

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit
im Studiengang Physik

vorgelegt von
Christoph Aberle
aus Villingen

2008

Optimierung der Fluoreszenzcharakteristik von Flüssigszintillatoren des Double Chooz Reaktorneutrinoexperiment

Die Diplomarbeit wurde von Christoph Aberle ausgeführt am
Max-Planck-Institut für Kernphysik
Heidelberg

unter der Betreuung von
Herrn Prof. Wolfgang Hampel

Optimierung der Fluoreszenzcharakteristik von Flüssigszintillatoren des Double Chooz Reaktorneutrinoexperiment

Das Ziel des Reaktorneutrinoexperiment Double Chooz ist die Bestimmung oder genauere Eingrenzung des letzten unbekanntem Neutrinomischungswinkels θ_{13} der PMNS-Matrix. Mögliche Oszillationen der Antielektronneutrinos werden auf einer Wegstrecke von 1 km in einem Disappearance-Experiment überprüft. Für eine Relativmessung wird ein naher und ein ferner Detektor eingesetzt, die beide als Neutrino-Target jeweils mehrere Kubikmeter eines organischen, Gadolinium-beladenen Flüssigszintillators enthalten. Ein zweiter, unbeladener Szintillator umgibt das Neutrino-Target als Gamma Catcher. Im Rahmen dieser Arbeit wurden optische Eigenschaften verschieden zusammengesetzter Flüssigszintillatoren für das Neutrino-Target und für den Gamma Catcher mit dem Ziel untersucht, diese Eigenschaften für das Experiment zu optimieren. Lichtausbeutemessungen und die Bestimmung des Zeitprofils der Szintillatoremission wurden für verschiedene Szintillatormischungen durchgeführt. Ein Modell, das den Energietransfer beschreibt, wurde entwickelt, um Vorhersagen für die Lichtausbeute beliebiger Mischungen zu erhalten. Diese Vorhersagen wurden mit einer Compton-Rückstreu-Methode überprüft. Als Ergebnis des Optimierungsprozesses konnten Lichtausbeute und Dichte der beiden Szintillatoren trotz unterschiedlicher chemischer Zusammensetzungen im Prozentbereich in Übereinstimmung gebracht werden. Verschiedene Zeitprofile in den unterschiedlichen Szintillatoren könnten bei Double Chooz durch eine Pulsformanalyse ausgenutzt werden.

Die Ergebnisse dieser Arbeit bestimmen die Mischungsverhältnisse und Konzentrationen im Target- und Gamma Catcher-Szintillator des Double Chooz Detektors.

Optimization of the fluorescence characteristics of liquid scintillators for the Double Chooz reactor neutrino experiment

The goal of the reactor neutrino experiment Double Chooz is to search for the last remaining unknown neutrino mixing angle θ_{13} of the PMNS matrix. This disappearance experiment aims at detecting possible oscillations of electron antineutrinos at a distance of one kilometer. A relative measurement will be done between a far and a near detector, each of them containing several cubic meters of Gadolinium-loaded organic liquid scintillator as a neutrino target. A second unloaded scintillator surrounds the neutrino target and acts as a Gamma Catcher.

Different compositions of scintillators have been studied to optimize their properties. Light yields and time probability density functions of the scintillator emission have been measured. A model has been developed describing the energy transfer to predict the light yield of different scintillator compositions. The predictions have been checked with a Compton backscatter peak method. The result of the optimization process is a light yield and density matching of the two chemically different scintillators with percent accuracy. Different time PDFs could be used for a pulse shape discrimination in Double Chooz. The results of this work determine the mixing ratios and the concentrations for the target and the gamma catcher scintillator of Double Chooz.

Inhaltsverzeichnis

1	Neutrinos	1
1.1	Entdeckung der Neutrinos	1
1.2	Neutrinooszillationen	2
1.2.1	Vakuumoszillationen	2
1.2.2	Oszillationen in Materie	4
1.3	Experimente	4
1.3.1	Neutrinoquellen	4
1.3.2	Sonnenneutrinos	5
1.3.3	Atmosphärische Neutrinos	8
1.3.4	Beschleuniger-Experimente	9
1.3.5	Reaktorneutrinos	9
1.3.6	Aktuelle Ergebnisse	12
1.4	Offene Fragen	12
2	Double Chooz	14
2.1	Design des Experiments	14
2.1.1	Neutrinoquelle	14
2.1.2	Das Konzept von Double Chooz	14
2.1.3	Neutrinosignal	15
2.1.4	Sensitivität	18
2.2	Detektoreigenschaften	18
2.2.1	Aufbau des Detektors	18
2.2.2	Detektorsimulation	20
2.2.3	Kalibration	21
2.2.4	Elektronik und Datenanalyse	21
2.2.5	Untergrund	22
2.3	Gadolinium-Szintillator	23
2.3.1	Gd- β -Diketone	23
2.3.2	Anforderungen	25
3	Energietransfer im Flüssigszintillator	29
3.1	Anregung der Lösungsmittelmoleküle	29
3.1.1	Energieniveaus von Aromaten	29
3.1.2	Fluoreszenz und Phosphoreszenz	30
3.1.3	Anregung von gesättigten Kohlenwasserstoffen	31
3.2	Energietransfermechanismen	31

3.2.1	Die Fluore	31
3.2.2	Energietransfermechanismen zwischen einzelnen Molekülen	32
3.2.3	Energietransfer bei hoher Donor-Konzentration	35
3.3	Lichtausbeutemodell	35
3.3.1	Vorgehensweise und Annahmen	35
3.3.2	Ableitung der Lichtausbeutegleichungen	37
4	Lichtausbeutemessungen	42
4.1	Experimenteller Aufbau der Compton-Spektrum-Messung	42
4.1.1	Messprinzip	42
4.1.2	Auswertung der Compton-Spektren	43
4.2	Experimenteller Aufbau der Compton-Rückstreu-Messung	45
4.2.1	Elektronik	46
4.2.2	Optimierung der Geometrie	47
4.2.3	Untergrund	49
4.2.4	Auswertung der Compton-Rückstreu-Messungen	50
4.3	Ergebnisse	54
4.3.1	Lichtausbeute der Lösungsmittel	54
4.3.2	Bestimmung der Parameter des Lichtausbeutemodells	55
4.3.3	Zusammenfassung der Parameter	62
4.4	Anpassen der Lichtausbeute in Target und Gamma Catcher	62
4.4.1	Optimierung der Target-Zusammensetzung	62
4.4.2	Angleichen der Lichtausbeute und Dichte in Target und Gamma Catcher	64
4.4.3	Feinabstimmung der Lichtausbeute von Target und Gamma-Catcher	65
5	Messung des Zeitprofils	67
5.1	Einleitung	67
5.2	Experimenteller Aufbau	67
5.2.1	Messprinzip	67
5.2.2	Untergrund, instrumentelle Fehler und Auflösung	71
5.2.3	Elektronik	72
5.3	Auswertung	73
5.3.1	Softwareanalyse der Pulse	73
5.3.2	Auswertung der experimentellen Wahrscheinlichkeitsverteilungen	77
5.4	Vorhersage der Zeitkonstanten der Szintillation	78
5.5	Experimentelle Ergebnisse und Diskussion	80
6	Emission und Absorption der Szintillatorkomponenten	86
6.1	Einleitung	86
6.2	Experimentelle Methoden	86
6.2.1	Absorptionsmessungen	86
6.2.2	Fluoreszenzmessungen	89
6.3	Ergebnisse und Diskussion	89

7 Zusammenfassung	95
Abbildungsverzeichnis	97
Tabellenverzeichnis	99
Literaturverzeichnis	100

1 Neutrinos

1.1 Entdeckung der Neutrinos

Um das Energiespektrum der Elektronen beim β -Zerfall zu erklären, führte W. Pauli 1930 das Neutrino ein [Pau61]. Bei einem Zweikörperzerfall erhält jedes Teilchen eine feste Energie, es wurde aber ein kontinuierliches Elektronenspektrum gemessen. Als Ausweg, in dem Energie-, Impuls- und Drehimpulserhaltung nicht verletzt sind, postulierte Pauli ein neues Teilchen, welches später den Namen Neutrino erhielt.

Aufgrund seines kleinen Wirkungsquerschnitts wurde das Neutrino erst 26 Jahre später (1956) nachgewiesen [Rei56]. Reines und Cowan benutzten dabei den inversen β -Zerfall als Nachweisreaktion (1.1); die Neutrinoquelle war ein Kern-Reaktor

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow n + e^+. \quad (1.1)$$

Einige Jahre später wurde eine zweite Sorte von Neutrinos entdeckt, von der man zeigen konnte, dass sie sich von den Elektronenneutrinos unterscheidet. Mithilfe hochenergetischer Protonen erzeugten Danby et al. einen intensiven Strahl von Myonneutrinos (ν_μ und $\bar{\nu}_\mu$) [Dan62]. In der nachfolgenden Reaktion entstanden ausschließlich Myonen und keine Elektronen. Damit war gezeigt, dass ν_μ und ν_e nicht identisch sind. Man weiß bereits seit 1990, dass es zusätzlich zu ν_e und ν_μ eine dritte Sorte Neutrinos geben muss. Durch eine präzise Messung der Zerfallsbreite der Z^0 -Resonanz am CERN 1990 konnte man die Zahl der leichten Neutrinoarten auf 3 festlegen [ALE90]. Auf ähnliche Art und Weise wie bei den Myonneutrinos gelang der direkte Nachweis des Tauneutrinos ν_τ 2000 mit dem DONUT-Experiment [DON00]. Der Grund für die späte Entdeckung des Tauneutrinos liegt in der kurzen Zerfallszeit des Tau-Leptons; es kann nur indirekt über die Zerfallsprodukte nachgewiesen werden.

Neutrinos werden zusammen mit anderen Elementarteilchen im Standardmodell der Teilchenphysik eingeordnet. Sie wechselwirken nur schwach und gravitativ. Die drei Eigenzustände der Schwachen Wechselwirkung ν_e , ν_μ und ν_τ bezeichnet man als Flavour-Zustände. Das Elektronenneutrino ν_e bildet mit dem Elektron zusammen eine Leptongeneration. Analog dazu wird ν_μ dem Myon und ν_τ dem Tau-Lepton zugeordnet. Für jede Generation definiert man eine Leptonzahl L_α ($\alpha = e, \mu, \tau$), wobei den negativ geladenen Leptonen und den Neutrinos $L_\alpha = 1$ zugeordnet wird und den positiv geladenen Leptonen und den Antineutrinos $L_\alpha = -1$.

1.2 Neutrinooszillationen

1.2.1 Vakuumoszillationen

1958 hatte Pontecorvo erstmals die Idee, dass Neutrinos und Antineutrinos sich analog zu den neutralen Kaonen ineinander umwandeln können [Pon58]. Die Weiterentwicklung dieser Idee führte zum Formalismus der Flavour-Oszillationen. Bei diesen Prozessen sind die generationsweise definierten Leptonzahlen nicht erhalten. Neutrinooszillationen setzen voraus, dass nicht alle drei Neutrinos masselos sind. Im Modell der Neutrinooszillationen sind die Flavour-Eigenzustände ν_α keine Masseneigenzustände ν_i , sondern eine lineare Überlagerung aus diesen [Gri69]

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_{i=1}^3 U_{\alpha i} |\nu_i\rangle \quad \alpha = e, \mu, \tau \quad i = 1, 2, 3. \quad (1.2)$$

Im Standardmodell der Neutrinooszillationen macht man die folgenden Annahmen:

1. Die Neutrinos sind ultrarelativistisch: $m_\nu \ll E_\nu$
2. Alle ν_i haben denselben Impuls $p_i = p$

Die Masseneigenzustände propagieren zeitlich unterschiedlich, setzt man diese Zeitentwicklung ein, dann erhält man

$$|\nu_\alpha(t)\rangle = \sum_{i=1}^3 U_{\alpha i} e^{-iE_i t} |\nu_i\rangle. \quad (1.3)$$

Jetzt kann man die Projektion eines Flavour-Eigenzustands auf den Zustand $|\nu_\alpha(t)\rangle$ betrachten und erhält die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Flavourzustand α nach einer gewissen Zeit in den Flavourzustand β oszilliert

$$P_{\alpha \rightarrow \beta}(t) = |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(t) \rangle|^2 = \left| \sum_{i=1}^3 U_{\alpha i} U_{\beta i}^* e^{-iE_i t} \right|^2. \quad (1.4)$$

Aus den Annahmen 1 und 2 kann man ableiten, dass

$$E_k = \sqrt{p_k^2 + m_k^2} = \sqrt{p^2 + m_k^2} \approx p + \frac{m_k^2}{2p} \approx E + \frac{m_k^2}{2E}, \quad (1.5)$$

$$P_{\alpha \rightarrow \beta}(L) = \sum_{i=1, j=1}^3 U_{\alpha i} U_{\beta i}^* U_{\alpha j}^* U_{\beta j} e^{-i \frac{m_i^2 - m_j^2}{2E} L}. \quad (1.6)$$

Für die Mischungsmatrix U kann man eine Parametrisierung wählen, bei der 3 Mischungswinkel θ_{ij} , eine CP-verletzende Dirac-Phase δ und zwei Majorana-Phasen ϕ_1 und ϕ_2 verwendet werden. Als Abkürzungen benutzt man $s_{ab} = \sin(\theta_{ab})$ und $c_{ab} = \cos(\theta_{ab})$.

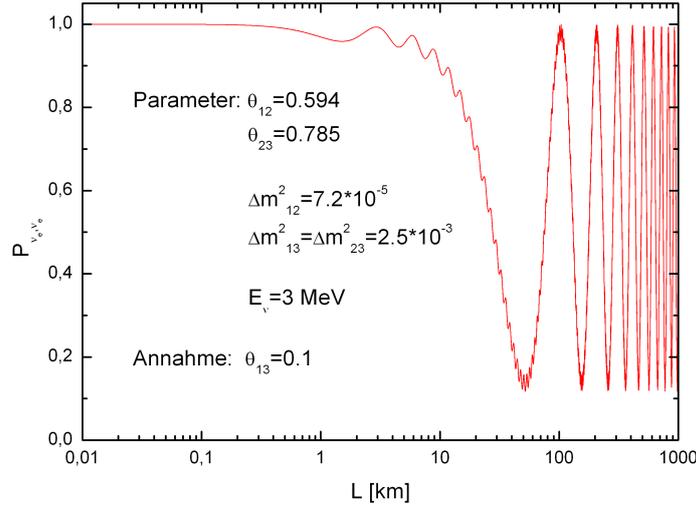


Abbildung 1.1: Oszillationswahrscheinlichkeit für Reaktor-neutrinos in Vakuum bei einer Neutrinoenergie von 3 MeV. Für die bekannten Oszillationsparameter wurden die aktuell besten Werte eingesetzt. Für den unbekanntem Mischungswinkel θ_{13} wurde der Wert 0.1 gewählt.

Die Mischungsmatrix für diese Parametrisierung heisst Pontecorvo-Maki-Nakagawa-Sakata (PMNS)-Matrix

$$\begin{aligned}
 U &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\theta_{23}) & \sin(\theta_{23}) \\ 0 & -\sin(\theta_{23}) & \cos(\theta_{23}) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos(\theta_{13}) & 0 & \sin(\theta_{13})e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin(\theta_{13})e^{i\delta} & 0 & \cos(\theta_{13}) \end{pmatrix} \\
 &\begin{pmatrix} \cos(\theta_{12}) & \sin(\theta_{12}) & 0 \\ -\sin(\theta_{12}) & \cos(\theta_{12}) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} e^{i\phi_1} & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\phi_2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\
 &= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13}e^{i\phi_1} & s_{12}c_{13}e^{i\phi_2} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -(s_{12}c_{23} + c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta})e^{i\phi_1} & (c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta})e^{i\phi_2} & s_{23}c_{13} \\ (s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta})e^{i\phi_1} & -(c_{12}s_{23} + s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta})e^{i\phi_2} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix}.
 \end{aligned} \tag{1.7}$$

Setzt man diese Matrix U in die Formel für die Oszillationswahrscheinlichkeit ein, dann erhält man die Oszillationswahrscheinlichkeiten für drei Generationen. Abhängig von der Energie der Neutrinos und von dem Abstand des Detektors zur Quelle dominieren verschiedene Terme. So kann man in der Praxis einzelne Parameter nahezu getrennt voneinander bestimmen, je nachdem, in welchem L/E -Bereich man sich befindet und welche Neutrinos in der Quelle produziert werden. Beispielsweise stellte sich heraus, dass das Defizit in ν_μ bei atmosphärischen Neutrinos fast ausschließlich auf Oszillationen der ν_μ in ν_τ und nicht in ν_e zurückzuführen ist [SK98]. Ein weiteres Beispiel ist die

Überlebenswahrscheinlichkeit für Reaktorneutrinos (siehe Abb. 1.1) ($\Delta m_{12}^2 = m_1^2 - m_2^2$)

$$\begin{aligned}
 P_{\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_e} = & 1 - 4c_{12}^2 c_{13}^2 s_{12}^2 c_{13}^2 \cdot \sin^2\left(\frac{\Delta m_{12}^2 L}{4E}\right) \\
 & - 4c_{12}^2 c_{13}^2 s_{13}^2 \cdot \sin^2\left(\frac{\Delta m_{13}^2 L}{4E}\right) \\
 & - 4s_{12}^2 c_{13}^2 s_{13}^2 \cdot \sin^2\left(\frac{\Delta m_{23}^2 L}{4E}\right).
 \end{aligned} \tag{1.8}$$

Da die Differenz der Massenquadrate Δm_{12}^2 viel kleiner ist als $\Delta m_{13}^2 \approx \Delta m_{23}^2$ kann man für typische Abstände von wenigen Kilometern bei Reaktorneutrinos den ersten Term vernachlässigen. Der zweite und der dritte Term können zusammengefasst werden. Insgesamt erhält man für kleine L/E die vereinfachte Formel

$$P_{\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_e} = 1 - \sin^2(2\theta_{13}) \cdot \sin^2\left(\frac{\Delta m_{23}^2 L}{4E}\right). \tag{1.9}$$

1.2.2 Oszillationen in Materie

Wolfenstein untersuchte 1978 erstmals Neutrinooszillationen in Materie [Wol78]. Er entdeckte, dass die kohärente Vorwärtsstreuung eine signifikante Korrektur für die Oszillationswahrscheinlichkeiten ergibt. 1985 fanden Mikheyev und Smirnov einen Resonanzeffekt in der Oszillationswahrscheinlichkeit in Materie [Mik89].

Praktisch relevant wird dieser Effekt für Neutrinos, die Gebiete mit variabler Dichte durchdringen, weil dann die Resonanzbedingung an einer Stelle mit geeigneter Dichte erfüllt werden kann. Verantwortlich für die Modifikation der Wahrscheinlichkeiten ist die Tatsache, dass in Materie keine Myonen und Tauonen vorkommen. Dadurch wechselwirken die Elektronneutrinos anders als Myonneutrinos und Tauneutrinos (zusätzliche Beiträge durch den geladenen Strom CC). Dieser zusätzliche Term geht in den Hamiltonoperator ein.

Damit ändern sich auch die Masseneigenzustände in Materie und die effektiven Mischungswinkel, welche jetzt abhängig von der Materiedichte (Elektronendichte) eine Resonanz zeigen. Die Breite der Resonanz hängt von der Größe des Vakuummischungswinkels ab, aber auch für kleinere Vakuummischungswinkel ist der Mischungswinkel in Materie in der Resonanz maximal.

1.3 Experimente

1.3.1 Neutrinoquellen

Neutrinos entstehen bei verschiedenen Prozessen. Es gibt sowohl künstliche als auch natürliche Neutrinoquellen, die wichtigsten sind in Tabelle 1.1 zusammengefasst. Die Energien der Neutrinos erstrecken sich über einen sehr großen Bereich.

Um die Neutrinos mit ihren verschiedenen Energien zu messen, verwendet man unterschiedliche Methoden. Neutrinos aus der Sonne, der Atmosphäre, von Supernovae, aus

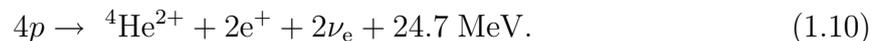
Neutrinoquelle	typische Energie
Sonne	≤ 20 MeV
Atmosphäre	100 MeV bis multi-GeV
Supernovae	10-100 MeV
Urknall	$5 \cdot 10^{-4}$ eV (heute)
Kosmische Strahlung	$\leq 10^{21}$ eV
Erde	einige MeV
Beschleuniger	GeV
Reaktoren	< 10 MeV

Tabelle 1.1: Neutrinoquellen.

der Erde und von Reaktoren werden in großen unterirdischen Tanks detektiert. Kosmische Neutrinos misst man über Cerenkov Strahlung mit ausgedehnten Arrays von Photomultipliern in Eis bzw. Wasser und Neutrinos aus Beschleunigern werden in dichten Materieschichten in geladene Leptonen konvertiert, welche dann in einem Teilchenspektrometer detektiert werden.

1.3.2 Sonnenneutrinos

Die Sonne produziert in ihrem Inneren Energie durch Kernfusion von Wasserstoff zu Helium. Dabei gibt es zwei verschiedene Reaktionsmechanismen: die pp-Kette und den CNO-Zyklus. In Sternen, die mehr Masse besitzen als die Sonne, dominiert der CNO-Zyklus, in leichten Sternen die pp-Kette. Bei unserer Sonne ist das Verhältnis von pp-Kette zu CNO-Zyklus etwa 98 % : 2 %. In der pp-Kette gibt es verschiedene Unterzweige mit unterschiedlichen Reaktionen, aber jeder Fusionsprozess hat dieselbe Bilanzreaktion



Allerdings unterscheiden sich die Neutrinoenergien bei den unterschiedlichen Reaktionszweigen. Das Standard-Sonnenmodell (SSM), entwickelt von John Bahcall [Bah05], sagt das Energiespektrum der Neutrinos voraus (siehe Abb. 1.2).

Das erste Experiment zu Neutrinos aus der Sonne, das Homestake-Chlor-Experiment [Dav68], hatte die Zielsetzung, das SSM zu überprüfen. Die Neutrinoreaktion fand in einem mit 600 Tonnen C_2Cl_4 (Perchloräthylen) gefüllten Tank statt:



${}^{37}\text{Ar}$ ist radioaktiv, nach einer Extraktion der Ar-Atome ist es deshalb möglich, über eine Messung der Zahl der Ar-Zerfälle auf den Neutrinofluss aus der Sonne zurückzuschließen. Da nur eine kleine Zahl an Reaktionen auftritt (≈ 10 produzierte Atome pro Monat) muss die Extraktion sehr effektiv und zuverlässig sein. Außerdem muss der Untergrund bei der Messung der ${}^{37}\text{Ar}$ -Aktivität stark unterdrückt sein. Zusätzlich muss man darauf achten, dass ${}^{37}\text{Ar}$ nicht durch andere Quellen (z.B. kosmische Myonen) produziert wird.

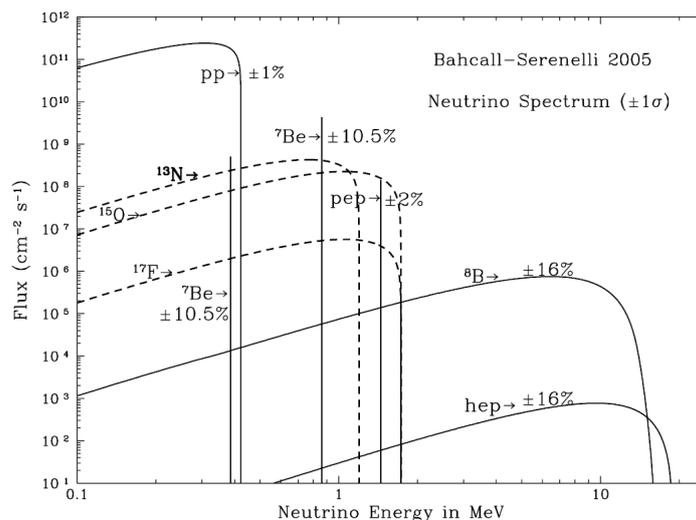


Abbildung 1.2: Spektrum der Sonnenneutrinos [Bah05].

Deshalb fand das Experiment in einer Mine statt.

Der gemessene Neutrinofluss betrug nur etwa ein Drittel des vom SSM vorhergesagten Flusses. Dieses Defizit bezeichnete man als das **Solare Neutrinoproblem**.

Mit der Reaktion (1.11) wird ein Großteil der Neutrinos aus der Sonne nicht detektiert, weil die Reaktionsschwelle zu hoch liegt. Die Experimente GALLEX/GNO [GAL05] und SAGE [SAG99] konnten dagegen erstmals diesen dominierenden Anteil an Neutrinos, der aus der Startreaktion der pp-Kette kommt (siehe Abb. 1.2), messen, indem sie Gallium anstatt Chlor verwendeten (Reaktionsschwelle 233 keV)



Als Ergebnis erhielt man auch hier, verglichen mit den Vorhersagen des SSMs, einen kleineren Wert für den Neutrinofluss.

Man kann solare Neutrinos auch in Wasser-Čerenkov-Detektoren nachweisen. Die Energieschwelle muss höher gewählt werden als die Reaktionsschwelle bei den radiochemischen Experimenten, da der Untergrund eine Messung bei Energien kleiner als etwa 5 MeV nicht erlaubt. Der Vorteil dieser Methode besteht darin, dass Neutrinoereignisse in Echtzeit beobachtet werden können und dass man eine Richtungsinformation über das einfallende Neutrino erhält. Die Neutrinos streuen an den Elektronen des Wassers. Die gestreuten Elektronen können sich schneller als Licht im Medium bewegen und damit Čerenkov-Strahlung aussenden. Diese Strahlung wird mithilfe von Photomultipliern detektiert. Super-Kamiokande [SK02] konnte mit dieser komplementären Methode das Defizit an solaren Neutrinos bestätigen.

Das Experiment SNO (Sudbury Neutrino Observatory) [SNO06] funktioniert ähnlich wie Super-Kamiokande, es wird aber anstelle von Wasser schweres Wasser (D_2O) verwendet. Damit hat man die Möglichkeit, zusätzlich zur elastischen Streuung des Neutrinos (wie

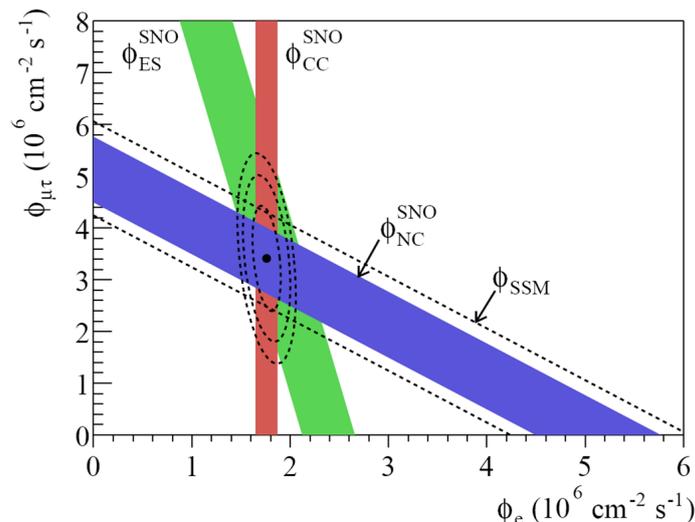


Abbildung 1.3: Einzelflüsse bei SNO [SNO06]: Die drei verschiedenen Nachweisreaktionen ergeben mögliche Regionen für die drei Flüsse Φ_{CC} , Φ_{NC} und Φ_{ES} . Aus diesen Flüssen kann man die Flüsse für Myon- plus Tau-Neutrinos $\Phi_{\mu\tau}$ und für Elektron-Neutrinos Φ_e bestimmen. Man sieht, dass die Ergebnisse für eine bestimmte Kombination von $\Phi_{\mu\tau}$ und Φ_e konsistent sind.

bei Super-Kamiokande) zwei weitere Prozesse zu beobachten:

$$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^- \quad \text{Elastic Scattering (ES)} \quad (1.13)$$

$$\nu_e + d \rightarrow p + p + e^- \quad \text{Charged Current (CC)} \quad (1.14)$$

$$\nu_x + d \rightarrow p + n + \nu_x \quad \text{Neutral Current (NC)}. \quad (1.15)$$

Die CC Reaktion ist ausschließlich sensitiv auf Elektron-Neutrinos, die ES Reaktion misst hauptsächlich Elektron-Neutrinos und die NC Reaktion ist gleichermaßen sensitiv auf alle drei Neutrino-Flavour. Damit ist man in der Lage, unabhängig vom Modell der Sonne zu untersuchen, ob die Neutrinos auf ihrem Weg von der Sonne zur Erde ihren Flavour ändern. Als Ergebnis erhielt SNO einen Fluss von Elektron-Neutrinos, der etwa ein Drittel des Gesamtflusses betrug (siehe Abb. 1.3). Dieses Ergebnis lässt sich sehr gut durch Neutrinooszillationen inklusive MSW-Effekt erklären. Die Neutrinos durchqueren auf ihrem Weg durch die Sonne Regionen abnehmender Dichte, so dass die Resonanzbedingung für den MSW-Effekt durchlaufen wird. Zusammen ergeben alle Experimente zu den solaren Neutrinos konsistente Parameter für die Neutrinooszillation. Damit war das Solare Neutrino-Problem gelöst.

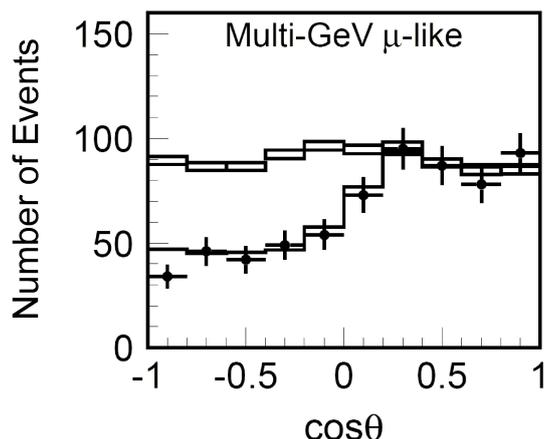


Abbildung 1.4: Defizit bei atmosphärischen ν_μ in Super-Kamiokande [SK05]: Die Punkte mit den Fehlerbalken zeigen die Daten. Die Kästchen geben Werte aus Monte Carlo Simulationen mit statistischen Fehlern an unter der Annahme, dass keine Oszillationen stattfinden. Die durchgezogene Linie steht für den Fit an die experimentellen Daten.

1.3.3 Atmosphärische Neutrinos

Bei Reaktionen der kosmischen Strahlung mit der Atmosphäre entstehen unter anderem Pionen. Die geladenen Pionen können über die Schwache Wechselwirkung in Myonen und Myonneutrinos zerfallen. Die Myonen zerfallen ihrerseits relativ schnell in Elektronen und Elektronneutrinos:

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu \quad \pi^- \rightarrow \mu^- + \bar{\nu}_\mu \quad (1.16)$$

$$\mu^+ \rightarrow e^+ + \bar{\nu}_\mu + \nu_e \quad \mu^- \rightarrow e^- + \nu_\mu + \bar{\nu}_e. \quad (1.17)$$

Ziel der Experimente ist es, diese Neutrinos (ν_μ , $\bar{\nu}_\mu$, ν_e und $\bar{\nu}_e$) zu detektieren. Man erwartet nach Gleichung (1.16) und (1.17) ein Verhältnis (ν_μ , $\bar{\nu}_\mu$) zu (ν_e , $\bar{\nu}_e$) von 2:1. Trifft ein Neutrino aus der Atmosphäre auf einen Atomkern N , dann kann dabei über einen geladenen Strom ein Myon bzw. ein Elektron entstehen. Entsprechende Reaktionen sind auch für die Antineutrinos möglich:

$$\nu_\mu + N \rightarrow \mu^- + N' \quad \bar{\nu}_e + N \rightarrow e^- + N'. \quad (1.18)$$

Ein wichtiges Experiment im Bereich der atmosphärischen Neutrinos ist Super-Kamiokande [SK05]. Ein Tank gefüllt mit reinem Wasser in einem Untergrundlabor dient als Detektor. Die geladenen Leptonen aus den Reaktionen in 1.18 emittieren im Wasser Čerenkov-Strahlung, die mit PMTs detektiert wird. Man kann die Richtung, die Energie und den Flavour (über die Schärfe des Čerenkov-Kegels) des einfallenden Neutrinos bestimmen. Tatsächlich konnte man bei den Neutrinos, die von „oben“ kommen (≈ 15 km Distanz) das Verhältnis von 2:1 messen. Das Ergebnis für die Neutrinos, die durch

die Erde hindurch bis in den Detektor gelangen (≈ 13.000 km Distanz), sah dagegen anders aus. Hier beobachtete man ein Defizit an Myonneutrinos (siehe Abb. 1.4). Dieses Defizit lässt sich mithilfe von Vakuum-Neutrinooszillationen in einem vereinfachten Zwei-Flavour-Modell erklären. Die Oszillation zwischen ν_μ und ν_τ ist im L/E -Bereich für atmosphärische Neutrinos dominant. Man spricht bei den relevanten Parametern der Oszillation auch vom atmosphärischen Mischungswinkel $\theta_{atm} = \theta_{23}$ und von der atmosphärischen Massendifferenz $\Delta m_{atm} = \Delta m_{23}$. Materieeffekte auf die Neutrinooszillation spielen hier keine Rolle.

1.3.4 Beschleuniger-Experimente

Die künstliche Produktion von Neutrinos an Beschleunigern läuft ähnlich ab wie die Produktion in der Atmosphäre. Hochenergetische Protonen (≈ 100 GeV) werden auf ein Target geschossen. Dort entstehen hauptsächlich Kaonen und Pionen, die wie in den Gleichungen (1.16) und (1.17) zerfallen. Man kann den intensiven Protonenstrahl sehr gut bündeln; so erhält man einen starken, gerichteten ν_μ -Strahl.

Sogenannte *short baseline* Experimente wie z.B. MiniBooNE [Min07] detektieren Myonneutrinos bei einem kurzen Abstand zur Quelle (einige hundert Meter). Rechnungen, die vorhersagen, wie viele Myonneutrinos man ohne Neutrinooszillationen detektieren sollte, wurden bestätigt. Man sucht nach einem Überschuss an Elektronneutrinos durch Oszillationen; das Ergebnis ist bislang negativ.

Die Beschleuniger-Neutrino-Experimente K2K [K2K06] und MINOS [MIN06] haben größere Abstände von der Quelle zum Detektor (*long baseline*). Sie konnten ähnliche Effekte beobachten wie die Experimente über atmosphärische Neutrinos. Es wurden weniger Myonneutrinos gemessen als man rein geometrisch erwartete. Abbildung 1.5 zeigt exemplarisch für das MINOS-Experiment das Energiespektrum der gemessenen ν_μ . Die Parameter für die Oszillation θ_{atm} und Δm_{atm} konnten mit dieser komplementären Methode bestätigt werden.

1.3.5 Reaktorneutrinos

Im Pionierexperiment von Reines und Cowan [Rei56] wurden Neutrinos zum ersten Mal experimentell nachgewiesen. Das Experiment fand am Savannah River Kernkraftwerk in South Carolina statt.

In Reaktoren entstehen bei der Spaltung neutronenreiche Kerne, die anschließend über β -Zerfall Antielektronneutrinos produzieren. Auch bei aktuellen Experimenten an Reaktoren benutzt man dieselbe Nachweisreaktion wie damals, den inversen β -Zerfall

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow n + e^+. \quad (1.19)$$

Dabei detektiert man beide Reaktionsprodukte, um den Untergrund aus anderen Quellen möglichst effektiv zu unterdrücken. Das Positron annihiliert zusammen mit einem Elektron; dabei entstehen Photonen. Um die Neutronen effektiv einzufangen, wurde ein Tank mit Flüssigszintillator eingesetzt, in dem Cadmium gelöst war. Bei der Abregung des Cd-Kerns wird ebenfalls Energie in Form von Photonen frei. Diese Photonen produzieren

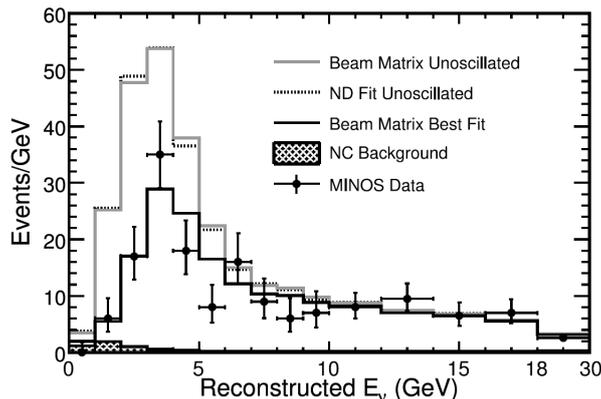


Abbildung 1.5: Energiespektrum bei MINOS [MIN06].

im Szintillator Licht im sichtbaren bzw. ultravioletten Bereich, das mit Photomultipliern gemessen werden kann (Details zum Energietransfer in Flüssigszintillatoren in Kapitel 3).

Mit einem 300 Liter großen Tank, gefüllt mit Flüssigszintillator, konnte in 11 m Entfernung vom Reaktorkern gemessen werden. Die gesamte Messzeit betrug etwa 900 Stunden bei hochgefahrenem Reaktor und 250 Stunden zur Messung des Untergrunds bei heruntergefahrenem Reaktor. Man erreichte ein Signal-zu-Untergrund-Verhältnis von $\approx 4:1$. Die zweite Generation von Experimenten an Reaktoren suchte bereits nach Neutrinooszillationen. Als typischer Vertreter dieser Experimente arbeitete das GÖSGEN Experiment [Gös85] mit drei Detektoren im Abstand von 37.9 m, 45.9 m und 64.7 m. Jeder Detektor bestand aus Flüssigszintillatorzellen mit angeschlossenen Photomultipliern und dazwischen angebrachten Helium-Drahtkammern. Im Flüssigszintillator wurde das e^+ nachgewiesen während in den Drahtkammern das Neutron mit einem ^3He -Kern Tritium und ein Proton erzeugte:



Das Proton wurde anschließend über ein Auslesen der Drähte in der Kammer nachgewiesen.

Zur Analyse der Oszillationsparameter betrachtete man die Energiespektren der Positronen in den drei verschiedenen Detektoren (siehe Abb. 1.6). Aus der Energie der Positronen kann man direkt auf die Energie der Neutrinos schließen, wenn man die Rückstoßenergie des Neutrons vernachlässigt: $E_{\nu_e} = E_{e^+} + m_{\text{Neutron}} - m_{\text{Proton}}$.

Das Ergebnis der Messungen ist verträglich mit dem Fall, dass keine Neutrinooszillationen stattfinden. Damit kann man nur eine obere Grenze für die Parameter θ_{13} und Δm_{23}^2 angeben. Andere Experimente dieser Generation konnten ebenfalls keine Hinweise auf Neutrinooszillationen liefern.

In den Neunzigerjahren wurden zwei weitere Experimente bei deutlich größeren Abständen (≈ 1 km) durchgeführt: Palo Verde [Pal01] in den USA und Chooz [Cho99]

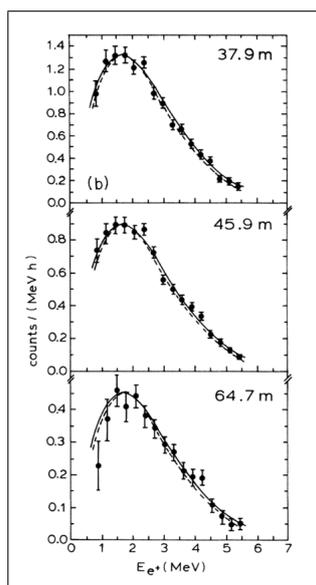


Abbildung 1.6: Positronenenergiespektrum im GOESGEN-Experiment: Die Linien zeigen die theoretischen Spektren ohne Oszillationen [Gös86].

in Frankreich. Mittlerweile weiß man, dass der Abstand von 1 km bei den typischen Energien von Reaktor-neutrinos nahezu optimal ist, um den dritten Mischungswinkel θ_{13} zu bestimmen (siehe Abb. 1.1). Die Amplitude der kleineren, überlagerten Oszillation beträgt $\sin^2(\theta_{13})$ (siehe Gleichung (1.9)). Bei 1 km Entfernung befindet man sich nahe am ersten Maximum dieser Oszillation.

