– $\infty$	71,7 ( $\pm 9,8\%$ )	7,40 $\pm$ 0,51
	0,50 – 20	60,1 ( $\pm 9,9\%$ )	5,65 $\pm$ 0,65
	– 30	62,7 ( $\pm 9,9\%$ )	5,74 $\pm$ 0,68
	– $\infty$	66,0 ( $\pm 9,8\%$ )	6,15 $\pm$ 0,65
#172	0,35 – 20	59,4 ( $\pm 9,8\%$ )	16,5 $\pm$ 1,6
	– 30	62,5 ( $\pm 9,8\%$ )	17,3 $\pm$ 1,6
	– $\infty$	66,1 ( $\pm 9,8\%$ )	18,8 $\pm$ 1,5
	0,50 – 20	55,9 ( $\pm 9,8\%$ )	15,6 $\pm$ 1,6
	– 30	59,1 ( $\pm 9,8\%$ )	16,4 $\pm$ 1,6
	– $\infty$	62,6 ( $\pm 9,8\%$ )	17,9 $\pm$ 1,5

**Tabelle 4.2:** In der Tabelle sind für unterschiedliche Pulshöhenfenster (Cuts), für die ein Ereignis als  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfall gewertet wird, die Nachweeffizienzen angegeben. Zudem ist der in diesem Energieintervall erreichte Untergrund angegeben. Der große Fehler der Nachweeffizienzen hat seinen Ursprung zum größten Teil aus der Unsicherheit der  $^{85}\text{Kr}$ -Referenzquelle, die am Institut mit Hilfe der Germaniumspektrometrie zu  $(31 \pm 3)$  Bq [Web09], also mit einer Unsicherheit von 9,7%, bestimmt wurde. Der Fehler, der sich aus der Statistik der Effizienzmessungen, sowie dem aus dem Fit des CeX-Eichspektrums entstandenen Fehler der Cuts ergab, lag bei maximal 2%.

minimal zu detektierende Aktivität (mdA oder  $A_{\min}$ ) einzuführen. Sie lässt sich über die folgende Überlegung definieren (siehe hierzu auch [WZ08]):

Soll eine beliebige physikalische Größe  $A$  (in unserem Fall eine Aktivität) mit maximal dem vor der Messung festgelegten relativen Fehler  $\delta_{\max} \geq \delta$ , mit

$$\delta = \frac{\sigma(A)}{A}, \quad (4.3)$$

mit dem System gemessen werden, so sind an die Größe  $A$  durch die Vorgabe von (4.3) Grenzen gesetzt. Minimiert man durch Variation der freien Systemparameter (wie beispielsweise der Cuts) die Größe  $A$ , so erhält man  $A_{\min}$ .

Die Größe  $\sigma(A) = \sigma(A(x_1, x_2, \dots, x_i))$  ergibt sich aus der bekannten Fehlerrechnung nach

$$\sigma(A) = \sqrt{\sum_i \left( \frac{\partial A}{\partial x_i} \cdot \sigma(x_i) \right)^2}, \quad (4.4)$$

wobei  $\sigma(x_i)$  den Fehler des Systemparameters  $x_i$  darstellt.

Löst man nun (4.4) unter Verwendung der die Aktivität  $A$  mit der Anzahl der Counts  $N$  und dem Untergrund  $A_B$  pro Zeiteinheit  $\Delta t$  verknüpfenden Formel

$$N = \epsilon \int_{t_s}^{t_s + \Delta t} A(t) dt + A_B \cdot \Delta t \quad (4.5)$$

$$\left( \xrightarrow{T_{1/2} \gg t_s + \Delta t} N = \epsilon A \Delta t + A_B \Delta t \right) \quad (4.6)$$

( $T_{1/2}$  bezeichnet hier die Halbwertszeit des betrachteten radioaktiven Zerfalls, die im Falle von  $^{85}\text{Kr}$  viel größer ist als die Zeit  $t_s$ , die die Zeit zwischen der Entnahme der Luftprobe und dem Start der Messung bezeichnet.)

mit Hilfe von (4.3) nach  $A$  auf, so erhält man

$$A_{\min} = \frac{\lambda e^{\lambda t_s} \left( 1 + \sqrt{1 + 4 (\Delta t^2 \sigma(A_B)^2 + \Delta t A_B) (\delta^2 - \delta_\epsilon^2)} \right)}{2\epsilon (1 - e^{-\lambda \Delta t}) (\delta^2 - \delta_\epsilon^2)}, \quad (4.7)$$

wobei  $\delta_\epsilon$  der relative Fehler  $\sigma(\epsilon)/\epsilon$  der absoluten Detektionseffizienz und  $\lambda$  die Zerfallskonstante des  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls ist. Für große Halbwertszeiten im Vergleich zu typischen Messzeiten ( $t_s + \Delta t \ll T_{1/2}$ ), wie dies für  $^{85}\text{Kr}$  der Fall ist, sieht man leicht ein, dass

$$\frac{\lambda \Delta t}{1 - e^{-\lambda \Delta t}} \approx 1 \quad \text{und} \quad (4.8)$$

$$e^{\lambda t_s} \approx 1 \quad (4.9)$$

gilt und sich (4.7) in unserem Fall vereinfachen lässt<sup>21</sup> zu

$$A_{\min} = \frac{1 + \sqrt{1 + 4(\Delta t^2 \sigma(A_B)^2 + \Delta t A_B)(\delta^2 - \delta_\epsilon^2)}}{2\epsilon \Delta t (\delta^2 - \delta_\epsilon^2)}. \quad (4.10)$$

In Tabelle 4.3 sind für verschiedene relative Fehler  $\delta$  die minimal zu detektierenden Aktivitäten nach (4.10) unter Voraussetzung der für das verwendete System charakteristischen Systemparameter wie Messdauer  $t$ , Zählrohr-Untergrund  $A_B$  und Effizienz  $\epsilon$  angegeben.

