Fakultät für Physik und Astronomie Universität Heidelberg

Bachelorarbeit in Physik eingereicht von

Jan Schick

aus Langenbrettach

am 01.08.2011

Entwicklung eines Versuchsaufbaus zur Adsorptionsmessung von Radon an Aktivkohle

Diese Bachelorarbeit wurde durchgeführt von Jan Schick am Max Planck Institut für Kernphysik in Heidelberg Betreuer: Prof. Manfred Lindner

abstract

In dieser Arbeit soll ein Versuchsaufbau konstruiert und charakterisiert werden, der es ermöglicht die Adsorption von verschiedenen Gasen, insbesondere Xenon und Radon, und auch Gasgemischen an Aktivkohle zu messen. Zur Charakterisierung des Aufbaus gehört die Bestimmung der abtrennbaren Volumina der Apparatur, sowie die Überprüfung auf Durchführbarkeit des geplanten Messvorgangs.

Adsorptionsmessungen bei geringen Drücken mit Stickstoff und Xenon sollen die Theorie des Henrybereichs bestätigen. Die Adsorption von Radon wird über eine Aktivitätsmessung mit einem Szintillationszähler ermittelt.

This Bachelor thesis is intended to construct and characterize an experimental setup for measuring the adsorption equilibrium of different gases, particularly xenon and radon, and mixtures of gases. Activated carbon is used as adsorbent. To characterize the setup one has to determine the separable volumes of the apparatus and to make sure that the intended way of measuring is feasible.

Adsorption measurements with nitrogen and xenon at low pressures should confirm the linear progress in the Henry-area. The adsorption equilibrium of radon is determined by measuring its radioactivity with a scintillation counter.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitu	Ing	1
	1.1 M	otivation	1
	1.2 Da	as XENON100-Projekt	2
2	Theore	tische Grundlagen	4
	2.1 Gi	rundbegriffe der Adsorption	4
	2.2 La	ngmuir-Isotherme	4
	2.3 He	enrykonstanten	6
	2.4 Ra	adon und seine Zerfallsprodukte	8
	2.5 Na	achweis über Szintillation	9
3	Versucl	nsaufbau	10
4	Messpr	inzip	11
5	Messur	igen	12
	5.1 Be	estimmung der einzelnen Volumina	12
	5.2 Ko	prrektur des Temperatureffekts	14
	5.3 Ac	dsorption von Stickstoff	17
	5.4 Ac	dsorption von Xenon	21
	5.5 Ac	dsorption von Radon	23
6	Ausblic	k	29

Abbildungsverzeichnis

1	Verlauf der Langmuirisothermen für verschiedene Langmuirkonstanten	6
2	Zerfallsreihe des Radon-222, [Zer]	8
3	Aufbau eines Szintillationszählers, [Sz]	9
4	Versuchsaufbau	10
5	Versuchsaufbau (2)	11
6	schematische Zeichnung zur Verdeutlichung	15
7	Stickstoff-Adsorptions isotherme bei 200°C $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	17
8	Stickstoff-Adsorptions isotherme bei 100°C $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	18
9	Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei 50°C	18
10	Stickstoff-Adsorptions isotherme bei $23,5^{\circ}$ C	19
11	Stickstoff-Adsorptions isotherme bei -10°C $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	19
12	Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei -100°C	20
13	Xenon-Adsorptions isotherme bei 100°C	22
14	Xenon-Adsorptions isotherme bei 50°C $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	22
15	Kennlinie des Photomultipliers	23
16	Verlauf der Aktivität nach Abpumpen eines Teils Radons	24
17	modifizierter Versuchsaufbau zur Messung mit Radon	25
18	Aktivitätsverlauf im Detektor	27
19	Abfall der Ausgangsaktivität des Radons	28

Tabellenverzeichnis

1	kritische Drücke und Temperaturen verschiedener Gase, [Sim03]	7
2	Volumenbestimmung von V2	13
3	Volumenbestimmung von V1 und V3	13
4	Volumenbestimmung von V2 (befüllt)	14
5	adsorbierter Anteil Helium bei 200°C und 13,34 g Adsorber	15
6	Werte für x bei unterschiedlichen Drücken und T= 200° C	16
7	adsorbierter Anteil Helium bei -100°C und 13,34 g Adsorber	16
8	Werte für x bei unterschiedlichen Drücken und T=-100°C \ldots	16
9	Vergleich mit der empirischen Gleichung von Maurer, Stickstoff	20
10	Vergleich mit der empirischen Gleichung von Maurer, Xenon	21

1 Einleitung

1.1 Motivation

Der aktuelle Wissensstand der Kosmologie besagt, dass die uns bekannte baryonische Materie nur einen winzigen Prozentsatz der Masse des gesamten Universums ausmacht. 72 Prozent der gesamten Masse bestehen aus dunkler Energie und 23 Prozent aus dunkler Materie. Über dunkle Energie lassen sich kaum Aussagen treffen, außer dass sie aus kosmologischen Modellen zur Entwicklung des Universums hervorgeht. Bei dunkler Materie ist man etwas optimistischer. Zwar konnte man sie bisher noch nicht direkt nachweisen, aber es gibt einige indirekte Hinweise aufgrund der gravitativen Wechselwirkung dunkler Materie, die auf ihre Existenz hindeuten.

Ein Indiz folgt aus der Beobachtung der Rotationsgeschwindigkeit von Galaxien. Denn nach dem Newtonschen Gravitationsgesetz, müsste die Rotationsgeschwindigkeit mit zunehmender Entfernung vom Zentrum abnehmen. Nun hat man aber viele Galaxien gefunden, bei denen die Rotationsgeschwindigkeit nach außen hin nicht abnimmt oder gar zunimmt. Das bedeutet, dass entweder das Newtonsche Gravitationsgesetz auf solch große Objekte wie Galaxien nicht anwendbar ist, oder in den äußeren Bereichen vieler Galaxien eine große Menge bisher unbekannter, nicht sichtbarer Materie vorhanden ist.

Ein weiteres Indiz liefert der Gravitationslinseneffekt. Hierbei kann aus der Krümmung des Hintergrunds auf die Masse des als Linse fungierenden Objektes geschlossen werden. Ein Vergleich mit der aus der abgestrahlten Lichtleistung berechneten Masse legt ebenfalls die Existenz einer nicht sichtbaren Materie nahe.

Mögliche Kandidaten für dunkle Materie sind z.B. sogenannte WIMPs (Weakly Interacting Massiv Particles). Diese wechselwirken nur durch die schwache Wechselwirkung und die Gravitation. Ihre Masse wird in der Größenordnung von Atomkernen vermutet. Nimmt man also an, dass sich in unserer Galaxie solche Teilchen in großer Menge befinden, so müsste die Erde, indem sie mit unserem Sonnensystem um das Zentrum unserer Galaxie kreist, ständig von einem WIMP-Wind durchströmt werden.

Äußerst selten muss es aber doch dazu kommen, dass ein WIMP an einem Atomkern in einem Detektor streut und einen winzigen Energiebetrag abgibt.