Bei diesen vergleichsweise großen Distanzen wurde ein entsprechend vergrößerter Detektor benötigt. Chooz verwendete insgesamt 112 Tonnen Flüssigszintillator mit einem sensitiven Volumen von 5 Tonnen. Die Detektion der beiden Reaktionsprodukte n und e^+ geschieht hier kombiniert in einem Gd-beladenen Szintillator. Der Vorteil eines Gd-beladenen Szintillators besteht in dem großen Wirkungsquerschnitt für n -Einfang mit Gd und der hohen Energieabgabe bei Abregung des Gd-Kerns. Damit konnte der Untergrund der Messung mit einer ausgeprägten Neutrino-Signatur effektiv unterdrückt werden. Zusätzlich braucht man eine Abschirmung gegen kosmische Myonen, weshalb das Experiment unterirdisch stattfand (bei 300 m w.e.).

In Chooz werden zwei Reaktorkerne betrieben. Der Detektor hat leicht unterschiedliche Abstände zu den einzelnen Reaktoren. Deshalb ist es sehr wichtig, dass man die Zusammensetzung der Elemente in den einzelnen Reaktoren kennt, da die Neutrinospektren von Element zu Element verschieden sind. Man kann das theoretische Neutrinospektrum mithilfe von experimentell gewonnenen Daten über die Elektronenspektren berechnen. Dieses Spektrum möchte man mit dem gemessenen Spektrum vergleichen, um nach Abweichungen in der Form des Spektrums und der absoluten Anzahl der Neutrinos zu suchen. Das Experiment lieferte die stärkste Grenze für den Mischungswinkel θ_{13} , die momentan verfügbar ist [Cho99]. Es wurde aber kein Hinweis auf Neutrinooszillatio-

Parameter	bester Wert
$\Delta m_{sol}^2 = \Delta m_{12}^2$	$7.9 \cdot 10^{-5} eV^2$ [Kam05]
$\Delta m_{atm}^2 = \Delta m_{23}^2 $	$2.7 \cdot 10^{-3} eV^2$ [MIN06]
$\sin^2(2\theta_{sol}) = \sin^2(2\theta_{12})$	0.82 [Kam05]
$\sin^2(2\theta_{atm}) = \sin^2(2\theta_{23})$	1 [MIN06]
$\sin^2(2\theta_{13})$	≤ 0.20 (95% CL) [Cho99]

Tabelle 1.2: Parameter der Neutrinooszillationen.

nen beobachtet. Das Verhältnis zwischen der gemessenen Anzahl an Ereignissen und der erwarteten Anzahl ohne Oszillationen beträgt $R = 1.01 \pm 2.8\%$ (stat.) $\pm 2.7\%$ (syst.) [Cho99].

KamLand [Kam05] ist ein Neutrinoexperiment, das bei noch größeren Entfernungen zu den Reaktoren Neutrinooszillationen festgestellt hat. Der Detektor ist um einiges größer als bei Chooz (insgesamt 1000 Tonnen Flüssigszintillator, davon 300 Tonnen sensitives Volumen), um eine akzeptable Rate zu erzielen. Der Flüssigszintillator von KamLand enthält kein Gadolinium. Um den Untergrund zu unterdrücken, ist das Labor tiefer gelegen (1000 m). Man misst Neutrinos aus insgesamt 16 japanischen Kernreaktoren mit unterschiedlichen Abständen von 81 bis 824 km Entfernung. In diesem Bereich von L/E ist man primär auf $\theta_{12} = \theta_{sol}$ und $\Delta m_{12}^2 = \Delta m_{sol}^2$ sensitiv und nicht mehr auf θ_{13} (siehe Abb. 1.1 und Gleichung (1.8)). Mit KamLand konnten die Parameter, die mit solaren Neutrinos gemessen wurden, mit Elektron-Antineutrinos bestätigt werden.

1.3.6 Aktuelle Ergebnisse

Alle Neutrinoexperimente zusammen ergeben die aktuellen Werte der Neutrinooszillationsparameter (siehe Tabelle 1.2). Diese Werte sind das Resultat einer Kombination aus den Daten der jeweils relevanten Experimente, die zum Teil oben vorgestellt wurden.

1.4 Offene Fragen

Obwohl durch die Entdeckung der Neutrinooszillationen gezeigt ist, dass nicht alle Neutrinos masselos sein können, kennt man die absolute Massenskala der Neutrinos noch nicht. Das Experiment KATRIN [KAT06] plant, direkt die Masse des Antielektronneutrinos über den Endpunkt des β -Spektrums von Tritium zu messen.

Nach der Entdeckung des Neutrinos tauchte die Frage auf, ob das elektrisch neutrale Teilchen sein eigenes Antiteilchen ist (Majorana-Teilchen). Einem massebehafteten Neutrino kann man keine feste Helizität zuordnen. Damit kann man prinzipiell messen, ob das Neutrino ein Majorana-Teilchen ist. Je kleiner jedoch m_ν ist, desto schwieriger wird der experimentelle Nachweis. Der neutrinolose doppelte β -Zerfall ($\beta\beta 0\nu$) ist ein Prozess, der nur stattfinden kann, wenn das Neutrino ein Majorana-Teilchen ist und eine endliche Masse besitzt. Damit ist man ebenfalls sensitiv auf eine effektive absolute Masse

$m_\nu = \sum_{i=1}^3 U_{ei}^2 m_i$ der Neutrinos. Zur Überprüfung des Heidelberg-Moskau-Experiments [Hei01] [Kla01] wird derzeit das GERmanium Detector Array (GERDA) [GER06] aufgebaut.

Aus den Experimenten zu den solaren Neutrinos unter Berücksichtigung des MSW-Effekts weiß man, dass Δm_{21}^2 positiv ist, das heißt m_{ν_2} ist größer als m_{ν_1} . Diese Unterscheidung ist bei Vakuumoszillationen nicht möglich, weshalb das Vorzeichen von Δm_{31}^2 bislang unbekannt ist. Bei positivem Vorzeichen spricht man von normaler Massenhierarchie, ansonsten von invertierter Massenhierarchie. Sogenannte Neutrino Factories könnten in Zukunft bei sehr langen Abständen von der Quelle zum Detektor (≤ 1000 km, 40 kTonnen) diese Frage beantworten. Außerdem könnte man mit einer Neutrino Factory die CP-verletzende Phase δ_{CP} testen.

Durch die erfolgreichen Oszillationsexperimente der letzten Jahrzehnte konnte die PMNS-Matrix beinahe komplett bestimmt werden:

$$|U_{PMNS}| \approx \begin{pmatrix} 0.84 & 0.54 & |U_{e3}| \\ 0.38 & 0.60 & 0.71 \\ 0.38 & 0.60 & 0.71 \end{pmatrix}. \quad (1.21)$$

Der fehlende Eintrag U_{e3} ist noch nicht bekannt, die beste obere Grenze für den Betrag $|U_{e3}| = \sin(\theta_{13})$ stammt aus dem Chooz-Experiment. θ_{13} ist interessant für das theoretische Verständnis der Flavour-Physik (z.B. Verknüpfung der Mischungswinkel mit dem Cabibbo-Winkel im Quark-Sektor [Rai04]). Die Stärke von CP-verletzenden Oszillationen ist direkt mit der Größe von θ_{13} verknüpft. Auch auf die effektive Masse in $\beta\beta 0\nu$ -Experimenten hat θ_{13} einen Effekt. Um neue Experimente zur CP-Verletzung im Leptonsektor zu planen ist eine reine Messung von θ_{13} wichtig. Aus Gleichung (1.8) folgt, dass eine Disappearance-Messung der Oszillationswahrscheinlichkeit von Antielektron-neutrinos eine 'saubere' Bestimmung ohne Materieffekte von θ_{13} ermöglicht.

Das Reaktor-neutrinoexperiment **Double Chooz** wird mit deutlich verbesserter Sensitivität auf die Suche nach diesem fundamentalen Parameter gehen.

2 Double Chooz

2.1 Design des Experiments

2.1.1 Neutrinoquelle

Die Neutrinoquelle von Double Chooz ist ein Nuklearreaktor mit zwei Reaktorkernen, der in Frankreich in den Ardennen nahe der belgischen Grenze seit 1997 von *Electricité de France* (EdF) betrieben wird und bereits als Quelle für das Vorgängerexperiment Chooz diente. In den Spaltungsprozessen entstehen neutronenreiche Isotope, die anschließend zerfallen. Dabei werden im Mittel ungefähr sechs Antilektronenneutrinos pro Spaltung frei [Schm97]; davon haben etwa zwei eine größere Energie als die Reaktionsschwelle (1.8 MeV). Der nukleare Brennstoff setzt sich hauptsächlich aus ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu zusammen, wobei sich die Verhältnisse der einzelnen Komponenten im Laufe der Zeit verändern. Beide Reaktorkerne haben je eine thermische Leistung von 4.27 GW_{th} [DC04] und eine elektrische Leistung von 1.5 GW_{el}, das entspricht einer Neutrinoproduktionsrate von insgesamt ca. $8 \cdot 10^{20}$ Neutrinos pro Sekunde.

2.1.2 Das Konzept von Double Chooz

Die zwei grundlegenden Methoden, mit denen die Genauigkeit der Messung, verglichen mit Chooz, verbessert werden soll, sind eine bessere Statistik und die Reduzierung des systematischen Fehlers. Durch ein größeres sensitives Volumen steigt die Anzahl der Ereignisse. Bei Chooz wurde ein sensitives Volumen von 5.6 m³ verwendet, bei Double Chooz werden es 10.3 m³ sein. Außerdem wurde die Zusammensetzung und damit die Stabilität des Gadolinium-Szintillators verbessert (siehe Kapitel 2.3), so dass die Messzeit verlängert werden kann. Bei Chooz wurde die Transparenz des Szintillators im Laufe des Experiments schlechter. Insgesamt erwartet man eine Verbesserung des statistischen Fehlers von 2.8 % auf 0.4 % [DC04].

Die deutliche Reduzierung des systematischen Fehlers (von 2.7 % auf ca. 0.6 % [DC04]) wird durch einen zweiten, möglichst identischen Detektor erreicht, der näher am Reaktor platziert wird (415 m Abstand). Dadurch ist man in der Lage, eine Relativmessung zwischen den zwei Detektoren durchzuführen. Die Unsicherheiten in Bezug auf den absoluten Fluss und das Spektrum der Neutrinos sind mit dieser Methode nicht mehr so entscheidend für die Bestimmung der Oszillationswahrscheinlichkeit. Durch neue Konzepte im Detektordesign (z.B. Einführung des Buffer-Volumens (siehe Kapitel 2.2)) wird der Untergrund im Vergleich zu Chooz effektiver unterdrückt.

Die zwei Detektoren von Double Chooz sind ausschließlich sensitiv auf die im Reaktor produzierten Antielektron-Neutrinos. Man spricht von einem *Disappearance*-Experiment,



Abbildung 2.1: Nuklearreaktor in Chooz und die beiden Detektoren des Experiments [DC06].

weil Oszillationen zu einem Verschwinden eines Teils der messbaren Neutrinos führen. Der nahe Detektor (ND) misst nahezu den vollen Fluss, da die Neutrinos bis dahin noch keine Zeit haben, zu oszillieren (siehe Abb. 1.1). Die entscheidende Messgröße ist die Differenz des gemessenen Flusses im fernen Detektor (FD) zu dem Fluss im ND, nachdem man die Raumwinkelabhängigkeit herausgerechnet hat. Diese Messgröße ist nach Gleichung (1.9) proportional zu $\sin^2(2\theta_{13})$. Das existierende Untergrundlabor des Vorgängerexperiments Chooz wird für den FD wiederverwendet; dadurch spart man im Vergleich zu anderen Experimenten Geld und Zeit. Der mittlere Abstand zu den Reaktorkernen beträgt 1.05 km und die Abschirmung gegenüber kosmischen Myonen ca. 300 m w.e. Für den nahen Detektor soll ein neues Labor gebaut werden, das nicht so tief gelegen sein muss (ca. 75 m w.e.), weil die Neutrino-Rate sehr viel größer ist als bei dem fernen Detektor.

2.1.3 Neutrinosignal

Die Nachweisreaktion des Experiments ist der inverse β -Zerfall



Für eine Produktion von Myonen oder Tauonen reicht die Energie der Neutrinos nicht aus (siehe Abb. 2.2). Deshalb ist man mit dieser Nachweisreaktion nur sensitiv auf

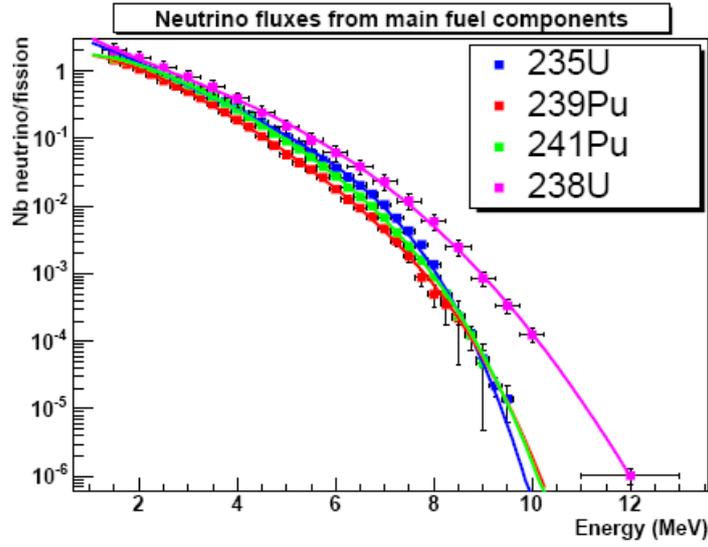


Abbildung 2.2: Neutrinospektrum des Nuklearreaktors. Man erhält diese Daten experimentell durch Laborversuche mit den entsprechenden Isotopen (^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu) oder mithilfe theoretischer Berechnungen (^{238}U) [DC04].

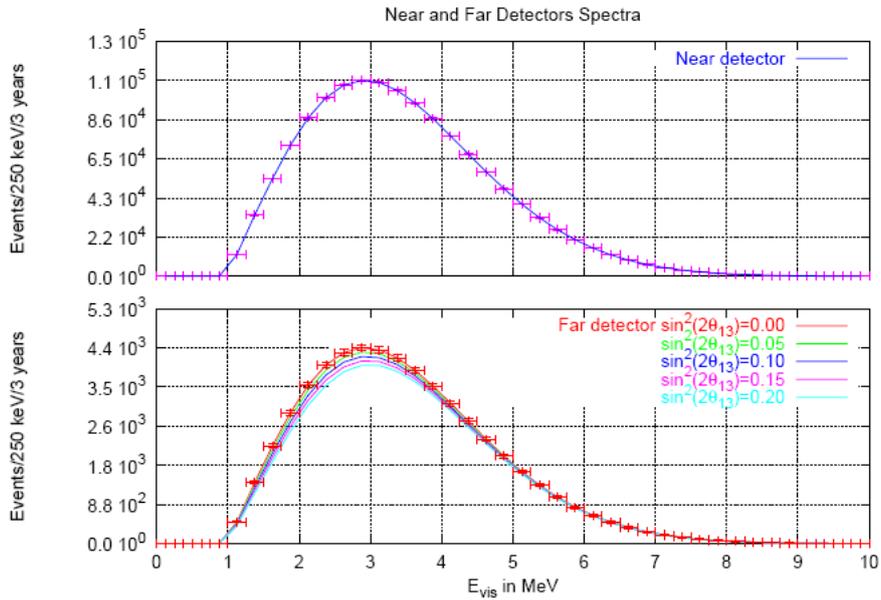


Abbildung 2.3: Simuliertes Spektrum der Neutrinoereignisse im fernen und nahen Detektor in Abhängigkeit von der sichtbaren Energie E_{vis} . Das Spektrum zeigt die Abnahme der Rate aufgrund von Neutrinooszillationen [DC04].

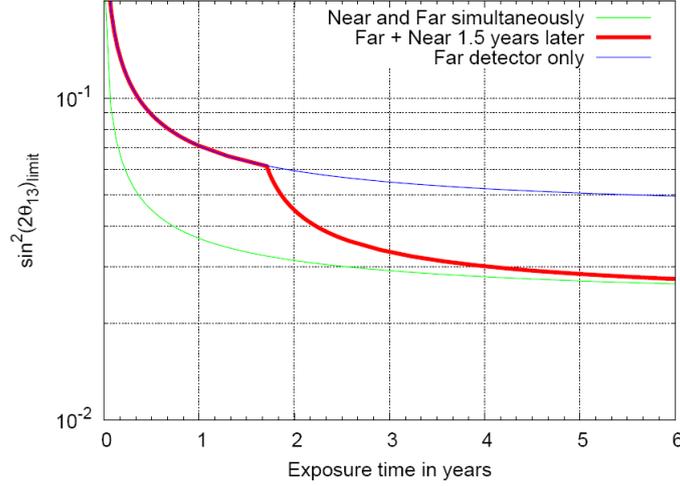


Abbildung 2.4: Zeitliche Entwicklung der Sensitivität auf $\sin^2(2\theta_{13})$ bei Double Chooz [DC06]. Annahmen: Systematische Fehler betragen 0.6 Prozent und der gesamte Untergrund 1 Prozent des Neutrino-Signals.

Antilektronenneutrinos. Die Neutrinoenergie lässt sich direkt in die Energie des Positrons E_{e^+} übersetzen, wenn man die Rückstoßenergie des Neutrons vernachlässigt

$$E_{\bar{\nu}_e} = \frac{1}{2} \cdot \frac{2m_P E_{e^+} + m_N^2 - m_P^2 - m_e^2}{m_P - E_{e^+} + \sqrt{E_{e^+}^2 - m_e^2} \cos(\theta_{e^+})} \approx E_{e^+} + m_N - m_P. \quad (2.2)$$

Daraus folgt direkt die Energieschwelle für den inversen β -Zerfall von $m_N - m_P + m_{e^+} = 1.8$ MeV. Man definiert die sichtbare Energie als die Summe der Positronenenergie und der Ruhemasse des Elektrons $E_{vis} = E_{e^+} + m_e \approx E_{\bar{\nu}_e} + m_P - m_N + m_e = E_{\bar{\nu}_e} - 0.78$ MeV. Oberhalb der Detektionsschwelle zeigt das Neutrinospektrum einen starken Abfall mit der Energie (siehe Abb. 2.2). Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion steigt allerdings mit der Energie der Neutrinos:

$$\sigma_{inv,\beta} \approx \frac{2\pi^2 \hbar^3}{m_e^5 f \tau_N} \sqrt{E_{e^+}^2 - m_e^2} \cdot E_{e^+}. \quad (2.3)$$

Das Produkt des Neutrinospektrums und des Wirkungsquerschnitts des inversen β -Zerfalls ergibt das erwartete Spektrum in Abhängigkeit von der sichtbaren Energie (siehe Abb. 2.3). Man sieht, dass die meisten Neutrinoereignisse bei einer sichtbaren Energie von ca. 3 MeV stattfinden werden.

Über verschiedene Eigenschaften des Detektors wie die Zahl der Protonen im sensitiven Volumen und die Detektoreffizienz kann man die Zahl der Neutrinoereignisse skalieren und erhält nach Integration über die sichtbare Energie ca. 53 Neutrino-Ereignisse pro Tag im fernen Detektor und mehrere Hundert Ereignisse pro Tag im nahen Detektor [DC06].

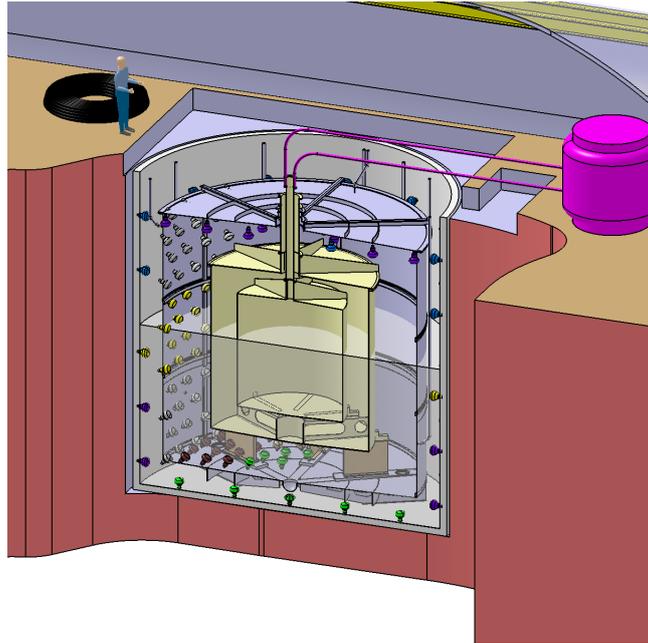


Abbildung 2.5: Double Chooz Detektor.

2.1.4 Sensitivität

Man definiert die Sensitivität des Experiments auf θ_{13} als den größten Wert von $\sin^2(2\theta_{13})$ innerhalb des Vertrauens-Intervalls (Confidence Limit CL) der Simulation, falls der wahre Wert $\theta_{13} = 0$ beträgt. Genaue Analysen der Sensitivität berücksichtigen die Wirkung des Untergrunds und systematische Fehler. Sie zeigen den deutlichen Vorteil des Prinzips zweier identischer Detektoren (siehe Abb. 2.4). Nach eineinhalb Jahren soll der zweite Detektor Daten nehmen. Man sieht, dass dadurch die Sensitivität deutlich verbessert werden kann. Das Limit von Chooz $\sin^2(2\theta_{13}) \leq 0.2$ (95% CL) [Cho99] wird schon mit einem Detektor nach ca. 2 Monaten erreicht werden. Die Sensitivität des Experiments nach fünf Jahren Datennahme liegt bei ungefähr $\sin^2(2\theta_{13}) = 0.03$ bei $\Delta m_{31}^2 = 2.5 \cdot 10^{-3} eV^2$.

2.2 Detektoreigenschaften

2.2.1 Aufbau des Detektors

Die zwei Detektoren von Double Chooz sind in vier voneinander getrennte, zylindrische Volumina aufgeteilt (siehe Abb. 2.5 und Tabelle 2.1).

Neutrino Target

Im sensitiven, innersten Volumen werden die Neutrinos mit einem Gd-beladenen, organischen Flüssigszintillator nachgewiesen, man spricht deshalb auch vom (Neutrino-)Target.

Detektorbestandteil	Durchmesser	Höhe	Volumen	Tankdicke	Material
ν Target	2.30 m	2.46 m	10.3 m ²	8 mm	Acryl
γ Catcher	3.39 m	3.55 m	22.6 m ²	12 mm	Acryl
Buffer	5.52 m	5.67 m	114.2 m ²	3 mm	Stahl
Inneres Veto	6.59 m	6.64 m	90 m ²	10 mm	Stahl
Abschirmung	6.61 m	6.7 m	-	170 mm	Stahl

Tabelle 2.1: Komponenten des Double Chooz-Detektors [DC06].

Beide Reaktionsprodukte werden detektiert, um ein klar definiertes Neutrinosignal zu erhalten. Das Positron verliert durch Anregungen der organischen Moleküle seine Bewegungsenergie innerhalb von wenigen hundert Pikosekunden. Anschließend annihiliert es zusammen mit einem Elektron und produziert so 2 Photonen mit der Energie 511 keV. Das Neutron verliert kinetische Energie durch Stöße an Kernen des Flüssigszintillators und wird dann mit hoher Wahrscheinlichkeit von einem Gd-Kern eingefangen. Die Zeitkonstante beträgt ca. 30 μ s für 0.1 % Gd. Anschließend regt sich der Kern in den Grundzustand ab und emittiert mehrere Photonen. Die Photonen aus der Annihilation des Positrons und aus dem Neutroneneinfang werden im Szintillator in zwei Lichtblitze im sichtbaren Bereich transformiert. Die Prozesse, die dabei eine Rolle spielen, werden in Kapitel 3 ausführlicher behandelt. Man erhält bei einem Neutrinoereignis also zwei aufeinanderfolgende Pulse, die in einem zeitlichen Abstand von ca 30 μ s zusammen auftreten. Ein Gd-beladener Szintillator hat zwei entscheidende Vorteile: Der Wirkungsquerschnitt des Neutroneneinfangs von Gadolinium ist ungefähr $1.5 \cdot 10^5$ mal höher als der des Wasserstoffs. Der entsprechende Wirkungsquerschnitt von Kohlenstoff-Atomen ist noch einmal zwei Größenordnungen kleiner und kann deshalb vernachlässigt werden. Die Zeit, in der das Neutron eingefangen wird beträgt bei einer Konzentration von 0.1 % Gd 30 μ s anstelle von 180 μ s für den Einfang an einem Wasserstoff-Kern im Gd-freien Szintillator. Damit kann man die Koinzidenzzeit Δt entsprechend verringern und den zufälligen Untergrund $R_{\text{Bgd}} = R_{\text{single}}^2 \cdot \Delta t$ linear verbessern. Der zweite Vorteil besteht darin, dass die frei werdende Energie beim Neutroneneinfang an Gadolinium ungefähr 8 MeV beträgt im Gegensatz zu 2.2 MeV bei Wasserstoff. Damit liegt man über dem Großteil des Untergrunds und kann einen effektiven Cut setzen.

Gamma Catcher

Das zweite Volumen des Detektors wird dazu verwendet, Photonen aus den oben aufgeführten Prozessen, welche das Target-Volumen verlassen, nachzuweisen. Auf diese Weise verhindert man, dass Energie aus dem sensitiven Volumen herausgetragen wird ohne detektiert zu werden. Deshalb nennt man diesen Teil des Detektors Gamma-Catcher; man verwendet auch hier einen Flüssigszintillator, allerdings ohne Gadolinium. Target und Gamma-Catcher befinden sich in zwei Acryltanks, die für sichtbares Licht ($\lambda \geq 400$ nm) transparent sind.

Buffer

Um den Untergrund der Messung weiter zu verbessern wurde im Vergleich zum Vorgängerexperiment ein drittes Volumen eingeführt, der sogenannte Buffer. Er dient zur Abschirmung des Targets und des Gamma-Catchers vor allem von der radioaktiven Verunreinigung der Photomultiplier, aber auch von Myon-induziertem Untergrund und Radioaktivität im umliegenden Gestein. Er besteht aus nichtszintillierendem organischem Material. Der Tank für den Buffer besteht aus Stahl und trennt damit die drei inneren Volumen optisch vom äußersten Volumen. Außerdem trägt der Buffer-Tank die 390 Photomultiplier-Tubes (PMTs), die das sichtbare Licht in ein elektrisches Signal umwandeln.

Inneres Veto

Das vierte Volumen wird zur aktiven Untergrundunterdrückung verwendet. In einem Stahltank ist eine szintillierende Flüssigkeit enthalten, die von 72 weiteren PMTs beobachtet wird. Dieser Teil des Detektors dient als Veto gegen Untergrund-Ereignisse, bei denen hier viel Energie deponiert wird. Es sollen vor allem kosmische Myonen detektiert werden, um Ereignisse im Target, die von diesen Myonen ausgelöst werden, zu verwerfen.

Äußeres Veto

Zusätzlich zum Inneren Veto wird über dem Detektor das Äußere Veto angebracht. Es soll verhindern, dass kosmische Myonen, die direkt von oben durch den "Kamin" des Detektors in das sensitive Volumen fliegen, unbeobachtet bleiben. Außerdem soll es Myonen detektieren, die knapp am Detektor vorbeifliegen. Diese Myonen können im umliegenden Gestein Neutronen auslösen, die dann möglicherweise in das Targetvolumen eindringen und ein Untergrundereignis auslösen.

Man verwendet zu diesem Zweck eine Anordnung von Plastikszintillatorstreifen, die über optische Fasern ausgelesen werden. Damit erreicht man eine Rekonstruktion der Spur des Myons durch das äußere Veto. Mit der Richtungsinformation kann man die verschiedenen Klassen von Untergrundereignissen getrennt voneinander untersuchen. In der vorgeschlagenen Konfiguration kann der Neutronen-Untergrund auf ungefähr 0.005 Hz gebracht werden.

2.2.2 Detektorsimulation

Es werden verschiedene Simulationen des Detektors durchgeführt, zum Beispiel um die Anordnung und die Zahl der Photomultiplier und die Reflektivität der Wände zu optimieren. Das Ziel ist dabei die Bestimmung der Anzahl von Photoelektronen pro MeV deponierter Energie, der Zeitverteilung der ankommenden Photonen und der Homogenität des detektierten Lichts. Man braucht verschiedene Input-Informationen für die Simulation, unter anderem:

- Detektorgeometrie

- Lichtausbeute des Szintillators= Zahl der produzierten Photonen pro MeV (siehe Kapitel 4)
- Emissions- und Absorptionsspektrum des Szintillators (siehe Kapitel 6)
- Zeitliche Verteilung der Emission (siehe Kapitel 5)
- Quanteneffizienz der Reemission
- Wahrscheinlichkeit für Streuung im Szintillator und Reflexion an den Wänden
- Brechungsindex

Reflektierende Wände erhöhen die Ausbeute an Photoelektronen pro MeV deponierter Energie, dafür bekommt man unerwünschte Beiträge nach relativ langen Zeiten. Es stellt sich heraus, dass eine ausreichende Zahl an Photoelektronen (ca. 300p.e./MeV) auch ohne reflektierende Wände mit einer vernünftigen Anzahl an PMTs zu erreichen ist. Die Homogenität des detektierten Lichts ist wichtig für die Energierekonstruktion der Neutrinoereignisse. Es konnte trotz der zylindrischen Geometrie eine Konfiguration der PMTs gefunden werden, für die die Homogenität ausreichend ist.

2.2.3 Kalibration

Um die Simulationsergebnisse und die Neutrinodaten besser interpretieren zu können werden während der Messzeit regelmäßig Kalibrationen durchgeführt. Dadurch werden systematische Fehler aufgrund von Unterschieden zwischen den zwei Detektoren minimiert. Es werden mehrere Systeme gebaut, um die Kalibrationsquellen an verschiedenen Orten im Detektor zu positionieren. Man benutzt LED-Licht, welches durch Glasfasern am Rand des Buffer-Tanks in den Detektor emittiert wird, um die PMTs zu kalibrieren. Radioaktive Quellen können durch dünne Rohre im Gamma Catcher mit einem Draht in verschiedene Positionen gebracht werden.

Zusätzlich ist ein System geplant, mit dem es möglich ist, radioaktive Quellen, einen Laser und einen LED-Flasher auf der z-Achse des Detektors innerhalb des Targets zu bewegen. Es ist auch eine Vorrichtung vorgesehen, mit der man außerhalb der z-Achse kalibrieren kann, um die Homogenität der Detektor-Antwort besser testen zu können. Als radioaktive Quellen sind sowohl γ -Quellen als auch Neutronenquellen vorgesehen. Mit dem Laserlicht kann man sehr genau die wellenlängenabhängige Abschwächungslänge des Szintillators messen und mit den radioaktiven Quellen wird die Energiekalibrierung vorgenommen. In einem zweiten Kalibrationsschritt kann man dann die Elektronik einstellen, z.B. wird die Trigger-Schwelle und der Zeit-Offset für jeden Photomultiplier individuell eingestellt, indem man sich die Einzelphotoelektronen-Spektren anschaut.

2.2.4 Elektronik und Datenanalyse

Die Hochspannungsversorgung der PMTs und die Signalübertragung werden bei Double Chooz über das selbe Kabel laufen. Die Elektronik muss deshalb zunächst einmal mithilfe

eines sogenannten HV-Splitters das Signal von der Hochspannung trennen. Im nächsten Schritt werden die Signale verstärkt und ihre Form und Baseline korrigiert, weil diese durch den HV-Splitter und die Übertragung durch das Kabel, bzw. die Verstärkung verfälscht werden können. Anschließend werden die Pulse aller PMTs summiert und eine Trigger-Schwelle für dieses Signal festgelegt. Diese Trigger-Schwelle definiert den Energie-Cut. Insgesamt werden bei Double Chooz nur drei Cuts eingesetzt im Gegensatz zu sieben Cuts bei Chooz. Man kann auf Positionscuts komplett verzichten, weil der Untergrund von Einzelereignissen durch die Einführung des Buffer-Volumens um etwa 2 Größenordnungen kleiner ist. Das bringt Vorteile bei der Kontrolle und Kalibrierung der Elektronik mit sich und wirkt sich damit positiv auf den systematischen Fehler aus. Die drei verbleibenden Cuts sind im Folgenden aufgelistet.

- Energie-Cut für das Positron-Ereignis
- Zeit-Cut für das Neutron-Ereignis
- Energie-Cut für das Neutron Ereignis

Aufgrund des geringen Untergrunds kann der Energie-Cut für ein Positron-Ereignis auf 500-700 keV gesetzt werden. Damit ist wegen der Energieauflösung von ca. 7 % bei der Minimalenergie eines Positron-Ereignisses von 1 MeV die Wahrscheinlichkeit, dass ein Positron aus einem Neutrinoereignis unter die Schwelle fällt kleiner als 0.03 %.

Die Wahrscheinlichkeit für einen Einfang des Neutrons an einem Gadoliniumkern beträgt bei 1 g Gd/l ca. 85 %. Diese Zahl geht direkt in die Effizienz des Detektors ein, da der Energie-Cut für das Neutron-Ereignis bei ca. 6 MeV liegen wird und die Photonenenergie beim Einfang am Wasserstoff nur 2.2 MeV beträgt. Drittens muss ein Cut auf die Zeit nach dem Positron-Ereignis gesetzt werden. Dabei muss man abwägen zwischen der Effizienz der Neutronendetektion und der Untergrundrate, die linear mit der Koinzidenzzeit steigt. Bei Double Chooz wählt man einen Wert von 200 μ s.

2.2.5 Untergrund

Im Vorfeld des Experiments wurden ausführliche Studien zum Untergrund der Messung durchgeführt. Dadurch dass im Frühjahr 2009 wahrscheinlich beide Reaktoren gleichzeitig abgeschaltet werden, kann man den Untergrund ohne Neutrinoereignisse direkt messen. Die Daten des Vorgängerexperiments Chooz zum Untergrund kann man ebenfalls verwenden, um die Form des Untergrundspektrums zu analysieren. Man unterscheidet zwei Klassen von Untergrundereignissen.

- Zufällige Koinzidenzen
- Korrelierter Untergrund

Bei den zufälligen Koinzidenzen treffen zwei voneinander unabhängige Ereignisse innerhalb der Koinzidenzzeit ein. Die wichtigsten Quellen für ein Positron-ähnliches Ereignis sind hierbei β - und γ - Strahlung von radiochemischen Verunreinigungen im Szintillator

und in den PMTs (z.B. Uran, Thorium und Kalium). Zusätzlich zu einem solchen Ereignis muss innerhalb von $200 \mu\text{s}$ ein Neutron in das Target gelangen. Durch kosmische Myonen können Neutronen im Target über Spallation an den Kohlenstoff-Kernen und über Einfang der Myonen produziert werden. Deshalb ist es sehr wichtig, dass man ein effektives Myon-Veto hat. Man kann die Rate der zufälligen Koinzidenzen recht gut abschätzen, indem man die Einzelraten im Detektor misst.

Gefährlicher ist der korrelierte Untergrund, weil er nur schwer abzuschätzen ist. Durch die Myon-induzierte Spallation können radioaktive, neutronenreiche Produkte entstehen, welche gleichzeitig ein Elektron und ein Neutron abgeben. Eine Zurückweisung eines solchen Ereignisses über das Myon-Veto ist nicht möglich, weil die Zerfallszeiten von ^8He , ^9Li und ^{11}Li 122, 178 beziehungsweise 8.5 ms betragen [Bro78] und damit die Totzeit nach jedem Myon-Ereignis zu lang wäre. Ein weiterer korrelierter Untergrund kommt von Myon-induzierten schnellen Neutronen aus dem umliegenden Gestein. Das Myon kann hier nicht vom Veto detektiert werden, weil es daran vorbeifliegt. Das schnelle Neutron wandert in das Target und produziert dabei möglicherweise nicht genügend Licht im Inneren Veto, um dort gesehen zu werden. Durch Stöße im Target kann es Protonen erzeugen, die wiederum ein Positron-Ereignis simulieren. Das Neutron kann dann innerhalb von $200 \mu\text{s}$ eingefangen werden.

Der gesamte Untergrund wird für den nahen Detektor etwa 9 bis 23 Ereignisse pro Tag betragen und für den fernen Detektor 1 bis 2 Ereignisse pro Tag. Aufgrund der geringeren Tiefe des nahen Detektors wird die Rate der Myonen zu einer Totzeit des Detektors von ca. 30 % führen. Im fernen Detektor sind es nur einige wenige Prozent. Diese Totzeit muss sehr genau gemessen werden, da sie in den zwei Detektoren unterschiedlich groß ist und damit eine potentielle Quelle systematischer Fehler darstellt.

2.3 Gadolinium-Szintillator

2.3.1 Gd- β -Diketone

Gadolinium ist ein Metall aus der Serie der Lanthanoide. Zusammen mit den Actinoiden bilden sie die Gruppe der Seltenen Erden. Im Periodensystem der Elemente ist es unter der Ordnungszahl 64 zu finden. Die chemischen Eigenschaften dieser Elemente sind sehr ähnlich, da die Valenzelektronenkonfiguration dieselbe ist ($[\text{Xe}]4f^7 5d^1 6s^2$ bei Gd, die f-Schale wird nach und nach aufgefüllt). Auf der Erde kommt Gadolinium nur als Verbindung vor. Gadolinium-Monazit (GdPO_4) und Gadolinium-Bastnäsit (GdCO_3F) sind die wichtigsten Verbindungen, aber auch sie sind relativ selten [Hol64].

Die Flüssigszintillatoren in Double Chooz bestehen aus organischen Molekülen. Die Hauptschwierigkeit bei der Herstellung eines Gadoliniumszintillators besteht darin, dass Gadolinium ein Metall ist und sich deshalb nicht ohne Weiteres in einer organischen Flüssigkeit löst. Um das zu erreichen, integriert man das Gadolinium in einen Molekülkomplex; für Double Chooz verwenden wir β -Diketone.

β -Diketone (siehe Abb. 2.6) wurden erstmals 1887 synthetisiert [Com87] und sind in zahlreichen Anwendungen einsetzbar. F.X. Hartmann und R.A. Naumann hatten als

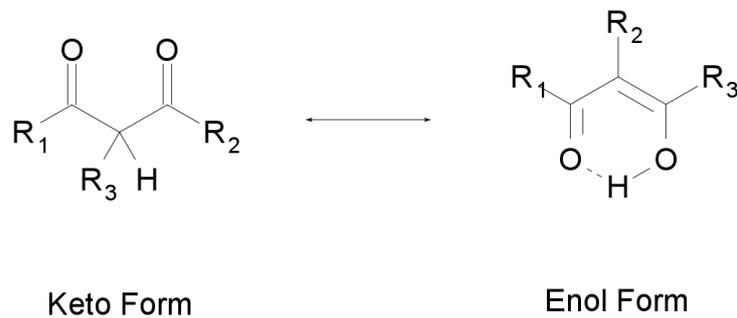


Abbildung 2.6: Chemische Strukturformeln für den Tautomerismus der β -Diketone.

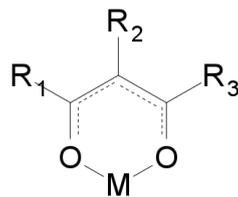
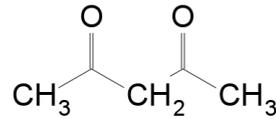


Abbildung 2.7: Aromatischer Charakter des sauerstoffgebundenen Metall- β -Diketon-Chelats.

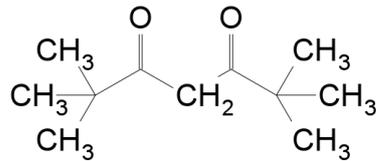
Erste die Idee, Metall- β -Diketone in einem Neutrinoexperiment zu verwenden [Har92]. Diese Moleküle haben sehr günstige Eigenschaften für eine Vielzahl von Experimenten und sind mit vielen Elementen realisierbar. Die Diketone liegen im Allgemeinen in einem Gleichgewicht zwischen einer Keto-Form und einer Enol-Form vor (siehe Abb. 2.6). Das Wasserstoff-Atom in der Ringstruktur der Enol-Form kann durch ein Metall ersetzt werden; man spricht dann von einem Sauerstoff-gebundenen Metall- β -Diketon. Vor allem in organischen Umgebungen kommt die Enol-Form verstärkt vor. Durch die Ringstruktur erhalten die Moleküle zusätzliche Stabilität aufgrund ihres aromatischen Charakters (siehe Abb. 2.7).