Dieser Tabelle kann entnommen werden, dass sowohl für Zählrohr #126, als auch für Zählrohr #172 das Energiefenster nicht nach oben beschränkt sein und der untere Cut bei derzeitiger Datenlage bei 30 eV (#126), beziehungsweise 35 eV (#172) liegen sollte.

## 4.4 Charakterisierung von Xe-CH<sub>4</sub> Zählgasmischungen

Im folgenden Abschnitt werden nun drei verschiedene Xenon-Methan-Zählgasmischungen auf ihre Eigenschaften Linearität, Gasverstärkung und Auflösung getestet. Da diese Eigenschaften stark von der verwendeten Hochspannung  $U_{HV}$  abhängig sind, wurden für jede Zählgasmischung verschiedene Hochspannungen getestet.

Um eine brauchbare Niederenergie-Kalibrierung und hohe Effizienz der <sup>85</sup>Kr-Detektion zu erreichen, ist es wichtig den 0,3 keV Peak der CeX-Quelle über die Pulshöhenschwelle der FADC-Karte zu verstärken. Eine hohe Gasverstärkung ist also entscheidend.

Fittet man an die mit der CeX-Eichquelle erhaltenen Positionen der Pulshöhen im Channelraum ein Polynom zweiten Grades

$$g(x) = a_0 + a_1 \cdot x + a_2 \cdot x^2,$$

so stellt der Koeffizient  $a_1$  ein Maß der Gasverstärkung und das Verhältnis  $\beta = |a_2/a_1|$  ein Maß der Nichtlinearität dar [Kae03]. Ein „gutes“ Zählgasgemisch hat also idealerweise eine große Gasverstärkung bei kleinem  $\beta$  in einem großen dynamischen Bereich.

In Tabelle 4.4 ist der  $\beta$ -Wert für drei Zählgasmischungen bei verschiedenen Hochspannungen  $U_{HV}$  und zugehörigen Energiekalibrierungen aufgelistet. Zudem ist der zur Gasverstärkung proportionale Koeffizient  $a_1$ , sowie der Wert  $\sigma^{9,7}/\sqrt{\mu^{9,7}[\text{Ch}]}$  für die verschiedenen Spannungen und unterschiedlichen Zählgasmischungen angegeben. Letzterer ist direkt vom Fit bestimmt und, wie in (4.2) gezeigt, in erster Näherung proportional zur Auflösung des 9,7 keV Peaks.

---

<sup>21</sup>Dieses Ergebnis kann auch direkt erhalten werden, wenn die ins Zählrohr gefüllte Aktivität während des Messzeitraumes als konstant angenommen wird (das heißt  $T_{1/2} \gg \Delta t$ , was ja gerade obiger Grenzwertbetrachtung entspricht,) und mit Gleichung (4.6) die weiteren Umformungen vorgenommen werden.

4.4 CHARAKTERISIERUNG VON XE-CH<sub>4</sub> ZÄHLGASMISCHUNGEN

Zählrohr	$\delta$	Energiefenster [keV]	$A_{\min;1h}$ [mBq]	$A_{\min;12h}$ [mBq]	$A_{\min;24h}$ [mBq]	$A_{\min;240h}$ [mBq]	
#126	0,2	0,30 – 20	14.1	1.28	0.69	0.13	
		– 30	13.6	1.23	0.66	0.13	
		– $\infty$	<b>12.9</b>	<b>1.17</b>	<b>0.63</b>	<b>0.12</b>	
		0,50 – 20	15.4	1.38	0.74	0.15	
		– 30	14.8	1.32	0.71	0.14	
		– $\infty$	14.0	1.26	0.68	0.14	
		0,3	0,30 – 20	5.4	0.54	0.31	0.072
			– 30	5.2	0.52	0.30	0.071
			– $\infty$	4.9	0.50	0.29	0.068
	0,50 – 20		5.9	0.57	0.33	0.081	
	– 30		5.6	0.55	0.31	0.079	
	– $\infty$		5.3	0.53	0.30	0.075	
	0,5	0,30 – 20	1.87	0.23	0.14	0.039	
		– 30	1.80	0.22	0.13	0.038	
		– $\infty$	1.72	0.21	0.13	0.036	
		0,50 – 20	2.03	0.24	0.14	0.043	
		– 30	1.95	0.23	0.14	0.042	
		– $\infty$	1.85	0.22	0.14	0.040	
#172	0,2	0,35 – 20	15.7	1.57	0.90	0.26	
		– 30	14.9	1.50	0.87	0.25	
		– $\infty$	<b>14.1</b>	<b>1.43</b>	<b>0.83</b>	<b>0.23</b>	
		0,50 – 20	16.7	1.65	0.95	0.28	
		– 30	15.8	1.57	0.91	0.26	
		– $\infty$	14.9	1.50	0.87	0.25	
		0,3	0,35 – 20	6.1	0.72	0.44	0.15
			– 30	5.8	0.69	0.43	0.15
			– $\infty$	5.5	0.66	0.41	0.14
	0,50 – 20		6.5	0.75	0.47	0.16	
	– 30		6.2	0.72	0.45	0.15	
	– $\infty$		5.8	0.69	0.43	0.14	
	0,5	0,35 – 20	2.23	0.33	0.22	0.086	
		– 30	2.13	0.32	0.21	0.082	
		– $\infty$	2.03	0.31	0.20	0.076	
		0,50 – 20	2.35	0.35	0.23	0.090	
		– 30	2.24	0.33	0.22	0.086	
		– $\infty$	2.13	0.32	0.21	0.080	

**Tabelle 4.3:** In der Tabelle sind die minimal zu detektierenden Aktivitäten  $A_{\min;t}$  des für diese Arbeit verwendeten <sup>85</sup>Kr-Systems angegeben, die mit einem relativen Fehler von  $\delta$  erreicht werden können. Der Index t in  $A_{\min;t}$  indiziert dabei die Messdauer in Stunden.

