

**Untersuchungen zur Reinheit von  
Szintillatorkomponenten im Rahmen des  
solaren Neutrinoexperiments BOREXINO**

Diplomarbeit  
von  
Ludwig Niedermeier

November 2000

**Technische Universität München**

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Solare Neutrinos</b> .....	<b>1</b>
1.1. Erzeugung solarer Neutrinos nach dem Standardsonnenmodell .....	1
1.2. Messung solarer Neutrinos in bisherigen Experimenten .....	3
1.2.1. Das Chlor-Experiment „Homestake“ .....	3
1.2.2. Die Gallium-Experimente „Gallex“ und „SAGE“ .....	3
1.2.3. Die Wasser-Cherenkov-Experimente „Kamiokande“ und „Superkamiokande“ .....	4
1.3. Solares Neutrinorätsel und Lösungsmöglichkeiten .....	5
1.3.1. Astrophysikalischer Lösungsansatz .....	6
1.3.2. Kernphysikalischer Lösungsansatz .....	6
1.3.3. Neutrinooszillationen .....	6
<b>2. BOREXINO</b> .....	<b>11</b>
2.1. Motivation .....	11
2.2. Konzept .....	11
2.3. Aufbau des Detektors .....	13
2.4. Untergrundproblematik durch Radionuklide .....	16
2.4.1. Metalle .....	16
2.4.2. Edelgase .....	17
2.4.3. $^{14}\text{C}$ und $^3\text{H}$ als Bausteine organischer Stoffe .....	17
2.4.4. Myoninduzierte Radionuklide .....	18
2.5. Counting Test Facility (CTF) .....	19
<b>3. Das Liquid-Handling-System „Modul zero“</b> .....	<b>21</b>
3.1. Elemente und funktioneller Aufbau des „Modul zero“ .....	21
3.1.1. Versorgung .....	21
3.1.2. Elemente .....	21
3.1.3. Flüssigkeitssystem .....	29
3.1.4. Stickstoffsystem .....	31
3.1.5. Sicherheitselemente .....	31
3.2. Mögliche Liquid-Handling-Prozesse .....	33
3.2.1. Prozesse innerhalb des „Modul zero“ .....	33
3.2.2. "Modul zero" im übergeordneten Liquid-Handling-System des BOREXINO .....	34
3.3. Technische Realisierung des „Modul zero“ unter Berücksichtigung der Reinheitsanforderungen des BOREXINO-Experiments .....	35
3.3.1. Anforderungen an verwendete Materialien und Elemente .....	35
3.3.2. Methoden zur Gewährleistung der Reinheit des Systems .....	36
3.4. Technischer Plan des „Modul zero“ .....	37

<b>4. Reinigung von Pseudocumol mit Chromatographiesäulen aus Silicagel .....</b>	<b>38</b>
4.1. Säulenchromatographie als Reinigungsmöglichkeit .....	38
4.1.1. Motivation im Rahmen von BOREXINO .....	38
4.1.2. Aufbau einer Chromatographieanlage .....	41
4.1.3. Chemische Grundlagen mit Silicagel als Adsorber .....	41
4.2. Test der Reinigungseffizienz einer Silicagelsäule im Labor .....	44
4.2.1. Motivation .....	44
4.2.2. Grundlegendes .....	44
4.2.3. Experimentelle Realisierung .....	45
4.2.4. Auswertung der Daten .....	48
4.2.5. Ergebnisse .....	52
4.2.6. Vergleich mit Ergebnissen vorangegangener Messungen .....	53
4.3. Flußmessungen in Silicagelsäulen .....	55
4.3.1. Motivation .....	55
4.3.2. Theoretische Grundlagen .....	55
4.3.3. Aufbau des Versuchs .....	57
4.3.4. Ergebnisse .....	59
4.3.5. Deutung der Ergebnisse mit Bezug zur Theorie .....	60
4.4. Fazit .....	66
<b>5. Radon als Verunreinigung bei Chromatographiesäulenverfahren .....</b>	<b>67</b>
5.1. Einführung .....	67
5.1.1. Problemstellung bezüglich BOREXINO .....	67
5.1.2. Aktivitätsentwicklung durch Emanation .....	67
5.2. Verringerung des radoninduzierten Untergrunds in "Modul zero" .....	69
5.2.1. Lösungsmöglichkeiten .....	69
5.2.2. Effizienz des N <sub>2</sub> -Blubbers .....	69
5.2.3. Zeitlicher Verlauf des Reinigungsvorgangs .....	70
5.2.4. Radoninduzierter <sup>210</sup> Pb-Untergrund .....	74
5.2.5. Schlußfolgerungen .....	76
5.2.6. Betrachtung im Hinblick auf die Untergrundgrenze von BOREXINO .....	78
5.3. Auslösen von Radon durch N <sub>2</sub> -Blubbern als Laborexperiment .....	80
5.3.1. Motivation und experimentelle Realisierung .....	80
5.3.2. Ergebnisse .....	83
5.4. Bestimmung der Radon-Emanationsrate von Silicagel .....	84
5.4.1. Emanationsanlage .....	85
5.4.2. Aktivitätsmessung mit Zählrohren .....	87
5.4.3. Auswertung und Ergebnis der Messungen .....	89
5.4.4. Vergleichswerte bisheriger Messungen mit Silicagel .....	90

# Übersicht

Die Untersuchungen dieser Arbeit behandeln größtenteils Fragestellungen, die in Verbindung mit Komponenten des Flüssigkeitshandhabungssystems "Modul zero" als Teil des solaren Neutrinoexperiments BOREXINO entstehen.

Die ersten beiden Kapitel gehen im allgemeinen auf das Problem der solaren Neutrinos sowie im speziellen auf das Experiment BOREXINO als Rahmen dieser Diplomarbeit ein.

"Modul zero" soll u.a. eingesetzt werden, um die für BOREXINO geforderten Reinheitsbedingungen des Flüssigszintillators zu erreichen. Kapitel 3 gibt einen Überblick über die Systematik von "Modul zero", seine Komponenten sowie seine Kommunikation mit anderen Teilsystemen des BOREXINO-Experiments.

Kapitel 4 stellt mit der Säulenchromatographie die in "Modul zero" grundlegend zur Anwendung kommende Reinigungsmethode vor. Mit verschiedenen Adsorberfüllungen durchgeführte Labortestreihen bzgl. Durchfluß und Reinigungsfähigkeit sollen dieses Thema näher beleuchten.

Die Emanation radioaktiver Verunreinigungen als Hauptproblem der Säulenchromatographie wird in Kapitel 5 betrachtet. Unter anderem wird zur Reduzierung der emanierten Aktivität die Wirksamkeit eines zusätzlichen Reinigungsschrittes innerhalb "Modul zero" untersucht.



Die Nettoreaktion lautet:  $4\ ^1\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow\ ^4\text{He}^{2+} + 2\nu_{\text{e}} + 26,73\ \text{MeV}$

Die dabei entstehenden Neutrinos werden als solare Neutrinos bezeichnet und tragen durchschnittlich etwa 3% der freiwerdenden Energie mit sich. Aufgrund der geringen Wechselwirkungsrate von Neutrinos mit Materie können sie trotz der gewaltigen Masse der umgebenden Sonnenhülle nach außen gelangen. Die Energie der einzelnen Neutrinos hängt von ihrer Entstehungsreaktion innerhalb des pp-Zyklus ab und ist zusammen mit dem jeweiligen Fluß in Abb. 1.2 veranschaulicht. Der Fluß hängt ab von den jeweiligen Wirkungsquerschnitten der einzelnen Reaktionen bei der vom SSM vorhergesagten Temperatur im Zentrum der Sonne, sowie von den Verzweigungsverhältnissen zwischen den Reaktionen. Es besteht ein grundsätzlicher Unterschied zwischen monoenergetischen  $\nu$ -Linien und kontinuierlichen  $\nu$ -Spektren. Dabei wird die  $\nu$ -Energie bei den Entstehungsreaktionen aus Abb. 1.1, wo außer dem Neutrino nur ein weiteres Teilchen frei wird, durch Impuls- und Energiesatz auf eine monoenergetische Linie<sup>1</sup> festgelegt. Wird zusätzlich mehr als ein Teilchen frei, so kann die Energie beliebig auf diese verteilt werden und man erhält ein kontinuierliches Spektrum.

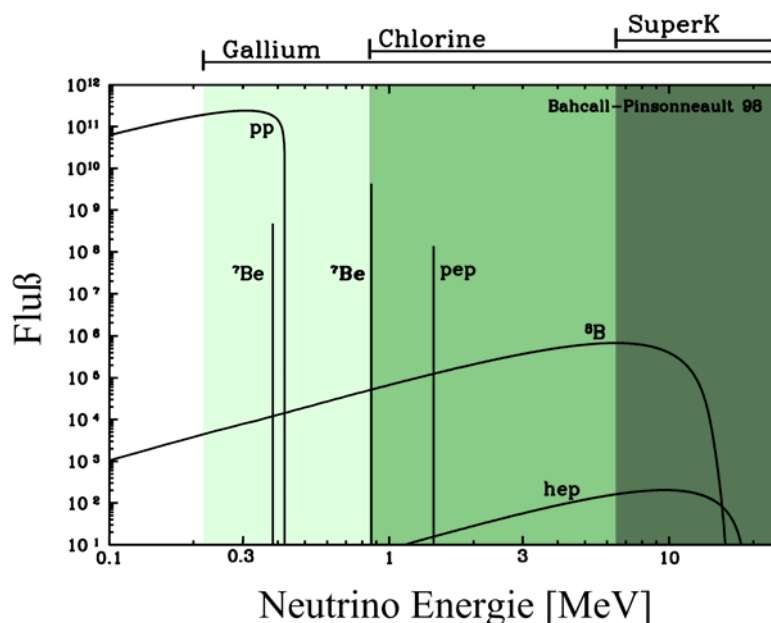


Abb. 1.2: Fluß solarer Neutrinos (Einheit:  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  für monoenergetische Linien, sowie  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{MeV}^{-1}$  für kontinuierliche Spektren) in Abhängigkeit von ihrer Energie nach [Bah98]. Die unterschiedlichen Farbtöne zeigen die Energieschwellen der in Kapitel 1.2 beschriebenen Experimente.

Der Grund für die Existenz zweier verschiedener  $^7\text{Be}$ -NeutrinoLinien (384 keV, 862 keV) liegt darin, daß zu 90% der Grundzustand und zu 10% ein angeregter Zustand des  $^7\text{Li}$  bevölkert wird. Die folgende Tabelle veranschaulicht nochmals die Abhängigkeit der Neutrino-Flüsse vom Sonnenmodell. Die Summe der im pp-Zyklus freigesetzten Energie wird durch die Leuchtkraft der Sonne festgelegt. Auf diese Weise ist zumindest der Fluß der pp-Neutrinos relativ genau bekannt, da 99.75% der He-Fusionen über die pp-Reaktion verlaufen. Mit der Variation des Sonnenmodells können sich allerdings die Verhältnisse zwischen den verschiedenen Arten der solaren Neutrinos verschieben, im Wesentlichen abhängig von der Temperatur im Sonnenkern.

<sup>1</sup> temperaturverbreitert im Bereich einiger keV

Fluß	[BBP98]	[Tur93]	[Cas99]	[Shi94]	[Dar96]
pp $\left[\frac{10^{10}}{\text{cm}^2 \text{s}}\right]$	$5,94 \pm 0,06$	6,0	6,0	6,1	6,1
$^7\text{Be}$ $\left[\frac{10^9}{\text{cm}^2 \text{s}}\right]$	$4,80 \pm 0,432$	4,33	$4,81 \pm 1,05$	3,9	3,7
$^8\text{B}$ $\left[\frac{10^6}{\text{cm}^2 \text{s}}\right]$	$5,15 \pm_{0,721}^{0,978}$	$4,4 \pm 1$	$5,96 \pm 2,44$	3,0	2,49
pep $\left[\frac{10^8}{\text{cm}^2 \text{s}}\right]$	$1,39 \pm 0,013$	-	-	-	1,43

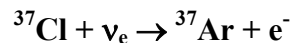
Tab. 1.1: Flüsse monoenergetischer Neutrinos für verschiedene Sonnenmodelle (entnommen aus [Hen99]).

Der bereits erwähnte CNO-Zyklus produziert ebenfalls solare Neutrinos, aber wegen der Dominanz des pp-Zyklus in geringeren Mengen.

## 1.2. Messung solarer Neutrinos in bisherigen Experimenten

### 1.2.1. Das Chlor-Experiment „Homestake“

Das erste Experiment zur Messung des solaren Neutrinoflusses, „Homestake“, startete 1968 und benutzt folgende Reaktion des inversen  $\beta$ -Zerfalls:

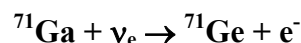


Die Energieschwelle für diese Reaktion beträgt 814 keV, so daß u.a. die niederenergetischen pp-Neutrinos nicht erfaßt werden. Es wird nur der Flavourzustand  $\nu_e$  nachgewiesen. Ferner enthält der Detektor keine Möglichkeit zur Energiebestimmung. Das  $^{37}\text{Cl}$  wird in Form eines 615t  $\text{C}_2\text{Cl}_4$  umfassenden Tanks dem Neutrinofluß ausgesetzt. Die Abschirmung vor der kosmischen Strahlung beträgt 4200 Meter Wasseräquivalent (mwe). Dazu befindet sich die Versuchsanordnung in einer Mine des Bergwerkes „Homestake“, USA. Das entstehende  $^{37}\text{Ar}$  ist instabil mit einer Halbwertszeit von 35 Tagen. Nach einer Expositionsdauer von mehreren Monaten wird es (als Gas) mithilfe von Helium ausgelöst. Die Aktivität wird mit Proportionalzählern gemessen.

Der aus dem SSM erwartete Wert beträgt  $7,7_{-1,0}^{+1,2}$  SNU<sup>1</sup> [BBP98]. Dagegen wurde eine Ereignisrate von  $2,55 \pm 0,25$  SNU gemessen [Dav98], also  $(33 \pm 6)\%$  davon [Cle97].

### 1.2.2. Die Gallium-Experimente „Gallex“ und „SAGE“

Diese beiden Experimente benutzen ebenfalls einen inversen  $\beta$ -Zerfall:



Die Energieschwelle hierfür beträgt nur 233 keV. Somit sind dies die einzigen Experimente, die bisher einen Teil des Flusses der pp-Neutrinos messen konnten. Dies ist besonders wichtig, da der  $\nu_{\text{pp}}$ -Fluß relativ genau bekannt ist (s. Kap. 1.1). Die Energie der Neutrinos ist nicht detektierbar. Wiederum wird nur der Flavourzustand  $\nu_e$  nachgewiesen.

<sup>1</sup> SNU: 1 Ereignis pro s und pro  $10^{36}$  Targetkerne

Gallex befindet sich im Gran Sasso - Untergrundlabor (Italien) in einer Tiefe von 3600 mwe. Als Target dienen 30t Gallium-Atome in einer salzsauren  $\text{GaCl}_3$ -Lösung. Das instabile  $^{71}\text{Ge}$  ( $t_{1/2}=11,4$  d) wird als gasförmiges  $\text{GeCl}_4$  alle 3-4 Wochen mit Hilfe von Stickstoff extrahiert, zum Zählgas  $\text{GeH}_4$  synthetisiert und in Proportionalzählrohren gemessen. Gallex begann 1991 und wird seit 1997 unter dem Namen GNO weitergeführt.

Nach [GAL99] beträgt die Ereignisrate in Gallex:  $77,5 \pm 7,7$  SNU

SAGE (1990-1997) befindet sich in Baksan (Kaukasus) in einer Tiefe von 4700 mwe und verwendet 60t Gallium in metallischer Form. Durch mehrere chemische Schritte kann das entstehende  $^{71}\text{Ge}$  ebenfalls zu  $\text{GeH}_4$  verarbeitet werden und mit Proportionalzählrohren gemessen werden.

Die Ereignisrate für SAGE beträgt nach [SAG95]:  $69 \pm 12$  SNU

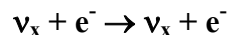
Die Messungen der beiden voneinander unabhängigen Experimente stimmen somit im Rahmen der Unsicherheiten überein. Außerdem wurden beide mithilfe einer  $^{51}\text{Cr}$ -Neutrinoquelle geeicht.

Die theoretisch erwartete Ereignisrate dagegen beträgt nach [BBP98] für beide Experimente:  $129_{-6}^{+8}$  SNU

Somit weist Gallex ( $60 \pm 7$ )% [GAL99] nach, SAGE ( $52 \pm 7$ )% [SAG99].

### 1.2.3. Die Wasser-Cherenkov-Experimente „Kamiokande“ und „Superkamiokande“

Hier werden Neutrinos direkt nachgewiesen über die folgende Reaktion der elastischen Streuung an Elektronen in Wasser:



Im allgemeinen ist die  $\nu$ -Streuung an Elektronen für alle drei Flavours gleichermaßen möglich. Sie kann über das Z-Boson (neutraler Strom) oder das W-Boson (geladener Strom) erfolgen. Im Fall solarer Neutrinos ist die zweite Möglichkeit allerdings auf das  $\nu_e$  beschränkt. Der Grund liegt darin, daß die Energie solarer Neutrinos zur Bildung von Myonen oder Tauonen über den geladenen Strom nicht ausreicht. Als Folge erhält man einen etwa sechsfachen Wirkungsquerschnitt für die Streuung der  $\nu_e$  im Verhältnis zu den  $\nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$ .

Die Detektion der gestreuten Elektronen geschieht über die Cherenkov-Strahlung in Wasser. Dabei bleibt sowohl die Energieinformation als auch die Richtungsinformation des Neutrinos teilweise erhalten, beeinträchtigt durch die Energie- und Winkelverteilung aufgrund der Streuung. Die Neutrinoereignisse sind allerdings im Vergleich zu Untergründereignissen wenig signifikant, was die untere Energiegrenze für den Neutrino-Nachweis beträchtlich erhöht. Unter Ausnutzung der Richtungsinformation im Vergleich mit dem momentanen Stand der Sonne läßt sich bei Superkamiokande eine Grenze im Bereich von 6-7 MeV erreichen. Es können also nur die  $^8\text{B}$ - und die hep-Neutrinos nachgewiesen werden.

„Superkamiokande“ (ab 1996) und sein Vorgänger „Kamiokande“ (1987-1995) befinden sich in der Kamioka-Mine (Japan) in einer Tiefe von 2700 mwe. Der Vorteil von Superkamiokande besteht in seiner Größe von 50000 t Reinstwasser (davon 22500 t effektives



Detektorvolumen (FV)) gegenüber 2142 t (davon 681 t FV) bei Kamiokande. Zur Detektion des Cherenkov-Lichts enthält Superkamiokande ca. 13000 Photomultiplier.

Die Neutrinorate in Kamiokande beträgt nach [Fuk96]:  $(2,82 \pm 0,19_{[\text{stat.}]} \pm 0,33_{[\text{syst.}]}) \cdot 10^6$   $\nu_e/\text{cm}^2\text{s}$

Die Neutrinorate in Superkamiokande beträgt nach [Suz00]:  $(2,40 \pm 0,03_{[\text{stat.}]}^{+0,08}_{-0,07} [\text{syst.}]) \cdot 10^6$   $\nu_e/\text{cm}^2\text{s}$

Der theoretisch vorhergesagte Wert beträgt dagegen [BBP98]:  $(5,15^{+0,98}_{-0,72}) \cdot 10^6$   $\nu_e/\text{cm}^2\text{s}$

Kamiokande weist  $(55^{+13}_{-11})\%$  [Fuk96] davon nach, der neueste Wert von Superkamiokande nach 1117 Tagen Meßzeit liegt bei  $46,5\% \pm 0,5\%(\text{stat.})^{+1,5\%}_{-1,3\%}(\text{syst.})$  [Suz00].

Unter dem Gesichtspunkt von Neutrinooszillationen (Kap. 1.3.3) sind bzgl. Superkamiokande folgende Betrachtungen interessant:

Die Berechnung der hier genannten Neutrinoraten geschah unter der Annahme des  $\nu_e$ -Wirkungsquerschnittes bei den am Nachweis beteiligten Wechselwirkungen.

Da in Superkamiokande die Zeitinformation der Ereignisse erhalten bleibt, kann eine Tag-Nacht-Variation der Zählrate festgestellt werden. Die Asymmetrie beträgt [Suz00]:

$$\frac{R_D - R_N}{\frac{1}{2}(R_D + R_N)} = -0,034 \pm 0,022(\text{stat.})^{+0,015}_{-0,013}(\text{syst.})$$

Eine jahreszeitliche Schwankung kann bei der vorhandenen Statistik noch nicht festgestellt werden.

Die Energierekonstruktion erlaubt eine Aufnahme des Spektrums der  $^8\text{B}$ -Neutrinos. Ein Vergleich mit dem theoretischen Spektrum des Standardsonnenmodells ergab  $\chi^2=13,7/17$  bei 69% C.L. [Suz00]. Da  $\chi^2 < 1$ , ist eine eventuelle Deformation des Spektrums nicht signifikant.

### 1.3. Solares Neutrinorätsel und Lösungsmöglichkeiten

Das solare Neutrinorätsel kann in drei voneinander unabhängige Rätsel aufgeteilt werden [Hag00a]:

- Sämtliche in Abschnitt 1.2 beschriebenen Experimente weisen verglichen mit der theoretischen Vorhersage des Standardsonnenmodells eine zu niedrige Neutrinorate auf. Ferner unterscheiden sich die verschiedenen Prozentsätze, die in verschiedenen Bereichen der Neutrinoenergie zustande gekommen sind, signifikant.
- Man kann versuchen, das erste Problem durch eine Abänderung des SSM zu lösen. Dabei darf allerdings der Beitrag durch die pp-Neutrinos (57% der Gallex-Gesamtrate: 73 SNU) nicht reduziert werden, denn dieser ist durch die genau bekannte Leuchtkraft der Sonne gesichert. Leitet man nun aus Superkamiokande die Rate der  $^8\text{B}$ -Neutrinos ab, so kann man diese zu dem pp-Beitrag hinzuaddieren. Für Gallex und SAGE würde dies zu einer Rate von 79 SNU allein aus pp und  $^8\text{B}$  führen, was mit den  $72 \pm 5$  SNU im Mittel aus beiden Experimenten gerade noch verträglich wäre. Allerdings würde dies ein vollständiges Fehlen der  $^7\text{Be}$ -Rate (laut SSM 26% der Gallex-Gesamtrate: 34 SNU) bedeuten. Andererseits kommen aber die  $^7\text{Be}$ - und  $^8\text{B}$ -Neutrinos im selben Teilzyklus aus Abb. 1.1 vor, wobei das Auftreten dieses Teilzyklus durch den Nachweis der  $^8\text{B}$ -Neutrinos in Superkamiokande gesichert ist.

- Man kann nun erneut davon ausgehen, daß nach Superkamiokande der  $^8\text{B}$ -Beitrag um etwa die Hälfte reduziert ist. Für Homestake bedeutet dies  $3 \pm 0,5$  SNU. Verglichen mit der gemessenen Gesamtrate von Homestake ( $2,56 \pm 0,22$  SNU) wäre dies noch verträglich. Addiert man nun aber auch noch die Beiträge der  $^7\text{Be}$ -, pep- und CNO-Neutrinos entsprechend ihren prozentualen Beiträgen zur Homestake-Rate hinzu, so gelangt man mit insgesamt 4,8 SNU deutlich über den gemessenen Wert.

### 1.3.1. Astrophysikalischer Lösungsansatz

Eine astrophysikalische Lösung des Problems würde durch eine Veränderung des Sonnenmodells geschehen. Dieses hätte eine andere Kerntemperatur der Sonne zur Folge, so daß sich andere Fusionsraten ergeben, da diese temperaturabhängig sind. Die meisten Erklärungsversuche des solaren Neutrinorätsels beinhalten eine niedrigere Sonnentemperatur, was eine noch dominantere pp-Neutrinorate im Verhältnis zu den anderen zur Folge hat. U.a. würde sich aber der  $^8\text{B}$ -Neutrinofluß wegen seiner stärkeren Temperaturabhängigkeit im Verhältnis zum  $^7\text{Be}$ -Neutrinofluß stärker reduzieren [Bah96]. Das solare Neutrinorätsel beinhaltet jedoch ein Fehlen der  $^7\text{Be}$ -Neutrinos und einen Nachweis der  $^8\text{B}$ -Neutrinos. Dazu kommt, daß das existierende Standardsonnenmodell im Gegensatz zu anderen durch helioseismologische Messungen des SOHO-Satelliten bestätigt wird [Bah97]. Aus diesen Gründen scheidet eine astrophysikalische Lösungsmöglichkeit des solaren Neutrinorätsels weitgehend aus.

### 1.3.2. Kernphysikalischer Lösungsansatz

Die Kernphysik legt die Wirkungsquerschnitte der in Abb. 1.1 beteiligten Kernfusionen fest. Fusionsraten mit den beteiligten Kernen wurden zwar bereits an Beschleunigern experimentell überprüft, allerdings mit Ausnahme des LUNA-Experiments in wesentlich höheren Energiebereichen als der thermischen Energie in der Sonne. Insofern muß die Theorie auf die relevanten Energiebereiche ausgedehnt werden ohne experimentelle Bestätigung, was ein gewisses Risiko in sich birgt, z.B. im Falle vorhandener Resonanzen im Wirkungsquerschnitt.

Trotzdem stehen kernphysikalische Erklärungsversuche im Widerspruch zu den neuesten Messungen der LUNA-Kollaboration [LUN98] sowie zu [Mot94], wie in [Hag00a] ausführlicher beschrieben wird. In [Bah99] wird die Möglichkeit einer kernphysikalischen Lösung ebenfalls ausgeschlossen.

### 1.3.3. Neutrinooszillationen

Die Theorie der Neutrinooszillationen ist ein vielversprechender teilchenphysikalischer Erklärungsversuch des solaren Neutrinorätsels. Dabei ist es nötig, das Standardmodell der Teilchenphysik in der Weise abzuändern, daß die verschiedenen Neutrino flavours unterschiedliche Ruhemassen besitzen.

#### a) Vakuumoszillationen

Ausgangspunkt der Theorie ist im Rahmen der Quantenmechanik die Existenz zweier verschiedener Basen von Neutrino flavour-Eigenzuständen. Dabei besteht die eine Basis aus den (meist gebräuchlichen) Eigenzuständen bzgl. der schwachen Wechselwirkung  $\nu_e$ ,  $\nu_\mu$ ,  $\nu_\tau$ . Die andere Basis wird gebildet aus den Eigenzuständen der freien Bewegung im Vakuum  $\nu_1$ ,  $\nu_2$ ,  $\nu_3$ . Die beiden Basen existieren im selben dreidimensionalen Flavour-Raum und seien gegeneinander verdrehte Orthonormalbasen. Zur Beschreibung dieser Verdrehung sind drei

konstante Parameter nötig, die sogenannten Mischungswinkel  $\theta_1, \theta_2, \theta_3$ . Entsteht nun am Ort A (z.B. Sonne) im Rahmen der schwachen Wechselwirkung ein  $\nu_e$ , so nimmt dieses zu seiner Fortbewegung im Vakuum die dem  $\nu_e$  entsprechende Mischung der Zustände  $\nu_1, \nu_2, \nu_3$  an, abhängig von den Mischungswinkeln. Haben  $\nu_1, \nu_2$  und  $\nu_3$  nun verschiedene Ruhemassen  $m_1, m_2, m_3$ , so propagieren die einzelnen Eigenzustände der Neutrinoquelle mit einer unterschiedlichen Wellenlänge. Dadurch verändert sich das Mischungsverhältnis zwischen  $\nu_1, \nu_2$  und  $\nu_3$  ständig, entsprechend einer Oszillation des Neutrino-Zustandsvektors im dreidimensionalen Flavour-Raum. Beteiligt sich das Neutrino nun an einem zweiten Ort B (z.B. Erde) erneut an einer schwachen Wechselwirkung, so muß dies wieder in der Eigenschaft eines Zustandes  $\nu_e, \nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$  geschehen. Aufgrund der Oszillation des Mischungsverhältnisses zwischen  $\nu_1, \nu_2$  und  $\nu_3$  kann das Neutrino nun allerdings auch den Zustand  $\nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$  annehmen. Auf diese Weise kann sich ein ehemaliges  $\nu_e$  als  $\nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$  verhalten. Die Leptonflavourzahl ist dann nicht mehr erhalten.

In vereinfachter Weise ist dieses Szenario auch schon bei einer Anzahl von zwei Neutrino-Flavours möglich. Im zweidimensionalen Flavour-Raum existiert allerdings nur ein einziger Mischungswinkel  $\theta$ . Für diesen Fall seien im folgenden die quantenmechanischen Übergangswahrscheinlichkeiten  $P$  zwischen den Neutrino-Flavours angegeben.

$$\begin{pmatrix} |\nu_e\rangle \\ |\nu_\mu\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\nu_1\rangle \\ |\nu_2\rangle \end{pmatrix}$$

$$P_{\nu_e \rightarrow \nu_e}(x) \approx 1 - \frac{1}{2}(\sin 2\theta)^2 \cdot \left( 1 - \cos\left( \frac{|m_1^2 - m_2^2|}{2E} \cdot x \right) \right)$$

$$P_{\nu_e \rightarrow \nu_\mu}(x) \approx \frac{1}{2}(\sin 2\theta)^2 \cdot \left( 1 - \cos\left( \frac{|m_1^2 - m_2^2|}{2E} \cdot x \right) \right)$$

Darin ist  $E$  die Gesamtenergie des Neutrinos, sowie  $x$  der Abstand zwischen den Wechselwirkungsorten A und B. Die anderen Bezeichnungen wurden oben aus dem Abschnitt übernommen. Eine wichtige Eigenschaft besteht in der Energieabhängigkeit der Übergangswahrscheinlichkeiten und der daraus folgenden Neutrinoraten. Unter anderem besteht ja das solare Neutrinorätsel darin, daß für Neutrinos unterschiedlicher Energie verschiedene Prozentsätze der SSM-Raten nachgewiesen wurden. Als Voraussetzung für Neutrinooszillationen sieht man die beiden Bedingungen  $\Delta m^2 = |m_1^2 - m_2^2| \neq 0$  und  $\theta \neq 0$ .