1.2 Das XENON100-Projekt

Der XENON100-Detektor im italienischen Gran-Sasso Untergrundlabor versucht eben diese Ereignisse festzuhalten. Als WIMP-Target wird 100 kg flüssiges Xenon verwendet. Zur Abschirmung vor kosmischer Strahlung befindet sich der Detektor im Untergrund unter 1400 m Fels. Streut ein WIMP an einem Xenonatom, so überträgt es Impuls und erzeugt freie Elektronen. Das gestoßene Xenonatom kann wieder mit einem Xenonatom stoßen und dieses anregen. Es können sich Excimere bilden, die sich wieder auflösen, sobald das angeregte Atom wieder in den Grundzustand zerfällt. Die Xenonatome sind für das dabei abgestrahlte Licht durchlässig. Das flüssige Xenon wirkt also als Szintillator. Das abgestrahlte Licht wird mit Photomulitpliern detektiert. Die freien Elektronen werden durch ein elektrisches Feld zur Anode an der Oberseite des Detektors beschleunigt. Über dem flüssigen Xenon befindet sich Xenongas, in dem das Elektron wieder Xenonatome anregen kann. Es können sich wieder Excimere bilden und ein zweites Lichtsignal entsteht. Durch Rückschluss auf den Ort des Streuereignisses und aus dem Verhältnis der Intensitäten beider Lichtsignale kann die Art des Teilchens, das die Reaktion auslöste, identifiziert werden.

Da nur einige wenige Ereignisse pro Jahr erwartet werden, ist es unbedingt notwendig den Untergrund so gering wie möglich zu halten. Daher müssen die zum Bau des Detektors verwendeten Materialien, insbesondere das Xenon selbst, äußerst rein sein. Untergrundereignisse entstehen z.B. druch Neutronen oder durch Alphastrahlung aus radioaktiven Zerfällen. Radon ist beispielsweise ein radioaktives Edelgas, das aus den drei natürlichen Zerfallsreihen ständig nachproduziert wird.

Der nächste Schritt auf dem Weg zum direkten Nachweis von dunkler Materie befindet sich bereits in Planung: der XENON1T-Detektor. Mit einer Targetmasse von 1 Tonne flüssigem Xenon und weiterer Reduktion des Untergrunds, erhofft man sich, die Sensititvität um den Faktor 100 zu verbessern. Dabei ist eine Online-Reinigung des Xenon vorgesehen; das Xenon wird aus dem Detektor geleitet und in Gettern von Verunreinigungen wie Sauerstoff befreit und in einem Kreislauf wieder dem Detektor zugeführt. Dieser Vorgang ist notwendig, um die große Driftlänge der freien Elektronen bis an die Oberseite des Detektors zu gewährleisten. Aber durch Leitungen und Getter gelangt auch ständig Radon in das Xenon, welches von dem Wirkungsprinzip der Getter nicht betroffen ist. Um Radon herauszufiltern nutzt man das Prinzip der Adsorption; man bindet eine Säule gefüllt mit Aktivkohle in den Kreislauf ein. In meiner Arbeit geht es nun darum, einen Versuchsaufbau zu konstruieren, der es ermöglicht in kleinem Maßstab zu testen und zu quantifizieren, wie gut man Radon aus Xenon mittels Adsorption an Aktivkohle herausfiltern kann. Der Versuch muss also Folgendes können: Xenongas soll mit einem gewissen Anteil an Radon einem Adsorber ausgesetzt und die Adsorptionsisotherme bei verschiedenen Temperaturen aufgenommen werden. Es sollen mehrere Aktivkohlen als Adsorber getestet werden, um die Effektivste zu ermitteln.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Grundbegriffe der Adsorption

Als Adsorption bezeichnet man das Anlagern von Gasen oder Flüssigkeiten an Oberflächen von Festkörpern. Der umgekehrte Vorgang wird als Desorption bezeichnet. Das zu betrachtende Gas wird Adsorptiv genannt, bzw. Adsorbat, wenn es bereits an der Oberfläche haftet. Der Festkörper wird Adsorbens oder Adsorber genannt. Adorptionsisotherme beschreiben den Gleichgewichtszustand von Adsorption und Desorption eines Stoffes bei konstanter Temperatur. Ermittelt werden Adsorptionsisotherme indem man einen unbeladenen Adsorber mit einer Lösung in Kontakt bringt, die den betreffenden Stoff enthält. Dabei unterscheidet man noch, ob es sich um Physisoption oder Chemiesorption handelt. Bei der Physisorption wird der Stoff lediglich durch schwache van-der-Waals-Kräfte gebunden, wohingegen bei der Chemisorption eine chemische Bindung eingegangen wird. Da Xenon und Radon als Edelgase nur sehr ungern chemische Bindungen eingehen, ist für meine Arbeit vor allem die Physisorption von Interesse. Für die Adsorption von Edelgasen wird Aktivkohle verwendet, da Aktivkohle keine innere Polarität besitzt und Verunreinigungen nicht durch starke chemische Bindungen die Adsorptionsplätze belegen können.

2.2 Langmuir-Isotherme

Ein besonders einleuchtendes Modell und immernoch grundlegend für viele weiterführende Modelle zur Beschreibung der Adsorption, ist die Langmuir-Isotherme [Lan18]. Dabei werden folgende Annahmen gemacht:

- 1. Die Oberfläche des Adsorbers ist glatt, das heißt energetisch homogen
- 2. Jedes adsorbierte Teilchen besetzt genau einen Adsorptionsplatz
- 3. Adsorbierte Teilchen bleiben an ihren Plätzen
- 4. Besetzte benachbarte Plätze beeinflussen die Adsorptionswahrscheinlichkeit nicht
- 5. Das Adsorbat bildet höchstens eine Adsorptionsschicht (Monolage) aus

Zusammen mit der Rate der auf die Oberfläche auftreffenden Teilchen, die sich mit Hilfe der kinetischen Gastheorie für ein ideales Gas herleiten lässt, führen diese Annahmen auf eine Beziehung zwischen dem Bedeckungsgrad $\theta = \frac{n}{n_{mono}}$ (Verhältnis der besetzten Adsorptionsplätzen n zu der Gesamtzahl der vorhandenen Adsorptionsplätzen in einer Monolage n_{mono}) und dem Druck p.

Die Zahl der pro Zeiteinheit adsorbierten Teilchen ist proportional zur Rate \Re der auf die Oberfläche auftreffenden Teilchen (m = Molekulargewicht des Adsorptivs, R = ideale Gaskonstante):

$$\Re = \frac{p}{\sqrt{2\pi \cdot m \cdot R \cdot T}} \qquad (\text{Hertz-Knudsen-Formel}) \tag{1}$$

Mit Annahme 2 ist die Adsoptionsrate auch proportional zur Zahl der unbesetzten Plätze bzw zu $(1 - \theta)$, woraus folgt:

$$\frac{dN_{Ads}}{dt} = k_{Ads} \cdot \Re \cdot (1 - \theta) \tag{2}$$

Die Desorptionsrate ist bei konstanter Temperatur nur proportional zur Zahl der schon adsorbierten Teilchen bzw zum Bedeckungsgrad θ :

$$\frac{dN_{Des}}{dt} = k_{Des} \cdot \theta \tag{3}$$

 k_{Ads} und k_{Des} stellen die jeweiligen Proportionalitätskonstanten dar.