Zählrohr	Zählgas	$U_{HV}$ [kV]	$a_1$ [1]	$\beta =  a_2/a_1  [10^{-3}]$	$\sigma^{9,7}/\sqrt{\mu^{9,7}[\text{Ch}]}$
#136	5% CH <sub>4</sub> - 95% Xe	943 ± 11	29,5 ± 0,6	0,9 ± 0,5	1,08 ± 0,03
		986 ± 12	49,1 ± 0,4	1,5 ± 0,2	1,33 ± 0,03
		1072 ± 14	92,5 ± 0,9	2,5 ± 0,3	1,66 ± 0,04
		1094 ± 15	182,0 ± 1,9	4,3 ± 0,4	2,30 ± 0,05
		1148 ± 17	360,1 ± 13,4	9,3 ± 4,0	2,99 ± 0,07
		1169 ± 18	468,9 ± 17,2	10,4 ± 4,0	3,07 ± 0,09
#126	10% CH <sub>4</sub> - 90% Xe	978 ± 12	43,9 ± 0,4	1,0 ± 0,2	1,19 ± 0,03
		1012 ± 12	63,4 ± 0,4	1,4 ± 0,2	1,32 ± 0,04
		1041 ± 13	92,1 ± 0,5	2,0 ± 0,2	1,59 ± 0,05
		1073 ± 14	134,8 ± 1,1	2,2 ± 0,3	1,91 ± 0,06
		1105 ± 16	196,3 ± 1,1	3,4 ± 0,2	2,30 ± 0,05
		1136 ± 17	284,7 ± 9,4	4,0 ± 0,3	2,53 ± 0,06
		1168 ± 18	424,8 ± 12,3	6,8 ± 0,3	3,06 ± 0,06
#136	15% CH <sub>4</sub> - 85% Xe	1012 ± 12	50,7 ± 0,3	1,1 ± 0,2	1,40 ± 0,02
		1041 ± 13	73,2 ± 0,8	1,6 ± 0,3	1,73 ± 0,03
		1073 ± 14	106,6 ± 1,1	2,1 ± 0,3	1,97 ± 0,03
		1105 ± 16	154,5 ± 1,7	2,8 ± 0,4	2,36 ± 0,03
		1136 ± 17	226,0 ± 2,6	3,8 ± 0,4	2,53 ± 0,05
		1168 ± 18	342,4 ± 17,7	8,0 ± 5,4	3,29 ± 0,05

**Tabelle 4.4:** Vergleich verschiedener Zählgasmischungen auf ihre Gasverstärkung, Linearität und Auflösung für unterschiedliche Hochspannungen  $U_{HV}$ .



Wie dieser Tabelle nun entnommen werden kann, gewinnt für alle betrachteten Zählgas-mischungen der quadratische Term in Form des Quotienten  $\beta$  mit steigender Hochspannung  $U_{HV}$  an Bedeutung. Dies ist den in Abschnitt 2.2.2 beschriebenen Rekombinations- und Raumladungseffekten zuzuschreiben, die bei steigender Spannung  $U_{HV}$  und somit zunehmender Raumladungsdichte in der unmittelbaren Umgebung des Anodendrahtes eine Abweichung vom idealen, proportionalen Verlauf bewirken.

Speziell diese Raumladungseffekte verantworten nun auch die zweite, der Tabelle zu entnehmende Tendenz, dass die Auflösung in Form des Parameters  $\sigma^{9,7}/\sqrt{\mu^{9,7}[\text{Ch}]}$  mit steigender Hochspannung anwächst, das heißt schlechter wird.

Im direkten Vergleich der Zählgase untereinander sind speziell in der Auflösung leichte Vorteile bei der 10%  $\text{CH}_4$  - 90% Xe-Mischungen zu erkennen. Dafür ist die Gasverstärkung bei der 5%  $\text{CH}_4$  - 95% Xe-Mischung am höchsten, was für die Niederenergieeichung von Vorteil ist.

Es muss jedoch erwähnt sein, dass die Messungen mit 5% und 15%  $\text{CH}_4$ -Anteil mit Zählrohr #136, die 10%-ige  $\text{CH}_4$ -Mischung mit den vermeintlich leichten Vorteilen jedoch mit Zählrohr #126 durchgeführt wurden. Somit könnte der leichte Vorteil in der Auflösung kein Effekt der Zählgas Mischung, sondern des Zählrohres #126 sein.

## 4.5 Tests der Messprozedur

Im Folgenden soll nun beschrieben werden, wie während der Entwicklung das Messverfahren getestet wurde. Hier kann zwischen Tests des Gasreinigungsverfahrens und Tests des Datennahmesystems unterschieden werden. Da es sich bei der Entwicklung der beschriebenen Reinigungs- und Nachweisprozedur um einen längeren Prozess handelte, sind im Folgenden die verwendeten Testverfahren gelistet, wie sie in etwa chronologisch zum Einsatz kamen.