#### b) Materieoszillationen (MSW-Effekt)

Bezüglich der Vakuum-eigenzustände  $\nu_1, \nu_2$  aus der 2-dim. Darstellung in Abschnitt a) gilt:

$$\frac{1}{2p} \begin{pmatrix} m_1^2 & 0 \\ 0 & m_2^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\nu_1\rangle \\ |\nu_2\rangle \end{pmatrix} = H_V \cdot \begin{pmatrix} |\nu_1\rangle \\ |\nu_2\rangle \end{pmatrix} \quad [\text{Schm97}]$$

Dabei ist  $H_V$  der Vakuum-Hamiltonoperator bzgl. des 2-dim. Flavour-Raums,  $\nu_1$  und  $\nu_2$  seine Eigenzustände, die Massen  $m_1$  und  $m_2$  seine Eigenwerte sowie  $p$  der Neutrinoimpuls. In dieser Darstellung, der Eigenvektoren als Basis, ist  $H_V$  diagonal. Um das Verhalten in Materie zu betrachten, muß in  $H_V$  ein zusätzlicher Term für die schwache Wechselwirkung

hinzugefügt werden. Da stabile Materie Elektronen und keine Myonen enthält, können im Energiebereich der solaren Neutrinos lediglich die  $\nu_e$  über den geladenen Strom wechselwirken, so daß die Wechselwirkung bezüglich  $\nu_e$  und  $\nu_\mu$  Unterschiede im Wirkungsquerschnitt aufweist. Deshalb wird der zu  $H_V$  hinzugefügte Wechselwirkungsterm bezüglich der Flavours asymmetrisch sein. Als Folge werden die Eigenzustände für die Bewegung in Materie  $\nu_{1m}$ ,  $\nu_{2m}$  verdreht. Gegenüber  $\nu_e$ ,  $\nu_\mu$  stellt sich dann ein anderer Mischungswinkel  $\theta_m$  ein:

$$\begin{pmatrix} |\nu_e\rangle \\ |\nu_\mu\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta_m & \sin\theta_m \\ -\sin\theta_m & \cos\theta_m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\nu_{1m}\rangle \\ |\nu_{2m}\rangle \end{pmatrix}$$

Die Massen werden als Eigenwerte ebenfalls verändert zu sogenannten effektiven Massen, die die Kräfte aus den Wechselwirkungen mit einschließen. Ist die Rate der kohärenten Vorwärtsstreuung (abhängig von der Elektronendichte und der Neutrinoenergie) groß genug, so übersteigt die effektive Masse des  $\nu_e$  in der Materie diejenige des  $\nu_\mu$ . Dies ist für bestimmte Parameter  $m_1$ ,  $m_2$  im Innern der Sonne der Fall. Insbesondere gibt es dann auch eine Stelle, an der die effektiven Massen von  $\nu_e$  und  $\nu_\mu$  gleich groß sind. In diesem Übergangsbereich kann ein sich nach außen bewegendes  $\nu_e$  in ein  $\nu_\mu$  konvertiert werden und umgekehrt, falls die sogenannte Adiabazitätsbedingung eingehalten wird. Dazu darf die Änderung der Elektronendichte verglichen mit einer Neutrinooszillationsperiode nicht allzu groß sein [Schm97]. Inwieweit die beiden Bedingungen bzgl. der Adiabazität und der Rate der kohärenten Vorwärtsstreuung erfüllt sind, hängt u.a. von der Energie des Neutrinos ab. Deshalb zeigen die Übergangswahrscheinlichkeiten bei Materieoszillationen eine starke Energieabhängigkeit:

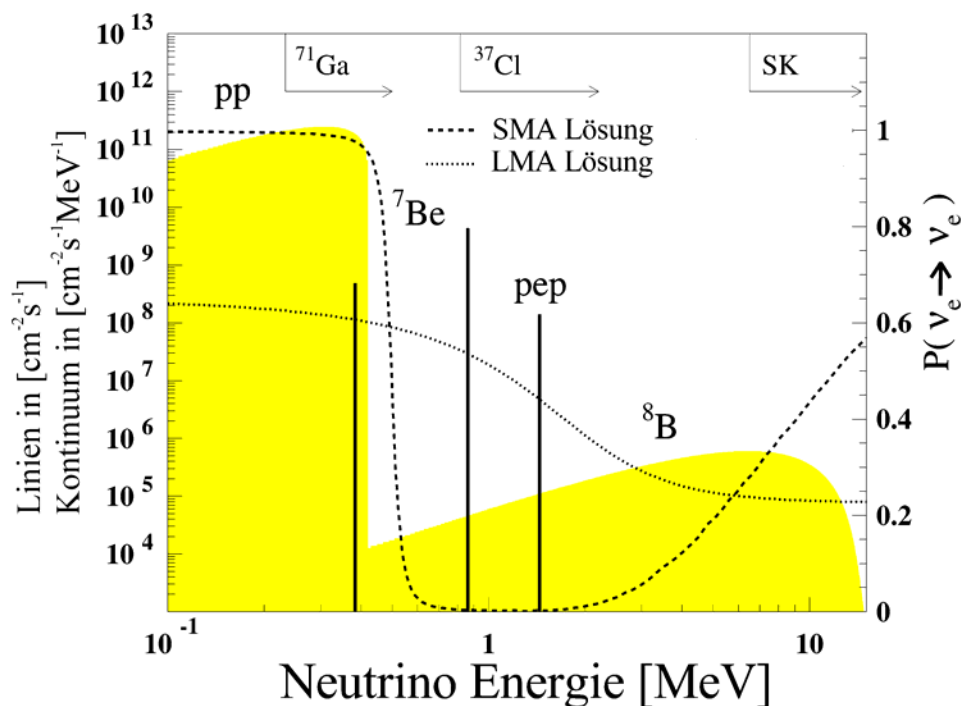


Abb. 1.3: Die gestrichelten Linien zeigen die energieabhängige Überlebenswahrscheinlichkeit solarer  $\nu_e$ 's für die Parameter  $(\theta, \Delta m^2)$  der beiden MSW-Lösungen SMA und LMA. Zum Vergleich ist das Energiespektrum der solaren Neutrinos mit eingezeichnet (entnommen aus [BOR00]).

Bedingung für Materieoszillationen ist außerdem ein endlicher Vakuum-Mischungswinkel  $\theta \neq 0$  [Schm97].

Die Wechselwirkung von  $\nu_\mu$  und  $\nu_\tau$  ist in Materie gleich. Deshalb gilt das Gesagte ebenso für das Paar  $\nu_e, \nu_\tau$ .  $\nu_\mu$  und  $\nu_\tau$  können auf diese Weise allerdings nicht ineinander verwandelt werden.

Um die Auswirkungen auf den Neutrinofluß auf der Erde zu untersuchen, muß natürlich die anschließende Vakuumoszillation auf dem Weg zwischen Sonne und Erde zusätzlich berücksichtigt werden.

Materieoszillationen innerhalb der Erde sind ebenfalls denkbar. Sie könnten als Erklärung für die von Superkamiokande festgestellte Tag-Nacht-Variation der Zählrate dienen, denn die unterschiedlich langen Strecken der Neutrinos durch die Erdmaterie würden zu geringfügig unterschiedlichen Raten führen.

### c) Lösungsversuch des solaren Neutrinorätsels

Die eben beschriebene Theorie enthält als unbekannte Parameter im Fall dreier Neutrino-Flavours die drei Massen  $m_1, m_2, m_3$  sowie die drei Mischungswinkel  $\theta_1, \theta_2, \theta_3$ . Die Parameter der Materieoszillationen sind nicht frei, sondern gehen über die Wechselwirkungstheorie und das Standardsonnenmodell aus den obigen sechs hervor. Folgende Darstellungen in der  $\Delta m^2 - (\sin 2\theta)^2$ -Ebene (Abb. 1.4, 1.5) veranschaulichen diejenigen Wertepaare, die mit den gemessenen Neutrinoflüssen der bisherigen solaren Neutrinoexperimente aus Kapitel 1.2 verträglich sind. Die Informationen bzgl. des  $^8\text{B}$ -Spektrums und des Tag-Nacht-Effekts sind darin noch nicht enthalten.

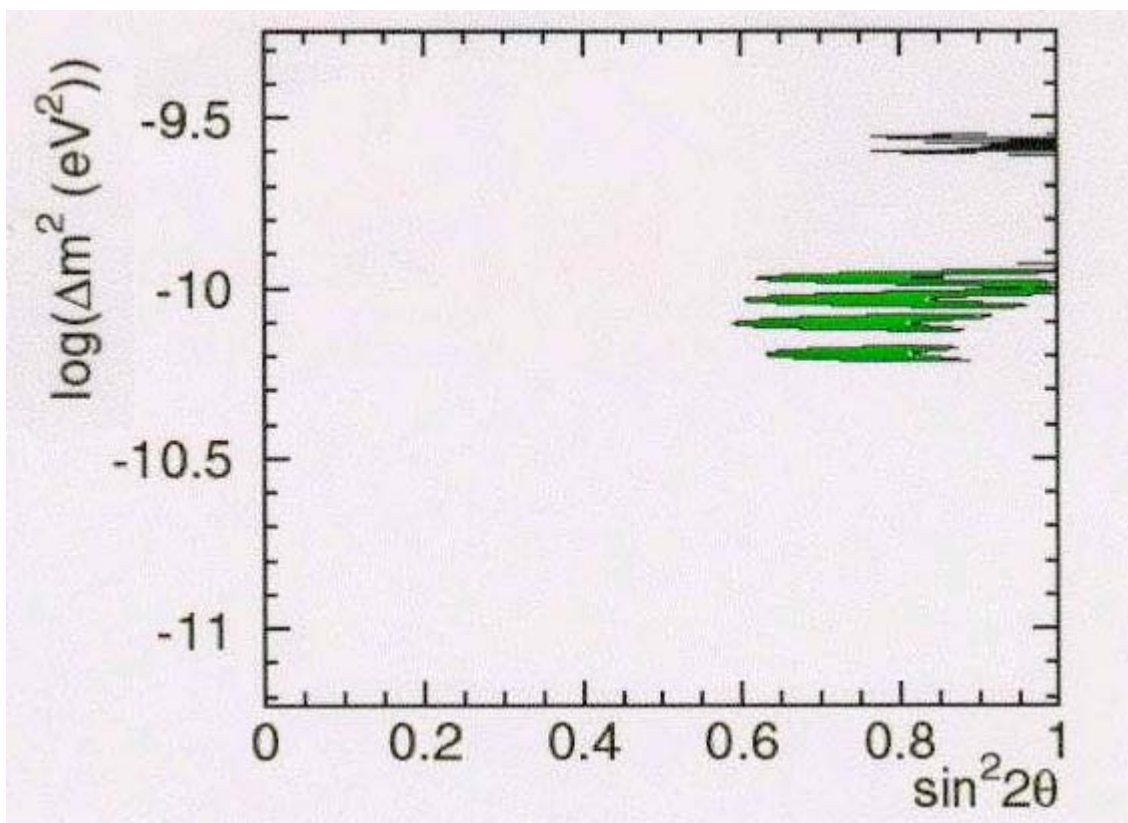


Abb. 1.4: Aufgrund von Vakuumoszillationen verträgliche  $\Delta m^2 - (\sin 2\theta)^2$ -Wertepaare unter Berücksichtigung des in den Experimenten Homestake, Gallex, SAGE und Superkamiokande

gemessenen globalen Neutrino fluxes [Suz00]. Die grün gefärbten Bereiche entsprechen 95% C.L.

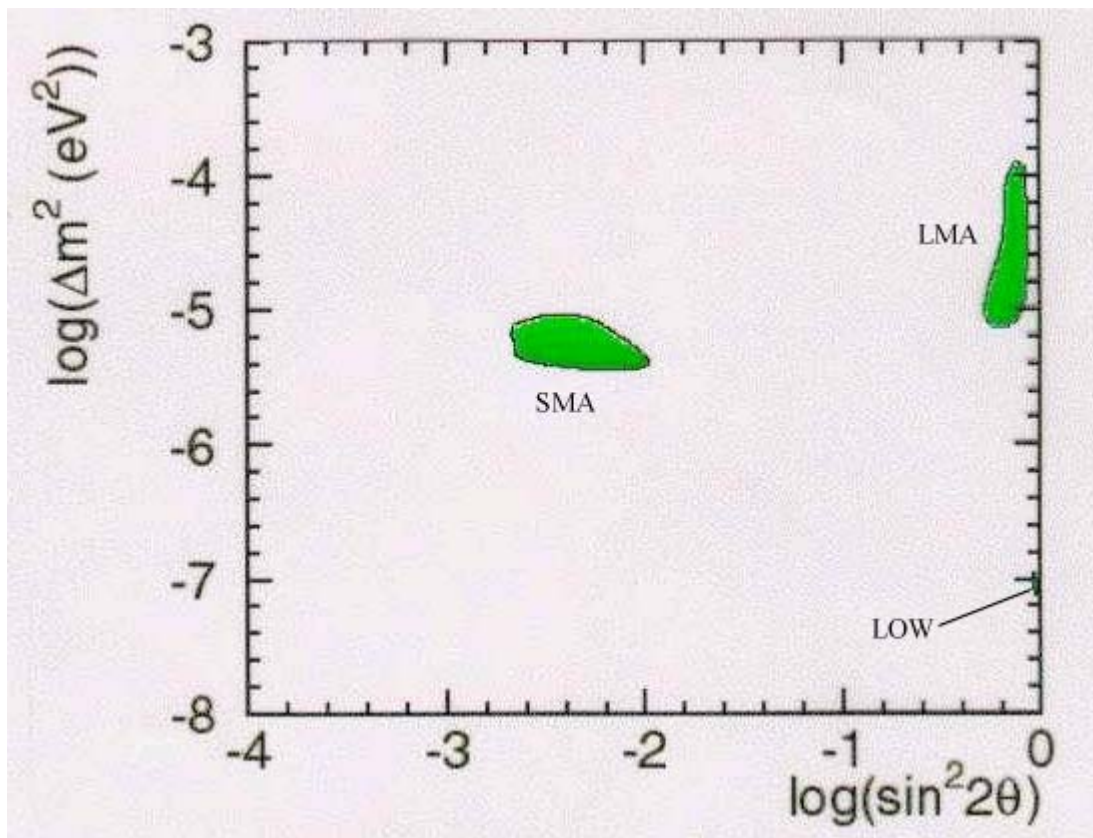


Abb. 1.5: Aufgrund von Materieoszillationen verträgliche  $\Delta m^2$ - $(\sin 2\theta)^2$ -Wertepaare unter Berücksichtigung des in den Experimenten Homestake, Gallex, SAGE und Superkamiokande gemessenen globalen Neutrino fluxes [Suz00]. Die grün gefärbten Bereiche entsprechen 95% C.L. SMA bedeutet Small Mixing Angle, LMA Large Mixing Angle.

Superkamiokande schließt allerdings die Bereiche der SMA- und Vakuumlösungen wegen der  $^8\text{B}$ -Spektrumsinformation und des Tag-Nacht-Effekts mit 95% C.L. aus [Suz00]. Alle verwendeten Superkamiokande-Daten entstanden nach einer Meßzeit von 1117 Tagen.

## 2. BOREXINO

### 2.1. Motivation

Ein beträchtlicher Teil des solaren Neutrinorätsels besteht darin, daß die gemessenen Raten der bisherigen Experimente keinen Platz lassen für einen signifikanten Beitrag der  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos (s. Kap. 1.3). Dessen Existenz wird bisher nur auf theoretische Weise durch das Standardsonnenmodell vorhergesagt. Deshalb wäre es wichtig, die Rate der  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos unabhängig von den Raten anderer solarer Neutrinos zu messen. Diese Zielsetzung soll von BOREXINO erfüllt werden.

Die in den Abb. 1.4, 1.5 für möglich gehaltenen Lösungen des solaren Neutrinorätsel über Neutrinooszillationen teilen sich in vier Bereiche innerhalb der  $(\sin^2 2\theta - \Delta m^2)$ -Ebene auf: LMA, SMA, LOW sowie Vakuumlösungen. Für diese Bereiche werden insbesondere verschiedene Unterdrückungsfaktoren im Energiebereich der  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinos, also verschiedene  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinoraten vorhergesagt:

Neutrinoquelle	SSM [ $\text{d}^{-1}$ ]	LMA [ $\text{d}^{-1}$ ]	SMA [ $\text{d}^{-1}$ ]	LOW [ $\text{d}^{-1}$ ]
pp	0,22	0,15	0,08	0,13
${}^7\text{Be}$	43,3	24,4	9,20	22,8
pep	2,0	0,95	0,39	1,03
${}^{13}\text{N}$	4,0	2,27	0,87	2,13
${}^{15}\text{O}$	5,5	2,86	1,12	2,86
${}^{17}\text{F}$	0,07	0,03	0,01	0,03
${}^8\text{B}$	0,08	0,03	0,04	0,04
Summe	55,2	30,7	11,7	29,0

*Tab. 2.1: In BOREXINO erwartete Neutrinoraten unter Annahme der Materieoszillationslösungen LMA, SMA, LOW sowie unter Annahme des Standardsonnenmodells (SSM) ohne Neutrinooszillationen. Die Berechnung erfolgte im Energiebereich 250-800 keV, mit 113 m<sup>3</sup> PC als Szintillator [BOR00].*

Die SMA-Lösung ist aufgrund ihrer geringen Zählrate, die von einer fast vollständigen Konvertierung  $\nu_e \rightarrow \nu_{\mu, \tau}$  kommt, eindeutig erkennbar. Die LOW-Lösung hätte zusätzlich eine Tag-Nacht-Variation der Zählrate zur Folge und ließe sich auf diese Weise von der LMA-Lösung unterscheiden. Die oben nicht aufgeführte Vakuum-Lösung beinhaltet eine Vakuum-Oszillationslänge in der Größenordnung des Abstandes Sonne-Erde und ist sehr empfindlich auf eine Schwankung dieses Abstandes. Die Zählrate würde somit jahreszeitlich variieren.

Die Bestimmung der  ${}^7\text{Be}$ -Neutrino-Rate in BOREXINO einschließlich ihrer Zeitabhängigkeit sollte also einen dieser Bereiche selektieren und die anderen drei verwerfen.

Außerdem kann in BOREXINO die Rate der Neutrinos aus den umliegenden Kernreaktoren (Entfernung ca. 800 km) nachgewiesen werden [Sch97].

### 2.2. Konzept

In BOREXINO sollen Neutrinos über folgende Reaktion der elastischen Streuung an Elektronen nachgewiesen werden:

$$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$$

Im allgemeinen ist die  $\nu$ -Streuung an Elektronen für alle drei Flavours gleichermaßen möglich. Sie kann über das Z-Boson (neutraler Strom) oder das W-Boson (geladener Strom) erfolgen. Über den geladenen Strom kann hier allerdings nur das  $\nu_e$  wechselwirken, denn ein  $\nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$  würde über das W-Boson ein  $\mu^-$  oder  $\tau^-$  erzeugen, was im Energiebereich der solaren Neutrinos nicht möglich ist. Deshalb beträgt die Nachweiswahrscheinlichkeit für das  $\nu_e$  im Vergleich zu den beiden anderen Flavours im Energiebereich 250-800 keV etwa das vier- bis fünffache. Nur aus diesem Grund werden im Fall von Neutrinooszillationen niedrigere Raten (wie in Tab. 2.1) nachgewiesen.

Die Streuung verwandelt die beiden monoenergetischen Neutrino-Linien des  ${}^7\text{Be}$  (384 keV, 862 keV) sowie diejenige der pep-Neutrinos (1442 keV) in kontinuierliche Energiespektren gestreuter Elektronen. Die maximale Rückstoßenergie eines Elektrons  $T_{\text{max}}$  ist dabei durch  $T_{\text{max}}=2E_\nu^2/(m_e c^2+2E_\nu)$  gegeben. Dies ist in Abb. 2.1 am Beispiel der  ${}^7\text{Be}$ -Linie mit  $E_\nu=862$  keV dargestellt.

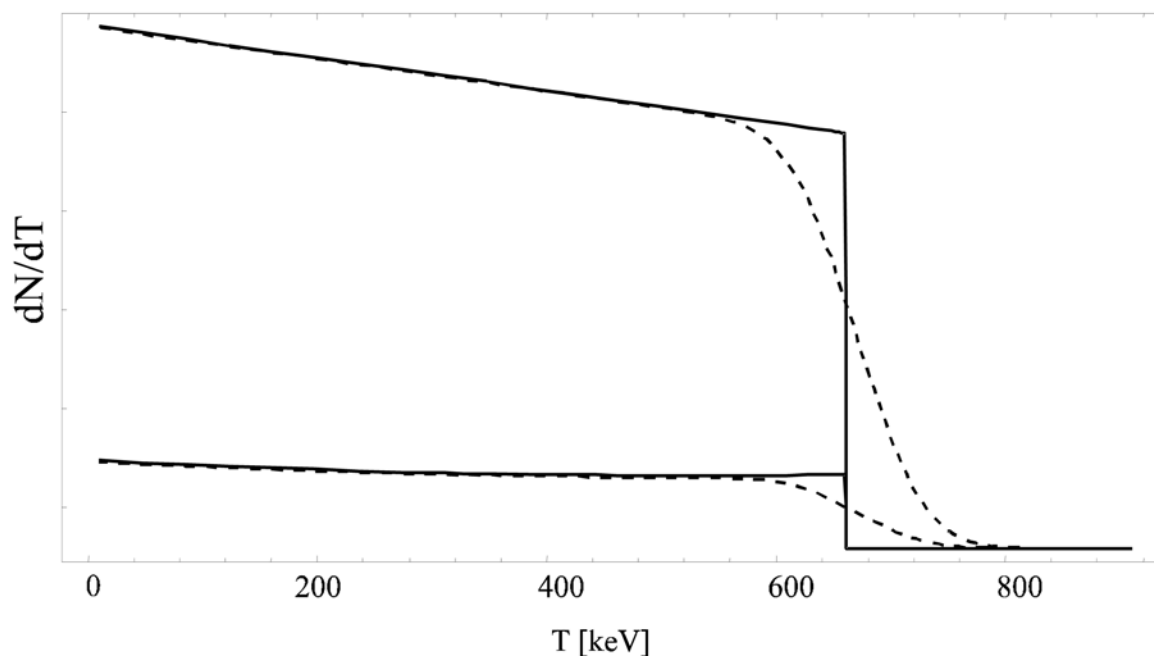


Abb. 2.1: Rückstoßspektrum der  ${}^7\text{Be}$ -Neutrinolinie von 862 keV. Die maximale Rückstoßenergie eines Elektrons beträgt 665 keV. Die gestrichelten Linien symbolisieren die Energieauflösung des Detektors. Die obere Kurve entspricht der Wechselwirkungsrate von  $\nu_e$ , die untere der von  $\nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$  (entnommen aus [Hen99]).

Zum Nachweis der gestreuten Elektronen wird ein organischer Flüssigszintillator verwendet, umgeben von Photomultipliern. Der Szintillator stellt dabei gleichzeitig das Target dar, worin die Streuung stattfindet. Im Vergleich zur Cherenkov-Methode aus Superkamiokande wird im Szintillator eine wesentlich größere Anzahl an Photonen pro Energie des gestreuten Elektrons erzeugt. Dies führt zu einer wesentlich verbesserten Energieauflösung, insbesondere im niederenergetischen Bereich zwischen 250 und 800 keV, wo die  ${}^7\text{Be}$ - $\nu$ -Ereignisse nachgewiesen werden sollen. Über Flugzeitdifferenzen des Lichts zu den in allen Raumrichtungen angeordneten Photomultipliern kann der Ort eines Ereignisses rekonstruiert werden. Das Szintillationslicht wird allerdings isotrop ausgesandt, wodurch die Richtungsinformation des Neutrinos verloren geht.



Der bei geringen Energien zunehmende Untergrund legt die Nachweisschwelle bei etwa 200 keV fest. Deshalb kann das Rückstoßspektrum der zweiten  ${}^7\text{Be}$ -Neutrino-Linie ( $T_{\text{max}}=230$  keV) nicht mehr erfaßt werden. Ein Nachweis der pep-Neutrinos im Energiefenster von 800-1500 keV wird für möglich gehalten, ist aber aufgrund der geringen pep-Rate schwierig. Ebenfalls wird an einen Nachweis der  ${}^8\text{B}$ -Neutrinos im Bereich zwischen 3 und 5,5 MeV gedacht.

### 2.3. Aufbau des Detektors

BOREXINO steht in der Halle C des Gran-Sasso-Untergrundlabors ca. 100 km östlich von Rom (Italien). Die Abschirmung darin beträgt 3600 mwe. Abbildung 2.2 gibt einen Überblick über die Räumlichkeiten in der Halle.

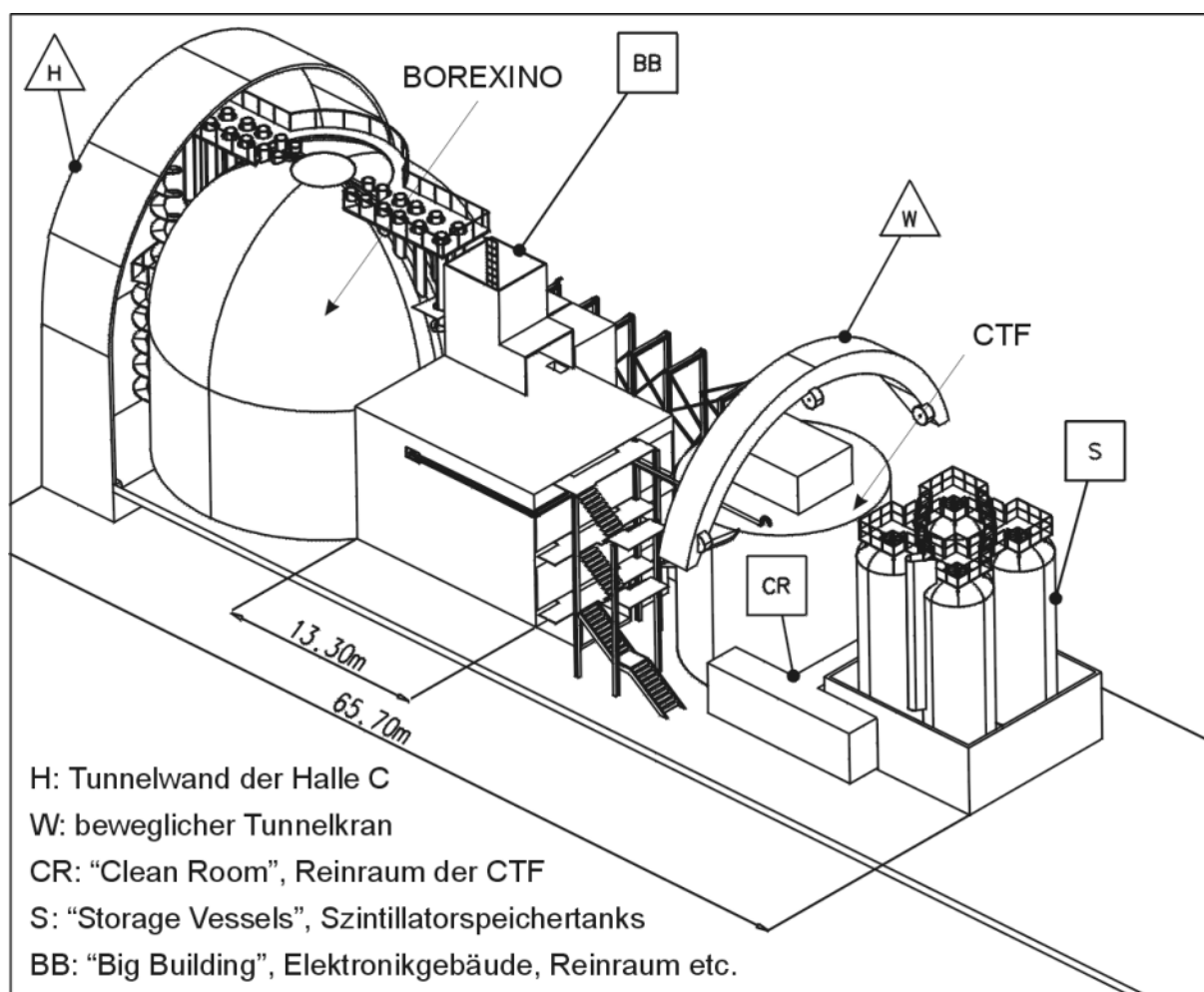


Abb. 2.2: Räumlichkeiten der Halle C des Gran-Sasso-Untergrundlabors [BOR00]. Das „East-Building“ mit „Modul zero“, von dem in Kapitel 3 die Rede sein wird, befindet sich rechts neben dem mit BB gekennzeichneten „Big Building“ zwischen CTF und BOREXINO.

Der Detektoraufbau des BOREXINO ähnelt einer sog. „Zwiebelschalenstruktur“ (s. Abb. 2.3), wobei die Anforderungen bzgl. der Reinheit von außen nach innen zunehmen.

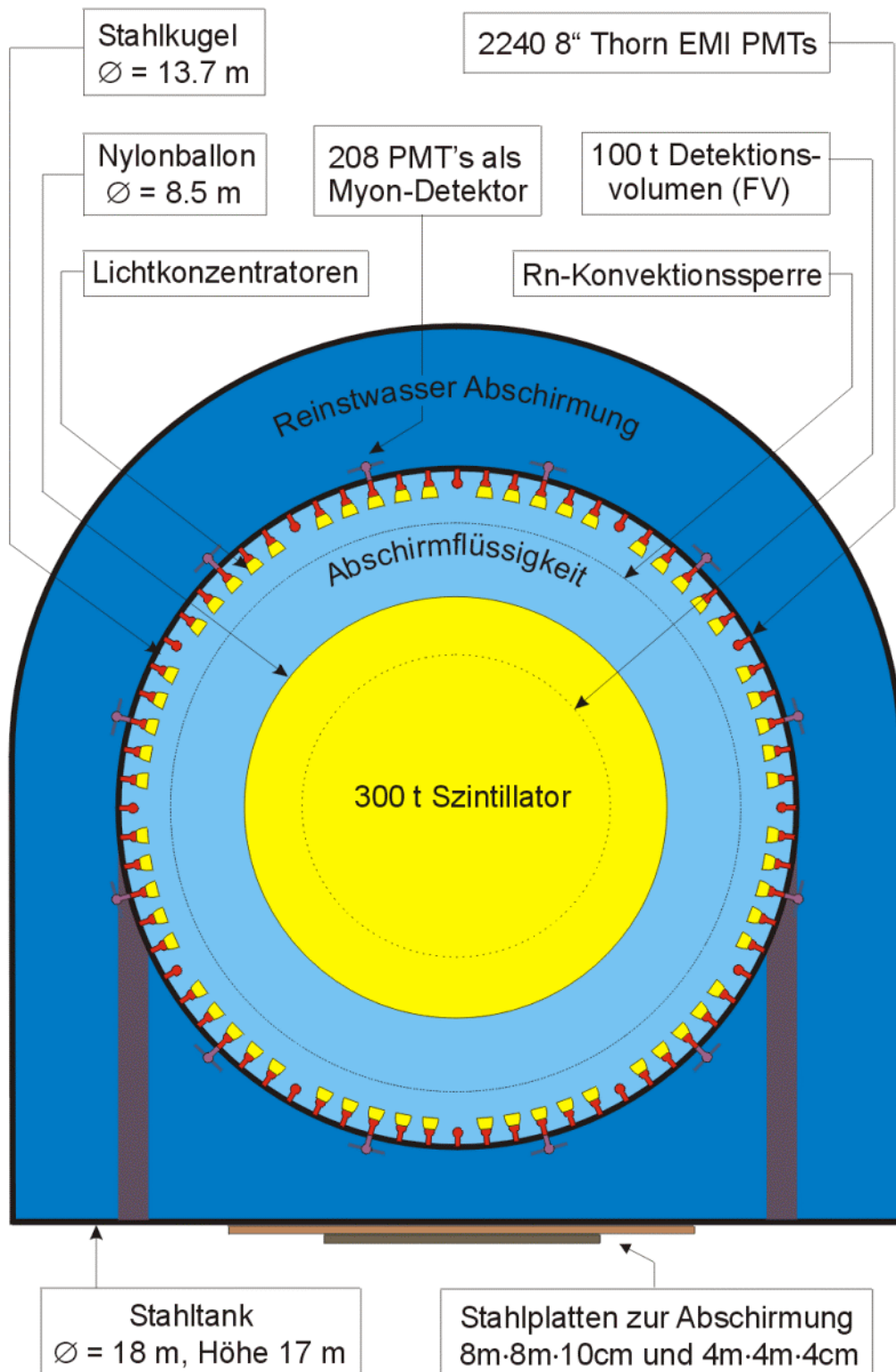


Abb. 2.3: Schematischer Querschnitt durch den BOREXINO-Detektor (entnommen aus [Hag00a])

Das Zentrum des Detektors bildet ein kugelförmiges Volumen aus Flüssigszintillator. Vorgesehen dafür ist das organische Lösungsmittel 1,2,4-Trimethylbenzol ( $C_9H_{12}$ ), auch bekannt unter dem Namen Pseudocumol (PC). Um zu verhindern, daß davon ausgesandtes Szintillationslicht vom selben Stoff ständig wieder absorbiert und reemittiert wird, muß ein

Wellenlängenschieber beigemischt werden. Hier wird 2,5-Diphenyloxazol (PPO) in einer Konzentration von 1,5 g/l verwendet. Eine Alternative zu dieser PC-PPO-Mischung bildet das ebenfalls organische Lösungsmittel Phenyl-o-xylylethan (PXE, C<sub>16</sub>H<sub>18</sub>). Diesem müssen die beiden Wellenlängenschieber p-Diphenylbenzol (pTP) und 1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol (Bis-MSB) beigemischt werden. Die beschriebenen Szintillatoren senden Licht im Wellenlängenbereich von etwa 400 nm aus.