Im Sorptionsgleichgewicht sind Adsorptions- und Desorptionsrate gleich. Durch Gleichsetzen von Gleichung 2 und 3 erhält man somit:

$$\theta = \frac{K \cdot p}{1 + K \cdot p} \tag{4}$$

K ist dabei die Langmuirkonstante
$$K = \frac{k_{Ads}}{k_{Des} \cdot \sqrt{2\pi \cdot m \cdot R \cdot T}}$$

In Abbildung 1 wird der Verlauf der Langmuirisotherme für unterschiedliche Langmuirkonstanten gezeigt. Bei hohen Drücken sind nahezu alle Adsorptionsplätze der Monoschicht besetzt, sodass die Kurve in Sättigung geht.



Abbildung 1: Verlauf der Langmuirisothermen für verschiedene Langmuirkonstanten

Bei sehr kleinem Druck ist Theta eine lineare Funktion von p. Das bedeutet, dass die Zahl der adsorbierten Gasteilchen proportional mit dem Partialdruck ansteigt. Dieser Bereich wird Henrybereich genannt.

$$n = n_{mono} \cdot \theta = H \cdot p \qquad (\text{für } K \cdot p \ll 1) \tag{5}$$

Die Proportionalitätskonstante H heißt Henrykonstante.

2.3 Henrykonstanten

Für meine Arbeit ist der Henrybereich von besonderer Bedeutung, da die Verunreinigung durch Radon immer nur in verschwindend kleiner Konzentration vorliegt und daher der Partialdruck gering ist. Im Henrybereich ist der einzige Parameter die temperaturabhängige Henrykonstante. Kennt man also die Henrykonstante des betrachteten Gases, kann man vorhersagen, wie groß die Menge sein wird, die bei einem bestimmten Druck adsorbiert wird.

In der Literatur gibt es unterschiedliche Modelle zur Bestimmung von Henrykonstanten. Bei der Adsorption an Aktivkohle haben Maurer und Mersmann [Mau00] eine empirische Gleichung für Henrykonstanten gefunden:

$$H\left[\frac{mol}{kg \cdot Pa}\right] = exp\left(\left(-0,05 + \frac{81}{T[K]}\right) \cdot \frac{T_c[K]}{\sqrt{p_c[bar]}} - 17,5\right)$$
(6)

Die numerischen Konstanten stellen den Einfluss der verwendeten Aktivkohle dar. Messungen mit verschiedenen Aktivkohlen haben aber gezeigt, dass sich diese bezüglich ihres Adsorptionsverhaltens nur unwesentlich voneinander unterscheiden. Die kritische Temperatur T_c und der kritische Druck p_c gehen aus dem Gasmischungsansatz nach Maurer hervor. Bei diesem Ansatz wird der Adsorber mit Adsorbat als Mischung nicht-idealer Gase betrachtet und durch eine van-der-Waals-Gleichung beschrieben. Gleichung 6 besagt also, dass Gase mit ähnlichem $\frac{T_c[K]}{\sqrt{p_c[bar]}}$ auch ähnliches Adsorptionsverhalten zeigen. In Tabelle 1 sind die kritischen Temperaturen und Drücke einiger Gase aufgeführt.

	T_c [K]	$p_c \; [\text{bar}]$	$\frac{T_c}{\sqrt{p_c}} \left[\frac{K}{\sqrt{bar}}\right]$
Helium	5,2	2,3	3,4
Neon	$44,\!4$	$27,\!2$	8,5
Wasserstoff	$33,\!2$	$13,\!0$	$9,\!2$
Argon	150,7	$48,\! 6$	$21,\!6$
$\operatorname{Stickstoff}$	$126,\!3$	$34,\! 0$	$21,\!6$
Sauerstoff	$154,\!8$	$50,\!8$	21,7
Krypton	$209,\!4$	$55,\!0$	28,2
Kohlendioxid	$304,\!2$	$73,\!8$	$35,\!4$
Xenon	$298,\!8$	$58,\!8$	$37,\!8$
Radon	$377,\!0$	$62,\!8$	$47,\! 6$

Tabelle 1: kritische Drücke und Temperaturen verschiedener Gase, [Sim03]

Die bisher betrachteten Modelle beschäftigten sich ausschließlich mit der Adsorption von einkomponentigen Gasen/Flüssigkeiten. Untersucht man ein Gemisch aus mehreren Komponenten wird es bedeutend schwerer ein aussagekräftiges Modell aufzustellen, besonders wenn die Komponenten ähnliche Adsorptionseigenschaften besitzen.

2.4 Radon und seine Zerfallsprodukte

Die Elemente, aus der unsere Erde besteht, entstammen Supernovaexplosionen, bei denen auch schwerere Elemente als das schwerste stabile Element Blei erzeugt werden. Die meisten dieser Elemente sind zwar so instabil, dass sie innerhalb kurzer Zeit zerfallen. Aber es gibt auch Ausnahmen mit Halbwertszeiten von Millionen oder Milliarden von Jahren. Heute gibt es noch drei dieser schweren radioaktiven Nuklide, Uran-238, Uran-235 und Thorium-232. Man spricht von den natürlichen Zerfallsreihen. Das Ausgangsnuklid zerfällt in einer langen Reihe weiterer radioaktiver Nuklide bis zu einem stabilen Endnuklid. In allen drei natürlichen Zerfallsreihen entsteht ein Isotop des radioaktiven Radonnuklids. Dabei ist das Radon-222 aus der Uran-238-Reihe am störendsten, da es mit 3,8235 Tagen eine relativ lange Halbwertszeit hat.

half life t _{1/2}	isotope decay branch, %	α-decay energy, MeV (intensity, %)**	β-decay energy, MeV (intensity, %)**	γ-emission energy, keV; (intensity, %)*
3.8235 d	²²² 86 86 ⁸ Rn 100↓α	α: 5.4895 (99.92) α: 4.986 (0.078)		γ: 511 (0.076)
3.10 m	²¹⁸ ₈₄ Po 0.020 99.980 β α	α: 6.0024 (100)	β: ΝΟ ΔΑΤΑ	ΝΟ Υ-RAYS
1.6 s 26.8 m	$\begin{array}{c} 218\\ 85\\ 85\\ 99.9 \\ 100\\ \alpha \\ \beta\end{array}$	α: 6.694 (90)	β: 0.728 (42.2) β: 0.670 (48.9) β: 1.030 (6.3)	γ:351.93 (35.1/37.6)γ:295.22 (18.2/19.3)γ:242.00 (7.12/7.43)
19.9 m	²¹⁴ Bi 0.021 99.979 α β	α: 5.452 (53.9) α: 5.516 (39.2)	 β: 3.275 (18.2) β: 1.542 (17.8) β: 1.508 (17.02) β: 1.425 (8.18) β: 1.904 (7.43) 	Y: 609.31 (44.6/46.1) Y: 1764.49 (15.1/15.4) Y: 1120.29 (14.7/15.1) Y: 1238.11 (5.78/5.79)
1.3 m 164.3 θ s	²¹⁰ ₈₁ TI ²¹⁴ Po 100 100 β α	α: 7.6868 (99.99)	β: 4.209 (30) β: 1.863 (24)	γ: 799.7 (0.0104) γ: 799.7 (0.021)
22.3 y	²¹⁰ Pb 100↓β		β: 0.017 (80) β: 0.063 (20)	γ: 46.54 (4.25)
5.013 d	²¹⁰ 8i 83 ^{Bi} 100 ↓β		β: 1.162 (99)	NO γ-RAY S
138.376 d	²¹⁰ Po 100↓α	α: 5.3043 (99.99)		γ: 803.10 (1.22≉10 ⁻³)
stable		; intensity per 100 docs	vcin couilibrium/abco	