### 4.5.1 Tests der Reinigungsprozedur

Zu Beginn der Entwicklung der Reinigungsprozedur war sowohl die Elektronik noch nicht voll einsatzbereit, als auch ein geeigneter  $^{85}\text{Kr}$ -Standard nicht verfügbar. Deshalb wurden fast alle Tests mit makroskopischen Proben von Krypton mit natürlichem Isotopenverhältnis durchgeführt. Gegen Ende wurde dann auch eine Möglichkeit genutzt, mit der ein Test der Reinigungsprozedur bei funktionierender DAQ auch ohne einen gut kalibrierten  $^{85}\text{Kr}$ -Standard möglich ist.

**Test mit makroskopischer Menge natürlichen Kryptions** Bei diesem Test wird zuerst das Volumen einer gewissen Kryptonmenge, die aus einer Vorratsdruckflasche entnommen wird, mit Hilfe der Toeplerpumpe vermessen. Dann wird diese Probe in ein zuvor mit Raumluft gefülltes Glasgefäß gegeben, mit der Luft vermischt und die Prozedur zur Abtrennung des Krypton von den Luftkomponenten durchgeführt. Zum Schluss wird das bei

der Reinigung in einer Adsorberfalle zurückgehaltene Krypton wieder in die Toeplerpumpe transferiert, wo erneut das Volumen bestimmt wird.

Diese Tests sind jedoch ziemlich ungenau, da die Volumenbestimmung mit Hilfe der Toeplerpumpe bei kleinen Gasmengen große relative Fehler liefert. Zudem handelt es sich stets um eine makroskopische Menge Krypton und es ist a priori nicht klar, dass die Ergebnisse sich auch auf mikroskopische Kryptonmengen übertragen lassen.

Ein weiterer Vorteil neben der Einfachheit der Methode liegt darin, dass aufgrund der großen Menge an Krypton bei der Chromatographie ein „Durchbruch“ von Krypton beobachtbar ist. Da die Zeit des Durchbruchs stark von den bei der Prozedur verwendeten Parametern abhängig ist, sie aber für die Messung mikroskopischer Mengen gut bekannt sein muss, ist diese Methode für anfängliche Tests sehr wertvoll.

**Test mit  $^{85}\text{Kr}$**  Bei diesem ersten, direkten Test der Kryptonreinigung wurde eine durch ein undichtes Ventil mit Luft kontaminierte  $^{85}\text{Kr}$ -Probe mit einer ursprünglichen Aktivität von  $(36 \pm 3)$  Bq vor und nach einer Reinigungsprozedur in ihrem Glasgefäß mit Hilfe der 514 keV  $\gamma$ -Linie (siehe 4.5) mittels Germaniumspektrometrie vermessen [Web09]. Vor der Reinigung wurde eine Aktivität von 24 Bq, nach der Reinigungsprozedur eine Aktivität von  $(31 \pm 3)$  Bq gemessen. Daraus ergibt sich eine Reinigungseffizienz<sup>22</sup> von

$$\epsilon_{\text{Reinigung}} = 0.85 \pm 0.11.$$

**Test mit mikroskopischer Menge an  $^{85}\text{Kr}$**  Hier gibt es nun mindestens zwei Möglichkeiten einen solchen Test aufzubauen. Bei der ersten Variante wird eine extern gut kalibrierte Menge an  $^{85}\text{Kr}$  mit Luft gemischt, dann die Reinigung gestartet, das gereinigte Krypton in ein Zählrohr bekannten Untergrundes gefüllt und die Datennahme begonnen. Ist auch die Effizienz der Datennahme bekannt, so sollte die sich im Zählrohr befindliche Aktivität gleich der ursprünglichen Aktivität der Ausgangsprobe sein. Um den Fehler eines solchen Tests klein zu halten, müssen also sowohl die Aktivität der Probe und der Untergrund des verwendeten Zählrohres gut bekannt, sowie die Effizienz der DAQ genau vermessen sein.

Bei der zweite Variante eines solchen Tests eliminieren sich die Fehler der Datennahme, der Nachweiseffizienz und der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität zum größten Teil selbst. Hierfür wird eine gewisse Menge<sup>23</sup> Zählgasgemisch in ein Zählrohr gegeben, mit Hilfe der CeX-Quelle

---

<sup>22</sup>Da Messzeit im Germaniumspektrometer knapp war und sich vor der Messung nicht abschätzen ließ, ob die  $^{85}\text{Kr}$ -Probe im Glasgefäß überhaupt die undichte Stelle überstanden hatte, wurde hier nur eine sehr kurze Messung mit grober Effizienzbestimmung durchgeführt. Aus diesem Grund sind an dieser Stelle keine Fehler angegeben und die Reinigungseffizienz wurde mit dem zuvor bestimmten Wert unter der Annahme errechnet, dass kein  $^{85}\text{Kr}$  aus dem Glasgefäß entwichen ist.