Das $\text{Gd}(\beta\text{-Diketon})_3$ Molekül verhält sich nach außen wie eine organische Verbindung. Die Moleküle sind sehr stabil und können durch Sublimation gereinigt werden. Zusätzlich kann man während der Synthese eine oder mehrere Umkristallisationen durchführen. Besonders für Neutrinoexperimente ist das wichtig, weil dort aufgrund der kleinen Ereignisraten strenge Anforderungen an die radiochemische Reinheit gestellt werden müssen.

Acetylaceton



Dipivaloylmethan

Abbildung 2.8: Verschiedene β -Diketone.

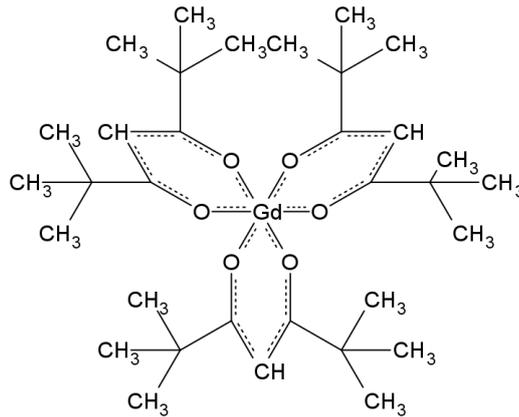
Das einfachste β -Diketon ist Acetylaceton (siehe Abb. 2.8).

Es stellte sich aber heraus, dass die Löslichkeit von $\text{Gd}(\text{acac})_3$ zu gering ist, weshalb man dazu überging, mit komplizierteren Liganden für das Gadolinium-Atom zu arbeiten. Für das Double Chooz Projekt wird Dipivaloylmethan (DPM) verwendet. Die Formel für das Gd-Molekül lautet also $\text{Gd}(\text{dpm})_3$ (siehe Abb. 2.9), die molekulare Masse beträgt 707.07 g/mol während das Gewicht von elementarem Gd 157.25 g/mol ist. Die Synthese dieses Moleküls wurde am MPIK in Heidelberg aus der vorhandenen Literatur [Eis68] weiterentwickelt und selbst durchgeführt, bis sie für die Produktion im großen Maßstab an die Industrie abgegeben wurde.

Die angestrebte Konzentration von Gd beträgt 1 g/l. Damit sich diese Menge in der Szintillatorzusammensetzung für Double Chooz schneller löst, wird Tetrahydrofuran (THF) in kleinen Mengen dazugeben (etwa 0.25 %_{wt.}). Danach bleibt der Gadoliniumkomplex zuverlässig in Lösung. Mit dieser Methode kann man bis zu ca. 10 g Gd/l auflösen, das entspricht 44.96 g $\text{Gd}(\text{dpm})_3$ /l. Außerdem schützt THF den Gd-Komplex durch Besetzen eines äußeren Koordinationsplatzes vor unerwünschten Anlagerungen. Vor allem die Anlagerung von Wasser kann die Stabilität des Szintillators beeinträchtigen [Buc07].

2.3.2 Anforderungen

Die vier verschiedenen Volumina in Double Chooz werden mit unterschiedlichen Flüssigszintillatoren gefüllt, um die oben beschriebenen Funktionen zu erfüllen. Unsere Gruppe am Heidelberger Max-Planck-Institut für Kernphysik ist für die Herstellung der zwei Szintillatoren für das Target und den Gamma Catcher zuständig. Im Folgenden werde ich mich deshalb hauptsächlich auf diese beiden Szintillatoren beschränken. In Tabelle 2.2 sind die Zusammensetzungen aufgeführt. Generell muss man auf sechs wichtige Punkte

Abbildung 2.9: Strukturformel für das Molekül $\text{Gd}(\text{dpm})_3$.

achten, welche die Szintillatoren als Grundvoraussetzung erfüllen müssen:

1. Szintillatorstabilität
2. Materialkompatibilität
3. Löslichkeit der zu lösenden Stoffe (siehe Kapitel 2.3.1)
4. Sicherheit
5. Radiochemische Reinheit
6. Optische Eigenschaften: Lichtausbeute, Zeitprofil und Transparenz (siehe Kapitel 4, 5 und 6)

An den Szintillator-Mischungen für Double Chooz wurden am MPIK Heidelberg einige physikalisch-chemische Eigenschaften gemessen, die in Tabelle 2.3 zusammengefasst sind.

Um die angestrebte Sensitivität des Experiments tatsächlich zu erreichen, muss die Messzeit mehrere Jahre betragen (siehe Abb. 2.4). Über diese Zeit müssen die Szintillatoren stabil bleiben, d.h. sie sollen ihre optischen Eigenschaften nicht verändern. Das Vorgängerexperiment Chooz hatte hier Schwierigkeiten; nach einiger Zeit hatte sich durch chemische Reaktionen (Oxidation durch Nitrat-Ionen) die Transparenz des Szintillators deutlich verschlechtert [Cho99]. In [Pie01] wird der Gadolinium-beladene Szintillator des Palo Verde-Experiments beschrieben. Die Stabilität des Szintillators war auch in diesem Experiment ein kritischer Punkt. Die Langzeittests der Gadolinium- β -Diketone

Detektorbestandteil	Lösungsmittel	gelöste Stoffe
Neutrino-Target	20 % _{vol} PXE (Phenyl-o-Xylylethan) [Gög07] 80 % _{vol} n-Dodecan	Gd(dpm) ₃ , PPO, bis-MSB
Gamma Catcher	4 % _{vol} PXE 43.8 % _{vol} n-Dodecan 52.2 % _{vol} Mineralöl	PPO, bis-MSB
Buffer	52 % _{vol} Mineralöl, 48 % _{vol} Tetradecan	-
Inneres Veto	31 % _{vol} LAB (Lineares Alkylbenzol), 69 % _{vol} Tetradecan	PPO

Tabelle 2.2: Szintillatorzusammensetzungen der verschiedenen Double Chooz Detektorvolumina. Die gelösten Stoffe dienen dazu, das sichtbare Licht zu größeren Wellenlängen zu verschieben, wo der Szintillator transparenter ist. Die Rolle von PPO (2,5-Diphenyloxazol) und bis-MSB (1,4-bis-(2-Methylstyryl)Benzen) wird in Kapitel 3.2.1 genauer erklärt. Lineare Dodecan-Ketten werden mit n-Dodecan abgekürzt.

	Target	Gamma Catcher
Viskosität	2.25 mm ² /s	3.2 mm ² /s
Dichte (20° C)	0.800 g/cm ³	0.800 g/cm ³
Wasser-Konzentration	< 50 ppm	-
Flammpunkt	72° C	> 86° C
Protonendichte	2.5 · 10 ²⁸ m ⁻³	-
Expansionskoeffizient bei 24° C	1.1 · 10 ⁻³ K ⁻¹	-
Brechungsindex bei 500 nm	1.46	-

Tabelle 2.3: Einige physikalische und chemische Eigenschaften der Flüssigszintillatoren.

am MPIK Heidelberg zeigen, dass mit diesem neuen Ansatz eine erhöhte Stabilität erreicht werden kann.

Ein weiterer wichtiger Punkt ist die Materialkompatibilität. Manche organischen Flüssigkeiten greifen z.B. das Acryl an, aus dem die beiden inneren Tanks gefertigt werden. Damit wird zum einen die mechanische Beanspruchung der Tanks durch Rissbildung zum Problem und zum anderen treten Veränderungen der Szintillatorchemie auf, welche wiederum die optischen Eigenschaften bestimmt. Es wurden ausführliche Tests zur Materialkompatibilität mithilfe eines Modells des Detektors (im Maßstab 1:5) und zusätzlich bei der Firma Roehm durchgeführt [DC06]. Die Zusammensetzung des Lösungsmittels im Target von 20 % PXE und 80 % Dodecan folgt aus diesen Untersuchungen zusammen mit Untersuchungen zur Lichtausbeute (siehe Kapitel 4). Reines PXE würde das Acryl beschädigen; deshalb muss man es mit dem unkritischen Dodecan verdünnen. Durch die Beimischung von Dodecan verringert sich aber die Lichtausbeute des Systems. Man muss einen geeigneten Kompromiss zwischen Materialverträglichkeit und Lichtausbeute

finden.

Ein wichtiger Aspekt bei großen Mengen von Flüssigszintillator ist die Sicherheit. Dabei geht es sowohl um unmittelbare Gefährdungen wie Entzündlichkeit als auch um Umweltgefährdungen. Der Flammpunkt des Targets beträgt $72\text{ }^{\circ}\text{C}$ und für die einzelnen Komponenten des Gamma Catchers liegt er jeweils über $86\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Um die verschiedenen radiochemischen Verunreinigungen zu minimieren und ausreichende Transparenz sicherzustellen werden die Komponenten des Szintillators gereinigt. Für die Lösungsmittel benutzt man dazu eine Säulenreinigung mit Aluminiumoxid, die festen Zutaten werden möglichst schon beim Herstellungsprozess gereinigt und anschließend in einem der hochempfindlichen GeMPI γ -Spektrometer am Gran Sasso Untergrundlabor geprüft.

Entscheidend für das Funktionieren des Detektors sind die optischen Eigenschaften des Szintillators. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Lichtausbeute des Neutrino-Targets und des Gamma Catchers optimiert. Es wurde ein Modell entwickelt, mit dem die Lichtausbeute für verschiedene Szintillatorzusammensetzungen vorhergesagt werden kann (siehe Kapitel 3). Das ist nützlich, weil man die Lichtausbeute nicht für beliebig viele Zusammensetzungen aus den fünf Komponenten experimentell bestimmen kann. Die Lichtausbeute (siehe Kapitel 4) ist entscheidend für die Energieauflösung des Detektors. Je größer die Lichtausbeute des Szintillators, desto geringer ist der relative Fehler in der Bestimmung der Energie. Außerdem muss die Lichtausbeute in Target und Gamma Catcher übereinstimmen, um eine zuverlässige Energiebestimmung von Ereignissen zu erhalten, bei denen γ -Quanten aus Reaktionen im Target in den Gamma Catcher gelangen.

Informationen über das zeitliche Profil der Szintillatoremission sind wichtig, um zu beurteilen, wie groß die Wahrscheinlichkeit für eine unerwünschte Überlagerung verschiedener Pulse ist. Andererseits könnte man durch eine Pulsformanalyse unterscheiden, in welchem Volumen Energie deponiert worden ist. Das würde eine zusätzliche Reduktion des Untergrunds erlauben. Das in Kapitel 3.3.2 vorgestellte Modell erlaubt Vorhersagen zur Lichtausbeute und zum Zeitprofil verschiedener Szintillatormischungen. In Kapitel 5 werden Messungen zum Zeitprofil verschiedener Szintillatoren vorgestellt.

Für ein hohes Signal in den PMTs muss der Szintillator möglichst transparent sein. Sein Emissionsspektrum sollte außerdem gut zu der Effizienz der Photokathode der PMTs und der Transparenz des Acryls ($> 400\text{ nm}$) passen. In Kapitel 6 werden Messungen zu den Absorptions- und Emissionsspektren der einzelnen Szintillatorkomponenten gezeigt.

3 Energietransfer im Flüssigszintillator

In diesem Kapitel wird beschrieben, wie die Positronen und die hochenergetischen Photonen aus der Nachweisreaktion im Szintillator in sichtbares Licht umgewandelt werden. Das Ziel ist es, die Lichtausbeute der zwei Szintillatoren für das Target und für den Gamma Catcher zu modellieren. Das Modell kann die Lichtausbeute für verschiedene Szintillatorkombinationen vorhersagen. Dies ist nützlich, weil es viele Möglichkeiten für die Zusammensetzung gibt, die man nicht alle experimentell überprüfen kann. Speziell für das Angleichen der Lichtausbeute im Target und im Gamma Catcher hilft das Modell bei der Suche nach vielversprechenden Zusammensetzungen, die anschließend experimentell überprüft wurden. Zudem erhält man durch das Modell ein besseres Verständnis der Prozesse, die im Flüssigszintillator stattfinden.

3.1 Anregung der Lösungsmittelmoleküle

Die Photonen aus der Neutrinoreaktion transferieren ihre Energie im Szintillator hauptsächlich über den Compton-Effekt auf Elektronen. Diese Elektronen und auch die Positronen vor der Annihilation können auf ihrer Bahn durch den Szintillator mehrere Lösungsmittelmoleküle anregen. In diesem Kapitel werden die Anregungsprozesse für die Kohlenwasserstoffe PXE und Dodecan (siehe Abb. 3.1) beschrieben.

3.1.1 Energieniveaus von Aromaten

Für die Anregung der PXE-Moleküle durch die Compton-Elektronen sind die Phenylgruppen verantwortlich. Die Atomorbitale der Kohlenstoffatome in den Phenylringen sind sp^2 hybridisiert. Diese Hybridorbitale bilden mit den benachbarten Atomen σ -Bindungen aus. Pro Atom steht darüberhinaus noch ein zur Ringebene orthogonales p-Orbital zu Verfügung. Anregung der delokalisierten Elektronen in den entstehenden π -Bindungen durch Compton-Elektronen ist der wichtigste Prozess für die Szintillation. Aber auch Ionisation und anschließende Rekombination in einen angeregten Singulett oder Triplettzustand der π -Elektronen trägt dazu bei. Anregung und Ionisation der σ -Elektronen führen dagegen zu strahlungsloser Dissipation der Energie. Um die einzelnen Energieniveaus für π -Elektronen zu berechnen, nimmt man in erster Näherung freie Elektronen an, die sich auf einem geschlossenen Ring bewegen. Sie erfüllen also periodische Randbedingungen $\psi(x) = \psi(L + x)$. L ist dabei der Umfang der Phenyl-Gruppe. Man

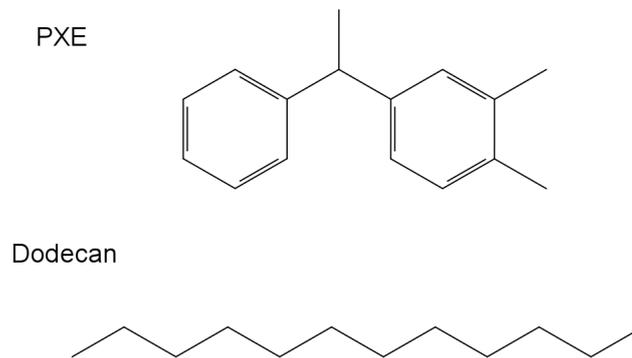


Abbildung 3.1: Lösungsmittelmoleküle für das Target von Double Chooz: PXE (Phenyl-o-Xylylethan) und Dodecan ($C_{12}H_{26}$).

erhält zweifach entartete Energieniveaus $E_q = \frac{q^2 \hbar^2}{2m_0 l^2}$, da die Elektronen sich in zwei verschiedene Richtungen bewegen und unterschiedlichen Spin haben können [Bir64]. Das unterste Niveau ist nur einfach entartet.

Es stehen pro Phenylring sechs π -Elektronen zur Verfügung. Im Grundzustand des Systems sind also das unterste und das zweitunterste Niveau besetzt. Macht man die Verallgemeinerung zu einem periodischen Potential für die Elektronen dann spalten die oberen Niveaus in je zwei einfach entartete Unterniveaus auf. Bei einer Anregung eines Elektrons aus dem obersten besetzten Niveau in das unterste unbesetzte Niveau gibt es deshalb acht verschiedene Möglichkeiten, wenn man Triplett und Singulettzustände des angeregten Systems berücksichtigt (siehe Abb. 3.2).

3.1.2 Fluoreszenz und Phosphoreszenz

In größeren Molekülen gibt es, zusätzlich zur elektronischen Anregung, die Möglichkeit zu Vibrationen und Rotationen des Moleküls. In einer organischen Flüssigkeit entstehen dadurch eine Vielzahl an eng beieinander liegenden Energieniveaus (siehe Abb. 3.2). Die Absorption und Emission zeigen statt getrennten Linien kontinuierliche Spektren (siehe Kapitel 6).

Es werden hauptsächlich die Singulettzustände angeregt. Über Kollisionen regen sich die Vibrationszustände des Moleküls schnell ($\approx 10^{-12}$ s) in S_1 ab. Damit ist die Emission zu größeren Wellenlängen verschoben (Fluoreszenz mit Stokes-Verschiebung, siehe Abb. 3.2). Seltener kann auch ein Triplettzustand angeregt werden (gestrichelte Pfeile). Dieser metastabile Zustand zerfällt langsamer und emittiert Licht mit einer noch größeren Wellenlänge (Phosphoreszenz).

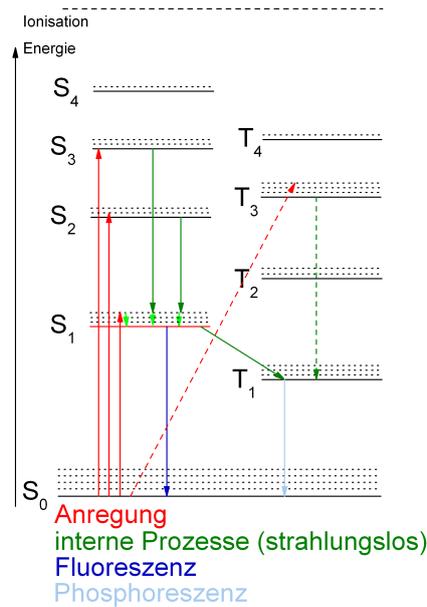


Abbildung 3.2: Termschema des π -Elektronensystems einer Phenyl-Gruppe. Die gestrichelten Linien deuten die Vibrationsanregungen der Zustände an. Die Singulettzustände werden durch S gekennzeichnet, die Triplettzustände durch T.

3.1.3 Anregung von gesättigten Kohlenwasserstoffen

Die Anregung des Dodecan-Moleküls unterscheidet sich prinzipiell von der Anregung von PXE. Sie erfolgt hauptsächlich über die Ionisation des Moleküls und die anschließende Rekombination. Daneben existieren noch eine Vielzahl von anderen Prozessen, die in [Shk01] diskutiert werden. Das Gebiet der Strahlungs-Chemie ist aber noch weitgehend unverstanden. Der resultierende angeregte Zustand von Dodecan liegt etwa 10 eV über dem Grundzustand, bei PXE sind es etwa 3 eV. Im Gamma Catcher wird zusätzlich zu PXE und Dodecan Mineralöl verwendet, ein Gemisch aus linearen und verzweigten gesättigten Kohlenwasserstoffen. Auch die verzweigten Moleküle können ähnlich wie die linearen Ketten angeregt werden.

3.2 Energietransfermechanismen

3.2.1 Die Fluore

Aufgrund ihrer wesentlichen Eigenschaft für den Szintillator, die Fluoreszenz, nennt man die gelösten Stoffe des Szintillators (außer $Gd(dpm)_3$) Fluore. Sie werden in geringen Mengen zugegeben, die direkte Anregung der Fluore spielt daher eine untergeordnete

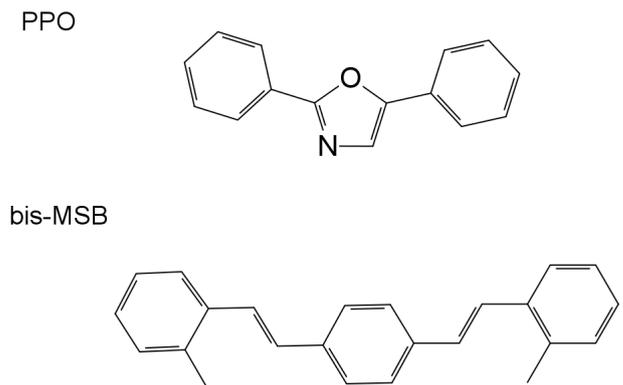


Abbildung 3.3: Fluore der Double Chooz-Szintillatoren: Das primäre Fluor PPO (2,5-Diphenyloxazol) und das sekundäre Fluor bis-MSB (1,4-bis-(2-Methylstyryl)Benzol).

Rolle. Trotzdem sind sie für den Energietransfer essentiell, weil sie durch die Lösungsmittelmoleküle effektiv angeregt werden können.

Der Zweck der Fluore ist die Verschiebung des Emissionsspektrums des Szintillators zu längeren Wellenlängen. Bei längeren Wellenlängen ist der Szintillator transparenter und die Wahrscheinlichkeit, dass Licht bei einem PMT ankommt, ist groß. Man wählt das primäre Fluor (PPO für Double Chooz) so, dass sein Absorptionsspektrum einen großen Überlapp mit dem Emissionsspektrum des Donors (angeregtes Lösungsmittelmolekül) hat (siehe Kapitel 6). Damit erhält man eine große Wahrscheinlichkeit für den Energietransfer von Donor zu Akzeptor (nicht-angeregtes Fluor-Molekül). Das Emissionsspektrum des Akzeptors ist wegen der Stokes-Verschiebung langwelliger als das Absorptionsspektrum. Bei Double Chooz werden zwei Fluore eingesetzt, das zweite Fluor (bis-MSB) kann durch die Emission des primären Fluors angeregt werden und emittiert bei noch größeren Wellenlängen. Außer der verbesserten Transparenz des Szintillators und des Acryls (transparent für Wellenlängen ab etwa 400 nm) hat das langwelligere Spektrum den Vorteil, dass die Effizienz der PMTs im Bereich der bis-MSB-Emission höher ist als im Bereich der PPO-Emission. PPO und bis-MSB sind wie PXE aromatische organische Moleküle (siehe Abb. 3.3); die Anregungsniveaus zeigen dieselbe Struktur wie bei PXE.

3.2.2 Energietransfermechanismen zwischen einzelnen Molekülen

Zunächst betrachten wir den strahlungslosen Energietransfer zwischen zwei einzelnen Atomen bzw. Molekülen. Um diesen Mechanismus in der Praxis zu beobachten kann man stark verdünnte Lösungen verwenden, in denen die Donor-Moleküle und die Akzeptor-

Moleküle in geringer Konzentration vorkommen. Stern und Volmer [Ste19] stellten ein Modell auf, in dem die Annahme gemacht wird, dass die Energietransferraten nicht vom Abstand zwischen Donor und Akzeptor abhängen ($\lambda = \text{const.}$). Man stellte sich Stoßprozesse vor, deren Raten in Konkurrenz mit der Fluoreszenz stehen. Damit erhält man für die relative Effizienz $\frac{\eta}{\eta_{max}}$ des Energietransfers eine Konzentrationsabhängigkeit der Form

$$\frac{\eta}{\eta_{max}} = \frac{1}{1 + \frac{c_0}{c}}. \quad (3.1)$$

c ist die Konzentration des Akzeptor-Moleküls und c_0 die kritische Konzentration des Modells.

Der strahlungslose Energietransfer wurde von Cario und Franck erstmals direkt beobachtet [Car23]. Sie verwendeten dazu ein atomares Gas aus Quecksilber und Thallium und bestrahlten dieses Gemisch mit einer starken Lichtquelle, welche nur eine Atomsorte anregen konnte. Das Fluoreszenzspektrum wies aber die Spektrallinien beider Atomsorten auf, sodass man darauf schließen konnte, dass ein Energietransfer stattgefunden haben musste. Ein Energietransfer aufgrund von einfacher Emission und anschließender Absorption ist bei Quecksilber und Thallium nicht möglich; damit konnte das Spektrum nur mit einem strahlungslosen Übergang erklärt werden. Die theoretische Vorstellung des strahlungslosen Energietransfers beruhte auch hier auf Stößen zwischen den Atomen, wobei Translationsenergie ausgetauscht wird, um den Energietransfer zwischen den unterschiedlichen Energieniveaus zu ermöglichen.

Experimentell beobachtete man aber auch strahlungslosen Energietransfer, der nicht allein durch Stöße erklärt werden kann. Man strahlte polarisiertes Licht in eine zähe Lösung mit zwei verschiedenen fluoreszierenden Molekülen ein und beobachtete unpolarisierte Emission mit einem Emissionsspektrum des zweiten, nicht angeregten Moleküls. Bei einer Anregung der Moleküle und anschließender Fluoreszenz wäre die Emission ebenfalls polarisiert. Aufgrund der Zähigkeit scheiden Stöße als Erklärung für die Depolarisation aus. Auch der Energietransfer über Emission und anschließende Absorption eines zweiten Moleküls reichte nicht aus, um den Effekt zu erklären, weil die Reabsorption durch die Stokes-Verschiebung unterdrückt ist [För48]. Damit bleibt als Erklärung nur ein strahlungsloser Energietransfer über eine Distanz, die größer ist als die Molekülgröße.

In einem frühen Modell von Perrin [Per24] berechnete man die Abhängigkeit der Effizienz dieses Energietransfers von der Konzentration des Akzeptors, indem man annahm, dass unter einem kritischen Abstand zwischen Donor und Akzeptor die Energie immer transferiert wird und darüber nie ($\lambda(r < R_0) = \infty$, $\lambda(r \geq R_0) = 0$). Die Effizienz in diesem einfachen Modell hängt exponentiell von der Konzentration der Akzeptoren ab

$$\frac{\eta}{\eta_{max}} = 1 - e^{-\frac{c}{c_0}}. \quad (3.2)$$

Eine quantenmechanische Betrachtung durch Förster [För48] ging erstmals genauer auf die Mechanismen ein, die dem Energietransfer zwischen einzelnen Donor- und Akzeptormolekülen zugrundeliegen. Wenn das Emissionsspektrum des ersten Moleküls mit dem

Absorptionsspektrum des zweiten Moleküls überlappt, kann sich das erste Molekül abregen und das zweite Molekül simultan angeregt werden. Der dominierende Term im Matrixelement dieses Übergangs kommt von der Dipol-Dipol-Kopplung und ist damit proportional zu r^{-6} . Die Effizienz des Transfers in Abhängigkeit von der kritischen Konzentration ist von der Form [För59]

$$\frac{\eta}{\eta_{max}} = \sqrt{\pi} x e^{x^2} (1 - \text{Erf}(x)) \quad (3.3)$$

mit $x = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{c}{c_0}$ und der Errorfunktion $\text{Erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-u^2} du$. Die kritische Konzentration ist mit dem kritischen Abstand über $c_0 = \frac{3000}{4\pi N_A R_0^3}$ verbunden. R_0 ist der Abstand, bei dem der strahlungslose Energietransfer gleich wahrscheinlich ist wie die spontane Abregung des Moleküls. Dieser kritische Abstand kann nach Förster [För59] berechnet werden, wenn man die Emissions- und Absorptionsspektren von Donor bzw. Akzeptor kennt:

$$R_0^6 = \frac{9000 \ln(10) \kappa^2 \eta_S^0}{128 \pi^6 n^4 N_A} \cdot \int_0^\infty \frac{f_D(\nu) \epsilon_A(\nu)}{\nu^4} d\nu. \quad (3.4)$$

Dabei ist κ^2 ein Orientierungsfaktor, der aus dem Winkel zwischen Donor und Akzeptor abgeleitet wird. Bei einer zufälligen Orientierung wie in Flüssigkeiten ist dieser Faktor gleich $2/3$. η_S^0 ist die Quanteneffizienz, mit der ein freies Donor-Atom ein Photon abstrahlt. Der Brechungsindex des Mediums wird mit n bezeichnet und N_A ist die Avogadrozahl. Das Überlappintegral stellt die Verbindung von R_0 mit den experimentell zugänglichen molaren Extinktionskoeffizienten der Akzeptoren (ϵ_A) und den Emissionsspektren der Donoren (f_D) her (siehe Kapitel 6). Dabei wird das Emissionsspektrum auf eins normiert.

Dexter erweiterte das Modell von Förster, indem er optisch nicht erlaubte Übergänge in seine Theorie mit einschloss [Dex52]. Dabei berechnete er auch Terme, die von der Dipol-Quadrupol Wechselwirkung kommen. Eine weitere Korrektur seiner Theorie beruht auf einem Austausch von Elektronen zwischen Donor und Akzeptor. Dabei geht ein Elektron aus dem angeregten Zustand des Donors über in ein Orbital des Akzeptors, während gleichzeitig ein Elektron vom Akzeptor zum Donor wechselt. Die oben genannten Korrekturen nehmen in ihrer Größe in dieser Reihenfolge ab und sind vor allem bei großen Abständen zwischen den Molekülen klein. Die Dipol-Quadrupol-Wechselwirkung nimmt mit R^{-8} ab und der Austauschterm exponentiell mit R . Um von einem Molekül zum anderen zu wechseln, müssen die Elektronen sich in einem Bereich überlappender Orbitale befinden. Da beide Orbitale nach außen hin näherungsweise exponentiell abfallen erhält man in der Effizienz einen Faktor $e^{-2R/L}$. In [Ino65] wird die Effizienz des Austausch-Effekts quantitativ diskutiert und mit experimentell zugänglichen Größen verknüpft.

Eine Verallgemeinerung der sogenannten Förster-Dexter Theorie wurde von Rotman und Hartmann vorgestellt [Rot88], [Rot89]. Die Förster-Dexter Theorie geht von ortsunabhängigen Konzentrationen der Moleküle aus. In der Realität ist die Anziehung zwischen verschiedenartigen Molekülen i.A. verschieden groß. Damit ist die Konzentration um ein Donor-Molekül herum abhängig vom Abstand. Vor allem für die sehr abstandsempfindlichen Wechselwirkungen der Dexter-Theorie spielt dieser Effekt eine Rolle. Zusätzliche

Effekte aufgrund von Symmetrieeffekten bei der Anordnung von Akzeptormolekülen um ein Donor-Molekül werden in [Har91] behandelt.

3.2.3 Energietransfer bei hoher Donor-Konzentration

Bis jetzt wurde in diesem Kapitel der Energietransfer zwischen einzelnen Molekülen behandelt. In einem Flüssigszintillator ist aber meistens das Lösungsmittel gleichzeitig der Donor. Damit ist die Donorkonzentration sehr hoch und man muss zusätzliche Effekte betrachten: Wichtig ist dabei vor allem die Diffusion angeregter Donor-Moleküle durch die Flüssigkeit und der Transfer von Donor zu Donor (Migration). Kallmann und Furst behandelten diese Effekte [Kal50], [Kal51]. Die Energie kann also über eine Bewegung des Donor-Moleküls in die Nähe eines Akzeptormoleküls gebracht werden, wo sie dann über die oben genannten Mechanismen transferiert werden kann. Die Migration kann mehrmals hintereinander erfolgen, so dass eine ganze Reihe von Donor-Molekülen durch dieselben Mechanismen nacheinander angeregt werden. Damit steht ein weiterer Prozess zur Verfügung, mit dem die Energie auch über größere Distanzen zu einem Akzeptor transferiert werden kann.

3.3 Lichtausbeutemodell

3.3.1 Vorgehensweise und Annahmen

Das aktuelle Modell ist eine Verallgemeinerung und Weiterentwicklung des in [Buc06] beschriebenen. Es wurden zunächst zusätzliche Terme aufgenommen, um die kompliziertere Situation mit zwei verschiedenen Lösungsmitteln adäquat zu behandeln. Im Laufe dieser Diplomarbeit stellte sich heraus, dass zusätzliche Erweiterungen die Daten besser beschreiben können. Das hier vorgestellte Modell ist das Ergebnis dieser Entwicklung.

- Wir legen die Energietransferpfade fest, die berücksichtigt werden sollen. In Abbildung 3.4 sind diese Pfade für das Target schematisch dargestellt und in Tabelle 3.1 ist die Notation aufgelistet.
- Es werden nur effektive, orts- und zeitunabhängige Raten betrachtet, die proportional zu den Konzentrationen der beteiligten Moleküle sind. Dadurch erhält man Gleichungen des Typs Stern-Volmer. Verschiedene Prozesse, die zu einem Pfad beitragen werden nicht getrennt behandelt.
- Die Konzentrationen der nicht-angeregten Moleküle sind zeitlich konstant (siehe Kapitel 3.3.2).
- Direkte Anregung der gelösten Stoffe PPO, bis-MSB und Gd(dpm)_3 werden nicht berücksichtigt, da diese mit Konzentrationen von einigen Gramm pro Litern nur im Promill- bis Prozentbereich vorkommen.
- Die Anregung der Lösungsmittelmoleküle erfolgt schnell im Vergleich zur Szintillation (siehe Kapitel 3.3.2).

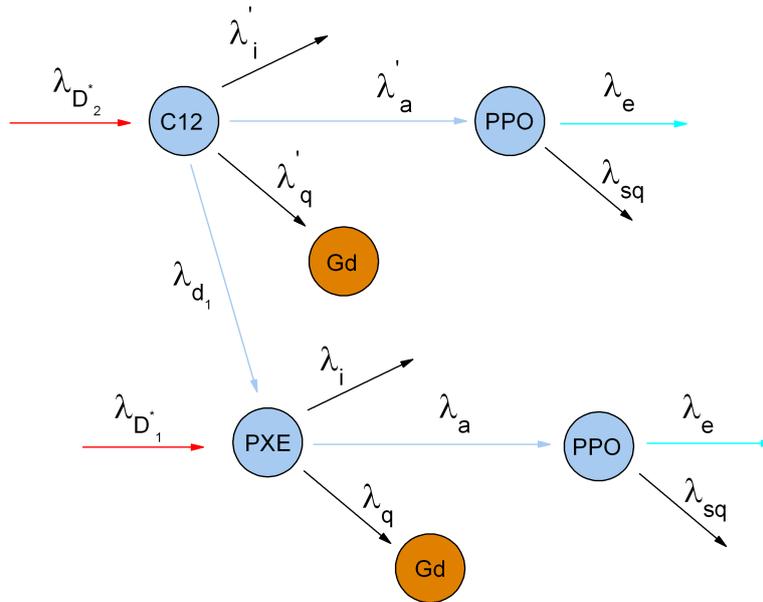


Abbildung 3.4: Energietransferprozesse im Target: Die schwarzen Pfeile symbolisieren Prozesse, bei denen die Energie verloren geht. Blaue Pfeile stehen typischerweise für strahlungslose Energietransfers wie in Kapitel 3.2.2 beschrieben, hellblaue Pfeile für die Abregung des PPO unter Emission eines Photons. Die roten Pfeile stehen für die Anregung der Lösungsmittelmoleküle durch die Compton-Elektronen.

Symbol	Erklärung	Einheit
D_1, d_1	Donor 1 = PXE	$\frac{\text{mol}}{\text{l}}, \frac{\text{g}}{\text{l}}$
D_2, d_2	Donor 2 = Dodecan	$\frac{\text{mol}}{\text{l}}, \frac{\text{g}}{\text{l}}$
A, a	Akzeptor = PPO	$\frac{\text{mol}}{\text{l}}, \frac{\text{g}}{\text{l}}$
Q, q	Quencher = $\text{Gd}(\text{dpm})_3$	$\frac{\text{mol}}{\text{l}}, \frac{\text{g}}{\text{l}}$
*	angeregtes Molekül	-
$\lambda_a, k_a = \lambda_a \frac{1}{M_{PPO}}$	Energietransfer von PXE zu PPO	$\frac{\text{l}}{\text{mol} \cdot \text{s}}, \frac{\text{l}}{\text{g} \cdot \text{s}}$
$\lambda_e, k_e = \lambda_e$	Lichtemission von PPO	s^{-1}
$\lambda_q, k_q = \lambda_q \frac{1}{M_{\text{Gd}(\text{dpm})_3}}$	Energietransfer von PXE zu $\text{Gd}(\text{dpm})_3$	$\frac{\text{l}}{\text{mol} \cdot \text{s}}, \frac{\text{l}}{\text{g} \cdot \text{s}}$
$\lambda_i, k_i = \lambda_i$	interne Verluste bei PXE	s^{-1}
$\lambda_{sq}, k_{sq} = \lambda_{sq} \frac{1}{M_{PPO}}$	Self-Quenching des PPO in PXE	$\frac{\text{l}}{\text{mol} \cdot \text{s}}, \frac{\text{l}}{\text{g} \cdot \text{s}}$
λ', k'	definiert wie λ, k für Dodecan anstelle von PXE	-
$\lambda_{d_1}, k_{d_1} = \lambda_{d_1} \frac{1}{M_{PXE}}$	Energietransfer von Dodecan nach PXE	$\frac{\text{l}}{\text{mol} \cdot \text{s}}, \frac{\text{l}}{\text{g} \cdot \text{s}}$
$\lambda_{D_1}^*$	Rate für Anregung des PXE	$\frac{\text{mol}}{\text{l} \cdot \text{s}}$
$\lambda_{D_2}^*$	Rate für Anregung des Dodecan	$\frac{\text{mol}}{\text{l} \cdot \text{s}}$

Tabelle 3.1: Notation für das Lichtausbeutemodell.

- Das zweite Fluor bis-MSB wird in diesem Modell nicht berücksichtigt. Der Transfer von PPO zu bis-MSB findet über Emission und anschließende Absorption statt. Wir nehmen an, dass jedes Photon aus der Emission von PPO von bis-MSB absorbiert wird. Anschließend wird es mit einer Quanteneffizienz von 94 % wieder emittiert. Weiterhin nehmen wir an, dass von bis-MSB aus kein Transfer zu einer der anderen Komponenten stattfindet. Aus Messungen der Fluoreszenz- und Absorptionsspektren von PPO bzw. bis-MSB weiß man, dass die bis-MSB-Konzentration von ca. 20 mg/l zu gering für einen effektiven strahlungslosen Energietransfer ist [Buc06]. Demnach gibt es in unserem Modell keine Abhängigkeit der Lichtausbeute von bis-MSB.
- In unserem Modell trägt ausschließlich die Emission von PPO zur Lichtausbeute des Szintillators bei. Man beobachtet experimentell, dass der Gadolinium-Komplex die Energie nicht in Form von Strahlung abgibt. Interne Prozesse und der Transfer zu $\text{Gd}(\text{dpm})_3$ führen zu einem Verlust der Energie.
- Die spontane Emission von Lösungsmittelmolekülen wird vernachlässigt: Der strahlungslose Transfer und die internen Verluste sind effektiver als die spontane Emission. Durch die hohe Konzentration der Lösungsmittel tragen Migration und Diffusion (siehe Kapitel 3.2.3) zum strahlungslosen Transfer bei. Außerdem können sich angeregte Dimere aus einem angeregten und einem nichtangeregten Lösungsmittelmolekül bilden. Diese haben eine höhere Wahrscheinlichkeit, die Energie strahlungslos zu dissipieren [Bir65], [Bir67]. Dieser Energieverlust wird in dem Modell den internen Verlusten zugerechnet.
- Ein angeregtes PPO-Molekül kann seine Energie entweder durch spontane Emission abgeben oder diese durch Stöße oder Excimer-Formation mit nichtangeregten PPO-Molekülen unter Produktion von Wärme verlieren (Self-Quenching).