**α-, β-decay: absolute intensity Σ \approx 100%; for intensity per 100 decays multiply by branch

Abbildung 2: Zerfallsreihe des Radon-222, [Zer]

2.5 Nachweis über Szintillation

Um die Menge an Radon zu quantifizieren misst man dessen Aktivität, also wie viele Atome pro Sekunde zerfallen. Die dabei entstehende Alphastrahlung regt in einem (anorganischen) Szintillator Elektronen an. Diese werden so vom Valenzband ins Leitungsband gehoben, wo sie sich frei durch den Szintillator bewegen können. Im Valenzband bleibt ein Loch zurück, das sich ebenfalls frei bewegen kann. Reicht die Energie nicht ganz aus, um ein Elektron ins Leitungsband zu heben, können sich auch Elektron-Loch-Paare bilden. Die Anregungszustände wandern zu sogenannten Aktivatorzentren, wo sie unter Emission von Licht wieder in den Grundzustand zurückfallen. Das Licht trifft auf die Kathode eines Photomultipliers, wo es durch den Photoeffekt Elektronen herauslösen kann. Diese Elektronen werden dann durch ein elektrisches Feld auf weitere Elektroden, sogenannte Dynoden, beschleunigt. Jedes Elektron schlägt dort mehrere Elektronen heraus, sodass es zu einer lawinenartigen Vervielfachung kommt. So entsteht an der Anode des Photomultipliers ein messbarer Stromimpuls. Die Amplitude des Impulses ist von der Energie der einfallenden Strahlung abhängig. Dies ermöglicht es zwischen Alpha- und Betastrahlung zu unterscheiden, da Betastrahlung wesentlich energieärmer ist und somit kleinere Pulse erzeugt. Mit der angeschlossenen Elektronik kann noch Form und Höhe des Pulses verändert werden. Der Zähler zählt dann jeden Puls der über eine einstellbare Schwelle hinauskommt.



Abbildung 3: Aufbau eines Szintillationszählers, [Sz]

3 Versuchsaufbau

Eine Lukaszelle besteht aus einem Szintillator und einem Photomultiplier. Der Photomultiplier wird mit Hochspannung versorgt und die Signale werden über die Elektronik ausgelesen und gezählt. Zusammengenommen ist das also ein Szintillationszähler. Mit einem Oszilloskop können die Pulse betrachtet werden und so die Einstellungen der Elektronik bezüglich der Bearbeitung der Pulsform und der Diskriminatorschwelle optimiert werden. Der Eingang zur Lukaszelle ist mit einer Glasapparatur verbunden, die im wesentlichen aus zwei, durch Ventile abtrennbare, Volumina besteht. In das untere Volumen wird später der Adsorber eingefüllt werden. Die Glasapparatur selbst ist mit einer Drehschieberpumpe und einem Druckmessgerät verbunden. Desweiteren ist ein Anschluss vorhanden, der es ermöglicht Gas einzulassen. Über eine Druckmessung kann man also, bei bekannten Volumina, eine bestimmte Menge an Gas einlassen und später wieder abpumpen. Der Gaseinlass erfolgt, indem man zunächst mit der Pumpe Vakuum in der Glasapparatur herstellt und anschließend ein mit entsprechendem Gas gefülltes Volumen an die Glasapparatur anflanscht und das Gas einfach expandieren lässt. Ebenso ist es möglich Gas mit einem Schlauch einzufüllen. Dafür muss lediglich ein entsprechender Adapter angeflanscht werden.



Abbildung 4: Versuchsaufbau



Abbildung 5: Versuchsaufbau (2)

V1=Volumen in der Lukaszelle; V2=Volumen, in das der Adsorber eingefüllt wird; 1,2,3,4 sind Ventile; V3=Volumen zwischen 1,2,3 und 4; Anschluss zur Pumpe bei Ventil 3

4 Messprinzip

Der Grundgedanke besteht in zwei Aktivitätsmessungen, einmal vor der Adsorption und einmal nach der Adsorption. Aus dem Rückgang der Aktivität kann dann auf die Stärke der Adsorption geschlossen werden. Möchte man die Adsorption von nicht radioaktiven Gasen messen, so kann man dies mit dem Druckmessgerät und dem Rückgang des Drucks machen. Als erstes muss die ganze Apparatur evakuiert werden. Dann lässt man das Gas/Gasgemisch in V3 und V1 ein und misst mit der Lukaszelle die Aktivität bzw den Druck. Danach lässt man das Gas in das mit Adsorber befüllte V2 expandieren und misst nachdem sich das Adsorptionsgleichgewicht eingestellt hat wieder die Aktivität bzw den Druck. Da sich das Volumen, in dem sich das Gas befindet, zwischen Messung eins und Messung zwei verändert hat, ändert sich der Druck bzw die Aktivität auch wenn gar keine Adsoption stattfindet. Aufgrund dieser Tatsache ist es unabdingbar die einzelnen Volumina genau zu kennen. Eine weitere Herausforderung ergibt sich dadurch, dass die Adsorption temperaturabhängig ist und man Adsorptionsisotherme bei unterschiedlichen Temperaturen aufnehmen möchte. Da die Apparatur nicht dafür ausgelegt ist, in seiner Gesamtheit auf einer anderen Temperatur als der Zimmertemperatur gehalten zu werden, wird nur der Bruchteil von V2 gekühlt/geheizt der den Adsorber beinhaltet. Dieser Umstand wirkt sich ebenso auf den Druck aus, auch wenn keine Adsorption stattfindet (siehe dazu Abschnitt 5.2). Für Temperaturen über Zimmertemperatur wurde ein Heizband, dessen Leistung man stufenweise einstellen konnte, um V2 gewickelt. Für Temperaturen unter Zimmertemperatur wurde V2 in einen Dewar mit Ethanol getaucht. Das Ethanol wurde mit flüssigem Stickstoff auf die entsprechende Temperatur gebracht. Mit einem Thermometer wurde die Temperatur kontrolliert.

5 Messungen

5.1 Bestimmung der einzelnen Volumina

Zunächst besorgt man sich ein Glasvolumen mit Ventil, welches als Testvolumen dient und an Stelle der Lukaszelle an die Glasapparatur angebracht werden kann. Das Volumen des Testgefäßes bestimmte ich durch Auslitern: Mit einer Waage ermittelt man das Gewicht des leeren Gefäßes ((98, 78 ± 0, 25)g), sowie das Gewicht, wenn das Gefäß mit Wasser gefüllt ist ((289, 14±0, 25)g). Daraus ergibt sich die Masse des Wassers, und mit der bekannten Dichte von Wasser bei Zimmertemperatur (0, 99875 ± 0, 00075) $\frac{g}{cm^3}$ kann das Volumen berechnet werden.

$$V_{Test} = \frac{(190, 36 \pm 0, 35)g}{(0,99875 \pm 0,00075)\frac{g}{cm^3}} = (190, 6 \pm 0, 4)ml$$

Wie bereits erwähnt, wird dann das Testvolumen statt der Lukaszelle eingefügt. Die ganze Apparatur wird evakuiert. Anschließend wird eine bestimmte Menge Stickstoff eingelassen und der Druck gemessen. Das Ventil des Testgefäßes wird geschlossen und der Stickstoff, der sich nicht im Testgefäß befindet, wieder abgepumpt. Da sich die Temperatur nicht ändert, gilt nach dem idealen Gasgesetz: $p \cdot V = p' \cdot V'$. Nun öffnet man das Ventil des Testgefäßes und lässt das Gas expandieren (Ventil 2 bleibt noch geschlossen). Der neue Druck wird gemessen und das "neue" Volumen kann berechnet werden: $V' = \frac{p}{p'} \cdot V$. Die Differenz zum Testvolumen entspricht dem dazugewonnenen Volumen. Jetzt öffnet man Ventil 2 und misst wieder den neuen Druck. Mit diesem Verfahren lässt sich also V2 bestimmen. Um V1 und V3 zu bestimmen stellt man wieder auf den eigentlichen Versuchsaufbau um, d.h. das Testvolumen wird wieder entfernt und die Lukaszelle angeschlossen. Nun wendet man das gleiche Verfahren an, wie eben beschrieben, nur dass man diesesmal V2 als "Testgefäß" mit bekanntem Volumen verwendet.