<sup>23</sup>Diese Menge muss nicht genau bekannt sein. Die Aktivität der verwendeten  $^{85}\text{Kr}$ -Probe sollte jedoch nicht zu niedrig sein. Durch das spätere Mischen der Probe mit Luft erhöht sich die Aktivität um einen Beitrag, der im Normalfall nicht genau bekannt ist und somit den Fehler der Messung erhöht. Die Aktivität der verwendeten Probe sollte somit so gewählt sein, dass diese zusätzliche Erhöhung nicht signifikant wird. (Hat das für die Mischung mit Luft verwendete Gefäß zum Beispiel ein Volumen von einem Liter, so wird die Aktivität der Probe um etwa  $1.5 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3} \cdot 1 \text{ l} = 1.5 \text{ mBq}$  erhöht.)

geeicht und in einem gewissen Pulshöhenfenster die Anzahl der Ereignisse pro Zeiteinheit ( $A_{\text{vor}}$ ) aufgenommen. Danach wird dem Zählrohr das Zählgasgemisch mit dem  $^{85}\text{Kr}$ -Anteil entnommen und erneut mit Luft vermischt.

Diese Probe kann nun gereinigt und erneut mit Zählgas gemischt in das Zählrohr der ersten Messung gefüllt werden. Wie in der ersten Messung wird das Zählrohr geeicht und im selben Pulshöhenfenster wie zuvor die Anzahl der Ereignisse pro Zeiteinheit ( $A_{\text{nach}}$ ) aufgenommen. Die Reinigungseffizienz ergibt sich somit zu  $\epsilon_{\text{Reinigung}} = A_{\text{vor}}/A_{\text{nach}}$ .

In einem solchen Test wurde unter Verwendung des Zählrohres #172 eine Reinigungseffizienz erzielt von

$$\epsilon_{\text{Reinigung}} = 0.977 \pm 0.019.$$

**Fazit** Die Tests mit einer makroskopischen Menge natürlichen Kryptons dienten lediglich einer ersten Abschätzung. Da ihnen grundsätzlich eine systematische Fehlerkomponente (das Trägergas Helium ließ sich meist nicht komplett von der Falle pumpen, in der die Krypton-Probe adsorbiert war) beiwohnte, die aber in ihrer Stärke zu Schwanken schien, wurde darauf verzichtet aus diesen Tests eine Reinigungseffizienz zu bestimmen.

Wie beim Test mit der mikroskopischen  $^{85}\text{Kr}$ -Menge gezeigt wurde, liegt das Extraktions- und Reinigungspotential der Methode höher, als dies beim Test mit der größeren  $^{85}\text{Kr}$ -Probe und dem Nachweis dieser mit Hilfe der Gammaspektroskopie der Fall zu sein scheint. Diese Abweichung kann entweder auf eine statistische Schwankung ( $\sim 1,14\sigma$ ), oder auf ein tatsächliches Entweichen eines geringen Anteils der  $^{85}\text{Kr}$ -Probe auf Grund des Luftlecks geschoben werden. Im Folgenden wird eine Reinigungseffizienz von  $(0.977 \pm 0.019)$  angenommen.

## 4.5.2 Tests des Datennahmesystems

Um den zuvor besprochenen Test der Reinigungsprozedur mit einer mikroskopischen Menge an  $^{85}\text{Kr}$  durchzuführen, muss zuvor das Datennahmesystem auf korrekte Funktionsweise hin überprüft werden. (Das DAQ System ist detailliert in Abschnitt 4.2 beschrieben.)

**Tests mit  $^{222}\text{Rn}$  Proben** Da das System prinzipiell gleich dem sich schon lange in Funktion befindlichen System zur  $^{222}\text{Rn}$  Datennahme aufgebaut ist und zusätzlich nur auf Ereignisse im Niederenergiebereich hin optimiert wurde, muss das System die gleichen Ergebnisse für  $^{222}\text{Rn}$  Proben liefern, wie sie bereits mit dem Radon DAQ-System gewonnen wurden. Somit konnten gefüllte Zählrohre, deren Aktivität aus Messungen mit der Radon-DAQ bekannt war, erneut in der Krypton-DAQ gemessen werden und gezeigt werden, dass die Nachweiseffizienzen beider DAQ Systeme für Ereignisse mit großer Energiedeposition gleich sind.

**Tests mit Myonen** Myonen, die durch kosmische Strahlung in der Erdatmosphäre entstehen und aufgrund ihrer hohen Energie und relativ zum Elektron großen Masse ( $m_{\mu} \approx 200 \cdot m_e$ ) eine relativ große Reichweite haben und so auch tiefer gelegene und dadurch

besser abgeschirmte Räume wie das Low-Level-Labor (LLL) erreichen können, durchqueren mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit auch ein im LLL an die DAQ angeschlossenes Zählrohr und können so im Zählgas einen Teil ihrer Energie deponieren. Dies führt zu Niederenergieereignissen ähnlich denen von im Zählrohr entstandenen  $\beta$ -Elektronen. Somit liefert bereits ein mit Zählgas gefülltes und an die DAQ angeschlossenes Zählrohr Signale, mit denen der für die Zählrohrsignale verantwortliche Teil der DAQ getestet werden kann.

Um die Qualität des ebenfalls in Abschnitt 4.2 dargestellten Myonvetos zu überprüfen, wurden Untergrundspektren von Zählrohren genommen, wobei mögliche durch Myonen induzierte Vetosignale in Koinzidenz zu Zählrohrereignissen mit von der DAQ gespeichert wurden. In Abbildung 4.4 ist ein solches Spektrum gezeigt. In rot sind dabei all die Ereignisse gezeigt, die im Zählrohr über einer Schwelle von etwa 250 keV Energie deponieren, in grün dann noch diese Ereignisse, die auch im Plastikszintillator Energie deponiert und dadurch ein Vetosignal ausgelöst haben. In blau ist schließlich das Differenzspektrum dargestellt, das das resultierende Untergrund-Spektrum des Zählrohres darstellt und das aus Myonen, die kein Vetosignal ausgelöst haben, Kernzerfällen innerhalb des Zählrohres mit geringer Energiedeposition und elektronischem Rauschen besteht.