3.3.2 Ableitung der Lichtausbeutegleichungen

Neutrino-Target

Wir stellen Bilanzgleichungen auf, die angeben, wie sich die Konzentrationen der angeregten Moleküle ändern:

$$\frac{dD_1^*}{dt} = \lambda_{D_1^*} - \lambda_a D_1^* A - \lambda_i D_1^* - \lambda_q D_1^* Q + \lambda_{d_1} D_2^* D_1 \quad (3.5)$$

$$\frac{dD_2^*}{dt} = \lambda_{D_2^*} - \lambda'_a D_2^* A - \lambda'_i D_2^* - \lambda'_q D_2^* Q - \lambda_{d_1} D_2^* D_1 \quad (3.6)$$

$$\frac{dA^*}{dt} = \lambda_a D_1^* A + \lambda'_a D_2^* A - \lambda_e A^* - \lambda_{sq} A A^*. \quad (3.7)$$

Anschließend löst man die Gleichungen (3.5) bis (3.7) nach D_1^* , D_2^* bzw. A^* auf:

$$D_1^* = \frac{1}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \left[\lambda_{D_1^*} + \lambda_{d_1} D_2^* D_1 - \frac{dD_1^*}{dt} \right] \quad (3.8)$$

$$D_2^* = \frac{1}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1} \cdot \left[\lambda_{D_2^*} - \frac{dD_2^*}{dt} \right] \quad (3.9)$$

$$A^* = \frac{1}{\lambda_e + \lambda_{sq} A} \cdot \left[\lambda_a A D_1^* + \lambda'_a A D_2^* - \frac{dA^*}{dt} \right]. \quad (3.10)$$

Um einen Ausdruck für A^* zu erhalten der unabhängig von D_1^* und D_2^* ist ersetzt man zuerst in Gleichung (3.8) D_2^* durch die rechte Seite von Gleichung (3.9) und setzt diesen Ausdruck für D_1^* in Gleichung (3.10) ein. D_2^* in Gleichung (3.10) wird durch die rechte Seite von Gleichung (3.9) ersetzt:

$$\begin{aligned} A^* &= \frac{1}{\lambda_e + \lambda_{sq} A} \cdot \frac{\lambda_a A}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \cdot \left[\lambda_{D_1^*} - \frac{dD_1^*}{dt} \right] \\ &+ \frac{1}{\lambda_e + \lambda_{sq} A} \cdot \frac{\lambda_a A}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \cdot \frac{\lambda_{d_1} D_1}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1} \cdot \left[\lambda_{D_2^*} - \frac{dD_2^*}{dt} \right] \\ &+ \frac{1}{\lambda_e + \lambda_{sq} A} \cdot \frac{\lambda'_a A}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1} \cdot \left[\lambda_{D_2^*} - \frac{dD_2^*}{dt} \right]. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Man nimmt an, dass die Konzentrationen der nichtangeregten Moleküle A , D_1 , D_2 und Q zeitlich konstant sind. Plausibel wird diese Annahme durch die folgende Abschätzung: Für Energiedepositionen von 1 MeV in Form von Compton-Elektronen erhält man etwa 10000 angeregte Moleküle. Die mittlere Reichweite eines Elektrons beträgt ungefähr $r(\text{cm}) \approx \frac{530E(\text{MeV})-106}{\rho(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})} \cdot 10^{-3} \approx 0.5 \text{ cm}$ [Bir64]. Dabei wurde angenommen, dass das rückgestreute Elektron eine Energie von 1 MeV erhält und die Dichte des Szintillators 0.8 g/cm^3 beträgt. Durch Stöße ändert das Elektron oft seine Richtung, deshalb kann man das Volumen, in dem Moleküle angeregt werden mit $(0.5 \text{ cm})^3 \approx 10^{-4} \text{ cm}^3$ abschätzen. In diesem Volumen befinden sich etwa 10^{17} Moleküle. Die Konzentration der nicht-angeregten Moleküle ändert sich also praktisch nicht.

Die entscheidende Größe für die Lichtausbeute ist die insgesamt von PPO emittierte Anzahl der Photonen. Um diese zu erhalten integriert man die Rate der Photonenemission über die Zeit. Alle zeitabhängigen Größen in Gleichung (3.11) stehen innerhalb der eckigen Klammern. Man kann die Integrale über die Zeit also einzeln lösen. Die Anregung der Moleküle durch das Elektron geschieht schnell im Vergleich mit den Abregungsprozessen. Man macht deshalb die Annahme, dass die Anregung punktuell zur Zeit $t = 0$ geschieht: $\lambda_{D_{1,2}^*}(t) = D_{1,2}^0 \cdot \delta(t)$ Außerdem sind lange vor der Anregung und lange nach der Anregung ($t = -\infty$ und $t = \infty$) keine angeregten Moleküle vorhanden

$$\int_{-\infty}^{\infty} \left[\lambda_{D_{1,2}^*} - \frac{dD_{1,2}^*}{dt} \right] dt = D_{1,2}^0 + D_{1,2}^*(t = \infty) - D_{1,2}^*(t = -\infty) = D_{1,2}^0. \quad (3.12)$$

Damit erhält man für die insgesamt produzierte Anzahl von Photonen das Ergebnis:

$$\begin{aligned}
 N_P &= \int_{-\infty}^{\infty} \lambda_e A^*(t) dt \\
 &= D_1^0 \cdot \frac{\lambda_e}{\lambda_e + \lambda_{sq}A} \cdot \frac{\lambda_a A}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \\
 &\quad + D_2^0 \cdot \frac{\lambda_e}{\lambda_e + \lambda_{sq}A} \cdot \frac{\lambda_a A}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \cdot \frac{\lambda_{d_1} D_1}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1} \\
 &\quad + D_2^0 \cdot \frac{\lambda_e}{\lambda_e + \lambda_{sq}A} \cdot \frac{\lambda'_a A}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1}.
 \end{aligned} \tag{3.13}$$

Die Konstanten D_1^0 und D_2^0 ergeben sich aus den verschiedenen großen Wahrscheinlichkeiten für die Wechselwirkung der einzelnen Lösungsmittelmoleküle mit einem Elektron R_{PXE} und $R_{C_{12}}$ und den Wahrscheinlichkeiten, dass bei einer WW mit dem Elektron ein angeregtes Molekül entsteht. Die Raten der WW mit einem Elektron ergibt sich aus dem Elektronenfluss, der Teilchenzahldichte der Lösungsmittelmoleküle und den Wirkungsquerschnitten:

$$R_{PXE} = \phi_{e^-} \cdot \sigma_{PXE} \cdot n_{PXE} \quad R_{C_{12}} = \phi_{e^-} \cdot \sigma_{C_{12}} \cdot n_{C_{12}}. \tag{3.14}$$

In diesem Modell nehmen wir an, dass ein Elektron im Szintillator seine ganze Energie durch Wechselwirkungen mit dem Lösungsmittel verliert. PXE und Dodecan konkurrieren also um den vorhandenen Fluss:

$$W_{PXE} = \frac{R_{PXE}}{R_{C_{12}} + R_{PXE}} = \frac{\sigma_{PXE} n_{PXE}}{\sigma_{PXE} n_{PXE} + \sigma_{C_{12}} n_{C_{12}}} = \frac{\eta \cdot x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})}. \tag{3.15}$$

Dabei haben wir das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte $\eta = \frac{\sigma_{PXE}}{\sigma_{C_{12}}}$ und den molaren Anteil von PXE $x_{PXE} = \frac{n_{PXE}}{n_{PXE} + n_{C_{12}}}$ eingeführt.

Die Zahl der tatsächlich angeregten Moleküle in reinem PXE bzw. reinem Dodecan nennen wir N_0^{PXE} bzw. $N_0^{C_{12}}$. Insgesamt ergibt sich also

$$\begin{aligned}
 N_P &= \int_{-\infty}^{\infty} \lambda_e A^*(t) dt \\
 &= N_0^{PXE} \cdot \frac{\eta \cdot x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{\lambda_e}{\lambda_e + \lambda_{sq}A} \cdot \frac{\lambda_a A}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \\
 &\quad + N_0^{C_{12}} \cdot \frac{1 - x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{\lambda_e}{\lambda_e + \lambda_{sq}A} \cdot \frac{\lambda_a A}{\lambda_a A + \lambda_i + \lambda_q Q} \cdot \frac{\lambda_{d_1} D_1}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1} \\
 &\quad + N_0^{C_{12}} \cdot \frac{1 - x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{\lambda_e}{\lambda_e + \lambda_{sq}A} \cdot \frac{\lambda'_a A}{\lambda'_a A + \lambda'_i + \lambda'_q Q + \lambda_{d_1} D_1}.
 \end{aligned} \tag{3.16}$$

Aus praktischen Gründen gibt man die Konzentrationen gerne in g/l an. Deshalb definiert man neue Energietransferkonstanten k (siehe Tabelle 3.1). Die experimentell bestimmte Lichtausbeute wird in Einheiten eines Standards (I(PXE + 6 g PPO/l):=100)

angegeben. Man kann in Gleichung (3.17) die drei Terme direkt den drei verschiedenen Pfaden zuordnen (siehe Abb. 3.4), die zur Lichtausbeute beitragen: Der erste Term repräsentiert die Anregung von PXE mit Energietransfer zu PPO und anschließender Emission. Der zweite Term steht für die Anregung von Dodecan, den Transfer zu PXE und von dort zu PPO und anschließender Emission. Der dritte Term entspricht dem ersten Term für Dodecan anstelle von PXE:

$$\begin{aligned}
 I_{target}(d_1, a, q) = & I_0^{PXE} \cdot \frac{\eta \cdot x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a} + \frac{k_{q}q}{k_a a}} \\
 + I_0^{C_{12}} \cdot & \frac{1 - x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a} + \frac{k_{q}q}{k_a a}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_a a}{k_{d_1} d_1} + \frac{k'_i}{k_{d_1} d_1} + \frac{k'_q q}{k_{d_1} d_1}} \\
 + I_0^{C_{12}} \cdot & \frac{1 - x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_i}{k'_a a} + \frac{k'_q q}{k'_a a} + \frac{k_{d_1} d_1}{k'_a a}}.
 \end{aligned} \tag{3.17}$$

Gamma Catcher

Analog zur Ableitung der Lichtausbeutegleichung für das Target (3.17) stellen wir die Gleichung für den Gamma Catcher auf. Die Situation wird hier durch das dritte Lösungsmittel komplizierter, dafür fehlt im Gamma Catcher das Gadolinium. Weil Mineralöl (MO) aus ähnlichen Komponenten besteht wie Dodecan werden einige vereinfachende Annahmen gemacht (die Parameter für Mineralöl werden mit zwei Strichen gekennzeichnet):

- Der Wirkungsquerschnitt von Dodecan und Mineralöl ist gleich groß.
- Bis auf die Parameter k'_i/k'_a und I_0^{MO} werden für Dodecan und Mineralöl die gleichen Werte für die Lichtausbeuteparameter angenommen.

Damit erhält man für die Lichtausbeute im Gamma Catcher

$$\begin{aligned}
 I_{GC}(x_{PXE}, x_{C_{12}}, a) = & I_0^{PXE} \cdot \frac{\eta \cdot x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a}} \\
 + I_0^{C_{12}} \cdot & \frac{x_{C_{12}}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_a a}{k_{d_1} d_1} + \frac{k'_i}{k_{d_1} d_1}} \\
 + I_0^{C_{12}} \cdot & \frac{x_{C_{12}}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_i}{k'_a a} + \frac{k_{d_1} d_1}{k'_a a}} \\
 + I_0^{MO} \cdot & \frac{x_{MO}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_a a}{k_{d_1} d_1} + \frac{k'_i}{k_{d_1} d_1}} \\
 + I_0^{MO} \cdot & \frac{x_{MO}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_i}{k'_a a} + \frac{k_{d_1} d_1}{k'_a a}}.
 \end{aligned} \tag{3.18}$$

Die Parameter des Modells für das Target und für den Gamma Catcher können experimentell bestimmt werden (siehe Kapitel 4). Damit ist man in der Lage, die Lichtausbeute mithilfe des Modells zu optimieren, ohne für alle möglichen Kombinationen der 5 Szintillatorkomponenten Messreihen durchzuführen. Anschließend können die Vorhersagen dann mit Messungen überprüft und die Zusammensetzungen feinabgestimmt werden (siehe Kapitel 4). Man erhält aus dem Modell die Beiträge der einzelnen Energietransferpfade und kann in gewissen Grenzen durch die Wahl der Zusammensetzung kontrollieren, wie viel die einzelnen Pfade zur Lichtausbeute beitragen. Diese Informationen tragen zu einem tieferen Verständnis der Prozesse, die im Flüssigszintillator stattfinden bei. Die Struktur von Gleichung (3.17) zeigt direkt die Konkurrenz der drei Pfade zu den einzelnen Energieverlusttermen. Das Lichtausbeutemodell liefert außerdem über die Raten eine Abschätzung des Zeitprofils des Szintillators (siehe Kapitel 5).

4 Lichtausbeutemessungen

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden sämtliche Parameter des in Kapitel 3.3.2 vorgestellten Modells für das Target mithilfe von Lichtausbeutemessungen bestimmt. Dabei geht man schrittweise von einfachen Szintillatormischungen zu komplizierteren über und bestimmt nach und nach die einzelnen Parameter. Mit diesen Ergebnissen ist eine Vorhersage der Lichtausbeute für jede beliebige Szintillatorkombination möglich. Vorhersagen für bestimmte Szintillatorzusammensetzungen wurden anschließend experimentell überprüft, um am Ende eine optimierte Szintillatorkombination für das Target und den Gamma Catcher zu erhalten.

Der experimentelle Aufbau für die Lichtausbeute änderte sich im Laufe meiner Diplomarbeit. Anfangs wurde ein Aufbau verwendet, bei dem eine Messung relativ schnell durchgeführt werden konnte (siehe Kapitel 4.1). Um systematische Fehler zu reduzieren, wurden die Messungen zur Überprüfung des Modells am Ende des Optimierungsprozesses der Szintillatorzusammensetzung mit einem verbesserten Aufbau durchgeführt (siehe Kapitel 4.2).

4.1 Experimenteller Aufbau der Compton-Spektrum-Messung

4.1.1 Messprinzip

Zur Anregung der Szintillation wurde eine ^{137}Cs γ -Quelle¹ benutzt. Die Halbwertszeit dieses Isotops beträgt 30.17 Jahre und die Photonenenergie 662 keV [Bro78]. Bei dieser Energie wechselwirken die Photonen im Flüssigszintillator hauptsächlich über den Compton-Effekt. Das Elektron produziert in der Szintillatorprobe einen Lichtblitz, den man mit einem Photomultiplier aufnimmt. Die Quelle wird zusammen mit der Szintillatorzelle in einer Aluminiumbox untergebracht (siehe Abb. 4.1). Der PMT ist an diese Box angeschraubt und wird mit ihr zusammen zur weiteren Lichtabschirmung in eine (hier nicht gezeichnete Holzbox) gestellt.

Das Signal des Photomultipliers wird direkt mit einem digitalen Oszilloskop (Tektronix TDS 7054) analysiert. Die deponierte Energie ist proportional zu der Zahl der im Szintillator erzeugten Photonen und damit zur Gesamtladung, die der Photomultiplier misst. Die Gesamtladung ist proportional zum Integral über den Spannungspuls. Das digitale Oszilloskop kann die Pulse in Echtzeit integrieren und ein Histogramm mit den Werten der Integration erzeugen (siehe Abb. 4.2). Dieses Histogramm zeigt das

¹Die Aktivität der Quelle betrug (am 1.7.2007) 269 kBq

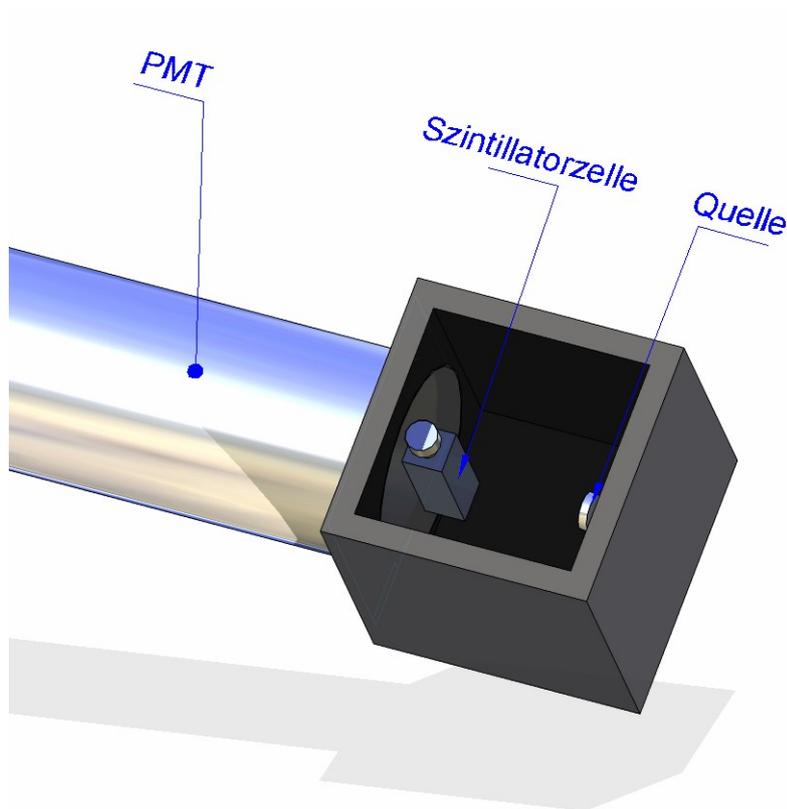


Abbildung 4.1: Compton-Spektrum-Aufbau für die Lichtausbeutemessungen.

Compton-Spektrum der Elektronen aus der primären Streuung (siehe Abb. 4.3).

4.1.2 Auswertung der Compton-Spektren

Um die Lichtausbeute (Zahl der Photonen pro MeV deponierter Energie) für einen Szintillator zu bestimmen, braucht man einen definierten Punkt im Spektrum, für den man die Energie kennt. Dafür eignet sich die Compton-Kante; sie wird allerdings durch die begrenzte Auflösung der Messung verbreitert (siehe Abb. 4.3). Dieser Fehler setzt sich unter anderem aus den statistischen Schwankungen in der Zahl der produzierten Photonen, der Zahl der ausgelösten Photoelektronen in den Dynoden des PMTs und der Schwankung der Grundlinie des Pulses zusammen.

Wir kennen die Energie der Compton-Kante für eine Streuung unter dem Winkel 180°

$$E_{e^-}(\varphi = 180^\circ) = h\nu \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2} (1 - \cos(\varphi = 180^\circ))} \right) \approx 478 \text{ keV}. \quad (4.1)$$

Die Schwierigkeit besteht darin, die Lage der Compton-Kante in dem gemessenen Spektrum zu bestimmen. Wir machen die Annahme, dass der Fehler jeder Einzelmessung

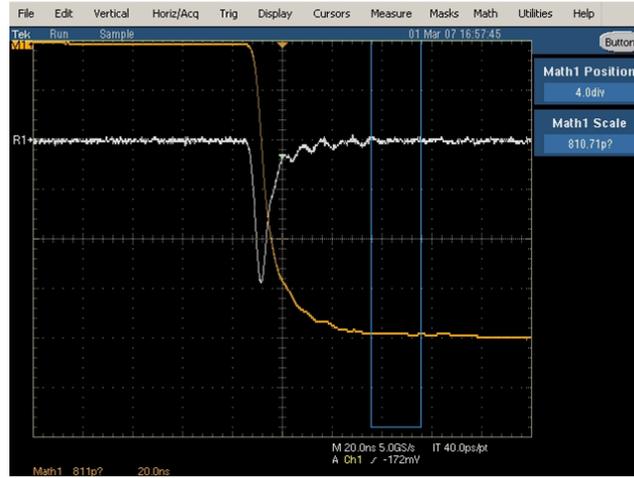


Abbildung 4.2: Screenshot des digitalen Oszilloskops: Die weiße Linie stellt einen Puls des PMT dar, die gelbe Linie zeigt die Integration des Pulses. Nach dem Puls wird das Integral in der blauen Box ausgelesen und in ein Histogramm geschrieben. Die Zeitskala beträgt 20 ns pro Kästchen.

der Gesamtladung Gauß-verteilt ist. Damit ist das gemessene Spektrum $f(x)$ eine Faltung aus dem theoretischen Compton-Spektrum $f(x)_{th}$ und einer Gauß-Kurve $g(x)$ mit unbekannter Breite:

$$f(x) = f(x)_{th} \otimes g(x) = \int_{-\infty}^{\infty} f(u) \cdot g(x - u) du. \quad (4.2)$$

Da das theoretische Compton-Spektrum recht flach verläuft machen wir die Annahme, dass es durch die Heaviside-Stufenfunktion $\Theta(-x + 478)$ beschrieben werden kann (Definition: $\Theta(x) = 0$ für $x < 0$ und $\Theta(x) = 1$ für $x \geq 0$). Damit erhält man für die Position der Compton-Kante unabhängig von der Größe der Streuung σ

$$f(478) = \int_{-\infty}^{\infty} \Theta(-u + 478) \cdot g(u - 478) du = \int_{-\infty}^{\infty} \Theta(-v) \cdot g(v) dv = \frac{1}{2}. \quad (4.3)$$

Dabei wurde die Substitution $v = u - 478$ durchgeführt. Wenn man also das Compton-Spektrum bei der halben Höhe des Maximums abliest erhält man in dieser Näherung die Gesamtladung, die einer deponierten Energie von 478 keV entspricht. Diese Methode wurde für die Lichtausbeutemessungen angewendet, bei denen die Compton-Spektrum-Methode benutzt wurde.

Bei einer genaueren Betrachtung berücksichtigt man die korrekte Form des differentiellen Wirkungsquerschnitts der Compton-Streuung. Dieser Wirkungsquerschnitt ist durch die Klein-Nishina-Formel gegeben [Kle29]. Außerdem skaliert die Auflösung der Messung mit der Wurzel aus der Gesamtladung am PMT. Das entspricht einer Faltung mit einer Gauß-Kurve mit einer Breite, die sich mit der Wurzel aus der Gesamtladung ändert. Als Ergebnis erhält man ein Compton-Spektrum, bei dem die Lage der Compton-Kante

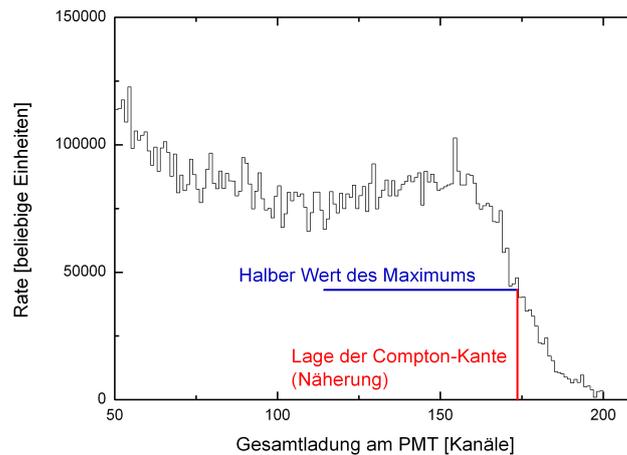


Abbildung 4.3: Compton-Spektrum im Flüssigszintillator. Dieses Spektrum wurde mit einer ^{137}Cs -Quelle aufgenommen. Damit liegt die Energie der Compton-Kante bei 478 keV. Das Problem besteht darin, die Lage der Compton-Kante in diesem Spektrum zu bestimmen. Als Näherung nehmen wir den Kanal, bei dem der halben Wert des Maximums erreicht wird (siehe Text). Für verschiedene Flüssigszintillatoren vergleicht man die auf diese Art bestimmte Kanalnummer. Damit erhält man die relative Lichtausbeute.

relativ zum Maximum von der Gesamtladung abhängt.

In unserer Analyse über den halben Wert des Maximums machen wir deshalb einen systematischen Fehler. Auch beim relativen Vergleich zweier Szintillatoren mit unterschiedlicher Lichtausbeute hebt sich dieser Fehler nicht ganz auf. Mit dem neuen Aufbau, der im nächsten Kapitel beschrieben wird, werden diese systematischen Fehler eliminiert.

4.2 Experimenteller Aufbau der Compton-Rückstreu-Messung

Messprinzip der Compton-Rückstreu-Methode

Bei dieser Art der Messung nutzt man das gestreute Photon aus der Compton-Wechselwirkung. Es kann den Szintillator wieder verlassen und in einem Natrium-Iodid-Kristall ein weiteres Signal hervorrufen. Dieses wird dann von einem zweiten Photomultiplier detektiert. Abbildung 4.4 zeigt die Anordnung für die Compton-Rückstreu-Methode. Betreibt man die zwei PMTs in der gezeigten Geometrie in Koinzidenz, dann selektiert man Ereignisse, bei denen der Streuwinkel ca. 180° beträgt. Damit kennt man für dieses

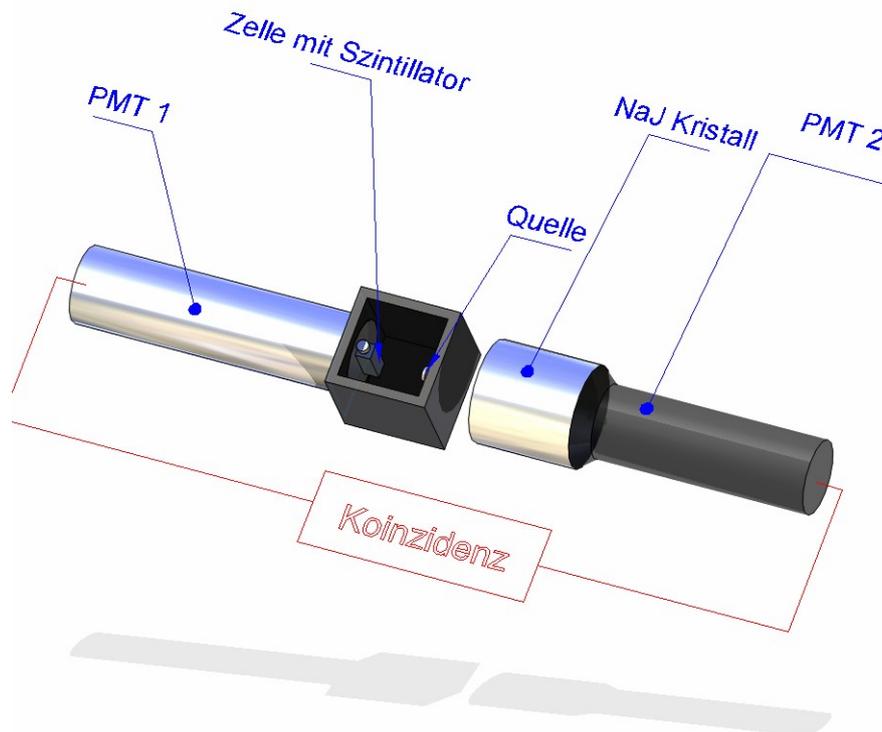


Abbildung 4.4: Compton-Rückstreu-Aufbau für die Lichtausbeutemessungen: Zusätzlich zum Aufbau aus Abbildung 4.1 wird noch ein NaI-Kristall mit einem zweiten PMT benutzt.

Ereignis die Energie des Elektrons und damit die Energie, die im Szintillator deponiert wird (siehe Gleichung (4.1)).

4.2.1 Elektronik

Um die Signale der Photomultiplier zu verarbeiten und die Koinzidenz zu erzeugen, benutzt man mehrere NIM-Module (siehe Abb. 4.5). Die Signale der beiden Photomultiplier werden zunächst dupliziert. Jeweils ein Signal wird von einem Diskriminator in ein logisches Signal umgewandelt. Diese werden dazu benutzt, die Koinzidenz zu erzeugen. Findet je ein Ereignis in den beiden aktiven Volumina (Flüssigszintillator und NaI-Kristall) innerhalb der Koinzidenzzeit statt, dann liefert die Koinzidenzeinheit ein logisches Signal. Dieses wird verwendet, um das digitale Oszilloskop zu triggern. Aufgenommen werden die beiden Rohsignale der PMTs. Das digitale Oszilloskop ist in der Lage die Pulse der PMTs hintereinander in zwei Dateien zu schreiben. Damit kann man nach der Messung eine Softwareanalyse der Pulse durchführen. Ein Nachteil dieser Datenverarbeitung ist die begrenzte Geschwindigkeit und damit die begrenzte Netto-Rate des Gesamtaufbaus.

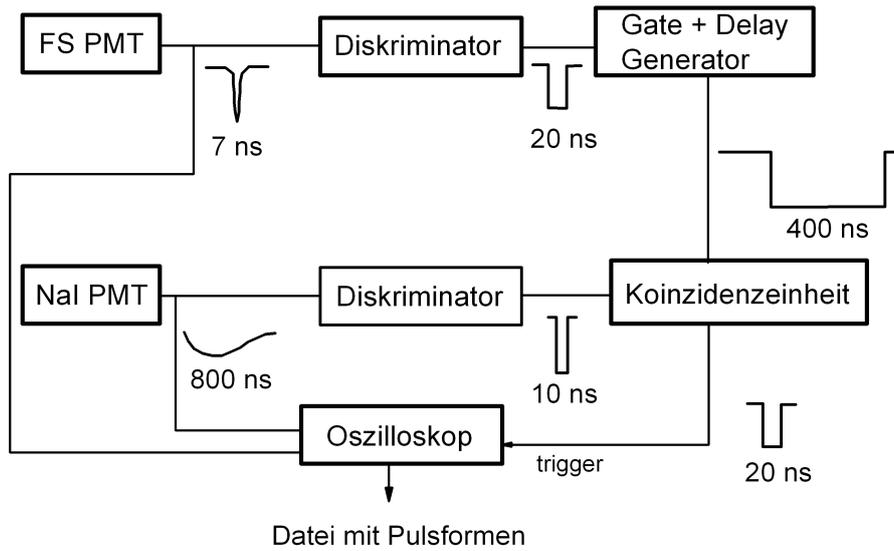


Abbildung 4.5: Elektronik für die Lichtausbeutemessung (FS steht für Flüssigszintillator). Eine Skizze der Signale mit einer typischen Dauer der Pulse ist angegeben (volle Breite für die logischen Signale und Anstiegszeit für die Originalsignale). Die Einzelraten für das FS- und NaI-Signal betragen etwa 80 Hz bzw. 3800 Hz.

4.2.2 Optimierung der Geometrie

Den Abstand zwischen der Quelle und der Szintillatorzelle bzw. dem NaI-Kristall nennen wir a bzw. b . a und b können zunächst unabhängig voneinander gewählt werden. Diese Abstände sollen optimiert werden. Weil der NaI-Kristall und die Zelle eine endliche Ausdehnung haben, erhält man auch eine Koinzidenz, wenn der Winkel nicht exakt 180° und damit die Energie nicht exakt 478 keV beträgt (siehe Abb. 4.6). Das beeinträchtigt die Bestimmung der Lichtausbeute. Man kann die Genauigkeit der Energiebedingung erhöhen, indem man den Abstand zwischen den beiden PMTs erhöht. Dabei wird aber die Ereignisrate kleiner. In der Praxis muss man abwägen zwischen einer möglichst genauen Energiebedingung und einer ausreichenden Koinzidenzrate. Dazu wurde eine Optimierung vorgenommen. Falls das Photon auf die Ecke der Flüssigszintillatorzelle trifft und anschließend auf die Ecke des NaI-Kristalls zurückgestreut wird erhält man den Winkel

$$\alpha_1(a, b) = \arctan \left[\frac{l_{FS}}{2a} \right] + \arctan \left[\frac{l_{NaI} - l_{FS}}{2(a+b)} \right]. \quad (4.4)$$

Für diesen Fall definieren wir die Abweichung in der Energie als

$$\chi(a, b) = \frac{E_{e^-}(\varphi_1(a, b))}{E_{e^-}(180^\circ)} \quad \text{mit} \quad \varphi_1(a, b) = 180^\circ - \alpha_1(a, b). \quad (4.5)$$

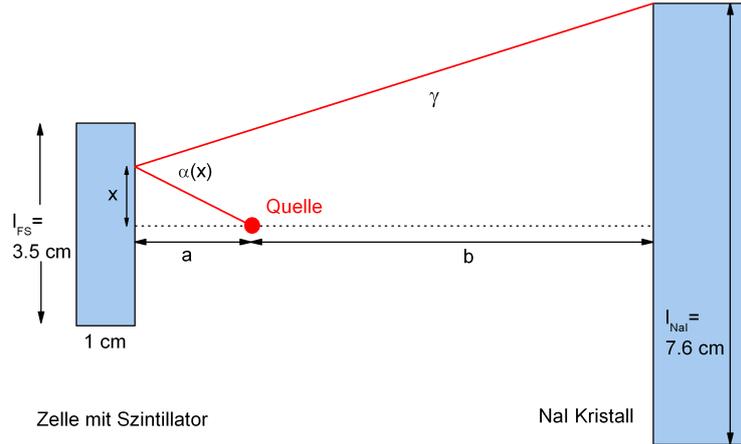


Abbildung 4.6: Schematische Darstellung der Geometrie der Compton Rückstreuung (Seitenansicht).

$E_e(\varphi_1(a, b))$ lässt sich mit Gleichung (4.1) ausrechnen. Da die Cosinus-Funktion um den Wert 180° herum flach verläuft ist die Energiebedingung auch noch für Abstände in der Größenordnung der Abmessungen der aktiven Volumina relativ gut erfüllt. Dieser Umstand erlaubt es uns auch, ohne eine fokussierende Abschirmung auszukommen.

$\chi(a, b)$ soll minimiert werden, ohne dabei in der Rate zu viel zu verlieren. Dazu geben wir zunächst diejenige Rate vor, die wir benötigen, um in einer angemessenen Zeit und mit einem akzeptablen Signal-zu-Untergrund Verhältnis Daten zu nehmen und drücken die Rate R_{th} durch a und b aus:

$$R_{th}(a, b) = A \cdot \frac{\Omega_1(a, b)}{4\pi} \cdot \frac{\Omega_2(a, b)}{4\pi} \cdot \eta_{662} \cdot \eta_{184}. \quad (4.6)$$

Dabei steht A für die Aktivität der Quelle, $\Omega_{1,2}(a, b)$ für das Raumwinkelelement der Zelle von der Quelle aus gesehen bzw. für das Raumwinkelelement des NaI Kristalls von der Zelle aus betrachtet und $\eta_{662,184}$ für die Wahrscheinlichkeiten, dass Photonen mit der Energie 662 keV bzw. 184 keV nur in den aktiven Volumina absorbiert werden [Phi]. $\Omega_1(a, b)$ und $\Omega_2(a, b)$ ergeben sich aus der rechteckigen Geometrie der Szintillatorzelle bzw. der zylindrischen Geometrie des NaI-Kristalls. η_{662} und η_{184} erhält man aus Durchdringungstabellen für Photonen. Die Photonen müssen durch die Aluminiumbox, die Holzschicht, die Zelle und die Hülle des NaI-Kristalls dringen.

Diese Abschätzung der Rate kann man experimentell nachprüfen. $R_{th}(R_{exp})$ wurde für verschiedene große Raten bestimmt. Es stellt sich heraus, dass das Verhältnis R_{th}/R_{exp} von der Rate abhängig ist. Das ist darauf zurückzuführen, dass die Datenaufnahme mit dem digitalen Oszilloskop nicht beliebig schnell funktioniert. Um die Abhängigkeit von der Rate in dem für uns interessanten Bereich von $R_{exp} = 1 \text{ Hz}$ bis $R_{exp} = 4 \text{ Hz}$ zu beschreiben, ist ein Polynom zweiter Ordnung gut geeignet. Durch einen Fit an die

gewünschte Rate R_{exp}	2 Hz
Abstand Quelle-FS a	3.9 cm
Abstand Quelle-NaI b	3.8 cm
Winkel $\alpha_1(a, b)$	42°
Energieabweichung $\chi(a, b)$	0.97

Tabelle 4.1: Ergebnis der Geometrieoptimierung: Die Rate wird vorgegeben, dann wird mit *MATHEMATICA* χ minimiert und man erhält die zugehörigen Abstände a und b. Anschließend wird aus a und b α_1 und χ berechnet.

Ratenmessungen erhält man die Parameter dieses Polynoms:

$$R_{th}(R_{exp}) = 1.8 - 3.0 \cdot R_{exp} + 3.4 \cdot R_{exp}^2. \quad (4.7)$$

Gibt man jetzt die Rate R_{exp} vor dann kann man R_{th} bestimmen. Diesen Wert für R_{th} setzt man in Gleichung (4.6) ein. Damit stehen in Gleichung (4.6) nur noch die Unbekannten a und b , so dass man a durch b ausdrücken kann. Unter dieser Nebenbedingung minimiert man den Ausdruck für $\chi(a, b)$ aus Gleichung (4.5). Außerdem können a und b nicht jeden beliebigen Wert annehmen, da z.B. der NaI-Kristall mit PMT nicht in die Holzbox passt. Daraus ergibt sich ein minimaler Wert für b . Analytisch ist die Minimierung von χ nicht möglich, deshalb wurde das Problem mit *MATHEMATICA* gelöst. Tabelle 4.1 zeigt das Ergebnis der Optimierung der Messgeometrie für eine typische vorgegebene Rate von 2 Ereignissen pro Sekunde. Bei dieser Rate kann man eine Messung inklusive Vorbereitung mit 10000 Ereignissen in etwa zweieinhalb Stunden durchführen.

4.2.3 Untergrund

Der Untergrund der Compton-Rückstreu-Messung besteht hauptsächlich aus zwei Beiträgen:

- Zufällige Koinzidenzen R_1 (2 Photonen aus der Quelle simulieren ein Rückstreu-Ereignis)
- Umgekehrter Laufweg des Photons (zuerst wird der NaI-Kristall getroffen, dann die Zelle).

Externe Quellen wie z.B. Myonen sind bei diesem Aufbau zu vernachlässigen. Es stehen zwei effektive Methoden zur Verfügung, Ereignisse der zwei Klassen von Untergrundereignissen zu unterdrücken. Die zufälligen Koinzidenzen sind proportional zur Koinzidenzzeit des Experiments: $R_1 = R_{Zelle} \cdot R_{NaI} \cdot \Delta t_{Koinz.}$. Eine Reduzierung der Koinzidenzzeit ermöglicht damit die Unterdrückung der zufälligen Koinzidenzen. Diese Methode ist durch die Schwankung in der Anstiegszeit des langsameren NaI-Signals begrenzt. Geht man

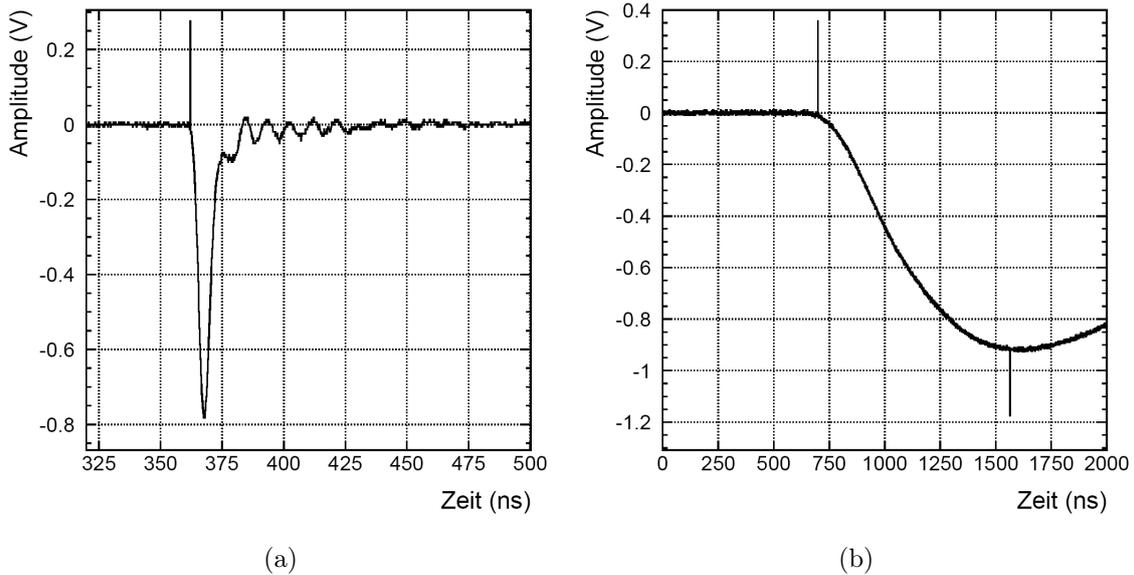


Abbildung 4.7: (a): Typischer Puls des Flüssigszintillator-PMTs. Die Linie am Beginn des Pulses dient zur optischen Kontrolle der Softwareanalyse. Sie zeigt an, wo das Programm den Startzeitpunkt für die Integration setzt. (b): Typischer vorverstärkter Puls des NaI-PMT. Zusätzlich zur Linie für den Startzeitpunkt ist hier noch eine Linie für das Maximum gezeigt.

mit der Koinzidenzzeit unter diese Schwankungen, dann verliert man zwangsläufig echte Ereignisse.

Der umgekehrte Laufweg des Photons führt zu einer umgekehrten Energiedeposition im Szintillator und im NaI-Kristall. Im Szintillator wird weniger Energie deponiert als bei den erwünschten Ereignissen und die 478 keV des primären gestreuten Elektrons werden im PMT 2 gemessen. Da die Energieauflösung des NaI-Kristalls relativ gut ist kann man Ereignisse mit einer hohen Energie identifizieren und zugehörige Ereignisse in der Szintillatorzelle verwerfen. Im nachfolgenden Kapitel wird unter anderem dieser Cut behandelt.