Der Szintillator muß die restriktivsten Reinheitsanforderungen innerhalb der gesamten Versuchsanordnung erfüllen (s. Tab. 4.1). Er umfaßt ein Volumen von 322 m<sup>3</sup> und wird begrenzt von einem Nylonballon („Inner Vessel“, IV). Zur Datennahme sollen allerdings unter Verwendung der Ortsrekonstruktion nur die Ereignisse in den inneren ≈100m<sup>3</sup> des Szintillators („Fiducial Volume“, FV) verwendet werden, da man im äußeren Bereich vermehrt Ereignisse erwartet, die von radioaktiven Verunreinigungen im Material der Inner Vessel ausgehen.

Außerhalb der Inner Vessel schließt sich eine kugelschalenförmige, transparente Flüssigkeitsschicht an, die zur Abschirmung des Szintillators vor radioaktiver Strahlung aus den äußeren Bauteilen des Detektors dient. Diese Abschirmflüssigkeit („Buffer“, ca. 1000m<sup>3</sup>) muß bzgl. der Reinheit weniger restriktive Bedingungen erfüllen als der Szintillator. Im Prinzip könnte als Buffer Reinstwasser verwendet werden. Ein großes Problem ergibt sich allerdings durch den Dichteunterschied zum Szintillator, dessen Kräfte von der Inner Vessel getragen werden müssen. Diese ist aus Nylon und nur begrenzt beanspruchbar. Den Dichteunterschied zwischen PC ( $\rho=0,88 \text{ g/cm}^3$ ) und Wasser hält sie nicht aus. Deshalb muß im Falle von PC als Szintillator ebenfalls PC als Buffer verwendet werden. Um das geringfügige Szintillieren von reinem PC zu unterdrücken, müßte als sog. „Quencher“ noch DMP beimischt werden. Im Falle von PXE ( $\rho=0,99 \text{ g/cm}^3$ ) als Szintillator könnte die Inner Vessel den Dichteunterschied zu Wasser allerdings aushalten. Wasser würde nicht nur aus Sicherheitsgründen das Experiment wesentlich vereinfachen, sondern aufgrund größerer Dichte im Vergleich zu PC auch eine effektivere Abschirmung darstellen. Ein Nachteil besteht jedoch in den unterschiedlichen optischen Brechungsindizes für PXE, Nylon und Wasser. Dies ergäbe zusätzliche Reflexionen sowie Erschwernisse bei der Ortsrekonstruktion.

Innerhalb der Buffer-Schicht wird eine zusätzliche Nylonhülle („Shroud“) angebracht, um die Diffusion von Radon ins Detektorinnere zu verhindern. Radon wird aus den äußeren Bauteilen des Detektors emaniert. Die Flüssigkeit inner- und außerhalb des Shroud ist dieselbe, nämlich jeweils Buffer.

Die Abschirmflüssigkeit wird begrenzt vom eigentlichen Grundgerüst des Detektors, einer Stahlkugel („Stainless Steel Sphere“, SSS). Sie kann u.a. die Kräfte aus dem Dichteunterschied zu PC aufnehmen. An ihrer Innenseite werden 2240 Photomultiplier (PMT's) befestigt, um das Szintillationslicht zu detektieren. Davon sind 1866 mit Lichtkonzentratoren ausgestattet (Begründung s. Myonveto). Diese vergrößern zum einen die Flächenabdeckung der PMT's auf ca. 30% und schränken zum anderen das Blickfeld auf die räumliche Ausdehnung der Inner Vessel ein.

Die Stahlkugel wird zusätzlich umgeben von einem weiteren Stahltank. Der Raum zwischen beiden Stahlgefäßen wird nochmals mit etwa 2500 m<sup>3</sup> Reinstwasser gefüllt. Dies dient u.a. zur Abschirmung gegen Radioaktivität aus der umgebenden Halle.

Außerdem dient das Wasser zwischen Stahlkugel und Stahltank im Rahmen des Myonvetos von BOREXINO. Dieses basiert auf dem von hochenergetischen kosmischen Myonen

verursachten Cherenkov-Effekt in Wasser. Der Myonenfluß in einer Tiefe von 3600 mwe beträgt ca.  $1,16 \text{ m}^{-2}\text{h}^{-1}$ , ihre mittlere Energie 320 GeV [Gri00]. Um die nach innen gerichtete Cherenkovstrahlung zu detektieren, werden an der Außenseite der Stahlkugel 208 Photomultiplier angebracht. Zur Vergrößerung der Lichtausbeute soll die gesamte umgebende Fläche dieses Wasserbereichs (Außenfläche Stahlkugel + Innenfläche Stahltank) mit dem Reflektormaterial Tyvek ausgekleidet werden. Darüber hinaus soll das in der Buffer-Flüssigkeit verursachte Cherenkovlicht ebenfalls im Sinne des Myonvetos registriert werden. Dazu werden 374 der an der Innenseite der Stahlkugel befindlichen PMT's nicht mit einem Konzentratoren ausgestattet, denn dieser würde den Blick auf einen großen Teil des Buffers verwehren. Man bildet das Verhältnis aller Photoelektronen in den PMT's ohne Konzentratoren dividiert durch die Gesamtlichtstärke. Dieses ist für Myonereignisse (linienförmige Spur) größer als für punktförmige Ereignisse im Szintillator. Mithilfe dieser Anordnungen können Myonsignale im Detektor zurückgewiesen werden.

## 2.4. Untergrundproblematik durch Radionuklide

Da die erwarteten neutrinoinduzierten Ereignisse keine besondere Signifikanz aufweisen, stellen Untergrundereignisse in BOREXINO das Hauptproblem dar. Insbesondere  $\beta$ - und  $\gamma$ -Ereignisse sind im Szintillator ohne weiteren Anhaltspunkt nicht von Neutrinoereignissen zu unterscheiden.  $\alpha$ -Ereignisse können aufgrund der zeitlich etwas ausgedehnteren Form ihrer verursachten Pulse als solche erkannt werden, allerdings erreicht diese „ $\alpha$ - $\beta$ -Diskrimination“ in den niedrigen Energiebereichen nur eine Effektivität von höchstens 90%. In der CTF1 wurde teilweise eine Effektivität von 97% erreicht.

Die meisten  $\beta$ -Zerfälle haben eine Endpunktenergie von über 200 keV und tragen somit zur Rate im Neutrinofenster (250-800 keV) bei. Die  $\alpha$ -Zerfälle fallen oft trotz wesentlich höheren  $\alpha$ -Energien aufgrund des  $\alpha$ -Quenchings [Bir64] ebenfalls ins Neutrinofenster. Der folgende Abschnitt gibt einen Überblick über die für Untergrundereignisse verantwortlichen Nuklide sowie Möglichkeiten zur Bekämpfung.

### 2.4.1. Metalle

Die Nuklide  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{113}\text{Cd}$ ,  $^{115}\text{In}$ ,  $^{138}\text{La}$ ,  $^{176}\text{Lu}$  sind aufgrund ihrer extrem langen Halbwertzeiten von über  $10^9$  Jahren noch auf natürliche Weise in vielen Stoffen als Verunreinigungen vorhanden.  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  produzieren entlang ihrer Zerfallsketten weitere instabile Nuklide. Dazu kommen noch die Spaltprodukte  $^{137}\text{Cs}$  ( $t_{1/2}=30\text{a}$ ) und  $^{60}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=5,3\text{a}$ ).

Gefährlichste Quellen solchen Untergrundes sind metallische Bauteile des Detektors. Metallteile werden deshalb nur im äußeren Detektorbereich verwendet, wo sie durch das Buffer-Volumen abgeschirmt werden. Trotzdem ist auf eine erhöhte Reinheit dieser Teile zu achten. Der Szintillator hat als organischer Stoff den Vorteil, daß er solche polaren Metalle in verminderter Konzentration enthält. Er ist als Flüssigkeit außerdem den Reinigungsmethoden Destillation, Wasserextraktion und Säulenchromatographie (s. Kap. 4) zugänglich, wodurch sich die erwähnten Verunreinigungskonzentrationen noch weiter reduzieren lassen. In Tab. 2.2 sind erforderliche Höchstwerte zusammengestellt.

Element	geforderte Konzentration [g/g] im Szintillator
Cd	$2,8 \cdot 10^{-9}$
In	$2,4 \cdot 10^{-12}$
K	$7,8 \cdot 10^{-15}$
La	$1,2 \cdot 10^{-12}$
Lu	$3,7 \cdot 10^{-15}$
Rb	$3,2 \cdot 10^{-14}$
U	$2,3 \cdot 10^{-17}$
Th	$5,8 \cdot 10^{-16}$

Tab. 2.2: Reinheitsanforderungen im Szintillator entsprechend einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator [BOR00].

### 2.4.2. Edelgase

Hier handelt es sich um die Radonisotope  $^{220}\text{Rn}$  ( $t_{1/2}=56\text{s}$ ) und  $^{222}\text{Rn}$  ( $t_{1/2}=3,8\text{d}$ ) aus der  $^{232}\text{Th}$ - und  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe sowie um das Spaltprodukt  $^{85}\text{Kr}$  ( $t_{1/2}=11\text{a}$ ).

Radon wird aus sämtlichen Th- und U-verunreinigten Bauteilen im äußeren Detektorbereich emaniert und in geringeren Mengen auch aus dem Nylon der Inner Vessel. Deshalb wird zum einen der bereits erwähnte „Shroud“ als Diffusionsbarriere gegenüber den äußeren Bauteilen verwendet. Zum anderen wird der Bereich verwendeter Meßdaten mit genügendem Abstand zur Inner Vessel auf das „Fiducial Volume“ beschränkt.  $^{220}\text{Rn}$  ist mit seiner kürzeren Halbwertszeit, also des kleineren Diffusionsweges weniger gefährlich als  $^{222}\text{Rn}$ . Eine ausführliche Betrachtung der Szintillatortreinheit in Bezug auf Radon findet sich in Kapitel 5. Dort wird auch diskutiert, inwieweit sich die Radon-Konzentration durch Spülen mit Stickstoff („Blubbern“) reduzieren läßt.

$^{85}\text{Kr}$  läßt sich auch mithilfe von Stickstoff ausspülen [BOR98b]. Es wird nicht von Detektorbauteilen emaniert, ist aber als Spaltprodukt in der Atmosphäre vorhanden. Deshalb ist es von größter Wichtigkeit, Lecks in den Flüssigkeitshandhabungssystemen zu vermeiden.

### 2.4.3. $^{14}\text{C}$ und $^3\text{H}$ als Bausteine organischer Stoffe

Die instabilen Isotope  $^{14}\text{C}$  ( $t_{1/2}=5730\text{a}$ ) und  $^3\text{H}$  ( $t_{1/2}=12,3\text{a}$ ) entstehen an der Erdoberfläche durch Wechselwirkungen der hadronischen Komponente der kosmischen Strahlung mit Materie. Es bildet sich eine Gleichgewichtskonzentration aus (für Kohlenstoff:  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \approx 1,2 \cdot 10^{-12}$ ), mit der sie auch als Atome in organische Verbindungen eingebaut werden.

Deshalb sind diese Kerne keiner chemischen Reinigungsmöglichkeit zugänglich.  $^3\text{H}$  ist ungefährlich, da die Endpunktenergie seines  $\beta$ -Zerfalls bei 18,6 keV weit unter dem Neutrinoenster liegt. Die Endpunktenergie des  $\beta$ -Zerfalls von  $^{14}\text{C}$  liegt allerdings bei 156,5 keV und wird durch die endliche Energieauflösung des Detektors verschmiert. In Anbetracht des Neutrinofensters von 250-800 keV wird deshalb die Reinheitsbedingung  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} < 10^{-18}$  gefordert. Man will diese bei der Szintillatorherstellung erreichen durch Verwendung von

Kohlenstoffverbindungen aus langzeitigen unterirdischen Lagerstätten, wo  $^{14}\text{C}$  mit der Halbwertszeit von 5730 Jahren zerfällt und in wesentlich geringeren Mengen nachgebildet wird. Die einzige Nachweismöglichkeit derart niedriger  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen außer dem BOREXINO-Detektor selbst ist in der CTF (s. Kap. 2.5) gegeben.

Letztendlich legt der  $^{14}\text{C}$ -Zerfall die untere Energiegrenze des BOREXINO-Detektors fest. Sowohl das Rückstoßspektrum der zweiten  $^7\text{Be}$ -Neutrinolinie (<230 keV) als auch das der pp-Neutrinos (<250 keV) fallen unter diese Grenze.

#### 2.4.4. Myoninduzierte Radionuklide

Kosmische Myonen können durch direkte Wechselwirkung mit Kernen im Szintillator ( $^{12}\text{C}$ ) andere radioaktive Kerne bilden. Außerdem können durch Myonreaktionen im Szintillator, im Detektor oder auch im umliegenden Gestein Sekundärteilchen (z.B. Neutronen) gebildet werden, die dann im Szintillator wiederum radioaktive Kerne erzeugen. Folgende Tabelle gibt einen Überblick über diese Kerne und ihre radioaktiven Signale.

Zerfallsart	Isotop	Halbwertszeit	$E_{\max}(\beta)$ in MeV	$E_{\gamma}$ in MeV; Wahrsch.
$\beta^-$	$^{12}\text{B}$	0,02 s	13,4	
	$^{11}\text{Be}$	13,80 s	11,5	
	$^{10}\text{Be}$	$1,5 \cdot 10^6$ a	0,56	
	$^{11}\text{Li}$	0,09 s	20,8	
	$^9\text{Li}$	0,18 s	13,6	
	$^8\text{Li}$	0,84 s	16,0	
	$^8\text{He}$	0,12 s	10,6	
	$^6\text{He}$	0,81 s	3,5	
$\beta^+$	$^{11}\text{C}$	20,38 min	0,96	+ 0,72; mit 98,53%
	$^{10}\text{C}$	19,30 s	1,9	
	$^9\text{C}$	0,13 s	16,0	
	$^8\text{B}$	0,77 s	13,7	
EC	$^7\text{Be}$	53,3 d	-	0,478; mit 10%

Tab. 2.3: Radioaktive Nuklide, die durch Myonen und sekundäre Schauerteilchen an  $^{12}\text{C}$ -Targets entstehen können [Fir96], [Hag00a].

Die Aktivität durch  $^{10}\text{Be}$  kann wegen der langen Halbwertszeit vernachlässigt werden.

Sämtliche Zerfälle mit einer Halbwertszeit unter einer Sekunde können in den meisten Fällen über das Myonveto eliminiert werden.

Die Kerne  $^{10}\text{C}$  und  $^{11}\text{C}$  sind  $\beta^+$ -Emitter, so daß ihr verursachtes Energiespektrum aufgrund der zusätzlichen  $e^+e^-$ -Annihilation um 1,0 MeV über dem gewöhnlichen  $\beta$ -Spektrum liegt. Sie kommen dann für den Bereich 250-800 keV nicht mehr in Betracht, allerdings ergibt  $^{11}\text{C}$  mit einer Zählrate in BOREXINO von  $7,36 \pm 0,75$  Ereignissen pro Tag [Hag00b] Probleme im Bereich der pep-Neutrinos (800-1400 keV).

$^{11}\text{Be}$  verursacht wegen seiner hohen Endpunktenergie nur sehr wenige Ereignisse im Neutrinoenster.

Das Isotop  $^7\text{Be}$  muß allerdings beachtet werden. Hier ergibt sich das Problem, daß die längere Halbwertszeit die bei der Herstellung/Anlieferung an der Erdoberfläche erzeugte Aktivität aufrecht erhält. Diese beträgt im Gleichgewicht  $10^6$  Bq in 100t Szintillator [Hen99]. Durch zweijährige Lagerung im Untergrundlabor würde sie sich auf einen erträglichen Wert in der Größenordnung von 1 Bq reduzieren. Reinigungsmöglichkeiten bzgl.  $^7\text{Be}$  sind vorstellbar, wurden aber noch nicht getestet.

## 2.5. Counting Test Facility (CTF)

Die CTF ist ein vereinfachter Prototyp des BOREXINO-Detektors und steht ebenfalls in der Halle C des Gran-Sasso-Laboratoriums (s. Abb. 2.2). Sie besteht aus einer wesentlich kleineren „Inner Vessel“ aus Nylon (4,8 m<sup>3</sup>) inmitten einer Anordnung von 100 Photomultipliern. Die Abschirmung dieses Detektorsystems übernimmt ein ca. 1000 m<sup>3</sup> Reinstwasser umfassender Stahltank.

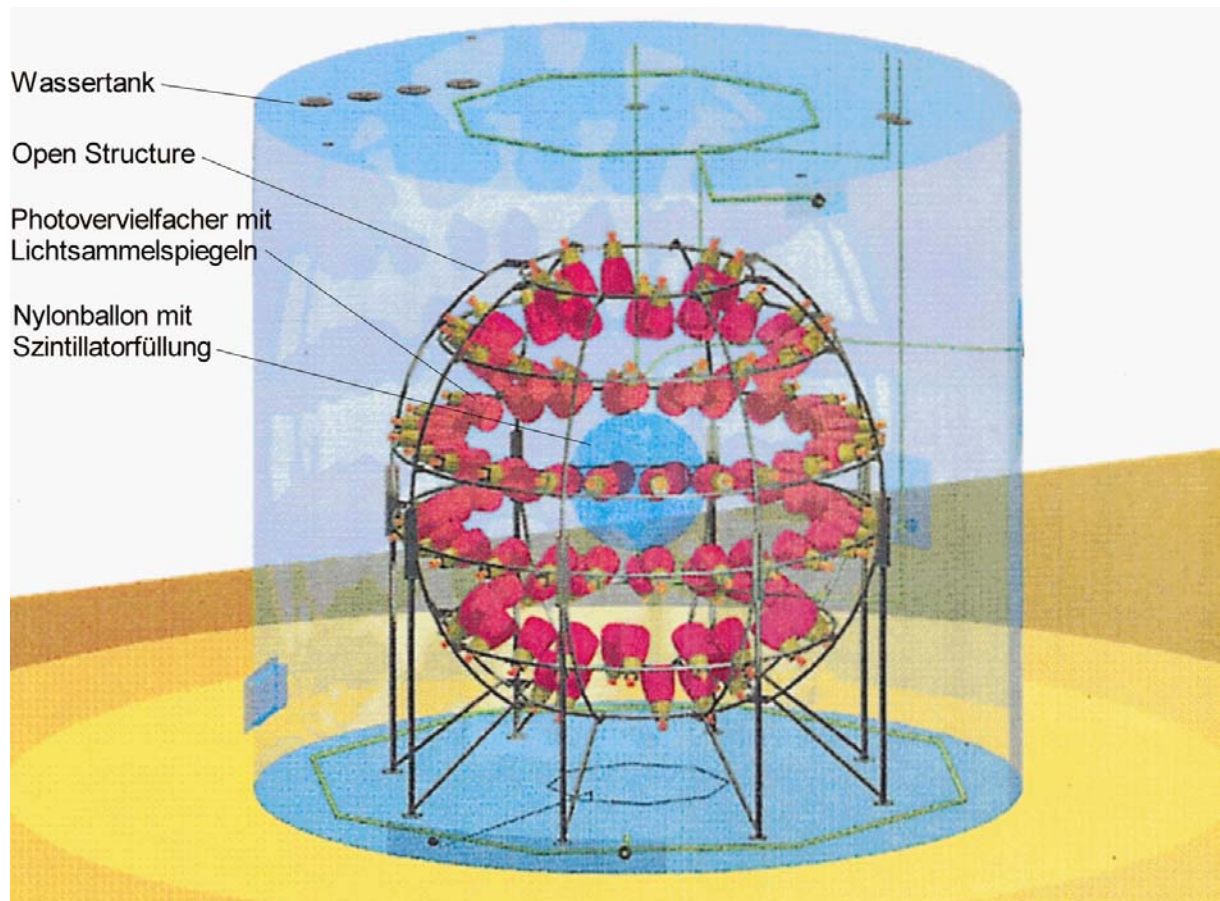


Abb. 2.4: Schematische Skizze der CTF (entnommen aus [Gri00])

Die Motivation bestand in der Untersuchung, ob die erhältlichen Szintillatoren die für BOREXINO geforderten Reinheitsbedingungen erfüllen können, evtl. nach Durchführung gewisser Reinigungsverfahren. Außerdem konnte man andere Dinge wie die chemische und physikalische Beständigkeit der Inner Vessel, der Photomultiplier und ihrer Einkapselung, Details der Elektronik (z.B.  $\alpha$ - $\beta$ -Diskrimination) sowie das Absorptionsverhalten der Szintillatoren testen.

Die erste Meßperiode (CTF1, oft auch nur CTF) dauerte von Februar 1995 bis Januar 1997. Zur Messung des myoninduzierten Untergrunds (August bis Dezember 1995) wurde ein externes Myondetektionssystem auf dem „Dach“ des Tanks angebracht, bestehend aus zwei übereinander angeordneten Vieldrahtkammern. Die Messungen ergaben die Notwendigkeit eines Myonvetos für BOREXINO [Nef96]. Die Messungen mit den Szintillatoren PC und PXE ließen erkennen, daß man die geforderten Reinheitsbedingungen erreichen kann:

	PC (+PPO)	PXE (+pTP+bisMSB)
$^{14}\text{C} / ^{12}\text{C}$	$(1,94 \pm 0,09) \cdot 10^{-18}$	$(9,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-18}$
U [g/g]	$(3,5 \pm 1,3) \cdot 10^{-16}$	$(1,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-15}$
Th [g/g]	$4,4^{+1,5}_{-1,2} \cdot 10^{-16}$	$(2,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-15}$

Tab. 2.4: In CTF1 gemessene Konzentrationen von  $^{14}\text{C}$ , U und Th in den zwei verschiedenen Szintillatoren PC und PXE. Die U- und Th-Werte gelten unter Annahme eines Zerfallsgleichgewichtes [Hag00a].

Die Bestimmung der U- und Th-Konzentrationen in der CTF geschieht über  $^{214}\text{BiPo}$ - und  $^{212}\text{BiPo}$ -Koinzidenzen unter Annahme eines Gleichgewichts in den Zerfallsketten. Eine parallel durchgeführte Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) am Forschungsreaktor (FRM1) in Garching konnte die U- und Th-Werte dagegen direkt bestimmen [Gol97], [Hen99]. Auf diese Weise kann untersucht werden, inwieweit das Zerfallsgleichgewicht in der U- und Th-Kette eingehalten wird. Dies ermöglicht eine statistische Subtraktion des U- und Th-verursachten Untergrunds in BOREXINO.

Bedingt durch den Ausfall von mehr als 80% der Photomultiplier wurden die Tests im Januar 1997 abgebrochen und die CTF geleert.

Während der folgenden rund dreijährigen Meßpause wurde zwischen Photomultiplier und Inner Vessel ein weiterer Nylonballon als Radondiffusionssperre („Shroud“) plaziert, wie auch in BOREXINO geplant. Außerdem wurde die CTF mit einem internen Myonveto ausgestattet, 16 am Tankboden nach oben gerichtete Photomultiplier. Mit diesen Einrichtungen erhofft man sich eine bessere Untergrundunterdrückung sowie einen Test des Myonvetos.

In der seit Mai 2000 laufenden Meßperiode (CTF2) wurde bisher ein erneuter Test mit dem Szintillator PXE durchgeführt. Er lieferte positive Ergebnisse bezüglich der  $\alpha$ - $\beta$ -Diskrimination und der Reinheit. Außerdem konnte im Rahmen der Szintillatorfüllungs-, entleerungs- und Säulenreinigungsvorgänge die Leistungsfähigkeit von „Modul zero“ (s. Kap. 3) bestätigt werden. Eine bezüglich der Radon-Konzentration durchgeführte Messung findet sich in Kapitel 5.2.2. In den nächsten Monaten sind weitere Tests im Rahmen von CTF2 mit dem Szintillator PC geplant. Dabei soll auch „Modul zero“ wieder verwendet werden.



## 3. Das Liquid-Handling-System „Modul zero“

"Modul zero" ist ein Teil des Flüssigkeitshandhabungssystems im Rahmen von BOREXINO. Es beinhaltet gewisse Möglichkeiten zur Speicherung und Reinigung von Flüssigkeiten. Insbesondere wird versucht, unter Verwendung von Chromatographiesäulen die an den Flüssigszintillator gestellten Reinheitsanforderungen zu erreichen. Ein technischer Plan mit sämtlichen Elementen und Bezeichnungen befindet sich in Abschnitt 3.4.

### 3.1. Elemente und funktioneller Aufbau des „Modul zero“

#### 3.1.1. Versorgung

*Wasser:*

In der Halle C des LNGS befindet sich auf der Ostseite des CTF-Tanks eine Wasserreinigungsanlage. Sie filtert Wasser, deionisiert es und ist in der Lage, es anschließend durch Spülen mit Stickstoff („Blubbern“) von radioaktiven Gasen (vor allem Radon) zu befreien. Dem „Modul zero“ steht somit Wasser einer Temperatur von etwa 10°C und eines elektrischen Widerstandes von mind. 17 MΩcm zur Verfügung [Bal96]. Bei einem maximalen Wasserfluß von ca. 2,4 m<sup>3</sup>/h sowie einem gegenströmenden maximalen Stickstofffluß in der Reinigungsanlage von 30 – 40 kg/h wird die Aktivität des Wassers auf unter 6·10<sup>-6</sup> Bq/kg reduziert [Bal96]. Verringert man den Wasserfluß auf 0,9 m<sup>3</sup>/h bei gleichbleibendem Stickstofffluß, so erreicht man 1,2·10<sup>-6</sup> Bq/kg, was die Anforderungen des für CTF1 benötigten Wassers als Abschirmflüssigkeit erfüllt [Bal96]. Die Konzentration der Elemente Uran und Thorium darin beträgt weniger als 10<sup>-14</sup> g/g und diejenige von Radon weniger als 10<sup>-25</sup> g/g [Bal96].

*Stickstoff:*

Das Versorgungssystem stellt innerhalb der Halle C des LNGS Stickstoff zweier verschiedener Reinheitsklassen (Problem: Radonkontamination) zur Verfügung. Die weniger qualitative (lp = low purity) wird durch Verdampfung des Stickstoffs aus der flüssigen Phase gewonnen und steht im Rahmen einer Flußmenge von 250 m<sup>3</sup>/h zur Verfügung. Die Verunreinigung beträgt dabei 27 bis 80 µBq/m<sup>3</sup> [Gia00]. Die höherqualitative Reinheitsklasse (hp = high purity) wird erreicht durch zusätzliche Reinigung, u.a. in gekühlte, synthetische Aktivkohle enthaltenden Chromatographiesäulen. Dies führt zu einer Reinheit von 0.5 bis 1 µBq/m<sup>3</sup> [Fre00]. hp-Stickstoff steht im Rahmen eines Flusses von 100 m<sup>3</sup>/h zur Verfügung, der allerdings nur höchstens 11 Tage lang ununterbrochen garantiert werden kann. Über länger andauernde Zeiträume ist noch nichts bekannt [Gia00]. Die beiden Abgänge (gekennzeichnet mit HP für „high purity“ sowie R für „regular“) von den Stickstoff-Hauptleitungen zur Versorgung des „Modul zero“ befinden sich hinter dem East Building nahe des BOREXINO-Tanks und können dort über die Ventile VN1 und VN27 kontrolliert werden.

#### 3.1.2. Elemente

*Buffer-Tanks:*

Im 1. Geschoß des East-Building befinden sich direkt im Anschluß an das Hauptverrohrungssystem des „Modul zero“ („Manifolds“, s. Kap. 3.1.3) zwei Buffer-Tanks

(BT Ost, West). Jeder faßt 1 m<sup>3</sup> Volumen, im Extremfall 1.2 m<sup>3</sup>, wurde bei 6 bar Überdruck getestet und für 4 bar Überdruck zugelassen. Das Innere der Tanks ist aus Gründen höchster Reinheit elektropoliert<sup>1</sup>. Der Füllstand eines Tanks wird mithilfe elektronischer Wägezellen ermittelt und ist an der benachbarten Wand digital ablesbar.



*Abb. 3.1: Die beiden Buffer-Tanks des "Modul zero", die zum Zeitpunkt der Aufnahme gerade mit (roten) Heizbändern bestückt waren. Im Vordergrund oben das rechteckförmige "obere Manifold" sowie unten eine Pumpe. Links im Hintergrund deutet sich der runde Umriss eines EP-Tanks an.*

Beide Tanks dienen nicht nur der Speicherung, sondern auf folgende Weise auch der Reinigung von Flüssigkeiten: Zum einen existiert an beiden oberen Flanschen jeweils ein mit Hochdruckstickstoff und Flüssigkeit gespeister Zerstäuber („nozzle“ N1, N2). Zum anderen befindet sich in diesen Tanks eine ebenfalls mit Hochdruckstickstoff gespeiste „Blubbervorrichtung“ („distributor“ SP1, SP2), welche über die unteren Flansche zugänglich

<sup>1</sup> Glätten der Metalloberfläche unter elektrisch erzeugter hoher Temperatur, so daß sich keine Verunreinigungen einlagern können.

ist. In beiden Prozessen soll ein Übergang gelöster gasförmiger Verunreinigungen (z.B. Radon) in die Gasphase des Stickstoffs erreicht werden. Der verunreinigte Stickstoff kann an den oberen Flanschen über eine Abluftleitung abgeführt werden.

#### *EP-Tanks:*

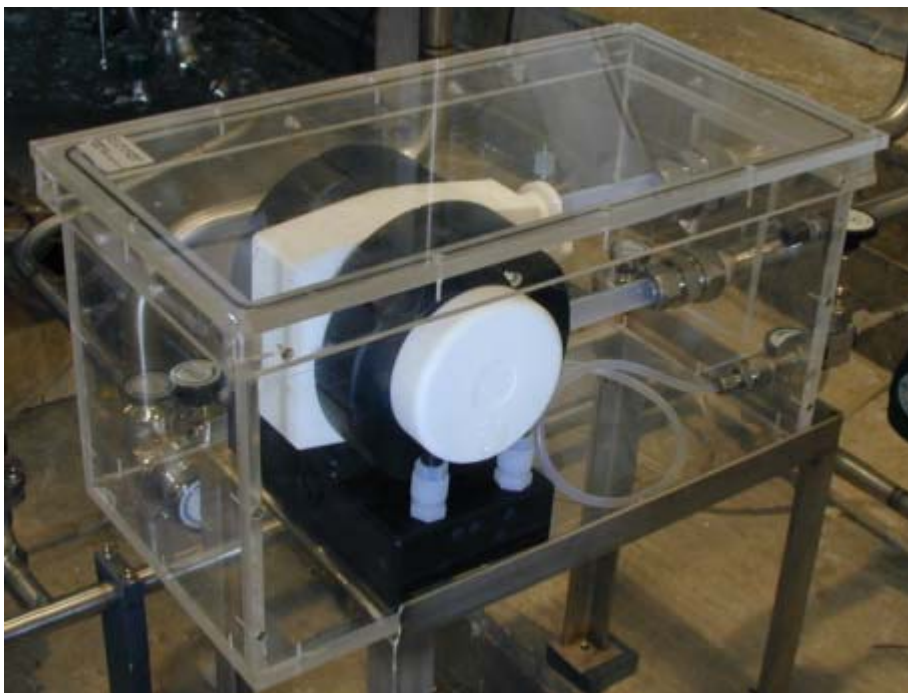
Hinter den beiden Buffer-Tanks befinden sich zwei sogenannte EP-Tanks (EP Nord, Süd) mit jeweils 6 m<sup>3</sup> Fassungsvermögen, im Extremfall 7 m<sup>3</sup>. Wie die Buffer-Tanks sind sie innen elektropoliert, bei 6 bar Überdruck getestet und auf 4 bar Überdruck zugelassen. Aufgrund ihres Fassungsvermögens eignen sie sich zum Befüllen bzw. Entleeren der CTF-Inner Vessel oder bei der Durchführung von Säulenreinigungsaktionen. Auch hier wird der Füllstand eines Tanks mithilfe elektronischer Wägezellen ermittelt und ist neben den Anzeigen für die Buffer-Tanks digital ablesbar.

