# Fakultät für Physik und Astronomie Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit

im Studiengang Physik

vorgelegt von

**Georg Frenz** 

aus Heilbronn

2006

# Radonmessungen mit Lucaskammern im Rahmen

des GERDA-Experiments

Die Diplomarbeit wurde ausgeführt von Georg Frenz am

Max-Planck-Institut für Kernphysik

unter der Betreuung von

Herrn Prof. Dr. Wolfgang Hampel

## Radonmessungen mit Lucaskammern im Rahmen des GERDA-Experiments

Diese Arbeit ist im Rahmen des GERDA-Experiments entstanden, dessen Ziel es ist den neutrinolosen Doppelbetazerfall von <sup>76</sup>Ge nachzuweisen, womit gezeigt wäre, daß es sich bei Neutrinos um Majoranateilchen handelt. GERDA befindet sich derzeit noch in der Aufbauphase, und die Datennahme soll im Laufe des Jahres 2008 beginnen. Das Experiment wird bei einer positiven Evidenz die Halbwertszeit und die effektive Neutrinomasse angeben. Bei einer negativen Evidenz erhält man eine neue Untergrenze der Halbwertszeit des Doppelbetazerfalls  $(T_{1/2} > 2 * 10^{26} a)$  und eine neue Obergrenze der effektiven Neutrinomasse (m<sub>ee</sub>=0,09-0,29 eV).

Um den seltenen neutrinolosen Doppelbetazerfall nachweisen zu können, muß der Untergrund dieses Experimentes 2-3 Größenordnungen niedriger sein als bei früheren Experimenten. Ein Teil des Untergrundes entsteht durch kosmische Strahlung. Um diese abzuschirmen wird das Experiment im Gran Sasso Untergrundlabor aufgebaut. Ein weiterer Teil des Untergrundes stammt von Radioisotopen , die in den Baumaterialien vorhanden sind, beispielsweise <sup>226</sup>Ra, das zu <sup>222</sup>Rn zerfällt. Radon ist auch in den bei GERDA verwendeten Gasen vorhanden, beispielsweise Stickstoff und Argon.

Meine Aufgabe am MPIK in Heidelberg bestand darin eine Lucaskammer zu testen und weiterzuentwickeln. Lucaskammern sind Radondetektoren, die die Radonkonzentration in Gasen in Echtzeit überwachen können. Die Lucaskammer sollte bei GERDA die Radonkonzentration der Luft im Reinraum und in der Luftschleuse zum Kryostaten überwachen, da diese Luft in direktem Kontakt mit den hochreinen Germaniumkristallen (beispielsweise beim Einbau in den Kryostaten) steht. Aufgrund der hohen Reinheitsanforderungen bei GERDA, sollte ich eine Lucaskammer mit deutlich höherer Sensitivität als die bisher verwendeten entwickeln. Um dies zu erreichen, sollte ich versuchen ob, eine als Reflektor und Wellenlängenschieber verwendete Kunsstoffolie auch als Szintillator verwendet werden kann.

# Radon measurements with Lucas Cells within the GERDA-Experiment

This Diploma-Thesis was made within the GERDA-Experiment. GERDA's aim is to detect the neutrinoless double beta decay of <sup>76</sup>Ge. Its detection would prove that neutrinos are Majorana particles. GERDA is still under construction, data acquisition will start in 2008. If neutrinoless double beta events are detected, than we have the half life of double beta decay and the effective neutrino mass. If no double beta event is detected than we have an new lower limit of the half life of the double beta decay ( $T_{1/2} > 2 * 10^{26} a$ ) und a new upper limit for the effective neutrino mass (m<sub>ee</sub>=0,09-0,29 eV).

The assumption to find such a rare neutrinoless double beta decay is to reduce the background by 2-3 orders of magnitude below the current state-of-the-art. A part of the background originates from cosmic rays, this is way GERDA is built underground in the Gran Sasso laboratory. An another part comes from radioactive isotops contained in the building materials, e.g.<sup>226</sup>Ra which decays to <sup>222</sup>Rn. All used gases in GERDA like nitrogen and argon contain radon.

My task at the MPIK in Heidelberg was to test and develop a new Lucas cell. Lucas cells are radon detectors which offer the opportunity of online-monitoring of radon in gas. This new lucas cell should be used in GERDA for radon-monitoring in air or gases like nitrogen (argon) in clean rooms and clean benches, because the atmosphere should content low radon (e.g. to minimize the contamination of the germanium crystalls). Because of the high purity standarts for GERDA, a Lucas cell with a much better sensitivity compared to normally used ones should be constructed. To achieve this, I tried a plastic foil (because of its purity) which is normaly used as wavelength shifter and reflector if it could be used as a scintillator.

## Inhaltsverzeichnis

1	$\mathbf{Einl}$	Einleitung				
	1.1	Neutri	nos			
		1.1.1	Historisches			
		1.1.2	Die Sonne als Neutrinoquelle			
		1.1.3	Neutrinomassen und Neutrinooszillationen			
		1.1.4	Einige Neutrinoexperimente			
	1.2	Betaze	rfälle			
		1.2.1	Einfacher Betazerfall			
		1.2.2	Die doppelten Betazerfälle			
<b>2</b>	Das	Neutr	inoexperiment GERDA 17			
	2.1	Aufbau	$1 \text{ von } \overline{\text{GERDA}}$			
	2.2	Radon	bei GERDA 19			
3	Rad	on	20			
	3.1	Histori	sches			
	3.2	Eigens	chaften von Radon			
		3.2.1	Chemische Eigenschaften			
		3.2.2	Physikalische Eigenschaften			
		3.2.3	Zeitliche Entwicklung der Aktivitäten in der <sup>222</sup> Rn-Zerfallskette 27			
	3.3	Versch	iedene Methoden zur Radonmessung			
		3.3.1	Miniaturisierte Proportionalzählrohre			
		3.3.2	Elektrostatische Kammern			
		3.3.3	Lucaskammern			
		3.3.4	Vergleich der verschiedenen Meßmethoden 31			
4	Luca	askamr	nern 32			
	4.1	Allgem	neines $\ldots \ldots 32$			
		4.1.1	Verwendetes Szintillatormaterial bei Lucaszellen			
		4.1.2	Untergrund bei Lucaskammern			
		4.1.3	Effizienz einer Lucaskammer			
		4.1.4	Kalibrierung einer Lucaskammer			
		4.1.5	Messung der Radonkonzentration in Gasen mit Lucaskammern 38			

#### INHALTSVERZEICHNIS

	4.2	Die ve	rwendeten Lucaskammern	39
		4.2.1	Kleine Kammer	39
		4.2.2	Große Kammer	50
		4.2.3	Die neue Kammer	57
<b>5</b>	Sch	lußbeti	rachtung	73

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Die Reaktionen des pp-Zyklus der Sonne	2
1.2	CNO-Zyklus der Sonne	3
1.3	Neutrinospektrum der Sonne	4
1.4	Kurie-Plot in der Nähe des Endpunktes $E_0$ für $m_{\nu}=0$ und $m_{\nu}\neq 0$ mit und ohne Verschmierung [N. Schmitz: Neutrinophysik 1997 S. 224]	11
1.5	Energiespektrum des $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls und der erwartete Peak des $0\nu\beta\beta$ -Zerfall am Beispiel des <sup>76</sup> Ge	13
2.1	Aufbau von GERDA im LNGS in Halle A	18
3.1	Zerfallsreihe von <sup>238</sup> U	23
3.2	Zerfallsreihe von <sup>232</sup> Th	24
3.3	Zerfallsreihe von <sup>235</sup> U	25
3.4	Zeitlicher Verlauf der Aktivitäten von $^{222}$ Rn (A <sub>0</sub> (t)), $^{218}$ Po (A <sub>1</sub> (t)), $^{214}$ Po (A <sub>4</sub> (t)) Es gilt: A <sub>0</sub> (0)=A <sub>0</sub> und A <sub>1</sub> (0)=A <sub>4</sub> (0)=0	28
3.5	Zeitlicher Verlauf der Poloniumaktivitäten nach entfernen des Radon. Es gilt: $A_0(0)=0$ , $A_1(0)=A_4(0)=A_0$	29
4.1	Querschnitt durch eine Lucaskammer	33
4.2	Kalibrationsaufbau	37
4.3	Aufbau der Elektronik für die kleine Lucaskammer (PM: Photomultiplier, PA: Vorverstärker, AMP: Hauptverstärker, HV: Hochspannung, SCA: Single- Channel Analyzer, Counter: Zähler)	40
4.4	Vorverstärkersignal mit deutlichem exponentiellem Abfall (Signalhöhe: 530 mV, Halbwertsbreite: 23 $\mu$ s, Signalanstieg: 440 ns, Signalabfall: 47 $\mu$ s, Hochspannung 600 V)	41
4.5	Untergrund der kleinen Kammer, gemessen für verschiedene Diskriminator- schwellen	43
4.6	Die verschiedenen gemessenen Effizienzen mit ihrem jeweiligen Untergrund	45
4.7	Verlauf der Rn-Konzentration im LLL in den Monaten Feb. bis Sept. 2006	49
4.8	Schematische Darstellung der großen Kammer	50
4.9	Schematischer Schaltplan der Elektronik für die große Lucaskammer	51

#### ABBILDUNGSVERZEICHNIS

4.10 Der gemessene Untergrund der großen Kammer in Abhängigkeit der D			
	minatorschwelle	53	
4.11	Die Effizienz der großen Kammer bezüglich des Untergrundes	54	
4.12	Rn-Konzentration in der LArGe-Barrack im LNGS/Gran Sasso von Mitte		
	Juli bis Ende August	56	
4.13	Eine schematische Darstellung der neuen Lucaskammer	59	
4.14	Die Lucaskammer noch ohne eingebauter VM2000 Folie	60	
4.15	Die Lucaskammer mit der VM2000 Folie	61	
4.16	Vorverstärkersignal der VM2000 Folie (Signalhöhe 170 mV, Anstiegszeit 250		
	ns, Halbwertsbreite $4\mu$ s, Hochspannung 970 V)	62	
4.17	Der Untergrund der neuen Kammer mit 1200 V Hochspannung und 6,6-		
	facher Verstärkung	63	
4.18	Die Effizienzen bzgl. ihres Untergrundes der neuen Kammer für die Hoch-		
	spannungen 970 V, 1200 V und 1400 V	64	
4.19	Emissionsspektrum von VM2000 (mit TPB beschichtet) mit einer einge-		
	strahlten Wellenlänge von 260 nm. Deutlich sichtbar ist das Emissionsmaxi-		
	mum bei 420 nm (der zweite Peak ist ein Beugungspeak der eingestrahlten		
	Wellenlänge)	67	
4.20	Anregung von VM2000 (mit TPB beschichtet) mit Wellenlängen zwischen		
	190 und 400 nm	68	
4.21	Vergleich der Untergrundzählraten der Folie mit und ohne TPB Beschich-		
	tung bei einer Hochspannung von 1200 V	68	
4.22	Hier ist die Effizienz gegen den Untergrund bei 6,6-facher Verstärkung und		
	einer Hochspannung von 1200 V	69	
4.23	Ein Vergleich des Untergrundes bei einer Hochspannung von 1200 V bzgl.		
	der Verstärkungsfaktoren 4, 6,6 und 10	70	
4.24	Es sind hier die Effizienzen bzgl. ihres Untergrundes bei einer Hochspannung		
	von 1200 V und den Verstärkungsfaktoren 4, 6,6 und 10 abgebildet	71	
4.25	Ein Vergleich der 3 Kalibrationen mit und ohne TPB bei einer Hochspan-		
	nung von 1200 V	71	

## Tabellenverzeichnis

Materialkonstanten von Radon	21
Die wichtigsten Daten der natürlichen Radonisotope	26
Vergleich der Sensitivitäten verschiedener Meßmethoden für Radon $\ .\ .\ .$	31
Materialkonstanten von $ZnS(Ag)$	33
Die MDA der kleinen Lucaskammer	46
Die Parameter der kleinen Lucaskammer	47
Vergleich des Untergrundes mit und ohne Koinzidenz	52
Die Parameter der großen Kammer	55
Die technischen Daten der großen Lucaskammer (die Einstellungen der Elek-	
tronik sind für beide Photomultiplier gleich)	55
Die technischen Daten zum Vergleich der beiden Kammern	57
Die Parameter der neuen Kammer	65
Die technischen Daten zum Vergleich aller betriebenen Kammern	72
	Materialkonstanten von RadonDie wichtigsten Daten der natürlichen RadonisotopeVergleich der Sensitivitäten verschiedener Meßmethoden für RadonMaterialkonstanten von ZnS(Ag)Die MDA der kleinen LucaskammerDie Parameter der kleinen LucaskammerVergleich des Untergrundes mit und ohne KoinzidenzDie Parameter der großen KammerDie technischen Daten der großen Lucaskammer (die Einstellungen der Elektronik sind für beide Photomultiplier gleich)Die technischen Daten zum Vergleich der beiden KammernDie Parameter der neuen Kammer

# Kapitel 1 Einleitung

### 1.1 Neutrinos

Nach dem Standardmodell der Teilchenphysik besteht die Welt aus 12 Elementarteilchen. Die Elementarteilchen sind zum einen die 6 Quarks (**u**p, **d**own, **s**trange, **c**harm, **t**op, **b**ottom) und zum anderen die Leptonen (Elektron e<sup>-</sup>, Myon  $\mu^-$  und Tau  $\tau^-$  mit ihren zugehörigen Neutrinos  $\nu_e, \nu_\mu, \nu_\tau$ ). Die Quarks u, c und t tragen die Ladung  $+\frac{2}{3}$ e; die Quarks d, s und b tragen die Ladung  $-\frac{1}{3}$ e. Elektronen, Myonen und Taus sind auch geladen (-1e), die Neutrinos sind neutral.

Zwischen den Elementarteilchen wirken die elektromagnetische Kraft, die Schwache und die Starke Kraft mit ihren Eichbosonen, die Gravitation spielt fast keine Rolle.

#### 1.1.1 Historisches

Wolfgang Pauli postulierte das Neutrino erstmals im Jahre 1930. Man hatte bis dahin angenommen, daß es sich beim  $\beta$ -Zerfall um einen 2-Körperzerfall handle aber man konnte das kontinuierliche Energiespektrum der emittierten Elektronen nicht erklären. Pauli versuchte den  $\beta$ -Zerfall als 3-Körperzerfall zu erklären und führte deshalb ein weiteres Teilchen ein. Es sollte ungeladen sein, keine oder eine sehr geringe Masse und Spin  $\frac{1}{2}$  besitzen. Die Neutralität wurde aufgrund der Ladungserhaltung gefordert, eine geringe Masse (oder keine Masse) um die beobachtete Energieverteilung des  $\beta$ -Zerfalls erklären zu können.

Der experimentelle Nachweis für die Existenz von Neutrinos erfolgte 1956 durch Clyde L. Cowan und Frederick Reines <sup>1,2</sup> anhand des inversen  $\beta$ -Zerfalls ( $\overline{\nu_e} + p \rightarrow e^+ + n$ ). Dabei wurden als starke Neutrinoquellen Kernreaktoren verwendet (Hanford and Savannah River Plant).

 $<sup>^1{\</sup>rm F.}$  Reines, C.L. Cowan Nature 178 (1956) 446; 523 (erratum); C.L. Cowan et al.: Science 124 (1956) 103

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>F. Reines, C.L. Cowan:Phys. Rev 113 (1959) 273; F. Boehm: Proc. 13th Intern. Conference on Neutrinophysics and Astrophysics, Boston, USA, 1988, p. 490, eds. J. Schneps et al., World Scientific, Singapore, 1989; F. Reines: Rev. Mod.. Phys. 68 (1996) 317

Die Entdeckung des Myonneutrinos erfolgte 1962 durch Jack Steinberger, Melvin Schwarz und Leon Ledermann am Alternating Gradient Synchrotron in Brookhaven<sup>3</sup>. Im Experiment wurde mit Pionen und Kaonen gezeigt, daß es außer dem Elektronneutrino noch das Myonneutrino gibt.

Als letztes wurde die Existenz von  $\nu_{\tau}$  bestätigt. Dies geschah im Rahmen des DONUT<sup>4</sup> Experiments am Fermilab im Jahr 2000.

#### 1.1.2 Die Sonne als Neutrinoquelle

Die Energie wird in der Sonne durch Kernfusion von Wassestoff zu Helium erzeugt.

$$4^{1}H \rightarrow {}^{4}He + +2e^{-} + 2e^{+} + 2\nu_{e} + 24,67MeV$$

Dieser Prozeß erzeugt hauptsächlich thermische Energie. Die beiden Neutrinos verlassen die Sonne mit einer mittleren Energie von 0,26 MeV.



Abbildung 1.1: Die Reaktionen des pp-Zyklus der Sonne

Der Hauptprozeß bei der Energieerzeugung ist der sogenannte pp-Zyklus (siehe Abb. 1.1).Die Elektronneutrinos, die beim pp-Zyklus der Sonne entstehen werden pp-, hep-, pep-, <sup>7</sup>Be-, und <sup>8</sup>B-Neutrinos genannt. <sup>7</sup>Be- und pep- Neutrinos sind monoenergetisch, während die pp-, <sup>8</sup>B- und hep-Neutrinos ein kontinuierliches Energiespektrum besitzen. Der Fluß der pp- Neutrinos steht direkt mit der Leuchtkraft der Sonne in Verbindung. Ein weiterer Prozeß zur Energiegewinnung in der Sonne ist der CNO-Zyklus. Bei diesem fusionieren Protonen mit schwereren Kernen wie Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff. Unsere Sonne erzeugt allerdings nur 1,6% ihrer Energie durch diesen Zyklus. Eine schematische Darstellung ist in Abb. 1.2 zu sehen.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>G.Danby et al.: Phys. Rev. Lett. 9 (1962) 36

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Kodama et Al.: Phys. Lett B 504 (2001) 218-224: Observation of Tau Neutrino Interactions



Abbildung 1.2: CNO-Zyklus der Sonne

Das Energiespektrum der Sonnenneutrinos mit den Schwellenwerten verschiedener Experimente ist in Abb.1.3 dargestellt.



Abbildung 1.3: Neutrinospektrum der Sonne

Der Gesamtneutrinofluß $\Phi$ der Sonne ergibt nach dem Standardsonnenmodell (SSM) von Bahcall<sup>5</sup>zu

$$\Phi = 6,5 * 10^{10} \frac{1}{cm^2 * s}$$

#### 1.1.3 Neutrinomassen und Neutrinooszillationen

Im Standardmodell der Teilchenphysik besitzen Neutrinos keine Ruhemasse. Es gibt allerdings mittlerweile Evidenzen für Neutrinooszillationen, also Hinweise, daß Neutrinos eine von Null verschiedene Masse haben. Unter Neutrinooszillationen versteht man oszillierende Übergänge  $\nu_{\alpha} \longleftrightarrow \nu_{\beta} (\alpha, \beta = e, \mu, \tau)$ , in denen sich eine Neutrinoart in eine andere mit verschiedenen Leptonflavourzahlen  $L_{\alpha} \neq L_{\beta}$  umwandeln kann. Die Neutrinoarten  $\nu_{\alpha}$  mit  $\alpha =$ e,  $\mu$ ,  $\tau$  und die dazu gehörigen Leptonflavourzahlen  $L_{\alpha}$  werden als Flavoureigenzustände bezeichnet (ähnlich den Quarkflavours).

$$L_{\alpha}|\nu_{\beta}\rangle = \delta_{\alpha\beta}|\nu_{\beta}\rangle \qquad L_{\alpha}|\overline{\nu_{\beta}}\rangle = -\delta_{\alpha\beta}|\overline{\nu_{\beta}}\rangle$$

Die Flavoureigenzustände  $|\nu_{\alpha}\rangle$  sind Linearkombinationen der Masseneigenzustände  $|\nu_i\rangle$ , i=1, 2, 3. Sowohl die Flavoureigenzustände als auch die Masseneigenzustände sind orthonormiert, es gilt also:

 $<sup>^5</sup>Bahcall et al.: 2004 Phys Rev Lett 92 121303$ 

#### 1.1. NEUTRINOS

$$\langle 
u_{lpha} | 
u_{eta} 
angle = \delta_{lphaeta} \qquad \langle 
u_i | 
u_j 
angle = \delta_{ij}$$

Die Flavoureigenzustände hängen über die unitäre Mischungsmatrix U mit den Masseneigenzuständen zusammen.

$$|\nu_{\alpha}\rangle = \sum_{i} U_{\alpha i} |\nu_{i}\rangle \qquad |\nu_{i}\rangle = \sum_{\alpha} U_{i\alpha}^{-1} |\nu_{\alpha}\rangle$$

Weiter gilt

$$U^{-1}U = U^*U = 1$$

Als Vereinfachung dient eine 2- dimensionale Betrachtung im Vakuum. Dann gilt:

$$\left(\begin{array}{c} |\nu_e\rangle\\ |\nu_\mu\rangle\end{array}\right) = \left(\begin{array}{cc} \cos\Theta & \sin\Theta\\ -\sin\Theta & \cos\Theta\end{array}\right) \left(\begin{array}{c} |\nu_1\rangle\\ |\nu_2\rangle\end{array}\right)$$

 $\Theta$  ist der Mischungswinkel zwischen Massen- und Flavoureigenzuständen ( $0 \le \Theta \le \pi/2$ ). Betrachtet man ein Elektronneutrino, das sich mit Energie E durch Vakuum bewegt, dann ist die Wahrscheinlichkeit, daß es nach Zurücklegen einer Strecke R ein Elektronneutrino bleibt:

$$P(\nu_e \to \nu_e) = 1 - \sin^2 2\Theta * \sin^2(\frac{R\pi}{L_v}) \qquad L_v = \frac{4\pi E}{\Delta m^2}$$

 $L_v$  ist die Oszillationslänge in Vakuum, sie kennzeichnet einen vollständigen Umwandlungszyklus  $\nu_e \rightarrow \nu_x \rightarrow \nu_e$ .