## 4.6 Ergebnisse der Luftmessungen

Nachdem das System nun ausführlich beschrieben, charakterisiert und getestet wurde, sollen in diesem Abschnitt nun die Daten zu der mit dem System gemessenen  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration in Luft folgen. Es wurde eine Luftprobe, die in Halle A der Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS) in den italienischen Abruzzen genommen wurde, auf ihren  $^{85}\text{Kr}$ -Gehalt untersucht.

Wie zu Beginn des Kapitels erwähnt, sind Werte für den deutschen Raum durch eine Messstation auf dem Schauinsland (nahe Freiburg) verfügbar [BSSS09], jedoch stellt der in Halle A gemessene Wert die erste je in Italien bestimmte  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration in Luft dar.

Für die am 01.10.2009 in Halle A (LNGS, Italien) genommene Luftprobe ( $(900 \pm 5)$  mbar Luftdruck,  $(23 \pm 3)$  °C Raumtemperatur,  $1,250 \pm 0,003$  l Probenmenge) wurden im betrachteten Energiefenster  $[0,35 \text{ eV} - \infty]$  während einer Messdauer von 6,954 Tagen  $(680 \pm 30)$  Ereignisse registriert. Unter Verwendung der Nachweiseffizienz  $\epsilon$  im Zählrohr und der Reinigungseffizienz  $\epsilon_{\text{Reinigung}}$ , sowie des Untergrundes von #172 im betrachteten Energiefenster (siehe Tabelle 4.2) ergibt sich daraus eine  $^{85}\text{Kr}$ -Volumenaktivität in Luft (STP) von

$$A = (1,33 \pm 0,16) \text{ Bq/m}^3 \quad (4.11)$$

**Interpretation** Das Ergebnis dieser Messung der  $^{85}\text{Kr}$ -Volumenaktivität von Luft in Halle A lässt mit der angegebenen Standardabweichung noch beide zu Beginn besprochenen Interpretationsmöglichkeiten zu.

Nehmen wir den wahren Wert der  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration in Halle A (LNGS, Italien) zu  $1,5 \text{ Bq/m}^3$  an – wir nehmen also an er stimme mit dem deutschen Wert (Feldberg [BSSS09])

überein – so beträgt die Wahrscheinlichkeit (unter der Annahme einer Normalverteilung mit Standardabweichung von  $0,16 \text{ Bq/m}^3$ ), dass wir einen Wert von  $1,33 \text{ Bq/m}^3$  und niedriger messen noch  $14,46\%$  ( $1,063 \sigma$ ).

Oder andersherum ausgedrückt: Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass der wahre Wert nach der Messung von  $1,33 \pm 0,16 \text{ Bq/m}^3$  größer gleich dem in [BSSS09] angegebenen Wert von  $1,5 \text{ Bq/m}^3$  ist, beträgt  $14,46 \%$  und folglich liegt der wahre Wert mit einer Wahrscheinlichkeit von  $85,54\%$  unter dem zu  $1,5 \text{ Bq/m}^3$  angegebenen.

Der gemessene Wert legt – statistisch gesprochen – also eine  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration in Luft unter dem deutschen (mitteleuropäischen) Mittel nahe. Dies könnte als Untermauerung der Hypothese gesehen werden, dass die Alpen den Austausch von Luftmassen speziell mit den Orten La Hague und Sellafield verlangsamen. In dieser Konsequenz könnte eine geringere atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$ -Volumenaktivität resultieren.

Statistisch gesprochen unwahrscheinlicher ist, dass der wahre Wert der  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration auch in der Luft von Halle A bei  $1,5 \text{ Bq/m}^3$  liegt. Dies würde bedeuten, dass der Luftaustausch innerhalb Europas trotz der Alpen schnell gegen die Halbwertszeit von etwa 10 Jahren des  $^{85}\text{Kr}$  ist.



## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde mit Hilfe von miniaturisierten Proportionalzählrohren des Typs HD2 ein wichtiger Beitrag zum Verständnis des Verhaltens einzelner  $^{222}\text{Rn}$ -Atome bei kryogenen Temperaturen geleistet. Es wurde weiter eine Reinigungsprozedur zur Abtrennung von Krypton aus atmosphärischen Luftproben bis zu einem Volumen von 1 Liter (STP) entwickelt, sowie der Nachweis von niederenergetischen Elektronen des  $^{85}\text{Kr}$ -Zerfalls in erwähnten HD2-Proportionalzählrohren erreicht.

**Radon** In der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass in eine gasförmige Heliumatmosphäre emanierte  $^{222}\text{Rn}$ -Atome bei Flüssigargon(LAr)-Temperatur an kalten Edelstahloberflächen zu mindestens 97 % ausfrieren und damit nicht mehr in der Gasphase der Heliumatmosphäre mobil sind, wie dies bei Raumtemperatur der Fall ist.

Weiter konnte gezeigt werden, dass bei einer  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation in eine LAr-Atmosphäre maximal der Bruchteil  $\alpha = (0,33 \pm 0,11)$  an den kryogenen Edelstahloberflächen ausfrieren, die das LAr begrenzen, und somit ein großer Teil der emanierten  $^{222}\text{Rn}$ -Atome im LAr gelöst und damit mobil sind.