#### *Hoover-Tanks:*

Im 3. Geschoß des East-Buildings befinden sich drei sogenannte Hoover-Tanks (HT1-3). Sie fassen jeweils 2,2 m<sup>3</sup> und sind für maximal 200 mbar Überdruck ausgelegt. Im Gegensatz zu allen anderen Tanks sind sie beweglich. Sie sind zur Mischung der verschiedenen Szintillatorkomponenten vorgesehen.

#### *Pumpen:*

Aus Reinheitsgründen werden zwei stickstoffbetriebene Membranpumpen (Typ: Trebor Maxim 25) verwendet, die ausschließlich aus den Kunststoffen PTFE und PFA bestehen. Sie wurden in einem Reinraum der Klasse 1000 hergestellt. Um einen Kontakt der Pumpe mit radonhaltiger Luft zu vermeiden, ist die Pumpe von einem durchsichtigen Acrylgehäuse umgeben, das während des Betriebs ständig mit der Abluft der Pumpe (1p-Stickstoff, s. Kap. 3.1.4) gespült wird.



*Abb. 3.2: Pumpe vom Typ "Trebor Maxim 25", womit bereits der PXE-Test im Rahmen von CTF2 durchgeführt wurde*

Die Pumpleistung kann über den Druck des zugeführten Stickstoffs geregelt werden, was für beide Pumpen getrennt über die Ventile VN28, VN29 im Stickstoffsystem geschehen kann. An diesen Stellen wurden vorerst faltenbalggedichtete Ventile eingebaut, die später im Sinne einer Systemsteuerung über Software leicht (VCR-Verschraubung) durch pneumatisch regelbare Ventile ersetzt werden können. Die Maximalleistung bei 4 bar Antriebsdruck und 0 bar Gegendruck beträgt 32 l/min, wobei die Pumprichtung vorgegeben und nicht umkehrbar ist. Zusätzlich kann der Betrieb durch eine an der Pumpe angebrachte Regelschraube gesteuert werden, was evtl. bei akustisch hörbaren Unregelmäßigkeiten während des Betriebs ratsam ist.

Außerdem sind beide Pumpen (P1, P2) mit jeweils einem Bypass (Ventile V20, V73), einem nachgeschalteten Filter (F1, F2) der Firma Millipore sowie einem digitalen Flußmeßgerät (FM1, FM2) ausgestattet. Dabei kann der Bypass zur Flußregulierung dienen.

#### *Pressure-head:*

Die Pumpe P1 ist mit einem Druckschwankungen ausgleichenden Pressure-head (PH1) ausgestattet. Er besteht aus einer rechteckigen Schlaufe von 28mm-Rohren und faßt ein Volumen von ca. 1,9 Liter. Der Flüssigkeitsstand darin läßt sich über einen parallel geschalteten Teflonschlauch ablesen. Bedienung und Funktionsweise des Pressure-head sind unten im weiteren Zusammenhang mit Pumpe und Säule erläutert.

Säulen:

### Säule (Seitenansicht)

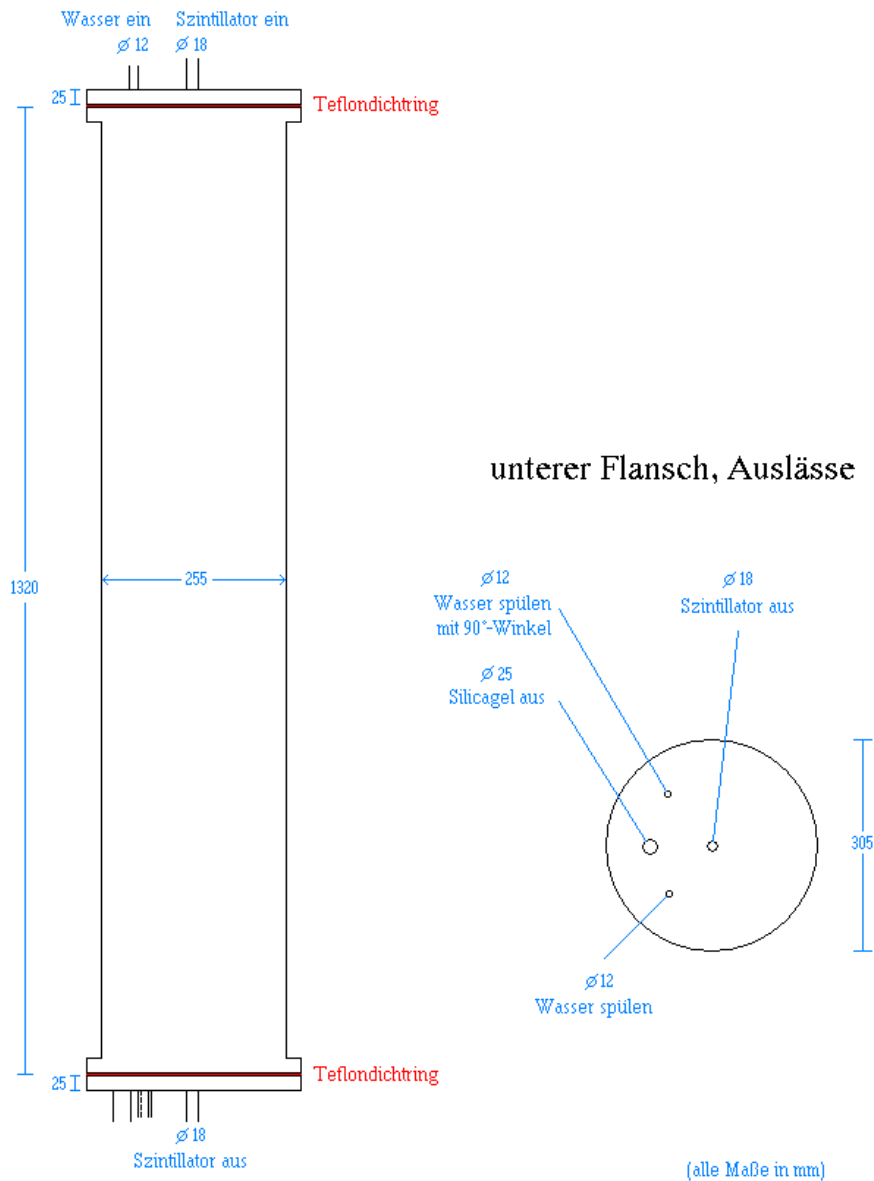
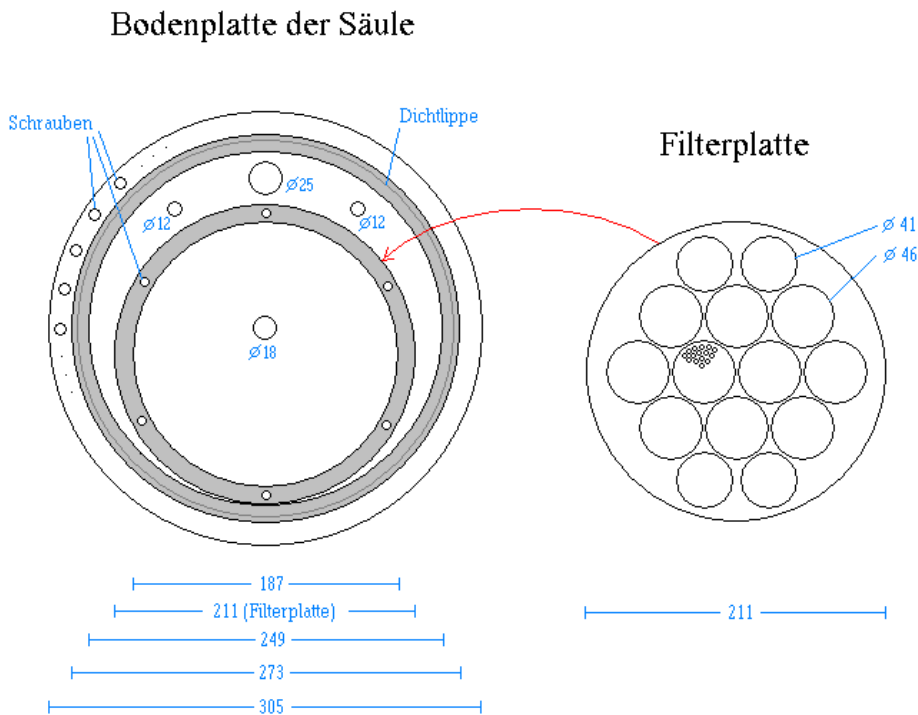


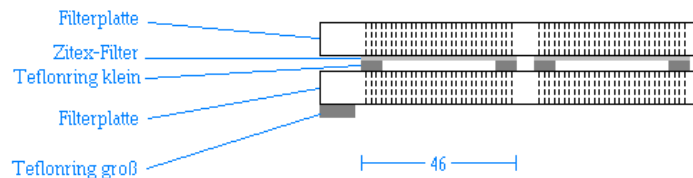
Abb. 3.3: Längsschnitt der in "Modul zero" eingebauten Säule

Zur Reinigung der Flüssigszintillatoren PC bzw. PXE sind zwei Chromatographiesäulen aus Edelstahl vorgesehen. Die Abbildung zeigt die im Moment einzige betriebsbereite Säule, die auch im Rahmen des PXE-Tests, CTF2 eingesetzt wurde. Ihr Volumen beträgt etwa 65 bis 70 Liter. Als Ein- und Auslaß für den Szintillator sind die beiden 18mm-Öffnungen im oberen bzw. unteren Flansch vorgesehen. Zur Inbetriebnahme wird die Säule teilweise mit Silicagel gefüllt, das durch eine Filterkonstruktion in der Bodenplatte der Säule zurückgehalten wird (Abb. 3.4). Das Filtermaterial, 14 sogenannte Zitex-Filter (10 mal  $\varnothing$  46mm, 4 mal  $\varnothing$  41mm, Porengröße 20 – 30  $\mu$ m, Typ 10/BX), besteht aus einer dünnen PTFE-Membran, die in Verbindung mit Druck sehr vorsichtig zu handhaben ist (Insbesondere sollte deshalb der Flüssigkeitsdruck bei Beginn der Säulenoperation nur langsam gesteigert werden, z.B. durch sehr vorsichtiges Öffnen von V16 bzw. V18). Diese Filterplättchen werden, wie in Abb. 3.4 zu sehen, in Verbindung mit Teflondichtringen des selben Durchmessers sandwichartig

zwischen zwei Filterplatten aus Edelstahl gepreßt, welche den Szintillator durch zahlreiche Löcher der Größenordnung einiger mm hindurchdringen lassen.



### Querschnitt des Bodenfilters



(alle Maße in mm)

*Abb. 3.4: Aufbau der Bodenplatte mit Filter*

Die Filterkonstruktion bedeckt allerdings nicht die gesamte Fläche des Bodenflansches, sondern läßt Raum für drei weitere Auslässe (s. Abb. 3.3). Deren größter ( $\varnothing$  25mm) ist als Silicagel-Auslaß zur Entleerung der Säule vorgesehen. Die beiden anderen ( $\varnothing$  12mm) geben die Möglichkeit, evtl. zurückbleibende Silicagelreste mit Wasser auszuspülen, wobei einer von beiden im Innern der Säule mit einem  $90^\circ$ -Winkel versehen ist, um in Tangentialrichtung spülen zu können. Der 12mm-Einlaß des oberen Flansches der Säule dient ebenfalls dazu, mit Wasser das Silicagel zu verflüssigen, um ein Auslaufen zu erleichtern.

Im Rahmen des PXE-Tests in der CTF2 wurde die Säule bis zu einer Höhe von etwa 88 cm (21,5 kg) mit Silicagel gefüllt. Die Konditionierung des Silicagels wurde mithilfe von vier Heizbändern sowie unter ständigem Spülen mit Stickstoff erreicht (Dauer ca. 15 Stunden). Der Überdruck in der Säule während des Betriebs betrug 2-3 bar, die Flußrate steigerte sich von anfangs 90 bis zu 150 Liter pro Stunde.

### Filter:

Um eine ständige Reinheit des Systems gegenüber Schmutzpartikeln auch während des Betriebs zu gewährleisten, sind sowohl den Pumpen als auch den Säulen Filter (F1-F4) nachgeschaltet. Es handelt sich hierbei um Filter der Firma Millipore (USA) mit einer Länge von 10 Zoll (25,4 cm). Die verwendeten Filtereinsätze (Typ Fluorogard) bestehen aus einer gefalteten, hydrophoben PTFE-Membran (Teflon) als Filtermaterial und garantieren eine Rückhaltung von Partikeln ab einer bestimmten Größe. Geplant ist hier 0,05 µm oder 0,1 µm im Falle von PC als Szintillator, wobei allerdings während des Füllens von CTF2 mit PXE die Porengröße des Filters nach der Säule 0,45 µm betrug. Der Durchmesser des Filtereinsatzes beträgt im Falle von 0,05/0,1 µm 70 mm und seine effektive Filterfläche 7800 cm<sup>2</sup>.

Es ist zu beachten, daß die Filtereinsätze im trockenen Zustand in flüssigem Isopropanol konditioniert werden sollten. Ansonsten verhält sich die hydrophobe Filtermembran zumindest gegenüber Wasser abweisend. Der Durchfluß von Gemischen (Wasser+Szintillator oder Flüssigkeit mit Luftbläschen) ist ebenfalls problematisch. In diesem Fall sollten die Millipore-Filter im "Modul zero" über Bypässe umgangen werden.

Darüber hinaus wird oberhalb einer Säule eine Filterung benötigt, um einen Rückfluß von Silicagelkörnern in das System zu verhindern. Bei der bereits bestehenden Säule könnte dies durch fehlerhafte Druckverhältnisse zwischen Säule und System verursacht werden oder einfach durch Verwirbelungen mit dem Gas darüber, besonders bei kleiner Korngröße im trockenen Zustand. In diesem Sinne wurden VCR-Filtereinsätze auf ihren Durchfluß hin getestet:

Flüssigkeit	Flußwiderstand	Fluß in ml/s
Wasser	Rohr+Flußmesser kein Filter	260
	Rohr+Flußmesser VCR-Filtereinsatz: Ø 12mm; Poren 0,5 mm	230
	Rohr+Flußmesser VCR-Filtereinsatz: Ø 12mm; Poren 20 µm	6,5
PXE	Rohr+Flußmesser VCR-Filtereinsatz: Ø 12mm; Poren 20 µm	1,1

Tab. 3.1: Flußmessungen bei VCR-Filtereinsätzen

Der experimentelle Test zeigt leider, daß bei einer für das verwendete Silicagel relevanten Porengröße (20 µm) der Flußwiderstand durch den Filter dominiert wird. Der Fluß ist so niedrig, daß der Einsatz eines solchen VCR-Filtereinsatzes nicht möglich ist, sondern ein großflächigerer Filter (F5) verwendet werden muß.

Der größere, übrigens selbstgebohrte Filtereinsatz mit einer Porengröße von 0,5 mm ist bezüglich des Flußwiderstandes einsetzbar. Er könnte als Sicherheitsfilter unterhalb der Säule (in C36, C121) dazu dienen, im Falle eines Bruchs des säuleninternen Bodenfilters größere Silicagelmassen aufzuhalten. Im Rahmen des PXE-Tests, CTF2 wurden solche Modelle bereits verwendet.

### *Rohre:*

Es wurden elektropolierte Edelstahlrohre der Firma Dockweiler, Typ Ultron verwendet. Teflonrohre bzw. sonstige Kunststoffteile wurden aufgrund erhöhter Radondiffusion weitgehend vermieden. Die Durchmesser im „Modul zero“ betragen zwischen 12 und 28 mm.

### *Schraubverbindungen:*

Schraubbare Verbindungen zwischen Rohren sind zumeist durch VCR-Verbindungen der Firma Cajon/Swagelok realisiert und enthalten unbeschichtete Dichtscheiben aus Edelstahl (Artikelbezeichnung trägt die Endung VS). Diese Verbindungen sind zuerst fingerfest und dann mit einer weiteren Achtelumdrehung per Schraubenschlüssel anzuziehen. Im Falle einer Öffnung und erneuten Schließung einer VCR-Verbindung ist die Dichtscheibe zu erneuern. Von der Firma wird eine Leckrate von weniger als  $5,0 \cdot 10^{-11}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$  angegeben. In einigen Fällen wurden auch sogenannte Zwei-Klemmring-Rohrverschraubungen der Firma Swagelok verwendet. Damit sind u.a. Verbindungen zwischen Edelstahl- und Teflonrohren realisierbar, was beispielsweise beim Anschluß der Pumpen nötig ist. Sämtliche Verschraubungsteile bestehen aus elektropoliertem Edelstahl.

### *Flansche:*

Sämtliche Flansche der Tanks werden mithilfe zweier verschiedener Dichtringe abgedichtet. Dabei gewährleistet ein äußerer Aluminium-Dichtring (Rundquerschnitt,  $\varnothing$  3 mm) eine kleine Leckrate. Ein zusätzlicher innerer Teflon-Dichtring (Rechteckquerschnitt, 2 mm hoch, 1 cm breit) schützt das Aluminium aufgrund seiner chemischen Stabilität bei einer Säurebehandlung und schränkt auch die Radondiffusion aufgrund des verlängerten Diffusionsweges (ca. 1 cm) ein. Der 3 mm starke Aluminium-Ring muß so stark gepreßt werden, daß auch der nur 2 mm starke Teflon-Ring gedrückt wird. Die Abdichtung weist eine Leckrate von weniger als  $2 \cdot 10^{-9}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$  auf. Die unteren Flansche der Buffer-Tanks können jedoch aufgrund mangelnder Zugänglichkeit nicht auf obiges System umgerüstet werden. Sie beinhalten lediglich den Teflondichtungsring.

### *Ventile:*

Größtenteils wurden Ventile der Firma Nupro/Swagelok (USA), Serie ELD verwendet. Zahlreiche davon sind mit zwei 1/4-Zoll-Spülanschlüssen ausgestattet. Sie sind auf einen Druck von 25 bar in beiden Flußrichtungen sowie auf eine Leckrate von  $<4 \cdot 10^{-9}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$  getestet. Einige Ventile stammen von der Firma Stöhr/Augsburg und weisen eine Leckrate von weniger als  $10^{-8}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$  auf.

Zur Pumpenregelung werden sog. faltenbalggedichtete Ventile der Serie BN (VN28, VN29) von Nupro verwendet. Sie sind auf einen Druck von 35 bar in beiden Flußrichtungen und ebenfalls auf eine Leckrate von  $4 \cdot 10^{-9}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$  getestet.

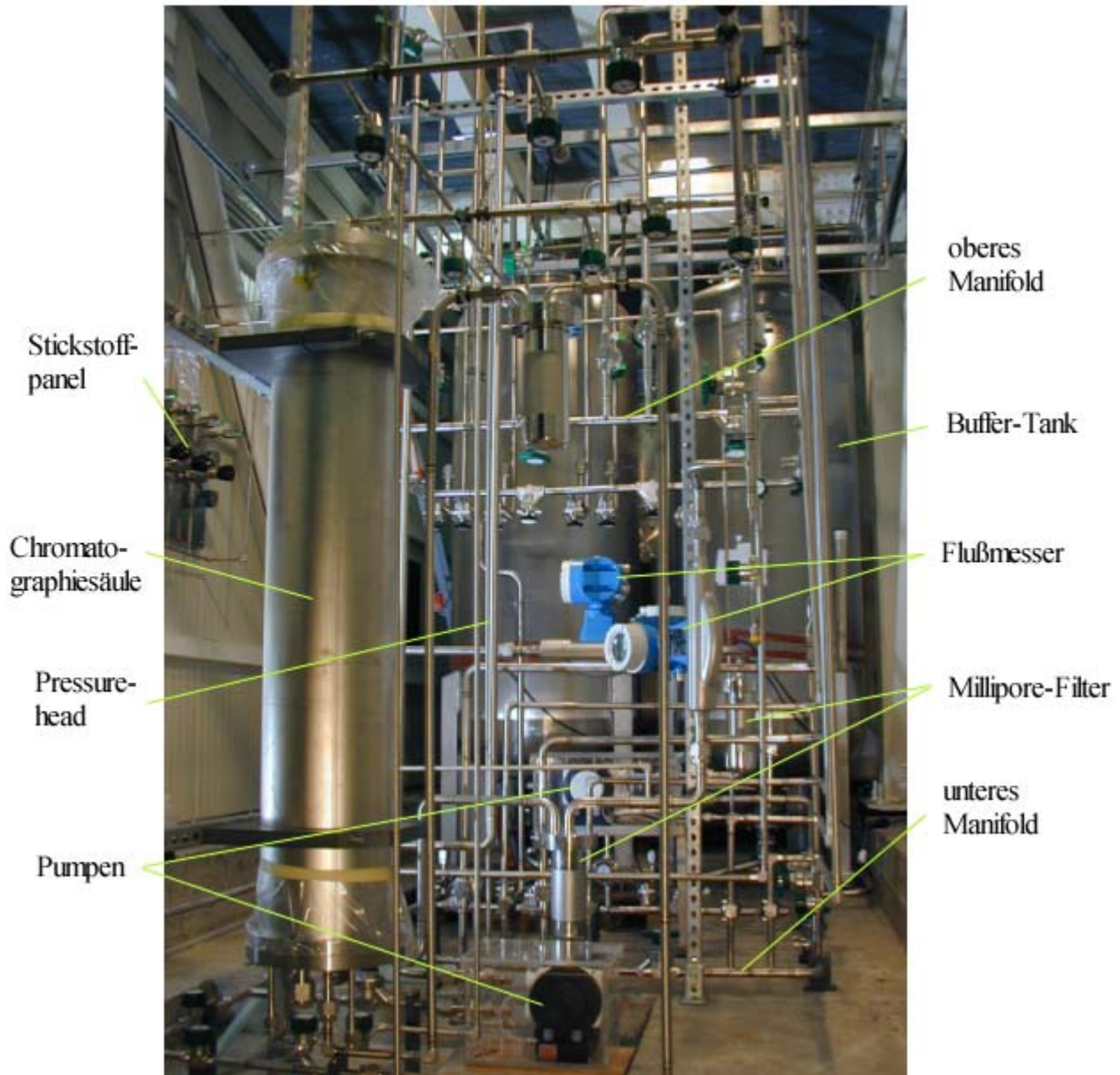
Als pneumatische Sicherheitsventile des Stickstoffsystems (PV1, PV2) können faltenbalggedichtete Ventile der Serien U, B oder BN von Nupro verwendet werden. Diese sind auf eine Leckrate von  $4 \cdot 10^{-9}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$  getestet. Das bereits ins System integrierte PV1 (Serie U) weist eine Druckbeständigkeit von 175 bar auf. PV2 muß noch installiert werden. Sämtliche Ventile bestehen aus elektropoliertem Edelstahl.

Die bevorzugte Durchflußrichtung der Ventile wurde im Hinblick auf geplante Liquid-Handling-Prozesse berücksichtigt, wobei ein gegen Flußrichtung durchströmtes Ventil den Nachteil eines erhöhten Flußwiderstandes mit sich bringt. Das Schließen der Ventile darf stets nur handfest erfolgen.



### 3.1.3. Flüssigkeitssystem

Ein Übersichtsplan befindet sich in Kapitel 3.4.



*Abb. 3.5: Blick auf den Hauptteil des Rohrsystems sowie einiger Komponenten des "Modul zero" von der vorderen Eingangstür des "East-Buildings" aus*

Das Grundgerüst des Flüssigkeitssystems stellt sich dar in einem unteren sowie einem oberen sogenannten Manifold (s. Abb. 3.5). Das obere Manifold verbindet dabei sämtliche oberen Anschlüsse der verschiedenen Lager-, und Reinigungselemente des „Modul zero“ und beinhaltet darüber hinaus auch Verbindungen zum oberen Anschluß der CTF sowie zum sog. Interconnection System (Kap. 3.2.2). In das untere Manifold münden analog sämtliche unteren Anschlüsse der eben genannten Elemente. Zwischen beide Manifolds ist eine Pumpe (P2) mit fester Pumprichtung von unten nach oben geschaltet. Auf diese Weise kann aus einem beliebigen Reservoir durch den unteren Anschluß Flüssigkeit entnommen, über das untere Manifold mithilfe der Pumpe in das obere Manifold gepumpt und von dort einem

beliebigen anderen oder demselben Reservoir über dessen oberen Anschluß zugeführt werden. Das Prinzip einer solchen Operation bleibt somit dasselbe, egal um welche Reservoirs es sich handelt, was der Übersichtlichkeit des Systems dient.

Aus Gründen der Flexibilität sind beide Manifolds noch durch zwei Brücken direkt miteinander verbunden. Natürlich können die Manifolds durch Schließen von Ventilen (V41, V42, V59, V65, V69, V72) stets vollständig voneinander getrennt werden. Das bisher beschriebene System wurde mit Rohrdurchmessern von 28mm bzw. 25,4mm (1 Zoll) realisiert, mit Ausnahme einiger Reservoir-Zuleitungen (z.B. CTF-oben 12mm).

Darüber hinaus steht das untere Manifold über eine 18mm-Leitung mit dem Wasserreinigungssystem neben der CTF (s. Kap. 3.1.1) in Verbindung, so daß dem „Modul zero“ jederzeit gereinigtes, deionisiertes Wasser im Rahmen einer Flußrate von ca. 2,4 m<sup>3</sup>/h zur Verfügung steht.

Ebenso besteht die prinzipielle Möglichkeit einer Serienschaltung des „Modul zero“ mit dem sich auf der CTF befindlichen Liquid-Handling-System ("skid"), dem über die Anschlußleitung CTF-oben Flüssigkeit vom „Modul zero“ aus zugeführt werden kann. Dabei soll den eventuell verschiedenen Pumpleistungen beider Systeme durch den Entkopplungstank D204 vorgebeugt werden. Er wird dem „skid“ parallel geschaltet, fängt überschüssige Flüssigkeit auf und leitet sie durch eine Überlaufvorrichtung (18mm-Rohr) zurück ins untere Manifold des „Modul zero“. Dabei muß allerdings die Pumpleistung des „Modul zero“ größer als die des „skid“ sein.

Im „Modul zero“ steht noch eine weitere Pumpe (P1) zur Verfügung, welche in erster Linie zur Betreibung der Chromatographiesäulen konzipiert ist. Diese Pumpe ist sowohl mit einem Bypass (12mm-Rohr) ausgestattet, über dessen Ventil V20 man einen verhältnismäßig kleinen Rückstrom und somit die Pumpleistung steuern kann, als auch mit einem sogenannten Pressure-head. Dieser Pressure-head ist dem Bypass angeschlossen und hat die Aufgabe, bei leichten Druckschwankungen den durch die Säulen gehenden Fluß konstant zu halten. Um dies zu gewährleisten, sollte zum einen das Bypassventil V20 teilweise geöffnet sein. Zum anderen sollte der Pressure-head oben mittels VN18 geschlossen sein, so daß er über eine konstante Menge Stickstoff verfügt; allerdings unten über das geöffnete Ventil V26 mit der aus der Pumpe austretenden Flüssigkeit in Kontakt sein, um deren Druckschwankungen aufzunehmen.

Man kann sich die Funktionsweise des Pressure-heads folgendermaßen plausibel machen: Bei konstantem Pumpendruck und somit ebenso konstantem Druck im Pressure-head stellt sich darin ein konstanter Flüssigkeitsstand ein (Gleichgewicht). Angenommen, der Pumpendruck fällt nun kurzfristig leicht ab, so würde sich unter normalen Umständen ebenso der Fluß verringern. Nun entsteht aber in Verbindung mit dem (per Stickstoffpolster) vorherrschenden Druck im Pressure-head ein Ungleichgewicht, das den Rückstrom im Bypass verringert auf Kosten einer Absenkung des Flüssigkeitsspiegels im Pressure-head (Druckausgleich). Dieser Vorgang erhöht den in Richtung Säulen strömenden Fluß und wirkt so dem anfänglichen Flußabfall entgegen.

Bei anfänglichem Anstieg des Pumpendrucks würde der Vorgang analog entgegengesetzt ablaufen. Es sei nochmals betont, daß nur kleine und kurzzeitige Schwankungen aufgefangen werden können, wie sie beispielsweise durch den Takt der Pumpe verursacht werden. Die Wirkung des Pressure-head erschöpft sich nämlich, sobald sich ein neuer Gleichgewichtszustand bei anderem Druck einstellt.

Letztendlich hat man sich gewisse Erweiterungsmöglichkeiten des „Modul zero“ offen gehalten. Dies manifestiert sich z.B. in jeweils einer existierenden VCR-Verschraubung nahe

der oberen (C40) sowie nahe der unteren (C45) Anschlüsse der Säulen. Außerdem wurden sowohl an beiden EP-Tanks (oben C85, C103; unten C57, C65) als auch an beiden Buffer-Tanks (oben C92, C99; unten C59, C62) Verbindungsmöglichkeiten offen gehalten. Bis auf weiteres werden sämtliche freien Anschlüsse mit VCR-Blindkappen verschlossen.

#### 3.1.4. Stickstoffsystem

Innerhalb des „Modul zero“ findet Stickstoff im Wesentlichen folgende Anwendungsmöglichkeiten:

- Er dient als Antriebsstoff für beide Pumpen; hierfür wird Hochdruckstickstoff benötigt. Bezüglich der Reinheit werden zu diesem Zweck lediglich begrenzte Anforderungen gestellt, so daß lp-Stickstoff verwendet werden kann.
- Er dient als raumfüllendes Gas („blanket“) in sämtlichen Elementen des „Modul zero“, insbesondere in den Tanks und Säulen, weshalb diese an den oberen Flanschen über Stickstoffanschlüsse verfügen. Normalerweise wird dazu Niederdruckstickstoff verwendet, jedoch besitzen die Buffer- und EP-Tanks auch einen entsprechenden Hochdruckanschluß. Da Stickstoff hier langfristig mit hochreinen Flüssigkeiten in Berührung ist, muß hp-Stickstoff verwendet werden.
- An den Buffer-Tanks wird im Rahmen der erwähnten Reinigungsprozesse hp-Hochdruckstickstoff eingesetzt.
- Im Rahmen des Pressure-heads wird zur Druckregulierung ebenfalls hp-Hochdruckstickstoff verwendet.

Die gesamte Stickstoffversorgung wird aus Gründen der Übersichtlichkeit über ein sogenanntes „Stickstoffpanel“ (s. Abb. 3.5) geleitet. Die vier Anschlüsse von links nach rechts versorgen: Säulen + Pressure-head, Pumpen, EP- und Buffer-Tanks mit Hochdruckstickstoff sowie EP- und Buffer-Tanks mit Niederdruckstickstoff. Alle vier können getrennt durch Druckregelventile (PR1-4) gesteuert werden, womit u.a. die Bereitstellung von Hochdruck (0-4 bar Überdruck) und Niederdruck (10-50 mbar Überdruck) erreicht wird. Darüber sind jeweils Berstscheiben (RD1-4) angebracht, die ein Ansteigen des Überdrucks in den Leitungen auf mehr als 5 bar verhindern. Im übrigen erhalten die Druckregelventile den durch sie geregelten Druck im System nicht aufrecht, wenn der Druck in der Zuleitung nachläßt.

Sämtliche Stickstoffleitungen wurden mit einem Rohrdurchmesser von 12 mm realisiert.