 $\Delta m^2 = |m_2^2 - m_1^2|$  ist die Differenz der Massenquadrate der beiden Masseneigenzustände.

Diese Wahrscheinlichkeit ändert sich, wenn sich Neutrinos durch Materie bewegen. Neutrinooszillationen in Materie hängen von schwachen Wechselwirkungen (der Streuung an Elektronen) ab. Dies ist der nach seinen Entdeckern benannte MSW-Effekt<sup>6</sup>. Der MSW-Effekt beschreibt eine Resonanz der Neutrinooszillation in Materie.

Die Oszillationsparameter in Materie ( $\Theta_m$ ,  $L_m$ ) beziehen sich folgendermaßen auf die Oszillationsparameter in Vakuum:

$$L_m = \frac{L_v}{\alpha}; \qquad \alpha = \frac{2 * \sqrt{2}EG_F N_e}{\Delta m^2}$$
$$sin^2 \Theta_m = \frac{sin^2 2\Theta}{(cos 2\Theta - \frac{L_v}{L_m})^2 + sin^2 2\Theta}$$

 $N_e$  ist die Elektronendichte und  $G_F$  die Fermi-Konstante.

Geht man von der zweidimensionalen Betrachtung zur dreidimensionalen Betrachtung über, benötigt man drei Mischungswinkel  $\Theta_{12}$ ,  $\Theta_{13}$  und  $\Theta_{23}$  und drei Massendifferenzen. Was mit welchen Neutrinos meßbar ist, hängt von den Werten  $\Theta$  und  $\Delta m^2$  ab.

Es lassen sich durch Neutrinooszillationen nur die Massendifferenzen der Neutrinoflavours bestimmen aber nicht die Absolutwerte der Massen.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Mikheyev, Smirnow und Wolfenstein

#### 1.1.4 Einige Neutrinoexperimente

#### • Homestake-Experiment

Dieses Experiment wurde von Raymond Davis in den 1960er Jahren in der Homestake-Mine/Minnesota begonnen. Es war der erste Versuch Sonnenneutrinos zu messen. Man verwendete folgende Reaktion:

$$^{37}Cl + \nu_e \rightarrow ^{37}Ar + e^{-1}$$

Dieses Experiment war auf Neutrinos mit Energien über 814 keV empfindlich (haupsächlich <sup>7</sup>Be- und <sup>8</sup>B-Neutrinos (siehe Abb. 1.3)). Man hat dann die entstandenen Ar-Atome (einige Dutzend pro Woche) chemisch aus der Chlorlösung ( $C_2Cl_4$ ) extrahiert. und mit miniaturisierten Proportionalzählrohren ihren Zerfall gemessen. Das Ergebnis war, daß nur 1/3 des von der Theorie vorhergesagten Neutrinoflusses nachgewiesen werden konnte. Die erwartete Einfangrate war (9,3 ±1,3) SNU<sup>7</sup>, die gemessene nur 2,56± 0,16(stat.) ±0,16(syst.)<sup>8</sup>.

• GALLEX/GNO

Das GALLium EXperiment wurde in den 1990er Jahren unter anderem mit der Beteiligung des MPIK/HD durchgeführt. Man konnte eine Energieschwelle von 233 keV erreichen, was niedrig genug war um pp-Neutrinos nachzuweisen. Der Nachweis gelang mit der Reaktion:

$$\nu_e + {}^{71}Ga \rightarrow {}^{71}Ge + e^-$$

Als Target wurden 30 t natürliches Gallium in 100 t einer wäßrigen Galliumchloridlösung verwendet. Das entstandene <sup>71</sup>Ge wurde extrahiert und in <sup>71</sup>GeH<sub>4</sub> umgewandelt. Der Zerfall von Germanium wurde dann mit miniaturisierten low-background Zählrohren gemessen. Das Ergebnis von GALLEX war:

$$77,5\pm 6,2(stat.)^{+4,3}_{-4,7}(sys.) SNU^{9}$$

Die erwartete Produktionsrate liegt zwischen 120 und 140 SNU.

Das Gallium Neutrino Observatorium ist das Nachfolgeexperiment von GALLEX. Es lief von 1998-2003. Ursprünglich sollte ein Sonnenzyklus (11 Jahre) beobachtet werden. Ziel war es auch die systematischen Fehler der Messung im Vergleich zu GALLEX zu minimieren.

Das Ergebnis von GNO war:

$$62, 9^{+5,5}_{-5,3}(stat.) \pm 2, 5(sys.) \ SNU^{10}$$

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>1 SNU (Solar Neutrino Unit) =  $10^{-36} \nu_e/s/Targetkern$ 

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>Cleveland et al.: THE ASTROPHYSICAL JOURNAL, 496:505-526, 1998 March 20: MEASURE-MENT OF THE SOLAR ELECTRON NEUTRINO FLUX WITH THE HOMESTAKE CHLORINE DE-TECTOR

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup>GALLEX collaboration, Phys. Lett. B447 (1999) 127

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup>GNO Collaboration, M. Altmann et al.: Complete results of five years of GNO solar neutrino observations; Phys. Lett. B 616 (2005)174-190

Das kombinierte Meßergebnis von GALLEX/GNO ergab

$$70,8 \pm 4,5(stat.) \pm 3,8(sys.) \ SNU$$

Der große Unterschied zwischen dem erwarteten Fluß und dem gemessenen Fluß (wie auch bei Homestake beobachtet) führte auf das "Sonnenneutrinorätsel". Eine Erklärung könnten die oben beschriebenen Neutrinooszillationen liefern.

• SAGE

Das Sowjetisch-Amerikanische Gallium Experiment läuft seit 1990 in 2000 m Tiefe im Nordkaukasus. Es werden dort 55 t flüssiges metallisches Gallium verwendet. Über die Reaktion

 $^{71}Ga + \nu_e \longrightarrow e^- + ^{71}Ge$ 

wurden pp-Neutrinos nachgewiesen. Auch bei diesem Experiment wurde ein Defizit im solaren Neutrinofluß gemessen. In den 2 Meßperioden (SAGE-1 und SAGE-2) wurden folgende Ergebnisse erzielt:

SAGE- $1^{11}$ :

 $67, 1 \pm 7, 9 \ SNU$ 

SAGE-2:

 $66, 1 \pm 5, 3 SNU$ 

Diese Ergebnisse stimmen mit den Ergebnissen von GALLEX/GNO gut überein.

• (Super-)Kamiokande<sup>12</sup>

Kamiokande wurde als Wasser-Cerenkovdetektor geplant um nach Protonenzerfällen zu suchen. 1986 wurde die Wasserkontamination auf ein Level reduziert, das es ermöglichte Sonnen- (und athmosphärische) Neutrinos mit Energien über 7 MeV nachzuweisen. Die Nachweisreaktion war elastische Elektron-Neutrino-Streuung.

$$\nu_x + e \longrightarrow \nu_x + e$$

1994 wurde der Kamiokande Detektor zu Super-Kamiokande (SuperK) verbessert (55000 t Wasser mit einer für die Datenauswertung relevanten Targetmasse von 22500 t). Die Energieschwelle wurde auf 5,5 MeV verringert. Der gemessene Sonnenneutrinofluß bei Superkamiokande war<sup>13</sup>

$$(2,44\pm 0,06^{+025}_{-0.09})*10^{6} \ cm^{-2}s^{-1}$$

Das sind 37% des theoretischen Wertes. SuperK war auch in der Lage Athmosphärenneutrinos nachzuweisen, die von kosmischer Strahlung in der Atmosphäre erzeugt

 $<sup>^{11}\</sup>mathrm{R.}$  N. Ikhsanov: arXiv:hep-ph/0512094 v1 8 Dec 2005: On solar neutrino fluxes in radiochemical experiments

 $<sup>^{12}{\</sup>rm arXiv:hep-ex}/0604011$ v2 14 Jun 2006

 $<sup>^{13}{\</sup>rm G.}$  L. Fogli et al, arXiv:hep-ph/9709473 v1 26 Sep 1997

werden. Das theoretisch erwartete Verhältnis von  $\left(\frac{\nu_{\mu}+\overline{\nu_{\mu}}}{\nu_{e}+\overline{\nu}_{e}}\right)$  ist 2. SuperK konnte dieses Verhältnis von berechnetem zu erwartetem Fluß messen. Das Ergebnis war 0,64. Dies deutete auf eine Reduktion von atmosphärischen  $\nu_{\mu}$ . Es war also das erste Anzeichen für Neutrinooszillationen, das nicht von Sonnenneutrinos stammte.

• Borexino

Borexino wurde entwickelt um niederenenergetische Sonnenneutrinos (haupsächlich <sup>7</sup>Be) in Echtzeit messen zu können. Der Detektor benutzt 1000 t eines organischen Flüssigszintillators, von denen 300 t zur Datenanalyse verwendet werden, um Neutrinos über elastische  $\nu$ -e Streung in Echtzeit zu beobachten. Der Detektor befindet sich im Gran Sasso Untergrundlabor (LNGS) in Italien und wird zur Zeit mit Wasser gefüllt. Dieses Wasser wird dann noch durch den Szintillator ersetzt (Ende 2006). 2007 soll die Datenaufnahme beginnen. Außer Sonnenneutrinos kann Borexino auch Geoneutrinos (aus dem Erdinnern, durch radioaktive Zerfälle entstanden), Supernovaneutrinos und Reaktorneutrinos messen.

• SNO

Das Sudbury Neutrino Observatorium ist ein Cherenkov Detektor mit 1000 t Schwerem Wasser. Er befindet sich in einem Untergrundlabor in Ontario/Kanada. Mit ihm wurde der Fluß von <sup>8</sup>B Sonnenneutrinos gemessen. Bei SNO machte man sich drei unterschiedliche Wechselwirkungen der Sonnenneutrinos zunutze:

$$\nu_e + d \longrightarrow e + p + p \quad (CC)$$
  

$$\nu_x + d \longrightarrow \nu_x + p + n \quad (NC)$$
  

$$\nu_x + e \longrightarrow \nu_x + e \quad (ES)$$

x steht für alle Neutrinoflavours e,  $\mu$  und  $\tau$ . Aus der CC-Reaktion läßt sich nur der Fluß ( $\Phi_{CC}$ ) der  $\nu_e$  bestimmen. Die NC-Reaktion ist für alle Neutrinoarten gleich sensitiv, also ist  $\Phi_{NC}$  der Gesamtfluß aller beteiligten Neutrinoarten. Mit der ES-Reaktion lassen sich auch alle Neutrinoflavour detektieren, sie ist aber für  $\nu_e$  am empfindlichsten.

Aus den gemessenen Reaktionsraten ergaben sich folgende Ergebnisse<sup>14</sup>:

$$\Phi_e = (1,76 \pm 0,05(stat) \pm 0,09(syst) * 10^6 \frac{1}{cm^2 s}$$
$$\Phi_{\mu\tau} = (3,41 \pm 0,45(stat) \pm 0,47(syst)) * 10^6 \frac{1}{cm^2 s}$$

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup>Ahmad et al.:"Direct Evidence for Neutrino Flavor Tranformation from Neutral-Current Interactions in the Sudbury Neutrino ObservatoryPhys. Rev. Lett. volume 89, No. 1, 011301 (2002)

#### 1.2. BETAZERFÄLLE

was klar den Wechsel der Neutrinoflavours zeigt. Der Gesamtfluß der <sup>8</sup>B-Neutrinos betrug:

$$\Phi_{tot} = (5, 17 \pm 0, 66) * 10^6 \frac{1}{cm^2 s}$$

Dieses Ergebnis stimmt mit dem vom SSM vorhergesagten <sup>8</sup>B-Neutrinofluß überein<sup>15</sup>:

$$5,79(1\pm0,23)*10^6\frac{1}{cm^2s}$$

Die bisherigen Experimente waren alle Sonnenneutrinoexperimente. Die Sonnenneutrinodefizite werden alle durch die LMA<sup>16</sup> (Large Mixing Angle)-Lösung richtig beschrieben.

• KamLand

Das japanische Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutrino Detector Experiment findet in einer Mine bei Kamioka statt. Es detektiert Antielektronneutrinos aus dem inversen  $\beta$ -Zerfall. KamLand war für die LMA-Region der Neutrinooszillationen empfindlich. Dabei wurden die Unsicherheiten von  $\Delta m^2$  und  $\Theta$  verringert. Die Ergebnisse<sup>17</sup> von KamLand waren:

$$\Delta m^2 = 7,9^{+0.6}_{-0.5} * 10^{-5} \ eV^2 \qquad tan^2 \Theta = 0,40^{+0.10}_{-0.07}$$

KamLand war das erste Experiment das die LMA-Lösung, ohne die Untersuchung von Sonnenneutrinos, mit hoher Präzision bestätigte.

### 1.2 Betazerfälle

Aus Neutrinooszillationen kann man nur eine Massendifferenz aber keine absolute Massenskala für Neutrinos angeben. Neutrinomassen lassen sich (im Prinzip) aus dem einfachen oder den doppelten  $\beta$ -Zerfällen bestimmen.

#### 1.2.1 Einfacher Betazerfall

Es gibt 2 Arten von einfachem  $\beta$ - Zerfall. Sie werden als  $\beta^+$ - und  $\beta^-$ -Zerfall bezeichnet. Beim einen zerfällt ein Neutron und beim anderen ein Proton. Der  $\beta^-$ -Zerfall läuft nach folgendem Schema ab:

$$n \to p + e^- + \overline{\nu_e}$$

 $<sup>^{15}\</sup>mbox{Bahcall},$  Pisonneault: Phys. Rev. Lett 92 (2004) 121301

 $<sup>^{16}</sup>$ Von den 4 Lösungsansätzen, der Neutrino<br/>osz. LMA, SMA, LOW und MSW wird derzeit die LMA-Lösung favorisiert

<sup>&</sup>lt;sup>17</sup>The KamLand Collaboration: T. Araki et al. Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 081801

und der für den  $\beta^+$ - Zerfall (im Kern) gilt:

$$p \to n + e^+ + \nu_e$$

Wenn in meiner Arbeit vom  $\beta$ -Zerfall gesprochen wird ist immer der  $\beta^-$ -Zerfall gemeint. Die beim Zerfall freiwerdende Energie wird als Q-Wert bezeichnet. Geht man von einem ruhenden Neutron aus, ist der Q-Wert die Differenz aus der Ruheenergie des zerfallenden Neutrons und der Energien des Protons und des Elektrons. Diese Energie geht als kinetische Energie auf die beim Zerfall entstehenden Teilchen über. Da das Neutron den Impuls Null hatte, müßten Elektron und Proton auch Gesamtimpuls Null haben, d. h die Impulse von Elektron und Proton sind vom Betrag gleich, aber mit unterschiedlichem Vorzeichen. Das würde aber bedeuten, daß die Energie der Elektronen immer gleich sein müsste (monoenergetisches Spektrum). Das Neutrino wurde dann von Pauli postuliert, da man das kontinuierliche Elektronenspektrum sonst nur mit Verletzung der Energieerhaltung erklären konnte.

Unter der Annahme, das Neutrinos masselos sind, läßt sich die Verteilung der Elektronen folgendermaßen beschreiben

$$N(E)dE \sim p_e^2 F(Z, E)(Q - E)^2 dE \tag{1.1}$$

 $p_e$  ist der Elektronenimpuls, N(E) die Elektronenverteilung im  $\beta$ -Spektrum, F(Z,E)<sup>18</sup> die Fermi-Funktion und der Q-Wert ist die beim Zerfall freiwerdende Energie des Kernübergangs, also die maximale Energie der emittierten Elektronen.

Das  $\beta$ -Spektrum in der Nähe des Endpunktes läßt sich in Form eines Kurieplots darstellen. Der Kurieplot ist folgendermaßen definiert:

$$K(E) = \sqrt{\frac{N(E)}{p_e^2 F(Z, E)}}$$
(1.2)

Ein Kurieplot ist in Abb.1.4 dargestellt. Für ein masseloses Neutrino  $m_{\nu} = 0$  ist der Kurieplot eine Gerade für die gilt

$$K(E) = E - Q$$

mit dem Endpunkt

$$E = Q$$

Geht man von einem Neutrino mit Masse  $m_{\nu} \neq 0$  aus, wird aus Gleichung 1.1

$$N(E)dE \sim p_e^2 F(Z, E)(Q - E)((Q - E)^2 - m_{\nu}^2)^{1/2} dE$$

Setzt man diese Gleichung in Gl. 1.2 ein, erhält man für den Kurieplot:

$$K(E) = \left[\sqrt{(Q-E)^2 - m_{\nu}^2}(Q-E)\right]^{1/2} {}^{19}$$

 $<sup>^{18}{\</sup>rm F(E,Z)}{=}\frac{x}{1-e^{-x}}$ mit x= $\pm\frac{2\pi(Z+1)\alpha}{\beta}$ für  $\beta^{\mp},\ \beta{=}\frac{p}{E}$  Elektrongeschwindigkeit,  $\alpha{=}\frac{1}{137}$ <br/> $^{19}{\rm Schmitz:}$  NP S.223/6.70



Abbildung 1.4: Kurie-Plot in der Nähe des Endpunktes  $E_0$  für  $m_{\nu}=0$  und  $m_{\nu}\neq 0$  mit und ohne Verschmierung [N. Schmitz: Neutrinophysik 1997 S. 224]

Durch ein massives Neutrino  $m_{\nu} \neq 0$  reduziert sich die Endpunktsenergie, da die Ruheenergie der Neutrinos den Elektronen fehlt. In einem Kurieplot äußert sich dieser Effekt in einem senkrecht zur Energieachse endenden Spektrum bei der Energie  $E_{max}=Q-m_{\nu}$ . Die Neutrinomasse läßt sich dann aus einer genauen Messung des Kurie-Plot in der Nähe von  $E_{max}$  bestimmen.

Man untersucht hauptsächlich den  $\beta$ -Zerfall von Tritium ( ${}^{3}H \rightarrow {}^{3}He + e^{-} + \overline{\nu_{e}}$ ) um die Neutrinomasse zu messen, da dieses Isotop eine niedrige Endpunktsenergie (18,57 keV) hat. Dieser kurze Spektralbereich liefert eine relativ hohe Zerfallsrate in einem m<sub> $\nu$ </sub>-empfindlichen Energieintervall um den Endpunkt.

Die Experimente, die bisher die genauesten Ergebnisse für Elektronneutrinos lieferten sind das Mainzer und das Troitsk Neutrinomassen-Experiment (bei beiden wurde ein  $\beta$ -Spektrum von Tritium gemessen).

Beide lieferten nur eine obere Grenze der Neutrinomasse von<sup>20</sup>:

 $m_{\nu}(Mainz) < 2, 2 \ eV \ (C.L. \ 95\%)^{21}$ 

 $<sup>^{20}</sup>$  Ch. Weinheimer: The neutrino mass direct measurements (May 19, 2006) (arXiv:hep:ex/0306057v1 28 Jun 2003)

 $<sup>^{21}\</sup>mathrm{C.L.}{=}\mathrm{Confidence}$  Level, d.h der Fehler liegt bei 1-0,95=5%

 $m_{\nu}(Troitsk) < 2,5 \ eV \ (C.L. \ 95\%)^{22}$ 

Der wesentliche Unterschied zwischen den beiden Experimente war die Tritiumquelle. Mainz benutzte einen schockkondensierten Tritiumfilm, während Troitsk gasförmiges Tritium verwendete.

Aktuell wird in Karlsruhe das KATRIN-Experiment aufgebaut. Es ist eine Weiterentwicklung der vorher genannten Experimente, die Funktionsweise ist eine Mischung aus beiden. Es werden zwei Tritiumquellen, eine gasförmige Quelle und ein Tritiumfilm benutzt. Die Sensitivität des Experimentes wird Messungen der Neutrinomasse bis zu hinunter zu 0,2 eV ermöglichen.