4.2.4 Auswertung der Compton-Rückstreu-Messungen

Das Programm *DatLog* auf dem Oszilloskop produziert eine Datei pro Oszilloskop-Kanal, in der hintereinander die Pulsformen des Kanals stehen. Die Softwareanalyse wird mit einem *FORTRAN*-Programm durchgeführt. Dieses Programm erzeugt Histogramme, welche mit *PAW* (Physics Analysis Workstation) ausgewertet werden. In Abbildung 4.7 sind zwei typische Pulse der beiden PMTs gezeigt. Dabei ist zu beachten, dass der Puls des NaI-Kristalls bereits vorverstärkt ist. Dieser Vorverstärker ist im Kristall-Photomultiplier-System fest integriert. Außerdem beachte man die unterschiedlichen

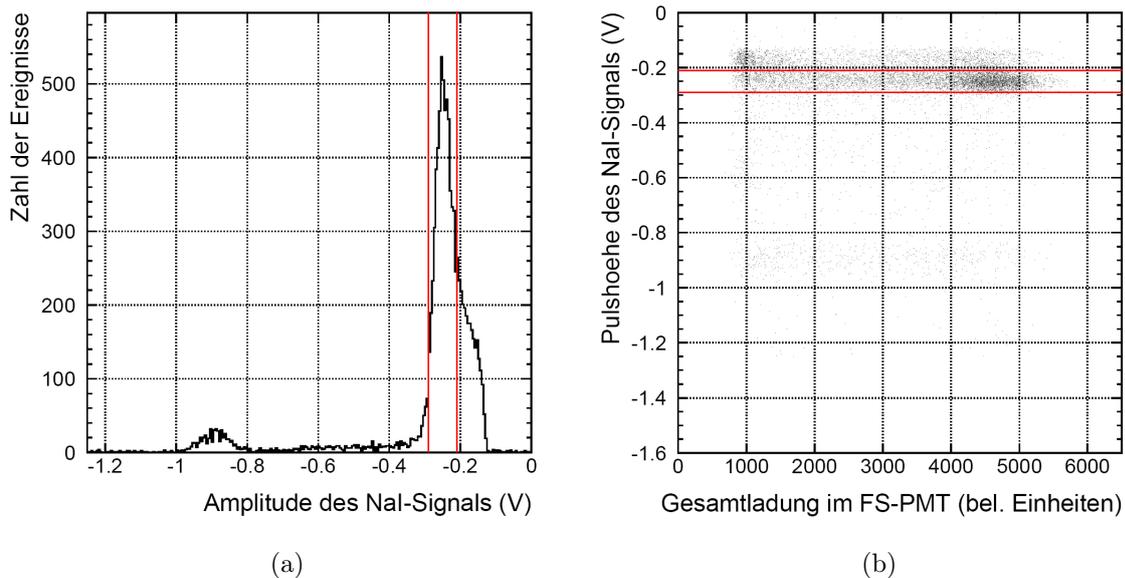


Abbildung 4.8: (a): Cut im Pulshöhenspektrum des NaI-Kristalls. Man selektiert die Ereignisse, bei denen die Energie etwa 184 keV beträgt. Diese Ereignisse liegen zwischen den roten Linien. (b): Gesamtladung im FS-PMT gegen die Pulshöhe des NaI-Signals. Man beachte, dass die Amplitude der Signale im NaI-Kristall negativ ist. Jeder Punkt entspricht einem Koinzidenzereignis. Nur Ereignisse innerhalb der zwei roten Linien erfüllen die Cut-Bedingung (184 keV des rückgestreuten Photons im NaI-Kristall) und werden in das Histogramm zur Bestimmung der Lichtausbeute (Abb. 4.9) aufgenommen.

Skalen der beiden Graphen. Der Puls des Flüssigszintillators ist einige Nanosekunden lang, während der vorverstärkte Puls des NaI-Kristalls im Mikrosekundenbereich liegt. In der Analyse werden die folgenden Schritte sukzessive wiederholt:

1. Lesen eines Ereignisses: Pro Ereignis liest man einen Puls aus der Datei für den Flüssigszintillator und den zugehörigen Puls aus der Datei für den NaI-Kristall.
2. Erste Bestimmung der Grundlinie der beiden Signale: Die Neubestimmung der Grundlinie für jeden einzelnen Puls ist sehr wichtig, weil der Offset von Puls zu Puls schwankt. Dieser Offset würde als Fehler direkt in die Bestimmung des Integrals eingehen (Punkt 4). Dazu mittelt man den Anfang des Pulses über einige hundert Kanäle.
3. Suche nach dem Startzeitpunkt des Pulses für das FS- und für das NaI-Signal: Es wird eine Schwelle definiert, mit der signifikante Abweichungen des Signals von der Grundlinie festgestellt werden. Ist die Abweichung mehrerer aufeinanderfolgender

Kanäle von der Grundlinie größer als der Schwellenwert, dann geht man davon aus, dass an dieser Stelle der Puls beginnt. Der erste Kanal von acht aufeinanderfolgenden wird als Startzeitpunkt festgelegt. Die Wahl der Schwelle hängt von der Stabilität der Grundlinie ab. Wenn man sie zu klein wählt, dann kann eine Schwankung in der Grundlinie als Puls fehlinterpretiert werden. Falls die Schwelle zu groß ist erhält man einen Startzeitpunkt, der später auftritt als der wahre Startzeitpunkt. Die Linien in Abbildung 4.7 zeigen den Wert der Startzeitpunkte an, die der Algorithmus berechnet hat.

4. Anschließend wird eine zweite Bestimmung der Grundlinie direkt vor dem Startzeitpunkt durchgeführt. Falls die Grundlinie auf größeren Skalen schwankt (z.B. Oszillation der Grundlinie) erhält man damit einen genaueren Wert für die Integration des Pulses.
5. Integration des FS-Signals. Vom Startzeitpunkt des Pulses aus geht man einige Kanäle zurück, um nichts von dem Puls zu verpassen. Das Integral wird über eine einstellbare Zahl von Kanälen ausgeführt $\sum_{i=i_{Start}}^{i_{Stop}} (\text{Wert}(\text{Kanal } i) - \text{Grundlinie})$.
6. Bestimmung der Pulshöhe des NaI-Signals als Maß für die Energie, die im NaI-Kristall deponiert wird: Man fängt bei dem bereits bestimmten Startzeitpunkt des Pulses mit der Routine an und liest schrittweise die Kanäle aus und sucht nach dem größten Wert. Nur Ereignisse, bei denen diese Pulshöhe des NaI-Signals innerhalb eines einstellbaren Cut-Bereichs liegt, werden als Compton-Rückstreu-Ereignisse akzeptiert.
7. Schreiben der Daten in verschiedene Histogramme
 - Einzel-Pulsform (ein Histogramm für jeden Puls): siehe Abbildung 4.7.
 - Kombinierte Pulsform für alle Pulse im FS: Hier werden alle FS-Pulse übereinandergelegt. Dazu werden die Startzeitpunkte angeglichen. Mithilfe dieser mittleren FS-Pulsform kann man die Integrationsspanne optimieren, die für jeden Puls verwendet wird.
 - Spektrum der Gesamtladung am FS-PMT bzw. Pulshöhenspektrum für den NaI-PMT (siehe Abbildung 4.8). Das Integral über den Puls bzw. die Pulshöhe ergibt pro Puls einen Eintrag in dieses Spektrum.
 - Graph mit Pulshöhe des NaI-Signals gegen die Gesamtladung im FS-PMT (diese wird über das Integral des FS-Signals bestimmt). Diese Darstellung (siehe Abb. 4.8) gibt uns die Möglichkeit, die verschiedenen Populationen von Ereignissen zu betrachten. Man kann direkt den Cut auf die Energie-deposition im NaI-Kristall kontrollieren: rückgestreute Photonen mit einer Energie von etwa 184 keV sollen im NaI selektiert werden. Dieser Energie entspricht etwa die Pulshöhe innerhalb der roten Linien. Zufällige Koinzidenzen sind über den gesamten Bereich des Graphen verteilt. Außerdem gibt es viele Ereignisse, bei denen nicht die volle Energie des Compton-Elektrons beim

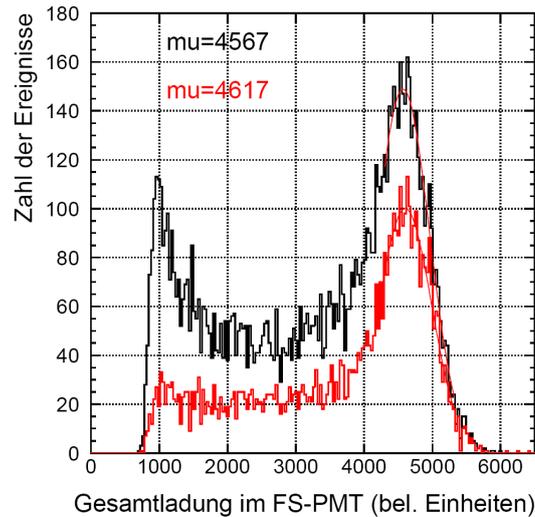


Abbildung 4.9: Compton-Rückstreu-Spektrum: Die schwarze Linie zeigt das Spektrum vor dem Cut auf die Energiedeposition im NaI-Kristall, die rote Linie das Spektrum nach dem Cut, welches zur Bestimmung der Lichtausbeute verwendet wird. Man sieht, dass vor allem Ereignisse mit kleiner Energiedeposition im FS durch den Cut verworfen werden können. Der Compton-Rückstreu-Peak korrigiert sich dadurch etwas nach rechts.

Flüssigszintillator beziehungsweise die Gesamtenergie des Photons beim NaI-Kristall registriert wird. Die Ereignisse aus dem umgekehrten Laufweg der Photonen werden durch die Schwelle des Diskriminators für die FS-Signale (in dieser Darstellung etwa bei 800) abgeschnitten. Ereignisse, die im NaI-Kristall bei der richtigen Energie von 184 keV detektiert werden, im FS aber weniger als die erwarteten 478 keV deponieren, können teilweise durch zufällige Koinzidenzen und teilweise durch Randeffekte in der Szintillatorzelle erklärt werden: Compton-Elektronen können ihre Energie statt im Szintillator in der Zellenwand verlieren, wo sie kein Licht produzieren.

- Spektrum der Gesamtladung im FS-PMT nach dem Cut (siehe Abb. 4.9). In dieses Spektrum kommen nur Einträge aus Ereignissen, bei denen die Energie im NaI-Kristall der Compton-Rückstreu-Energie des Photons von etwa $662 \text{ keV} - 478 \text{ keV} = 184 \text{ keV}$ entspricht.

Mit diesem letzten Histogramm bestimmt man die Lichtausbeute, indem man einen Fit mit einer Gauß-Kurve im Bereich des Compton Peaks macht. Der Mittelwert der Gauß-Verteilung entspricht der Gesamtladung im FS-PMT für ein Ereignis, bei dem 478 keV im Szintillator deponiert werden. Dieser Wert ist proportional zur Lichtausbeute.

Lösungsmittel	Lichtausbeute [% Standard]
PXE	100
Dodecan	45.0 ± 1.0
Mineralöl	38.0 ± 2.0
Lineares Alkylbenzol (LAB)	83.9 ± 2.0

Tabelle 4.2: Lichtausbeute für die verschiedenen Lösungsmittel. Es wurde jeweils PPO mit einer Konzentration von 6 g/l verwendet. Als Standard wurde PXE plus 6 g PPO/l verwendet. Der Werte für Dodecan und LAB wurden mit der Compton-Rückstreu-Methode aufgenommen, der Wert für das Mineralöl mit der Compton-Spektrum-Methode.

4.3 Ergebnisse

Die Messung der Lichtausbeute wird immer als Relativmessung durchgeführt. Man vergleicht die Gesamtladung im PMT für die Probe mit der Gesamtladung für einen Szintillatorstandard. Unser Standard der Lichtausbeutemessungen ist PXE + 6 g PPO/l. Dieser Szintillator hat eine vergleichsweise hohe Lichtausbeute und ist einfach herzustellen. Falls nicht ausdrücklich anders definiert beziehen sich im Folgenden Prozentangaben immer auf diesen Standard. Die optimierten Szintillatorzusammensetzungen werden zusätzlich relativ zu dem kommerziell erhältlichen Standard BC505 gemessen. Bei BC505 beträgt die absolute Zahl der Photonen etwa 12000 pro MeV; damit kann man diese Zahl über die Relativmessung zu BC505 für eine beliebige Probe ebenfalls bestimmen. Anfangs wurden einige Messreihen mit vielen verschiedenen Proben aufgenommen. Deshalb war die schnellere Compton-Spektrum-Messung sinnvoll. Die Herstellung der Szintillatoren, die ein Teil dieser Arbeit war, trägt wesentlich zur Dauer einer Messung bei. Zur Feinabstimmung der Szintillatoren wurde die präzisere Compton-Rückstreu-Methode angewendet. In den Daten ist jeweils vermerkt, mit welcher der beiden Methoden gemessen wurde.

4.3.1 Lichtausbeute der Lösungsmittel

Zunächst betrachten wir die Lichtausbeute eines einzelnen Lösungsmittels plus 6 g PPO/l relativ zu dem Standard PXE plus 6 g PPO/l. Man benötigt das Fluor, da man sonst kein Szintillationslicht erhält. Das Lösungsmittel ist für seine eigene Emission nicht transparent genug, als dass man die spontane Emission sehen könnte. Durch häufige Reabsorption steigt die Wahrscheinlichkeit, dass das Licht durch strahlungslose interne Verluste verloren geht. Wir wählen eine Konzentration von 6 g PPO/l, damit wir uns deutlich über der kritischen Konzentration befinden. So erhalten wir einen sinnvollen Wert, um die Lösungsmittel miteinander zu vergleichen.

In Tabelle 4.2 sind die Werte der Lichtausbeute relativ zum Standard für die Lösungsmittel angegeben, die in Double Chooz verwendet werden. PXE und Dodecan sind die Lösungsmittel für das Target, zusammen mit Mineralöl werden sie im Gamma Catcher

verwendet. Für das Innere Veto verwendet man LAB.

PXE hat von den Lösungsmitteln die höchste Lichtausbeute. LAB ist eine weitere Option für das Target. Obwohl Dodecan kein aromatisches Molekül ist, weist es eine relativ hohe Lichtausbeute auf. In Mineralöl ist die Lichtausbeute etwas geringer. Das kann damit erklärt werden, dass die Anregung durch Ionisation und anschließende Rekombination für Kohlenwasserstoffe mit verzweigten Ketten geringer ist als für Moleküle mit linearen Ketten [Shk01]. Für diese Messungen wurde Dodecan in Form von linearen Ketten (n-Dodecan) verwendet; Mineralöl dagegen besteht aus einer Mischung von linearen und verzweigten Kohlenwasserstoffen.

Die relative Lichtausbeute des Standards im Vergleich zu BC505 kann ermittelt werden, indem man bis-MSB zugibt. Damit hat die Emission das selbe Spektrum und die Effizienz des PMTs ist für beide Proben dieselbe. Man erhält für den Standard eine Lichtausbeute von 88.1 % BC505 (Methode: Compton-Rückstreu-Messung).

4.3.2 Bestimmung der Parameter des Lichtausbeutemodells

Aus den Gleichungen in Kapitel 3.3.2 kann man erkennen, dass in dem Lichtausbeutemodell mehrere Parameter direkt korreliert sind. Es tauchen ausschließlich Terme der Form k_1/k_2 auf. Das entspricht der Tatsache, dass die Lichtausbeutemessungen nur sensitiv auf die Verhältnisse der Raten sind. Im Folgenden wird von einem Parameter geredet, wenn ein Verhältnis k_1/k_2 gemeint ist.

Um die Parameter schrittweise bestimmen zu können, geht man von einfachen Szintillatormischungen zu komplizierteren über. Die einfachste mögliche Mischung besteht aus einem Lösungsmittel und dem primären Fluor PPO.

Lösungsmittel plus Fluor

Für den Fall PXE + PPO vereinfacht sich die die Formel für die Lichtausbeute 3.17 stark:

$$I^{PXE}(a) = I_0^{PXE} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a}}. \quad (4.8)$$

Abbildung 4.10 zeigt die Lichtausbeutedaten für verschiedene Konzentrationen von PPO. Man beobachtet einen starken Anstieg der Lichtausbeute mit ansteigender PPO-Konzentration. Bei einem Wert von ca. 5 g/l tritt ein Sättigungseffekt auf. Der Transfer von PXE zu PPO ist hier bereits sehr effektiv. Bei sehr großen PPO-Konzentrationen fällt die Lichtausbeute dann wieder langsam ab. Dieser Effekt ist auf das Self-Quenching der PPO-Moleküle zurückzuführen. Wenn die Konzentration der PPO-Moleküle steigt wird die Wahrscheinlichkeit größer, dass ein angeregtes PPO-Molekül auf ein nicht-angeregtes PPO-Molekül trifft und die Anregungsenergie durch einen Stoß oder durch Dimer-Bildung in Wärme übergeht. Die hohen Werte für die PPO-Konzentration bestimmen damit den Self-Quenching-Parameter k_{sq}/k_e . Der anfängliche Anstieg ist durch die Effizienz des Energietransfers von PXE zu PPO im Vergleich zu internen Verlusten in PXE bestimmt und liefert deshalb den Parameter k_i/k_a . Dieser Parameter kann als

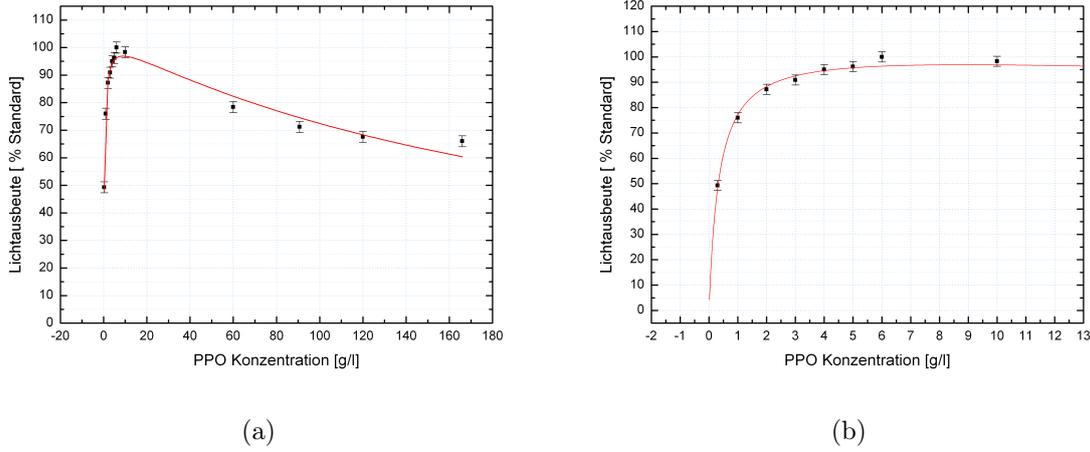


Abbildung 4.10: Verschiedene PPO-Konzentrationen in PXE. Fitfunktion: Gleichung (4.8). Bestimmte Parameter: k_i/k_a und k_{sq}/k_e . Methode: Compton-Spektrum. Abbildung (b) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt von (a).

eine kritische Konzentration für den Energietransfer von PXE zu PPO aufgefasst werden. Alle Parameter werden am Ende dieses Kapitels in Tabelle 4.3 angegeben.

In Abbildung 4.11 ist die analoge Messung für Dodecan anstelle von PXE gezeigt. Man erhält aus dieser Messung die analogen Parameter k'_i/k'_a und k'_{sq}/k'_e . Die Löslichkeit von PPO in Dodecan ist nicht so hoch wie in PXE. Deshalb kann die Messung nicht bei höheren PPO-Konzentrationen als 50 g/l durchgeführt werden. Der Self-Quenching-Effekt in Dodecan ist aber deutlich stärker als in PXE. Diese Beobachtung kann mit der verschiedenen Viskosität der Lösungsmittel erklärt werden. Die Viskosität von Dodecan ist niedriger als die von PXE. Damit können sich einzelne angeregte PPO-Moleküle schneller bewegen und die Wahrscheinlichkeit für ein Zusammentreffen mit einem nicht-angeregten PPO-Molekül steigt. Die größere Wahrscheinlichkeit für Self-Quenching spiegelt sich in einem größeren Parameter $k'_{sq}/k'_e \geq k_{sq}/k_e$ wieder. Der Anstieg der Lichtausbeute bei kleinen PPO-Konzentrationen ist langsamer als in PXE, d.h. der Energietransfer von Dodecan zu PPO im Vergleich zu den internen Verlusten in Dodecan ist nicht so effektiv wie bei PXE. Man braucht also mehr PPO, um die internen Verluste auszugleichen.

Die Lichtausbeute ist für Dodecan plus PPO generell niedriger als für PXE plus PPO, weil die Anregung der π -Elektronen in den Phenylringen der PXE-Moleküle effektiver als die Anregung der Dodecan-Moleküle durch Ionisation und Rekombination ist (siehe Kapitel 3.1). Die Bestimmung der Parameter I_0^{PXE} und I_0^{C12} erfolgt indirekt über die Bestimmung der Parameter k'_{sq}/k'_e , k_{sq}/k_e , k'_i/k'_a und k_i/k_a und aus der Definition des Standards $I(a = 6g/l) := 100\%$. Aus Gleichung (4.8) folgt

$$I^{PXE}(a = 6g/l) = 100\% = I_0^{PXE} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a} \frac{1}{6}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}}{k_e} \cdot 6}. \quad (4.9)$$

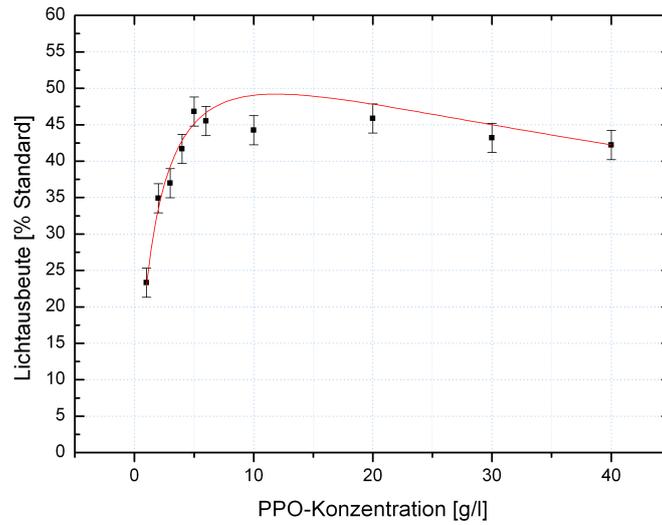


Abbildung 4.11: Verschiedene PPO-Konzentrationen in Dodecan. Fitfunktion: Gleichung (4.8) mit den gestrichelten Parametern. Bestimmte Parameter: k'_i/k'_a und k'_{sq}/k'_e . Methode: Compton-Spektrum.

Diese Gleichung wird nach I_0^{PXE} aufgelöst und die bekannten Parameter werden eingesetzt. Alternativ könnte man I_0^{PXE} auch einfach mit einem Fit ermitteln, wenn man den Datenpunkt PXE + 6 g PPO/l auf 100 % setzt. Diese Methode ist aber ungenauer, da man den Fehler der Messung eines Datenpunkts direkt auf I_0^{PXE} überträgt. Bei der Bestimmung über die Parameter benutzt man dagegen die Information aus allen Datenpunkten der Messreihe zur Bestimmung von I_0^{PXE} . Für die Bestimmung von I_0^{C12} braucht man zusätzlich zu den beiden Parametern k'_{sq}/k'_e und k'_i/k'_a eine Lichtausbeutemessung relativ zum Standard. Dieser Wert muss möglichst robust sein, weil der Fehler direkt in die Bestimmung von I_0^{C12} eingeht. Die Messung des Werts $I^{C12}(a=6)/I^{PXE}(a=6) = 0.45$ wurde aus diesem Grund etwa 10 mal wiederholt und der Mittelwert gebildet:

$$I_0^{C12} = 100\% \cdot 0.45 \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_{sq}}{k'_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_i}{k'_a}}. \quad (4.10)$$

Lösungsmittel plus Fluor plus Gadolinium

Als nächstes gehen wir zu einem komplizierteren Szintillator mit Gadolinium über. Das Gadolinium wird in Double Chooz benötigt, um Neutronen aus der Neutrinoreaktion nachzuweisen. Der Gadolinium-Komplex hat aber auch auf die Lichtausbeute eine Auswirkung. Durch ihn tritt ein zusätzlicher Verlustprozess in Konkurrenz zum Ener-

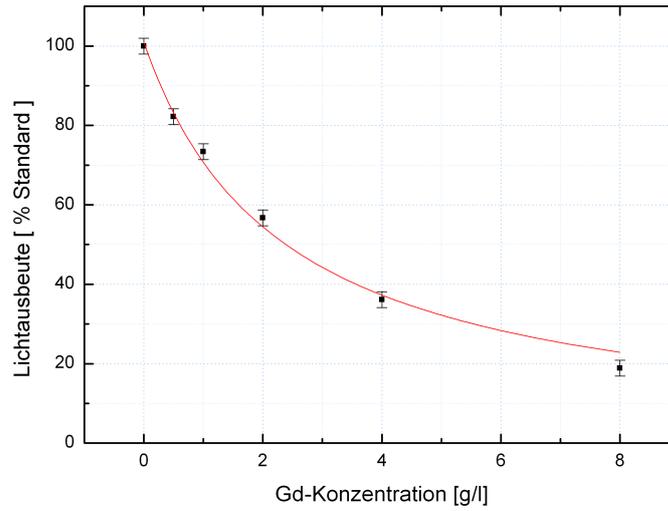


Abbildung 4.12: Verschiedene Gd-Konzentrationen bei einer festen PPO-Konzentration von 6 g/l in PXE. Fitfunktion: Gleichung (4.11). Bestimmter Parameter: k_q/k_a . Methode: Compton-Spektrum.

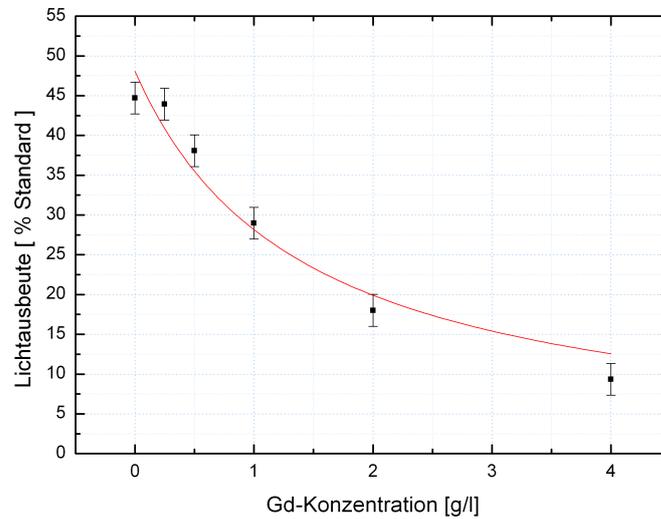


Abbildung 4.13: Verschiedene Gd-Konzentrationen bei einer festen PPO-Konzentration von 6 g/l in Dodecan. Fitfunktion: Gleichung (4.11). Bestimmter Parameter: k'_q/k'_a . Methode: Compton-Spektrum.

gietransfer von den Lösungsmitteln zu PPO. Weil der Gadolinium-Komplex nicht fluo-
reszierend ist, nimmt die Lichtausbeute mit steigender Gadolinium-Konzentration ab

$$I^{PXE}(a, q) = I_0^{PXE} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_{sq}a}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_q q}{k_a a} + \frac{k_i}{k_a a}}. \quad (4.11)$$

Die effektivste Art, den Parameter k_q/k_a zu bestimmen besteht darin, die Gadolinium-
Konzentration des Szintillators zu verändern (siehe Abb. 4.12). Bei dem Fit mit der
Funktion aus Gleichung (4.11) setzt man die Werte der bereits bestimmten Parameter
ein; der einzige verbleibende freie Parameter für den Fit ist k_q/k_a . Man sieht, dass bei
einer Konzentration von etwa 2 g Gd/l die Lichtausbeute halbiert wird. Das entspricht
einer Konzentration des Gadolinium-Komplexes $Gd(dpm)_3$ (siehe Abb. 2.9) von 9 g/l.
Die Variation der Gadolinium-Konzentration in Dodecan plus 6 g PPO/l (siehe Abb.
4.13) ergibt, dass der Energietransfer von Dodecan zu Gadolinium im Vergleich zum
Energietransfer von Dodecan zu PPO (k'_q/k'_a) größer ist als das entsprechende Verhältnis
für PXE. Bei etwa 1.3 g Gd/l erhält man die Hälfte der Lichtausbeute des Gd-freien
Szintillators.

Gemischtes Lösungsmittel plus PPO

Im nächsten Schritt mischen wir die zwei unterschiedlichen Lösungsmittel miteinander.
Damit wollen wir einen Kompromiss zwischen einer hohen Lichtausbeute (mehr PXE)
und einer besseren Materialverträglichkeit mit den Acryl-Tanks bei Double Chooz (mehr
Dodecan) erzielen. Um Szintillation zu erhalten benötigen wir wieder PPO als Fluor. In
der Gleichung für den Fit der Daten müssen wir alle Terme aus Gleichung (3.17) bis auf
die Gd-Beiträge berücksichtigen. Die bereits bestimmten Parameter setzen wir in die
Gleichung ein. Dafür schreiben wir einen Term für den Energietransferpfad Dodecan-
PXE-PPO (zweite Zeile in Gleichung (3.17)) etwas um

$$\frac{k'_i}{k_{d1}} = \frac{k'_a}{k_{d1}} \cdot \frac{k'_i}{k'_a}. \quad (4.12)$$

Damit erhält man die Fit-Funktion für ein Gemisch aus PXE, Dodecan und PPO

$$\begin{aligned} I_{target}(d_1, a, q = 0) &= I_0^{PXE} \cdot \frac{\eta \cdot x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\bar{k}_{sq}}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a}} \\ &+ I_0^{C12} \cdot \frac{1 - x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\bar{k}_{sq}}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k_i}{k_a a}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_a}{k_{d1}} \cdot \frac{a}{d_1} + \frac{k'_a}{k_{d1}} \cdot \frac{k'_i}{k'_a} \cdot \frac{1}{d_1}} \\ &+ I_0^{C12} \cdot \frac{1 - x_{PXE}}{\eta \cdot x_{PXE} + (1 - x_{PXE})} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\bar{k}_{sq}}{k_e}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{k'_i}{k'_a a} + \frac{k_{d1}}{k'_a} \cdot \frac{d_1}{a}}. \end{aligned} \quad (4.13)$$

Die freien Parameter η und k'_a/k_{d1} sind farbig markiert, alle anderen Größen sind be-
kannt. Der Self-Quenching-Parameter k_{sq}/k_e wurde in beiden Lösungsmitteln separat
bestimmt. In der Mischung aus beiden Lösungsmitteln machen wir den Ansatz

$$\frac{\bar{k}_{sq}}{k_e} = x_{PXE} \cdot \frac{k_{sq}}{k_e} + (1 - x_{PXE}) \cdot \frac{k'_{sq}}{k'_e}. \quad (4.14)$$

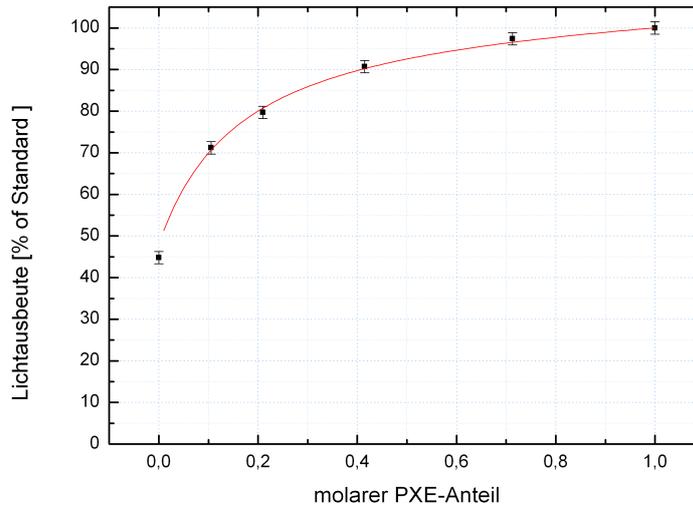


Abbildung 4.14: Variation der Lösungsmittelzusammensetzung von reinem Dodecan bis zu reinem PXE bei konstanter Fluor-Konzentration von 6 g/l. Fitfunktion: Gleichung (4.13). Bestimmte Parameter: η und k'_a/k_{d_1} . Methode: Compton-Rückstreuung.

In Abbildung 4.14 sind die Messung und der Fit gezeigt. Diese Messung wurde mit der verbesserten Compton-Rückstreu-Methode durchgeführt. Man sieht, dass die Lichtausbeute für kleine x_{PXE} relativ groß ist. Nach dieser Beobachtung wurden im Modell unterschiedliche Wirkungsquerschnitte für PXE und Dodecan über den Parameter η eingeführt. Der Wirkungsquerschnitt für eine Wechselwirkung von PXE mit den Compton-Elektronen ist größer als bei Dodecan. Deshalb ist die Lichtausbeute auch bei 20 % PXE-Anteil noch bei etwa 80 %. Diese Zusammensetzung wird als Kompromiss zwischen Materialverträglichkeit und Lichtausbeute gewählt.

Die Bestimmung des Parameters k'_a/k_{d_1} ist prinzipiell mit einem großen Fehler behaftet. Das liegt an der besonderen Rolle des Energiepfades, den er im Energietransfermodell repräsentiert, nämlich den Transfer von Dodecan zu PXE. Im Gegensatz zu den anderen mit PPO konkurrierenden Pfaden führt dieser Transfer nicht notwendigerweise zu einem Verlust der Energie. Ist der Pfad sehr effektiv, dann erhält man mehr Licht über Dodecan-PXE-PPO, ist er dagegen ineffektiv, dann erhält man mehr Licht aus dem Transfer Dodecan-PPO. Mit der Messung der Lichtausbeute misst man die Summe der Pfade; deshalb ist es schwierig, einen genauen Wert zu erhalten.

Bestimmung der Parameter für den Gamma Catcher

Für das Lichtausbeutemodell des Gamma Catchers bestimmen wir die zwei Parameter k'_i/k''_a und I_0^{MO} (MO steht für Mineralöl). Dabei geht man wie im Target vor. Die

Symbol	Erklärung	Wert
k_i/k_a	Energietransfer von PXE zu PPO im Vergleich zu internen Verlusten in PXE	0.34 g/l
k'_i/k'_a	Energietransfer von Dodecan zu PPO im Vergleich zu internen Verlusten in Dodecan	1.7 g/l
k''_i/k''_a	Energietransfer von MO zu PPO im Vergleich zu internen Verlusten in MO	1.3 g/l
k_{sq}/k_e	Self-Quenching des PPO in PXE im Vergleich zur Emission eines Photons	0.0043 l/g
k'_{sq}/k'_e	Self-Quenching des PPO in Dodecan im Vergleich zur Emission eines Photons	0.010 l/g
I_0^{PXE}	maximale Lichtausbeute ohne Verlustpfade in PXE proportional zur Zahl der angeregten PXE-Moleküle	108 % _{Standard}
I_0^{C12}	maximale Lichtausbeute ohne Verlustpfade in Dodecan proportional zur Zahl der angeregten Dodecan-Moleküle	62 % _{Standard}
I_0^{MO}	maximale Lichtausbeute ohne Verlustpfade in MO proportional zur Zahl der angeregten MO-Moleküle	49 % _{Standard}
k_q/k_a	Transfer von PXE zu Gd(dpm) ₃ im Vergleich zu Transfer von PXE zu PPO	2.7
k'_q/k'_a	Transfer von Dodecan zu Gd(dpm) ₃ im Vergleich zu Transfer von Dodecan zu PPO	5.5
k_{d1}/k'_a	Transfer von Dodecan zu PXE im Vergleich Transfer von Dodecan zu PPO	0.008
η	Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von PXE und Dodecan	6.9

Tabelle 4.3: Ergebnisse für die Parameter des Lichtausbeutemodells aus Kapitel 3.17.

Lichtausbeute von reinem Mineralöl mit unterschiedlichen PPO-Konzentrationen liefert den Parameter $k''_i/k''_a = 1.3$ g/l. Der Wert dieses Parameters ist dem entsprechenden Parameter mit Dodecan als Lösungsmittelmolekül sehr ähnlich. Man erwartet dieses Verhalten aufgrund der chemischen Ähnlichkeiten der Moleküle. Die restlichen Parameter für das Mineralöl werden deshalb von Dodecan übernommen. Anschließend misst man das Verhältnis

$$\frac{I^{MO}(a = 6g/l)}{I^{PXE}(a = 6g/l)} = 0.38. \quad (4.15)$$

Damit lässt sich I_0^{MO} über Gleichung (3.18) und die Definition des Standards $I^{PXE}(a = 6g/l) := 100$ mit bekannten Parametern ausdrücken.

4.3.3 Zusammenfassung der Parameter

Alle Parameter des Lichtausbeutemodells für das Target und den Gamma Catcher wurden bestimmt. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 4.3 aufgelistet. Mit diesen Parametern kann man die Lichtausbeute für jede beliebige Target-Mischung bestehend aus PXE, Dodecan, $\text{Gd}(\text{dpm})_3$ und PPO mit Gleichung (3.17) vorhersagen. Die Lichtausbeute einer Gamma Catcher-Mischung aus PXE, Dodecan, Mineralöl und PPO wird mit Gleichung (3.18) vorhergesagt.

4.4 Anpassen der Lichtausbeute in Target und Gamma Catcher

4.4.1 Optimierung der Target-Zusammensetzung

Zunächst wird die Lichtausbeute im Target optimiert. Dabei legt man fest, wie das Verhältnis der beiden Lösungsmittel sein soll. Wie schon in Kapitel 2.3.2 bemerkt, muss man dabei außer auf die Lichtausbeute auch auf die Materialverträglichkeit achten. Eine höhere PXE-Konzentration führt zu einer höheren Lichtausbeute (siehe Abb. 4.14), aber auch zu einer zunehmenden Materialunverträglichkeit. Da das PXE bevorzugt angeregt wird, ist die Lichtausbeute auch für relativ kleine PXE-Konzentrationen noch vergleichsweise hoch. Somit kann man einen Kompromiss finden, indem man ein Mischungsverhältnis von 20 % PXE und 80 % Dodecan wählt.

Die Gadolinium-Konzentration ist maßgeblich für die Effizienz des Detektors. Wird ein Proton von einem Wasserstoffkern eingefangen, dann liegt das Ereignis unter der Energieschwelle des Cuts und geht damit verloren. Eine hohe Gadolinium-Konzentration führt aber auch zu einer geringeren Lichtausbeute (siehe Abb. 4.12 und 4.13), außerdem ist die Synthese und die Reinigung des Moleküls kompliziert und damit teuer. Die Gadolinium-Konzentration wurde auf 1 g/l festgelegt; die Effizienz des Neutroneneinfangs beträgt 85 %. Die Konzentration des Fluors PPO muss als nächstes festgelegt werden. Dazu wurde die Lichtausbeute von Mischungen verschiedener PPO-Konzentration in 20 % PXE, 80 % Dodecan und 1 g Gd/l gemessen. Zunächst betrachten wir die Lichtausbeute, die durch das Modell vorhergesagt wird. Man sieht, dass sie für PPO-Konzentrationen oberhalb von 12 g PPO/l kaum zunimmt. Zur Überprüfung der Vorhersage haben wir die Lichtausbeute in dem interessanten Bereich unterhalb von 20 g PPO/l experimentell bestimmt. (siehe Abb. 4.15).