**Krypton** Im zweiten Teil dieser Arbeit konnte die erste  $^{85}\text{Kr}$ -Konzentration in Luft Italiens gemessen werden. Diese betrug am 1. Oktober 2009 in Halle A der Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS)  $(1,33 \pm 0,16) \text{ Bq/m}^3$  (STP). Dieser Wert entspricht innerhalb von  $1,06\sigma$  dem vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) herausgegebenen Wert für Mitteleuropa von  $1,5 \text{ Bq/m}^3$ .

Die zur Bestimmung dieses Wertes entwickelte Prozedur ist die erste, die mit einer Probenmenge in der Größenordnung von nur 1 Liter Luft (STP) auskommt. Sie erlaubt somit eine Aktivitätsbestimmung innerhalb von circa 12 Stunden, während andere Verfahren Luftproben einer Größenordnung von Kubikmetern über einen Zeitraum von mehreren Tagen sammeln müssen, bevor mit einer Aktivitätsbestimmung begonnen werden kann.

Weiterhin konnte gezeigt werden, dass die Effizienz  $\epsilon$  der Prozedur, mit der Krypton aus einer Luftprobe extrahiert und gereinigt werden kann,  $\epsilon = (0,977 \pm 0,019)$  beträgt.

Mit dem Detektorsystem um die miniaturisierten Proportionalzählrohre des Typs HD2 kann im Low-Level-Labor des MPIK Heidelberg bei einer Messzeit von 10 Tagen eine minimal zu detektierende Aktivität an  $^{85}\text{Kr}$  von etwa 0,1 mBq erreicht werden.



# Literaturverzeichnis

- [A<sup>+</sup>02] E. Aprile et al., *XENON: A 1-tonne liquid xenon experiment for a sensitive dark matter search*, (2002), astro-ph/0207670.
- [Apr09] E. Aprile, The XENON100 Dark Matter Experiment at LNGS: Status and Sensitivity, TAUP09 conference talk, 2009, Rome, Italy.
- [Atk99] P. W. Atkins, *Physikalische Chemie*, Arno Höpfner, 2 edition, 1999.
- [B<sup>+</sup>38] S. Brunauer et al., *Adsorption of Gases in Multimolecular Layers*, J. Am. Chem. soc. (1938).
- [BGI08] BGIA, GESTIS-Stoffdatenbank, <http://www.dguv.de/bgia/de/gestis/stoffdb/index.jsp#>, Januar 2008, Eintrag zu CAS-Nr. 64-17-5.
- [BSS09] J. Bieringer, C. Schlosser, H. Sartorius and S. Schmid, *Trace analysis of aerosol bound particulates and noble gases at the BfS in Germany*, Applied Radiation and Isotopes **67**, 672–677 (2009).
- [DEAP/CLEAN09] K. S. Olsen (DEAP/CLEAN Collaboration), *Analysis of alpha backgrounds in the DEAP-1 detector*, (2009), 0906.0348.
- [EH70] E. Storm and H. I. Israel, *Photon cross sections from 1 keV to 100 MeV for Elements Z = 1 to Z = 100*, Nucl. Data Tables **A7** (1970).
- [Ein05] A. Einstein, *Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen*, Annalen der Physik **17**, 549–560 (1905).
- [FHM<sup>+</sup>06] B. Franz, H. Hiller, H. Müller, H. Öhmen and S. Peters, editors, *1x1 der Gase - Physikalische Daten für Wissenschaft und Praxis*, chapter 7.2 Datenblätter, AIR LIQUIDE Deutschland GmbH, 2 edition, 2006.
- [Fle09] Flexware Inc., Properties of various gases, <http://www.flexwareinc.com/gasprop.htm>, 2009.

- [GERDA04] I. Abt et al. (GERDA Collaboration), GERDA The GERmanium Detector Array for the search of neutrinoless  $\beta\beta$  decays of  $^{76}\text{Ge}$  at LNGS, Proposal to the LNGS P38/04, September 2004.
- [GERDA09] M. Allardt et al. (GERDA Collaboration), Progress report to the LNGS scientific committee (Appendix), <http://www.mpi-hd.mpg.de/GERDA/reportsLNGS/gerda-lngs-sc-apr09-appdx.pdf>, April 2009.
- [GM05] C. Gerthsen and D. Meschede, *Gerthsen Physik*, Springer, Berlin, 2003 (2005).
- [H<sup>+</sup>00] G. Heusser et al.,  $^{222}\text{Rn}$  detection at the  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  range in nitrogen gas and a new Rn purification technique for liquid nitrogen, *Appl. Rad. and Isot.* **52**, 691–695 (2000).
- [Heu93] G. Heusser, Background in ionizing radiation detection - illustrated by Ge- Spectrometry, in *Low-Level Measurements of Radioactivity in the Environment: Techniques and Applications*, edited by M. Garcia-Leon and R. Garcia-Tenorio, Huelva, Spanien, 1993.
- [Heu94] G. Heusser, Characteristics of the Gallex Spectrometer, in *Proceedings of the Second International Conference on TRENDS IN ASTRO-PARTICLE PHYSICS*, edited by P. Bosetti, B.G. Teubner Verlagsgesellschaft, 1994.
- [Int04] International Organization for Standardization, *Arc welding and cutting - Nonconsumable tungsten electrodes -*, <http://www.iso.org>, November 2004, ISO 6848:2004.
- [Kae03] F. Kaether, Eichung der absoluten Nachweiswahrscheinlichkeiten von Zählrohren des Sonnenneutrino-Experiments GNO, Master's thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2003.
- [KCMM09] L. W. Kastens, S. B. Cahn, A. Manzur and D. N. McKinsey, *Calibration of a Liquid Xenon Detector with Kr-83m*, *Phys. Rev.* **C80**, 045809 (2009), 0905.1766.
- [Kih07] T. Kihm, *MIZZI Utilities/Libraries*, 3.2 edition, March 2007.
- [KKV06] H. V. Klapdor-Kleingrothaus and K. I. V., *The evidence for the observation of  $0\nu\beta\beta$  decay: the identification of  $0\nu\beta\beta$  events from the full spectra*, *Modern Physics Letters A* **21**(20), 1547–1566 (2006).
- [Lan18] I. Langmuir, *The Adsorption of Gases on plane Surfaces of Glass, Mica and Platinum*, *J. Am. Chem. Soc.* **40**, 1361–1403 (1918).