#### 1.2.2 Die doppelten Betazerfälle

Im Vergleich zum einfachen  $\beta$ -Zerfall ist der doppelte  $\beta$ -Zerfall ein sehr seltener Prozeß der Schwachen Wechselwirkung in 2. Ordnung. Man kann sich den Doppelbetazerfall ( $\beta\beta$ -Zerfall) als den gleichzeitigen Zerfall von zwei Neutronen im Kern vorstellen, dabei ändert sich die Kernladungszahl um zwei ( $\Delta Z = 2$ ). Dieser Zerfall kommt in der Natur sehr selten vor und hat Halbwertszeiten in der Größenordnung 10<sup>20</sup> Jahre. Er ist nur meßbar, wenn der Kern gegenüber einfachem  $\beta$ -Zerfall stabil ist, also wenn der Kern, der beim einfachen  $\beta$ -Zerfall entstehenden würde, (A,Z+1) eine größere Masse hat (energetisch höher liegt) als der Mutterkern (A,Z) und der übernächste Tochterkern (A,Z+2) energetisch tiefer liegt als der Mutterkern. Sämtliche  $\beta\beta$ -Emitter sind gg-Kerne, d.h. sie besitzen jeweils eine geradzahlige Anzahl an Neutronen und Protonen. Es gibt zurzeit 36  $\beta\beta$ -Kandidaten (u.a. <sup>76</sup>Ge, <sup>136</sup>Xe, <sup>100</sup>Mo etc.).

#### Neutrinobegleiteter $\beta\beta$ -Zerfall ( $2\nu\beta\beta$ )

$$(Z, A) \to (Z+2), A) + 2e^- + 2\nu_e$$

Bei diesem Zerfall bleibt die Leptonenzahl erhalten. Es werden sowohl zwei Elektronen als auch zwei Antielektronneutrinos emittiert. Er ist innerhalb des Standardmodells erklärt. Dieser Zerfall wurde 1987 durch S. R. Elliot et al.<sup>23</sup> experimentell bestätigt. Elliot hat den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall im Zerfall von

$$^{82}Se \rightarrow ^{82}Kr + 2e^- + 2\overline{\nu}$$

gefunden. Das Summenergiespektrum hat einen kontinuierlichen Verlauf und endet bei der Zerfallsenergie  $Q_{\beta\beta}$  (siehe Abb.1.5).

<sup>&</sup>lt;sup>22</sup>Lobashev et al.: Direct search for neutrinomass and anomaly in the tritium beta-spectrum: status of troitsk neutrino mass experiment, Nucl. Phys. B (proc. Suppl. 91) (2001) 280-286

<sup>&</sup>lt;sup>23</sup>S. R. Elliot et al.:Direct evidence for double beta decay of <sup>82</sup> Phys. Rev. Lett. 59 2020(1987)



Abbildung 1.5: Energiespektrum des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls und der erwartete Peak des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall am Beispiel des <sup>76</sup>Ge

Neutrinoloser  $\beta\beta$ -Zerfall ( $0\nu\beta\beta$ )

$$(Z, A) \rightarrow (Z+2), A) + 2e^{-1}$$

Beim neutrinolosen Doppelbetazerfall, sollte er existieren, werden, wie der Name schon sagt, keine Neutrinos emittiert. Er ist innerhalb des Standardmodells verboten. Es wird ein virtuelles Neutrino zwischen den Nukleonen ausgetauscht, d.h., einfach ausgedrückt, gleichzeitig emittiert und absorbiert. Dies ist nur möglich, wenn Neutrino und Antineutrino identisch sind, d.h. Neutrinos sind sogenannte Majorana-Teilchen. Bei diesem Prozeß ist die Leptonenzahl nicht erhalten und Neutrinos müssen eine Masse besitzen. Die gesamte Energie  $Q_{\beta\beta}$  des Prozesses geht auf die beiden Elektronen über, so daß sich im Summenenergiespektrum ein scharfer Peak ergibt (siehe Abb.1.5).

Aus den  $0\nu\beta\beta$  läßt sich die effektive Majoranamasse, also die kohärente Summe der Masseneigenzustände der Neutrinos bestimmen. Es gilt

$$m_{ee}(\nu) = |\sum_{i} U_{ei}^2 m(\nu_i)|$$

Die  $U_{ei}^2$  sind Elemente der Mischungsmatrix U.

Die Majoranamasse folgt aus der Halbwertszeit  $(T_{1/2})$  des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls, die sich aus dem gemessenen Spektrum ergibt. Bei fehlendem  $0\nu\beta\beta$ -Peak kann zumindest die Untergrenze von  $T_{1/2}$  bestimmt werden. Für die Halbwertszeit gilt

$$\frac{1}{T_{1/2}} = G^{0\nu} |M_N|^2 m_{ee}^2$$

Mit dem Phasenraum  $G^{0\nu}$  und dem Matrixelement  $M_N$  kann dann aus  $T_{1/2}$  die effektive Neutrinomasse bestimmt werden (die Genauigkeit ist aber durch Berechnung von  $M_N$  begrenzt).

Heiße Kanditaten aufgrund der großen Häufigkeit oder des hohen Q-Werts für den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall sind beispielsweise <sup>76</sup>Ge,<sup>136</sup>Xe,<sup>130</sup>Te,<sup>100</sup>Mo und <sup>116</sup>Cd. Es laufen oder liefen folgende Experimente um den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall zu beobachten:

#### • CUORICINO:

Das CUORICINO-Experiment untersucht den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall von <sup>130</sup>Te, dabei werden verwendet 40,7 kg TeO<sub>2</sub>. Es läuft zur Zeit im Gran Sasso und liefert eine Untergrenze für die Halbwertszeit

$$T_{1/2} > 1,8 * 10^{24} \ a \ (90\% \ C.L.)^{24}$$

Daraus ergibt sich eine Obergrenze für die Neutrinomasse zwischen 0,2-1,1 eV (der Bereich kommt von den Matrixelementen, die nicht genau berechnet werden können).

• Heidelberg-Moskau Experiment:

Dieses Experiment hat für seine Messungen <sup>76</sup>Ge benutzt. Es bestand aus 5 Ge-Dioden mit bis zu 86% angereichertem <sup>76</sup>Ge. Das Experiment lief im Gran Sasso Untergrundlabor. Bislang war es das  $0\nu\beta\beta$ -Experiment mit der größten Empfindlichkeit. In 13 Jahren Laufzeit haben sich ca. 71,7 kg\*a Daten angesammelt. Ein Teil der Kollaboration<sup>25</sup> behauptet den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall gefunden zu haben. Mit einer  $4\sigma$  Vertrauensgrenze wird die Halbwertszeit  $T_{1/2} = (0, 69 - 4, 18) * 10^{25} a$  und die effektive Masse  $m_{ee} = 0, 39 \ eV$  angegeben.

• IGEX:

Beim IGEX-Experiment wurde auch <sup>76</sup>Ge in Form von Germaniumkristallen verwendet. Es gab 2 Phasen: Bei IGEX-I wurden 3 Ge-Kristalle (ca. 700 g) mit 87 % angereichertem <sup>76</sup>Ge verwendet, und bei IGEX-II nur ein 2,2 kg-Kristall. Das Experiment fand auch in der Homestake Goldmine in Lead, SD, USA statt. Das Ergebnis für <sup>76</sup>Ge war eine Untergrenze von

$$T_{1/2} > 1,6 * 10^{25} a (90\% C.L.)$$

• NEMO:

Ein weiteres Experiment ist das NEMO-Experiment. Nemo gliedert sich in 3 Phasen. Zur Zeit läuft NEMO 3. Man hat hier sowohl den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall mit <sup>82</sup>Se und <sup>100</sup>Mo als auch den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall mit <sup>96</sup>Zr, <sup>116</sup>Cd und <sup>150</sup>Nd benutzt. Die Meßmethode basiert auf dem Spuren-Tracking von Elektronen. Die Ergebnisse für den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall von Feb. 2003- Sept. 2004<sup>26</sup> sind:

$$T_{1/2}(^{100}Mo) > 4, 6 * 10^{23} a (90\% C.L.)$$

 $<sup>^{24}{\</sup>rm S.}$  Pirro et al. Nucl. Instr. Meth. A559 (2006) 352-354

 $<sup>^{25}\</sup>mathrm{H.V.}$  Klapdor-Kleingrothaus et al. / Physics Letters B 586 (2004) 198–212

<sup>&</sup>lt;sup>26</sup>Arnold et al.:First Results of the Search for Neutrinoless Double-Beta Decay with the NEMO 3 Detector, Phys. Rev. Lett 95 (2005) 182302

#### 1.2. BETAZERFÄLLE

$$T_{1/2}(^{82}Se) > 1,0 * 10^{23} a (90\% \ C.L.)$$

Daraus ergeben sich folgende Obergrenzen für die Neutrinomassen aus  ${}^{100}Mo$  und  ${}^{82}Se$ :

$$m_{\nu}(^{100}Mo) < 0, 7 - 2, 8 \ eV$$
  
 $m_{\nu}(^{82}Se) < 1, 7 - 4, 9 \ eV$ 

Geplant sind folgende Experimente:

• CUORE:

CUORE ist als Erweiterung von CUORICINO geplant. Das Experiment wird 2010 im Gran Sasso anlaufen. Es sollen 780 kg nichtangereichertes  $\text{TeO}_2$  verwendet werden. Man erwartet nach einem Jahr Laufzeit (und einem noch zu erreichenden Untergrundindex von 0,001-0,01 cts/(kg\*keV\*y)) eine Halbwertszeit von<sup>27</sup>

$$T_{1/2} > 3,6 * 10^{26} a$$

• EXO:

Beim EXO-Projekt werden 65% angereichertes flüssiges <sup>136</sup>Xe (10 t) verwendet um sowohl den  $0\nu\beta\beta$ -Zerfall als auch den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall zu studieren. <sup>136</sup>Xe soll als Quelle und als Detektor verwendet werden. Nach 10-jähriger Laufzeit soll es eine Untergrenze von<sup>28</sup>

$$T_{1/2}(^{136}Xe) > 1, 3 * 10^{28} a$$

geben.

• MOON:

Das japanische MOON- Experiment wird ein szintillatorbasiertes Kalorimeter sein, bei dem eine Folie mit <sup>100</sup>Mo eingesetzt wird. Allerdings besteht die Möglichkeit auch andere Isotope wie z.B. <sup>82</sup>Se zu benutzen. Das Experiment soll in 2 Phasen zuerst mit 200 kg und später 1 t <sup>100</sup>Mo oder <sup>82</sup>Se arbeiten. Die erste Phase soll in 3 Jahren Laufzeit folgende Untergrenzen für die Halbwertszeit finden:

$$T_{1/2}(^{100}Mo) > 0,71 * 10^{26} a$$
  
 $T_{1/2}(^{82}Se) > 1,1 * 10^{26} a$ 

• Majorana:

Majorana basiert auf einer Technik, die schon bei HDM und IGEX verwendet wurde.

 $<sup>^{27} \</sup>mathrm{Alessandrello}$  et al.:arXiv:hep-ex/0201038 v2 6 Aug 2002

 $<sup>^{28}</sup>$  Danilov et al.: Detection of very small neutrino masses in double-beta decay using laser tagging Physics Letters B  $480(2000)12{-}18$ 

In dem Experiment sollen 180 kg Germanium mit angereichertem  $^{76}$ Ge (86%) verwendet werden. Insgesammt werden 171 Kristalle benötigt. Es soll nach 10 Jahren Laufzeit^{29}

$$T_{1/2} > 3,8 * 10^{27} a$$

als Untergrenze für die Halbwertszeit liefern.

• NEMO-3/Super-NEMO:

Bei NEMO-3 werden ungefähr 10 kg eines angereicherten Isotopengemisches in Form von dünnen Folien verwendet (hauptsächlich bestehend aus 6,9 kg  $^{100}$ Mo und 0,9 kg  $^{82}$ Se). Die Folie wird über 20 Detektormdule gespannt. Man erwartet nach 5 Jahren Laufzeit ein Ergebnis von:

$$T_{1/2}(^{82}Se) > 1, 1 * 10^{26} a$$

Super-NEMO ist als Nachfolger von NEMO-3 geplant und soll 2011 beginnen.

• GERDA: Das GERDA-Experiment wird im nächsten Kapitel beschrieben.

<sup>&</sup>lt;sup>29</sup>Gaitskell et al.:The Majorana Zero-Neutrino Double-Beta Decay Experiment, PNNL-13816

# Kapitel 2 Das Neutrinoexperiment GERDA

Das GERDA Experiment (GERDA=**GER**manium **D**etector **A**rray) wird im LNGS (Laboratori Nazionali del Gran Sasso) aufgebaut. Dieses liegt in einem Autobahntunnel mitten in den Abruzzen in Italien. Das Bergmassiv Gran Sasso hat eine Höhe von über 2900 m. Der Fels über dem Labor entspricht 3500 m Wasserequivalent. Der Fels dient als natürlicher Schutz um kosmische Strahlen abzuschirmen (Reduktion des  $\mu$ -Flusses von  $\frac{10^6}{m^2h}$  auf  $\frac{1}{m^2h}$ ). Bei GERDA soll untersucht werden, ob Neutrinos Majorana- oder Diracteilchen sind. GERDA nutzt <sup>76</sup>Ge um den neutrinolosen Doppelbetazerfall ( $0\nu\beta\beta$ ) nachzuweisen, woraus sich die effektive Neutrinomasse (oder eine neue Obergrenze der Neutrinomasse) bestimmen läßt. Der erwartete  $Q_{\beta\beta}$ -Peak der Elektronen liegt bei 2,039 MeV und ist bei <sup>76</sup>Ge zum einen gut vom  $\beta$ -Spektrum des  $2\nu\beta\beta$ -Zerfalls zu unterscheiden (gute Energieauflösung der Ge-Detektoren), zum anderen dient <sup>76</sup>Ge gleichzeitig als Quelle und Detektor. Das Experiment wird in zwei (falls notwendig drei) Phasen ablaufen.

• Phase I:

In der ersten Phase werden 15 kg Germanium mit 86% angereichertem <sup>76</sup>Ge aus den früheren Experimenten IGEX und HDM verwendet. Nach einem Jahr Laufzeit (15 kg\*y) und einem Untergrundindex von  $10^{-2} \frac{cts}{kg*keV*y}$  erwartet man folgende Untergrenzen für die Halbwertszeiten:

$$T_{1/2} > 3,0 * 10^{25} \ a \ (90\% \ C.L.)^1$$

Das entspricht einer oberen Grenze der Neutrinomasse von:

$$m_{ee} < 0, 24 - 0, 77 \ eV$$

Diese Phase sollte mit hoher Sicherheit die Frage klären, ob das HDM-Experiment den $0\nu\beta\beta$ -Zerfall nachgewiesen hat oder nicht.

• Phase II:

Bei Phase II kommen noch zusätzliche segmentierte Germaniumdetektoren zum Einsatz (ca. 20 kg, macht dann insgesamt  $\sim 35$  kg)). Ein Ziel von Phase-II ist es einen

 $<sup>^1\</sup>mathrm{GERDA}$  proposal to the LNGS P38/04



Abbildung 2.1: Aufbau von GERDA im LNGS in Halle A

Untergrundindex von  $10^{-3}$  cts/(keV\*kg\*y) zu erreichen. Es ist vorgesehen 100 kg\*y Daten (in ca. 3 Jahren Meßzeit) zu sammeln. Man erwartet eine um Faktor 6 verbesserte Obergrenze für die Halbwertszeit von:

$$T_{1/2} > 2 * 10^{26} a (90\% C.L.)$$

Daraus ergibt sich eine effektive Neutrinomasse in einem Bereich von

 $m_{ee} = 0,09 - 0,29 \ eV \ (90\% C.L.)$ 

• Phase III:

Falls Phase II kein  $0\nu\beta\beta$ -Ereignis beobachtet, könnte Phase-III anlaufen. Es wird vermutlich eine weltweite Kollaboration zwischen GERDA und Majorana geben, mit größenordnungsmäßig 500 kg <sup>76</sup>Ge, um eine Obergrenze für die Neutrinomasse von ca. 50 meV erreichen zu können.

## 2.1 Aufbau von GERDA

Einer der kritischsten Teile von GERDA ist ein Kryostat, der das Flüssiggas und die Germaniumkristalle enthält. Er wird aus Edelstahl hergestellt. Um den Untergrund, der von den Radioisotopen des Stahls kommt (U/Th), zu reduzieren, wird die Innenseite des

Kryostaten mit Kupferplatten bedeckt (die Kupferreinheit ist zwei Größenordnungen höher als bei Stahl). Der Tank hat ein Volumen von ungefähr 40 m<sup>3</sup>. Als Flüssiggas wird Argon (LAr) benutzt. Aufgrund seiner höheren Dichte hat es bessere Abschirmeigenschaften als Flüssigstickstoff, aber immer noch einen Siedepunkt, der tief genug ist um die Ge-Dioden zu kühlen. Da das LAr in direktem Kontakt mit den Ge-Detektoren stehen wird, muß es eine sehr hohe Reinheit besitzen. Die Radonkontamination sollte beispielsweise in einem Bereich von  $0.5 \,\mu \text{Bq/m}^3 (STP)^2$  sein, um einen Untergrundindex von  $10^{-4} cts/(kg*keV*y)$ gewährleisten zu können.

Um den Untergrund zu minimieren, benötigt GERDA nackte Ge-Detektoren (Gehäuse trägt zum Untergrund bei). Sie werden in einer Kette angeordnet sein und es werden nur einige Zehn Gramm Kupfer und Teflon für die Halterung benötigt. Die Detektoren gelangen aus dem Reinraum (befindet sich auf dem Tank) durch eine Luftschleuse und über den Hals des Kryostaten in den Tank. Als Vorverstärker werden integrierte ASIC-Chips verwendet, die bei der Temperatur des LAr arbeiten.

Um den Untergrund weiter zu reduzieren wird ein Myonveto benutzt. Es besteht aus einem Wassertank (Volumen 630 m<sup>3</sup> mit 60 Photomultipliern (PMT) und 6 zusätzlichen PMT unter dem Kryostaten. Für den Tank wird Edelstahl verwendet. Der komplette Tank ist von innnen mit einer Reflektorfolie (VM2000 Folie) ausgekleidet (um die Lichteffizienz des Detektors zu erhöhen). Die PMT sind jeweils in einem Edelstahlgehäuse mit einem Fenster aus Polyethylen untergebracht. Zusätzlich ist der obere Tank mit Plastikszintillatoren vertäfelt, da das Wassers nicht bis zum Hals des Kryostaten reicht.

Eine schematische Ansicht ist in Abb. 2.1 zu sehen.

## 2.2 Radon bei GERDA

Radon ist eines der gefährlichsten Isotope für Low-Level Experimente. Auch bei GERDA hat es einen hohen Stellenwert. Die Radonkonzentration vom LAr sollte, wie bereits erwähnt, bei  $\leq 0,5\mu$ Bq/m<sup>3</sup> liegen.Dadurch wird ein Untergrundindex von  $10^{-4}cts/(keV * kg * y)$  garantiert. Die Radonemanation des Kryostaten und seiner Bestandteile muß minimiert werden, und sollte keinen Wert überschreiten, der wesentlich zum Radongehalt des Gases beiträgt (insgesamt ca. 10 mBq). Auch der Radongehalt in der Luft der Luftschleuse, des Reinraums oder den Clean-benches, die zum Betreiben der Ge-Dioden notwendig sind, muß überwacht werden. Man erreicht dies durch Emanationsmessungen der verwendeten Bauteile oder Online-Monitoring der Luft. Für die Online-Überwachung von Radon kann man Detektoren wie elektrostatische Kammern oder Lucaszellen verwenden (je nach erforderlicher Sensitivität).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Simgen: Ultrapure gases for GERDA, Progr. in Part. and Nucl. Phys. 57 (2006) 266-268

## Kapitel 3

## Radon

## 3.1 Historisches

Aufgrund ihrer chemischen Trägheit wurden die Edelgase relativ spät entdeckt. Als erstes wurden im Jahre 1895 Argon und Helium gefunden. Argon ist das in der Luft am häufigsten vorhandene Edelgas. Hinweise auf Helium gab es schon früher durch eine starke aber unbekannte Spektrallinie der Sonne, daher auch der Name. Nach verschiedenen irdischen Hinweisen wurde es durch eben diese Spektrallinie 1895 nachgewiesen. Etwa drei Jahre später fand man die übrigen Edelgase. Im Jahre 1900 wurde dann Radon nachgewiesen. Die Strahlung von mit Uran und Thorium gefüllten Gefäßen war unterschiedlich, je nachdem ob sie offen oder geschlossen waren. In Luft wurde Radon im Jahre 1901 entdeckt. Es wurden damals verschiedenen Radonisotope gefunden. Man hat sie unterschiedlich bezeichnet, nähmlich als Radon (<sup>222</sup>Rn), Thoron (<sup>220</sup>Rn) und Actinon (<sup>219</sup>Rn). Heute sind 32 Radonisotope bekannt mit Halbwertszeiten von 7 ns (<sup>214</sup>Rn) bis zu 3,83 d (<sup>222</sup>Rn).