Die Vorhersage des Modells bei großen PPO-Konzentrationen liegt etwas über den Daten. Eine mögliche Erklärung ist ein Unterschätzen des Self-Quenchings (Energiedissipation durch Wechselwirkung zweier PPO-Moleküle) in der Mischung aus PXE und Dodecan [Buc07]. Bei höheren PPO-Konzentrationen spielt das Self-Quenching eine größere Rolle. Außerdem sind im Modell nicht alle denkbaren Prozesse berücksichtigt, weil es sonst zu kompliziert wäre, die Fits durchzuführen. Das Modell soll die präzisen Messungen nicht ersetzen, sondern vorbereiten. Ein unberücksichtigter Verlustterm, der zur Abweichung beitragen könnte, ist ein Energietransfer von PPO zum Gadolinium-Komplex. Das

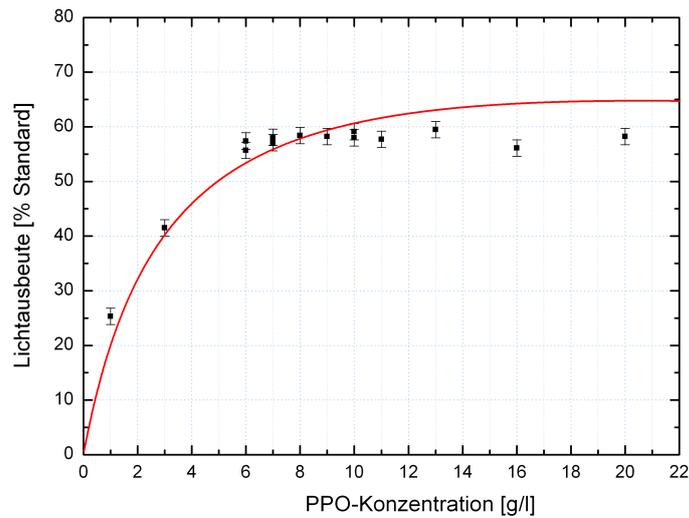


Abbildung 4.15: Lichtausbeute bei verschiedenen PPO-Konzentrationen im Target (20 % PXE + 80 % Dodecan + 1 g Gd/l).¹ Die rote Linie gibt die Vorhersage des Modells an (kein Fit).

würde erklären, warum die Vorhersage bei 6 g PPO/l mit der Messung übereinstimmt und bei höheren Konzentrationen zu hoch liegt. Die beiden Parameter k_q/k_a und k'_q/k'_a , die den Effekt des Gadolinium beschreiben, wurde nämlich bei einer konstanten PPO-Konzentration von 6 g/l bestimmt (siehe Abb. 4.12 und 4.13). Der Effekt des Transfers von PPO zu $\text{Gd}(\text{dpm})_3$ wird deshalb im Modell dem Transfer von PXE zum Gadolinium-Komplex zugerechnet.

Die Lichtausbeute ist im Bereich von 6 g PPO/l bis 20 g PPO/l nahezu konstant. Außer der Lichtausbeute ist die radiochemische Verunreinigung des PPO und die Reduktion der Transparenz bei hohen Konzentrationen zu berücksichtigen. Man wählt deshalb einen möglichst niedrigen Wert für die PPO-Konzentration innerhalb des Plateaus. Eine Konzentration von 7 g PPO/l reicht aus, um die Lichtausbeute zu maximieren. Damit hat man alle Konzentrationen für das Target außer die des bis-MSBs festgelegt (siehe Kapitel 4.4.3). Die experimentell bestimmte Lichtausbeute beträgt $57.5\% \pm 1.5\%$, die Vorhersage des Modells ist 56.5% .

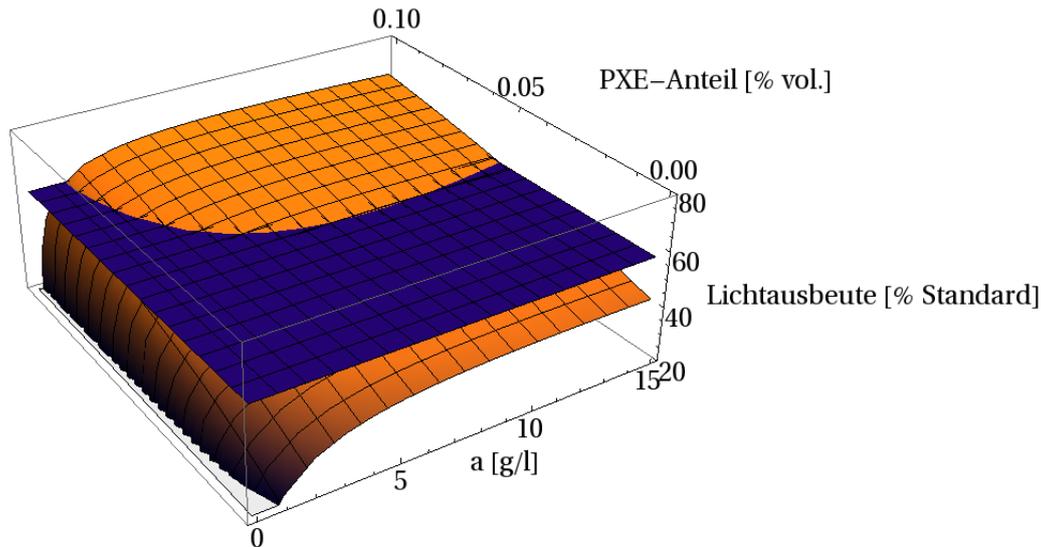


Abbildung 4.16: Vorhersage des Lichtausbeutemodells für den Gamma Catcher (orange) und Lichtausbeute für das Target (20 % PXE, 80 % Dodecan, 7 g PPO/l und 1 g Gd/l ,blaue Fläche). Die Achsen x bzw. y geben die PPO-Konzentration a im Gamma Catcher bzw. den PXE-Anteil im Gamma Catcher an.

4.4.2 Angleichen der Lichtausbeute und Dichte in Target und Gamma Catcher

Der Szintillator des Gamma Catchers muss die gleiche Dichte haben wie das Target. Andernfalls würde sich der innerste Acryl-Tank verformen bzw. brechen. Die Spezifikation für den Dichteunterschied beträgt $\leq 1\%$. Die Dichte des Targets liegt durch die Wahl der Lösungsmittelzusammensetzung fest. Würde man die selbe Lösungsmittelzusammensetzung und dieselbe PPO-Konzentration wie für das Target auch für den Gamma Catcher verwenden, dann wäre die Lichtausbeute wegen dem fehlenden Gadolinium zu hoch. Ein Anpassen der Lichtausbeute über die PPO-Konzentration allein ist zwar prinzipiell möglich, aber in der Praxis schwierig, weil die PPO-Konzentration dann sehr niedrig wäre und die Lichtausbeute damit sehr sensitiv auf die PPO-Konzentration reagieren würde. Die Situation, in der man sich oberhalb des kritischen Bereichs im Plateau der Lichtausbeute befindet ist einfacher zu kontrollieren. Deshalb möchte man eine geringere PXE-Konzentration im Target verwenden, um die Lichtausbeute im Gamma Catcher zu senken.

Mit einer Mischung aus PXE und Dodecan erreicht man dann aber nicht mehr dieselbe Dichte wie im Target. Deshalb verwendet man als drittes Lösungsmittel Mineralöl (Ondina 909 von Shell). Dieses medizinische Weißöl hat eine hohe Transparenz im Bereich der Szintillatoremision. Die Dichte von PXE beträgt 0.9837 g/cm^3 , von Dodecan

¹Für die Werte bei 1 g PPO/l und 3 g PPO/l wurde der Standard nicht am selben Tag bestimmt.

0.7470 g/cm³ und von Mineralöl 0.8196 g/cm³ bei einer Temperatur von 23°C. Bei der Wahl des Lösungsmittels für den Gamma Catcher hat man damit wieder einen Freiheitsgrad zur Verfügung. Zusätzlich kann man die PPO-Konzentration wählen.

In Abbildung 4.16 ist die Vorhersage der Lichtausbeute des Gamma Catchers in Abhängigkeit von dem PXE-Anteil und der PPO-Konzentration a im Gamma Catcher gezeigt (orange). Außerdem ist die konstante Lichtausbeute für die oben festgelegte Target-Mischung dargestellt (blau).

Um im Gamma Catcher die Dichte und die Lichtausbeute des Targets zu erhalten, kann man einen der Punkte auf der Schnittlinie der beiden Flächen wählen. Man muss verschiedene Aspekte berücksichtigen, um zu entscheiden, wieviel PPO und PXE verwendet werden sollen.

- Zeitprofil der Szintillatormischung (siehe Kapitel 5). Durch die unterschiedlichen Energietransferpfade mit den unterschiedlichen Raten erhält man im Gamma Catcher ein anderes Zeitprofil als im Target bei gleicher Lichtausbeute. Durch die Wahl der Zusammensetzung kann man die Zeitprofile ändern. Längere Zeitkonstanten führen zu einer erhöhten Gefahr durch Überlagerung von Pulsen, könnten aber andererseits eventuell dazu verwendet werden, Pulsformen aus Reaktionen im Target von denen aus dem Gamma Catcher zu unterscheiden.
- Sensitivität der Lichtausbeute auf PPO: Bei zu kleinen PPO-Konzentrationen ist die Lichtausbeute stark abhängig von PPO. Dadurch ist es schwieriger, die Lichtausbeute stabil zu halten.
- Radiochemische Verunreinigungen: Bei hohen PPO-Konzentrationen steigt der Untergrund durch Kalium-, Thorium- und Uran- Verunreinigungen.
- Absorptionslänge: Durch einen höheren Anteil an PPO sinkt die Transparenz des Szintillators.

Mithilfe von Abbildung 4.16 kann man diskutieren, welche Szintillatorzusammensetzung unter Berücksichtigung der oben genannten Punkte interessant sind. Diese Punkte kann man anschließend mit der Compton-Rückstreu-Methode testen, um sicherzustellen, dass die Lichtausbeute von Gamma Catcher und Target tatsächlich gleich groß ist.

4.4.3 Feinabstimmung der Lichtausbeute von Target und Gamma-Catcher

Aus Abbildung 4.16 lesen wir einen Punkt für die Gamma-Catcher-Zusammensetzung ab: 4 % PXE und 7 g PPO/l. Daraus folgt die Zusammensetzung der Lösungsmittel über die Dichte: 49.5 % Mineralöl und 46.5 % Dodecan. Die Target-Zusammensetzung war: 20 % PXE, 80 % Dodecan, 1 g Gd/l und 7 g PPO/l. Das experimentelle Ergebnis der Messungen ist (Lichtausbeute=LA)

$$LA_{\text{Target}} = 58.1\% \quad LA_{\text{GC}} = 59.8\%. \quad (4.16)$$

Die Übereinstimmung ist sehr gut (Fehler der Einzelmessung ist etwa 1.5 %), wenn man bedenkt, dass für das Modell des Gamma Catcher viele Parameter für das Mineralöl von Dodecan übernommen worden ist.

Um die Lichtausbeute im Gamma Catcher etwas zu verkleinern, kann man die PPO-Konzentration etwas verringern. Dazu wurde mit dem Modell eine Abschätzung gemacht, wie groß die Änderung in der PPO-Konzentration sein muss, um eine Reduktion der Lichtausbeute um etwa 1.7 % zu erreichen. Als Ergebnis erhält man eine Konzentration von 5 g PPO/l für den Gamma Catcher.

bis-MSB

Als Nächstes wurde die Lichtausbeute der Szintillatoren für das Target und den Gamma Catcher mit bis-MSB getestet. Bis-MSB wird als sekundäres Fluor verwendet, um die Wellenlänge der Szintillatoremission zu vergrößern (siehe Kapitel 3.2). Bei größeren Wellenlängen ist die Wahrscheinlichkeit der Reabsorption durch die Lösungsmittelmoleküle und das primäre Fluor PPO kleiner und damit die Transparenz erhöht. Andererseits möchte man aber nicht zu viel bis-MSB verwenden, weil sonst die Wahrscheinlichkeit für Absorption durch das bis-MSB selbst steigt und damit die Transparenz wieder abnimmt. Die Quanteneffizienz von bis-MSB beträgt 94 %. Andererseits soll möglichst die gesamte PPO-Emission von bis-MSB absorbiert werden. Für Double Chooz wählen wir eine bis-MSB Konzentration von 20 mg/l.

Die Lichtausbeute von Target und Gamma Catcher wurde, wie oben beschrieben, ohne bis-MSB angeglichen. Jetzt möchte man nachprüfen, wie das Lichtausbeuteverhältnis nach Zugabe von 20 mg bis-MSB/l aussieht. Experimentell erhält man die Werte

$$LA_{\text{Target}} = 55.1\% \quad \text{und} \quad LA_{\text{GC}} = 58.9\%. \quad (4.17)$$

Die Prozentangaben beziehen sich hier ausnahmsweise auf den Standard plus 20 mg bis-MSB/l. Die absolute Lichtausbeute beträgt für das Target etwa 5820 Photonen pro MeV. Dieser Wert wurde aus der mehrmals wiederholten Messung der Target-Zusammensetzung relativ zu BC505 gewonnen.

Man sieht, dass die Lichtausbeute im Gamma Catcher im Vergleich zu dem Wert ohne bis-MSB aus Kapitel 4.4.3 recht stabil geblieben ist. Die relative Lichtausbeute im Target dagegen ist durch die Zugabe von bis-MSB etwas niedriger. Eine mögliche Erklärung ist ein Energietransfer von bis-MSB zu Gadolinium. Im Gd-freien Gamma Catcher entsteht dadurch kein Unterschied, während im Gd-beladenen Target etwas Licht verloren geht. Mit bis-MSB muss also die Lichtausbeute des Gamma-Catcher noch einmal ein wenig verringert werden. Das kann man wiederum über eine kleinere PPO-Konzentration oder über eine kleinere PXE-Konzentration erreichen. Um zu entscheiden, welche dieser Optionen gewählt werden soll betrachten wir im folgenden Kapitel das Zeitprofil der Szintillation in beiden Fällen.

5 Messung des Zeitprofils

5.1 Einleitung

In diesem Kapitel wird beschrieben, wie das Zeitprofil verschiedener Szintillatormischungen experimentell bestimmt wurde. Vor allem die Unterschiede im Zeitverhalten der Emission zwischen Target und Gamma Catcher sind interessant für Double Chooz. Sie betreffen eine mögliche Pulsformanalyse zur Unterscheidung zwischen Ereignissen im Target und im Gamma Catcher. Auf der anderen Seite könnten Probleme durch Überlagerungen von Pulsen auftreten, falls die Pulse zu lang sind.

Zur Lichtemission des Szintillators tragen mehrere Pfade bei (siehe Kapitel 3). Die Zeitkonstanten für die Lichtemission sind für die verschiedenen Pfade unterschiedlich groß. Auch innerhalb eines Pfades treten verschiedene Prozesse auf, die unterschiedlich schnell erfolgen. Es können z.B. Anregungen des Lösungsmittel-Moleküls in den Triplett- oder Singulett-Zustand und anschließender Energietransfer zum Fluor beide zu demselben Pfad beitragen. Die Triplett-Zustände regen sich langsamer ab; dadurch tritt der Energietransfer im Mittel später auf als wenn der Singulett-Zustand angeregt wird. Für jeden einzelnen Beitrag zur Emission nimmt man eine exponentielle Zeitabhängigkeit an und erhält damit insgesamt einen Ansatz für die Wahrscheinlichkeitsdichte

$$P(t) = \sum_{i=1}^n \frac{q_i}{\tau_i} e^{-t/\tau_i}. \quad (5.1)$$

Dabei ist τ_i die Zeitkonstante und q_i das Gewicht des i -ten Beitrags.

Das Modell der Lichtausbeute liefert die Verhältnisse der Raten zweier Prozesse und die Gewichtung der einzelnen Pfade. Damit kann man eine Vorhersage über die Zeitkonstante τ_1 treffen (siehe Kapitel 5.4). Die Start-Stop-Einzelphotonenmethode, mit der die Wahrscheinlichkeitsdichte der Emission experimentell bestimmt wird, ist in den Kapiteln 5.2.1 bis 5.3.2 beschrieben. In Kapitel 5.5 werden die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert.

5.2 Experimenteller Aufbau

5.2.1 Messprinzip

Die Szintillatormischung werde zum Zeitpunkt $t = 0$ angeregt. Ziel der Messung ist es, die Wahrscheinlichkeitsdichte $P(t)$ für die Emission eines einzelnen Photons zu bestimmen. Um das zu erreichen wenden wir eine Start-Stop-Methode an [Mot04]. Im Idealfall

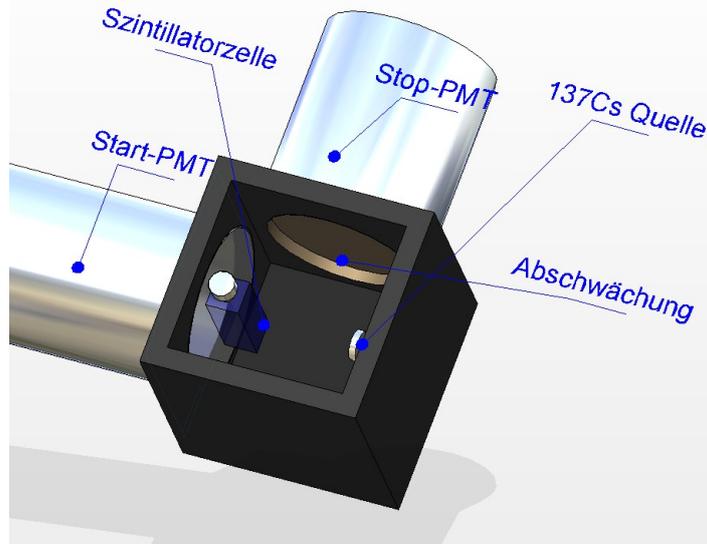


Abbildung 5.1: Aufbau der Start-Stop-Einzelphotonenmessung zur Bestimmung des Zeitprofils der Szintillatoremision.

erfolgt das Start-Signal genau zum Zeitpunkt $t = 0$ der Anregung. Das Stop-Signal wird idealerweise von einem einzelnen Photon ausgelöst. Zeitdifferenzen zwischen Start und Stop aus dem Intervall $[t, t + dt]$ treten dann mit der Wahrscheinlichkeit $P(t)dt$ auf. Wiederholt man die Messung sehr oft, dann erhält man aus den experimentellen t_i umgekehrt $P(t)$.

Praktisch wird diese Idee umgesetzt, indem man die Szintillatorprobe mit einer Quelle bestrahlt und die Emission mit zwei Photomultipliern beobachtet (siehe Abb. 5.1). In Kapitel 3 und 4 wurde beschrieben, wie aus der Anregung durch ein γ die Emission von mehreren Tausend Photonen pro MeV deponierter Energie folgt. Der erste Photomultiplier soll möglichst viele dieser Photonen detektieren. Damit wird erreicht, dass das erste Photoelektron, welches in diesem PMT registriert wird, mit großer Wahrscheinlichkeit kurz nach der Anregung des Szintillators gemessen wird. Das Signal dieses ersten PMTs kann deshalb als Start-Signal $t = 0$ verwendet werden.

Der zweite Photomultiplier soll nur ein Photon aus der Emission des Szintillators detektieren. Um das zu erreichen, schwächt man das Licht auf dem Weg von der Szintillatorprobe zum PMT ab. Das Signal dieses PMTs wird als Stop-Signal verwendet. Die Zeit-Differenz zwischen Start- und Stop-Signal gibt dann den Wert t_i der i ten Messung an.

Statistik des Stop-Signals

Die wichtigste Voraussetzung für eine genaue Messung des Zeitprofils ist die geringe Illumination des Stop-PMTs. Wir beschreiben diese durch die mittlere Zahl der Photoelektronen m , die pro Ereignis im Stop-PMT ausgelöst wird. Da wir uns für kleine m interessieren, nehmen wir an, dass die Zahl der Photoelektronen pro Ereignis Poissonverteilt ist. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass mindestens ein Photoelektron ausgelöst wird, beträgt

$$p_1 = 1 - e^{-m}. \quad (5.2)$$

Der Effekt von m auf die Bestimmung der Wahrscheinlichkeitsdichte wird in [Ran94] quantitativ behandelt: Interessant für die Start-Stop-Messung ist der Zeitpunkt, bei dem das erste Photoelektron ausgelöst wird. Man berechnet die Wahrscheinlichkeit dafür, dass mindestens ein Photoelektron entsteht ($n \geq 1$) und das erste dieser Photoelektronen im Intervall $[t, t + dt]$ auftritt

$$p_2(t, n \geq 1) dt = m e^{-mF(t)} F'(t) dt. \quad (5.3)$$

Dabei ist $F'(t)$ die Wahrscheinlichkeitsdichte für das Auftreten eines Photoelektrons und $F(t)$ ist das Integral über diese Wahrscheinlichkeitsdichte von 0 bis t [Ran94]. Dieses Integral beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass vor dem Zeitpunkt t bereits ein Photoelektron ausgelöst wird. Für ein ideales System (mit perfekter Auflösung und ohne Untergrund) ist $F'(t)$ gleich der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Szintillatoremision $P(t)$.

Die bedingte Wahrscheinlichkeitsdichte für das erste Photoelektron unter der Voraussetzung, dass mindestens ein Photoelektron ausgelöst wird, ist

$$p_2(t|n \geq 1) = P_{Stop} = \frac{p_2(t, n \geq 1)}{p_1} = \frac{m e^{-mF(t)} F'(t)}{1 - e^{-m}}. \quad (5.4)$$

Durch die experimentelle Messung des Zeitpunktes für das erste Photoelektron erhält man diese Verteilung: $P_{Stop}(t) = p_2(t|n \geq 1)$. Man sieht, dass für kleinere m die Verteilung der Photoelektronen $F'(t)$ zuverlässiger reproduziert wird. Im Grenzfall $m \rightarrow 0$ erhält man genau $F'(t)$. Für das Beispiel einer reinen Exponentialverteilung $F'(t) = 1/\tau e^{-t/\tau}$ mit $\tau = 3$ ns ist die Verteilung des ersten Photoelektrons $P_{Stop}(t)$ für verschiedene große m in Abbildung 5.2 gezeigt. Für $m = 1$ erhält man eine deutliche Abweichung, für $m = 0.01$ wird die Verteilung durch die Messung gut reproduziert. Für ein gegebenes m können wir den relativen Fehler der experimentellen Bestimmung angeben

$$\Delta p_2 = \frac{P_{Stop}(t) - F'(t)}{F'(t)} = \frac{m e^{-mF(t)}}{1 - e^{-m}} - 1. \quad (5.5)$$

Die experimentelle bestimmte Wahrscheinlichkeitsdichte $P_{Stop}(t)$ ist für kurze Zeiten systematisch zu hoch und für lange Zeiten systematisch zu klein. Der oben beschriebene Fehler hat für $t \rightarrow 0$ und $t \rightarrow \infty$ Extremwerte, die nur noch von m und nicht mehr von der Wahrscheinlichkeitsverteilung $F'(t)$ abhängen

$$\frac{m e^{-m}}{1 - e^{-m}} - 1 \leq \Delta P_{Stop} \leq \frac{m}{1 - e^{-m}} - 1. \quad (5.6)$$

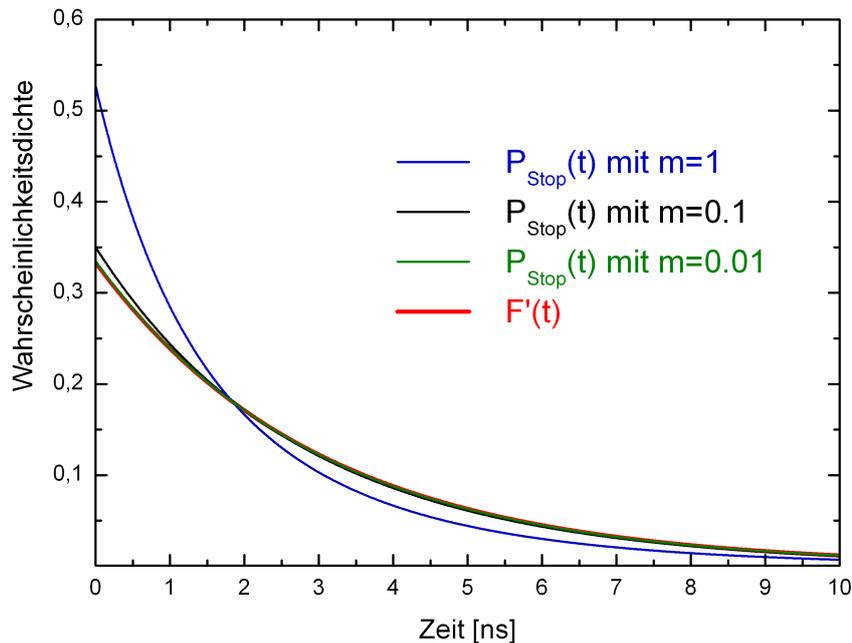


Abbildung 5.2: Die rote Linie zeigt die Wahrscheinlichkeitsverteilung für Photoelektronen $F'(t) = 1/\tau \cdot e^{-t/\tau}$ mit $\tau = 3$ ns. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung für das erste Photoelektron $P_{Stop}(t)$ ist für drei verschiedene m gezeigt. m ist die mittlere Anzahl der Photoelektronen pro Ereignis.

Aus dieser Gleichung kann man ablesen, dass der maximale relative Fehler für $m = 0.01$ etwa 1 % beträgt. Die experimentelle Messung der Verteilung von $F'(t)$ kann unter der Bedingung $m = 0.01$ also ohne weitere Korrektur durchgeführt werden. Alle Messungen in dieser Arbeit wurden deshalb bei $m \approx 0.01$ durchgeführt.

Statistik des Start-Signals

Auch das experimentell bestimmte Start-Signal folgt einer Verteilung $P_{Start}(t)$. Im Idealfall wird diese durch Gleichung (5.4) mit einem größeren Wert für m beschrieben. Für $m \geq 50$ tritt das erste Photoelektron sehr schnell nach der Anregung des Szintillators auf. In dem oben genannten Beispiel einer reinen Exponentialverteilung mit der Zeitkonstante $\tau = 3$ ns tritt das erste Photoelektron in mehr als 95 % der Fälle innerhalb der ersten 0,2 ns auf. Diese zeitlichen Verzögerungen relativ zum wahren $t = 0$ können bei der beabsichtigten Genauigkeit der Messung vernachlässigt werden. Berücksichtigt werden muss aber die Auflösung des Start-PMTs (*time jitter*). Dieser kann mit einer Gauß-Verteilung beschrieben werden und geht in die Gesamtauflösung des Systems ein.

5.2.2 Untergrund, instrumentelle Fehler und Auflösung

Untergrund

Als Nächstes betrachten wir den Untergrund der Messung, der zusätzlich zu den erwünschten Ereignissen aus der Szintillation Beiträge in der gemessenen Wahrscheinlichkeitsdichte liefert. Die Dunkelzählraten der beiden PMTs können zum Untergrund beitragen. Dabei wird ein Photoelektron ohne externes Photon ausgelöst. Damit kann ein Ereignis bei einer Zeit Δt gemessen werden, was nicht von der Szintillation des Flüssigszintillators stammt.

Als Start-PMT benutzen wir einen Photonis XP2262 Photomultiplier. Die gemessene Dunkelrate beträgt etwa 700 Hz bei einer Hochspannung von +1600 V. Den Untergrund durch die Dunkelrate des Start-PMT kann man unterdrücken, indem man die Schwelle des Diskriminators über die typische Amplitude der Dunkelereignisse legt. Die gewünschten Ereignisse rufen eine deutlich höhere Gesamtladung im Start-PMT hervor als die Dunkel-Ereignisse und bleiben daher von der Schwelle unbeeinflusst.

Gefährlicher sind die Dunkelereignisse des Stop-PMTs. Da es sich um Einzelphotonereignisse handelt, sind die Pulse nicht von Dunkelereignissen zu unterscheiden. Damit kann jedes Dunkelereignis innerhalb der Koinzidenzzeit, das vor dem echten Ereignis auftritt, zum Untergrund beitragen. Die wichtigste Voraussetzung für die Messung ist eine geringe Illumination des Stop-PMTs. Das Signal-zu-Untergrund Verhältnis wird durch die möglichst kleine Anzahl an Photoelektronen pro Ereignis m verringert. Deshalb ist es sehr wichtig, dass man einen Stop-PMT benutzt, der eine sehr kleine Dunkelrate aufweist. Wir messen das Stop-Signal mit einem Hamamatsu R1527P mit einer Dunkelrate von etwa 4 Hz bei einer Hochspannung von -1000 V. Damit erreicht man ein gutes Signal zu Untergrund-Verhältnis und gleichzeitig eine geringe Illumination:

$$R_{\text{Dunkel}} \cdot t_{\text{Koinz.}} \ll m \ll 1. \quad (5.7)$$

Für diese Messung wurde eine Koinzidenzzeit von etwa $1.4 \mu\text{s}$ gewählt. Die Form des Untergrunds wird in [Ran94] genauer untersucht. Innerhalb der Koinzidenzzeit ist die relative Variation des Untergrunds von der Ordnung $(1 - e^{-m}) \cdot e^{-r_d \cdot t}$. Dabei ist r_d die Dunkelrate des Stop-PMTs. Diese Variation ist für die kleinen Werte von m und r_d vernachlässigbar; wir nehmen eine konstante Untergrundrate an. Dieser konstante Untergrund begrenzt die Genauigkeit der Messung von $P(t)$ bei großen Zeiten.

Instrumentelle Fehler

Zusätzlich zu den Dunkelereignissen müssen noch andere PMT-interne Prozesse berücksichtigt werden, die die Zeitverteilung verfälschen können:

- Verspätete Pulse (*late pulses*) entstehen durch Ereignisse, bei denen das primäre Photoelektron von der ersten Dynode im PMT zurückgestreut wird, ohne sekundäre Elektronen auszulösen [Lub00]. Anschließend wird das zurückgestreute Elektron wieder von der ersten Dynode angezogen, wo es dann Elektronen auslöst. Dadurch entsteht das Signal insgesamt später als bei Ereignissen, bei denen sofort

sekundäre Elektronen ausgelöst werden. Dieser Effekt ist schwierig zu beseitigen, eine entsprechende Messung des Zeitprofils von Einzelphotonenergieereignissen und anschließende Entfaltung ist technisch aufwändig und verschlechtert die Genauigkeit der Messung. Der Photomultiplier Hamamatsu R1527P hat durch seine *side window*-Geometrie eine deutlich verringerte Wahrscheinlichkeit für verspätete Pulse und beseitigt damit das Problem.

- *After Pulses* entstehen durch Ionisation des Restgases im Photomultiplier. Die positiven Ionen wandern zur Photokathode des PMTs und können dort Elektronen auslösen. Diese werden dann zur ersten Dynode gezogen und man erhält ein zweites Signal etwa einige Hundert Nanosekunden nach dem ersten Signal. Normalerweise wird dadurch die Messung nicht beeinflusst, weil das prompte Signal bereits detektiert wurde. In manchen Fällen liegt das prompte Signal des Stop-PMTs aber unter der Schwelle des Diskriminators und das der *After Pulse* darüber, so dass eine längere Zeitdifferenz zwischen Start- und Stop-Signal aufgenommen wird. Deshalb wird in der Softwareanalyse der Pulse jedes Ereignis verworfen, bei dem zwei Pulse in einem der beiden PMTs auftreten.

Auflösung

Die Auflösung des Gesamtsystems wird durch $R'(t)$ beschrieben. Mehrere Effekte tragen dazu bei, dass die Messung der Zeitdifferenz nicht mit beliebiger Genauigkeit möglich ist. Die wichtigsten Effekte sind im Folgenden zusammengestellt.

- Die Photomultiplier zeigen einen *time jitter*: Durch unterschiedliche Laufzeiten der Elektronen entsteht der Spannungs-Puls an der Anode nicht immer exakt zur gleichen Zeit.
- Analyse der Startzeitpunkte der Pulse: Pulse mit unterschiedlicher Amplitude steigen unterschiedlich schnell an. Deshalb wird in der Analyse *constant fraction timing* verwendet.
- Auflösung der Pulse: Die Pulse werden vom Oszilloskop für diese Messung mit einer Auflösung von 200 ps pro Kanal exportiert. Diese Auflösung ist geeignet, um die Anstiegszeit der Signale von etwa 2 ns aufzulösen, und gleichzeitig akzeptable Dateigrößen zu erhalten.

Um die Gesamtauflösung des Systems zu beschreiben benutzen wir eine Gauß-Verteilung. Damit ist die experimentell bestimmte Wahrscheinlichkeitsverteilung P_{exp} die Faltung aus der Gauß-Verteilung $A(t)$ und dem wahren Zeitprofil der Emission $P(t)$

$$P_{exp}(t) = A(t) \otimes P(t). \quad (5.8)$$

5.2.3 Elektronik

In Abbildung 5.3 ist der Aufbau der Elektronik gezeigt. Die Signale des Start- und Stop-

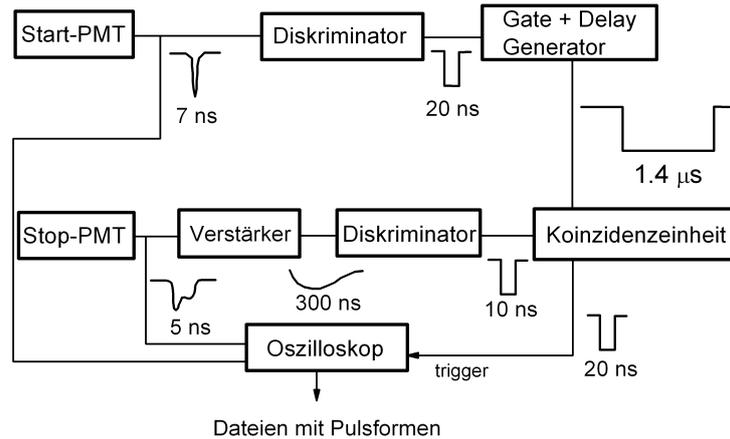


Abbildung 5.3: Elektronik für die Start-Stop-Messung. Eine Skizze der Signale mit einer typischen Dauer der Pulse ist angegeben (volle Breite für die logischen Signale und Anstiegszeit für die Originalsignale). Die Einzelraten für das Start- und Stop-Signal betragen etwa 800 Hz bzw. 10 Hz.

PMTs werden verzweigt. Je ein Signal wird dazu verwendet, die Koinzidenz festzustellen. Die anderen beiden Signale werden bei erfüllter Koinzidenzbedingung vom digitalen Oszilloskop aufgenommen und in zwei Dateien geschrieben. Die Originalpulse werden von der Elektronik also kaum beeinflusst, weil sie so direkt wie möglich von den PMTs zum Oszilloskop gehen. Anschließend kann man über die Softwareanalyse den Zeitpunkt des Start- bzw. Stop-Signals ermitteln. Dabei hat man eine gute Kontrolle über die Auswertung der Pulse und man kann dieselben Daten auf verschiedene Art auswerten, was mit einem rein elektronischen Aufbau nicht möglich ist.

5.3 Auswertung

5.3.1 Softwareanalyse der Pulse

Die Softwareanalyse erfolgt in zwei Schritten: Die Pulse werden mit einem FORTRAN-Programm ausgewertet. Dieses Programm erzeugt Histogramme, die man mit PAW öffnen kann. Mit diesen Histogrammen können die einzelnen Schritte des FORTRAN- Programms visuell kontrolliert und Parameter des Programms angepasst werden. Außerdem erzeugt es eine Datei mit der experimentellen Wahrscheinlichkeitsverteilung $P_{exp}(t)$. Im zweiten Schritt der Analyse wird ein Fit dieser Wahrscheinlichkeitsverteilung durchgeführt (siehe Kapitel 5.3.2).

In diesem Kapitel wird die Analyse der Pulse durch das FORTRAN-Programm beschrieben. Für jedes Ereignis wird eine Reihe von Schritten durchgeführt. Die ersten fünf

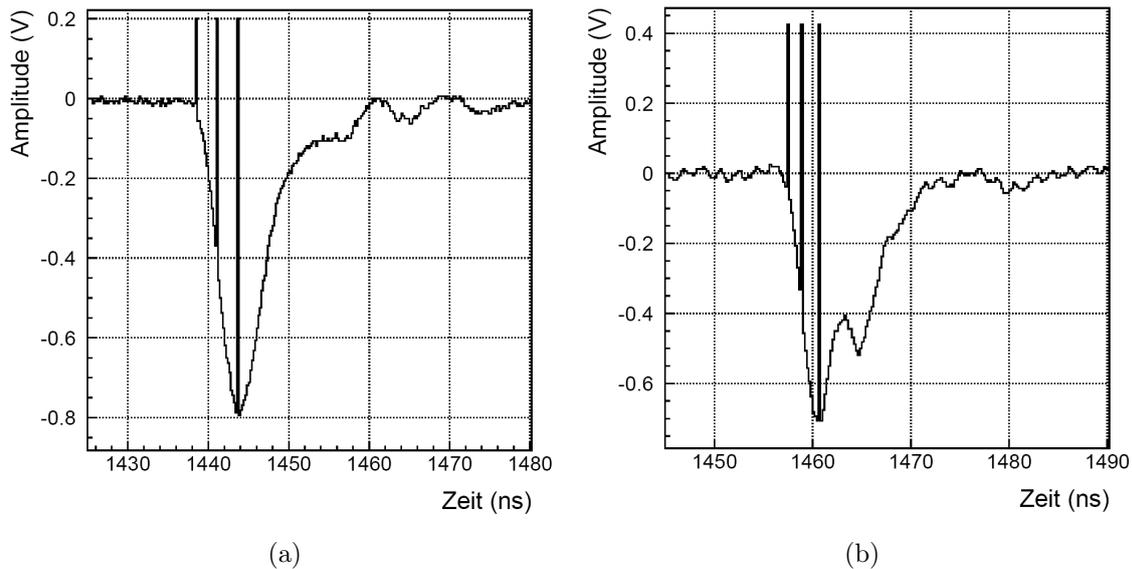


Abbildung 5.4: (a): Typischer Puls des Start-PMTs. Die drei Linien dienen der Kontrolle der Softwareanalyse. Die erste Linie (von links) zeigt den vorläufigen Startzeitpunkt aus Schritt 3, die dritte Linie markiert das Maximum und die zweite Linie die Hälfte des Maximums und damit den Kanal, der als Zeitpunkt für das Signal genommen wird (Schritt 6). (b): Typischer Puls des Stop-PMTs. Der zweite, kleinere Peak ist bei jedem Puls des PMTs vorhanden. Wahrscheinlich treten innerhalb des PMT Reflexionen auf.

Schritte werden analog zur Auswertung der Pulse bei den Lichtausbeutemessungen durchgeführt und wurden bereits in Kapitel 4.2.4 ausführlich beschrieben.