Erweiterungsmöglichkeiten durch existierende VCR-Verschraubungen sind ebenso wie im Flüssigkeitssystem vorhanden. Sie befinden sich am Ende der Versorgungsleitungen der Tanks sowohl für Hoch- (C81) als auch für Niederdruck (C80).

#### 3.1.5. Sicherheitselemente

Verschiedene Sicherheitsmechanismen, hauptsächlich das Stickstoffsystem betreffend, wurden in das „Modul zero“ integriert.

Bereits die das Stickstoffpanel versorgenden Leitungen sollen hiernach unterbrochen werden, sobald der Überdruck im „Modul zero“ 4 bar übersteigt. In diesem Fall wird über ein von einem der Druckmeßgeräte PP1-5 ausgehendes digitales Signal ein pneumatisch steuerbares Ventil (PV1 bzw. PV2) in der lp bzw. hp-Stickstoffversorgungsleitung des „Modul zero“

geschlossen. Diese Steuerung wird über ein Relais vorgenommen, das wiederum zwei 3-2-Wegeventile (EV1, EV2) regelt, die den Steuerdruck der Pneumatikventile im Notfall ablassen. PV1 und PV2 nehmen nur zwei Zustände an, nämlich „geschlossen“ im Grundzustand sowie „offen“ ab einem Steuerdruck von ca. 6,5 bar.

Für den Fall eines Versagens des obigen Mechanismus wurden zusätzlich 4 Berstscheiben (RD1-4) in das „Modul zero“ integriert, die auf eine Reaktion bei ca. 5 bar Überdruck ausgelegt sind. Es befindet sich jeweils eine in den vier vom Stickstoffpanel ausgehenden Versorgungsleitungen für Pumpen, Säulen sowie Hoch- und Niederdruckanschlüsse der Tanks. Im Falle eines Durchbruchs der Berstscheibe für Hochdruckstickstoff besteht allerdings die Gefahr, daß aufgrund des nachlassenden Drucks Szintillator aus einem Buffer-Tank durch die Blubbervorrichtung ins Stickstoffsystem gelangt und (sozusagen rückwärts) über die gebrochene Berstscheibe austritt. Um dies zu verhindern, werden beide Sparger-Zuleitungen mit Rückschlagventilen (CV1, CV2) ausgestattet. Diese schließen, sobald sich die Flußrichtung umkehrt; der zu überwindende Federdruck eines Rückschlagventils beträgt 23 mbar.

Die drei Hoover-Tanks in der dritten Etage des East-Buildings sind nicht überdruckbeständig. Insofern erhalten sie jeweils eigene Berstscheiben (RD5-7), die bereits bei einem Überdruck von 100 mbar brechen.

Zur Vorbeugung einer Brandgefahr sind im East-Building mehrere Temperatursensoren angebracht. Falls die Temperatur 60°C übersteigt, setzen diese ein Notfallprogramm in Gang, welches das gesamte East-Building mit einem sauerstoffarmen Gasgemisch aus Stickstoff und Argon flutet. Angeblich soll eine Atmung darin noch gewährleistet sein.

## 3.2. Mögliche Liquid-Handling-Prozesse

### 3.2.1. Prozesse innerhalb des „Modul zero“

Einige elementare Prozesse, die „Modul zero“ zu leisten imstande ist, seien hier am Beispiel des PXE-Tests der CTF2 veranschaulicht. Dabei wurde das in EP-Nord gelagerte PXE in vier Durchgängen zu je 1m<sup>3</sup> ("batchweise") mit der Säule gereinigt (a), in einem der Buffer-Tanks zur Verringerung der Radonkonzentration mit Stickstoff geblubbert und dann aus einem Buffer-Tank in die Inner Vessel der CTF gefüllt (b). Das geschieht am besten auf volumetrische Weise. Dazu wird der in (b) markierte geschlossene Kreislauf mit Ausnahme des im Buffer-Tank befindlichen PXE vollständig mit Wasser gefüllt (einschließlich der Inner Vessel). Pumpe P1 bringt den Flüssigkeitskreislauf dann zum Zirkulieren, ohne dadurch Druck auf die außerordentlich empfindliche Nylonhülle der Inner Vessel auszuüben. Ebenfalls wurde darauf geachtet, den Pumpenausgang nur indirekt über einen Tank (hier BT Ost) mit der Inner Vessel zu verbinden, so daß eventuelle Druckstöße vom Tank aufgefangen werden. Das volumetrische "Entleeren" (in Wirklichkeit wird Szintillator durch Wasser ersetzt) geschieht ebenfalls unter Beachtung dieser Prinzipien (c). Wenn möglich ist es sowohl beim Füllen als auch beim Entleeren praktikabel, dies mithilfe eines das Volumen der Inner Vessel fassenden EP-Tanks vorzunehmen anstatt eines Buffer-Tanks. Die Aktion kann dann in einem einzigen Durchgang ausgeführt werden.

- (a) EP-Nord → P1 → COL1 → BT-Ost/BT-West
- (b) BT-Ost/BT-West oben → CTF Inner Vessel → P1 → BT-Ost/BT-West unten
- (c) EP-Nord unten → CTF Inner Vessel → P1 → EP-Nord oben

### 3.2.2. "Modul zero" im übergeordneten Liquid-Handling-System des BOREXINO

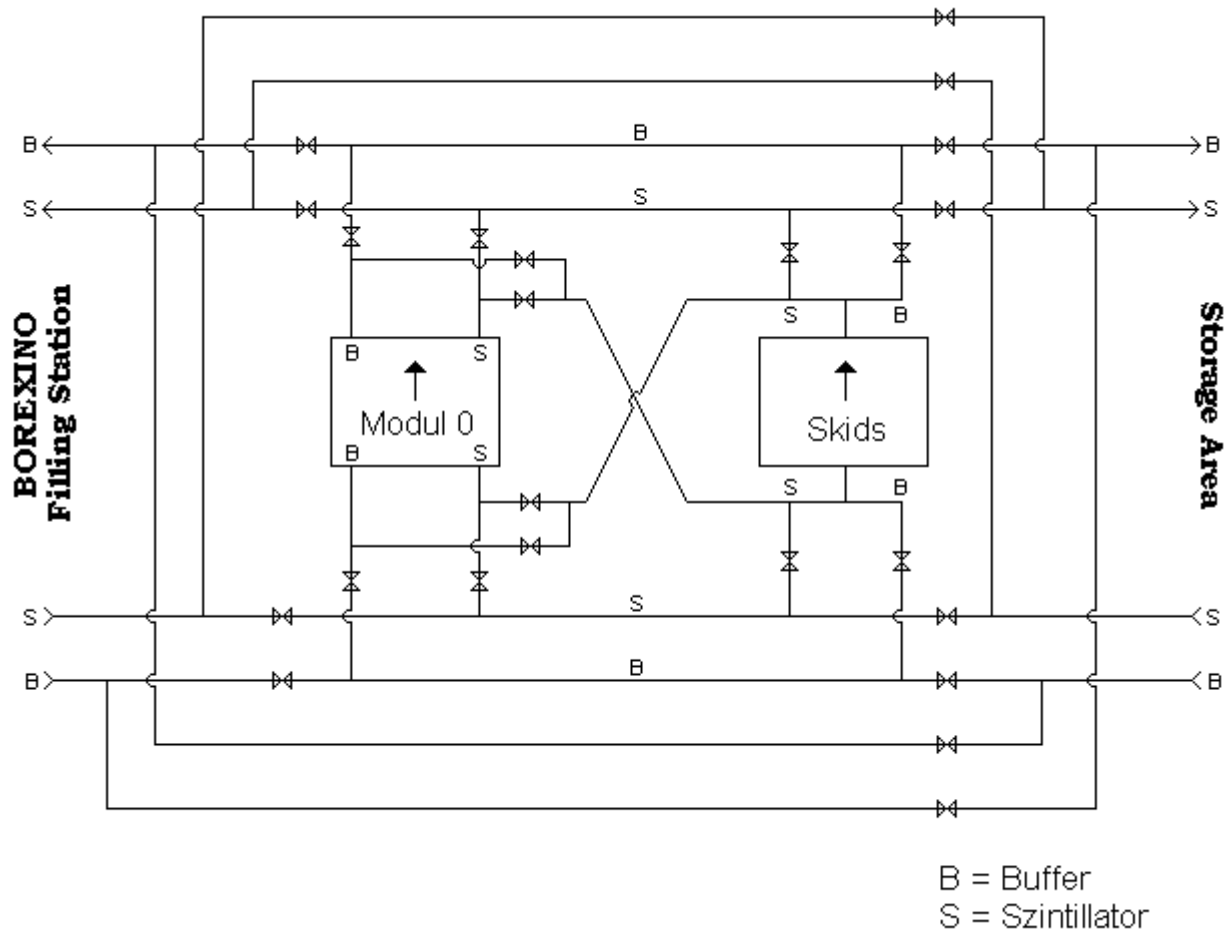


Abb. 3.9: "Modul zero" in Verbindung mit anderen Liquid-Handling-Komponenten des BOREXINO ("Interconnection System"), [Per00]

"Modul zero" ist eine Komponente innerhalb des Liquid-Handling-Systems von BOREXINO. Die Skizze soll einen Überblick über die funktionale Einbindung geben. Die Handhabung des für die "Inner Vessel" bestimmten Szintillators (S) sowie der abschirmenden Buffer-Flüssigkeit (B) geschieht in zwei voneinander getrennten Systemen. Dies ist aufgrund der unterschiedlichen Reinheitsanforderungen sinnvoll. Dazu besitzt sowohl das obere als auch das untere Manifold in "Modul zero" zwei verschiedene Anschlüsse für Szintillator und Buffer. Lediglich die "skids", eine von der Princeton University erstellte Komponente zur Szintillatorreinigung mittels Destillation, verzichten auf eine Trennung. Die Flußrichtung wird sowohl in "Modul zero" als auch in den "skids" durch die Pumpen festgelegt.

Das übergreifende System ist darauf ausgelegt, daß zahlreiche Kombinationen der beiden Elemente "Modul zero" und "skids" mit dem Lagerbereich ("storage area": 4 Tanks zu je 100 m<sup>3</sup>) und der Füllstation des BOREXINO machbar sind. Dabei können "Modul zero" und die "skids" u.a. in Serie geschaltet werden.

### 3.3. Technische Realisierung des „Modul zero“ unter Berücksichtigung der Reinheitsanforderungen des BOREXINO-Experiments

#### 3.3.1. Anforderungen an verwendete Materialien und Elemente

Im Rahmen der Untergrundproblematik von BOREXINO werden an die Reinheit des verwendeten Szintillators bzgl. radioaktiver Verunreinigungen folgende Anforderungen gestellt:

Element	geforderte Konzentration [g/g] im Szintillator
Cd	$2,8 \cdot 10^{-9}$
In	$2,4 \cdot 10^{-12}$
K	$7,8 \cdot 10^{-15}$
La	$1,2 \cdot 10^{-12}$
Lu	$3,7 \cdot 10^{-15}$
Rb	$3,2 \cdot 10^{-14}$
U	$2,3 \cdot 10^{-17}$
Th	$5,8 \cdot 10^{-16}$

Tab. 3.2: Reinheitsanforderungen an den Szintillator, entsprechend einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator (entnommen aus [BOR00])

"Modul zero" darf als Handhabungssystem für den Szintillator die geforderte Reinheit nicht beeinträchtigen. Dies kommt zum Tragen in der Auswahl der verwendeten Materialien, der Arbeitsschritte beim Aufbau des Systems (Kap. 3.3.2) sowie der Abdichtung der Elemente gegenüber der Umgebung. Darüber hinaus muß die chemische Beständigkeit sämtlicher Materialien gegenüber den Flüssigszintillatoren PC und PXE sowie zur Reinigung evtl. eingesetzter Säure ( $\text{HNO}_3$ ) gewährleistet sein. Unabhängig davon ist die physikalische Beständigkeit gegenüber dem allgemeinen Systemdruck von 4 bar zu beachten.

Als Material wurde soweit möglich elektropoliertes Edelstahl verwendet, zum einen wegen seiner chemischen Beständigkeit gegen Säure und PC/PXE und zum anderen aufgrund seiner physikalischen Beständigkeit gegen Druck und Diffusion. An wenigen Abdichtungsstellen wird auf Aluminium oder Nickel zurückgegriffen, Silber ist zu vermeiden aufgrund seiner Anfälligkeit gegenüber PC. Wo der Einsatz von Metallen vermieden wird (z.B. Sichtrohr für Pressure-head, Pumpen, Säulenfilter), wird aufgrund seiner chemischen Beständigkeit Teflon, evtl. auch Nylon verwendet. Allerdings sind die Beiträge von Teflon und Nylon so gering wie möglich zu halten wegen der verminderten physikalischen Beständigkeit gegen Diffusion (Radon) und Druck. An potentiellen Schwachstellen wie Ventilen oder Rohrverbindungen wurde auf hochwertige Produkte wie VCR zurückgegriffen. Der Großteil an Verbindungen wurde durch Orbital-Schweißen erledigt, um die Leckrate des Gesamtsystems so gering wie möglich zu halten (angestrebter Wert:  $5 \cdot 10^{-11}$  bar  $\text{cm}^3/\text{s}$ , [Sch99]). Für weitere Details in der Realisierung sei auf Kap. 3.1.2 verwiesen.

### 3.3.2. Methoden zur Gewährleistung der Reinheit des Systems

Um die soeben genannten Reinheitsanforderungen für das BOREXINO erfüllen zu können, ist es bereits während des Aufbaus unumgänglich, zahlreiche Vorkehrungen zur Reinhaltung des entstehenden Systems zu treffen. Dabei ist vor allem achtzugeben, daß der Innenraum sämtlicher Elemente und Rohre sowohl frei von Schmutzpartikeln als auch weitestgehend frei von Staub bleibt, denn solche Verunreinigungen enthalten stets radioaktive Beimischungen. Auch zu langer Kontakt der Rohrwänden mit Luft soll verhindert werden, damit sich sowohl kein Staub absetzt als auch der Kontakt mit Radon minimiert wird. Dies kann während umfassender Schweiss- und Montagearbeiten nur durch sehr sorgfältige Arbeitsweise erreicht werden. Konkret wurden dabei u.a. folgende Maßnahmen getroffen:

Soweit möglich wurden gewisse zusammengesetzte Anordnungen von Ventilen und verzweigenden Rohren vorab im Reinraum des INFN in Assergi am Gran Sasso, Italien angefertigt. Dazu gehörten beide Manifolds, der Pressure-head sowie die Verrohrung unter- und oberhalb der Säulen. Für den Transport ins LNGS wurden sowohl diese Teile als auch sämtliche anderen noch im Reinraum luftdicht in Kunststofffolien eingeschweißt, um einer Verschmutzung vorzubeugen.

Offene Rohrenden wurden, an welchem Ort sie sich auch immer befanden, mit Kunststoffkappen verschlossen. Falls nötig wurde aus Gründen noch höherer Dichtigkeit beim Verschließen zwischen Rohrende und Kunststoffkappe ein Stück Zellophanfolie gelegt. Die Kappen wurden lediglich zum Bearbeiten und Verschweißen der Rohre abgenommen, so daß unnötiger Kontakt des Rohrens mit Luft weitgehend vermieden werden konnte.

Beim Bearbeiten und Schneiden der Rohre wurde wohlweislich aus Staubgründen auf eine Flex verzichtet. Statt dessen wurden die Rohre zuerst mit einem Rohrabschneider per Hand geschnitten, wobei keine Späne anfallen. Danach mußten die Rohrenden aus Gründen der Schweißbarkeit noch mithilfe eines fräsenden Rohrendenbearbeitungsgerätes geglättet werden, was auch eine exakte Kontrolle über die jeweils erforderliche Rohrlänge erlaubte. Das Fräsen hinterläßt zwar Späne, allerdings von einer Länge der Größenordnung cm, was sehr zur Kontrollierbarkeit des entstehenden Schmutzes beiträgt. Vor dem Fräsen wurde stets durch Einschieben eines Zellophanballens in das Rohrende verhindert, daß während des FräSENS Späne ins Rohrinne gelangen konnten. Nach dem Fräsen konnte man beim vorsichtigen Herausziehen des Zellophans mit einer Zange sogar evtl. vorhandene Späne oder Schmutzpartikel mit herausholen, falls man gleichzeitig das Rohr mit der Öffnung nach unten hielt.

Sämtliche Schweißnähte wurden mit einem Orbitalschweißgerät der Firma Swagelok erstellt. Bei den Elektroden des Geräts wurde auf thoriumfreies Material geachtet. Das Schweißen an sich bietet weniger Verunreinigungsgefahren, nachdem dabei weder Staub noch Späne anfallen. Die zu verschweißenden Rohre wurden während des Schweißens innen und außen mit reinem Argon gespült, um Oxidation zu verhindern.

Nach der Fertigstellung des „Modul zero“ wurden sämtliche Tanks und Rohrleitungen zur Reinigung gegen vereinzelte Staubpartikel mit deionisiertem Wasser gespült. EP-Süd wurde zusätzlich mithilfe eines Hochdruckreinigers (50 bar) und "Detergent-Wasser" gereinigt, um Fettreste und größeren Schmutz zu lösen. Die beiden Buffer-Tanks übernahm man unverändert vom Vorgängertyp des „Modul zero“ (Liquid-Handling-System der CTF1, Betrieb bis 1996), weshalb eine gründliche Reinigung dieser Tanks nicht nötig war. In EP-Nord wurden während der letzten Jahre ca. 5t PXE gelagert, die vom PXE-Test der CTF1 stammen. Eine Reinigung dieses Tanks war deshalb noch nicht möglich, sollte aber nachgeholt werden.



### **3.4. Technischer Plan des „Modul zero“**

Ein P&I D (Process and Instrument Diagram) des “Modul zero” existiert als Auto-CAD-File und wird von Zeit zu Zeit auf den neuesten Stand gebracht.

## 4. Reinigung von Pseudocumol mit Chromatographiesäulen aus Silicagel

### 4.1. Säulenchromatographie als Reinigungsmöglichkeit

#### 4.1.1. Motivation im Rahmen von BOREXINO

Im Rahmen von BOREXINO bestehen aufgrund der Reduzierung des Strahlungsuntergrundes äußerst strenge Anforderungen bezüglich der Reinheit der Detektorkomponenten. Dabei werden die höchsten Anforderungen an den innersten Teil des Detektors, also an den Flüssigszintillator gestellt. Die folgende Tabelle 4.1 zeigt einen Vergleich der Reinheitsanforderungen mit der Reinheit kommerziell erhältlicher Szintillatoren.

Element	geforderte Konzentration [g/g] im Szintillator	In PXE gemessene Konzentration [g/g]	In PC + PPO gemessene Konzentration [g/g]
Cd	$2,8 \cdot 10^{-9}$	$< 6 \cdot 10^{-12}$	$< 1,4 \cdot 10^{-12}$
In	$2,4 \cdot 10^{-12}$	$< 5 \cdot 10^{-12}$	$< 2,7 \cdot 10^{-12}$
K	$7,8 \cdot 10^{-15}$	$(5,0 \pm 2,5) \cdot 10^{-10}$	$< 9,3 \cdot 10^{-11}$
La	$1,2 \cdot 10^{-12}$	$(2,0 \pm 1,0) \cdot 10^{-13}$	$< 4,0 \cdot 10^{-14}$
Lu	$3,7 \cdot 10^{-15}$	$< 1,6 \cdot 10^{-15}$	$< 2,3 \cdot 10^{-15}$
Rb	$3,2 \cdot 10^{-14}$	$< 7 \cdot 10^{-12}$	$< 2,7 \cdot 10^{-12}$
U	$2,3 \cdot 10^{-17}$	$(3,2 \pm 1,6) \cdot 10^{-14}$	$(3,5 \pm 1,3) \cdot 10^{-16}$
Th	$5,8 \cdot 10^{-16}$	$(2,7 \pm 1,5) \cdot 10^{-14}$	$4,4^{+1,5}_{-1,2} \cdot 10^{-16}$

Tab. 4.1: Die Reinheitsanforderungen entsprechen einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator [BOR00]. Die PXE-Konzentrationen wurden mittels NAA bestimmt und stammen aus [Hen99]. Die PC-Konzentrationen von U und Th wurden in CTF1 über Bi-Po-Koinzidenzen bestimmt und sind entnommen aus [BOR98a]. Die übrigen PC-Konzentrationen wurden im Dezember 1995 der CTF1 entnommen und mittels NAA bestimmt, sie stammen aus [Go197]. Das beigemischte PPO war in einem getrennten Schritt gereinigt worden.

Dabei ist zu beachten, daß die geforderten Konzentrationen vom gesamten Gemisch aus Lösungsmittel und Wellenlängenschieber unterschritten werden müssen. Dabei enthält PC in einer Konzentration von 1,5 g/l PPO, während PXE 1,5 g/l pTP und 30 mg/l Bis-MSB enthält. Die geringen Konzentrationen der Beimischungen im Lösungsmittel führen zu weniger restriktiven Reinheitsanforderungen; bei Bis-MSB dürfte deshalb die Konzentration der Verunreinigungen unkritisch sein. Die Konzentrationen handelsüblicher PPO- und pTP-Proben seien im folgenden mit den Anforderungen von BOREXINO verglichen.

Element	geforderte maximale Konzentration [g/g]	In pTP gemessene Konzentration [g/g]	In PPO gemessene Konzentration [g/g]
Cd	$9,3 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-10}$	$< 4 \cdot 10^{-10}$
In	$8 \cdot 10^{-10}$	$< 3 \cdot 10^{-10}$	$< 4 \cdot 10^{-10}$
K	$2,6 \cdot 10^{-12}$	$3 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-7}$
La	$4 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-11}$	$1 - 2 \cdot 10^{-10}$
Lu	$1,2 \cdot 10^{-12}$	$< 4 \cdot 10^{-13}$	$6 - 46 \cdot 10^{-13}$
Rb	$1 \cdot 10^{-11}$	$< 6 \cdot 10^{-10}$	$< 4 \cdot 10^{-10}$
U	$7,7 \cdot 10^{-15}$	$< 7 \cdot 10^{-13}$	$4 - 9 \cdot 10^{-12}$
Th	$1,9 \cdot 10^{-13}$	$< 2 \cdot 10^{-12}$	$1 - 6 \cdot 10^{-11}$

Tab. 4.2: Die Reinheitsanforderungen entsprechen einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator, wobei sich für pTP und PPO aufgrund derselben Konzentration im Lösungsmittel (1,5 g/l) kein Unterschied ergibt. Die Verunreinigungswerte in pTP (Firma: Aldrich) sowie in PPO (Firma: Fluka) wurden mittels NAA bestimmt und aus [Gol97] entnommen.

Die Konzentrationen der betrachteten Elemente sind in PC bzw. PXE bereits relativ niedrig, da es sich meist um polare Metallionen in unpolaren Lösungsmitteln handelt. Selbst bei gezielter Auswahl der Herstellungsquellen der Szintillatorkomponenten sind allerdings zusätzliche Reinigungsschritte nötig, um die Anforderungen von BOREXINO vor allem bzgl. Uran, Thorium und Kalium zu erfüllen. Eine Methode, die den gewünschten Erfolg erzielen könnte, ist die Säulenchromatographie und wird im Rahmen dieser Arbeit näher untersucht.

Die Adsorberfüllung einer solchen Chromatographiesäule (s. Abb. 4.2), z.B. Silicagel, enthält allerdings Verunreinigungen, auch radioaktive, in verhältnismäßig großen Mengen. Diese sind im Kristallgitter eingelagert und werden bei dem Szintillatorreinigungsvorgang nicht ausgewaschen, wie Messungen in [Ang97], [Gri00] zeigten. Wichtig dabei ist, daß der Adsorber Silicagel vollständig durch einen Filter zurückgehalten wird und nicht in das Innere von BOREXINO gelangt.

Trotzdem ergibt sich ein zusätzliches Problem, da die Zerfallsketten der radioaktiven Verunreinigungen (z.B. U, Th) das sehr bewegliche Edelgas Radon enthalten. Dieses wird vom Silicagel emaniert, so daß insbesondere das mit einer Halbwertszeit von 3,8 d langlebigste Isotop  $^{222}\text{Rn}$  zum Untergrund in BOREXINO beitragen kann. Ein Blick auf die Zerfallskette von Uran (Abb. 4.1) verrät, daß  $^{222}\text{Rn}$  innerhalb einiger Wochen fast vollständig zu  $^{210}\text{Pb}$  ( $t_{1/2}=22,3$  a) zerfällt. Dieses stellt ein großes Problem für BOREXINO dar, da es Aktivitäten eingebrachten Radons lange aufrecht erhält und die Signale seiner Zerfallstöchter  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$  ins Neutrinofenster von 250 – 800 keV fallen.

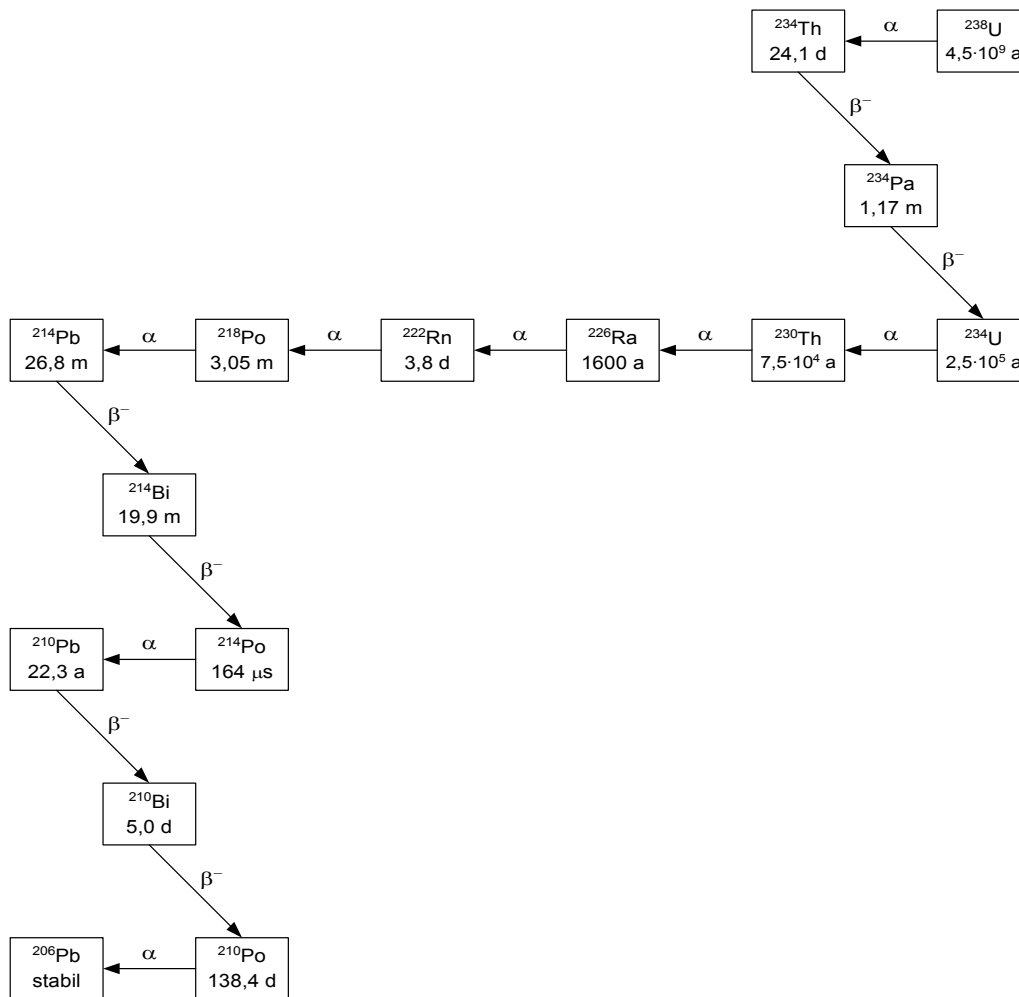
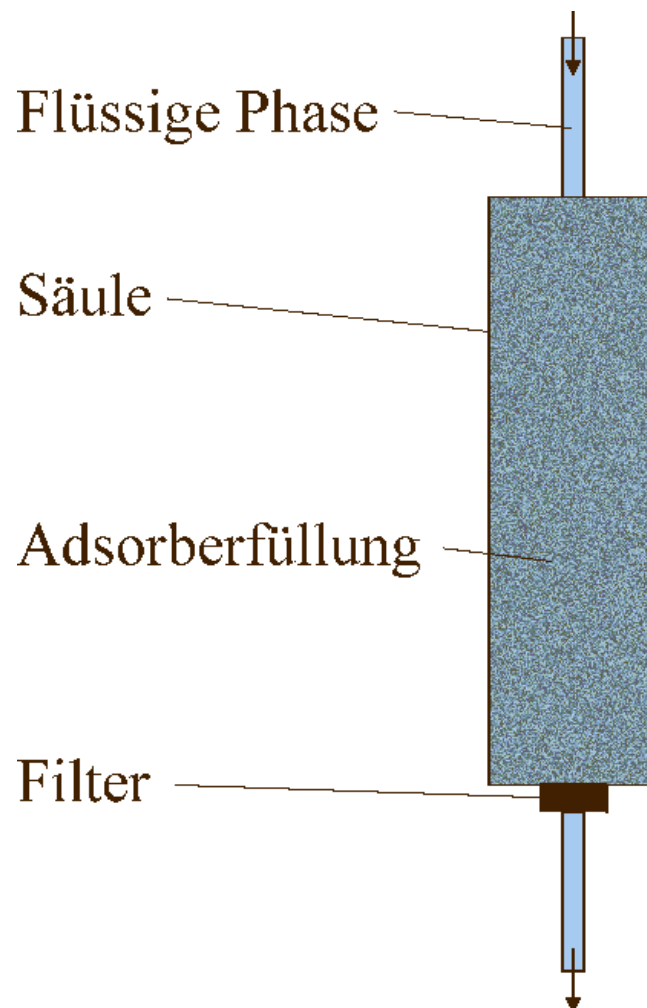


Abb. 4.1: Zerfallskette von  $^{238}\text{U}$  (entnommen aus [Gri00])

Eine Möglichkeit, diese Untergrundereignisse für BOREXINO tragbar zu machen, besteht in der Mengenbestimmung der beteiligten radioaktiven Isotope und der anschließenden statistischen Subtraktion des Untergrundes von der Zählrate. Beispielsweise ist die Aktivität der Urkette von  $^{238}\text{U}$  bis  $^{226}\text{Ra}$  durch Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) erfassbar. Die Beweglichkeit von Rn hat allerdings einen Bruch des Zerfallsgleichgewichts an dieser Stelle zur Folge, d.h. die Aktivität von  $^{222}\text{Rn}$  und seinen Zerfallstöchtern kann nicht aus der Aktivität von  $^{226}\text{Ra}$  gefolgert werden. Sie muß getrennt bestimmt werden, was aber durchaus möglich ist mittels Betrachtung der  $^{214}\text{Bi}$ - $^{214}\text{Po}$ -Koinzidenz. Auf diese Weise kann der Untergrund durch die Isotope in der U-Kette von  $^{222}\text{Rn}$  bis  $^{214}\text{Po}$  statistisch erfaßt werden. Bei  $^{210}\text{Pb}$  folgt jedoch ein weiterer Bruch des Zerfallsgleichgewichts, da  $^{210}\text{Pb}$  eine lange Halbwertszeit von 22,3 a hat und in diesem Zeitraum auch auf andere Arten als durch den Rn-Zerfall verursacht werden konnte. Die einzige prinzipielle Möglichkeit einer getrennten Aktivitätsbestimmung eines Zerfallsprodukts von  $^{210}\text{Pb}$  besteht im Nachweis des  $\alpha$ -Zerfalls von  $^{210}\text{Po}$  in BOREXINO ('in situ') durch eine elektronische  $\alpha$ - $\beta$ -Separation. Dabei werden  $\alpha$ -Ereignisse von  $\beta$ - und  $\gamma$ -Ereignissen getrennt aufgrund der unterschiedlichen Form verursachter Pulse;  $\alpha$ -Pulse besitzen nämlich eine längere Abklingzeit. Die Leistungsfähigkeit dieser  $\alpha$ - $\beta$ -Separation erreicht im relevanten Energiebereich allerdings nur 80-90%, so daß eine Vermeidung von Ereignissen des Isotops  $^{210}\text{Po}$  besonders wichtig wäre. Eine noch größere Bedeutung hätte die Vermeidung von  $^{210}\text{Bi}$ -Ereignissen, denn diese sind durch nichts von Neutrinoereignissen zu unterscheiden. Aus diesen Gründen wird auch die

Reinigungseffizienz einer Chromatographiesäule bezüglich  $^{210}\text{Pb}$  und  $^{210}\text{Bi}$  in Abschnitt 4.2 getestet.