Die schädlichen Auswirkungen der Radioaktivität des Radon wurden schon im 16. Jahrhundert bei Bergarbeitern beobachtet und als Schneeberger Krankheit bekannt, ohne natürlich die Ursache zu kennen. In der Mitte des 20. Jahrhundert wurde bei Bergarbeitern nachgewiesen, daß Radon Lungenkrebs erzeugt. Ein großer Anteil der Strahlungsbelastung des Menschen geht auf Radon zurück, denn nicht nur Gestein und Erdreich sondern auch fast alle Baumaterialien enthalten Radium. Radon wird eingeatmet und die Tochterkerne, alle Metalle, setzen sich in der Lunge ab. Radon wurde auch in der Medizin verwendet, z.B. in Radonbädern, wo es inhaliert wurde.

## 3.2 Eigenschaften von Radon

Im Erdreich ist immer viel Uran und somit Radium vorhanden. Beim Radiumzerfall gelangt Radon in die Luft, da es gasförmig ist. Die Radon-Tochternuklide sind Metalle, die sich auf allen Oberflächen anlagern<sup>1</sup>. <sup>222</sup>Rn liefert auch einen störenden Untergrund für

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Rau: Low-Level-Radonmessungen für das Sonnenneutrinoexperiment Borexino, Doktorarbeit

#### 3.2. EIGENSCHAFTEN VON RADON

viele Low-Level Experimente. Das Problem liegt hier bei der hohen Permeabilität von  $^{222}\text{Rn}$  (Diffusion) und des großen Energiebereichs der von  $^{222}\text{Rn}$  und seinen Tochterkernen emittierten Teilchen und  $\gamma$ -Quanten. Ein weiterer Gesichtspunkt ist das radioaktive Gleichgewicht, das beim Erreichen des  $^{210}\text{Pb}$  (langlebiges Isotop) in der Zerfallskette zerstört wird. Andere Isotope ( $^{219}\text{Rn}$  $^{220}\text{Rn}$ ) sind wegen ihrer kurzen Halbwertszeiten harmlos.

## 3.2.1 Chemische Eigenschaften

Radon gehört zur Gruppe der Edelgase. Diese sind aufgrund ihrer abgeschlossenen äußeren Elektronenhülle sehr reaktionsträge. Man hat bisher keine natürlichen Verbindungen mit den leichteren Edelgasen gefunden. Aufgrund nicht vollständig besetzter, tieferliegender Schalen gibt es einige Verbindungen mit den schweren Edelgasen Krypton und Xenon, z.B. mit Fluor Sauerstoff und verschiedenen Metallen. Es ist zu erwarten, daß es auch einige Verbindungen mit Radon gibt. Das Experimentieren mit Radon ist jedoch schwierig, da es schwierig ist genügend Radon zu beschaffen. Zum einen hat es höchstens eine Halbwertszeit von nur 3,83 d, zum anderen ist es ´radioaktiv.

## 3.2.2 Physikalische Eigenschaften

Radon ist das schwerste natürlich vorkommende Edelgas. Es gibt, wie bereits oben erwähnt, 32 Radonisotope von denen drei natürlich vorkommen. <sup>222</sup>Rn ist ein Tochternuklid von <sup>238</sup>U, <sup>220</sup>Rn gehört zur Zerfallskette von <sup>232</sup>Th und <sup>219</sup>Rn zur der von <sup>235</sup>U (siehe Abb. 3.1, 3.2 und 3.3). Die natürlichen Radonisotope entstehen alle durch  $\alpha$ -Zerfall von Radium, dessen Isotope in allen drei Zerfallsketten vorkommen. Sie sind selbst  $\alpha$ - Strahler und Zerfallen zu Polonium. Die wichtigsten physikalischen Konstanten von Radon wie Schmelzund Siedepunkt sowie Dichte, kritischer Druck und Verdampfungswärme sind in Tab. 3.1 zusammengefaßt.

Schmelzpunkt Siedepunkt kritischer Druck Dichte (NTP) Dichte (Schmelzpunkt)	$\begin{array}{c} -71,15 \ ^{\circ}\text{C} \\ -61,75 \ ^{\circ}\text{C} \\ 6280 \ \text{mbar} \\ 9,37\cdot10^{-3} \ \text{g/cm}^{3} \\ 4,4 \ \text{g/cm}^{3} \\ 17.1 \ \text{L/M} \end{array}$
Verdampfungswärme	17  kJ/Mol

Tabelle 3.1: Materialkonstanten von Radon

### Die Zerfallskette von <sup>222</sup>Rn

 $^{222}$ Rn nimmt eine Sonderstellung für Low-Level Experimente ein, da es das langlebigste ist (Halbwertszeit 3,83 d).  $^{220}$ Rn, mit einer Halbwertszeit von 55,6 s, und  $^{219}$ Rn mit einer

Halbwertszeit von 4 s können meist die nähere Umgebung ihrer Entstehung nicht verlassen und zerfallen schnell zum stabilen <sup>208</sup>Pb bzw. <sup>207</sup>Pb (siehe Abb 3.2 und 3.3).

 $^{222}\text{Rn}$ zerfällt mit einer Halbwertszeit von 3,83 Tagen zu  $^{218}\text{Po}$  (E $_{\alpha}=$  5,5 MeV). Die Halbwertszeit von <sup>218</sup>Po beträgt 3,05 min. Dieses geht durch  $\alpha$ -Zerfall (E<sub> $\alpha$ </sub> = 6,0 MeV) in <sup>214</sup>Pb über. Es folgen nun  $\beta$ -Zerfälle von <sup>214</sup>Pb zu <sup>214</sup>Bi und von <sup>214</sup>Bi zu <sup>214</sup>Po. Die jeweiligen Halbwertszeiten sind 26,8 min, und 19,9 min. Die Maximalenergie der Elektronen beträgt 0,7 MeV und 1,5 MeV.  $^{214}\mathrm{Po}$ mit einer Halbwertszeit von 164 $\mu\mathrm{s}$ ist wieder ein $\alpha\text{-Strahler}$  $(E_{\alpha} = 7,7 \text{ MeV})$ . Die kurze Halbwertszeit von (<sup>214</sup>Po) macht man sich bei der Messung von  $^{222}$ Rn zunutze. Hat man zwei Ereignisse, das erste ein  $\beta$ -Zerfall und das zweite ein  $\alpha$ -Zerfall innerhalb einer kurzen Zeit nach dem  $\beta$ -Zerfall (ca. 800  $\mu$ s), so kann man aufgrund dieses Doppelsignals auf ein vorher vorhandenes <sup>222</sup>Rn-Atom schließen. Dieses Doppelsignal, BiPo genannt, tritt (aber mit anderen Zeiten) z.B. auch beim <sup>220</sup>Rn-Zerfall auf. <sup>214</sup>Po zerfällt zu <sup>210</sup>Pb. Das <sup>210</sup>Pb stellt eine Besonderheit der Zerfallskette von <sup>222</sup>Rn dar. Es hat im Vergleich zu den anderen Nukliden dieser Kette eine sehr große Halbwertszeit (22,3 a), deshalb wird das Gleichgewicht der Zerfallskette hier meistens nicht erreicht. <sup>210</sup>Pb ist ein  $\beta$ -Strahler (E $_{\beta}=0.06$  MeV) und zerfällt zu <sup>210</sup>Bi, was wiederum durch  $\beta$ -Zerfall (E $_{\beta_{max}}=1.2$ MeV,  $T_{1/2}=5,01$  d) in <sup>210</sup>Po zerfällt. <sup>210</sup>Po hat eine Halbwertszeit von 138 d und geht durch  $\alpha$ -Zerfall (E<sub> $\alpha$ </sub> = 5,3 MeV) in das stabile <sup>206</sup>Pb über. Die Zerfallskette mit <sup>222</sup>Rn ist in Tab. 3.1 aufgeführt.

In Abb. 3.2 ist die Zerfallsreihe vom  $^{232}$ Th mit dem Tochterisotop  $^{220}$ Rn abgebildet, und in Abb. 3.3 die Zerfallsreihe von  $^{235}$ U mit dem Radonisotop  $^{219}$ Rn.

Die wichtigsten Daten der natürlichen Radonisotope sind in Abb. 3.2 aufgeführt.



Abbildung 3.1: Zerfallsreihe von  $^{238}\mathrm{U}$ 



Abbildung 3.2: Zerfallsreihe von <sup>232</sup>Th



Abbildung 3.3: Zerfallsreihe von  $^{235}$ U

Nuklid	$^{219}$ Rn	$^{220}$ Rn	$^{222}$ Rn
Halbwertszeit Diffusionslänge in Luft*	3,96 s 7,6 mm	$55,6~{ m s}$ $2,8~{ m cm}$	$^{3,825}_{2,18}$ m
Primordiales Ursprungsnuklid	<sup>235</sup> U	$^{232}$ Th 1,4·10 <sup>10</sup> a	<sup>238</sup> U
mit Halbwertszeit	7,0·10 <sup>8</sup> a		4,5·10 <sup>9</sup> a
Mutternuklid	<sup>223</sup> Ra	<sup>224</sup> Ra	<sup>226</sup> Ra
mit Halbwertszeit	11,4 d	3,7 d	1,6·10 <sup>3</sup> a
Charakteristische Tochterzerfälle mit Zerfallsart und Halbwertszeit	Rn-Po $\alpha \alpha$ ; 1,9 ms	$\begin{array}{c} \text{Rn-Po} \\ \alpha\alpha; \ 150 \ \text{ms} \\ \text{Bi-Po} \ (64\%) \\ \beta\alpha; \ 0.3 \ \mu\text{s} \end{array}$	Bi-Po βα; 164 μs
Tochternuklid mit	<sup>211</sup> Pb	<sup>212</sup> Pb	<sup>210</sup> Pb
größter Halbwertszeit	36,1 min	10,6 h	22,3 a

\*bei 1 atm

Tabelle 3.2: Die wichtigsten Daten der natürlichen Radonisotope

### 3.2.3 Zeitliche Entwicklung der Aktivitäten in der <sup>222</sup>Rn-Zerfallskette

Hier möchte ich die zeitliche Entwicklung der einzelnen Aktivitäten von  $^{222}$ Rn und seinen Tochternukliden angeben. Es gilt folgendes Differentialgleichungssystem zu lösen:

$$\begin{cases} y'_{0} = -\lambda_{0}y_{0} \\ y'_{1} = -\lambda_{1}y_{1} + \lambda_{0}y_{0} \\ y'_{2} = -\lambda_{2}y_{2} + \lambda_{1}y_{1} \\ y'_{3} = -\lambda_{3}y_{3} + \lambda_{2}y_{2} \\ y'_{4} = -\lambda_{4}y_{4} + \lambda_{3}y_{3} \end{cases}$$
(3.1)

Die  $y_i(t)$  geben die Anzahl der Atome des jeweiligen Isotops (<sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi und <sup>214</sup>Po) an, die  $\lambda_i$  sind die Zerfallskonstanten der jeweiligen Nuklide.

Unter der Annahme, daß z.B. zur Zeit t=0 nur  $^{222}$ Rn vorhanden ist (Füllung des Detektors mit  $^{222}$ Rn) ergeben sich folgende Randbedingungen:

$$y_0(0) = N_0;$$
  $y_1(0) = \dots = y_4(0) = 0$ 

N<sub>0</sub> ist die Anzahl der Radonatome.

Die Lösungen des obigen Gleichungssystems sind:

$$\begin{cases} y_0(t) = N_0 e^{-\lambda_0 t} \\ y_1(t) = \frac{\lambda_0 N_0}{\lambda_{01}} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_0 t}) \\ \vdots \\ y_n(t) = N_0 \prod_{k=0}^{n-1} \lambda_k \sum_{i=0}^n \frac{e^{-\lambda_i t}}{\prod_{j \neq i} (\lambda_j - \lambda_i)} \end{cases}$$
(3.2)

mit n<br/>≤4 und  $\lambda_{ij}{=}\lambda_j{-}\lambda_i$  Die jeweiligen Aktivitäten ergeben sich dann aus

$$A_i(t) = \lambda_i y_i(t)$$

Die Lösungen  $A_i$  dieser Gleichungen sind unter dem Namen Bateman-Lösungen bekannt. Zeichnet man die Aktivitäten zusammen in ein Diagramm, kann man erkennen, daß sich ein Gleichgewicht aller beteiligten Aktivitäten nach ca. 3 h (in Abb.3.4 sind die  $\alpha$ -Emitter gezeigt) einstellt. Um bei einer Messung die Gesamtaktivität zu messen muß man normalerweise die Aktivitäten der beteiligten Nuklide aufsummieren. Im Gleichgewicht aber ist die Gesamtaktivität ein Vielfaches der Aktivität des Mutternuklides. In unserem Fall messen wir nur die 3  $\alpha$ -Emitter <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po, beispielsweise bei einer Messung oder Kalibration einer Lucaskammer erhält man dann für die Gesamtaktivität

$$A_{tot} = 3A_0$$

Man muß dann nur mit  $A_0$  rechnen anstatt der komplizierten Ausdrücke der anderen Aktivitäten z. B.  $A_4$  von <sup>214</sup>Po. Dieses Gleichgewicht macht man sich z.B. bei der Kalibrierung



Abbildung 3.4: Zeitlicher Verlauf der Aktivitäten von <sup>222</sup>Rn (A<sub>0</sub>(t)), <sup>218</sup>Po (A<sub>1</sub>(t)), <sup>214</sup>Po (A<sub>4</sub>(t)). Es gilt: A<sub>0</sub>(0)=A<sub>0</sub> und A<sub>1</sub>(0)=A<sub>4</sub>(0)=0

einer Lucaskammer zu nutze. Aus diesem Grund wartet man 3 h nach dem Einbringen von Rn bevor man eine Lucaskammer kalibriert.

In Abb. 3.5 ist der zeitliche Verlauf der Aktivitäten von <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po zu sehen, nach dem man das Radon entfernt hat. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit der beiden Isotope (3 bzw 27 min) geht die Aktivität schnell zurück. Nach 180 min ist die Aktivität von <sup>214</sup>Po auf 5% des ursprünglichen Wertes abgefallen.Wenn man Radonmessungen machen möchte, ist es wichtig mindestens 3 h zu warten, damit die Reste der alten Probe komplett zerfallen können.

## 3.3 Verschiedene Methoden zur Radonmessung

Im folgenden werden einige Methoden zu Radonmessung beschrieben. <sup>222</sup>Rn ist ein relativ langlebiger  $\alpha$ -Emitter, deshalb ist die Aktivitätsmessung ziemlich einfach. Andere Isotope (<sup>220</sup>Rn, <sup>218</sup>Rn) sind schwieriger zu detektieren (kurze Halbwertszeit) und werden hier nicht beschrieben.


Abbildung 3.5: Zeitlicher Verlauf der Poloniumaktivitäten nach entfernen des Radon. Es gilt:  $A_0(0)=0$ ,  $A_1(0)=A_4(0)=A_0$ 

#### 3.3.1 Miniaturisierte Proportionalzählrohre

Die miniaturisierten Zählrohre, die bei GALLEX/GNO verwendet wurden, gehören zu den empfindlichsten Rn-Detektoren. Sie haben eine Untergrundzählrate von ca. 0,3-1 Ereignis pro Tag. Der Untergund stammt hauptsächlich vom langlebigen <sup>210</sup>Po (138,4 d), das sich dort aufgrund vieler Messungen auf der Kathode abgelagert hat. Die absolute Sensitivität für <sup>222</sup>Rn Messungen, die hier erreicht werden kann, beträgt ca. 30  $\mu$ Bq (15 Atome) und ist hauptsächlich durch die Radonemanation der Glasapparatur selbst bedingt. Die Glasapparatur wird zur Reinigung der Probe (mit chromatographischen Verfahren), zum Mischen mit Zählgas (P10) und zum Füllen des Zählrohres verwendet. Für die Radonmessung z.B. in N<sub>2</sub> oder Ar ist es notwendig Radon aus großen Gasmengen (ca. 100 m<sup>3</sup>) in Spezialfallen anzureichern. Dies ermöglicht Konzentrationen von 0,3  $\mu$ Bq/m<sup>3 2</sup> zu messen.

#### 3.3.2 Elektrostatische Kammern

Für hochempfindliches Online-Monitoring können elektrostatische Kammern verwendet werden. Bei einer Elektrostatischen Kammer werden durch ein elektrisches Feld Radontöchter auf einem  $\alpha$ -Detektor gesammelt. Als  $\alpha$ -Detektor dient z.B. eine Si-Diode, die die Zerfälle von <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po registriert. Der Untergrund der Kammer liegt im Bereich von einigen Ereignisse pro Tag. Die Kammer hat ein Volumen von einigen 100 l, das die Messung einer Konzentration von ~ 1 mBq/m<sup>3</sup> <sup>3</sup> ermöglicht. Die Sammeleffizienz für Ionen (Rn-Töchter) hängt von der Neutralisationsrate ab. Verunreinigungen wie beispielsweise Wasser oder Kohlenstoff tragen zur Neutralisation der Ionen bei, die dann nicht mehr zur Diode gelangen können. Die Sammeleffizienz und die Verunreinigung eines Gases können die Effizienz der Kammer beeinflussen, diese sollte für jedes Gas (oder Gasgemisch) neu gemessen werden.

#### 3.3.3 Lucaskammern

Lucaskammern sind Szintillationsdetektoren zur Radonmessung in Gasen. Sie haben einen Untergrund von ca. 0,5 Ereignisse pro Minute. Ihre Sensitivität liegt in der Größenordnung von 1 Bq/m<sup>3 4</sup>. Im Vergleich zu den Proportionalzählrohren funktionieren sie ohne zeitaufwendige Anreicherungsprozedur. Im Unterschied zu den elektrostatischen Kammern, die eine große Hochspannung von einigen kV benötigen, wird bei Lukaskammern keine Hochspannung verwendet. Desweiteren sind sie weniger störungsanfällig als elektrostatische Kammern und leichter zu handhaben.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Simgen: Ultrapure gases for GERDA, Progr. in Part. and Nucl. Phys. 57 (2006) 266-268

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>J. Kiko: Nucl. Instr. A 460 (2001) 272-277

 $<sup>^4 \</sup>rm M.$  Wojcik, W. Wlazlo: A high-sensitiv scintillation chamber for radon in gas, Nucl. Instr. and Meth. A 345 (1994) 351-355

#### 3.3.4 Vergleich der verschiedenen Meßmethoden

Die empfindlichste, der hier vorgestellten Meßmethoden für Radon in Gasen, ist die mit Zählrohren. Die Anreicherung ermöglicht zwar hochempfindliche Messungen (im Bereich von  $\sim \mu Bq/m^3$ ), ist aber sehr zeitaufwendig und deshalb zum Online-Monitoring ungeeignet. Sie wird hauptsächlich zur Qualitätskontrolle hochreiner Gase, Reinigungstests etc. verwendet.

Die elektrostatischen Kammern können aufgrund ihres niedrigen Untergrundes und ihres großen Volumen, wie bereits erwähnt, für hochempfindliches Online-Monitoring eingesetzt werden. Die Anwendungsgebiete sind z.B. Online-Monitoring in clean benches, Reinräumen, etc. Wegen der benötigten Hochspannung sollte man die Proben vorher trocknen. Die Sammeleffizienz kann für verschiedene Gase oder Gasgemische auch etwas unterschiedlich sein (Neutralisationseffekte). Elektrostatischen Kammern ermöglichen Messungen im Bereich von  $\sim 1 \text{mBq/m}^3$ 

Lucaskammern sind schon lange Zeit bekannt und werden für weniger empfindliches Online-Monitoring verwendet. Die Radonkonzentration kann im Bereich von  $Bq/m^3$  gemessen werden, also 3 Größenordnungen über den elektrostatischen Kammern. Obwohl ihre Empfindlichkeit niedrig ist, findet die Lucaskammer viele Anwendungsmöglichkeiten wie beispielsweise Radonmonitoring in Untergrundlaboren, der Raumluft, in Reinräumen usw. Ihr großer Vorteil liegt in ihrer Unempfindlichkeit gegenüber der Gaszusammensetzung, in ihrer Stabilität und in ihrer einfachen Handhabung. Nähere Details werden in Kap. 4 beschrieben. Ein Vergleich der 3 Methoden bzgl. ihrer Empfindlichkeiten ist in Tab. 3.3 zusammengefaßt.

	Meßbare Konzentration in $N_2$
Proportionalitätszählrohr	$0.5 \ \mu Bq/m^3$ (Nach der Anreicherung)
Elektrostatische Kammer	$1 \text{ mBq/m}^3$ (Online-Monitoring)
${ m Lucaskammer}$	$0.5 \ \mathrm{Bq/m^3}$ (Online-Monitoring)

Tabelle 3.3: Vergleich der Sensitivitäten verschiedener Meßmethoden für Radon

# Kapitel 4

# Lucaskammern

# 4.1 Allgemeines

Lucaskammern allgemein sind eine Untergruppe der Szintillationsdetektoren zur Radonmessung in Gasen. Szintillationsdetektoren gehören zu den gebräuchlichsten Detektoren in der Kern- und Teilchenphysik. Sie bestehen aus einem Szintillatormaterial, das mit einem Photomultiplier (PM) verbunden ist. Die ersten wurden schon zu Beginn des 20. Jahrhundert gebaut. Man hat damals die Szintillationen mit bloßem Auge beobachtet. Ab den 1940er Jahren wurden sie dann durch die Erfindung des PM verbessert. Die Energie von Teilchen, die zum Szintillator gelangen, wird dort in Lichtblitze umgewandelt. Diese Lichtblitze werden vom Photomultiplier in elektrische Signale umgewandelt. Die Signale werden dann verstärkt und ausgewertet.