1. Lesen eines Ereignisses.
2. Erste Bestimmung der Grundlinie der beiden Signale.
3. Erste Suche nach dem Startzeitpunkt der Pulse des Start- und Stop-PMTs.
4. Zweite Bestimmung der Grundlinie direkt vor dem Startzeitpunkt.
5. Integration des Start- und des Stop-Signals.
6. Zweite, genauere Bestimmung des Startzeitpunktes für Start- und Stop-Signal: Man sucht von dem in Schritt 3 bestimmten Startzeitpunkt aus nach dem Maximum des Pulses. Anschließend geht man zurück und sucht nach dem Kanal, bei dem der Puls die Hälfte des Maximums erreicht. Dieser Kanal wird als Zeitpunkt für das Signal verwendet. Bei einer festen Schwelle (*leading edge discrimination*) hat man das Problem, dass Pulse mit großer Amplitude den Schwellwert schneller überschreiten als Pulse kleiner Amplitude, obwohl sie gleichzeitig stattfinden. Mit

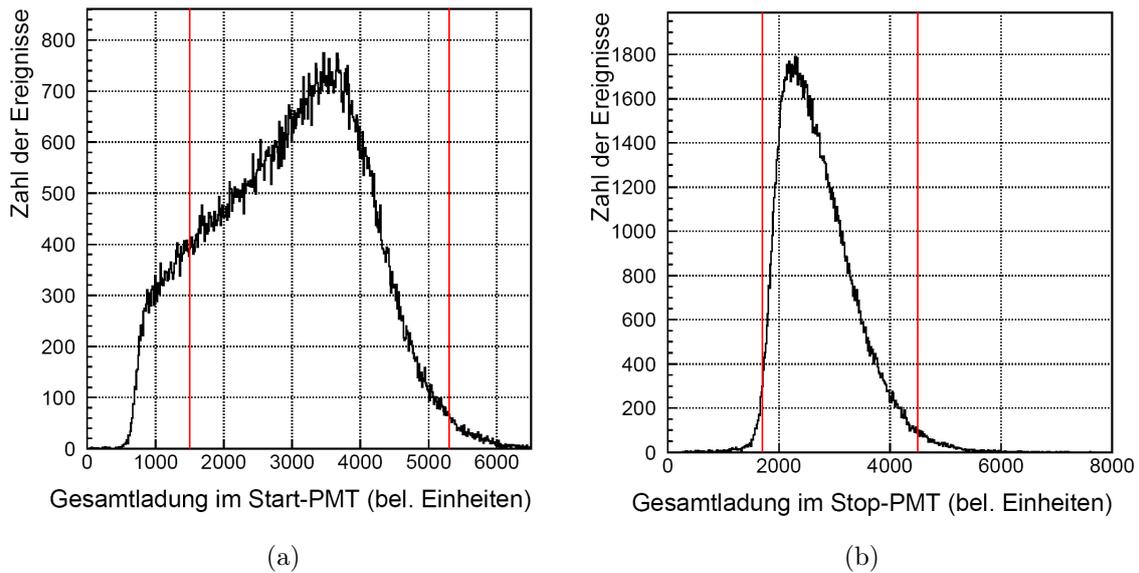


Abbildung 5.5: (a): Spektrum der Gesamtladung im Start-PMT: Für Ereignisse mit einer kleinen Gesamtladung ist auch die Zahl der Photonen klein. Damit ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon aus demselben Ereignis im Stop-PMT detektiert wird, ebenfalls kleiner als für Ereignisse großer Gesamtladung. Weil in diesem Spektrum nur Ereignisse gezeigt sind, bei denen eine Koinzidenz stattgefunden hat, ist das Compton-Spektrum deformiert: Ereignisse mit wenigen Photonen sind unterdrückt. (b): Spektrum der Gesamtladung im Stop-PMT: Man sieht das Einzelphotonenspektrum im Stop-PMT, das auf der linken Seite von der Diskriminator-Schwelle abgeschnitten wird. Die roten Linien in beiden Spektren geben die Lage der gewählten Cuts an, die in Abbildung 5.6 ebenfalls auftauchen.

der hier vorgestellten Methode (*constant fraction timing*) erreicht man, dass Pulse unterschiedlicher Amplitude, die gleichzeitig auftreten, im Idealfall denselben Startzeitpunkt zugewiesen bekommen [Sch07]. In Abbildung 5.4 sieht man außerdem, dass die Unsicherheiten durch die Schwankung der Grundlinie, die bei der vorläufigen Bestimmung des Startzeitpunktes in Schritt 3 eine große Rolle spielen, bei der *constant fraction*-Analyse nicht wichtig sind. Die Gesamtauflösung des Systems verbessert sich durch die neue Analyse signifikant.

7. Aussortieren fehlerhafter Signale: Falls in einem der beiden Signale kein Puls auftritt, wird das gesamte Ereignis verworfen. Bei Signalen, die bereits am Anfang der Aufnahme über der Grundlinie liegen, kann keine fehlerfreie Bestimmung der Zeit durchgeführt werden. Diese Signale werden deshalb ebenfalls verworfen. In seltenen Fällen wird eine Koinzidenz durch ein gleichzeitiges Auftreten von star-

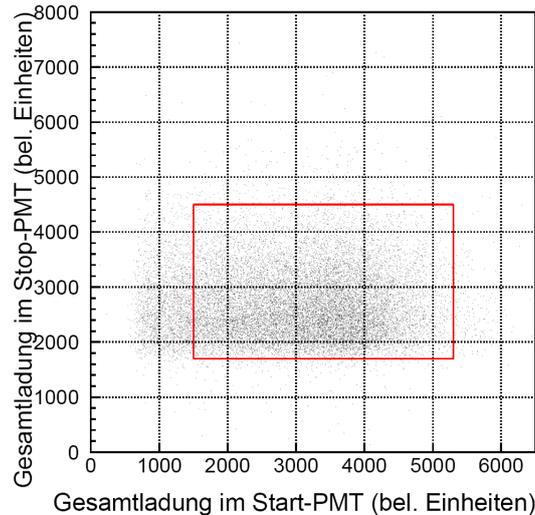


Abbildung 5.6: Gesamtladung im Start-PMT gegen die Gesamtladung im Stop-PMT. Jeder Punkt entspricht einem Koinzidenzereignis. Nur Ereignisse innerhalb des roten Kastens erfüllen die Cut-Bedingungen und werden in das Histogramm des Zeitprofils (Abbildung 5.7) aufgenommen.

ken Rauschsignalen ausgelöst. Solche Ereignisse können beispielsweise durch eine Erschütterung des Messaufbaus hervorgerufen werden. Sie können in der Softwareanalyse ebenfalls erkannt und verworfen werden.

8. Schreiben der Daten in verschiedene Histogramme

- Einzel-Pulsform (ein Histogramm für jeden Puls) (siehe Abb. 5.4).
- Zwei kombinierte Pulsformen für alle Pulse des Start- bzw. Stop-PMTs: Hier werden jeweils alle Pulse übereinandergelegt.
- Spektrum der Gesamtladung im Start- bzw. Stop-PMT (siehe Abb. 5.5).
- Graph mit Gesamtladung im Start-PMT (diese ist proportional zum Integral über den Puls) gegen die Gesamtladung im Stop-Signals. Diese Darstellung (siehe Abb. 4.8) gibt uns die Möglichkeit, Qualitätscuts auf die Gesamtladung in den beiden PMTs zu setzen. So kann man ungewöhnlich kleine bzw. große Signale nachträglich verwerfen. Der Cut auf die Start-Signale verbessert die Auflösung der Gesamtmessung deutlich. Vor allem der Cut, der die kleinen Signale verwirft, ist wirkungsvoll. Das liegt an der genaueren Bestimmung des Startzeitpunktes für größere Signale. Die anderen drei Cuts werden eingesetzt, um Untergrundereignisse zu verwerfen. Sie sind so gewählt, dass nicht allzu viele von den korrekten Signalen verworfen werden, die nur zufällig eine große bzw. kleine Amplitude aufweisen.
- experimentelles Zeitprofil $P_{exp}(t)$: Die Zeitdifferenz zwischen Start- und Stop-Signal wird in ein Histogramm und zusätzlich in eine separate Datei für den Fit geschrieben (siehe Abb. 5.7).

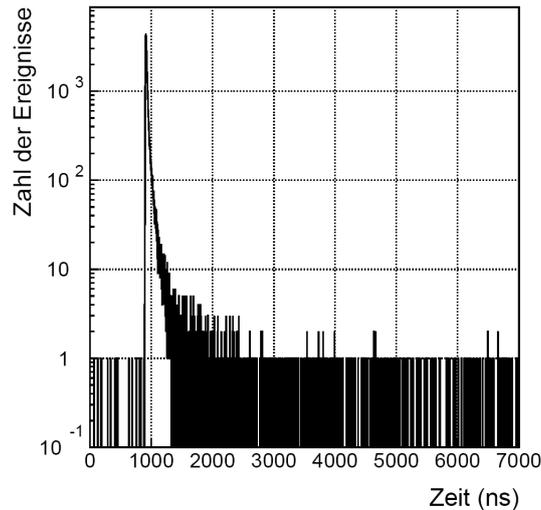


Abbildung 5.7: Typisches Profil der Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Szintillatoremmission. Um den Untergrund abzuschätzen, wird der Bereich vor der Verteilung ebenfalls gemessen. Im Peak liegt die Zahl der Ereignisse etwa 10^6 mal höher als im Untergrund. Man sieht, dass die Verteilung bei langen Zeiten fast wieder auf das Niveau des Untergrunds fällt. Die Verteilungen der gemessenen Proben werden im Einzelnen in Kapitel 5.5 vorgestellt.

5.3.2 Auswertung der experimentellen Wahrscheinlichkeitsverteilungen

Zur Auswertung der experimentell bestimmten Wahrscheinlichkeitsverteilungen $P_{exp}(t)$ wird ein Fit durchgeführt. Die Fitfunktion $f(t)$ ist die Faltung aus der erwarteten Wahrscheinlichkeitsdichte $P(t)$ der Emission plus Untergrund und der Auflösungsfunktion. Dabei nimmt man eine Multiexponentialverteilung mit den freien Parametern q_i , τ_i und t_0 an:

$$P(t) = \sum_{i=1}^n \frac{q_i}{\tau_i} e^{-(t-t_0)/\tau_i} \cdot \Theta(t - t_0). \quad (5.9)$$

Um auszudrücken, dass keine Emission vor der Anregung stattfindet, wird die Heaviside-Stufenfunktion $\Theta(x)$ verwendet. (Definition: $\Theta(x) = 0$ für $x < 0$ und $\Theta(x) = 1$ für $x \geq 0$). Die Anzahl n der Komponenten ist nicht von vornherein festgelegt. Beim Durchführen des Fits versucht man, n möglichst klein zu halten. t_0 ist eine konstante unbekannte Verschiebung zwischen Start- und Stop-Signal, unter anderem aufgrund von unterschiedlichen Kabellängen und Laufzeiten der Elektronen in den PMTs. Der Untergrund wird durch die Konstante u parametrisiert.

Die Auflösung des Gesamtsystems wird durch eine Normalverteilung mit dem freien

Parameter	Erklärung
τ_i	Zeitkonstanten der Szintillatoremission
q_i	Gewichte der Komponenten
t_0	konstante Zeitverschiebung
u	konstanter Untergrund
σ	Auflösung des Gesamtsystems

Tabelle 5.1: Freie Parameter der Fitfunktion $f(t, p_j)$.

Parameter σ beschrieben. Damit kann man die Faltung durchführen:

$$\begin{aligned}
 f(t) &= [P(t) + u] \otimes A(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \left[u + \sum_{i=1}^n \frac{q_i}{\tau_i} e^{-(s-t_0)/\tau_i} \cdot \Theta(s - t_0) \right] \cdot \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{1}{2} \frac{(t-s)^2}{\sigma^2}} ds \\
 &= u + \sum_{i=1}^n q_i \cdot e^{\frac{\sigma^2}{2\tau_i^2} + \frac{t_0}{\tau_i} + t(\sum_{j \neq i}^n \frac{1}{\tau_j})} \cdot \text{Erfc} \left[\frac{t_0 - t + \frac{\sigma^2}{\tau_i}}{\sqrt{2} \cdot \sigma} \right].
 \end{aligned} \tag{5.10}$$

Dabei ist $\text{Erfc}(u)$ die komplementäre Errorfunktion $\text{Erfc}(u) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^u e^{-v^2} dv$. Die freien Parameter der Fitfunktion sind in Tabelle 5.1 zusammengestellt.

Der Fit wird mit dem MINUIT-Paket aus den CERN-Bibliotheken durchgeführt. MINUIT wird innerhalb eines FORTRAN-Programms aufgerufen. Dabei wird ein χ^2 -Term bezüglich der freien Parameter $\{p_j\}$ (siehe Tabelle 5.1) minimiert:

$$\chi^2(\{p_j\}) = \sum_{i=i_1}^{i_2} \frac{[N(t_i) - f(t_i, \{p_j\})]^2}{[\Delta N(t_i)]^2}. \tag{5.11}$$

$N(t_i)$ ist die Anzahl der Ereignisse im Zeitbin i . Als Fehler für jeden einzelnen Bin wird $\Delta N(t_i) = \sqrt{N(t_i)}$ angenommen. Typischerweise ist die Zahl der ausgewerteten Kanäle $i_2 - i_1$ etwa 700. Das entspricht bei der Auflösung von 200 ps pro Kanal 140 ns.

Der Fit der Daten erfolgt in mehreren Schritten. Einzelne Parameter sind in unterschiedlichen Bereichen der Wahrscheinlichkeitsverteilung unterschiedlich wichtig. Betrachtet man z.B. lange Zeiten, dann kann man Terme der Multiexponentialverteilung mit kurzen Zerfallszeiten vernachlässigen und man erhält stabile Werte für die Terme mit langen Zerfallszeiten. Diese Parameter können im zweiten Schritt festgehalten werden, wenn man die Kurve bei kurzen Zeiten betrachtet.

5.4 Vorhersage der Zeitkonstanten der Szintillation

Das Modell für die Lichtausbeute aus Kapitel 3.3.2 kann auch dazu verwendet werden, Vorhersagen über das Zeitprofil der Szintillatoremission zu machen. Die experimentell bestimmten Parameter des Modells (siehe Kapitel 4.3.3) geben die Verhältnisse zwischen

Größe	Wert	Quelle
Q_{PXE}	0.29	[Har07]
Q_{Dod}	0.01	[Shk01]
Q_{PPO}	1.00	[Ber71]
$Q_{bis-MSB}$	0.94	[Ber71]
τ_{PXE}	22 ns	[Gög07]
τ_{Dod}	770 ns	[Shk01]
τ_{PPO}	1.4 ns	[Ber71]
$\tau_{bis-MSB}$	1.35 ns	[Ber71]

Tabelle 5.2: Literaturwerte für die Fluoreszenz der Szintillatorkomponenten.

den Raten der einzelnen Prozesse an. Aus Literaturwerten für die Quantenausbeute und die Zerfallszeit der beteiligten Moleküle kann man eine Rate für den strahlungslosen Energietransfer bestimmen [Har07]. Außerdem erhält man aus dem Modell die Gewichte der einzelnen Pfade, die zur Emission beitragen: Dabei stellt sich heraus, dass der Pfad PXE-PPO-bis-MSB den größten Beitrag zur Emission liefert (auch für den Gamma Catcher mit 4 % PXE-Anteil). Für diesen Pfad wollen wir die Vorhersage der Zeitkonstante durchführen:

In Tabelle 5.2 sind die Literaturwerte für die Quantenausbeute und Zerfallszeit der verschiedenen Moleküle angegeben. Damit berechnet man die Rate für den Zerfall durch interne Abregung λ_i :

$$Q = \frac{\lambda_{em}}{\lambda_{em} + \lambda_i} \quad \rightarrow \quad \lambda_i = \frac{\lambda_{em}}{Q} - \lambda_{em}. \quad (5.12)$$

Mit den Parametern aus dem Lichtausbeute-Modell kann man die Rate für den strahlungslosen Energietransfer von PXE zu PPO erhalten. Der über die Lichtausbeutemessungen experimentell bestimmte Parameter k_i/k_a stellt die Beziehung zwischen den internen Verlusten in PXE und dem strahlungslosen Energietransfer von PXE zu PPO her. Wichtig ist hierbei, dass die Rate für den strahlungslosen Energietransfer, die man mit den internen Verlusten vergleicht, von der PPO-Konzentration abhängt (siehe Gleichung (3.5)):

$$\lambda_{PXE \rightarrow PPO} = \lambda_a \cdot A = \frac{\lambda_i}{k_i/k_a} \cdot a = 0.33 \text{ l}/(\text{g} \cdot \text{ns}) \cdot a. \quad (5.13)$$

Zur Erinnerung: a ist die PPO-Konzentration in g/l, A ist die PPO-Konzentration in mol/l, $\lambda_i = k_i$ und $k_a = \lambda_a \cdot 1/M_{PPO} = \lambda_a \cdot A/a$ (zur Definition der Konstanten siehe Tabelle 3.1).

Die Zerfallszeit von PPO entnimmt man direkt aus der Literatur: $\tau_{PPO} = 1.4$ ns. Aus den Raten für die einzelnen Prozesse berechnen wir durch Addition der Zeiten eine typische Zeitkonstante. Aus Gleichung (5.13) erhält man, dass für eine Konzentration von 7 g/l PPO die Rate für den strahlungslosen Energietransfer von PXE nach PPO 2.31 ns^{-1} beträgt. Das entspricht der Zeitkonstante 0.43 ns. Die Emission durch das PPO erfolgt

Szintillator	q_1	q_2	q_3	τ_1	τ_2	τ_3	σ
BC505	0.88	0.09	0.03	2.0 ns	5.8 ns	27 ns	0.87
Standard	0.87	0.065	0.065	2.2 ns	12.0 ns	67 ns	0.92
Target	0.69	0.28	0.03	2.4 ns	9.5 ns	36 ns	0.90
GC 1 (4 % PXE, 5 g PPO/l)	0.73	0.19	0.08	3.7 ns	14.0 ns	53 ns	0.99
GC 2 (3 % PXE, 5 g PPO/l)	0.75	0.18	0.07	3.7 ns	13.4 ns	38 ns	0.97
GC 3 (4 % PXE, 2 g PPO/l)	0.80	0.14	0.06	5.3 ns	16.1 ns	59 ns	1.13

Tabelle 5.3: Fit-Parameter aus den gemessenen Zeitprofilen. Die Vorhersage des Lichtausbeutemodells aus dem vorangegangenen Kapitel ($\tau \approx 3.2ns$) passt zu den gemessenen Werten der wichtigsten Komponente τ_1 (Die Abkürzung GC steht für Gamma Catcher).

mit der Zerfallszeit 1.4 ns. Die Photonen werden anschließend von bis-MSB absorbiert und mit einer Zeitkonstante von 1.35 ns reemittiert. Für diesen Pfad sagt das Modell also eine typische Zeit von etwa 3.18 ns voraus.

Man sieht, dass die Zeitkonstante für den Energietransfer mit steigender Konzentration a kleiner wird. Der Effekt einer sich ändernden PXE-Konzentration auf die Zeit ist komplizierter. Zum Einen wird die Zeit kürzer, in der Energie von einem der anderen beiden Lösungsmittel auf PXE transferiert wird, zum Anderen ändern sich die Gewichte der unterschiedlichen Pfade.

5.5 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

Die Messung der Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Szintillatoremision wurde für sechs verschiedene Szintillatoren durchgeführt. Jede Messung enthält dabei mindestens 400.000 Ereignisse. Damit ist man in der Lage, die Wahrscheinlichkeitsverteilung mehrere Zehn bis Hundert Nanosekunden nach der Anregung zu erhalten. Im Vordergrund der Untersuchungen standen die Target-Zusammensetzung und verschiedene Gamma Catcher-Szintillatoren, von denen drei unterschiedliche gemessen wurden. Zusätzlich wurden BC505 (ein kommerziell erhältlicher Szintillatorstandard) und der Lichtausbeutestandard PXE + 6 g PPO/l + 20 mg bis-MSB/l untersucht. Abbildung 5.8 bis Abbildung 5.13 zeigen die experimentellen Wahrscheinlichkeitsverteilungen für die Szintillatoremision $P_{exp}(t)$ und die zugehörigen Fits.

In Tabelle 5.3 sind die Fit-Parameter aufgelistet, welche die Verteilung charakterisieren. Der Untergrund der Messung beträgt pro bin etwa das 10^{-6} -fache der Ereignisse pro bin im Maximum.

Der Szintillatorstandard BC505 zeigt von allen gemessenen Proben die kürzesten Szintillationszeiten. Auch das Gewicht der ersten Komponente ist mit 88 % vergleichsweise groß. Der Unterschied zu den anderen Szintillatoren kann damit erklärt werden, dass ein anderes Lösungsmittel verwendet wird, nämlich Pseudocumol (PC). Die genaue Zusammensetzung von BC505 wird vom Hersteller nicht preisgegeben, man kann durch

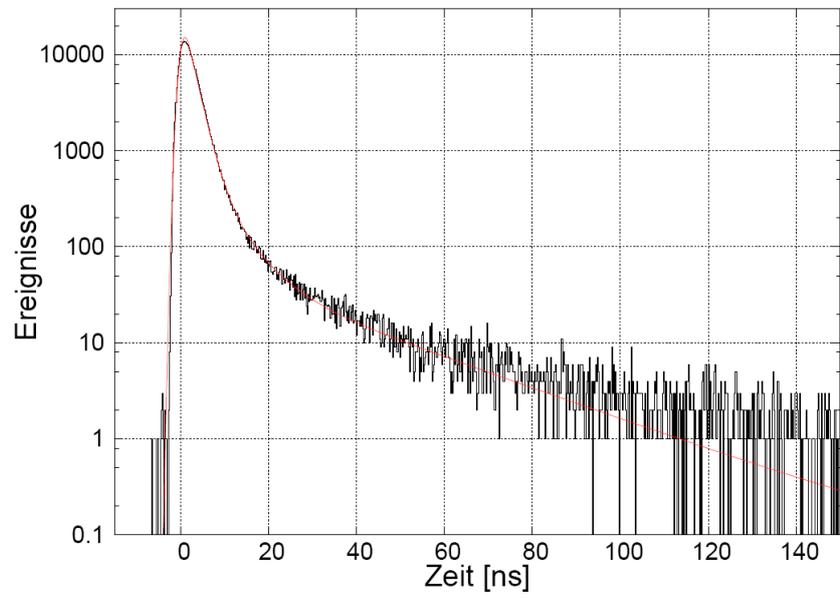


Abbildung 5.8: Zeitprofil des Szintillator-Standards BC505.

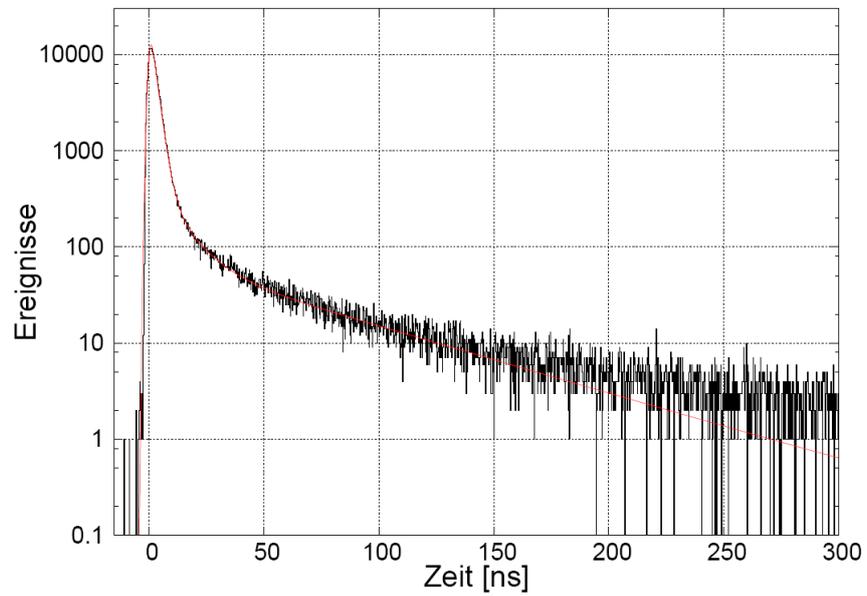


Abbildung 5.9: Zeitprofil des Standards für die Lichtausbeutemessungen: PXE + 6 g PPO/l + 20 mg bis-MSB/l.

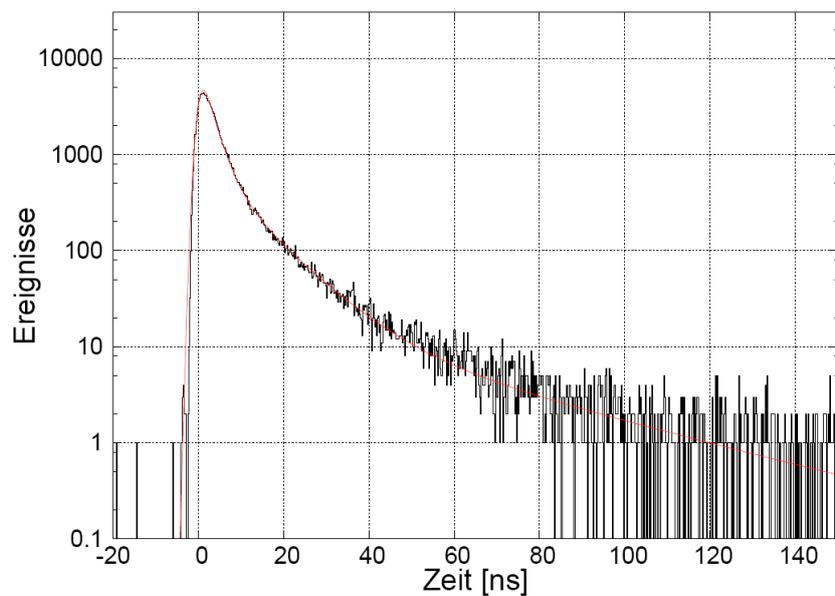


Abbildung 5.10: Zeitprofil des Target-Szintillators: 20 % PXE, 80 % Dodecan, 7 g PPO/l, 1 g Gd/l, 20 mg bis-MSB/l.

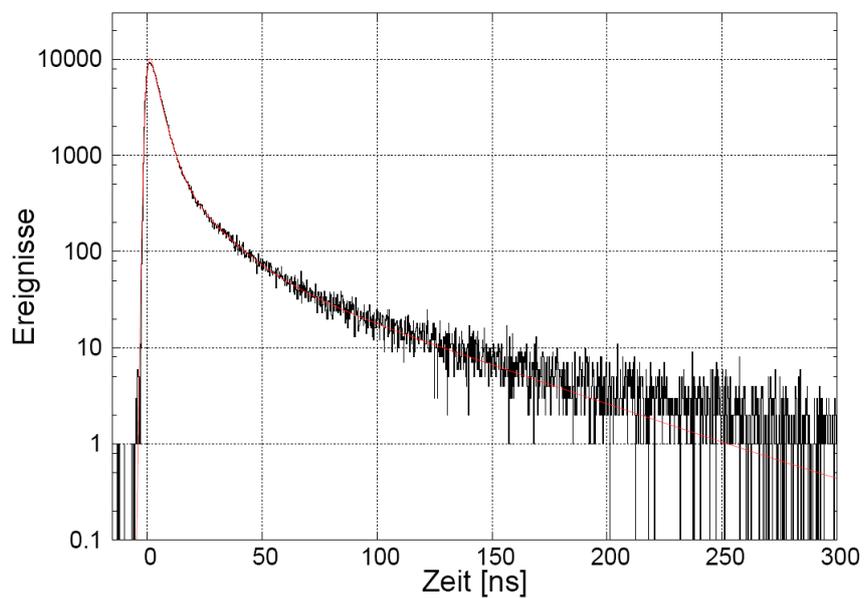


Abbildung 5.11: Zeitprofil des Gamma Catcher 1: 4 % PXE, 44 % Dodecan, 52 % Mineralöl (MO), 5 g PPO/l.

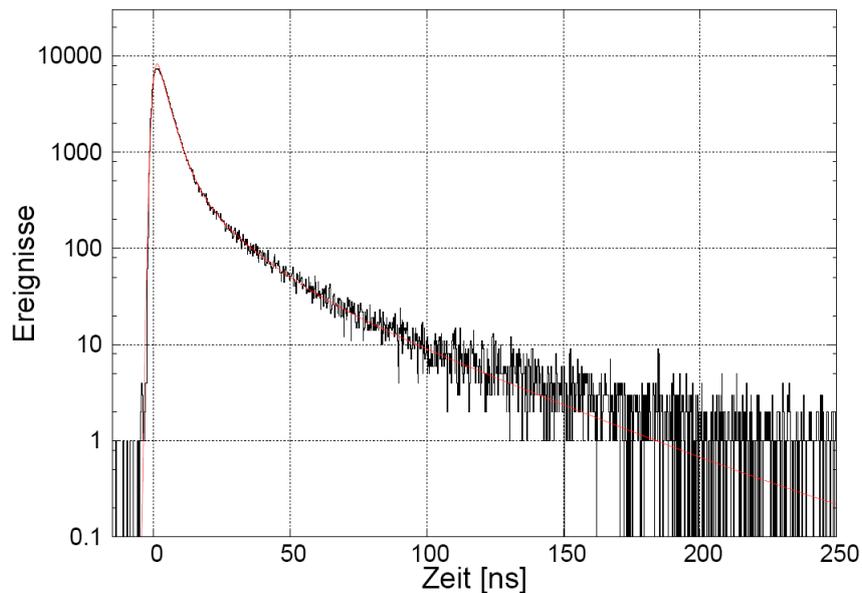


Abbildung 5.12: Zeitprofil des Gamma Catcher 2: 3 % PXE, 42 % Dodecan, 55 % Mineralöl (MO), 5 g PPO/l.

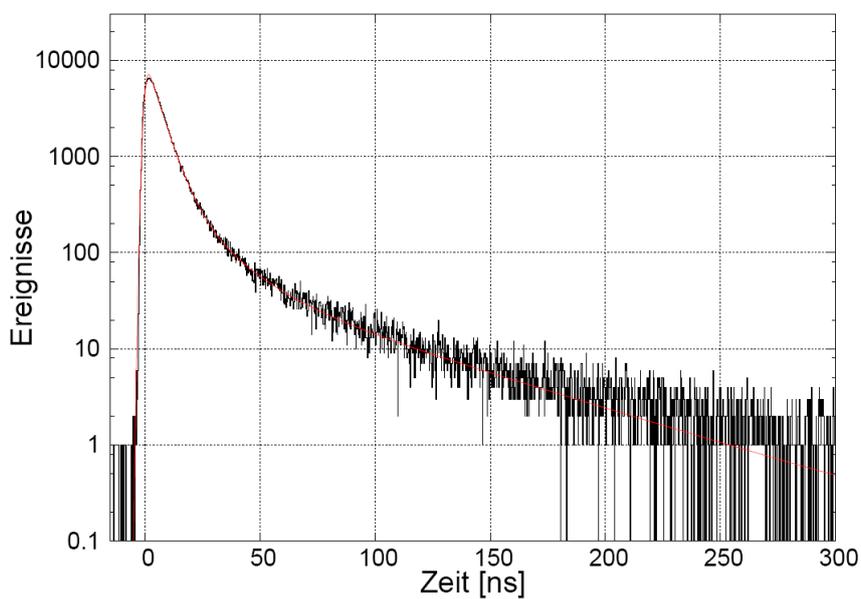


Abbildung 5.13: Zeitprofil des Gamma Catcher 3: 4 % PXE, 44 % Dodecan, 52 % Mineralöl (MO), 2 g PPO/l.

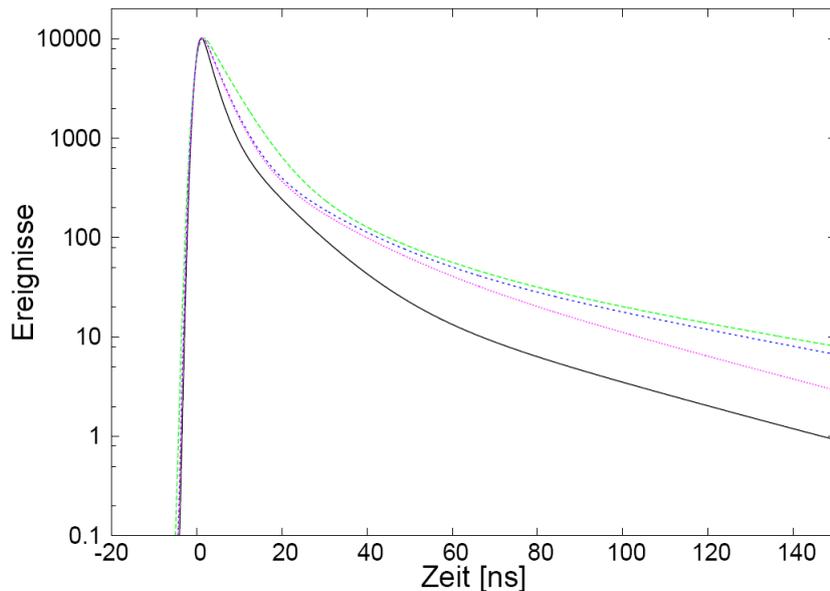


Abbildung 5.14: Fits der Zeitprofile im Vergleich: Das jeweilige Maximum der Fitkurven wurde auf denselben Wert gelegt. Die schwarze, durchgezogene Linie zeigt den Fit für das Neutrino-Target. Die gestrichelten Linien stehen für die Fits der drei Gamma Catcher Szintillatoren. Die blaue, rosa und grüne Kurve gehört zum Gamma Catcher 1, 2 bzw. 3.

Messungen des Emissionsspektrums aber feststellen, dass bis-MSB enthalten sein muss [Buc04]. Die Szintillationszeit wird vom Hersteller mit 2.5 ns angegeben. Bei der hier vorgestellten Analyse mit drei Komponenten erwartet man für die kleinste Zeitkonstante einen etwas kleineren Wert und findet experimentell $\tau_1 = 2.0$ ns.

Der Standard der Lichtausbeutemessungen zeigt ebenfalls eine schnelle erste Komponente mit einem großen statistischen Gewicht. Das Lichtausbeutemodell berücksichtigt für diesen Szintillator nur einen Pfad, der zu Lichtemission führt. Man erwartet also ein großes Gewicht für die erste Komponente. Die zweite Komponente hat relativ zu den anderen Szintillatoren das niedrigste Gewicht. Sie ist für den Fit vergleichsweise unwichtig. Das deutet darauf hin, dass zwei Komponenten bereits ausreichen würden, um die Kurve zu beschreiben. Im Rahmen des Modells kann die große Zeitkonstante τ_3 aber nicht ausreichend erklärt werden.

Zur Veranschaulichung der Diskussion der gemessenen Parameter sind in Abbildung 5.14 die Fitkurven des Targets und der drei Gamma Catcher Szintillatoren ohne die Daten dargestellt. Im Vergleich zu den Gamma Catcher-Zusammensetzungen hat der Target-Szintillator kurze Zeitkonstanten τ_i . Der Hauptgrund für dieses Verhalten liegt darin, dass im Target der Gadolinium-Komplex vorhanden ist. Aus den Lichtausbeutemessungen folgt, dass Energietransfer von den Lösungsmitteln zu Gadolinium stattfindet. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass PXE die Energie spät zu PPO transferiert, sinkt mit der

Anwesenheit von Gadolinium, weil das Gadolinium die Energie ebenfalls erhalten und quenchen kann.

Die Gamma Catcher-Zusammensetzungen 1 und 2 haben für kurze Zeiten ein sehr ähnliches Zeitprofil. Sie unterscheiden sich nur in der Zusammensetzung der Lösungsmittel (4 % PXE bzw. 3 % PXE). Dieser Unterschied scheint für das Zeitprofil des Gamma Catchers bei langen Zeiten von Bedeutung zu sein. Interessant ist auch die erste Zeitkonstante der Gamma-Catcher-Zusammensetzung 3. Die PPO-Konzentration liegt hier mit 2 g/l im Bereich der kritischen Konzentration im Gamma Catcher. Bei den anderen beiden Zusammensetzungen mit jeweils 5 g PPO/l ist die Transferrate schon fast maximal. Dieser Unterschied zeigt sich sowohl in der Lichtausbeute, als auch in den unterschiedlichen Zeitkonstanten der Emission.

Aus Abbildung 5.14 kann man schließen, dass die kurzen Zeitkonstanten im Gamma Catcher von der PPO-Konzentration dominiert werden. Die langsamen Komponenten im Zeitprofil sind bei höheren PXE-Konzentrationen stärker ausgeprägt. Eine mögliche Erklärung liefern die Energietransferpfade, bei denen PXE von einem der anderen beiden Lösungsmittelmoleküle angeregt wird. Das Modell sagt voraus, dass diese Pfade eine große Zeitkonstante haben (der Parameter k_{d1}/k'_a ist entscheidend) und dass ihr Gewicht mit dem PXE-Anteil zunimmt.

Um die Lichtausbeute im Target und die Lichtausbeute im Gamma Catcher anzugleichen, hat man die Wahl, von der Zusammensetzung des Gamma Catcher 1 aus entweder die PXE-Konzentration etwas zu verringern (Gamma Catcher 2) oder die PPO-Konzentration kleiner zu wählen (Gamma Catcher 3). Unterschiedliche Zeitprofile im Target und Gamma Catcher könnten ausgenutzt werden, um eine Pulsformanalyse in Double Chooz anzuwenden. Sind die Signale im Gamma Catcher aber zeitlich zu ausgedehnt, dann könnte das die Wahrscheinlichkeit von ungewollten Überlagerungen von Signalen erhöhen. Dabei sind aber vor allem die großen Zeitkonstanten wichtig. Diese waren bei unserer Messung für die unterschiedlichen Gamma Catcher- Zusammensetzungen nicht sehr unterschiedlich. Außerdem können Ereignisse, die im Target stattfinden, einen Teil ihrer Energie im Gamma Catcher deponieren. Das führt zu gemischten Pulsformen, die schwierig zuzuordnen sind.

Die Ergebnisse dieser Messungen werden verwendet, um die Zusammensetzung des Gamma Catchers für Double Chooz in der Kollaboration zu diskutieren.

6 Emission und Absorption der Szintillatorkomponenten

6.1 Einleitung

Die optischen Eigenschaften des Szintillators sind von entscheidender Bedeutung für das Experiment Double Chooz. Da das in der Neutrinoreaktion produzierte Licht typischerweise einige Meter zurücklegen muss, bis es in einem PMT detektiert werden kann, ist es wichtig, dass der Szintillator für seine eigene Emission sehr transparent ist. Deshalb verwendet man zwei Fluore, um das Emissionsspektrum zu längeren Wellenlängen zu verschieben. Dort ist der Szintillator transparenter, weil die Emission nicht mehr so stark mit der Absorption der Komponenten überlappt.

In diesem Kapitel werden experimentelle Ergebnisse der Emission und der Absorption vorgestellt. Sie geben einen zur Lichtausbeute komplementären Einblick in die Prozesse des Energietransfers, die im Szintillator stattfinden. Die Ergebnisse der Absorptions- und Emissionsmessungen einzelner Szintillatorkomponenten für Double Chooz werden gemeinsam betrachtet. Anhand der Überlagerung des Emissionsspektrums einer Komponente mit dem Absorptionsspektrum einer zweiten Komponente wird der Energietransfer zwischen diesen beiden Komponenten diskutiert.

6.2 Experimentelle Methoden

6.2.1 Absorptionsmessungen

Messprinzip

Absorptionsspektren können am MPIK mit einem UV/Vis-Spektrometer (Varian Cary 400) aufgenommen werden. Dabei misst man die Abschwächung eines Lichtstrahls beim Durchgang durch die Probe. Die Absorptionsspektren werden in Schritten von 1 nm aufgenommen. Man kann sowohl reine Lösungsmittel oder komplette Szintillatoren als auch einzelne Komponenten messen, die in einem transparenten Lösungsmittel gelöst sind (Cyclohexan ist beispielsweise oberhalb von 210 nm transparent). Der Wellenlängenbereich erstreckt sich vom Ultravioletten (175 nm) bis ins nahe Infrarot (900nm). Wir verwenden Zellen mit einer Länge von $x = 1$ cm oder $x = 10$ cm. Die Intensität I nimmt beim Durchqueren der Probe mit der Dicke der Probe x ab:

$$I(x) = I(0) \cdot e^{-x/\Lambda}. \quad (6.1)$$

Dabei ist Λ die Absorptionslänge der Probe. Die Absorption A wird definiert als

$$A(x) = \log_{10} \left(\frac{I(0)}{I(x)} \right). \quad (6.2)$$

Die Absorptionslänge kann damit durch die Absorption ausgedrückt werden:

$$\Lambda = \log_{10}(e) \cdot \frac{x}{A} \approx 0.4343 \cdot \frac{x}{A}. \quad (6.3)$$

Die Absorptionen mehrere Komponenten addieren sich: $A_1 + A_2 + \dots = A_{ges}$. Damit erhält man für die gesamte Absorptionslänge $1/\Lambda_1 + 1/\Lambda_2 + \dots = 1/\Lambda_{ges}$. Häufig wird für eine einzelne Komponenten auch der molare Extinktionskoeffizient ϵ verwendet

$$\epsilon = \frac{A \cdot M}{c \cdot x}. \quad (6.4)$$

c ist die Konzentration in g/l und M ist das Molekulargewicht in g/mol. Im Gegensatz zur Absorption ist der molare Extinktionskoeffizient eine materialspezifische Größe, die nicht von der Konzentration des Stoffes und der Länge der verwendeten Zelle abhängt. Gleichung (6.4) spiegelt den linearen Zusammenhang zwischen der Konzentration und der Absorption wieder. Das entspricht dem Lambert-Beerschen Gesetz.

Das UV/Vis-Spektrometer liefert die Absorption der Probe relativ zu der Absorption einer Grundlinie. Hat man eine verdünnte Lösung eines Stoffes, dann kann man als Grundlinie die Absorption des reinen Lösungsmittels als Grundlinie verwenden. Will man die Absorption einer unverdünnten Probe messen, kann diese Methode nicht angewendet werden. Die Grundlinie kann in diesem Fall auf zwei verschiedene Arten gemessen werden: Man kann sowohl eine leere Zelle als auch die Absorption in Luft aufnehmen. Beide Methoden sind fehlerbehaftet, weil Reflexionen an den Grenzflächen zwischen Luft und Zelle auftreten können.