Tabelle 2: Volumenbestimmung von V2

	Druck [mbar]	Volumen [ml]
Testgefäß	1014 ± 1	$190, 6 \pm 0, 4$ (ausgelitert)
$Testgef\ddot{a}\pounds + Zwischenvolumen$	943 ± 1	$205,0\pm0,5$
$Testgef\ddot{a}\pounds + Zwischenvolumen + V2$	754 ± 1	$256,4\pm0,8$

Aus Tabelle 2 ergibt sich: $V2=(256,4\pm0,8)ml-(205,0\pm0,5)ml=(51,4\pm0,9)ml$

	Druck [mbar]	Volumen [ml]
V2	1101 ± 1	$51,4\pm0,9~({\rm bekannt})$
V2+V3	793 ± 1	$71,4\pm1,3$
V2+V3+V1	200 ± 1	$283,1\pm5,4$

Tabelle 3: Volumenbestimmung von V1 und V3

Das Volumen V2 wird nun mit $(13, 34 \pm 0, 01)$ g Adsorbermaterial befüllt. Da der Adsorber selbst Platz wegnimmt, wird das Volumen von V2 nocheinmal bestimmt, diesesmal in befülltem Zustand. Um dieselbe Methode, wie oben beschrieben anwenden zu können, nutzt man die Tatsche, dass Helium, als leichtestes Edelgas, bei Zimmertemperatur kaum adsorbiert wird. Es werden nun drei Messungen mit Helium bei 23,5°C (Zimmertemperatur) gemacht. Das Gas befindet sich in V1+V3, der Druck p wird gemessen. Nach Expansion in V2 (befüllt) wird der Druck p' gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 aufgeführt. Bildet man noch den Mittelwert der Messungen, so erhält man schließlich V2 (befüllt) = $(45, 6 \pm 0, 2)$ ml.

Tabelle 4: Volumenbestimmung von V2 (befüllt)

Messung	p [mbar]	p' [mbar]	V2 (befüllt) [ml]
1	1139 ± 1	952 ± 1	45, 5
2	1175 ± 1	981 ± 1	45, 8
3	869 ± 1	726 ± 1	45, 6

Zusammenfassend erhält man aus Tabelle 2, 3 und 4:

$$V1 = (211, 7 \pm 5, 6) \text{ ml}$$
$$V2 = (51, 4 \pm 0, 9) \text{ ml}$$
$$V2 = (45, 6 \pm 0, 2) \text{ ml (befüllt)}$$
$$V3 = (20, 0 \pm 1, 6) \text{ ml}$$

5.2 Korrektur des Temperatureffekts

Wie bereits im Abschnitt Messprinzip beschrieben, wird zunächst die gesamte Gasmenge N in V=V1+V3 eingelassen. V2 ist mit Adsorber befüllt und befindet sich unter Vakuum. Das Ventil wird dann geöffnet und das Gas expandiert. Ein Teil der Gasmenge wird adsorbiert werden. Um die verbleibende Gasmenge zu berechnen, muss eine Grenze zwischen den beiden unterschiedlichen Temperaturbereichen eingeführt werden (eigentlich tritt ein Temperaturgradient auf). Die Grenze wird in der nachfolgenden Skizze durch den Parameter x festgelegt. Durch die Geometrie (V2 wird zum Ventil hin schmaler) ist x begrenzt. Ein Bereich von -5 ml bis +45,6 ml ist aber möglich. Dies war ein Grund die Apparatur aus Glas zu fertigen, da Glas ein relativ schlechter Wärmeleiter ist.

In Abbildung 6 sind die beiden Situationen (vor der Adsorption und nach der Adsorption) schematisch dargestellt. Die Teilchenzahl kann in beiden Fällen über das ideale Gasgesetz berechnet werden. Nach Einstellung des Adsorptionsgleichgewichts wird eine gewisse Menge an Gasteilchen im Adsorber gebunden sein und zum Druck p' keinen Beitrag mehr leisten. Das Verhältnis $\frac{N'}{N}$ gibt also an, welcher Anteil der eingelassenen Gasmenge nicht adsorbiert wurde. Oder anders ausgedrückt: $1 - \frac{N'}{N}$ gibt den Anteil an, der von der eingelassenen Gasmenge adsorbiert wurde.



Abbildung 6: schematische Zeichnung zur Verdeutlichung

Um besser einschätzen zu können, welche Werte x annehmen kann wird im Folgenden eine Messung mit Helium bei geheiztem Adsorber (T=200°C) durchgeführt. Bei so hoher Temperatur wird kaum Helium adsorbiert, sodass N und N' gleichgesetzt werden können und nach x aufgelöst werden kann. Zunächst soll gezeigt werden, dass die adsorbierte Menge an Helium wirklich vernachlässigt werden kann. Dazu verwende ich Gleichung 6, um zunächst die Henrykonstante für Helium bei der betrachteten Temperatur zu berechnen. Die vorhergesagte adsorbierte Menge erhält man, indem man die Henrykonstante mit der Masse des Adsorbers und dem Druck (bei Adsorptionsgleichgewicht) multipliziert. Diese vergleiche ich mit der insgesamt eingelassenen Menge.

р	p'	eingelassene Menge	b erechnete	Adsorption nach Gl.6
[mbar]	[mbar]	$[10^{-3} \cdot mol]$	$[10^{-3} \cdot mol]$	[Prozent]
924 ± 1	825 ± 1	$9,4\pm0,2$	$0,\!05$	$0,53\pm0,01$
754 ± 1	665 ± 1	$7,7\pm0,2$	$0,\!03$	$0,39\pm0,01$
1563 ± 1	1381 ± 1	$15,6\pm0,4$	$0,\!07$	$0,449\pm0,002$

Tabelle 5: adsorbierter Anteil Helium bei 200°C und 13,34 g Adsorber

Nach Tabelle 5 liegt der adsorbierte Anteil bei etwa einem halben Prozent; das Gleichsetzen von N und N' ist demnach gerechtfertigt. Löst man nach x auf erhält man:

$$x = \frac{T2 \cdot V \cdot \frac{p}{p'} - T2 \cdot V - T \cdot V2}{T2 - T}$$

$$\tag{7}$$

Tabelle 6: Werte für x bei unterschiedlichen Drücken und T= 200° C

p [mbar]	p' [mbar]	x [ml]
924 ± 1	825 ± 1	-1,18
754 ± 1	665 ± 1	$7,\!25$
1563 ± 1	1381 ± 1	$6,\!00$

Für die drei durchgeführten Messungen ergeben sich die in Tabelle 6 aufgeführten Werte für x. Der Mittelwert von x ist $(4, 0 \pm 4, 5)$ ml und liegt damit im erwarteten Bereich. Dasselbe Verfahren wende ich nun bei gekühltem Adsorber (-100°C) an. Wieder überprüfe ich zunächst, ob die adsorbierte Menge vernachlässigt werden kann.