Lucaskammern sind hohle Kammern, die im Innern mit einem Szintillatormaterial beschichtet sind. Als Baumaterial wird hauptsächlich Edelstahl verwendet. Lucaskammern können je nach Größe, mit einem oder zwei Photomultipliern verbunden werden. Bei größeren Kammern muß man die Ausbeute für  $\alpha$ - Teilchen erhöhen indem man zusätzlich ein paar mit Szintillationsmaterial beschichtete Platten in die Kammer einbaut. Durch die Platten wird erreicht, daß mehr  $\alpha$ -Teilchen, trotz ihrer begrenzten Reichweite im Gas bei normalerweise 1 atm Druck, zum Szintillator gelangen können. Dadurch wird aber auch der Untergrund der Kammer erhöht, da der hauptsächlich verwendete Szintillator ZnS(Ag) selbst viel <sup>226</sup>Ra enthält und somit Radon emaniert. Das verwendete Fenster (siehe Abb. 4.1) zwischen Kammer und Photomultiplier besteht aus normalem Glas. Hier ist der Photomultiplier nicht direkt mit dem Szintillator verbunden, sondern er sieht das ZnS(Ag) durch das Fenster. Da ZnS(Ag) für das Szintillationslicht undurchsichtig ist, ist das Fenster unbeschichtet. Lucaskammern haben Volumina von 5 cm<sup>3 1</sup> bis zu mehreren Litern<sup>2</sup>. Es ist nicht möglich die drei  $\alpha$ -Zerfälle der Radonzerfallskette mit der Kammer zu unterscheiden. Sie besitzen zwar unterschiedliche Energien, allerdings hängt die Energie der

 $<sup>^1\</sup>mathrm{L.S.}$  Quindos-Poncela et al.: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 512 (2003) 606–609

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>M. Wojcik, W. Wlazlo: A high-sensitiv scintillation chamber for radon in gas, Nucl. Instr. and Meth. A 345 (1994) 351-355



Abbildung 4.1: Querschnitt durch eine Lucaskammer

 $\alpha$ -Teilchen beim Auftreffen auf den Szintillator von ihrem zurückgelegten Weg in Luft (oder anderem zu messendem Gas) ab. Die Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen in Luft beim <sup>222</sup>Rn-Zerfall (5,5 MeV) liegt bei 4,2 cm , beim <sup>218</sup>Po-Zerfall (6,0 MeV) bei 4,8 cm und beim <sup>214</sup>Po-Zerfall (7,3 MeV ≈ 7,5 MeV) bei 6,8 cm.

#### 4.1.1 Verwendetes Szintillatormaterial bei Lucaszellen

In Lucaskammern wird hauptsächlich mit Silber dotiertes Zinksulfid (ZnS(Ag)) als Szintillator verwendet. Es erlaubt höchst effiziente Detektierbarkeit von  $\alpha$ -Teilchen. ZnS(Ag) ist ein polykristallines, weißes Pulver, das, in Ethylen gelöst, auf die Kammerwände bzw. Platten aufgetragen werden kann. Das Emissionsmaximum von ZnS(Ag) liegt bei einer Wellenlänge von 450 nm. In diesem Bereich ist auch die Quanteneffizienz des Photomultipliers maximal. Die Schichtdicke ist für Glasapparatur der <sup>222</sup>Rn-Zerfallskette optimiert und beträgt typischerweise 0,04-0,05 mm. Elektronen deponieren in ZnS(Ag) bei dieser Dicke nur sehr wenig Energie,  $\gamma$ -Strahlung wird praktisch nicht detektiert, was vorteilhaft ist, wenn man  $\alpha$ -Teilchen (von Rn- und Po-Isotopen) nachweisen will. Die Reichweite von z.B. 5 MeV- $\alpha$ -Teilchen in ZnS beträgt 10 mg/cm<sup>2</sup>, was einer Dicke von 0,02 mm entspricht. Die normalerweise verwendeten 0,05 mm sind also genug um alle  $\alpha$ -Teilchen zu stoppen. Die maximal verwendbare Dicke beträgt 25 mg/cm<sup>2</sup>, also 0,06 mm, weil durch Auskristallisieren von ZnS(Ag) die Oberfläche undurchlässig für sichtbares Licht wird, also genau in dem Bereich, in dem das Emissionsmaximum liegt. Die wichtigsten Materialkonstanten von ZnS(Ag) sind in Tab. 4.1 zusammengefaßt.

Dichte	$4,09 \mathrm{~g/cm^3}$
Emissionsmaximum	$450 \mathrm{~nm}$
Abklingzeit des Szintillationslichts	110  ns
Brechungsindex	2,36
Lichtausbeute bzgl Anthrazen	300~%
unterer Welllenlängen Abriß	330  nm

Tabelle 4.1: Materialkonstanten von ZnS(Ag)

#### 4.1.2 Untergrund bei Lucaskammern

Der Untergrund einer neuen Lucaszelle kommt zum einen vom Szintillator selbst, da ZnS(Ag) (wie schon erwähnt) ziemlich viel <sup>226</sup>Ra enthält und Radon emittiert, von kosmischer Strahlung, beispielsweise Myonen und ( $\alpha$ , n)-Reaktionen. Ist eine Lucaskammer länger in Gebrauch steigt ihr Untergrund, weil das Radon in der Kammer zum langlebigen <sup>210</sup>Pb (22,3 a) zerfällt, das sich in der Kammer anreichert. Dieses Blei zerfällt zu <sup>210</sup>Po, das wieder ein  $\alpha$ -Strahler ist. Durch diese  $\alpha$ -Strahler nimmt der Untergrund ständig zu. Der Untergrund einer Lucaskammer liegt typischerweise zwischen 0,2-0,5 cpm. Für die speziellen Lucaskammern, wie sie von der SNO-Kollaboration entwickelt wurden (5 cm<sup>3</sup> LK, aus ultrareinem Material), ist die Untergrundrate auf 3 cpd (counts/day)<sup>3</sup> reduziert worden. Das ist fast mit dem Untergrund der Proportionalzählrohre vergleichbar (0,3-1 cpd).

#### 4.1.3 Effizienz einer Lucaskammer

Die Effizienz eines Detektors gibt das Verhältnis der detektierten Teilchen zu den emittierten Teilchen einer Quelle an. Die absolute Effizienz ist definiert als

$$\epsilon_{tot} = \frac{\text{Anzahl der detektierten Teilchen}}{\text{Anzahl der emittierten Teilchen}}$$

Die absolute Effizienz läßt sich allgemein als Produkt von intrinsischer und geometrischer Effizienz schreiben.

$$\epsilon_{tot} = \epsilon_{int} \epsilon_{geom}$$

Die intrinsische Effizienz ist dabei definiert als

$$\epsilon_{int} = \frac{\text{Anzahl der detektierten Teilchen}}{\text{Anzahl der Teilchen, die den Detektor}^4 \text{ erreichen}}$$

Die intrinsische Effizienz hängt hauptsächlich vom Detektormaterial, der Art der Teilchen und der Teilchenenergie ab.

Die geometrische Effizienz läßt sich schreiben als:

$$\epsilon_{geom} = \frac{\Omega}{4\pi}$$

Dann ergibt sich für die absolute Effizienz:

$$\epsilon_{tot} = \epsilon_{int} \frac{\Omega}{4\pi}$$

 $\Omega$  ist der Raumwinkel, in dem emittierte Teilchen den Detektor erreichen. Bei einer Lucaskammer kann  $\epsilon_{qeom}$  als das Verhältnis der Szintillatoroberfläche zu einer unbeschichteten

 $<sup>^3{\</sup>rm Quindos}\mbox{-Poncela et al.: An improved scintillation cell for radon measurements, Nucl. Instr. and Meth. A 512 (2003) 606–609$ 

#### 4.1. ALLGEMEINES

Fläche (normalerweise die Fläche der Glasscheibe zwischen Photomultiplier und Kammer) interpretiert werden (ohne Berücksichtigung anderer Effekte, wie Energieverluste der  $\alpha$ -Teilchen im Gas, mit anderen Worten, man geht davon aus, daß alle entstandenen  $\alpha$ -Teilchen die mit Szintillatormaterial beschichtete sowie die unbeschichtete Oberfläche erreichen und der Photomultiplier das Licht sehen kann).

Allgemein hängt die Detektoreffizienz einer Lucaskammer vom Gasdruck, der Gaszusammensetzung (unterschiedliche Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen), der Geometrie der Kammer (Totvolumen des Ein- und Auslasses), Quanteneffizienz der Photomultiplier usw. ab. Diese Effekte stecken normalerweise schon in der absoluten Effizienz und müssen deshalb nicht extra diskutiert werden. Maßgeblichen Einfluß auf  $\epsilon_{tot}$  hat dagegen der Gasdruck, deshalb wird die Kammer immer bei 1 atm kalibriert und betrieben.

#### Berechnung der Effizienz

Ich definiere hier die Formel, die es ermöglicht die Effizienz der Lucaskammer aus einer Kalibrationsmessung zu bestimmen. Ich gehe davon aus, daß sich zur Zeit  $t_0$  eine bekannte Radonaktivität  $A_0$  in der Kammer befindet. Am Zähler werden in einem bestimmten Zeitintervall  $\Delta t$  N Ereignisse gezählt. Diese bestehen aus der gemessenen Untergrundzählrate und den  $\alpha$ -Zerfällen von <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po. Es gilt also:

$$N = n_{unt}\Delta t + \epsilon_{222}{}_{Rn}\int_{\Delta t} A_{222}{}_{Rn}(t)dt + \epsilon_{218}{}_{Po}\int_{\Delta t} A_{218}{}_{Po}(t)dt + \epsilon_{214}{}_{Po}\int_{\Delta t} A_{214}{}_{Po}(t)dt$$

$A_{Rn}(t), A_{Po}(t)$	:	Aktivitäten der beteiligten Nuklide (siehe Kap. 3.2.3 Lösungen 3.2)
$\Delta$ t=t <sub>2</sub> -t <sub>1</sub>	:	Messintervall
$t_1$	:	Beginn einer Messung
$t_2$	:	Ende einer Messung
$t_0$	:	Zeitpunkt zu dem die Kammer mit dem Radonstandard gefüllt wurde
n <sub>unt</sub>	:	Untergrundzählrate in cpm (counts per minute)

Wie bereits erwähnt sind alle Radontöchter Schwermetalle, die sich nach ihrer Entstehung sehr schnell auf Oberflächen anlagern. In der Lucaskammer gibt es deshalb die Situation, daß Radon im Gas bleibt und sich im ganzen Detektorvolumen verteilt, während die beiden Poloniumisotope an den Wänden sitzen. Man kann annehmen, das für beide Poloniumisotope die Nachweiseffizienzen (annähernd) gleich (beide lagern sich an den Wänden an), aber kleiner als die für Radon sind (geometrischer Effekt) Man kann im Prinzip schreiben:

$$\epsilon_{222Rn} \ge \epsilon_{218Po} = \epsilon_{214Po}$$

Da es unmöglich ist zwischen den Zerfällen der verschiedenen Isotope zu unterscheiden, ist nur die absolute Anzahl der Zerfälle aus der Zerfallskette von Interesse. Unter der Annahme, daß es eine sogenannte effektive Effizienz  $\epsilon_{eff}$  gibt, kann man jetzt für den

 $\alpha$ -Nachweis annehmen, daß

$$\epsilon_{Po} = \epsilon_{Rn} = \epsilon_{eff} = \epsilon$$

Dann gilt:

$$N = n_{unt} \Delta t + \epsilon \int_{\Delta t} (A_{222}{}_{Rn}(t) + A_{218}{}_{Po}(t)dt + A_{214}{}_{Po}(t))dt$$

Da die Integrationen der Lösungen 3.2 sehr kompliziert sind, kann man die Tatsache ausnutzen, das Radon mit den beiden Poloniumisotopen nach 3 Stunden im Gleichgewicht ist (siehe Kap.3.2.2), man kann also schreiben:

$$A_{222}Rn(t) + A_{218}Po(t)dt + A_{214}Po(t) = 3A_{222}Rn(t) = 3A_0e^{-\lambda_0 t}$$

Daraus folgt:

$$N = n_{unt}\Delta t + 3\epsilon \int_{\Delta t} A_0 e^{-\lambda_0 t} dt$$
$$= n_{unt}\Delta t + 3\epsilon \frac{A_0}{\lambda_0} (e^{-\lambda_0 t_1} - e^{-\lambda_0 t_2})$$

Löst man die letzte Gleichung nach  $\epsilon$  auf erhält man für die Effizienz folgende Formel:

$$\epsilon = \frac{(N - \Delta t n_{unt})\lambda_0}{3A_0(e^{-\lambda_0 t_1} - e^{-\lambda_0 t_2})} \tag{4.1}$$

Die Annahme des Gleichgewichts führt zur der Vorraussetzung, daß die Kalibrationsmessungen erst 3 h nach dem Befüllen der Kammer mit Radon begonnen werden. Gl. 4.1 ist bei einem früheren Beginn ungültig.

#### 4.1.4 Kalibrierung einer Lucaskammer

Unter Kalibration versteht man gewöhnlich die Messung der absoluten Effizienz unter Verwendung einer Quelle mit bekannten Parametern (Aktivität). Die typische Prozedur zur Kalibration einer Lucaskammer wird weiter unten beschrieben. Bevor man eine Lucaskammer kalibriert, muß ihr Untergrund  $(n_{unt})$  gemessen werden. Die Lucaskammer wird mit Stickstoff bei konstantem Fluß gespült (Reinheit 5,0). Der Radongehalt des verwendeten Stickstoffs liegt unterhalb der Meßgrenze der Kammer. Der Untergrund wird für verschiedene Diskriminatorschwellen gemessen. Dies dauert mehrere Tage. Danach bringt man Radon aus einer Radiumlösung mit bekannter Aktivität in die Kammer. Die Quelle ist 2 Wochen davor mit N<sub>2</sub> gespült worden um das "alte" Radon zu entfernen und damit sich neues bilden kann. Die derzeitige Aktivität läßt sich mit folgender Formel genau berechnen:

$$A_{Rn} = A_{Ra}(1 - e^{-\lambda_0 t})$$

t ist die Zeit seit der letzten Spülung.

#### 4.1. ALLGEMEINES

#### Einbringen von Radon in die Kammer

Die typische Verbindung zwischen Quelle und Kammer ist in Abb. 4.2 zu sehen. Zuerst wird die Kammer und der Verbindungsschlauch zur Radiumlösung mit einer Vorpumpe abgepumpt (alle Ventile an der Flasche (außer V2) mit der Lösung sind zu!). Dann schließt man V5 und schaltet die Pumpe ab. In der Flasche ist normalerweise 1 atm N<sub>2</sub>. Nun wird das Ventil zur Kammer (V3) vorsichtig geöffnet, so daß Druckausgleich erreicht wird (Aufbau siehe Abb.4.2). Sobald keine Gasblasen mehr aufsteigen wird das Ventil von der Gasflasche kommend langsam und vorsichtig geöffnet. Radon wird aus der Radiumlösung mit Stickstoff in die Lucaskammer gespült, bis ein Druck von 1 atm herrscht. Sobald dies geschehen ist wird die Kammer geschlossen, dies ist die Zeit  $t_0$ .



Abbildung 4.2: Kalibrationsaufbau

Das Volumen der Flasche (ca 100 ml), in dem sich die Radiumlösung (ca. 4 ml) befindet, ist immer viel kleiner als das Volumen der benutzten Lucaskammer. Dies stellt sicher, daß das gesamte Radon der Quelle in die Kammer gelangt. Ist das komplette Volumen des Gefäßes mit der Eichlösung einmal ausgetauscht worden, so ist der Radongehalt dieses Gefäßes um den Faktor  $\frac{1}{e}$  abgefallen. Da das Volumen ca. 10 mal ausgetauscht wird hat man praktisch 100% Radon der Quelle übertragen. Um den Radonverlust möglichst gering zu halten, sollte man auch die Verbindung zwischen Quelle und Kammer so kurz wie möglich machen. Zur Zeit  $t_0$  befindet sich nur Radon in der Kammer, das nun zerfällt. Für unsere Messung sind nur die kurzlebigen  $\alpha$ - Strahler von Bedeutung, also <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po, die nach und nach gebildet werden und dann zerfallen (siehe Kap 3.2.2). Nach ca. 3 h sind diese Nuklide im Gleichgewicht und die Effizienzmessungen können beginnen.

### 4.1.5 Messung der Radonkonzentration in Gasen mit Lucaskammern

Für die Radonkonzentration gilt allgemein:

$$C = \frac{A}{V}$$
 A: gemessene Aktivität; V: Volumen der Probe/ Kammer

Im Normalbetrieb ist die Kammer mit Gas gefüllt, das gemessen werden soll, und verschlossen. Die Meßprozedur läuft folgendermaßen ab:

Die Kammer wird 3 h mit  $N_2$  gespült um die "alte Probe" zu entfernen und damit die Radontöchter zerfallen können (siehe Kap. 3.2.2). Falls notwendig (nach längerem Gebrauch) kann man die Untergrundmessungen auch später machen. Danach pumpt man die Kammer ab und bringt eine bestimmte Probe eines Gases hinein. Der Druck, bei dem gemessen wird, sollte derselbe sein wie bei der Kalibration, sonst muß man die nun folgende Korrektur machen.

$$\epsilon(d) = \epsilon_0 * e^{b(d_N - d)}$$

Hierbei ist  $\epsilon_0$  die Effizienz bei Normalbedingungen  $d_N$  ist die Dichte  $\left(\frac{g}{cm^3}\right)$  des Gases unter Normalbedingungen, d ist die momentane Dichte  $\left(\frac{g}{cm^3}\right)$  und b ist ein experimentell zu bestimmender Parameter in  $\frac{cm^3}{g}$ . Man wartet 3 h, damit sich sich Radon und seine Tochternuklide im Gleichgewicht befinden

Man wartet 3 h, damit sich sich Radon und seine Tochternuklide im Gleichgewicht befinden und startet dann die Messung.

Für die Effizienz gilt (siehe Formel 4.1):

$$\epsilon = \frac{(N - \Delta t n_{unt})\lambda_0}{3A_0(e^{-\lambda_0 t_1} - e^{-\lambda_0 t_2})}$$

Löst man nun diese Gleichung nach  $\mathrm{A}_0$   $^5$  auf folgt:

$$A_0 = \frac{(N - n_{unt}\Delta t)\lambda_0 e^{\lambda_0 t_1}}{3\epsilon(1 - e^{-\lambda_0\Delta t})}$$

 $\Delta t = t_2 - t_1$  ist die Meßdauer und  $t_1$  ist der Beginn der Messung. Dividiert man diese Gleichung noch durch das Volumen V der Probe, so erhält man die Anfangskonzentration von Radon in der zu messenden Probe.

$$C = \frac{(N - n_{unt}\Delta t)\lambda_0 e^{\lambda_0 t_1}}{3\epsilon V(1 - e^{-\lambda_0\Delta t})}$$

#### Onlinemonitoring

Falls man beispielsweise Radon in Luft oder anderen Gasen messen will, kann die Lucaskammer auch im Online-Monitoring-Betrieb arbeiten. Bei dieser Methode wird die Kammer

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>A<sub>0</sub> ist jetzt die Anfangsaktivität der zu messenden Probe

ständig gespült. Hierbei wird angenommen, daß die Radonkonzentration in dem zu messenden Gas konstant ist (C(t)=konst, in der Praxis bedeutet das, daß die Änderungenlangsam sind). Es gilt:

$$N = n_{unt}\Delta t + 3\epsilon V \int_{\Delta t} C(t)dt \qquad (4.2)$$
$$= n_{unt}\Delta t + 3\epsilon V C \int_{\Delta t} dt$$
$$= n_{unt}\Delta t + 3\epsilon V C \Delta t$$
$$\iff \frac{n - n_{unt}}{3\epsilon V} = C$$

N ist die Anzahl der Ereignisse in der Zeit  $\Delta t$  und  $n = \frac{N}{\Delta t}$  ist die Zählrate.

Wie gesagt gilt diese Herleitung aber nur unter der Annahme, daß C(t)=konst und das Radon in der Kammer immer im Gleichgewicht mit seinen Tochternukliden ist. Das bedeutet in der Praxis, daß sich die Radonkonzentration in einer Zeitskala von 3 h nicht ändert um Gleichgewicht zu gewährleisten. Der Gasfluß sollte möglichst niedrig sein. Wie man sehen kann, gibt es beim Online-Monitoring nur eine begrenzte Genauigkeit, wenn man obige Formel benutzt. Wenn sich die Radonkonzentrationen in kürzerer Zeit als 3 h ändern, erhält man ungenaue Ergebnisse. Falls es erforderlich ist die Radonkonzentration genauer zu bestimmen, sollte man die Standardmethode anwenden.