#### 4.1.2. Aufbau einer Chromatographieanlage



*Abb. 4.2: Schematischer Aufbau einer Chromatographieanlage zur Reinigung von Flüssigkeiten, entnommen aus [Gri00]*

Der flüssige Szintillator wird zur Reinigung mithilfe von Druck durch ein zylinderförmiges Gefäß (Säule) gepreßt, welches den Adsorber (hier: Silicagel) enthält. Dazu muß die Säule nicht vollständig mit Adsorber gefüllt sein. Ein Filter hält den Adsorber zurück; seine Porengröße sollte deutlich kleiner sein als die Korngröße der Adsorberfüllung, damit der Filter nicht verstopft wird. Man vergleiche hierzu die Skizzen der in "Modul zero" verwendeten Säule aus Kap. 3.1.2.

#### 4.1.3. Chemische Grundlagen mit Silicagel als Adsorber

Silicagel ist als Adsorber sehr gut geeignet. Dies liegt hauptsächlich an seiner großen Porosität, welche ein großes Verhältnis von Oberfläche zu Volumen zur Folge hat. Das ist von entscheidender Bedeutung, da die Adsorption von Verunreinigungen des Szintillators an der Oberfläche des Adsorbers geschieht.

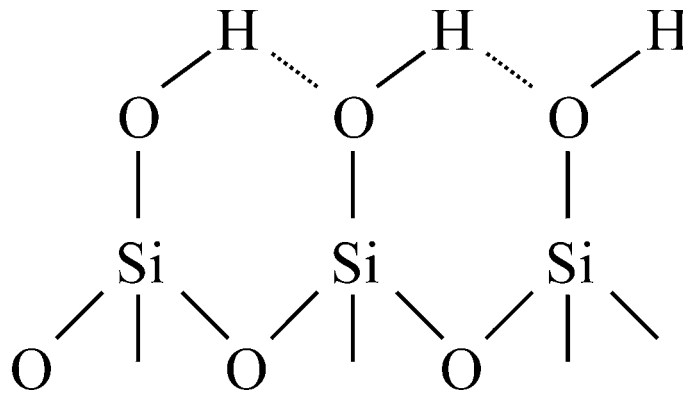


Abb. 4.3: Die Oberfläche von Silicagel

Die OH-Gruppen an der Oberfläche des Silicagels enthalten mit ihren polaren Bindungen sogenannte Haftzentren. Dort lagern sich die polaren Atome aus dem Szintillator wie U, Th, Bi, Po, Pb teilweise an. Der Szintillator selbst hat unpolaren Charakter und bindet sie daher weniger stark. Die Dichte der Haftzentren auf der Oberfläche beträgt ca.  $4,6 \text{ nm}^{-2}$  [Ung79], was bei einer spezifischen Oberfläche von typischerweise  $500 \text{ m}^2/\text{g}$  [Gri00] einer Konzentration der Haftzentren von  $6,9 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  in reinem Silicagel entspricht.

Ein Problem ergibt sich allerdings aus der extrem hygroskopischen Eigenschaft von Silicagel. An den Haftzentren lagert sich Wasser aus der Umgebungsluft an. Die Oberfläche sieht dann folgendermaßen aus:

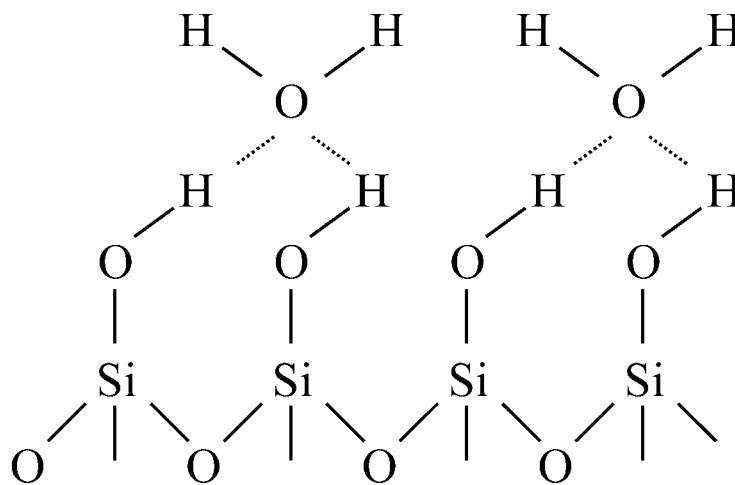
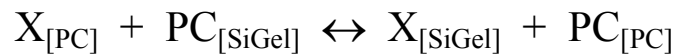


Abb. 4.4: Die Oberfläche eines wassergesättigten Silicagels

Es besteht die Gefahr, daß dadurch die Haftzentren von den Wassermolekülen abgeschirmt werden und die Adsorptionsfähigkeit gegenüber den polaren Verunreinigungen teilweise verloren geht. Dieser Umstand soll u.a. im Rahmen dieser Arbeit untersucht werden. Da das Silicagel normalerweise mit Luft in Berührung kommt, muß es, um den gewünschten wasserfreien Zustand zu erreichen, konditioniert werden. Dazu sollte es einige Stunden im Vakuum bei  $150 - 200^\circ\text{C}$  getrocknet werden [Ang97]. Eine chemische Zersetzung (Abspaltung von Wasser) des Silicagels tritt erst bei einer Temperatur von ca.  $750^\circ\text{C}$  auf. Dies muß vermieden werden, denn dadurch wird das Silicagel hydrophob [Gri00].

Eine quantitative Betrachtung der Reinigungsfähigkeit des Adsorbers Silicagel gegenüber dem Szintillator PC liefert die Anwendung des Massenwirkungsgesetzes auf das folgende, die Vorgänge im Silicagel beschreibende Gleichgewicht:



Darin bedeuten:  $X_{[PC]}$  Verunreinigung gelöst in PC  
 $PC_{[SiGel]}$  PC-Molekül gebunden an Silicagel-Haftzentrum  
 $X_{[SiGel]}$  Verunreinigung gebunden an Silicagel-Haftzentrum  
 $PC_{[PC]}$  freies PC-Molekül

Die Gleichung beschreibt das Anlagern einer Verunreinigung an ein Haftzentrum im Silicagel sowie die umgekehrte Richtung des Vorgangs. Mit dem Massenwirkungsgesetz folgt für die einzelnen Konzentrationen:

$$\frac{c_{X_{[SiGel]}} \cdot c_{PC_{[PC]}}}{c_{X_{[PC]}} \cdot c_{PC_{[SiGel]}}} = K$$

Detailliertere Herleitungen darüber finden sich in [Gri00]. Bei Betrachtung eines experimentell durchgeführten Reinigungsschrittes bezieht sich hier  $c_{X_{[PC]}}$  auf das gereinigte PC.  $c_{X_{[SiGel]}}$  läßt sich berechnen als Differenz der Verunreinigungskonzentrationen vor und nach der Reinigung, welche bei genügend effektiver Reinigung durch die Verunreinigungskonzentration des "schmutzigen" PC angenähert werden kann. Ebenso näherungsweise gilt  $c_{PC_{[PC]}} \approx 4,45 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  sowie  $c_{PC_{[SiGel]}} \approx c_{\text{Haftzentren}} \approx 1,1 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ , falls die Verunreinigungskonzentrationen gegenüber diesen Werten klein sind. Dabei unterscheidet sich  $c_{\text{Haftzentren}}$  vom bereits nach Abb. 4.3 genannten Wert aufgrund der Berücksichtigung der Schüttdichte des Silicagels (Firma Merck:  $\rho=0,50 \text{ g/cm}^3$ ).

Die Gleichgewichtskonstante K hängt über das van t'Hoff – Gesetz mit der Reaktionsenthalpie  $\Delta G$  und der Temperatur T zusammen:

$$\Delta G = - RT \ln K$$

mit:  $R = 8,31451 \text{ J/mol}\cdot\text{K}$  (molare Gaskonstante)

Dabei ist  $\Delta G$  eine Naturkonstante. K ist temperaturabhängig, die Abhängigkeit ist exponentiell und man erhält sie durch Umformen der Gleichung in  $K = e^{-\Delta G/RT}$ . Im hier betrachteten Spezialfall (Silicagelsäule, PC mit polaren Verunreinigungen) gilt  $K > 1$ ,  $\Delta G < 0$ . Also wird K durch Erniedrigen der Temperatur erhöht, was eine bessere Reinigungsfähigkeit zur Folge hat.

Zur Beschreibung des Reinigungsvorgangs in der gesamten Silicagelsäule reicht diese Betrachtung jedoch nicht ganz aus, weil sie statisch ist und die Flußgeschwindigkeit des Szintillators durch die Säule vernachlässigt. Da die Zeitspanne, in der sich das obige Gleichgewicht einstellt, mit  $t \approx 1\text{s}$  [Gri00] kurz ist verglichen mit der Verweildauer eines Szintillatormoleküls in der Säule, stellt sich das Gleichgewicht nur lokal ein und nicht global innerhalb der gesamten Säule. Deshalb werden die Konzentrationen der Verunreinigungen  $X_{[SiGel]}$  und  $X_{[PC]}$  in der Nähe des Szintillatoreingangs höher sein als in der Nähe des Ausgangs, d.h. es werden sich Ortsgradienten einstellen. Um dies quantitativ zu beschreiben,

kann man die gesamte Säule durch viele in Reihe geschaltete Säulenelemente ersetzen, in denen jeweils die Verweildauer eines Szintillatormoleküls  $t \approx 1\text{s}$  beträgt, so daß in sämtlichen Säulenelementen globales Gleichgewicht vorherrscht. Die Reinheit des aus dem letzten Säulenelement austretenden Szintillators entspricht dann der des aus der gesamten Säule austretenden. Die quantitative Ausarbeitung dieses (dynamischen) Modells sowie eine Simulation des Reinigungsvorgangs findet man in [Gri00].

## 4.2. Test der Reinigungseffizienz einer Silicagelsäule im Labor

### 4.2.1. Motivation

Vor dem Aufbau einer Chromatographiesäule im großen Maßstab für BOREXINO ist es sinnvoll, im Labor die Reinigungsfähigkeit zu testen. Dazu wurden bereits einige Labortests in [Nef96], [Gri00], sowie ein Test im Rahmen von CTF1 durchgeführt [Ang97].

Da bei den bisherigen Laborexperimenten auf eine Konditionierung des Silicagels verzichtet wurde, soll im Rahmen dieser Arbeit das Silicagel vor Durchführung der Reinigung konditioniert werden, um einen möglichen Vorteil der Konditionierung (s. Kap. 4.1.3) zu untersuchen.

Außerdem wird ein synthetisch hergestelltes Silicagel der schwedischen Firma Eka Nobel, das besondere Vorteile bezüglich der Reinheit aufweist, auf seine Reinigungsfähigkeit hin überprüft. Dabei führen die erwähnten Vorteile hauptsächlich zu einer geringen Radon-Emanationsrate, deren Bestimmung man übrigens in Kapitel 5.4.3 findet. Ein Nachteil dieses Silicagels besteht in seiner Feinkörnigkeit und der dadurch verursachten niedrigen Flußrate, die in Abschnitt 4.3 untersucht wird.

Die Tests der Reinigungseffizienz beziehen sich auf die Isotope  $^{210}\text{Bi}$  und  $^{210}\text{Po}$ . Wie bereits in Kapitel 4.1.1 erläutert wurde, sind diese im Hinblick auf die Radonemanation sowie aufgrund der Nachweisschwierigkeiten besonders problematisch.

### 4.2.2. Grundlegendes

Die grundlegende Methode besteht in der Messung der Aktivität einer Szintillatormenge vor und nach dem Reinigungsschritt. Dazu sollte der Szintillator zu Beginn eine genügende, im Labor leicht detektierbare Aktivität aufweisen. Es stand eine Menge von ca. 120g radioaktiv angereichertem Szintillator zur Verfügung. Dieser wurde vor etwa drei Jahren mit  $^{222}\text{Rn}$  angereichert, so daß im Zeitraum der Durchführung der Messungen nur noch das langlebige  $^{210}\text{Pb}$  ( $t_{1/2}=22,3\text{ a}$ ) mit seinen Zerfallsprodukten darin vorhanden war (vgl. Abb. 4.1). In der Kette unterhalb  $^{210}\text{Pb}$  sollte sich ein annäherndes Zerfallsgleichgewicht eingestellt haben.



Detektiert werden die Signale der Zerfallstöchter  $^{210}\text{Bi}$  und  $^{210}\text{Po}$ :

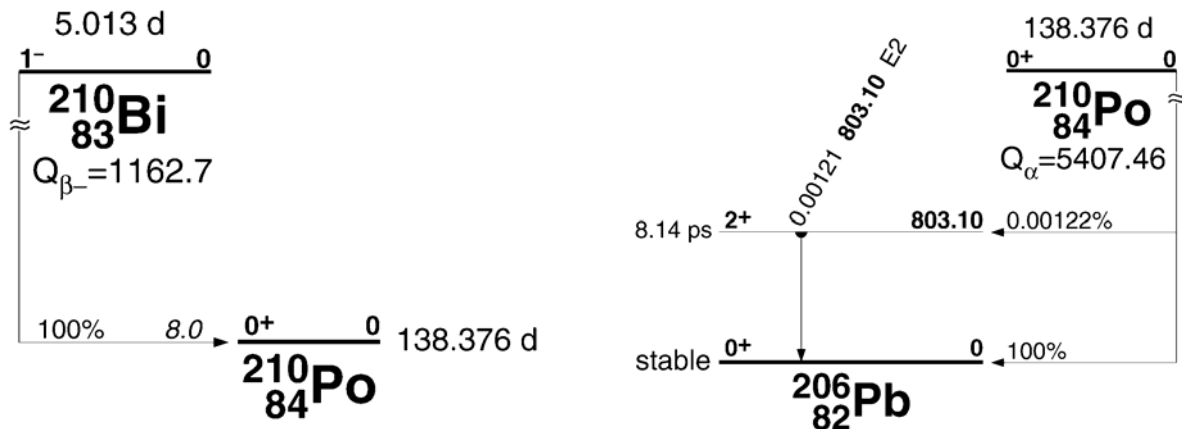


Abb. 4.5:  $\beta$ -Zerfall des  $^{210}\text{Bi}$  und  $\alpha$ -Zerfall des  $^{210}\text{Po}$  (entnommen aus [Gri00])

Der  $\beta$ -Zerfall des  $^{210}\text{Bi}$  hat eine Endpunktenergie von 1162,7 keV. Die Energie des  $\alpha$ -Zerfalls beträgt 5407 keV, allerdings fällt der  $\alpha$ -Peak durch den Effekt des  $\alpha$ -Quenchings im Szintillator PC (Quenchingfaktor: 13 [Gri00]) in den Bereich des  $\beta$ -Spektrums.

#### 4.2.3. Experimentelle Realisierung

Der experimentelle Aufbau zur Durchführung der Reinigung als auch zur Messung der Aktivität ist derselbe wie in [Gri00].

Der Reinigungsschritt einer Silicagelsäule wurde mithilfe einer Glasspritze simuliert (s. Abb. 4.6). Ein Filter, bestehend aus einer hydrophoben PTFE-Membran mit einer Porengröße von  $0,25 \mu\text{m}$ , hielt das Silicagel zurück. Der Druck wurde von Hand angelegt. Die Masse des Silicagels betrug 3,0 g, die des Szintillators Pseudocumol 39,0 g.

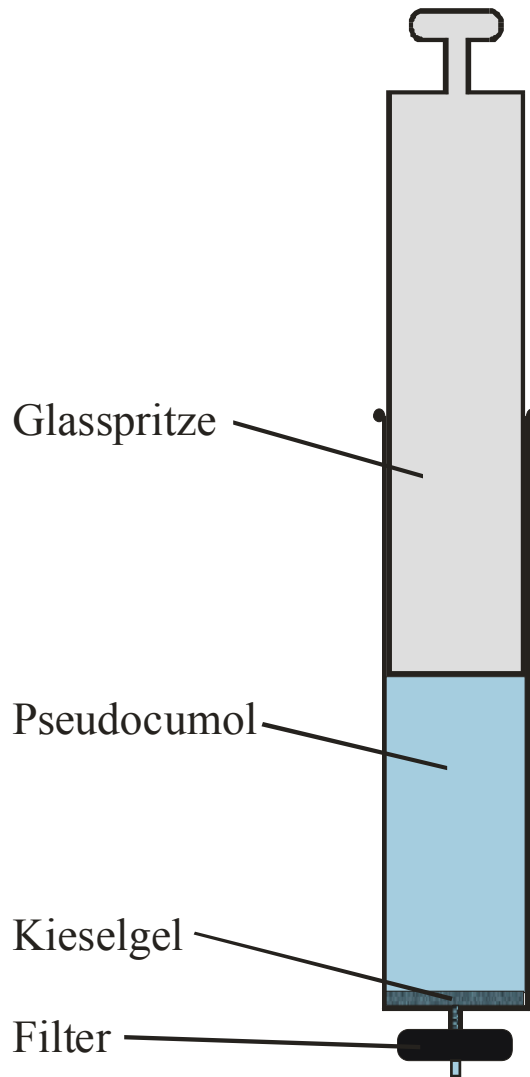


Abb. 4.6: Simulation der Chromatographiesäule durch eine Glasspritze (entnommen aus [Gri00])

Das verwendete Silicagel wurde unmittelbar vor der Reinigungsaktion in einem Ofen bei 150-200°C ca. 2-3 Stunden konditioniert, allerdings nicht in Vakuum. Der Ofen war während der Konditionierung ständig belüftet. Bei einer Menge von 10.0 g Silicagel (Merck, Porengröße 60 Å, Korngröße 64-200 µm) reduzierte sich die Masse durch die Konditionierung um 0.4 g, was einem Wasseranteil von 4% entspricht.

Der gereinigte Szintillator PC wurde mit einem Gefäß aufgefangen und in eine Meßdose aus Teflon (s. Abb. 4.7) gefüllt. Die Dose besaß einen Durchmesser ca. 7 cm von und eine Höhe von ca. 2 cm, die Füllmenge betrug 26,4 g. Der Wellenlängenschieber PPO mußte hier erneut zugegeben werden, auch wenn er schon vor dem Reinigungsvorgang im Szintillator enthalten war, da die PPO-Moleküle größtenteils von der Silicagelsäule zurückgehalten werden. Ein weiteres Problem besteht darin, daß der Szintillator durch den Kontakt mit Sauerstoff aus der Luft "gequencht" wird, d.h. eine geringere Anzahl an Photonen pro Energieeinheit produziert. Dieser Effekt wurde vermieden, indem der gereinigte Szintillator in der Meßdose ca. 20-30 Minuten mit Stickstoff geblubbert wurde. Beim Verschließen wurde die Meßdose mithilfe von Teflonbändern abgedichtet.

Über ein Glasfenster in der Meßdose wurde der Szintillator an einen Photomultiplier angekoppelt (s. Abb. 4.7), wobei eine dünne Schicht aus Silikonöl die optische Ankopplung verbesserte. Da das Glasfenster vom Photomultiplier vollständig bedeckt wurde und das Dosenmaterial Teflon im relevanten Wellenlängenbereich von ca. 400 nm eine nahezu hundertprozentige Reflektivität besitzt, dürfte das Detektorsystem eine Nachweiswahrscheinlichkeit von annähernd 100% erreichen. Im Bezug auf den Reinigungsfaktor werden Ungenauigkeiten aufgrund der Nachweiseffizienz ohnehin mit dem Prinzip der Relativmessung eliminiert.

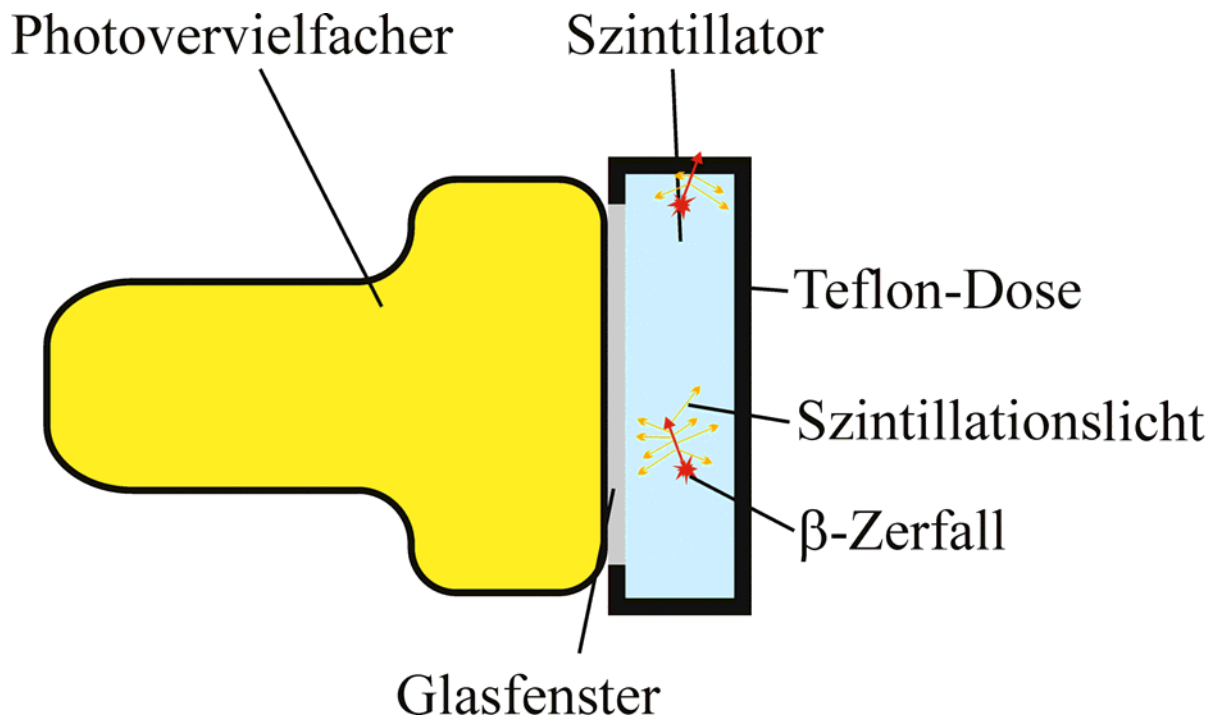


Abb. 4.7: Meßaufbau zur Detektion der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung (entnommen aus [Gri00])

Trotzdem kommen Energieverluste dadurch zustande, daß die Elektronen in der Nähe der Gefäßwand stattfindender  $\beta$ -Zerfälle nicht vollständig im Szintillator abgebremst werden, sondern in die Wand eindringen. Sie deponieren dann nur einen Teil ihrer Energie im Szintillator, weshalb sich das  $\beta$ -Spektrum zugunsten kleinerer Energien verformt. Bei den  $\alpha$ -Teilchen ist die freie Weglänge im Szintillator so kurz, daß dieser Effekt vernachlässigt wird.

Die Aktivitätsmessungen, die in dieser Arbeit beschrieben werden, wurden im Untergrundlabor des Physik-Departments, TU Garching ausgeführt. Die Abschirmung durch das Erdreich beträgt darin ca. 15m Wasseräquivalent. Eine Bleiabschirmung mit einer Dicke von 10 cm schirmte den Meßaufbau zusätzlich ab.

Die vom Photomultiplier detektierten Ereignisse wurden durch einen ladungssensitiven, die Pulsform nicht verändernden Verstärker etwa um das 10-fache in der Amplitude vergrößert. Ein Diskriminator schnitt niederenergetische Ereignisse ab, die durch thermisches Rauschen der Elektronik verursacht werden. Diese Energieschwelle lag bei den durchgeführten Messungen zwischen 100 und 200 keV. Die brauchbaren, darüber liegenden Signale wurden mit einem "Gate" der Länge 80 ns aussortiert. Ein Analog-Digital-Wandler (ADC, LeCroy SG2249) gab sie einzeln an einen Computer zur Speicherung weiter, um die Daten nach Ende der Messungen auszuwerten.

Die Energieeichung der Meßanordnung geschah auf lineare Weise durch Festlegung zweier Bezugspunkte. Den einen lieferte das Pedestal, der vom ADC ausgegebene Wert für eine Messung von bloßem Rauschen der Elektronik. Dazu wurde das "Gate" weit genug neben dem Puls plaziert. Weil dieses Rauschen jeden Puls überlagert, muß dem Pedestal die Energie  $E=0$  zugeordnet werden. Den zweiten Eichpunkt lieferte die Comptonkante des  $\beta$ -Zerfalls einer  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle, deren theoretischer Energiewert 477,3 keV beträgt. Die Eichung wurde bei jeder einzelnen Messung neu durchgeführt. Aufgrund der begrenzten Energieauflösung des Photomultipliers wurde bei der Auswertung eine Ungenauigkeit der Energieeichung von  $\pm 30$  keV berücksichtigt.

#### 4.2.4. Auswertung der Daten

Ziel der Datenauswertung ist es, die  $\alpha$ -Aktivität von  $^{210}\text{Po}$  sowie die  $\beta$ -Aktivität von  $^{210}\text{Bi}$  im Szintillator zu bestimmen.

Da der  $\alpha$ -Peak sowohl nach oben als auch nach unten spektral begrenzt ist, fallen sämtliche  $\alpha$ -Ereignisse in den aufgenommenen Bereich des Spektrums und man erhält die  $\alpha$ -Aktivität bereits durch Abzählen dieser Ereignisse (Fläche des Peaks).

Das bis zur Energie  $E=0$  hin kontinuierliche  $\beta$ -Spektrum dagegen wird nur in dem Energiebereich registriert, der über der eingestellten Schwelle des Diskriminators liegt. Eine Möglichkeit der Aktivitätsbestimmung besteht darin, in dem zur Verfügung stehenden Energiebereich das aus der Theorie bekannte energieabhängige  $\beta$ -Spektrum [Mar80] anzufitten:

$$N_{\beta}(E)dE = C \cdot \frac{(E_0 - E)^2 \cdot (E + m_e c^2)}{c^2} dE \quad \text{mit} \quad C = \frac{3c^2}{E_0^3 (\frac{1}{4} E_0 + m_e c^2)}$$

wobei  $E_0=1162,7$  keV die Endpunktenergie des  $\beta$ -Zerfalls ist.

Die bereits unter 4.2.3 erwähnte Verzerrung des  $\beta$ -Spektrums durch den Einfluß der Gefäßwand führt allerdings zu einer merklichen Diskrepanz zwischen dem theoretischen und dem real meßbaren Spektrum. In [Gri00] wurde dieser Effekt am Computer simuliert. Dabei wird von einer räumlich konstanten Konzentration der  $\beta$ -emittierenden  $^{210}\text{Bi}$ -Atome im Szintillator ausgegangen. Mit den geometrischen Abmessungen der Meßdose, der Masse des eingefüllten Szintillators von 26,4 g sowie dem energieabhängigen  $\beta$ -Absorptionskoeffizienten ergab sich eine etwas modifizierte Kurve (rote Kurve in Abb. 4.8), angenähert durch ein Polynom:

$$N(E)dE = c_1 E^4 + c_2 E^3 + c_3 E^2 + c_4 E + c_5$$

mit

$$\begin{aligned} c_1 &= -2,717 \cdot 10^{-15} \\ c_2 &= 9,188 \cdot 10^{-12} \\ c_3 &= -9,241 \cdot 10^{-9} \\ c_4 &= 1,025 \cdot 10^{-6} \\ c_5 &= -1,810 \cdot 10^{-3} \end{aligned}$$

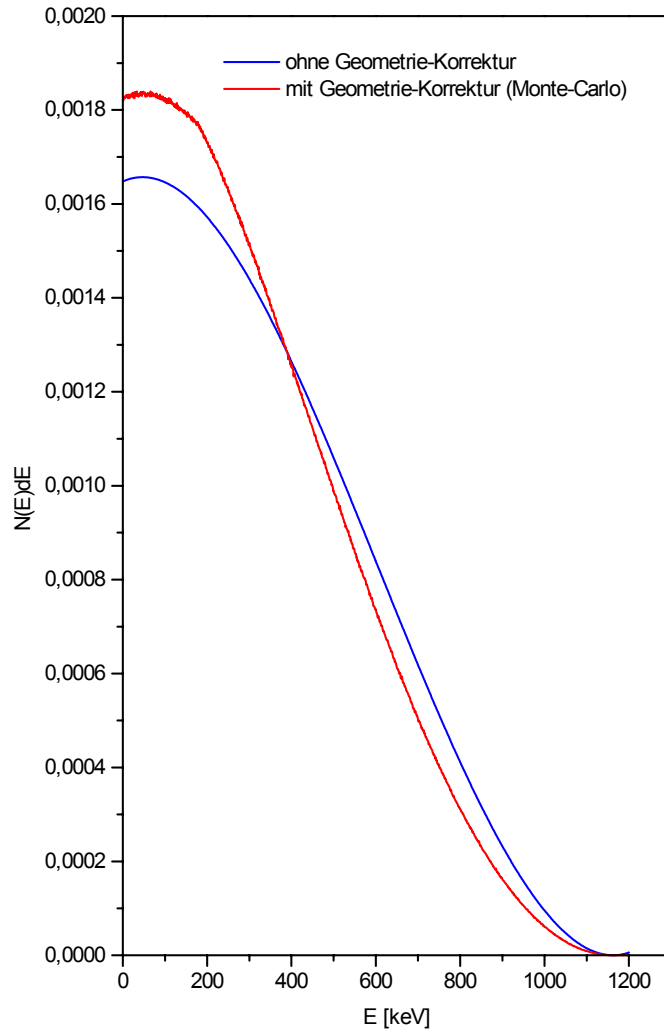
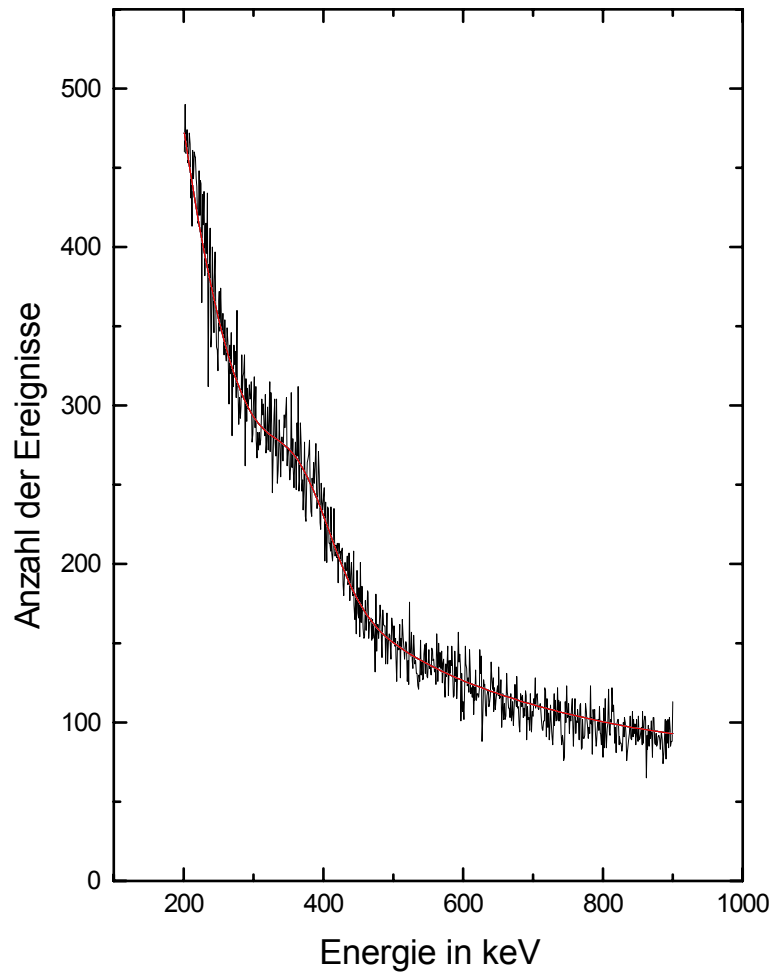


Abb. 4.8: Vergleich des gewöhnlichen  $\beta$ -Spektrums (blau) mit der (roten) korrigierten Kurve (entnommen aus [Gri00])

Bei den niedrigfrequenten Messungen, d.h. den Aktivitätsmessungen des Szintillators nach dem Reinigungsschritt, konnte diese korrigierte  $\beta$ -Kurve verwendet werden, ohne einen zu großen Unterschied zwischen Messung und Fitkurve zuzulassen. Abb. 4.9 zeigt den Fit einer Summe aus exponentiell abfallendem Untergrund, korrigierter  $\beta$ -Kurve und gaußförmigem  $\alpha$ -Peak an ein gemessenes Spektrum. Dabei handelt es sich um eine Probe gereinigten Szintillators unter Verwendung von Silicagel der schwedischen Firma Eka Nobel.