Da der Brechungsindex für typische Flüssigszintillatoren sehr gut mit dem der Quartzzellen übereinstimmt (Brechungsindex $n \approx 1.5$), kann man die Reflexionen an den Grenzschichten zwischen Zelle und Probe in unserem Fall vernachlässigen. Nimmt man als Grundlinie die Absorption in Luft, dann erhöht sich beim Einführen der Probe die Zahl der Reflexionsebenen durch Luft-Glas-Übergänge um 2. Bei der Bestimmung der Grundlinie mit einer leeren Zelle erniedrigt sich die Zahl der relevanten Reflexionsebenen um 2, weil die Flüssigkeit etwa denselben Brechungsindex hat wie das Glas.

Die Absorption der betrachteten Szintillator-Komponenten ist in bestimmten Wellenlängenbereichen ($\lambda \approx 585$ nm) sehr gering. Damit kann man den Wert der Messung $A_{exp}(\lambda)$ für andere Wellenlängen auf diesen Wert korrigieren und erhält das Absorptionsspektrum $A(\lambda) = A_{exp}(\lambda) - A_{exp}(585nm)$.

Abhängigkeit der Reflexion von der Wellenlänge

Mit der oben beschriebenen Methode korrigiert man das Absorptionsspektrum unter der Annahme, dass die Reflexionen an der Grenzfläche zwischen Luft und Glas wellenlängenunabhängig sind. Damit macht man einen systematischen Fehler, der mit dem Abstand

$|\lambda - 585nm|$ der Wellenlänge von 585nm wächst. Im Folgenden ist eine Korrektur dieses Effekts beschrieben [Mot06].

Der Reflexionskoeffizient R und die Transmission T sind bei senkrechtem Einfall von Licht auf eine Grenzfläche mit den zwei Brechungsindizes n_2 und n_1 gegeben durch

$$R = \left(\frac{n_2 - n_1}{n_2 + n_1} \right)^2 \quad \text{und} \quad T = 1 - R. \quad (6.5)$$

Für eine leere Zelle mit den vier Grenzflächen zwischen Luft und Glas erhält man damit in erster Ordnung die Gesamttransmission $T_{tot1}^{leer} = (1 - R)^4$. Die zweite Ordnung erhält man, indem man auch doppelte Reflexionen berücksichtigt. Die totale Transmission in der zweiten Ordnung ist somit größer als in der ersten Ordnung:

$$T_{tot2}^{leer} = (1 - R)^4 \cdot [1 + 3R^2 + 2R^2(1 - R)^2 + R^2(1 - R)^4]. \quad (6.6)$$

Für die volle Zelle ist die Situation einfacher: Es sind jetzt nur noch zwei Luft-Glas Grenzflächen vorhanden. Damit ergibt sich wiederum in zweiter Näherung

$$T_{tot2}^{voll} = (1 - R)^2 \cdot (1 + R^2). \quad (6.7)$$

Die Werte für T können mit der Beziehung $T = I(x)/I(0)$ und Gleichung (6.2) in eine Absorption umgerechnet werden, die durch die Reflexionen vorgetäuscht wird. Wie oben besprochen, wird durch die Referenzmessung mit der leeren Zelle die Absorption in der vollen Zelle unterschätzt. Um den Effekt des Glases allein zu untersuchen, nehmen wir an, dass das Lösungsmittel keine Absorption aufweist. Dann erhält man für die Messung der Absorption $A_{exp}(\lambda)$ durch Subtrahieren der Absorption der leeren Zelle A^{leer} von der Absorption der gefüllten Zelle A^{voll} :

$$A_{exp}(\lambda) = A^{voll} - A^{leer} = -\log_{10} \left(\frac{T^{voll}(\lambda)}{T^{leer}(\lambda)} \right). \quad (6.8)$$

Die Reflexion R und damit die Transsmision T ist über die Abhängigkeit von der Brechungszahl des Quartzglases wellenlängenabhängig. Nach der oben genannten Methode berechnet man die Korrektur, indem man $A(\lambda) - A(585nm)$ auswertet. In [Mot06] ist der Korrekturwert $A(\lambda) - A(585nm)$ mit Literaturwerten von $n_{Quartz}(\lambda)$ für einige Wellenlängen mithilfe der Gleichungen (6.5) bis (6.8) berechnet. Diese kann man mit Gleichung (6.3) in eine Absorptionslänge umrechnen. Da man das gesamte Spektrum auf diese Weise korrigieren möchte, wurde ein Fit an die so bestimmten Punkte $\Lambda_{korr}(\lambda_i)$ angelegt. Als Fitfunktion wurde die parametrisierte Funktion $\Lambda_{korr}(\lambda)$ verwendet

$$\Lambda_{korr}(\lambda) = \frac{0.04343}{(\lambda - \lambda_0) \cdot [a + b(\lambda - \lambda_0)]}. \quad (6.9)$$

Man erhält die Werte der freien Parameter

$$a = 2.82 \cdot 10^{-6} \quad \text{und} \quad b = -1.57 \cdot 10^{-8}. \quad (6.10)$$

Analog dazu kann man auch die Korrektur für den Fall berechnen, dass die Grundlinie in Luft gemessen wurde. Man kann ebenfalls Gleichung (6.9) verwenden. In diesem Fall lauten die Parameter

$$a = -3.20 \cdot 10^{-6} \quad \text{und} \quad b = 1.81 \cdot 10^{-8}. \quad (6.11)$$

Die Korrektur wird angewendet, indem man das Inverse der Korrektur-Absorptionslänge $\Lambda_{korr}(\lambda)$ vom Inversen der experimentell bestimmten Absorptionslänge Λ_{exp} subtrahiert:

$$\Lambda = \left(\frac{1}{\Lambda_{exp}} - \frac{1}{\Lambda_{korr}} \right)^{-1}. \quad (6.12)$$

Aus dieser Gleichung kann man ablesen, dass die Korrektur vor allem für große Absorptionslängen Λ_{exp} wichtig ist. Als Beispiel betrachten wir eine gemessene Absorptionslänge von 1 m bei 430 nm, falls die Grundlinie mit der leeren Zelle gemessen wurde. Die korrigierte Absorptionslänge beträgt in diesem Fall $\Lambda=0.98$ m. Für $\Lambda_{exp} = 10$ m erhält man die korrigierte Absorptionslänge $\Lambda=8.4$ m. Im Fall einer starken Absorption durch die Probe kann die Korrektur vernachlässigt werden, für sehr transparente Proben ist sie wichtig.

6.2.2 Fluoreszenzmessungen

Die Emissionsspektren der Szintillatorkomponenten wurden mit einem Fluorimeter (Cary Eclipse) aufgenommen. Die Probe wird in eine Zelle gefüllt und mit einer einstellbaren Wellenlänge zwischen 190 nm und 900 nm bestrahlt. Das Emissionsspektrum der Probe wird unter einem Winkel von 90° beobachtet. Typischerweise wählt man als Anregungswellenlänge das Maximum der Absorption der Probe. Die einzelnen Komponenten des Double Chooz Szintillators wurden in Cyclohexan gelöst. Cyclohexan wird durch Licht mit einer Wellenlänge > 210nm nicht angeregt und kann damit auch nicht zur Fluoreszenz beitragen.

6.3 Ergebnisse und Diskussion

Es werden die Emissions- und Absorptionsspektren der Komponenten PXE, Dodecan, PPO, bis-MSB und Gd(dpm)₃ vorgestellt. Die molare Extinktion wurde mit der oben beschriebenen Korrektur aus den Absorptionsmessungen mit dem UV/Vis-Spektrometer berechnet. Sie ändert sich in dem betrachteten Wellenlängenbereich über mehrere Größenordnungen. Um die dafür benötigte Genauigkeit zu erreichen, wurden für die einzelnen Komponenten mehrere Proben unterschiedlicher Konzentration hergestellt. Als Lösungsmittel wurde Cyclohexan benutzt. Außerdem wurde im Fall von PXE und Dodecan die Probe zusätzlich in reiner Form gemessen.

Bei der Messung des Emissionsspektrums mit dem Fluorimeter wird zur Anregung die Wellenlänge gewählt, bei der die Absorption der Komponente maximal ist. In den Abbildungen 6.1 bis 6.4 sind die Messungen gezeigt. Zusätzlich sind dieselben Daten noch einmal gemeinsam in Abbildung 6.6 mit einer linearen Skala dargestellt, um den Überlapp zwischen den verschiedenen Komponenten zu diskutieren.

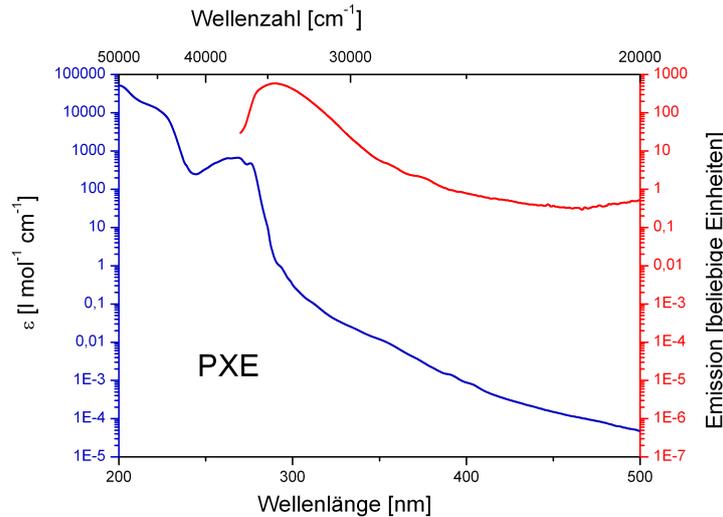


Abbildung 6.1: Molarer Extinktionskoeffizient ϵ (blaue Linie) und Emissionsspektrum (rote Linie) von PXE. Angeregt wurde das PXE-Molekül im Fluorimeter mit einer Wellenlänge von 269 nm und 220 nm. In beiden Fällen erhält man das gleiche Emissionsspektrum.

PXE

Die molare Extinktion ϵ von PXE ändert sich in dem betrachteten Wellenlängenbereich stark (siehe Abb. 6.1). Für diese Messung wurden drei verschiedene Konzentrationen von PXE in Cyclohexan und reines PXE verwendet. Um das Emissionsspektrum zu erhalten, wählt man für die Anregung des Moleküls eine Wellenlänge, bei der die Absorption möglichst groß ist. Die Anregung von PXE wurde mit zwei verschiedenen Wellenlängen durchgeführt (269 und 220 nm). Man erhält jeweils das gleiche Emissionsspektrum. Dieses Emissionsspektrum ist gegenüber dem Absorptionsspektrum durch den Stokes-shift verschoben (siehe Kapitel 3.1.2). Dennoch spielt der Überlapp zwischen dem Emissionsspektrum und dem Absorptionsspektrum eine wichtige Rolle. Dazu betrachten wir ein Zahlenbeispiel: Das Target von Double Chooz hat eine PXE-Konzentration von etwa 200 g/l. Unterhalb von 315 nm werden 90 % des Lichts von PXE emittiert. Für die Konzentration von 200 g/l ist die Absorptionslänge von PXE für $\lambda < 315$ nm kleiner als 5.8 cm. Daraus folgt, dass für einen funktionierenden PXE-basierten Szintillator in einem Detektor mit einem Durchmesser von einigen Metern die Transparenz verbessert werden muss. Die Fluore PPO und bis-MSB verschieben die PXE-Emission zu größeren Wellenlängen, wo die Absorption kleiner ist.

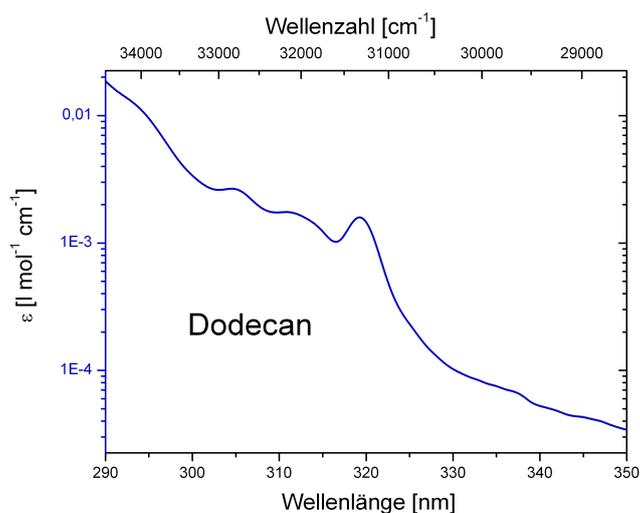


Abbildung 6.2: Molarer Extinktionskoeffizient ϵ von Dodecan. Das Molekül zeigt bei Anregung im verfügbaren Wellenlängenbereich (190 nm bis 900 nm) keine Emission.

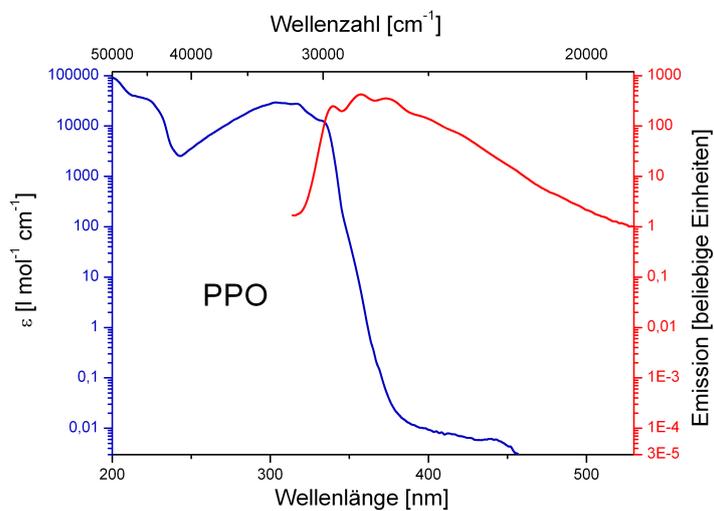


Abbildung 6.3: Molarer Extinktionskoeffizient ϵ (blaue Linie) und Emissionsspektrum (rote Linie) von PPO. Angeregt wurde das PXE-Molekül im Fluorimeter mit einer Wellenlänge von 303 nm.

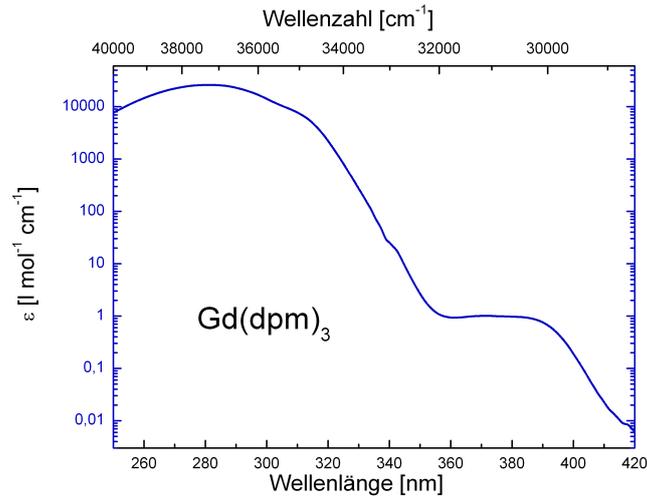


Abbildung 6.4: Molarer Extinktionskoeffizient ϵ von Gd(dpm)_3 . Das Molekül zeigt im Fluorimeter keine messbare Emission.

Dodecan

Der molare Extinktionskoeffizient von Dodecan ist in Abbildung 6.2 gezeigt. Sie liegt in dem gemessenen Bereich deutlich unter dem Koeffizienten von PXE. Auch für die Targetzusammensetzung von Double Chooz mit 80 % Dodecan und 20 % PXE bleibt die Absorption von PXE größer. Mit dem Fluorimeter ist eine Anregung mit einer Wellenlänge kleiner als 190 nm nicht möglich. Bei Anregungs-Wellenlängen größer als 190 nm kann man keine Emission von Dodecan messen.

PPO

Aus den Abbildungen 6.1 und 6.3 entnimmt man, dass die Absorption und Emission von PPO im Vergleich zu Absorption und Emission von PXE zu längeren Wellenlängen verschoben sind. Damit erreicht man, dass die Emission von PXE einen großen Überlapp mit der Absorption von PPO hat (siehe Abb. 6.6). Zwischen PXE und PPO findet strahlungsloser Energietransfer statt. In den Gleichungen (3.4) und (3.3) wird der Zusammenhang zwischen dem Überlappintegral zwischen Emission und Absorption und der Effizienz η des strahlungslosen Energietransfers hergestellt. Bei einem großen Überlappintegral ist die Wahrscheinlichkeit für strahlungslosen Übergang groß. PPO kann also durch PXE effektiv angeregt werden. Die anschließende Emission von PPO ist aufgrund der Stokes-Verschiebung langwelliger als die Emission von PXE. In diesem Wellenlängenbereich ist die Absorptionslänge von PXE und Dodecan größer.

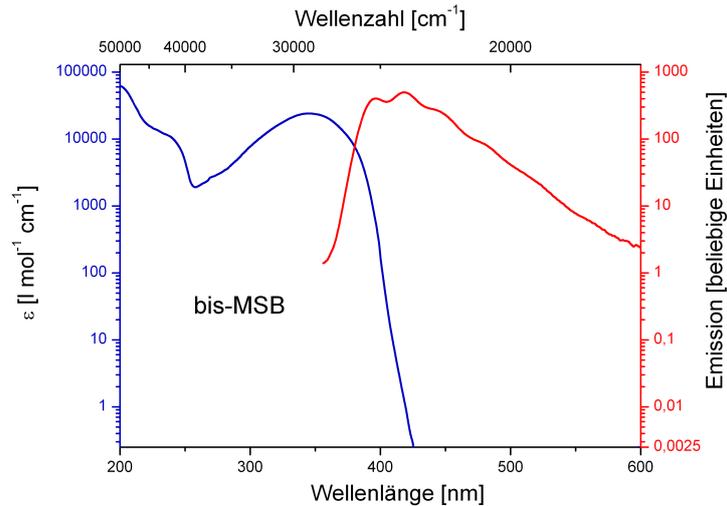


Abbildung 6.5: Molarer Extinktionskoeffizient ϵ (blaue Linie) und Emissionsspektrum (rote Linie) von bis-MSB. Angeregt wurde das PXE-Molekül im Fluorimeter mit einer Wellenlänge von 344 nm.

bis-MSB

Das sekundäre Fluor bis-MSB wird in den Szintillatoren für Double Chooz eingesetzt, um die Emission von PPO zu noch größeren Wellenlängen zu verschieben. Die Emission von PPO hat einen großen Überlapp mit der Absorption von bis-MSB (siehe Abb. 6.6). Der Transfer der Energie erfolgt zwischen bis-MSB und PPO hauptsächlich über Emission eines realen Photons und anschließender Absorption [Buc06]. Bei den Wellenlängen der bis-MSB-Emission sind die Acryltanks, die das Target und den Gamma Catcher enthalten, transparenter als für die PPO-Emission. Damit kann mehr Licht aus diesen inneren beiden Volumina die PMTs erreichen.

Gd(dpm)₃

Der molare Extinktionskoeffizient von Gd(dpm)₃ ist in Abbildung 6.4 dargestellt. Es wurde getestet, ob die Absorption im Bereich von 360 nm bis 390 nm durch Reinigung des Gd(dpm)₃-Pulvers beseitigt werden kann. Die Schulter war aber auch nach der Reinigung vorhanden [Buc07]. Daraus schließt man, dass die Absorption tatsächlich von Gd(dpm)₃ stammt.

Der Gadolinium-Komplex wird im Target von Double Chooz eingesetzt, um Neutronen aus der Neutrinoreaktion einzufangen. Durch Energietransfer von PXE oder Dodecan zu Gd(dpm)₃ wird die Lichtausbeute des Szintillators verringert, weil Gd(dpm)₃ keine Emission aufweist. In Abbildung 6.6 kann man sehen, dass das Emissionsspektrum von PXE einen großen Überlapp mit dem Absorptionsspektrum des Gadolinium-Komplexes

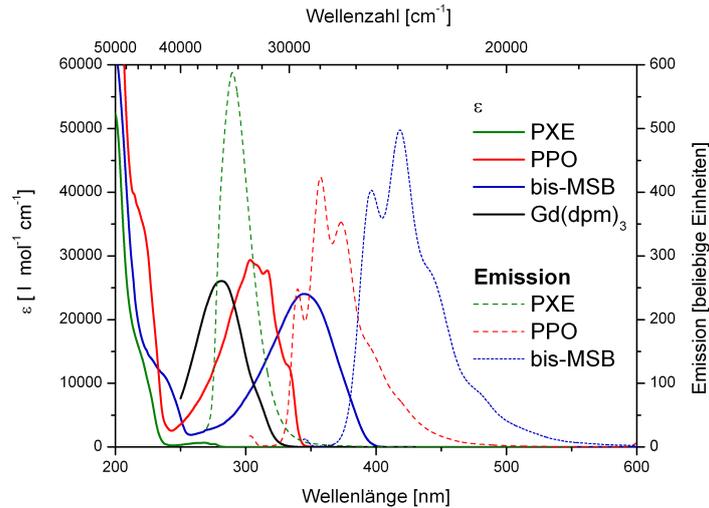


Abbildung 6.6: Molarer Extinktionskoeffizient ϵ und Emission der verschiedenen Komponenten für das Neutrino Target von Double Chooz.

hat. Das ist der Grund für die Abnahme der Lichtausbeute im Target bei Zugabe von Gadolinium.

Zusammenfassung

Anhand der Absorptions- und Emissionsspektren lassen sich die Energietransferprozesse im Flüssigszintillator beschreiben. Man sieht, dass das primäre Fluor PPO und das sekundäre Fluor bis-MSB geeignet gewählt sind, um die Szintillatoremission zu längeren Wellenlängen zu verschieben, wo die molaren Extinktionskoeffizienten aller Komponenten sehr klein sind.

7 Zusammenfassung

Zahlreiche Neutrinoexperimente haben in den letzten Jahren Neutrinooszillationen beobachtet. Mittlerweile wurden die Parameter der Mischungsmatrix beinahe vollständig bestimmt. Für den letzten Mischungswinkel θ_{13} , der noch nicht bekannt ist, wurde bisher eine obere Grenze von $\sin^2(2\theta_{13}) \leq 0.20$ experimentell bestimmt. Das Reaktor-neutrinoexperiment Double Chooz wird die Sensitivität für $\sin^2(2\theta_{13})$ mit verbesserter Statistik und einem reduzierten systematischen Fehler auf etwa 0.03 verbessern.

Die Nachweisreaktion der Antielektronneutrinos in Double Chooz ist der inverse β -Zerfall. Zum Nachweis des Neutrons aus der Neutrino-reaktion wird ein Gadolinium-beladener Szintillator als Target verwendet. Durch den hohen Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang und die große Energiedeposition bei der Abregung trägt Gadolinium maßgeblich zur Unterdrückung des Untergrunds bei. Um das Gadolinium in einem organischen Flüssigszintillator zu lösen, wurde am MPIK Heidelberg erstmals das β -Diketon Dipivaloylmethan verwendet. Ein weiterer Szintillator, der sogenannte Gamma Catcher, umgibt das Target, um Photonen aus der Nachweisreaktion zu detektieren.

Ein Modell für die Lichtausbeute der beiden Szintillatoren wurde vorgestellt. Die Verhältnisse der Raten der einzelnen Energietransferprozesse im Flüssigszintillator werden als freie Parameter im Modell eingeführt. Diese Parameter wurden in mehreren Messreihen nacheinander bestimmt. Damit ist man in der Lage, die Lichtausbeute im Target und im Gamma Catcher für jedes beliebige Mischungsverhältnis vorherzusagen. Die Vorhersagen des Modells zur Optimierung der Lichtausbeute wurden experimentell überprüft und als Ergebnis konnten Szintillatoren für das Target und den Gamma Catcher gefunden werden, die in der Lichtausbeute und in der Dichte übereinstimmen.

Das Zeitprofil der Szintillatoremission wurde für verschiedene Szintillatoren bestimmt. Unterschiede im Zeitprofil zwischen Target und Gamma Catcher könnten für eine Pulsformanalyse in Double Chooz genutzt werden, um Ereignisse den beiden Volumina zuzuordnen. Die Daten wurden mit einer Multiexponentialverteilung ausgewertet. Bei niedrigen PPO-Konzentrationen wird die erste Zeitkonstante der Emission im Gamma Catcher größer als die entsprechende Zeitkonstante im Target. Der Nutzen einer Pulsformanalyse muss allerdings mit unerwünschten Effekten längerer Pulse im Gamma Catcher verglichen werden.

Die molaren Extinktionskoeffizienten und die Emissionsspektren der einzelnen Szintillatorkomponenten wurden gemessen. Diese Daten tragen zum Verständnis der Energietransferprozesse bei. Außerdem werden sie verwendet, um Simulationen des Double Chooz Detektors durchzuführen. Aus den molaren Extinktionskoeffizienten kann die Transparenz der Szintillatorkomponenten in Abhängigkeit von der Wellenlänge abgelesen werden.

Für die Target-Zusammensetzung von Double Chooz wurden aufgrund der Ergebnisse

dieser Arbeit 20 % PXE, 80 % Dodecan, 1 g Gadolinium/l, 7 g PPO/l und 20 mg bis-MSB/l gewählt. Dieses Lösungsmittelverhältnis garantiert Materialverträglichkeit mit dem Acryl der Tanks bei ausreichend hoher Lichtausbeute. Bei höheren Gadoliniumkonzentrationen würde die Zahl der Photonen im Double Chooz-Detektor abnehmen, wogegen bei kleineren Gadoliniumkonzentrationen die Effizienz des Detektors reduziert wäre. Die PPO-Konzentration wurde so gewählt, dass man sich am Beginn des Plateaus der Lichtausbeutekurve befindet.

Um die endgültige Zusammensetzung des Gamma Catcher zu bestimmen, muss mithilfe der Lichtausbeute- und Zeitprofilmessungen entschieden werden, ob man ausgehend von 4 % PXE, 49.5 % Mineralöl, 46.5 % Dodecan, 5 g PPO/l und 20 mg bis-MSB/l den PXE-Anteil oder die PPO Konzentration etwas reduzieren möchte.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Oszillationswahrscheinlichkeit für Reaktor-neutrinos.	3
1.2	Spektrum der Sonnenneutrinos.	6
1.3	Einzelflüsse bei SNO.	7
1.4	Defizit bei atmosphärischen ν_μ in Super-Kamiokande.	8
1.5	Energiespektrum bei MINOS.	10
1.6	Positronenenergiespektrum im GOESGEN-Experiment.	11
2.1	Anordnung des Double Chooz-Experiments.	15
2.2	Neutrinospektrum des Nuklearreaktors.	16
2.3	Simuliertes Spektrum der Neutrinoereignisse.	16
2.4	Sensitivität auf $\sin^2(2\theta_{13})$ bei Double Chooz.	17
2.5	Double Chooz Detektor.	18
2.6	Struktur der β -Diketone.	24
2.7	Aromatischer Charakter des Metall- β -Komplexes.	24
2.8	Verschiedene β -Diketone.	25
2.9	Strukturformel von $\text{Gd}(\text{dpm})_3$	26
3.1	Lösungsmittelmoleküle für das Neutrino-Target.	30
3.2	Termschema des π -Elektronensystems einer Phenyl-Gruppe.	31
3.3	Fluore der Double Chooz-Szintillatoren.	32
3.4	Energietransferprozesse im Target.	36
4.1	Compton-Spektrum-Aufbau für die Lichtausbeutemessungen.	43
4.2	Auswertung der Pulse am digitalen Oszilloskop.	44
4.3	Compton-Spektrum im Flüssigszintillator.	45
4.4	Compton-Rückstreu-Aufbau für die Lichtausbeutemessungen.	46
4.5	Elektronik der Lichtausbeutemessung.	47
4.6	Geometrie der Compton Rückstreuung.	48
4.7	Signale im Flüssigszintillator und NaI-Kristall.	50
4.8	Cut und verschiedene Ereignisklassen bei der Compton-Rückstreu-Methode.	51
4.9	Compton-Rückstreu-Spektrum.	53
4.10	Parameterbestimmung: PPO in PXE.	56
4.11	Parameterbestimmung: PPO in Dodecan.	57
4.12	Parameterbestimmung: Gadolinium in PXE plus PPO.	58
4.13	Parameterbestimmung: Gadolinium in Dodecan plus PPO.	58
4.14	Parameterbestimmung: PXE vs. Dodecan.	60
4.15	Festlegung der PPO-Konzentration im Target.	63

4.16	Anpassen der Lichtausbeute im Gamma Catcher.	64
5.1	Start-Stop-Einzelphotonenmessung.	68
5.2	Wahrscheinlichkeitsverteilung für Photoelektronen.	70
5.3	Elektronik der Start-Stop-Messung.	73
5.4	Signale des Start- und Stop-PMTs.	74
5.5	Energiespektrum des Start- und Stop-PMTs.	75
5.6	Gesamtladungen in Start- und Stop-PMT.	76
5.7	Zeitverteilung der Szintillatoremission.	77
5.8	Zeitprofil: BC505.	81
5.9	Zeitprofil: PXE-Standard.	81
5.10	Zeitprofil: Neutrino-Target.	82
5.11	Zeitprofil: Gamma Catcher 1	82
5.12	Zeitprofil: Gamma Catcher 2	83
5.13	Zeitprofil: Gamma Catcher 3	83
5.14	Fits der Zeitprofile im Vergleich.	84
6.1	Molarer Extinktionskoeffizient und Emissionsspektrum von PXE.	90
6.2	Molarer Extinktionskoeffizient von Dodecan.	91
6.3	Molarer Extinktionskoeffizient und Emissionsspektrum von PPO.	91
6.4	Molarer Extinktionskoeffizient von Gd(dpm) ₃	92
6.5	Molarer Extinktionskoeffizient und Emissionsspektrum von bis-MSB.	93
6.6	Molarer Extinktionskoeffizient und Emission aller Komponenten.	94

Tabellenverzeichnis

1.1	Neutrinoquellen.	5
1.2	Parameter der Neutrinooszillationen.	12
2.1	Komponenten des Double Chooz-Detektors.	19
2.2	Szintillatorzusammensetzungen der verschiedenen Detektorvolumina.	27
2.3	Physikalische und chemische Eigenschaften der Szintillatoren.	27
3.1	Notation für das Lichtausbeutemodell.	36
4.1	Ergebnis der Geometrieoptimierung für die Lichtausbeutemessungen.	49
4.2	Lichtausbeute der Lösungsmittel.	54
4.3	Ergebnisse für die Parameter des Lichtausbeutemodells.	61
5.1	Fitparameter der Zeitprofil-Messungen.	78
5.2	Literaturwerte für die Fluoreszenz der Szintillatorkomponenten.	79
5.3	Ergebnisse für die Fitparameter der Zeitprofilmessungen.	80

Literaturverzeichnis

- [ALE90] ALEPH Kollaboration: Phys. Lett. B235 (1990) 399.
- [Bah05] J.N. Bahcall: Astrophysical Journal L85 (2005) 621.
- [Ber71] I.B. Berlman: Handbook of Fluorescence Spectra of Aromatic Molecules, Academic Press, New York (1971).
- [Bir64] J.B. Birks: The Theory and Practice of Scintillation Counting, Pergamon Press, Oxford (1964).
- [Bir65] J.B. Birks, J. Conte: Proc. Royal Soc. A283 (1965) 83.
- [Bir67] J.B. Birks, J. Conte: Proc. Royal Soc. A303 (1967) 85.
- [Boh78] R. Bohra, D.P. Gaur, R.C. Mehrotra: Metal β -Diketonates And Allied Derivatives, Academic Press, London (1978).
- [Bro78] E. Browne, J.M. Daikiri, R.E. Doebler: Table of Isotopes, Wiley, New York (1978).
- [Buc04] C. Buck: Development of metal loaded liquid scintillators for future detectors to investigate neutrino properties, Dissertation, MPIK Heidelberg (2004).
- [Buc06] C. Buck, F.X. Hartmann, D. Motta, S. Schönert: Chem. Phys. Lett. 435 (2006) 252.
- [Buc07] C. Buck: persönliche Mitteilung (2007).
- [Car23] G. Cario, J. Franck: Zeitschrift für Physik A17 (1923) 202.
- [Cho99] Chooz Kollaboration: Phys. Lett. B466 (1999) 416.
- [Com87] A. Combes: Ann. Chim. 12 (1887) 199.
- [Dan62] G. Danby, J-M. Gaillard, K. Goulianos, L.M. Lederman, N. Mistry, M. Schwartz, J. Steinberger: Phys. Rev. Lett. 9 (1962) 36.
- [Dav68] R. Davis, D.S. Harmer, K.C. Hoffman: Phys. Rev. Lett. 20 (1968) 1205-1209.

- [DC04] Double Chooz Kollaboration: hep-ex/0405032 (2004).
- [DC06] Double Chooz Kollaboration: hep-ex/0606025 (2006).
- [Dex52] D.L. Dexter: Journal of Chem. Lett. 21 (1952) 836.
- [DON00] DONUT Kollaboration: Phys. Lett. B504 (2001) 218.
- [Eis68] K. Eisentraut, R.E. Sievers: Inorganic Syntheses Vol. 11, McGraw-Hill Book Company, New York (1968).
- [För48] T. Förster: Annalen der Physik 2 (1948) 55.
- [För59] T. Förster: Disc. Faraday Soc. 27 (1959) 7.
- [GAL05] GALLEX/GNO Kollaboration: Phys. Lett. B616 (2005) 174.
- [GER06] GERDA Kollaboration: Journal of Phys. Conf. Ser. 39 (2006) 338; Letter of Intent to LNGS (2004); Proposal to LNGS (Sep 2004)
- [Gög07] M. Göger-Neff, S. Schönert et al.: Nucl. Instr. Meth. A585 (2008) 48.
- [Gös85] Gösgen Kollaboration: Phys. Lett. B164 (1985) 193.
- [Gös86] Gösgen Kollaboration: Phys. Rev. D34 (1986) 2621.
- [Gri69] V. Gribov, G. Pontecorvo: Phys. Lett. B28 (1969) 493.
- [Har91] F.X. Hartmann, S.R. Rotman: Chem. Phys. Lett. 184 (1991) 537.
- [Har92] F.X. Hartmann, R.A. Naumann: Nucl. Instr. Meth. A313 (1992) 237.
- [Har07] F.X. Hartmann: persönliche Mitteilung (2007)
- [Hei01] Heidelberg-Moskau Kollaboration: Nuclear Phys. A694 (2001) 269.
- [Hol64] A.F. Hollemann, E. Wiberg: Lehrbuch der anorganischen Chemie, Walter de Gruyter Verlag, Berlin (1964).
- [Ino65] M. Inokuti, F. Hirayama: Journal of Chem. Phys. 43 (1965) 1978.
- [K2K06] K2K Kollaboration: Phys. Rev. D74 (2006) 072003.
- [Kal50] H. Kallmann, M. Furst: Phys. Rev. 79 (1950) 857.
- [Kal51] H. Kallmann, M. Furst: Phys. Rev. 85 (1951) 816.
- [Kam05] KamLAND Kollaboration: Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 081801.

- [KAT06] KATRIN Kollaboration: Intern. Journal of Mass Spectrometry 251 (2006) 173.
- [Kla01] H.V. Klapdor-Kleingrothaus, A. Dietz, H.L. Harney, I.V. Krivosheina: Mod. Phys. Lett. A (2001) 2409.
- [Kle29] O. Klein, Y. Nishina: Zeitschrift für Physik A52 (1929) 853.
- [Lub00] B.K. Lubsandorzhev, P.G. Pokhil, R.V. Vasiljev, A.G. Wright: Nucl. Instr. Meth. A442 (2000) 452.
- [Mik89] S.P. Mikheyev, A.Y. Smirnov: Prog. Part. Nucl. Phys. 23 (1989) 41.
- [MIN06] MINOS Kollaboration: Phys. Rev. Lett. 97 (2006) 191801.
- [Min07] MiniBooNE Kollaboration: Phys. Rev. Lett. 98 (2007) 231801.
- [Mot04] D. Motta: Feasibility Analysis and Prototype Measurements of a Novel Approach for the Real-Time Spectroscopy of Low Energy Solar Neutrinos, Dissertation, MPIK Heidelberg (2004).
- [Mot06] D. Motta: Double Chooz Internal Note (2006).
- [Pal01] Palo Verde Kollaboration: Phys. Rev. D64 (2001) 112001.
- [Pau61] W. Pauli: Aufätze und Vorträge über Physik und Erkenntnistheorie, Vieweg & Sohn, Braunschweig (1961).
- [Per24] F. Perrin: Comptes Rendue 178 (1924) 1978.
- [Phi] Philips: Transmission of high energy photons through various materials, Publikationsnummer 9399 249 30201.
- [Pie01] A.G. Piepke, S.W. Moser, V.M. Novikov: Nucl. Instr. Meth. A432 (2001) 392.
- [Pon58] B. Pontecorvo: Soviet Physics JETP 6 (1958) 429.
- [Rai04] M. Raidal: Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 161801; H. Minakata, A.Y. Smirnov: Phys. Rev. D70 (2004) 073009; P.H. Frampton, R.N. Mohapatra: Journal of High En. Phys. 0501 (2005) 025; W. Rodejohann: Phys. Rev. D69 (2004) 033005.
- [Ran94] G. Ranucci, P. Ullucci, S. Bonetti, I. Manno, E. Meroni, A. Preda: Nucl. Instr. Meth. A350 (1994) 338.
- [Rei56] F. Reines, C.L. Cowan: Nature 178 (1956) 446; Science 124 (1956) 103.

- [Rot88] S.R. Rotman, F.X. Hartmann: Chem. Phys. Lett. 152 (1988) 311.
- [Rot89] S.R. Rotman, F.X. Hartmann: Chem. Phys. Lett. 163 (1989) 437.
- [SAG99] SAGE Kollaboration: Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 4686.
- [Sch07] S. Schönert: persönliche Mitteilung (2007).
- [Schm97] N. Schmitz: Neutrinophysik, Teubner, Wiesbaden (1997).
- [Shk01] I.A. Shkrob, M.C. Sauer, A.D. Trifunac: Radiation Chemistry: Present Status and Future Trends, Elsevier, Amsterdam (2001) 175.
- [SK98] Super-Kamiokande Kollaboration: Phys. Rev. Lett. 81 (1998) 1562.
- [SK02] Super-Kamiokande Kollaboration: Phys. Lett. B539 (2002) 179.
- [SK05] Super-Kamiokande Kollaboration: Phys. Rev. D71 (2005) 112005.
- [SNO06] SNO Kollaboration: Phys. Rev. C75 (2007) 045502.
- [Ste19] O. Stern, M. Volmer: Physikalische Zeitschrift 20 (1919) 183.
- [Wol78] L. Wolfenstein: Phys. Rev. D17 (1978) 2369.

Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei allen Leuten bedanken, die mich während der Diplomarbeit unterstützt haben, insbesondere bei:

Prof. Wolfgang Hampel, der den ersten Kontakt zwischen mir und der Arbeitsgruppe hergestellt und mir diese Arbeit als Betreuer ermöglicht hat.

Dr. Christian Buck für die Einführung in die Neutrinophysik, seine freundliche, konstante Unterstützung, Anleitung und Hilfe, für Freiheiten beim Arbeiten und vieles mehr.

Dr. Stefan Schönert für viele interessante Tipps und Vorschläge und für tatkräftige Unterstützung beim Erlernen von Experimentiermethoden.

Prof. Francis X. Hartmann für Ideen und Diskussionen zu dieser Arbeit und Einblicke zu anderen Gebieten der Physik.

Ute Schwan für freundliche Hilfe und Anleitung im Chemie-Labor.

Dr. Florian Käther, der immer bereit war, bei verschiedenen Aufgabenstellungen dieser Arbeit weiterzuhelfen.

Allen anderen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern, die zu einer angenehmen und produktiven Arbeitsatmosphäre beigetragen haben.

Meiner Freundin Judith, die Verständnis für lange Abende am Institut aufgebracht und mich oft ermutigt hat.

Meinen Eltern danke ich ganz besonders für die Unterstützung nicht nur während des gesamten Studiums. Ohne sie wäre diese Ausbildung nicht möglich gewesen.

Erklärung:

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

Heidelberg, den 15. Januar 2008

.....

(Unterschrift)