р	p'	eingelassene Menge	b erechnete	Adsorption nach Gl.6
[mbar]	[mbar]	$[10^{-3} \cdot mol]$	$[10^{-3} \cdot mol]$	[Prozent]
1033 ± 1	801 ± 1	$10,5\pm0,3$	0,1	$0,95\pm0,03$
701 ± 1	547 ± 1	$7,2\pm0,2$	0,1	$1,39\pm0,04$
1000 ± 1	774 ± 1	$10,2\pm0,3$	0,1	$0,98\pm0,003$
721 ± 1	557 ± 1	$7,4\pm0,2$	0,1	$1,35\pm0,04$

Tabelle 7: adsorbierter Anteil Helium bei -100°C und 13,34 g Adsorber

Nach Tabelle 7 liegt der adsorbierte Anteil bei -100°C lediglich bei etwa einem Prozent. Für die vier bei dieser Temperatur durchgeführten Messungen ergeben sich die in Tabelle 8 aufgeführten Werte für x.

Tabelle 8: Werte für x bei unterschiedlichen Drücken und $T=-100^{\circ}C$

p [mbar]	p' $[mbar]$	x [ml]
1033 ± 1	801 ± 1	$14,\!56$
701 ± 1	547 ± 1	$17,\!27$
1000 ± 1	774 ± 1	$13,\!78$
721 ± 1	557 ± 1	$12,\!96$

Der Mittelwert von x liegt bei $(14, 6 \pm 1, 9)$ ml.

Es fällt auf, dass $x(200^{\circ}C) < x(-100^{\circ}C)$. Das ist einleuchtend, da die Temperaturdifferenz zwischen Zimmertemperatur $(23,5^{\circ}C)$ und 200°C größer ist, als die Differenz zwi-

schen Zimmertemperatur und -100°C. Im ersten Fall erstreckt sich der Temperaturgradient über einen größeren Bereich, was gleichbedeutend mit einem kleinen x ist. Insgesamt erscheinen die Werte für x plausibel, da sie mit der geometrischen Abschätzung übereinstimmen. Für Messungen bei Temperaturen von 100°C, 50°C und -10°C gilt zudem die Einschränkung x(-100°C) $< x < (45,6\pm0,2)$ ml.

Damit die weiteren Adsorptionsmessungen konsistent druchgeführt werden können, wird an der Heiz- und Kühlprozedur nichts verändert. Das heißt, es wurde immer der gleiche Bereich von V2 geheizt/gekühlt. Die Adsorptionsisotherme wurden für einen Temperaturbereich von -100°C bis 200°C aufgenommen, sodass bei der Auswertung der Daten auf die eben gewonnenen Werte für x zurückgegriffen werden kann.

5.3 Adsorption von Stickstoff

Die ersten Adsorptionsmessungen führte ich mit Stickstoff durch, da ich mich zunächst mit der Apparatur und dem Messvorgang vertraut machen wollte. Stickstoff eignet sich dafür, da es nicht so stark adsorbiert wird wie Xenon oder Radon und damit auch wieder besser aus dem Adsorber entfernt werden kann.

Blieb noch die Frage zu klären, welchen Adsorber ich verwenden sollte. Ich entschied mich für die Aktivkohle der Firma Blücher. Diese zeichnet sich dadurch aus, dass sie mechanisch sehr stabil ist. Sie hinterlässt also keinen Staub in der Apparatur.

Abbildung 7 bis 12 zeigen die aufgenommenen Adsorptionsisotherme für die jeweiligen Temperaturen. Im betrachteten Druckbereich stimmen die Ergebnisse sehr gut mit dem linearen Zusammenhang des Henrybereichs überein.



Abbildung 7: Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei 200°C



Abbildung 8: Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei 100°C



Abbildung 9: Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei $50^{\circ}\mathrm{C}$



Abbildung 10: Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei $23,5^{\circ}C$



Abbildung 11: Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei -10°C



Abbildung 12: Stickstoff-Adsorptionsisotherme bei -100°C

Für die Abbildungen 7 bis 14 wurden die Fehler der Volumina und der Fehler von x nicht mitberücksichtig, da diese systematischer Natur sind und sich während einer Messreihe nicht veränderten. Ein systematischer Fehler würde die Gerade nur nach unten oder oben verschieben, an der Steigung, die uns interessiert, aber nichts ändern. Die Fehlerbalken in den Abbildungen ergeben sich aus der Ungenauigkeit der Druckmessung und eventuellen Temperaturschwankungen zwischen einzelnen Messpunkten.

In Tabelle 9 werden nun die experimentell gewonnenen Henrykonstanten, die gerade der Steigung in den Abbildungen entsprechen, mit denen verglichen, die sich aus Gleichung 6 für $(13,34\pm0,01)$ g Adsorber bei den entsprechenden Temperaturen ergeben. Bei hohen Temperaturen ist die Übereinstimmung sehr gut. Beachtet man, dass Gleichung 6 lediglich für einen Temperaturbereich von 0°C bis 40°C verifiziert wurde und, dass Gleichung 6 nicht auf den verwendeten Adsorber angepasst wurde, ist die Übereinstimmung insgesamt zufriedenstellend und war so nicht unbedingt zu erwarten.

T [K]	H $[10^{-8} \cdot \frac{mol}{Pa}]$, gemessen	H $[10^{-8} \cdot \frac{mol}{Pa}]$, nach Gl.6
$473,\!15$	$0,402\pm0,006$	$0,\!46$
$373,\!15$	$1,624\pm0,014$	$1,\!24$
$323,\!15$	$2,877\pm0,067$	$2,\!55$
$301,\!65$	$5,052\pm0,095$	3,76
$263,\!15$	$12,51\pm0,411$	$8,\!78$
173, 15	$234, 2 \pm 79, 45$	178

Tabelle 9: Vergleich mit der empirischen Gleichung von Maurer, Stickstoff

5.4 Adsorption von Xenon

Wie bereits in Abschnitt 2.3 erwähnt, ist die Beschreibung der Adsorption eines Gasgemisches (Xenon/Radon) weitaus schwieriger, als die Beschreibung der Adsorption von einkomponentigen Gasen. Daher untersuchte ich den Adsorber zunächst auf seine Adsorptionseigenschaften bezüglich der einzelnen Komponenten.

Die Erwartung für Xenon ist, dass es insgesamt stärker adsorbiert wird als Stickstoff und, dass die Adsorption schon bei höheren Temperaturen messbar wird.

Die Messungen mit Xenon konnten die Erwartung bestätigen. Dies spiegelte sich zum einen darin wider, dass der Adsorber bei Xenon längere Zeit geheizt (200°C) und gepumpt werden musste, um das adsorbierte Gas wieder zu entfernen, wohingegen bei Stickstoff Pumpen ausreichte. Zum anderen wurde bei einer Messung bei 180°C bereits (32 ± 7) Prozent der eingelassenen Menge an Gas (das entsprach $(3, 34 \pm 0, 7)10^{-3}$ mol) adsorbiert.