*Abb. 4.9: Gemessenes Spektrum und zugehöriger Fit einer gereinigten Szintillatorprobe*

Es sei darauf hingewiesen, daß hier der Großteil der Ereignisse von Untergrundquellen wie kosmischer Strahlung oder Radon in Luft stammt. Die Bestimmung der Meßungenauigkeiten wurde vom Fitprogramm übernommen.

Größere Probleme bereitete die Auswertung des Spektrums des angereicherten Szintillators vor dem Reinigungsschritt. Der Untergrund ist hier nahezu vernachlässigbar, in den folgenden Spektren (Abb. 4.10, 4.11) wurde er bereits abgezogen.

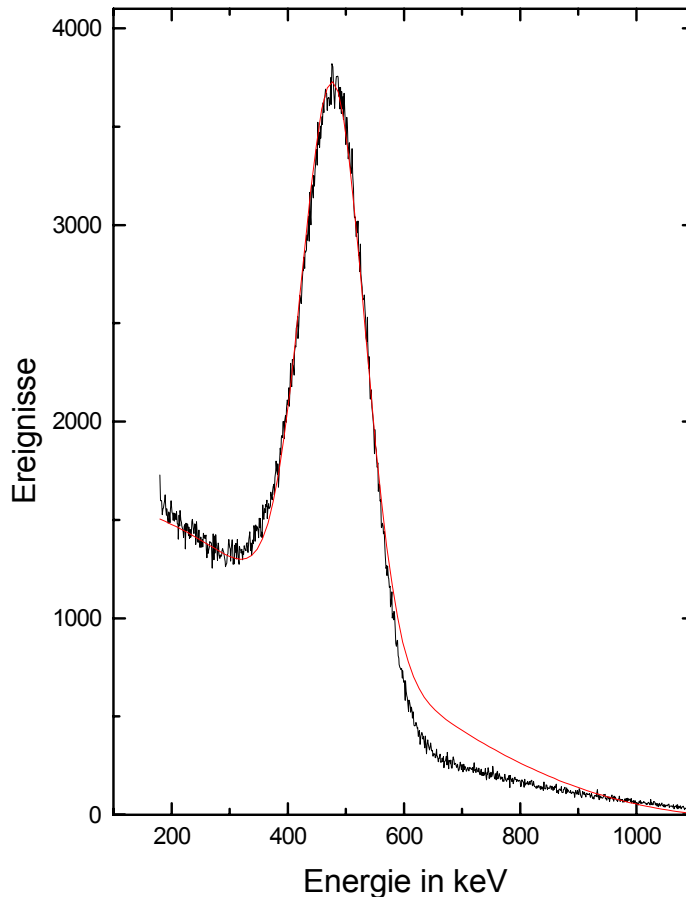


Abb. 4.10: Spektrum des angereicherten Szintillators beim Versuch, eine Summe aus  $\alpha$ -Peak und korrigiertem  $\beta$ -Spektrum anzufitten

Das  $\beta$ -Spektrum weist hier eine noch stärkere Deformierung zugunsten niedriger Energien auf, als es allein durch den Einfluß der Gefäßabmessungen (korrigierte  $\beta$ -Kurve) zu erwarten wäre. Wir vermuten die Ursache darin, daß sich die polaren  $^{210}\text{Bi}$ -Atome verstärkt an der Oberfläche der Meßdose, vor allem am Sichtglas, anlagern, denn dann würde ein noch geringerer Anteil der Energie im Szintillator deponiert. Dies könnte bedingt sein durch eine elektrostatische Aufladung, die sich während der Vorbereitung der Messung zufällig durch Kontakt mit anderen Stoffen oder den Händen hatte ergeben können. Ein bevorzugtes Anlagern der Bi- und Po- Atome an den Innenwänden der Meßdose fiel mehrmals bei der Durchführung der Versuche auf. Unter anderem mußte die Dose gründlich mit Aceton und verdünnter Salpetersäure gereinigt werden, um sie von den erwähnten Isotopen zu befreien.

Der  $\beta$ -Anteil der Fitkurve in obiger Abb. 4.10 wurde an das Spektrum nur im Bereich zwischen 200 und 300 keV angepaßt und dient als obere Grenze für die  $\beta$ -Aktivität. Die untere Grenze wurde abgeschätzt durch Abzählen der Ereignisse im zur Verfügung stehenden Bereich (130 – 1163 keV), abzüglich des  $\alpha$ -Peaks sowie unter der Annahme eines konstanten Beitrags von 1700 Ereignissen im Bereich unter 130 keV. Dies scheint mit Blick auf die beiden theoretischen Spektren in Abb. 4.8 als Untergrenze plausibel.

Das Volumen des  $\alpha$ -Peaks wiederum wurde gewonnen durch ein phänomenologisches Anpassen der  $\beta$ -Kurve als Untergrund im Bereich zwischen 300 und 700 keV. Dazu wurde die korrigierte  $\beta$ -Kurve mit einer Gaußfunktion als Faktor versehen und in Summe mit dem (ebenfalls gaußförmigen)  $\alpha$ -Peak angefitet:

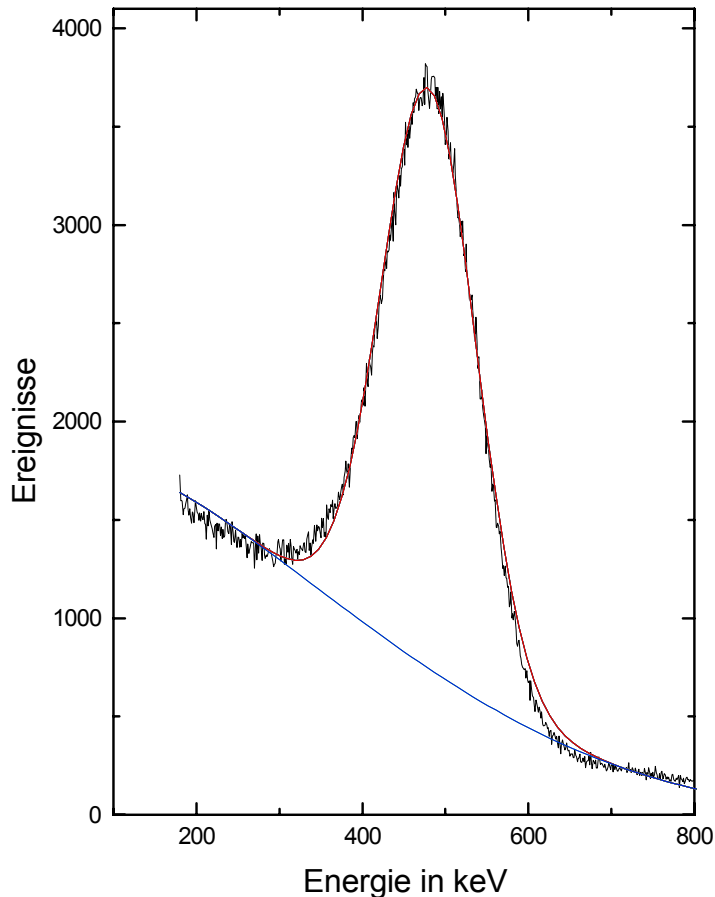


Abb. 4.11: Bestimmung der  $^{210}\text{Po}$ -Aktivität (Fläche des  $\alpha$ -Peaks) durch den Fit einer phänomenologisch ermittelten  $\beta$ -Kurve (blau) zuzüglich  $\alpha$ -Peak (rot) an das Spektrum des angereicherten Szintillators.

#### 4.2.5. Ergebnisse

Es wurde die Reinigungsfähigkeit zweier verschiedener Silicagele getestet. Jeweils betrug die Masse der Silicagelsäule 3,0 g und die Masse des durchgedrückten Szintillators Pseudocumol 39,0 g. Das Silicagel wurde vor dem Reinigungsschritt 2-3 Stunden bei 150 – 200°C konditioniert.

Bei der ersten Silicagelprobe wurde ebenfalls der Rücktransfer aus der Säule bestimmt, das ist die Kontamination einer Menge sauberen Szintillators, der unmittelbar nach der Reinigung des angereicherten Szintillators durch die verschmutzte Säule geflossen ist.

In den Tabellen 4.3 und 4.4 sind die Mengen an Po und Bi in den Szintillatorproben vor und nach dem Reinigungsschritt dargestellt. Die Aktivitäten beziehen sich auf jeweils 26,4 g PC. Die Reaktionsenthalpie  $\Delta G$  berechnet sich wie in Abschnitt 4.1.3 gezeigt. Hierbei müssen die volumenbezogenen Konzentrationen (in  $\text{cm}^{-3}$ ) eingesetzt werden, zur Umrechnung zwischen  $[\text{g/g}]$  und  $[\text{cm}^{-3}]$  werden  $\rho_{\text{PC}}=0,88 \text{ g/cm}^3$  sowie die Schüttdichte von Silicagel  $\rho_{\text{SiGel}}=0,50 \text{ g/cm}^3$  verwendet. Die Temperatur  $T$  betrug etwa 300 K.



	Aktivität von $^{210}\text{Po}$ [1/s]	Konzentration von $^{210}\text{Po}$ im PC [g/g]	Reinigungs-faktor	$\Delta G$ [kJ/mol]
Angereichertes PC	$21,3 \pm 0,7$	$(4,86 \pm 0,17) \cdot 10^{-15}$	-	-
Gereinigtes PC Silicagel: Merck, 60Å, 64-200 $\mu\text{m}$	$(5,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-2}$	$(1,21 \pm 0,15) \cdot 10^{-17}$	$400_{-50}^{+70}$	$-(23,3 \pm 0,4)$
Rücktransfer aus dieser Säule (Merck, 60Å, 64- 200 $\mu\text{m}$ ):	$(1,2 \pm 0,8) \cdot 10^{-2}$	$(2,8 \pm 1,8) \cdot 10^{-18}$	-	-
Gereinigtes PC Silicagel: Eka Nobel, Kromasil, 60Å, $\varnothing 16\mu\text{m}$	$(4,1 \pm 1,0) \cdot 10^{-2}$	$(9,3 \pm 2,3) \cdot 10^{-18}$	$520_{-110}^{+200}$	$-(24,0 \pm 0,8)$

Tab. 4.3: Ergebnisse der Säulenchromatographie für  $^{210}\text{Po}$

	Aktivität von $^{210}\text{Bi}$ [1/s]	Konzentration von $^{210}\text{Bi}$ im PC [g/g]	Reinigungs-faktor	$\Delta G$ [kJ/mol]
Angereichertes PC	$42,0 \pm 1,8$	$(3,47 \pm 0,15) \cdot 10^{-16}$	-	-
Gereinigtes PC Silicagel: Merck, 60Å, 64-200 $\mu\text{m}$	$0,80 \pm 0,07$	$(6,6 \pm 0,6) \cdot 10^{-18}$	$53_{-6}^{+7}$	$-(18,2 \pm 0,3)$
Rücktransfer aus dieser Säule (Merck, 60Å, 64- 200 $\mu\text{m}$ ):	$< 5,5 \cdot 10^{-2}$	$< 4,6 \cdot 10^{-19}$	-	-
Gereinigtes PC Silicagel: Eka Nobel, Kromasil, 60Å, $\varnothing 16\mu\text{m}$	$0,33 \pm 0,13$	$(2,7 \pm 1,1) \cdot 10^{-18}$	$130_{-40}^{+90}$	$-(20,5_{-1,0}^{+1,4})$

Tab. 4.4: Ergebnisse der Säulenchromatographie für  $^{210}\text{Bi}$

Die Reinigungsfähigkeit des Silicagels von Merck, die bereits in [Gri00] getestet worden war, konnte bestätigt werden. Ein näherer Vergleich findet sich anschließend in Kap. 4.2.6.

Außerdem konnte gezeigt werden, daß das auf synthetische Weise hergestellte Silicagel von Eka Nobel eine ebenso gute bis etwas bessere Reinigungsfähigkeit besitzt. Dessen Vorteile deuten sich gegenüber Po an und sind gegenüber Bi bereits erkennbar.

#### 4.2.6. Vergleich mit Ergebnissen vorangegangener Messungen

Eine im Rahmen von [Gri00] angefertigte Meßreihe verwendete denselben experimentellen Aufbau, verzichtete aber auf eine Konditionierung des Silicagels. Es wurde nur das Silicagel von Merck (60Å, 64-200  $\mu\text{m}$ ) benutzt, dafür aber die Menge, also das Volumen der Säule variiert.

	Aktivität von $^{210}\text{Po}$ [1/s]	Konzentration von $^{210}\text{Po}$ im PC [g/g]	Reinigungs-faktor	$\Delta G$ [kJ/mol]
Angereichertes PC	$12,1 \pm 1,4$	$(2,8 \pm 0,3) \cdot 10^{-15}$	-	-
Reinigung: 39,0 g PC, 3,0 g Kieselgel	$(3,5 \pm 0,4) \cdot 10^{-2}$	$(8,0 \pm 1,0) \cdot 10^{-18}$	$350_{-80}^{+90}$	$-(22,3 \pm 0,4)$
Rücktransfer aus dieser Säule: 39,0 g PC	$(1,3 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}$	$(3,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-18}$	-	-
Reinigung: 39,0 g PC, 0,3 g Kieselgel	$0,89 \pm 0,12$	$(2,0 \pm 0,3) \cdot 10^{-16}$	$14_{-3}^{+4}$	$-(19,9 \pm 0,5)$
Rücktransfer aus dieser Säule: 39,0 g PC	$(8,3 \pm 1,3) \cdot 10^{-3}$	$(1,9 \pm 0,3) \cdot 10^{-18}$	-	-

Tab. 4.5: Ergebnisse der Säulenchromatographie für  $^{210}\text{Po}$  aus [Gri00]

	Aktivität von $^{210}\text{Bi}$ [1/s]	Konzentration von $^{210}\text{Bi}$ im PC [g/g]	Reinigungs-faktor	$\Delta G$ [kJ/mol]
Angereichertes PC	$21 \pm 4$	$(1,7 \pm 0,4) \cdot 10^{-16}$	-	-
Reinigung: 39,0 g PC, 3,0 g Silicagel	$0,87 \pm 0,24$	$(7,2 \pm 2,0) \cdot 10^{-18}$	$24_{-9}^{+16}$	$-(15,8 \pm 0,9)$
Rücktransfer aus dieser Säule: 39,0 g PC	$2,0 \pm 0,6$	$(1,6 \pm 0,5) \cdot 10^{-17}$	-	-
Reinigung: 39,0 g PC, 0,3 g Silicagel	$0,8 \pm 0,3$	$(6,7 \pm 2,4) \cdot 10^{-18}$	$26_{-11}^{+24}$	$-(21,5 \pm 1,0)$
Rücktransfer aus dieser Säule: 39,0 g PC	$0,15 \pm 0,04$	$(1,3 \pm 0,4) \cdot 10^{-18}$	-	-

Tab. 4.6: Ergebnisse der Säulenchromatographie für  $^{210}\text{Bi}$  aus [Gri00]

Als identische Versuche direkt zu vergleichen sind im Falle von  $^{210}\text{Po}$  Zeile 2 aus Tab. 4.3 mit Zeile 2 aus Tab. 4.5, im Falle von  $^{210}\text{Bi}$  Zeile 2 aus Tab. 4.4 mit Zeile 2 aus Tab. 4.6 sowie jeweils die Werte des angereicherten PC in Zeile 1. Als Reinigungsfaktor ergab sich mit Konditionierung des Silicagels bei Po  $400_{-50}^{+70}$  im Vergleich zu  $350_{-80}^{+90}$  ohne Konditionierung, sowie bei Bi  $53_{-6}^{+7}$  im Vergleich zu  $24_{-9}^{+16}$  ohne.

Wenn überhaupt kann ein kleiner Unterschied bei Bi festgestellt werden, im allgemeinen sieht man jedoch keinen Vorteil der Konditionierung. Ein möglicher Grund könnte die Tatsache sein, daß kein Vakuumofen verwendet wurde. Die Bedingung Vakuum ist bei der Chromatographiesäule des "Modul zero" im Rahmen von BOREXINO auch nicht erfüllt, dort wird während der Konditionierung allerdings mit hochreinem Stickstoff gespült.

Die berechneten Reaktionsenthalpien für Po und Bi aus Tab. 4.3 und 4.4 liegen im selben Bereich wie die entsprechenden Werte aus [Gri00] in Tab. 4.5 und 4.6.

In [Nef96] wurde ebenfalls die Reinigungsfähigkeit von Silicagel gegenüber  $^{210}\text{Po}$  im Labor getestet. Die Porengröße des Silicagels betrug  $60\text{\AA}$  und die Korngröße  $200 - 500\ \mu\text{m}$ . Die Säule war etwa  $10\ \text{cm}$  hoch und hatte einen Durchmesser von  $1\ \text{cm}$ . Es wurde das Verhalten der beiden Flüssigszintillatoren PC und PXE verglichen. Für PXE ergab sich ein Reinigungsfaktor von  $400$  bei einer Aktivität von  $4 \cdot 10^{-3}\ \text{Bq}$  nach dem Reinigungsschritt, in guter Vergleichbarkeit mit den obigen Messungen. Für PC konnte leider nur eine Untergrenze von  $20$  als Reinigungsfaktor angegeben werden bei einer Nachweisgrenze der Aktivität von  $1 \cdot 10^{-3}\ \text{Bq}$ .

### 4.3. Flußmessungen in Silicagelsäulen

#### 4.3.1. Motivation

Die praktische Durchführbarkeit einer Säulenchromatographie hängt natürlich wesentlich von der Flußrate in der Säule ab. Im Rahmen von BOREXINO soll die Reinigung von ca.  $300\ \text{t}$  Flüssigszintillator durchgeführt werden, entsprechend dem Volumen der "Inner Vessel". Hat man beispielsweise einen Zeitraum von  $100$  Tagen zur Verfügung, so müßte ein ununterbrochener Fluß von  $125\ \text{kg/h}$  erreicht werden. Zum Vergleich betrug der Fluß durch die Silicagelsäule beim PXE-Test der CTF2 zwischen  $120$  und  $150\ \text{kg/h}$ . Dabei wurde ein Silicagel der Korngröße  $63-200\ \mu\text{m}$  verwendet.

Ein weiterer Gesichtspunkt, der eine genügende Flußrate erfordert, ist die Emanation von Radon während der Chromatographiesäulenreinigung. Wie in Kapitel 5.2.5 erläutert, führt eine zeitlich längere Reinigungsaktion zu einem höheren  $^{210}\text{Pb}$ -Gehalt im Szintillator.

Die Feinkörnigkeit des im Sinne der Radonemanation erwünschten Silicagels "Kromasil" von Eka Nobel (Korngröße durchschnittlich  $16\ \mu\text{m}$ ) läßt allerdings einen niedrigen Fluß befürchten. Deshalb wurde die Abhängigkeit des Flusses von der Korngröße überprüft. Die Möglichkeit, die Flußrate durch Temperaturerhöhung zu steigern, wurde ebenfalls untersucht, obwohl dies auf Kosten der Reinigungseffizienz ginge (s. Kap. 4.1.3). Bei Gelegenheit wurden auch noch andere Abhängigkeiten des Flusses getestet wie Druck, Säulenhöhe und Porengröße. Die Auswertung befindet sich in Kapitel 4.3.5.

Darüber hinaus besteht bei PC die Hoffnung, aufgrund des Viskositätsunterschieds höhere Flußraten zu erreichen. In Kapitel 4.3.5a findet sich eine Bestimmung der Viskosität von Pseudocumol.

#### 4.3.2. Theoretische Grundlagen

In der folgenden Betrachtung wird eine laminare, viskose Strömung, d.h. eine Vernachlässigung von Turbulenzen vorausgesetzt. Die Begründung liegt darin, daß die Strömungsgeschwindigkeit in einer Silicagelsäule durch den erheblichen Widerstand des Silicagels verhältnismäßig klein ist.

In einem leeren Rohr ist das Geschwindigkeitsprofil  $v(r)$ , betrachtet auf einer Querschnittfläche des Rohrs, parabolisch [Kuc89]. Zugrunde liegt die Annahme, daß die Geschwindigkeit an der Rohrwand verschwindet.

$$v(r) = \frac{\Delta p}{4\eta h} (R_{\text{Rohr}}^2 - r^2)$$

mit	$\Delta p$	Druckabfall am Rohr
	$h$	Länge des Rohrs
	$\eta$	dynamische Viskosität der Flüssigkeit [kg/m·s]
	$R_{\text{Rohr}}$	Radius des Rohrs
	$r$	Abstand eines Punkts von der Rohrachse

Der Fluß  $Q$  durch das Rohr ergibt sich durch Integration über den Rohrquerschnitt (Gesetz von Hagen-Poiseuille):

$$Q = \int v(r) dA = \int_{r=0}^{R_{\text{Rohr}}} 2\pi r \cdot v(r) dr = \frac{\Delta p}{8\eta h} \cdot \pi R_{\text{Rohr}}^4 = \frac{\Delta p}{8\eta h} \cdot A \cdot R_{\text{Rohr}}^2$$

Dabei kommt die Potenz  $R^4$  zum einen vom Rohrquerschnitt  $A \sim R^2$  sowie zum anderen vom Geschwindigkeitsprofil  $v(r) \sim r^2$ . Der Fluß in einer Silicagelsäule unterscheidet sich nun genau in diesem Geschwindigkeitsprofil, da der er nicht nur an der Rohrwand verschwindet, sondern an jeder Kontaktstelle mit dem ruhenden Silicagel. Makroskopisch betrachtet ( $R_{\text{Rohr}} \gg R_{\text{Korn}}$ ) ist somit der Fluß über die Querschnittfläche des Rohrs konstant:

$$v(r) = \text{const.} \Rightarrow Q \sim R_{\text{Rohr}}^2$$

Zusätzlich muß aber noch auf mikroskopischer Skala der Einfluß der einzelnen Silicagelkörner auf den Fluß betrachtet werden. In der Silicagelsäule geht der Fluß sowohl durch die Poren des Silicagels als auch durch die Leerräume zwischen den Körnern. Dabei dürfte der erste Beitrag, der übrigens für den Reinigungseffekt verantwortlich ist, von der Flußmenge her vernachlässigbar sein, da die Porengröße (60-100 Å) um mehr als 3 Größenordnungen kleiner als die Größe der Zwischenräume (Bereich der Korngröße, 16-200 µm) ist. Wie man folgender Skizze leicht entnehmen kann, ist die Größe der Zwischenräume proportional zu  $R_{\text{Korn}}^2$ . Dies ändert sich auch nicht bei einer räumlich anderen Anordnung der Körner, denn die "großen" und "kleinen" Zwischenräume bleiben zueinander ähnliche Flächen und unterscheiden sich daher um den Faktor 4.

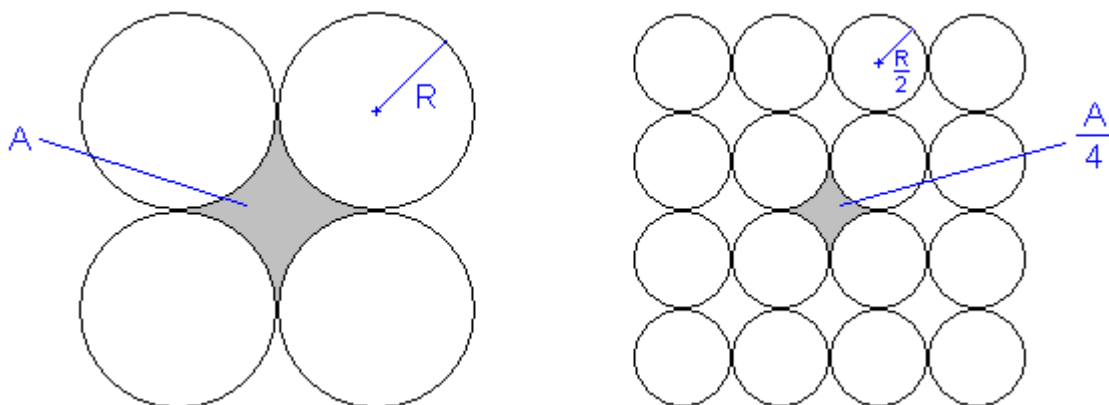


Abb. 4.12: Schematische Skizze benachbarter Silicagelkörner mit Zwischenräumen für eine Ansammlung von Körnern mit Radius  $R$  und  $R/2$

Die Strömung durch einen großen Zwischenraum wird bei Halbierung des Kornradius  $R_{\text{Korn}}$  aufgeteilt in eine Strömung durch  $2^2=4$  Zwischenräume (denn die Anzahl der Zwischenräume vervierfacht sich) mit jeweils  $1/4$  der Fläche. Überträgt man dies in ein vereinfachtes Modell,

so entspricht es der Ersetzung eines einzigen großen, leeren Rohres (Fluß  $Q$ ) durch 4 kleine Rohre mit halbem Radius. Die Rohrquerschnittfläche bleibt dabei insgesamt gleich. Da jedes der kleinen Rohre nach dem Gesetz von Hagen-Poiseuille den Fluß  $Q/16$  trägt, fließt durch die vier kleinen Rohre aber nur mehr der Fluß  $Q/4$ . Wieder rückübertragen auf die Silicagelsäule bedeutet dies, daß sich der Fluß bei Halbierung der Korngröße durch 4 teilt, also zusammen mit obiger Beziehung:

$$Q \sim R_{\text{Rohr}}^2 \cdot R_{\text{Korn}}^2, \quad \text{solange } R_{\text{Poren}} \ll R_{\text{Korn}} \ll R_{\text{Rohr}}$$

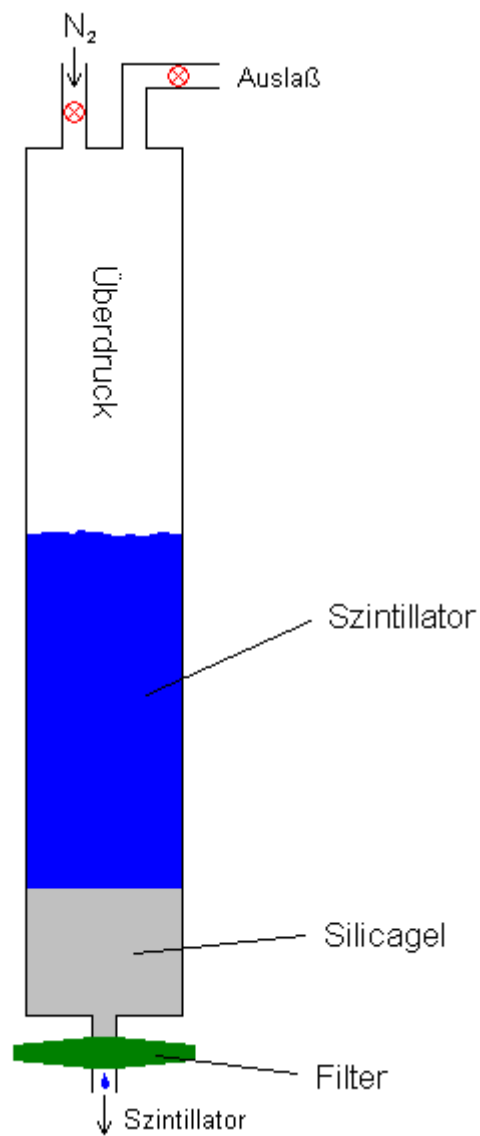
Diese Abhängigkeit steht in Einklang mit der folgenden empirischen Formel [Lar00]:

$$Q = \frac{\Delta p \cdot q \pi R_{\text{Rohr}}^2 \cdot R_{\text{Korn}}^2}{C \cdot \eta \cdot h}, \quad \text{mit der empirischen Konstante } C = \frac{45q(1-a^2)}{a^3}$$

Dabei sind  $q$  und  $a$  empirische Faktoren zwischen 0 und 1, wobei  $a$  die Porosität berücksichtigt und  $q$  den Bruchteil des wirklich durchlaufenen Säulenvolumens darstellt.  $q$  wird beispielsweise kleiner als 1, sobald der Ausgang zur Filterfläche der Säule kleiner ist als der Querschnitt der Silicagelsäule, da dann unten in den "Ecken" Totvolumen existiert. Beim Fluß  $Q$  kürzt  $q$  sich heraus ( $C \sim q$ ), die Flußgeschwindigkeit allerdings ist gegeben durch  $v = Q/(q \cdot A)$ . Beispiele für den Faktor  $a$  sind  $a=0,37$  im Falle einer Porengröße von  $60\text{\AA}$  sowie  $a=0,42$  im Falle von  $100\text{\AA}$  [Lar00].

### 4.3.3. Aufbau des Versuchs

Zur Flußmessung in einer Silicagelsäule kann im Prinzip derselbe Aufbau wie zur Szintillatortreinigung (Abb. 4.6) verwendet werden. Der einzige Unterschied besteht darin, den Druck nicht per Hand zu geben, sondern über eine Stickstoffflasche einen meßbaren, konstanten Druck anzulegen. Der Filter besteht aus einer hydrophoben PTFE-Membran mit einer Porengröße von  $0,45 \mu\text{m}$ . Als Szintillator wird sowohl PC als auch PXE getestet. Die in einem bestimmten Zeitintervall durchgelaufene Menge wird in einem Gefäß gesammelt und anschließend gewogen.



*Abb. 4.13: Schematischer Aufbau eines Versuchs zur Messung des Szintillatorflusses durch eine Silicagelsäule*

Zur Untersuchung der Temperaturabhängigkeit des Flusses wurde die gesamte Säule mit einem Heizband umwickelt sowie mit einem Temperaturmeßfühler versehen.

#### 4.3.4. Ergebnisse

Es wurden folgende Messungen mit den Szintillatoren PC (Tab. 4.7) und PXE (Tab. 4.8) durchgeführt. Die Auswertung und Deutung folgt im nächsten Kapitel.