# 4.2 Die verwendeten Lucaskammern

#### 4.2.1 Kleine Kammer

Im Rahmen meiner Diplomarbeit habe ich eine kleine Lucaskammer mit einem Volumen von 0,7 l in Betrieb genommen. Sie dient jetzt zum Online-Monitoring von Radon aus der Luft im Low-Level Lab (LLL) des MPIK/HD. Ihr Aufbau ist der selbe wie in Abb. 4.1. Die Kammer besteht aus Edelstahl und das verwendete Szintillatormaterial ist ZnS(Ag).

#### Elektronik der kleinen Lucaskammern

Die folgenden Elektronikeinheiten wurden für den Betrieb der kleinen Kammer benutzt:

Photomultiplier (PM) Vorverstärker (PA) Hochspannung (HV) Hauptverstärker (AMP) Single-Channel Analyzer (SCA) Zähler



Abbildung 4.3: Aufbau der Elektronik für die kleine Lucaskammer (PM: Photomultiplier, PA: Vorverstärker, AMP: Hauptverstärker, HV: Hochspannung, SCA: Single-Channel Analyzer, Counter: Zähler)

Alle Teile waren NIM-Standard und in einem Standard NIM-Crate untergebracht (außer dem Vorverstärker). Eine schematische Ansicht ist in Abb. 4.3 zu sehen. Unten folgt eine nähere Beschreibung der Geräte und ihrer Funktion.

**Photomultiplier** Der Photomultiplier wandelt Szintillationslicht in elektrische Signale um. In ihm entstehen durch Photoeffekt freie Elektronen, die über verschiedene Dynoden durch Hochspannung beschleunigt werden und dabei weitere freie Elektronen erzeugen. Diese Kaskade wird dann als elektrischer Strom detektiert und dient als Signal für den Vorverstärker. Der eingesetzte Photomultiplier und der Szintillator sind aufeinander abgestimmt. Der Photomultiplier ist ein Standardgerät der Firma Nuclear Enterprises/Edinburgh. Er arbeitet mit negativer Hochspannung und hat nur einen BNC-Ausgang für Vorverstärker und Hochspannung.

**Vorverstärker** Der Vorverstärker dient hauptsächlich dazu die Impedanz für den Photomultiplier und den Rest der Elektronik anzupassen. Außerdem besteht die Aufgabe eines Vorverstärkers darin, die schwachen Signale vom Detektor zu verstärken. Um das Rauschen so gering wie möglich zu halten muß der Vorverstärker so nahe wie möglich am Photomultiplier angeschlossen sein, d.h. das Kabel sollte so kurz wie möglich sein, um den Einfluß elektromagnetische Felder und die Kapazität des Kabels zu minimieren.

Es gibt drei Typen von Vorverstärkern: spannungssensitive, stromsensitive und ladungssensitive. Wir verwenden einen ladungssensitiven Vorverstärker. Er ist mit dem Photomultiplier über ein kurzes BNC-Kabel verbunden. Das Kabel versorgt den Photomultiplier mit Hochspannung und leitet die Signale zum Vorverstärker. Der Vorverstärker wurde vom MPIK/HD gebaut. Ein typisches Signal von einem  $\alpha$ -Teilchen (bei einer Hochspannung von 600V am Photomultplier) ist in Abb. 4.4 zu sehen.



Abbildung 4.4: Vorverstärkersignal mit deutlichem exponentiellem Abfall (Signalhöhe: 530 mV, Halbwertsbreite: 23  $\mu$ s, Signalanstieg: 440 ns, Signalabfall: 47  $\mu$ s, Hochspannung 600 V)

**Hauptverstärker** Die Aufgabe des Hauptverstärkers besteht darin, das Signal vom Vorverstärker zu verstärken. Dabei wird das Signal (normalerweise) auch geformt. Das Pulseshaping ist aber in unserem Fall nicht so wichtig, weil die Zählraten relativ niedrig ( $\sim 1$  cps) sind. Desweiteren ist eine strenge Linearität von Eingangs- und Ausgangsamplitude erforderlich. Der verwendete Verstärker ist ein doppelter Linearverstärker und wurde hier im Haus gebaut.

Single-Channel Analyzer (SCA) Der SCA wird hier als Diskriminator benutzt. Man stellt hier eine Schwellenspannung ein, und die Signale, die kleiner als die eingestellte Schwelle sind, werden unterdrückt (also nicht weitergeleitet). Im Unterschied zum reinen Diskriminator besteht weiter die Möglichkeit ein Energiefenster zu setzen. Dieses Fenster läßt alle Signale durch, die höher als die Schwelle aber niedriger als ein oberes Limit sind. Normalerweise kann man die Fenstergröße entweder zwischen 1 V oder 10 V wählen (manchmal auch noch 5 V), hier ist die Fenstergröße maximal (10 V). Das Ausgangssignal des SCA ist ein standardisiertes Rechtecksignal (in unserem Fall NIM-Standard, d.h. die Signale haben eine Höhe von 2 V und eine Breite von ca. 50  $\mu$ s).

Man kann mit einem SCA auch Energiespektren aufnehmen. Dazu wird das Fenster ( $\Delta E$ ) möglichst klein gewählt und zusammen mit verschiedenen Schwelleneinstellungen (E) variert. Bei einer Messung werden nur Signale gezählt, die in einem bestimmten Intervall  $E+\Delta E$  liegen und dadurch erhält man dann ein Energiespektrum. Der eingesetzte SCA ist ein Timing SCA der Firma ORTEC.

Zähler Der Zähler dient dazu, die Signale, die vom SCA zu seinem Eingang kommen, zu zählen und sie dann auf einem Display anzuzeigen oder sie direkt an einen Computer weiterzuleiten. Das Gerät stammt von der Firma ORTEC.

**Hochspannungsgerät** Die Aufgabe des Hochspannungsgerätes besteht darin, die Hochspannung (bei der kleinen Kammer 600 V) für den Photomultiplier zu liefern. Das Hochspannungsgerät wurde von der Firma ORTEC hergestellt.

**Voreinstellung der Elektronik** Nach den typischen Funktionsbedingungen, die nach der Kalibration der Lucaskammer (siehe Kap 4.1.4) gewählt wurden, wird der Photomultiplier mit einer Hochspannung von 600 V betrieben. Die Hochspannung wurde gewählt um ein optimales Verhältnis von Signal und Rauschen zu gewährleisten. Die Kammer wurde mit Radon aus der Quelle gefüllt und die Signale des Vorverstärkers auf dem Oszilloskop beobachtet. Die Hochspannung wurde so eingestellt, daß die Signale im ~1 V Bereich liegen, was bei 600 V der Fall war. Größere Amplituden der  $\alpha$ -Signale könnten nach der Verstärkung verlorengehen, da Signale über 10 V nicht durch das maximale Energiefenster ( $\Delta E_{max} = 10 V$ ) des SCA hindurchgehen. Die Signale aber trotzdem höher als 10 V (große Signale vom Vorverstärker) und werden nicht gezählt. Es gehen dadurch aber nur ca. 5% verloren.

#### Untergrund der kleinen Kammer

Um den Untergrund messen zu können, sollte die Kammer vorher 3 h mit Stickstoff gespült werden (ca. 0,25-0,5 l/min), um, wie bereits erwähnt, das Radon hinauszuspülen und um die Tochterkerne zerfallen zu lassen, ohne das neue gebildet werden. Der Untergrund wird für verschiedene Diskriminatorschwellen gemessen. Er sollte für möglichst viele Schwelleneinstellungen gemessen werden, was die spätere Kalibration vereinfacht, da dann dort für alle möglichen Schwellen der Untergrund schon bekannt ist. Die Untergrundmeßwerte sind in Abb. 4.5 aufgetragen.

Für niedrige Schwellenwerte ist der Untergrund aufgrund von elektronischem Rauschen, Elektronen- oder Myonenuntergrund im Bereich einiger cpm. Bei höheren Schwellen (2,5-3 V) nimmt der Untergrund Werte im Bereich von 0,3-0,5 cpm an. Bei der Messung wurde nur der statistische Fehler berücksichtigt. Darum ist die Meßdauer so gewählt worden, daß die Anzahl der abgelesenen Ereignisse für alle Schwellen in derselben Größenordnung liegt. Für den Fehler ( $\Delta n$ ) der Zählrate gilt:

$$\Delta n = \frac{\Delta N}{t}$$

 $\Delta N$  ist die Standardabweichung der Ereignisse und  $\Delta t$  die Meßdauer. Die optimale Einstellung ermöglicht nur die Erfassung von  $\alpha$ -Teichen, beispielsweise <sup>210</sup>Po.



Abbildung 4.5: Untergrund der kleinen Kammer, gemessen für verschiedene Diskriminatorschwellen

#### Kalibration der kleinen Kammer

Nach der Untergrundmessung habe ich die Effizienzmessung durchgeführt. Dazu habe ich wie oben beschrieben <sup>222</sup>Rn aus der Eichlösung in die Kammer gebracht. Die Eichlösung liefert in Sättigung eine Aktivität von  $A_0 = (197 \pm 5)$  mBq (zur Kalibration wurde meist die gesättigte Lösung verwendet, anderenfalls wurde die genaue Aktivität berechnet  $(A(t) = A_0(1 - e^{-\lambda_0 t}))$ . Der Druck in der Kammer war für die Kalibration p=1 atm. 3 Stunden nach Füllung der Kammer mit Radon wurden die Messungen gestartet. Die Anzahl der Ereignisse wurde so gewählt, daß der statistische Fehler nicht mehr als 5-7% beträgt. Die Effizienz wurde für verschiedene Diskriminatorschwellen gemessen um verschiedene Effizienz-Untergrund-Parameter zu erhalten.Mit dem zuvor gemessenen Untergrund ergaben sich dann die Effizienzen aus der Formel 4.1. In Abb. 4.6 sind die verschiedenen Effizienzen gegen den Untergrund aufgetragen. Für den Fehler der Effizienz gilt

$$\Delta \epsilon = \epsilon \sqrt{\frac{(\Delta n)^2 + (\Delta n_{unt}^2)}{(n - n_{unt})^2} + (\frac{\Delta A_0}{A_0})^2}$$

In dieser Formel stecken die Fehler der Zählrate ( $\Delta n$ ), der Untergrundrate ( $\Delta n_{unt}$ ) und der relative Fehler der Eichlösung, sowie die gemessenen Zählraten (n) und die Untergrundrate ( $n_{unt}$ ).

Die gemessenen Effizienzen liegen alle in einem Bereich von 50-60% bei einer Untergrundzählrate zwischen 0,1-0,5 cpm. Bei höheren Effizienzen nimmt der Untergrund stark zu (kleinere Schwellenwerte), wodurch die Sensitivität des Detektors schlechter wird. Bei sehr niedrigem Untergrund wird die Effizienz der Kammer zu klein. Optimal für Lucaskammern dieser Art ist eine Effizienz zwischen 60-70% bei einem Untergrund von ca. 0,3-0,5 cpm (siehe nächsten Abschnitt).



Abbildung 4.6: Die verschiedenen gemessenen Effizienzen mit ihrem jeweiligen Untergrund

Minimal Meßbare Aktivität (MDA) Jetzt muß man entschieden, für welche Parameter die Kammer am besten arbeitet. Sie sollte möglichst geringe Radonkonzentrationen messen können, d. h. sie muß eine hohe Sensitivität besitzen. Um nun die Sensitivität der Kammer angeben zu können, kann man z. B. die sogenannte Minimale Meßbare Aktivität (MDA, engl.) berechnen.

Die Minimal Meßbare Aktivität  $(A_0(0))$  läßt sich nach folgender Formel berechnen<sup>6</sup>:

$$A_0(0)_{min} = \frac{J}{2\epsilon\alpha\delta^2} (1 + \sqrt{1 + 4\delta^2(\Delta t n_{unt} + \Delta t^2\sigma_{n_{unt}}^2)/J^2})$$
(4.3)

J ist der sogenannte Lucasfaktor. Er ist eine komplizierte Funktion der Effizienz der Kammer, der Zeit  $t_1$  (Zeit zwischen Füllung und Meßbeginn) und der Meßdauer  $\Delta t$ . J wurde eingeführt, weil nicht alle gemessenen Ereignisse statistisch unabhängig voneinander sind, der Fehler der Ereignisse N ist nicht einfach  $\sqrt{N}$ . Für  $\alpha$ -Teilchen in der Radonkette nimmt J nur Werte zwischen 1 und 3 an.

 $\alpha$  ist die integrierte Summe über die Bateman-Lösungen (Kap. 3.2.3 Gl. 3.2) von <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po.  $\alpha$  ist abhängig von der Zerfallskonstanten  $\lambda_i$ , der Meßdauer  $\Delta t$  und dem Meßbeginn t<sub>1</sub>.  $\alpha$  und J werden numerisch berechnet.

 $\delta$  ist die gewünschte Genauigkeit, die ich 30% gewählt habe.

 $\mathbf{n}_{unt}$ ist die Untergrundrate der Kammer und  $\sigma_{n_{unt}}$ ist die Standardabweichung des Untergrundes.

Die durch Gl. 4.3 beschriebene Kurve besitzt ein absolutes Minimum. Dieses Minimum ist die gesuchte MDA. Normalerweise wird eine sehr lange Meßdauer benötigt um dieses Minimum zu erreichen. Es besteht die Möglichkeit die maximale Meßzeit festzulegen und dann mit festem  $\Delta t$  die MDA zu bestimmen.

Ich habe die absolute MDA und die MDA nach einer Meßzeit von  $\Delta t=1000$  min berechnet. Bei der Berechnung von  $\alpha$  und J wurde  $t_1=3$  h vorrausgesetzt (Beginn der Messungen nach 3 Stunden). Die Ergebnisse mit dem jeweiligen Untergrund und der dazugehörigen Effizienz sind in Tab. 4.3 aufgelistet, außerdem habe ich die Meßdauer angegeben, die benötigt wird um die MDA zu erreichen.

Untergrund [cpm]	Effizienz [%]	MDA [mBq]	$\Delta$ t [h]	MDA nach $\Delta t = 1000 \text{ min}$
$0,\!27\pm0,\!02$	$49,8 \pm 2,7$	0,9	48,4	1,1 mBq
$0,\!14\pm0,\!05$	$50,6 \pm 4,0$	2,1	20,2	$2,2 \mathrm{~mBq}$
$0,\!27\pm0,\!06$	$52{,}0\pm3{,}2$	2,6	$19,\! 6$	$2,7 \mathrm{~mBq}$
$0,\!37\pm0,\!05$	$63,1\pm3,9$	1,9	$23,\!3$	$2,0 \mathrm{mBq}$
$0,\!43\pm0,\!08$	$61{,}4\pm3{,}8$	2,9	$17,\! 6$	$2,9 \mathrm{mBq}$
$0,\!33\pm0,\!09$	$54,5\pm3,3$	$^{3,6}$	$15,\! 6$	$3,7 \mathrm{~mBq}$
$0,\!30\pm0,\!05$	$58,5\pm2,8$	1,9	23,5	$2,0 \mathrm{mBq}$
$0,24\pm0,02$	$63,7\pm3,0$	0,7	52,2	0,8 mBq

Tabelle 4.2: Die MDA der kleinen Lucaskammer

 $^6\mathrm{M.}$ Wojcik, W. Wlazlo: A high-sensitivity scintillation chamber for radon in gas, Nucl. Instr A 345 (1994) 351-355

Man berechnet nun die MDA für verschiedene Effizienz-Untergrund-Paare (siehe Tab. 4.3). Der niedrigste Wert der MDA ergibt dann die beste Sensitivität. Bei meinen Messungen ist der niedrigste Wert der MDA 0,7 mBq, das entspricht einer minimal meßbaren Konzentration (Volumen 0,7 l) von

$$C_{min} = 1,0 \ Bq/m^3$$

Diesem Wert entspricht eine Effizienz von 63,7 % bei einem Untergrund von 0,24 cpm. Diese Parameter sollten für den Betrieb der Kammer gewählt werden. Die berechneten Parameter und die Einstellungen der Elektronik sind in Tab. 4.3 aufgeführt.

Volumen	0,7 1
Effizienz	$(63,7\pm 3,0)\%$
Untergrundzählrate	${ m n}_{unt}{ m =}~(0,24\pm0,02)~{ m cpm}$
Sensitivität	$\mathrm{C}_{min}{=}~1~\mathrm{Bq/m^3}$
Kalibration	$1~{ m cpm}\equiv 12~{ m Bq/m^3}$
Hochspannung	600 V
Verstärkung	3-fach
Schwelle	0,12 SKT

Tabelle 4.3: Die Parameter der kleinen Lucaskammer

#### Rn-Monitoring im Low-Level Lab (LLL)

Wie bereits erwähnt wurde die Kammer hauptsächlich dazu verwendet, die Radonkonzentration der Luft im LLL des MPIK/HD ständig zu überwachen (siehe Abb. 4.7). Ständige Messungen der Radonkonzentration im LLL haben wegen seiner Nutzung in der Low-Level Ge-Spektroskopie eine hohe Priorität. Große Rn-Konzentrationen können beispielsweise einen Einfluß auf den Untergrund der verwendeten Ge-Spektrometer haben, wodurch die Messungen und Datenanalysen schwieriger werden. Die Lucaskammer ist mit einer Aquariumpumpe verbunden, die die Kammer dauerhaft mit einem konstanten Luftfluß versorgt. Die Pumpe lieferte einen Fluß von ca 500 ml/min. Die Messung wurde zweimal täglich durchgeführt, außer an Wochenenden.

In den Monaten Februar bis Ende März ist zu erkennen, daß die Rn- Konzentration nahezu konstant bei einem Wert von ca. 60  $Bq/m^3$  geblieben ist. Im April sinkt die Rn-Konzentration langsam auf ca. 40  $Bq/m^3$ . Der Anstieg der Konzentration Anfang Mai könnte mit dem Beginn der Umzugs- und Renovierungsarbeiten im Gentner-Labor zusammenhängen, auch die Klimaanlage ist in dieser Zeit ausgefallen (geringerer Luftaustausch). Seit Juli ist die Radonkonzentration ziemlich konstant bei ca. 120  $Bq/m^3$ , also fast um einen Faktor 2 höher als im Frühjahr.

Die Spitzenwerte der gemessenen Konzentration im Sommer können mit der Tatsache im Zusammenhang stehen, das im LAr-Setup, welches zur Zeit im LLL steht, große Rn-Aktivitäten (~kBq Bereich) benutzt wurden um Signalformanalysen der LA-Szintillation zu untersuchen. Radon wurde in LAr gelöst, konnte aber beim Leeren der Apparatur freigesetzt werden (durch Verdampfen des LAr). Die klaren Unterschiede zwischen Sommer und Frühjahr könnten als jahreszeitliche Schwankungen interpretiert werden. Um das zu bestätigen müßten aber auch Langzeitmessungen durchgeführt werden, die ein ganzes Jahr dauern. Die Messungen werden fortgesetzt. Es ist geplant, daß die Datenaufnahme in Zukunft automatisiert wird.



Abbildung 4.7: Verlauf der Rn-Konzentration im LLL in den Monaten Feb. bis Sept. 2006

#### 4.2.2 Große Kammer

Um die Sensitivität einer Lucaskammer noch zu erhöhen besteht die Möglichkeit ihr Volumen zu vergrößern. Aufgrund des größeren Abstandes zum Szintillator (und der beschränkten Reichweite von  $\alpha$ -Teilchen in Luft) benötigt man z. B. zusätzliche, mit Szintillatormaterial beschichtete Platten. Diese Lösung erhöht aber den Untergrund beträchtlich, denn ZnS(Ag) enthält viel <sup>226</sup>Ra und emaniert selbst Radon (Quelle für  $\alpha$ -Teilchen). Um dies zu berücksichtigen, wird ein zweiter Photomultiplier verwendet, der mit dem anderen in Koinzidenz geschaltet wird. Eine solche Lucaskammer habe ich im Laufe meiner Diplomarbeit auch in Betrieb genommen. Sie benutzt ebenfalls ZnS(Ag) als Szintillatormaterial und hat ein Volumen von 6,7 l. Momentan steht sie in der LArGe-Barrack im Gran Sasso um den Radongehalt in Luft zu messen. Als ich die Kammer in Betrieb genommen habe, war sie bereits mit ihrer Elektronik verbunden. Ihr Untergrund war nicht bekannt und sie mußte kalibriert werden. Der schematische Aufbau dieser Kammer ist in Abb 4.8 zu sehen.



Abbildung 4.8: Schematische Darstellung der großen Kammer

#### Elektronik der großen Kammer

Eine schematische Abbildung der verwendeten Elektronik ist in Abb 4.9 zu sehen.