An dieser Stelle wurde auch der Ablauf zur Einstellung der Temperatur des Adsorbers optimiert. Bisher wurde die Temperatur eingestellt, während der Adsorber gepumpt wurde. Für die weiteren Messungen befüllte ich die Apparatur mit Helium, während ich die entsprechende Adsorptionstemperatur einstellte. Wurde diese erreicht, pumpte ich das Helium wieder ab und führte dann die Adsorptionsmessung wie gewohnt durch. Der Vorteil des neuen Vorgehens ist (Vakuum ist ein guter Isolator), dass der Adsorber schneller die gewünschte Temperatur annimmt.

Mit der verbesserten Vorgehensweise wurden die Adsorptionsisotherme bei 100°C (Abbildung 13) und bei 50°C (Abbildung 14) aufgenommen. Dabei musste durchschnittlich 20 Minuten gewartet werden, bis sich der Druck stabilisiert und sich ein Adsorptionsgleichgewicht einstellte. Die Zeit für Heizen und Pumpen, die es benötigte, um das adsorbierte Gas wieder von dem Adsorber zu entfernen belief sich auf 30 Minuten. Abschließend werden wieder die experimentell gewonnenen Henrykonstanten mit denen verglichen, die sich aus Gleichung 6 für (13,34 \pm 0,01)g Adsorber bei den entsprechenden Temperaturen ergeben.

Tabelle 10: Vergleich mit der empirischen Gleichung von Maurer, Xenon

T [K]	H $[10^{-7} \cdot \frac{mol}{Pa}]$, gemessen	H $\left[10^{-7} \cdot \frac{mol}{Pa}\right]$, nach Gl.6
$373,\!15$	$2,4\pm0,3$	$1,\!9$
$323,\!15$	$5,8\pm0,4$	6, 6

Die Übereinstimmung ist unter Berücksichtigung der bereits erwähnten Einschränkungen von Gleichung 6 sehr zufriedenstellend.



Abbildung 13: Xenon-Adsorptionsisotherme bei $100^{\circ}\mathrm{C}$



Abbildung 14: Xenon-Adsorptionsisotherme bei 50°C

5.5 Adsorption von Radon

Die Adsorptionsmessung von Radon erfolgt über die Aktivitätsmessung mit der Lukaszelle. Dafür muss zunächst eine geeignete Hochspannung für den Photomultiplier gefunden werden. Man misst also zunächst die Radonaktivität in Luft, die in Deutschland durchschnittlich 40Bq/m³ beträgt (ortsabhänging), und erhöht schrittweise die Hochspannung. Der Verlauf ist in Abbildung 15 zu sehen. Ist die Hochspannung groß genug bildet sich ein Plateau aus, d.h. jedes Signal wird detektiert. Erhöht man die Hochspannung weiter, wird irgendwann auch das Rauschen so stark verstärkt, dass dieses auch mitgezählt wird. Auf Grundlage von Abbildung 15 wählte ich eine Hochspannung von 900 V.



Abbildung 15: Kennlinie des Photomultipliers

Da unter den weiteren Zerfallsprodukten von Radon auch zwei Alphastrahler sind (siehe Abbildung 2), die eine relativ kurze Halbwertszeit haben, und die Lukaszelle keine Energieauflösung bietet, kann bei einer alpha-Aktivitätsmessung nicht die Aktivität von Radon allein gemessen werden. Die anfängliche Idee war deshalb, zu warten, bis sich ein radioaktives Gleichgewicht eingestellt hat. Dann haben alle drei Alphastrahler die selbe Aktivität und man muss lediglich durch drei teilen. Allerdings dauert es mehrere Stunden, bis sich dieses Gleichgewicht einstellt. Zudem ist die Ausgangssituation für die Messung vor und nach der Adsorption unterschiedlich. Bei der Messung vor der Adsorption befinden sich anfänglich keine Zerfallsprodukte im Detektor; Radon wird eingelassen und langsam stellt sich ein Gleichgewicht ein. Durch die Adsorption wird ein großer Teil des Radons weggenommen, sodass sich wiederrum ein neues Gleichgewicht einstellen muss; diesesmal befinden sich aber bereits Zerfallsprodukte im Detektor. Um die Situation des Einstellens des zweiten Gleichgewichts zu simulieren und die Wartezeit abschätzen zu können, wurde zunächst eine bestimmte Menge Radon (mit Luft) in den Detektor gegeben. Dann hat man einen Tag gewartet und überprüft, dass sich ein radioaktives Gleichgewicht eingestellt hat. Dann wurde ein gewisser Anteil an Radon abgepumpt und der Verlauf der Aktivität bis zur Einstellung eines Gleichgewichts wurde überprüft.



Abbildung 16: Verlauf der Aktivität nach Abpumpen eines Teils Radons

Der Verlauf aus Abbildung 16 wurde mit einer einfachen exponentiellen Zerfallsfunktion gefittet. Das ist zwar nicht ganz korrekt. Die eigentliche Situation ist komplexer, da sich die Aktivität aus Polonium-218 und Polonium-214 zusammensetzt, Polonium-214 aus Polonium-218 nachproduziert wird und das verbliebene Radon zu geringem Maße ebenfalls zerfällt. Dennoch beschreibt die einfache Fitfunktion den tatsächlichen Verlauf recht gut. Um abzuschätzen, wie lange man warten muss, bis sich ein Gleichgewicht einstellt, d.h. bis die Aktivität mit der Halbwertszeit von Radon abfällt, sollte diese Beschreibung genügen. Nach Abbildung 16 müsste man also ca. 6 Stunden warten, bis sich dieses Gleichgewicht eingestellt hat. Das Problem dabei ist, dass man während dieser 6 Stunden auch das Adsorptionsgleichgewicht aufrechterhalten muss; also insbesondere die Temperatur des Adsorbers konstant halten muss. Da die Kühlung nicht automatisiert abläuft, sondern über ein Ethanolbad erfolgt, müsste man während dieser Zeit ständig anwesend sein und den Ethanol mit flüssigem Stickstoff und Rühren auf konstanter Temperatur halten.

Aufgrund dieser Tatsache wurde der Versuchsaufbau wie in Abbildung 17 zu sehen modifiziert.