- [Leo78] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, 1978.
- [Lit01] Litty Handelsgt. mbH, Sicherheitsdatenblatt Wolfram thoriert, Dezember 2001, Handelsge. mbH.
- [M<sup>+</sup>01] S. Maurer et al., *Henry coefficients of adsorption predicted from solid Hamaker constants*, Chem. Eng. Sci. **56**, 3443–3453 (2001).
- [M<sup>+</sup>09] A. Manalaysay et al., *Spatially uniform calibration of a liquid xenon detector at low energies using <sup>83m</sup>Kr*, (2009), 0908.0616.
- [MPG06] J. Magill, G. Pfennig and J. Gali, *Karlsruher Nuklidkarte*, ISBN 92-79-02431-0, 2006, 7. Auflage.
- [NIS09] NIST (National Institute of Standards and Technology), *ESTAR – stopping-power and range tables for electrons*, <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>, 2009.
- [OJ73] H. Ortner and A. Janku, *Gammaskopmetrische Schnellbestimmung von Thorium in Wolfram-Schweißelektroden*, Z. Anal. Chem. **264**, 185–192 (1973).
- [SD80] S. Suwanayuen and R. P. Danner, *A Gas Adsorption Isotherm Equation based on Vacancy Solution Theory*, AIChE J. **26**(1), 65–76 (1980).
- [SDF<sup>+</sup>04] T. Steinkopff, W. Dyck, G. Frank, S. Frenzel and J. Salvamoser, *The measurement of radioactive noble gases by DWD in the frame of the Global Atmospheric Watch programme of WMO*, Applied Radiation and Isotopes **61**(225-230) (2004).
- [Sim03] H. Simgen, *Hochempfindlicher Nachweis radioaktiver Edelgasnuklide und natürlicher Radionuklide aus der Uran-Zerfallsreihe*, PhD thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2003.
- [SIS04] SIS GmbH, *SIS3000/SIS3001 65/80/100 MHz VME FADCs User Manual*, 3.40 edition, August 2004.
- [Urb89] A. Urban, *Analyse von Proportionalzählrohrimpulsen zum Nachweis von solaren Neutrinos*, PhD thesis, Technische Universität München, 1989.
- [WARP] R. Brunetti et al. (WARP Collaboration), *WARP: WIMP Argon Programme (Experimental Proposal)*, <http://warp.lngs.infn.it/papers/proposal.pdf>.

- [Web09] M. Weber, Experimente zum Entwurf einer Detektorabschirmung für ein neues Gamma-Spektrometer, Master's thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2009.
- [WH02] H. Weingärtner and M. Holz, *NMR Studies of self-diffusion in liquids.*, Annu. Rep. Prog. Chem., Sect. C **98**, 121–155 (2002).
- [Wie06] I. Wiesler,  $^{222}\text{Rn}$ -Emanationsmessungen im Rahmen des Gerda-Experiments, Master's thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2006.
- [WZ08] M. Wojcik and G. Zuzel, *A high-sensitivity large volume cryogenic detector for radon in gas*, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry **277**(1), 199–205 (2008).
- [XENON05] E. Aprile (The XENON Collaboration), *The XENON dark matter experiment*, (2005), astro-ph/0502279.
- [Zie08] J. Ziegler, SRIM-2008, <http://www.srim.org/>, 2008, SRIM version SRIM-2008.04.

# Dankeschön ...

**... an alle, die mir geholfen haben meine Diplomarbeit erfolgreich abzuschließen.  
Ganz gleich wie, ohne Euch hätte ich das niemals geschafft.**

Danke an Prof. Manfred Lindner und Stefan Schönert, die es mir ermöglicht haben in einer so herausragenden Gruppe Teil eines so spannenden Projektes zu werden.

Danke an Prof. Wolfgang Hampel für seine über die Maßen tatkräftige Unterstützung bei der Entstehung dieser Arbeit und Danke an Prof. Wolfgang Krätschmer für seine Zweitkorrektur dieser Arbeit.

Danke an Hardy Simgen und Grzegorz Zuzel für viele Minuten harter Arbeit mich von meinem Schlauch zu bewegen und dabei stets Ruhe zu bewahren.

Danke an Hannes Richter für viel Arbeit im Labor, die er mir erleichtert hat, und für seinen guten Rat.

Danke an Alexander Dück, Robert Gast und Claudius Klare für Vieles. Freunde, wie sie jeder gerne hätte, aber nur wenige haben.

Danke an meine Familie, meine Eltern und meine Schwester für Ohr, Rat und Tat sowie die Gewissheit Rückhalt zu finden.

Danke an Pina, Gefährtin regennasser Nächte wie sonnigster Frühlingstage, fürs immer für mich da sein.



# Erklärung

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

Heidelberg, den 01.12.2009

Sebastian Lindemann