Abbildung 4.9: Schematischer Schaltplan der Elektronik für die große Lucaskammer

Bei der großen Kammer wurden folgende elektronischen Bauteile verwendet:

2 große Photomultiplier (PM) mit integrierten Vorverstärkern

2 Hauptverstärker(AMP) der Firma CANBERRA

- 2 Single-Channel Analyzer (SCA) der Firma CANBERRA
- 1 Koinzidenzeinheit (Coinc) von der Firma CANBERRA
- 1 Zähler (counter), der vom MPIK/HD angefertigt wurde
- Hochspannungsquelle

Beide Spektroskopiereihen waren praktisch identisch, damit sie fast die selben Verzögerungen und dasselbe Rauschen produzieren. Die einzelnen Bauteile wurden in dem Kapitel über die kleine Kammer beschrieben. Die Hochspannung war für beide Photomultiplier identisch und wurde von der selben Einheit verteilt und geliefert. Die Hochspannung wurde auf die gleiche Art und Weise gewählt wie bei der kleinen Kammer und beträgt 630 V.

**Koinzidenzeinheit** Die Koinzidenzeinheit läßt 2 Signale durch, wenn diese zur selben Zeit oder innerhalb eines Zeitintervalls ankommen. In diesem Fall kommen die Signale von 2 Photomultipliern. Die  $\alpha$ -Zerfälle von Radon und Radontöchtern sollten genug Licht produzieren um von den Photomultipliern detektiert zu werden. Andere schwächere Signale oder Elektronikrauschen werden herausgefiltert, da sie meist nur von einem Photomultiplier kommen.

#### Untergrund der großen Kammer

Die Kammer wurde vor der Untergrundmessung 3 h mit  $N_2$  gespült (Fluß: 0,25-0,5 l/min). Das Verfahren, das ich bei der Untergrundmessung angewandt habe, ist im Prinzip dasselbe wie bei der kleinen Kammer.

	PM L	PM R
Schwelle	$0,4  { m SKT}^7$	0,2 SKT
Untergrund	$(35,3 \pm 3,4) \text{ cpm}$	$(62,0 \pm 4,5 \text{ cpm})$
Untergrund mit Koinzidenz	$(3,25 \pm 0,05) \text{ cpm}$	

Tabelle 4.4: Vergleich des Untergrundes mit und ohne Koinzidenz

Zuerst wurde mit einer Messung die Linearität beider Diskriminatorschwellen überprüft. Dazu wurden beide Diskriminatorschwellen auf verschiedene Werte eingestellt und ohne Koinzidenz gemessen (siehe Tab. Vergleich des Untergrundes mit und ohne Koinzidenz). Bei allen weiteren Messungen wurden die beiden Diskriminatorschwellen immer symmetrisch eingestellt (gleiche Einstellungen auf beiden Seiten). Das war möglich, da, wie bereits erwähnt, beide Spektroskopielinien identisch waren (gleiche Bauteile, dieselbe Hochspannung) und vergleichbare Signale lieferten, was am Oszilloskop gemessen wurde.

Die Ergebnisse der Untergrundmessung sind in Abb. 4.10 zu sehen. Wie man erkennen kann liegt der Untergrund für die verschiedenen Diskriminatorschwellen immer im Bereich von 1-3 cpm. Er konnte nicht auch nicht mit höheren Schwellenwerten weiter reduziert werden. Dies hat wohl damit zu tun, daß die Kammer im Laufe der Zeit ziemlich viel <sup>210</sup>Pb angesammelt hat. Der hohe Bleianteil kommt daher, daß die Kammer früher mit einer starken Aktivität kalibriert wurde. Der kleine Fehler bei der niedrigsten Schwelle und dem höchsten Untergrund kommt durch eine sehr lange Meßzeit zustande, da auch hier nur der statistische Fehler verwendet wurde.

Tab. 4.4 zeigt den Einfluß der Koinzidenztechnik auf die Untergrundreduzierung. Es werden die einzelnen Zählraten für zwei verschiedene Diskriminatorschwellen gezeigt und die Zählrate im Koinzidenzbetrieb. Der Reduktionsfaktor ist 10. Der erwartete Wert (Faktor 200)<sup>8</sup> war höher aber aufgrund des hohen Untergrundes nicht erreichbar.

 $<sup>^8\</sup>mathrm{M.}$ Wojcik, W. Wlazlo: A high scintillation chamber for radon in gas, Nucl. Instr. & Meth. A 345 (1994) 351-355



## Untergrund vs Schwelle

Abbildung 4.10: Der gemessene Untergrund der großen Kammer in Abhängigkeit der Diskriminatorschwelle

#### Kalibration der großen Kammer

Nachdem die Untergrundmessungen abgeschlossen waren, wurde die Kammer kalibriert. <sup>222</sup>Rn wurde aus der in Kap. 4.1.4 beschriebenen Radiumlösung in die Kammer gebracht. Auch hier wurde die Kalibration für einen Druck p=1 atm durchgeführt. Die in die Kammer eingebrachte Aktivität betrug  $A_0=197$  mBq. Nach 3 Stunden wurden die Effizienzmessungen für verschiedene Schwelleneinstellungen, bei einer Hochspannung von 630 V und einer 4-fachen Signalverstärkung begonnen. Beide Diskriminatorschwellen wurden hier mit den selben Einstellungen betrieben.

Die gemessenen Effizienzen mit ihren jeweiligen Untergründen sind in Abb. 4.11 dargestellt.



Abbildung 4.11: Die Effizienz der großen Kammer bezüglich des Untergrundes

Sie liegen alle im Bereich von 35-60% bei Untergrundraten von 1,5-2,6 cpm. Auch hier war die Effizienz bei niedrigerem Untergrund zu klein, zumal keine Untergrundrate kleiner als 1 cpm war. Da bei einer Effizienz von 60% der Untergrund schon fast 3 cpm betrug machte es keinen Sinn eine Effizienz von 70% oder mehr zu bestimmen. Aus den ermittelten Effizienzen mit ihren Fehlern lassen sich mit dem jeweils gemessenen Unterund mit Fehler die MDA der Kammer ausrechnen. Für die Berechnungen der MDA habe ich wieder  $\delta = 0, 3$  und  $t_1=3$  h verwendet.

In Tab. 4.5 sind die absoluten MDAs und die MDAs für eine Meßdauer von 1000 min

Untergrund	Effizienz $\epsilon$	MDA nach $\Delta t$ =1000 min	absolute MDA (nach der Zeit)
$(2,62 \pm 0,05) \text{ cpm}$	$(58,9 \pm 4,1)\%$	5,6  mBq	5,5  mBq (16,2  h)
$(1,96 \pm 0,15) \text{ cpm}$	$(41,2\pm 3,7)\%$	7,9  mBq	7,8  mBq (16,2  h)
$(1,48 \pm 0,14) \text{ cpm}$	$(37,0\pm 2,4)\%$	8,1 mBq	8,0  mBq (15,0  h)
$(1,84 \pm 0,14) \text{ cpm}$	$(49,6 \pm 3,3)\%$	6,0  mBq	5,9  mBq (17,0  h)
$(1,71 \pm 0,14) \text{ cpm}$	$(42,1\pm 2,9)\%$	7,1  mBq	7,1  mBq (16,5  h)

Tabelle 4.5: Die Parameter der großen Kammer

aufgetragen. Wie aus der Tabelle ersichtlich ist, weichen die MDA mit einer Meßzeit von 1000 min nur geringfügig von der absoluten MDA ab.

Man kann nun die richtigen Einstellungen für die Kammer ermitteln, indem man eine möglichst niedrige MDA auswählt. Wie man Tab. 4.5 entnehmen kann ist die niedrigste MDA 5,5 mBq. Das entspricht bei einem Volumen von 6,7 l einer minimal meßbaren Konzentration von

$$C_{min} = 0.8 \ Bq/m^3$$

Die Effizienz liegt dann bei 58,9%. Der Untergrund für diese Spezifikationen liegt bei einem relativ hohen Wert von 2,62 cpm. Die elektronischen Einstellungen für den Betrieb der Kammer mit der gewählten Sensitivität sind 630 V für beide Photomultiplier, Verstärkungsfaktor 3 an den Hauptverstärkern und für die Diskriminatorschwellen jeweils 0,12. Sämtliche technischen Daten sind in Tab. 4.6 nocheinmal zusammengefaßt.

Volumen	6,7 1
Effizienz	$(58,9 \pm 4,1)\%$
Untergrundzählrate	${ m n}_{unt}{ m =}~(2{ m ,}62{\pm}0{ m ,}05)~{ m cpm}$
Sensitivität	$\mathrm{C}_{min}{=0.8}~\mathrm{Bq/m^3}$
Kalibration	$5~{ m cpm}\equiv 3,5~{ m Bq/m^3}$
Hochspannung	630 V
Verstärkung	4-fach
Schwelle	0,12 SKT

Tabelle 4.6: Die technischen Daten der großen Lucaskammer (die Einstellungen der Elektronik sind für beide Photomultiplier gleich)

#### Radon-Monitoring in der LArGe-Barrack

Im Juli wurde die große Kammer in die LArGe-Barrack gebracht. Die Kammer wird dort zur Online-Radonüberwachung der Raumluft eingesetzt. Die LArGe-Barrack ist ein belüfteter Reinraum in dem die Germaniumkristalle von GERDA getestet werden. Die Raumluft sollte dort aufgrund ständiger Belüftung eine konstante, niedrige Radonkonzentration haben. Meine Meßdaten stammen von Mitte Juli bis Ende August 2006. Der zeitliche Verlauf der Radonkonzentration in diesem Zeitraum ist in Abb. 4.12 zu sehen. Zu Beginn der Datenaufnahme war die Belüftung außer Betrieb, was zu einer erhöhten Radonkonzentration führte, der Durchschnitt war  $\approx 90$  Bq/m<sup>3</sup>. Der Radongehalt sank auf einen Wert im Bereich von 20 Bq/m<sup>3</sup> nachdem die Belüftung wieder eingeschaltet war. In Abb. 4.12 ist aber noch ein scharfer Peak zu sehen. Auch dieser plötzliche Anstieg des Radongehaltes hat mit dem Abschalten der Belüftung zu tun. Die Radonkonzentration im Gran Sasso Labor liegt zum Vergleich bei einem Mittelwert von ca. 50 Bq/m<sup>3</sup> (mit Schwankungen zwischen 20 und 80 Bq/m<sup>3</sup>).



Abbildung 4.12: Rn-Konzentration in der LArGe-Barrack im LNGS/Gran Sasso von Mitte Juli bis Ende August

#### Ein Vergleich zwischen der kleinen und der großen Kammer

In diesem Abschnitt möchte ich einen Vergleich anstellen zwischen den beiden Lucaskammern. Das Volumen (6,7 l) der großen Kammer ist 10 mal so groß wie das der kleinen Kammer (0,7 l). Durch das größere Detektorvolumen wurde eine bessere Sensitivität (0,8 Bq/m<sup>3</sup>) erreicht, wodurch man geringere Radonkonzentrationen messen kann. Die Effizienzen beider Kammern sind fast gleich, sie betragen für die große Kammer 58,9% und für die kleine Kammer 63,7%. Allerdings ist der Untergrund der großen Kammer 1 Größenordnung höher als der Untergrund der kleinen Kammer. Dies liegt an dem vielen <sup>210</sup>Pb, das sich in der Kammer gebildet hat (wahrscheinlich mit einer zu hohen Radonkonzentration kalibriert) und ständig <sup>210</sup>Po (ein  $\alpha$ -Emitter) produziert. Als Fazit kann man sagen, daß die große Kammer, trotz ihres zu hohen Untergrundes, besser zum Online-Monitoring geeignet ist, da ihre Sensitivität um das Fünffache besser ist.

Der erwartete Untergrund der großen Kammer sollte auch bei ~0,3-0,5 cpm liegen, wodurch sich die Sensitivität stark verbessern würde. Nimmt man beispielsweise einen Untergrund von 0,3 cpm bei einer Effizienz von 58,9 % ergäbe sich daraus eine MDA von 1,3 mBq, das würde einer minimal meßbaren Konzentration von 0,2 Bq/m<sup>3</sup> entsprechen. Dieser Wert ist um Faktor 5 besser als für die kleine Kammer.

In Tab. 4.7 sind die Daten beider Kammern noch einmal zusammengefaßt.

	große Kammer	kleine Kammer
Volumen	6,7 l	$0,7\ l$
Effizienz	$(58,9 \pm 4,1)\%$	$(63,7\pm3,0)\%$
Untergrundzählrate	$n_{unt} = (2,\!62 \pm 0,\!05) \text{ cpm}$	$(0,24 \pm 0,02) \text{ cpm}$
Sensitivität	$\mathrm{C}_{min}{=}$ 0,8 $\mathrm{Bq}{/\mathrm{m}^3}$	$1,0~{ m Bq/m^3}$
Kalibration	$5~{ m cpm}\equiv 3,5~{ m Bq/m^3}$	$1~{ m cpm}\equiv 12~{ m Bq/m^3}$

Tabelle 4.7: Die technischen Daten zum Vergleich der beiden Kammern

#### 4.2.3 Die neue Kammer

Um die Sensitivität der Lucaskammer zu erhöhen, wurde nicht nur versucht das Volumen zu vergrößern, sondern auch ein neuer Szintillator getestet, da, wie bereits erwähnt, ZnS(Ag) viel Radium enthält und Radon emaniert, welches maßgeblich zum Untergrund der Kammer beiträgt. Das ist auch der Grund warum keine beliebig großen Lucaskammern gebaut werden können. Mit einem Szintillator, der weniger Untergrund produziert, sollte es möglich sein noch größere, als die hier vorgestellten, Lucaskammern zu bauen. Als Szintillator sollte ich ein Material testen, das bislang als Wellenlängenschieber (u. a. bei LENS<sup>9</sup> und GERDA (Wassertankauskleidung)) und Spiegel verwendet wurde, da Wellenlängenschieber ähnliche Eigenschaften besitzen wie Szintillatoren. Es ist unter seinem

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup>Low Energy Neutrino Experiment (Experiment zur Echtzeitspektroskopie von niederenergetischen Sonnenneutrinos)

Markennamen VM2000<sup>10</sup> bekannt. VM2000 ist eine Reflektorfolie die von der Firma 3M hergestellt wird. VM2000 absorbiert Licht im UV-Bereich und emittiert es im sichtbaren Wellenlängenbereich (Emissionsmaximum bei 420 nm), also der Bereich in dem der verwendete Photomultiplier arbeitet. Die Folie ist ein mehrlagiger Polymerfilm aus Polyethylennaphtalat. Seine Dicke beträgt 61-69  $\mu$ m<sup>11</sup>. Um potentielle Untergrundquellen zu suchen, wurde die Radonemanation gemessen und es ergab sich nur eine obere Grenze von  $<0.5 \frac{\mu Bq}{m^2}$ , d. h. von emaniertem Radon sollte man keinen Untergrund erwarten. VM2000 besitzt sehr gute Reflektionseigenschaften (R > 98% im Bereich von 420-700 nm) für alle Einfallswinkel zwischen 0-90°, man kann sie also beliebig rollen, was für den Einbau in die Lucaskammer wichtig ist.

#### Aufbau der neuen Kammer als Prototyp einer großen Lucaskammer

Bevor eine große Kammer mit einem Volumen von beispielsweise 10 l gebaut werden sollte, habe ich zuerst einen Prototypen mit einem kleineren Volumen bauen lassen (in der Arbeit als neue Kammer bezeichnet) um zu testen ob die Folie als Szintillator zu gebrauchen ist. Die neue Lucaskammer wurde aus Edelstahl hergestellt. Die Kammer besteht aus zwei Hälften die mit einem Flansch verschraubt werden. Als Dichtung wird ein Buthyl-O-Ring benutzt, der in den Flansch eingesetzt wird. Die Radonemanation des O-Rings liegt unter  $50 \ \mu Bq$  (sollte also auch nicht zum Untergrund beitragen). Eine schematische Darstellung ist in Abb. 4.13 zu sehen. Die Wandstärke beträgt 5 mm. Die verwendeten Ventile am Einund Auslaß stammen von der Firma SWAGELOK, Modellbezeichnung SS2S6MM. Das Fenster zwischen Photomultiplier und Kammer besteht aus normalem Fensterglas, und wurde mit einer kleinen Menge hochvakuumtauglichen Klebstoff von außen festgeklebt. Für den Einbau der Folie in die Kammer bestand das Problem, daß kein Klebstoff o.ä. verwendet werden konnte. In Klebstoffen beispielsweise löst sich Radon sehr gut und kann über längere Zeit zum Untergrund beitragen. Nach verschiedenen Lösungsansätzen, die nicht in die Praxis umzusetzen waren, entschied ich mich, mit Absprache der Werkstatt, die Folie in der Kammer festzuschrauben. Es wurden kleine Edelstahlstifte, mit Gewinde, in der Kammerwand festgeschweißt. Die Folie wird dann mit Muttern festgeschraubt. Die Muttern hatten einen äußeren Durchmesser von 2 mm. Die Folie in der Kammer besteht aus fünf größeren Teilen, die jeweils mit drei Schrauben festgeschraubt sind, und einem kleineren Teil (gegenüber dem Photomultiplier), der nur mit einer Schraube befestigt ist. Die Lucaskammer hat ein Volumen von 1,2 l und eine innere Oberfläche von 560 cm<sup>2</sup>. In Abb. 4.14 ist die Kammer noch ohne Folie zu sehen.

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup>3M VM2000 Radiant Mirror Foil

 $<sup>^{11}</sup>$ Herstellerangabe



Abbildung 4.13: Eine schematische Darstellung der neuen Lucaskammer



Abbildung 4.14: Die Lucaskammer noch ohne eingebauter VM2000 Folie

#### 4.2. DIE VERWENDETEN LUCASKAMMERN

Vorbereitung der Folie Um die Folie in die Kammer einsetzen zu können, mußte sie ersteinmal vorbereitet werden. Die von mir verwendete Folie war auf einer Seite mit Klebstoff beschichtet, der ersteinmal entfernt werden mußte (Mit Aceton (technische Qualität)). Um die Folie noch von Staub und anderen Verunreinigungen zu säubern, wurde sie mit Isopropanol gereinigt. Als nächstes wurde die Folie in der Kammer festgeschraubt (siehe Abb. 4.15)



Abbildung 4.15: Die Lucaskammer mit der VM2000 Folie

#### Elektronik der neuen Kammer

Es werden für den Betrieb der neuen Kammer dieselben elektronischen Geräte wie bei der kleinen Kammer verwendet (schematischer Aufbau siehe Abb. 4.3.

Die folgenden Elektronikbauteile wurden für den Betrieb der kleinen Kammer benutzt: Photomultiplier der Firma Nuclear Enterprises/Edinburgh. Vorverstärker (PA) vom MPIK/HD hergestellt Hochspannungeinheit der Firma ORTEC Hauptverstärker der Firma TENNELEC, Modell TC 202 BLR Single-Channel Analyzer der Firma CANBERRA Zähler der Firma CANBERRA

Für die Untergrund- und Effizienzmessungen wurden verschiedene Hochspannungen gewählt, um das beste Signal-Untergrund Verhältnis zu finden. In Abb.4.16 ist ein Beispiel von einem  $\alpha$ -Signal vom Vorverstärker zu sehen. Im Vergleich zu einem Signal einer herkömmlichen Lucaskammer (siehe Kap. 4.2.1; Abb. 4.4) waren

die Signale dieser Kammer immer kleiner obwohl die Hochspannung höher war (970-1400 V). Das zeigt schon hier, daß die Lichtausbeute von  $\alpha$ -Teilchen bei dieser Folie schlechter ist als bei ZnS(Ag).



Abbildung 4.16: Vorverstärkersignal der VM2000 Folie (Signalhöhe 170 mV, Anstiegszeit 250 ns, Halbwertsbreite  $4\mu$ s, Hochspannung 970 V)

#### Untergrund der neuen Kammer

Die Kammer wurde 3 h vor Beginn der Untergrundmessung mit  $N_2$  gespült, genau wie bei den beiden anderen Kammern beschrieben, und dann, wie bereits mehrfach erwähnt, der

#### 4.2. DIE VERWENDETEN LUCASKAMMERN

Untergrund für verschiedene Schwelleneinstellungen gemessen. Im Unterschied zu den beiden anderen Kammer wurde hier die Untergrundmessung auch für verschiedene Hochspannungen (970 V, 1200 V und 1400 V))des Photomultipliers durchgeführt. Der Hauptverstärker war auf 6,6-fache Verstärkung eingestellt (die Einstellung war auf 10 SKT eingestellt, aber mit dem Oszilloskop gemessen, ergab sich nur eine 6,6-fache Verstärkung).

Die Ergebnisse der Untergrundmessung bei einer Hochspannung von 1200 V sind in Abb. 4.17 abgebildet. Wie man erkennen kann liegt der Untergrund immer im Bereich zwischen 1 cpm und 6 cpm. Bei niedrigeren Schwellenwerten, als die hier angegebenen, war die Untergrundrate um ein Vielfaches höher.