Abbildung 17: modifizierter Versuchsaufbau zur Messung mit Radon

Die neue Vorgehensweise ist nun wie folgt: Zunächst wird wie gewohnt Radon in die Apparatur eingelassen. Den Verlauf der Aktivität misst man über 30 Minuten hinweg mit der Lukaszelle. Dann friert man das Radon in des Gefäß 22, indem man dieses in flüssigen Stickstoff taucht. Das Radon friert an der Glasoberfläche fest. Das Ventil von Gefäß 22 wird dann geschlossen und die Lukaszelle wird gepumpt und stehen gelassen, bis die Zerfallsprodukte von Radon zerfallen sind. Ist dann der Detektor wieder einsatzbereit, lässt man das Radon wieder aus Gefäß 22 in den Detektor expandieren (zunächst ganz ohne Adsorber). Wieder wird der Verlauf der Aktivität über 30 Minuten aufgenommen. Abgesehen von dem Anteil an Radon, der über die Wartezeit zerfallen ist, sollte sich an dem Verlauf nichts geändert haben, da die Ausgangssituation vor beiden Messungen die gleiche war. Die analytische Funktion für den Verlauf der Aktivität ist nach [Z]:

$$A(t) = A_0 \cdot exp(-\lambda_a t)$$

$$+A_0 \cdot \frac{\lambda_b}{\lambda_b - \lambda_a} \cdot (exp(-\lambda_a) - exp(-\lambda_b))$$

$$+A_0 \cdot \lambda_b \lambda_c \lambda_d \cdot Y$$
(8)

$$Y = \frac{exp(-\lambda_a t)}{(\lambda_b - \lambda_a)(\lambda_c - \lambda_a)(\lambda_d - \lambda_a)} + \frac{exp(-\lambda_b t)}{(\lambda_a - \lambda_b)(\lambda_c - \lambda_b)(\lambda_d - \lambda_b)} + \frac{exp(-\lambda_c t)}{(\lambda_a - \lambda_c)(\lambda_b - \lambda_c)(\lambda_d - \lambda_c)} + \frac{exp(-\lambda_d t)}{(\lambda_a - \lambda_d)(\lambda_b - \lambda_d)(\lambda_c - \lambda_d)} + \frac{exp(-\lambda_d t)}{(\lambda_a - \lambda_d)(\lambda_d - \lambda_d)} + \frac{exp(-\lambda_d t)}{(\lambda_d - \lambda_d)} +$$

 A_0 ist dabei die Ausgangsaktivität zum Zeitpunkt t=0, sprich die Aktivität des Radons zu Beginn der Messung. Die Lambdas sind die Zerfallskonstanten der entsprechenden Zerfallsprodukte.

	Zerfallskonstanten $[min^{-1}]$
Rn^{222}	$\lambda_a = 0,000126$
Po^{218}	$\lambda_b = 0,223596$
Pb^{214}	$\lambda_c = 0,025864$
Bi^{214}	$\lambda_d = 0,034832$
Po^{214}	$\lambda_d = 2531, 274$

Zunächst versuchte ich zu überprüfen, ob mit der Methode des Ausfrierens wirklich das gesamte Radongas in das Gefäß 22 gebracht werden kann. Dazu füllte ich eine bestimmte Menge an Radon in den Detektor. Das Radon erhielt ich, indem ich Helium durch eine Radiumlösung strömen lies. Das über der Lösung stehende Radongas und das in der Flüssigkeit gelöste Radon wird dabei zusammen mit dem Helium rausgespült. (Das Helium dient bei der Messung lediglich als Trägergas und beeinflusst die Adsorption des Radons nicht.) Dann nahm ich den Aktivitätsverlauf für 20 Minuten auf und fror anschließend das Radon in das Gefäß 22. Nach einer Wartezeit von ca. 8 Stunden ließ ich das Radongas wieder in den Detektor expandieren und nahm wieder den Aktivitätsverlauf auf. Dies wiederholte ich noch dreimal, sodass ich schließlich fünf solcher Aktivitätsverläufe hatte. Jeden der Verläufe fittete ich mit der analytischen Funktion (Gleichung 8) und erhielt als Fitergebnis jeweils die Ausgangsaktivität des Radons (siehe Abbildung 18, $Z:=A_0$). Die so erhaltenen fünf Ausgangsaktivitäten geplotet gegen die Zeit sollten also mit der Halbwertszeit des Radons abfallen. Das ist auch tatsächlich der Fall, wie Abbildung 19 zeigt. Die Methode des Ausfrierens funktioniert also. Die Ausfrierzeit betrug ca. 20 Minuten.



Abbildung 18: Aktivitätsverlauf im Detektor



Abbildung 19: Abfall der Ausgangsaktivität des Radons

Zum Abschluss soll noch eine Adsorptionsmessung mit Radon bei Zimmertemperatur duchgeführt werden. Da bei der Messung mit Xenon bei 50°C schon ca. 85 Prozent der eingelassenen Menge Xenon adsorbiert wurde und da erwartet wird, dass Radon noch stärker als Xenon adsorbiert wird, habe ich die Adsorbermenge für die Messung mit Radon auf $(1,54\pm0,01)$ g reduziert. Zunächst wird die Aktivität mit der Lukaszelle gemessen, A= (46175 ± 742) Counts pro Minute. Dann wird die Aktiviät ausgefroren. Der Detektor wird gepumpt und verbleibt unter Vakuum. Das Gefäß mit dem Adsorber wird anstelle von Gefäß 26 eingefügt. Ist der Detektor wieder einsatzbereit wird zunächst das Ventil von Gefäß 22 geöffnet und das Adsorptionsgleichgewicht abgewartet. Das Ventil oberhalb des Gefäßes mit dem Adsorber wird geschlossen, damit sich der Partialdruck nicht mehr ändert, wenn das Ventil zum Detektor geöffnet wird, um die Aktivität erneut zu messen. Nach der Korrektur aufgrund der verschiedenen Volumina zwischen beiden Aktivitätsmessungen und nach Korrektur des innerhalb der Wartezeit zerfallenen Radons, ergibt sich für die Aktivität nach der Adsorption A'= (6338 ± 659) Counts pro Minute.

Es wurde also (86 ± 1) Prozent des Radons adsorbiert!

6 Ausblick

Der Versuchsaufbau ist nun soweit charakterisiert, dass Adsorptionsmessungen von einkomponentigen Gasen problemlos durchgeführt werden können. Der Messvorgang zur Adsorptionsmessung von Radon, mit Helium als Trägergas, wurde überprüft und eine erste Messung bei Zimmertemperatur wurde durchgeführt.

Daran anschließen können sich nun weitere Adsorptionsmessungen mit Radon bei unterschiedlichen Temperaturen. Der nächste Schritt ist dann die Adsorptionsmessung von Radon mit Xenon als Trägergas. Da Xenon und Radon ähnliche Adsorptionseigenschaften haben, darf man gespannt sein, welche Ergebnisse sich hierbei ergeben. Eine weitere interessante Frage ist, wie sich die Adsorptionseigenschaften ändern, wenn man den Adsorber wechselt und ob es gelingt einen Adsorber zu finden, der Radon in ausreichendem Maße aus Xenon herausfiltert.

Literatur

- [Lan18] I. Langmuir. The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum. J. Am. Chem. Soc. 40, pages 1361–1403, 1918.
- [Mau00] S. Maurer. Prediction of Single-Component Adsorption Equilibria. Herbert Utz Verlag-Wissenschaft, 2000.
- [Sim03] H. Simgen. Hochempfindlicher Nachweis radioaktiver Edelgasnuklide und natürlicher Radionuklide aus der Uran-Zerfallsreihe. PhD thesis, Universität Heidelberg, 2003.
- [Sz] Szintillationszaehler. Website. Available online at http://www-linux. gsi.de/~wolle/TELEKOLLEG/KERN/IMAGES/szintillationszaehler.gif; visited on July 20th 2011.
- Skript. Website. Available online at lch.web.psi.ch/files/lectures/ skript/Skript_Radiochemie_S_20-48.pdf; visited on July 20th 2011.
- [Zer] General view of natural decay chains. Website. Available online at http: //www.isus.de/english/content_2.htm; visited on July 20th 2011.

Erklärung

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

Heidelberg, den 31.07.2011,