Es wurden noch die Hochspannungen 970 V und 1400 V gewählt, wobei für 1400 V Untergrundraten zwischen 5 und 90 cpm gemessen wurden und somit um mehr als eine Größenordnung höher als bei den "alten Kammern" sind. Für 970 V liegt der Untergrund für Schwelleneinstellungen zwischen 0,5 SKT und 1,5 SKT im Bereich zwischen 0,3 und 4,5 cpm, also ähnlich wie bei der kleinen Kammer. Es wurden bei VM2000 wesentlich niedrigere Untergrundraten als bei ZnS(Ag) erwartet, da angenommen wurde, daß VM2000 fast kein Radon emaniert, was leider nicht der Fall war.

Weitere Ursachen werden weiter unten in diesem Kapitel erörtert.



Abbildung 4.17: Der Untergrund der neuen Kammer mit 1200 V Hochspannung und 6,6facher Verstärkung

#### Kalibration der neuen Kammer

Nach den Untergrundmessungen wurde, die Kammer kalibriert. Dazu wurde schon, wie bei den anderen Kammern beschrieben, <sup>222</sup>Rn aus der in Kap. 4.1.4 beschriebenen Radiumlösung in die Kammer gebracht. Die eingebrachte Aktivität betrug  $A_0=197$  mBq. Da diese Kalibration nur ein Test war und um die Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen zu erhöhen, wurde die Kammer nur bei einem Druck von p=400 mbar kalibriert. Nach 3 h wurden die Effizienzmessungen für die Hochspannungen 970V, 1200V und 1400 V am Photomultplier durchgeführt. Die Meßergebnisse sind in Abb. 4.18 aufgeführt.



Abbildung 4.18: Die Effizienzen bzgl. <br/>ihres Untergrundes der neuen Kammer für die Hochspannungen 970 V, 1200 V und 1400 V

Wie man sieht, sind alle Effizienzen im Berich zwischen 30 und 75% bei Untergrundraten zwischen 1 cpm und 10 cpm. Für die Hochspannung 970 V liegen die Effizienzen im Bereich zwischen 30 und 55% bei Untergrundraten von 1-4,5 cpm. Bei einer Hochspannung von 1200 V erhält man Effizienzen im Bereich von 35-60% und Untergrundraten zwischen 1,5 und 6,5 cpm. Wählt man eine Hochspannung 1400 V erhält man eine Effizienz von ca. 75% bei Untergrundraten im Bereich von 6,5 cpm bis fast 10 cpm. Bei einer höheren Hochspannung
Untergrund	Effizienz $\epsilon$	MDA	$\Delta t$		
U=970 V					
$(4,25 \pm 0,73) \text{ cpm}$	$(53,8 \pm 9,5)\%$	$27,6 \mathrm{~mBq}$	$0,5~\mathrm{d}$		
$(1,03 \pm 0,13) \text{ cpm}$	$(28,7 \pm 2,4)\%$	$9,6 \mathrm{~mBq}$	$0,\!8~\mathrm{d}$		
U=1200 V					
$(6,16 \pm 0,57) \text{ cpm}$	$(61,4 \pm 10,3)\%$	19,7 mBq	0,6 d		
$(3,10 \pm 0,38) \text{ cpm}$	$(60,5 \pm 9,4)\%$	$12,9 \mathrm{~mBq}$	$0,\!6~\mathrm{d}$		
$(2,08 \pm 0,30) \text{ cpm}$	$(36,9 \pm 5,8)\%$	$16,7 \mathrm{~mBq}$	0,6 d		
$(1,42 \pm 0,13) \text{ cpm}$	$(34,0\pm 3,7)\%$	$8,2 \mathrm{~mBq}$	$0,8~\mathrm{d}$		
U=1400 V					
$(6,69 \pm 0,65) \text{ cpm}$	$(76,9 \pm 13,8)\%$	17,3 mBq	0,6 d		
$(9,22 \pm 1,01) \text{ cpm}$	$(75,0 \pm 14,5)\%$	$27,4 \mathrm{~mBq}$	$0,4~\mathrm{d}$		

Tabelle 4.8: Die Parameter der neuen Kammer

erhält man zwar eine höhere Effizienz, allerdings ist dabei auch der Untergrund stark erhöht. Bei einer Hochspannung von 1400 V sind die Effizienzen fast gleich obwohl sich die Untergrundraten unterscheiden.

Als nächstes werden die MDAs ausgerechnet, wofür die Effizienzen mit ihren Fehlern und Untergrundraten mit ihren Fehlern benötigt werden. In Tab. 4.8 sind diese Werte für eine gewünschte Genauigkeit  $\delta$ =30% und für den Beginn der Messung nach t<sub>1</sub>= 3 h angegeben. Das beste Ergebnis für die MDA beträgt 8,2 mBq bei einer Meßdauer von 0,8 d, einer Hochspannung von 1200 V, einer Effizienz von 34% und einem Untergrund von 1,4 cpm. Die Sensitivität der Kammer (Volumen 1,2 l) beträgt 6,7 Bq/m<sup>3</sup>.

Im Vergleich zu den beiden alten Kammern hat diese Kammer bei vergleichbaren Effizienzen einen viel höheren Untergrund. Verglichen mit der kleinen Kammer ist der Untergrund eine Größenordnung höher. Selbst bei der großen Kammer, die aus in Kap. 4.2.1 aufgeführten Gründen ebenfalls einen zu hohen Untergrund hat, ist der Untergrund niedriger als bei der neuen Kammer.

Mögliche Ursachen für das schlechte Abschneiden der Folie Zur Untersuchung des hohen Untergrundes und der niedrigen Effizienz von VM2000, habe ich die Energiedeposition in der VM2000 Folie von Myonen aus der kosmischen Strahlung und von Elektronen (potentielle Untergrundquellen), die bei den  $\beta$ -Zerfällen der Rn-Tochterkerne <sup>214</sup>Pb (0,7 MeV) und <sup>214</sup>Bi (1,5 MeV) entstehen, berechnet. Als mittlere Energie der Elektronen habe ich 1 MeV benutzt. Die deponierte Energie, der zu untersuchenden Teilchen, ergibt sich aus dem Energieverlust der Teilchen, welcher sich für Myonen mit Hilfe der Bethe Bloch Formel berechnen läßt. Desweiteren habe ich die Reichweite von 1 MeV-Elektronen und  $\alpha$ -Teilchen in Polyethylen (VM2000 besteht aus Polyethylennaphtalat) für verschiedene Energien aus

Tabellen<sup>12</sup> angegeben, da die Bethe Bloch Formel nicht für niederenergetische Teilchen (<10 MeV), sondern nur für hochrelativistische Teilchen, gilt.

Die Dicke der Folie beträgt wie oben angegeben 61-69  $\mu$ m. Ich habe für die Berechnungen eine Dicke von 65 $\mu$ m (Mittelwert) verwendet. Die Energie von Myonen auf Meereshöhe beträgt ca. 2 GeV. Somit deponieren Myonen in VM2000 ~10 keV.

Die Elektronen deponieren in VM2000  $\sim 15$  keV.

Als nächstes habe ich nun ich die Reichweiten der beteiligten  $\alpha$ -Teilchen angegeben. Die Reichweiten der  $\alpha$ -Teilchen von <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po und <sup>214</sup>Po haben in der Folie folgende Reichweiten:

$^{222}$ Rn (5,5 MeV)	$40 \ \mu m$
$^{218}$ Po (6,0 MeV)	$46~\mu{ m m}$
$^{214}$ Po (7,7 MeV)	$67~\mu\mathrm{m}$

Man kann obiger Tabelle entnehmen, daß alle  $\alpha$ -Teilchen in der Folie gestoppt werden, also ihre gesamte Energie (ein paar MeV) in ihr deponieren. Die Energiedeposition für Myonen und Elektronen liegt (wie oben berechnet) nur im einstelligen keV-Bereich, deponieren also viel weniger Energie als  $\alpha$ -Teilchen.

Eine mögliche Erklärung des hohen Untergrundes und der niedrigen Effizienz, könnte eine niedrige Lichtausbeute für  $\alpha$ -Teilchen sein, obwohl diese die höchste Energie in der Folie deponieren. Dies müßte näher untersucht werden (z.B. mit  $\alpha$ -Quellen). Der hohe Untergrund könnte auch von  $\gamma$ -Quanten stammen, die auch bei radioaktiven Zerfällen entstehen (beispielsweise enthält die Folie viel <sup>40</sup>K).

## Beschichtung der Folie mit TPB

Als nächstes sollte ich versuchen ob eine Beschichtung der Folie mit TPB bessere Ergebnisse liefert, da bei anderen Anwendungen (Wellenlängenschieber und Reflektor) eine bessere Leistung der VM2000 Folie erreicht werden konnte. TPB(=Tetraphenylbutadien) ist ein weiterer Wellenlängenschieber mit ähnlichen Eigenschaften wie Polyethylennaphtalat. Die Idee war, daß  $\alpha$ -Teilchen in der TPB-Schicht Licht produzieren, das dann von der VM2000 Folie reflektiert wird. Die TPB-Schicht besteht aus 10% TPB und 90% Polysterol.

Zuerst muß die Folie, wie im Unterkapitel "Vorbereitung der Folie" beschrieben, gereinigt werden. Das Auftragen von TPB geschieht dann mit einem Pinsel. Dazu wird die Folie zuerst mit reinem Toluol bestrichen und dann die TPB-Lösung aufgetragen. Um dann die Dicke der TPB-Schicht zu bestimmen habe ich die Folie vor und nach der Beschichtung gewogen. Aus der Dichte von Polysterol ( $\rho=1$  g/cm<sup>3</sup>) und der Gesamtfläche der Folie in der Kammer (A=560 cm<sup>2</sup>) habe ich die Schichtdicke berechnet. Sie beträgt ca. 7 $\mu$ m (bei dickeren Schichten als 10  $\mu$ m wird die Schicht brüchig).

Um die optischen Eigenschaften der beschichteten Folie zu untersuchen habe ich mit einem Fluoreszenzspektrometer einige Spektren aufgenommen. Dazu habe ich die Folie zuerst mit einer Wellenlänge von 260 nm angeregt und ein Emissionsspektrum aufgezeichnet. Damit

<sup>&</sup>lt;sup>12</sup>ICRU Report 49: Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles

konnte ich bestätigen, daß auch die mit TPB beschichtete Folie ein Emissionsmaximum bei einer Wellenlänge von 420 nm hat (siehe Abb. 4.19).



Abbildung 4.19: Emissionsspektrum von VM2000 (mit TPB beschichtet) mit einer eingestrahlten Wellenlänge von 260 nm. Deutlich sichtbar ist das Emissionsmaximum bei 420 nm (der zweite Peak ist ein Beugungspeak der eingestrahlten Wellenlänge)

Als nächstes habe ich ein Absorptionsspektrum aufgenommen, um zu sehen, wieviel Licht verschiedener Wellenlängen im Emissionsmaximum emittiert wird. Dazu habe ich ein Wellenlängenspektrum zwischen 190 nm und 400 nm in die Folie eingestrahlt und die Intensität der Emission bei 420 nm (Emissionsmaximum) gemessen. Wie man in Abb. 4.20 erkennen kann ist die Intensität der Emission ziemlich hoch. Ab einer Wellenlänge von ca. 390 nm wird kein Licht mehr mit einer Wellenlänge von 420 nm emittiert, daher der Abriß des Spektrums.

Untergrundmessung der mit TPB beschichteten Folie Als nächstes wurde der Untergrund der beschichteten Folie gemessen. Davor wurde die Kammer wieder 3 h mit N<sub>2</sub> gespült und dann für verschiedene Schwellenwerte mit einem Verstärkungsfaktor von 6,6 die Messung durchgeführt. Die Messung ergab eine erhöhte Untergrundrate bei allen verwendeten Hochspannungen (970 V, 1200 V und 1400 V). Bei einer Hochspannung von 1200 V lag der Untergrund in einem Bereich zwischen 0,5 und 10 cpm. In Abb. 4.21 ist der Untergrund für verschiedene Schwellenwerte abgebildet und zum Vergleich ist die Untergrundmessung ohne Beschichtung auch mit aufgetragen. Auch bei allen anderen Hochspannungen ergaben sich erhöhte Untergrundraten. Das könnte bedeuten, daß der Untergrund nicht in Zusammenhang mit  $\alpha$ -Teilchen steht, da die 7  $\mu$ m Schicht nicht so viele Isotope (~einige hundert Bq/kg))enthalten kann, die  $\alpha$ -Teilchen emittieren (<sup>226</sup>Ra, <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Po,...).



Abbildung 4.20: Anregung von VM2000 (mit TPB beschichtet) mit Wellenlängen zwischen 190 und 400 nm



Abbildung 4.21: Vergleich der Untergrundzählraten der Folie mit und ohne TPB Beschichtung bei einer Hochspannung von 1200 V

**1.Kalibration der mit TPB beschichteten Folie** Für die Kalibration wurde die Kammer mit einer Radonaktivität von  $A_0=197$  mBq gefüllt und die Effizienzmessungen nach 3 h gestartet. Der Kalibrationsdruck war p=400 mbar. Ein Vergleich der Kalibration mit und ohne TPB Beschichtung ist in den Abb. ??, 4.22 und ?? zusehen. Es war keine Verbesserung erkennbar. Die besten Ergebnisse wurden bei einer Hochspannung von 1200 V erreicht, allerdings sind die Untergrundraten sehr hoch. Die Ergebnisse sowohl mit als auch ohne Beschichtung liegen in einem zwischen 25-70% bei Untergrundraten von 1-10 cpm. Bei einer Hochspannung von 1400 V sind die gemessenen Effizienzen bei beiden Kalibrationen nahezu gleich zwischen 75-90% und der Untergrund liegt zwischen 4 und 10 cpm. Auch bei einer Hochspannung von 970 V ist kein Unterschied feststellbar.

Um zu Untersuchen warum auch hier der Untergrund so hoch und die Effizienzen verhältnismäßig niedrig waren, habe ich auch hier die Reichweiten bzw. Energiedepostionen von Myonen, Elektronen und  $\alpha$ -Teilchen<sup>13</sup> (in Polysterol) bestimmt. Myonen mit einer Energie von 2 GeV deponieren in der Schicht mit einer Dicke von 7  $\mu$ m 0,8 keV. 1 MeV Elektronen deponieren in der Schicht 2 keV, und 6 MeV- $\alpha$ -Teilchen haben in TPB eine Reichweite von 46  $\mu$ m, d. h. sie deponieren ~1 MeV in der TPB-Schicht. Auch hier deponieren  $\alpha$ -Teilchen viel mehr als die anderen Teilchen.



Abbildung 4.22: Hier ist die Effizienz gegen den Untergrund bei 6,6-facher Verstärkung und einer Hochspannung von 1200 V

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup>ICRU Report 49: Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles

2.Kalibration der mit TPB beschichteten Folie Bei der nächsten Kalibration wurden zusätzlich zu den verschiedenen Hochspannungen noch der Verstärkungsfaktor des Hauptverstärkers variert. Zuerst wurde für alle möglichen Hochspannungen der Untergrund gemessen. Für alle möglichen Diskriminatorschwellen von 0,5-9,0 SKT lag der Untergrund zwischen 1-10 cpm. Wie erwartet war für höhere Spanungen der Untergrund höher ebenso wie für größere Verstärkungsfaktoren. Die Messung brachte keine neuen Erkenntnisse, sie bestätigte nur das die Folie sowohl ohne als auch mit Beschichtung nicht als Szintillator für Lucaszellen geeignet ist.

Ein Vergleich des Untergrundes bei einer Hochspannung von 1200 V bzgl. verschiedener Verstärkungsfaktoren ist in Abb. 4.23 zu sehen.



Abbildung 4.23: Ein Vergleich des Untergrundes bei einer Hochspannung von 1200 V bzgl. der Verstärkungsfaktoren 4, 6,6 und 10

In der folgenden Abb. 4.24 sind die Effizienzen bzgl. ihres Untergrundes bei einer Hochspannung von 1200V und den verschiedenen Verstärkungen 4, 6,6 und 10 aufgetragen. Die Vergleichskurven für die Hochspannung 1200 V ist in Abb. 4.25 zusehen.



Abbildung 4.24: Es sind hier die Effizienzen bzgl. ihres Untergrundes bei einer Hochspannung von 1200 V und den Verstärkungsfaktoren 4, 6,6 und 10 abgebildet



Abbildung 4.25: Ein Vergleich der 3 Kalibrationen mit und ohne TPB bei einer Hochspannung von 1200 V

Ein Vergleich der neuen Kammer mit den alten Kammern Ich möchte hier einen Vergleich der neuen Kammer mit den alten Kammern machen. Die neue Kammer hat einen Untergrund in der Größenordnung der großen Kammer, und einen um Faktor 6 größeren als die kleine Kammer. Es wurde erwartet das der Untergrund bei Verwendung der VM2000 Folie wesentlich niedriger ist. Die Effizienzen der alten Kammern betragen ungefähr 60%. Bei der neuen Kammer beträgt die Effizienz nur 34% (für die niedrigste MDA). Die Sensitivitäten der herkömmlichen Lucaskammern beträgt ca. 1Bq/m<sup>3</sup>. Die Sensitivität der neuen Kammer liegt bei ca. 7 Bq/m<sup>3</sup>. Der neue Prototyp ist offensichtlich nicht besser als die alten Kammern. Der Grund dafür ist der hohe Untergrund und die niedrige Sensitivität für  $\alpha$ -Teilchen der VM2000 Folie. Man sollte nach einer anderen Folie suchen, die bessere Eigenschaften als Szintillator für  $\alpha$ -Teilchen hat.

In Tab. sind die Parameter aller verwendeten Kammern nocheinmal aufgeführt.

	große Kammer	kleine Kammer	neue Kammer
Volumen	6,7 1	0,7 l	1,2 l
Effizienz	$(58,9 \pm 4,1)\%$	$(63,7\pm3,0)\%$	$(34,0\pm3,7)\%$
Untergrundzählrate	$n_{unt} = (2,62 \pm 0,05) \text{ cpm}$	$(0,24 \pm 0,02) \text{ cpm}$	$(1,\!42\pm0,\!13)~{ m cpm}$
Sensitivität	$\mathrm{C}_{min} = 0.8 \mathrm{Bq/m^3}$	$1,0 \mathrm{~Bq/m^3}$	$6,7~\mathrm{Bq/m^3}$
Kalibration	$5~{ m cpm}\equiv 3,5~{ m Bq/m^3}$	$1 \text{ cpm} \equiv 12 \text{ Bq/m}^3$	$5~{ m cpm}\equiv 3,5~{ m Bq/m^3}$

Tabelle 4.9: Die technischen Daten zum Vergleich aller betriebenen Kammern

## Kapitel 5 Schlußbetrachtung

Im Rahmen dieser Diplomarbeit sind 2 Lucaskammern und ein Prototyp, mit einem neuen Szintillator, getestet worden. Die Aufgabe dieser Kammern ist die Radonüberwachung in Gasen, die eine möglichst geringe Radonkonzentration aufweisen sollten. Die beiden "alten Kammern" mit dem für Lucaskammern typischen Szintillator ZnS(Ag) arbeiten mit einer erwarteten Sensitivität von ca. 1Bq/m<sup>3</sup>. Die größere der beiden sollte eine bessere Sensitvität haben, sie wird aber aufgrund des hohen Untergrundes der Kammer nicht erreicht. Es besteht allerdings die Möglichkeit die Sensitvität der großen Kammer zu erhöhen, indem man das mit Blei kontaminierte ZnS(Ag) erneuert (eine Verbesserung um Faktor 4 wäre möglich). Die Idee, die Sensitivität der Lucaskammern zu erhöhen, indem man einen anderen Szintillator verwendet, der weniger Untergrund bringt und trotzdem sensitiv für  $\alpha$ -Teilchen ist, ist naheliegend. Um dieses Ziel zu erreichen, wurde eine Kunstoffolie (VM2000), die bisher als Wellenlängenschieber und Reflektor verwendet wurde, getestet. VM2000 verschiebt das Licht aus dem UV-Bereich in den sichbaren Wellenlängenbereich. Die Erwartungen, die in VM2000 als Szintillator gesetzt wurden, konnten allerdings nicht erfüllt werden. Auch eine Beschichtung mit TPB, einem weiteren Wellenlängenschieber, ergab keine Verbesserung. Ein Grund für das schlechte Abschneiden der verwendeten Folie liegt wohl daran, daß die Lichtausbeute für  $\alpha$ -Teilchen zu klein ist.

Eine weitere Möglichkeit wäre eine andere Folie als Szintilator zu testen, die eine bessere Lichtausbeute für  $\alpha$ -Teilchen hat. Diese könnte man dann mit VM2000 als Spiegel kombinieren.

## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich hauptsächlich bei Herrn Dr.Grzegorz Zuzel bedanken, der mit viel Geduld und Zeit zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat. Mein Dank gilt auch all den anderen Leuten, die meine Arbeit gelesen und korrigiert haben sowie mir bei meinen Problemen mit guten Ratschlägen weitergeholfen haben.