Firma	Porengröße in Å	Korngröße in µm	Silicagel- masse in g	Tempera- tur in °C	Druck in bar	Fluß in cm <sup>3</sup> /min
Merck	60	15-40	2,00	24	1,00	0,72±0,02
Merck	60	15-40	2,00	24	0,80	0,572±0,010
Merck	60	15-40	2,00	24	0,60	0,406±0,008
Merck	60	15-40	2,00	24	0,40	0,248±0,002
Merck	60	15-40	4,00	24	0,80	0,535±0,013
Merck	60	15-40	4,00	45	0,80	0,675±0,007
Merck	60	15-40	4,00	72	0,80	0,784±0,011
Merck	60	15-40	8,00	24	0,80	0,566±0,005
Merck	60	63-200	4,00	23	0,80	12,3±0,3
Merck	60	63-200	4,00	43	0,80	14,34±0,11
Merck	60	63-200	4,00	72	0,80	15,84±0,14
Eka Nobel	60	16	2,00	23	0,80	0,272±0,009
Eka Nobel	60	16	4,00	23	0,80	0,258±0,003
Eka Nobel	60	16	4,00	45	0,80	0,305±0,002
Eka Nobel	60	16	4,00	72	0,80	0,313±0,015
Eka Nobel	60	16	8,00	23	0,80	0,282±0,002
Eka Nobel	100	16	2,00	23	0,80	0,297±0,003
Eka Nobel	100	16	2,00	45	0,80	0,335±0,003
Eka Nobel	100	16	2,00	72	0,80	0,385±0,010

Tab. 4.7: Flußmessungen mit PC

Firma	Porengröße in Å	Korngröße in µm	Silicagel- masse in g	Tempera- tur in °C	Überdruck in bar	Fluß in cm <sup>3</sup> /min
Merck	60	63-200	4,00	23	0,80	7,4±0,5
Merck	60	63-200	4,00	55	0,80	15,4±1,3
Merck	60	63-200	4,00	90	0,80	28,2±1,0
Eka Nobel	60	16	2,00	23	0,80	(3,13±0,11)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	60	16	4,00	23	0,80	(2,97±0,04)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	60	16	4,00	55	0,80	(4,02±0,04)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	60	16	4,00	90	0,80	(5,7±0,3)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	60	16	8,00	23	0,80	(2,51±0,10)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	100	16	2,00	23	0,80	(3,26±0,21)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	100	16	2,00	55	0,80	(5,43±0,06)·10 <sup>-2</sup>
Eka Nobel	100	16	2,00	90	0,80	(6,54±0,09)·10 <sup>-2</sup>

Tab. 4.8: Flußmessungen mit PXE

### 4.3.5. Deutung der Ergebnisse mit Bezug zur Theorie

#### a) Einfluß des Szintillators

Der Fluß ist indirekt proportional zur Viskosität der verwendeten Flüssigkeit. Auf diese Weise entstehen die grundsätzlichen Unterschiede in den Flußraten der beiden Szintillatoren PC und PXE. Ein Vergleich dieser Flußraten bei allen Messungen unter identischen Versuchsbedingungen liefert allerdings verschiedene Faktoren für verschiedene Arten des Silicagels:

Firma	Korngröße in $\mu\text{m}$	Porengröße in $\text{Å}$	Silicagel-masse in g	Temperatur in $^{\circ}\text{C}$	$\frac{Q_{\text{PC}}}{Q_{\text{PXE}}}$	
Merck	63-200	60	4,00	23	1,66	1,2 $\pm$ 0,5
		60	4,00	43	1,21	
		60	4,00	72	0,76	
Eka Nobel	16	60	2,00	23	8,69	9,4 $\pm$ 1,2
		60	4,00	23	8,69	
		60	8,00	23	11,24	
		100	2,00	23	9,11	

Dabei wurden die PXE-Flußraten für das Merck-Silicagel bei 43 $^{\circ}\text{C}$  und 72 $^{\circ}\text{C}$  mithilfe der grün skizzierten Fitfunktion aus Abb. 4.16 in d) gewonnen.

In [Sch99] wird die dynamische Viskosität von PXE bei 38 $^{\circ}\text{C}$  mit  $\eta=5,17 \text{ g/m}\cdot\text{s}$  quantifiziert. Aufgrund der obigen Werte für  $Q_{\text{PC}}/Q_{\text{PXE}}$  sowie der Temperaturabhängigkeiten aus den Fitkurven in d) kann die Viskosität von PC (einschl. des Fehlers) zwar nicht exakt bestimmt werden, eine Abschätzung ist jedoch möglich. Dazu werden in Verbindung mit PXE vorerst nur die Messungen mit dem Silicagel von Eka Nobel (16 $\mu\text{m}$ ) verwendet.

Die rot skizzierte Fitkurve aus Abb. 4.16 liefert einen Faktor für die Temperaturabhängigkeit des Flusses von  $Q_{\text{PXE}}(38^{\circ}\text{C})/Q_{\text{PXE}}(23^{\circ}\text{C}) = 1,23$ . Damit ergibt sich  $\eta_{\text{PXE}}(23^{\circ}\text{C}) = 6,34 \text{ g/m}\cdot\text{s}$ , und schließlich unter Verwendung von  $Q_{\text{PC}}(23^{\circ}\text{C})/Q_{\text{PXE}}(23^{\circ}\text{C}) = 9,4$  ein Wert für die Viskosität von Pseudocumol bei 23 $^{\circ}\text{C}$ :

$$\eta_{\text{PC}}(23^{\circ}\text{C}) \approx 0,67 \text{ g/m}\cdot\text{s}$$

Zum Vergleich: Bei 20 $^{\circ}\text{C}$  beträgt die Viskosität von Wasser 1,0  $\text{g/m}\cdot\text{s}$  und die Viskosität von Luft 0,018  $\text{g/m}\cdot\text{s}$  [Sch89]. Erfahrungsgemäß gilt  $\eta_{\text{Luft}} < \eta_{\text{PC}} < \eta_{\text{Wasser}} < \eta_{\text{PXE}}$ , was den obigen Wert für  $\eta_{\text{PC}}$  bestätigt.

Die PXE-Messungen am Silicagel von Merck (63-200 $\mu\text{m}$ ) ergeben unter Verwendung der grün skizzierten Fitkurve aus Abb. 4.16 den Wert 6,2  $\text{g/m}\cdot\text{s}$  für die Viskosität von PC bei 23 $^{\circ}\text{C}$ . Das widerspricht deutlich der eben genannten Ungleichung  $\eta_{\text{PC}} < \eta_{\text{Wasser}}$  und ist ein Anzeichen für einen systematischen Fehler in diesem Teil der Messungen.

#### b) Einfluß des Drucks

Der Einfluß des Drucks wurde im Rahmen der ersten vier Messungen mit PC untersucht. Dabei wurde Silicagel von Merck mit einer Porengröße von 60 $\text{Å}$ , einer Korngröße von 15-40  $\mu\text{m}$  sowie der Masse 2,00 g verwendet. Die Temperatur betrug 24  $^{\circ}\text{C}$ .



Überdruck in bar	Fluß in cm <sup>3</sup> /min
1,00	0,72±0,02
0,80	0,572±0,010
0,60	0,406±0,008
0,40	0,248±0,002

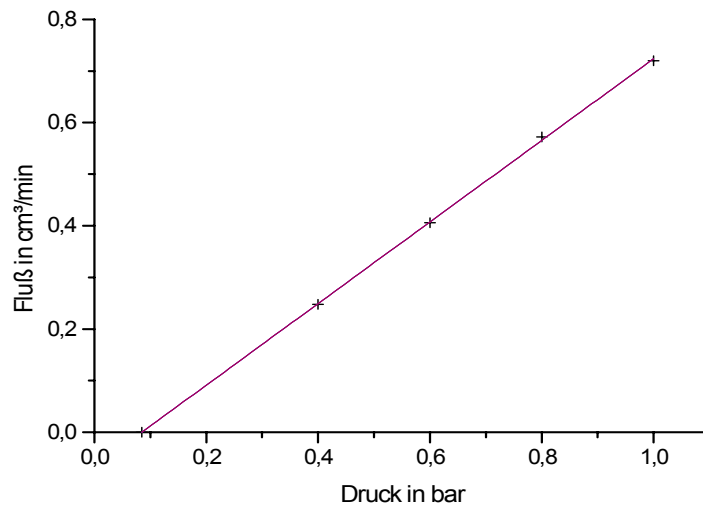


Abb. 4.14: Einfluß des Drucks  $p$  auf den Fluß  $Q$

Als Fitgerade ergab sich:  $Q(p) = (0,791 \text{ bar}^{-1} \cdot p - 0,0672) \text{ cm}^3/\text{min}$

Der verschobene Nullpunkt ( $p=0,085 \text{ bar}$ ;  $Q=0$ ) deutet auf einen endlichen Flußwiderstand der Versuchsanordnung hin. Der effektiv an der Silicagelsäule abfallende Druck  $\Delta p$  wäre somit  $\Delta p = p - 0,085 \text{ bar}$ .

Der erwartete lineare Zusammenhang zwischen Fluß und Druck wird hiermit bestätigt.

### c) Höhe der Silicagelsäule

Der Einfluß der Höhe der Silicagelsäule wurde im Rahmen dreier Versuchsreihen untersucht. Dabei entsprach eine Masse von 2.00 g einer Säulenhöhe von 0.7 cm, 4.00 g entsprachen 1.4 cm und 8.00 g entsprachen 2.8 cm.

	Silicagelmasse in g	Fluß in cm <sup>3</sup> /min
PC Silicagel: Merck, 60Å, 15-40 µm, 24°C, 0.80 bar	2,00	0,572±0,010
	4,00	0,535±0,013
	8,00	0,566±0,005
PC Silicagel: Eka Nobel, 60Å, 16 µm, 23°C, 0.80 bar	2,00	0,272±0,009
	4,00	0,258±0,003
	8,00	0,282±0,002
PXE Silicagel: Eka Nobel, 60Å, 16 µm, 23°C, 0.80 bar	2,00	$(3,13 \pm 0,11) \cdot 10^{-2}$
	4,00	$(2,97 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$
	8,00	$(2,51 \pm 0,10) \cdot 10^{-2}$

Die lineare Abhängigkeit des Flusses  $Q$  von der Silicagelsäulenhöhe  $h$  bestätigt sich hier nicht. Die beiden Größen sind beinahe unabhängig voneinander. Der Grund liegt wohl in der geometrischen Beschaffenheit des Versuchsaufbaus. Der Verbindungskanal zwischen Säule

und Filter ist um mindestens eine Größenordnung enger als die Säule selbst (vgl. Abb. 4.13). Da er sich ebenfalls mit Silicagel füllt, stellt er einen dominanten Flußwiderstand dar, der um mindestens zwei Größenordnungen ( $Q \sim A$ ) größer sein dürfte als der der Säule. Die Variation der Säulenhöhe um den Faktor vier fällt deshalb nur sehr schwach ins Gewicht.

#### d) Einfluß der Temperatur

Die Temperatur sollte den Fluß über die Viskosität beeinflussen. Gewöhnlich führt bei Flüssigkeiten eine höhere Temperatur zu einem leichteren Überwinden zwischenmolekularer Kräfte, so daß die dynamische Viskosität  $\eta$  abnimmt. In [Kuc89] wird das folgende Gesetz mit den empirischen Konstanten  $\alpha$  und  $\beta$  angegeben:

$$\eta(T) \approx \alpha \cdot e^{\beta/T}$$

Eine gleichzeitige Flußänderung durch die Temperaturabhängigkeit der Dichte wird vernachlässigt.

Es wurden insgesamt sieben Versuchsreihen dazu angefertigt. Der Überdruck betrug jeweils 0,80 bar.

Mit PC durchgeführte Messungen:

Firma	Porengröße in Å	Korngröße in $\mu\text{m}$	Silicagel-masse in g	Temperatur in $^{\circ}\text{C}$	Fluß in $\text{cm}^3/\text{min}$	Verhältnis zu $T=23^{\circ}\text{C}$
Merck	60	15-40	4,00	24	$0,535 \pm 0,013$	$\approx 1$
				45	$0,675 \pm 0,007$	1,262
				72	$0,784 \pm 0,011$	1,4654
Merck	60	63-200	4,00	23	$12,3 \pm 0,3$	1
				43	$14,34 \pm 0,11$	1,166
				72	$15,84 \pm 0,14$	1,288
Eka Nobel	60	16	4,00	23	$0,258 \pm 0,003$	1
				45	$0,305 \pm 0,002$	1,182
				72	$0,313 \pm 0,015$	1,213
Eka Nobel	100	16	2,00	23	$0,297 \pm 0,003$	1
				45	$0,335 \pm 0,003$	1,128
				72	$0,385 \pm 0,010$	1,296

Die bei verschiedenen Bedingungen (bzgl. Korngröße, Porengröße, Säulenhöhe) angefertigten Meßreihen von jeweils drei Temperaturstufen sollten sich um einen konstanten multiplikativen Faktor unterscheiden. In der letzten Spalte der obigen Tabelle wird dieser eliminiert, indem man jede Meßreihe auf ihre Flußrate bei Raumtemperatur ( $23^{\circ}\text{C}$ ) bezieht. Somit lassen sich die Änderungen des Flusses bei höherer Temperatur miteinander vergleichen. Es wird versucht, an die Ergebnisse die oben genannte Funktion  $\eta(T)$  anzufitten, als Fitparameter dienen  $\alpha$  und  $\beta$ .

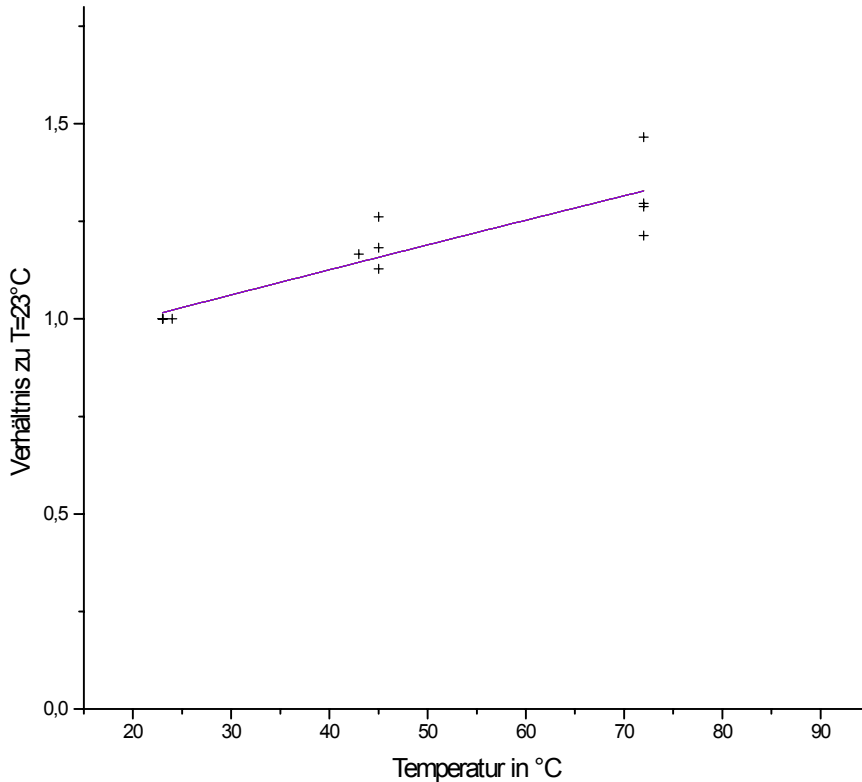


Abb. 4.15: Einfluß der Temperatur auf den Fluß beim Szintillator PC

Die blau skizzierte Kurve entsteht dabei aus den Werten  $\alpha = 6,687$  (Fehler  $\pm 1,9$ ) sowie  $\beta = -557,7$  (Fehler  $\pm 90$ ). Die vom Fitprogramm angegebenen Fehler sind aufgrund der wenigen Stützpunkte groß und lassen u.a. für  $T=72^\circ\text{C}$  den Wert 1 zu. Die Werte der vier Meßreihen sind miteinander konsistent, obwohl die Abweichungen der Einzelwerte von der Fitkurve viel größer sind als die Einzelfehler aus der Messung der Flußraten. Die Ursache könnte in der Ungenauigkeit der Temperaturmessung liegen sowie in dem Problem, im gesamten System dieselbe Temperatur herzustellen.

Die Kurve ist im dargestellten Bereich annähernd linear und läßt dort keine großen Veränderungen in der Viskosität durch Erhöhung der Temperatur erkennen.

Mit PXE durchgeführte Messungen:

Firma	Porengröße in Å	Korngröße in $\mu\text{m}$	Silicagel-masse in g	Temperatur in °C	Fluß in $\text{cm}^3/\text{min}$	Verhältnis zu $T=23^\circ\text{C}$
Merck	60	63-200	4,00	23	$7,4 \pm 0,5$	1
				55	$15,4 \pm 1,3$	2,081
				90	$28,2 \pm 1,0$	3,811
Eka Nobel	60	16	4,00	23	$(2,97 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$	1
				55	$(4,02 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$	1,354
				90	$(5,7 \pm 0,3) \cdot 10^{-2}$	1,919
Eka Nobel	100	16	2,00	23	$(3,26 \pm 0,21) \cdot 10^{-2}$	1
				55	$(5,43 \pm 0,06) \cdot 10^{-2}$	1,666
				90	$(6,54 \pm 0,09) \cdot 10^{-2}$	2,006

Die Messungen mit PXE werden in derselben Weise ausgewertet.

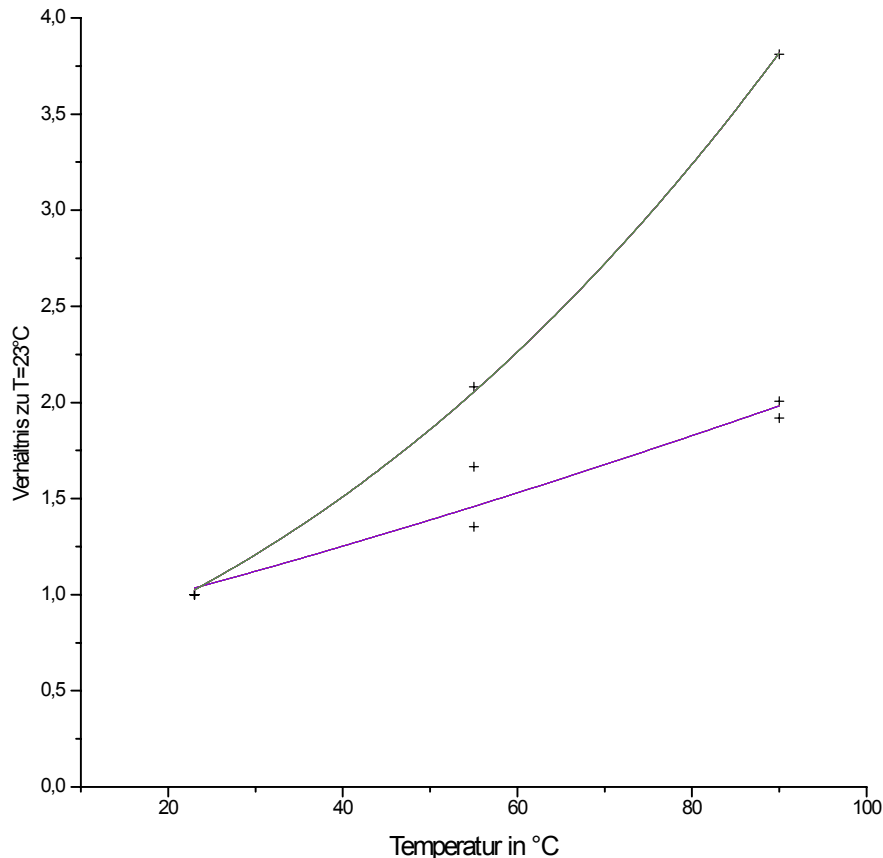


Abb. 4.16: Einfluß der Temperatur auf den Fluß beim Szintillator PXE

Leider zeigt die mit dem Silicagel von Merck (63-200 $\mu\text{m}$ ) angefertigte Versuchsreihe ein qualitativ anderes Verhalten als die beiden anderen (Silicagel von Eka Nobel, 16 $\mu\text{m}$ ). Die Steigerung des Flusses ist hier mit dem Anstieg der Temperatur überproportional groß. Deshalb wurden zwei verschiedene Kurven angefitet. Die Parameter betragen:  
 Merck (63-200 $\mu\text{m}$ ):  $\alpha = 1273$ ,  $\beta = -2109$  (Abb. 4.16; obere, grüne Kurve)  
 Eka Nobel (16 $\mu\text{m}$ ):  $\alpha = 35.14$ ,  $\beta = -1044$  (Abb. 4.16; untere, blaue Kurve)  
 Die vom Fitprogramm angegebenen Fehler sind hier aufgrund der extrem wenigen Punkte noch größer als bei PC.

Die beiden Meßreihen mit dem Silicagel von Eka Nobel (blaue Fitkurve) bestätigen sich gegenseitig. Sie stehen ebenfalls im Einklang mit den bereits bei PC beobachteten Tatsachen, daß die Fitkurve wenig von einer Geraden abweicht und die Erwärmung des Szintillators im dargestellten Bereich keine große Änderung der Viskosität mit sich bringt. Insbesondere reicht die temperaturbedingte Änderung der Flußrate nicht aus, um den Flußwiderstand, der durch die kleinere Korngröße des Silicagels von Eka Nobel verursacht wird (siehe e), auszugleichen.

Zusammen mit dem bereits in a) erwähnten Sachverhalt läßt sich ein systematischer Fehler in der Meßreihe mit dem Silicagel von Merck vermuten.

#### e) Einfluß der Korngröße

Mit PC wurden Messungen an drei verschiedenen Korngrößen durchgeführt. Die Porengröße beträgt im folgenden jeweils 60Å, der Überdruck 0,80 bar. Die letzte Spalte gibt das Verhältnis jeder Flußmessung zur jeweiligen Flußmessung des Silicagels von Eka Nobel mit

16µm Korngröße unter denselben Versuchsbedingungen an. Dabei werden geringe Temperaturunterschiede von 1-2 K vernachlässigt, da sie ohnehin im Rahmen der Meßgenauigkeit liegen.

Firma	Korngröße in µm	Silicagel-masse in g	Temperatur in °C	Fluß in cm³/min	Verhältnis zur Korngröße 16µm
Merck	15-40	2,00	24	0,572±0,010	2,10
		4,00	24	0,535±0,013	2,07
		4,00	45	0,675±0,007	2,21
		4,00	72	0,784±0,011	2,50
		8,00	24	0,566±0,005	2,01
Merck	63-200	4,00	23	12,3±0,3	47,7
		4,00	43	14,34±0,11	47,0
		4,00	72	15,84±0,14	50,6
Eka Nobel	16	2,00	23	0,272±0,009	1
		4,00	23	0,258±0,003	1
		4,00	45	0,305±0,002	1
		4,00	72	0,313±0,015	1
		8,00	23	0,282±0,002	1

Im Fall des Silicagels von Merck mit einer Korngröße von 15-40 µm liegt der Mittelwert des oben genannten Verhältnisses bei  $2,18 \pm 0,20$ . Aus der Proportionalität des Flusses zu  $R_{\text{Korn}}^2$  (Kap. 4.3.2) läßt sich die effektive Korngröße dieses Silicagels zu  $(23,6 \pm 1,1)$  µm berechnen. Im Fall des anderen Silicagels von Merck mit einer Korngröße von 63-200 µm ergibt sich aus dem Mittelwert des Verhältnisses  $48,4 \pm 1,9$  die effektive Korngröße  $(111 \pm 2)$  µm.

Die beiden berechneten Korngrößen liegen im jeweils für das Produkt angegebenen Bereich, so daß sich der Zusammenhang  $Q \sim R_{\text{Korn}}^2$  bestätigt. Ein eventueller Einfluß der Firma bzw. der Herstellungsart auf den Fluß ist nicht zu sehen.

Auf die Messungen mit PXE wird wegen der bereits in a) und d) erwähnten Unstimmigkeiten in den Flußraten hier nicht eingegangen.

#### f) Einfluß der Porengröße

Zur Untersuchung der Porengröße kann eine Messung mit PC und eine mit PXE herangezogen werden. Es wurde jeweils ein Silicagel von Eka Nobel der Korngröße 16µm verwendet. Die Masse betrug 2.00 g, die Temperatur 23°C und der Überdruck 0,80 bar.

Szintillator	Porengröße in Å	Fluß in cm³/min	Verhältnis zur Porengröße 60Å
PC	60	0,272±0,009	1
	100	0,297±0,003	1,09±0,05
PXE	60	$(3,13 \pm 0,11) \cdot 10^{-2}$	1
	100	$(3,26 \pm 0,21) \cdot 10^{-2}$	1,04±0,10

Der empirische Porositätsfaktor  $a$  aus Kap. 4.3.2 hätte mit den dort angegebenen Werten ein Flußverhältnis von 1,53 zur Folge. Experimentell deutet sich zwar ein erhöhter Fluß bei größeren Poren leicht an, der Theoriewert kann allerdings nicht bestätigt werden.

Es sei noch angemerkt, daß die Porengröße sowohl die spezifische Oberfläche pro Masseneinheit als auch die Schüttdichte beeinflusst [Lar00]:

Porengröße in Å	spezifische Oberfläche in m <sup>2</sup> /g	Schüttdichte in g/cm <sup>3</sup>	Konzentration der Haftzentren in cm <sup>-3</sup>
60	527	0,40	$9,7 \cdot 10^{20}$
100	305	0,50	$7,0 \cdot 10^{20}$

Tab. 4.9: Werte für Silicagel "Kromasil" von Eka Nobel für verschiedene Porengrößen

Dabei wurde als Dichte der Haftzentren auf der Oberfläche wie in Kapitel 4.1.3  $4,6 \text{ nm}^{-2}$  [Ung79] verwendet. Experimentell ergab sich für die Schüttdichte im Fall von 60Å der Wert  $(0,35 \pm 0,01) \text{ g/cm}^3$ . Die Diskrepanz ist vielleicht auf schlechte Verdichtung aus Mangel an Druck zurückzuführen.

Aufgrund der größeren spezifischen Oberfläche ist bei der Porengröße 60Å eine bessere Reinigungsfähigkeit zu erwarten.

#### 4.4. Fazit

Die Laborversuche in Kapitel 4.2 zeigen, daß das Silicagel "Kromasil" der schwedischen Firma Eka Nobel eine beachtenswerte Alternative zu dem bisher verwendeten (Firma Merck) darstellt. Vor allem Kapitel 5 wird die Vorteile von "Kromasil" aufzeigen.

Gleichzeitig aber stellt Kapitel 4.3 fest, daß sich aus der kleinen Korngröße dieses Silicagels Probleme mit der Flußrate ergeben. Eine Lösungsidee besteht in einer zylindrisch aufgebauten Silicagelsäule. Dabei wird die Adsorbenschicht zwischen zwei zylindrische Gefäße unterschiedlichen Durchmessers eingeschlossen, so daß dem Durchfluß eine wesentlich größere Fläche zur Verfügung steht. Die Mantelflächen der zylindrischen Gefäße werden mit einer Filtermembran ausgekleidet.

Der beschriebene Aufbau bringt eine vergleichsweise geringe Dicke der Adsorbenschicht mit sich, allerdings zeigte sich bei in [Gri00] durchgeführten Computersimulationen, daß bei gegebener absoluter Durchflußmenge des Szintillators ( $\approx$  Volumen der Inner Vessel  $300 \text{ m}^3$ ) der Reinigungsfaktor vom Volumen der Adsorberfüllung abhängt und nicht von der Schichtdicke. Dieses Volumen wiederum steht auch in der beschriebenen zylinderförmigen Anordnung ausreichend zur Verfügung.

Aus diesen Gründen ist die Idee vielversprechend und die Integration solch einer Säule in das "Modul zero" für die nächsten Monate geplant.

## 5. Radon als Verunreinigung bei Chromatographiesäulenverfahren

### 5.1. Einführung

#### 5.1.1. Problemstellung bezüglich BOREXINO

Das in Chromatographiesäulenverfahren eingesetzte Silicagel enthält radioaktive Verunreinigungen aus der  $^{238}\text{U}$ - und der  $^{232}\text{Th}$ -Kette. Darin sind die beiden Radon-Isotope  $^{220}\text{Rn}$  und  $^{222}\text{Rn}$  enthalten, die in ihrer Eigenschaft als Gase sehr beweglich sind und somit eine besondere Gefahr für BOREXINO darstellen. Sie werden beim  $\alpha$ -Zerfall von dem als Verunreinigung im Kristall eingelagerten Radium erzeugt und treten danach, falls langlebig genug, über die Kristalloberfläche aus (Vorgang der Emanation). Aus [Liu93] geht hervor, daß der überwiegende Anteil durch Diffusion austritt und nicht allein die Rückstoßenergie des Zerfalls ausreicht. Beim Reinigungsprozeß nimmt der Szintillator die emanierten Radonotope aus den Poren des Silicagels auf. Es ist noch unbekannt, inwieweit sie sich (mit ihrer unpolaren Eigenschaft als Edelgasatome) an den Haftzentren des Silicagels anlagern. Die Zerfallsprodukte des Radons werden dagegen aufgrund ihrer asymmetrischen Elektronenkonfiguration als polare Atome an den Haftzentren gebunden und nicht freigesetzt (s. Kap. 4.1.3).

Das Isotop  $^{220}\text{Rn}$  hat eine Halbwertszeit von nur 56 s und zerfällt mit hoher Wahrscheinlichkeit vor dem Emanationsvorgang oder zumindest innerhalb der Säule, so daß dessen Zerfallstochter (u.a. Po, Pb) vom Silicagel zurückgehalten werden. Allerdings kann das mit einer Halbwertszeit von 3,8 d langlebigere Isotop  $^{222}\text{Rn}$  aus der Silicagelsäule austreten. Durch den entstehenden Kern  $^{210}\text{Pb}$  mit  $t_{1/2}=22,3$  a wird die eingebrachte Aktivität aufrecht erhalten und trägt dann zum Untergrund in BOREXINO bei. Dabei sind vor allem dessen Tochterkerne  $^{210}\text{Bi}$  und  $^{210}\text{Po}$  gefährlich, da ihre Signale ins Neutrinofenster fallen und von der Elektronik nicht eindeutig genug als Untergründereignisse identifiziert werden können, wie bereits in Kapitel 4.1.1 ausführlicher beschrieben wurde.

#### 5.1.2. Aktivitätsentwicklung durch Emanation

Emanation ist die Freisetzung von gasförmigen Verunreinigungen (hier: Radon) aus einem Feststoff (hier: Silicagel). Es wird eine zeitlich konstante Emanationsrate  $R$  (Einheit  $1/\text{s}$ ) pro Masseinheit des emanierenden Feststoffs angenommen. Diese Annahme stützt sich in unserem Fall auf eine konstante Entstehungsrate von  $^{222}\text{Rn}$  durch die auf kleiner Zeitskala konstante Aktivität von  $^{226}\text{Ra}$  (Halbwertszeit 1600 a). Dieses  $^{226}\text{Ra}$  ist als Verunreinigung im Silicagel mit einer bestimmten Konzentration eingelagert. Dabei vernachlässigt man eine Erhöhung dieser Ra-Konzentration während des Szintillator-Reinigungsprozesses, denn die Stoffmenge des sich aus dem Szintillator anlagernden Radiums liegt um einige Größenordnungen unter der Stoffmenge der Verunreinigungen im Silicagel selbst (s. Kap. 4.1.1).

Die zeitliche Änderung der Anzahl an  $^{222}\text{Rn}$ -Atomen im Szintillator setzt sich dann aus der Emanationsrate und der Zerfallsrate (Aktivität  $A = \lambda N$ ) zusammen:

$$\frac{dN}{dt} = R - \lambda N$$

Dabei ist  $N$  die Anzahl der emanierten  $^{222}\text{Rn}$ -Atome im Szintillator, immer noch bezogen auf eine Masseinheit des emanierenden Materials. Die allgemeine Lösung dieser Differentialgleichung sieht folgendermaßen aus:

$$N(t) = C \cdot e^{-\lambda t} + \frac{R}{\lambda}$$

Aus der Anfangsbedingung  $N(0) = 0$  folgt die Konstante  $C = -R/\lambda$  und somit gilt:

$$N(t) = \frac{R}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

$$A(t) = R \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

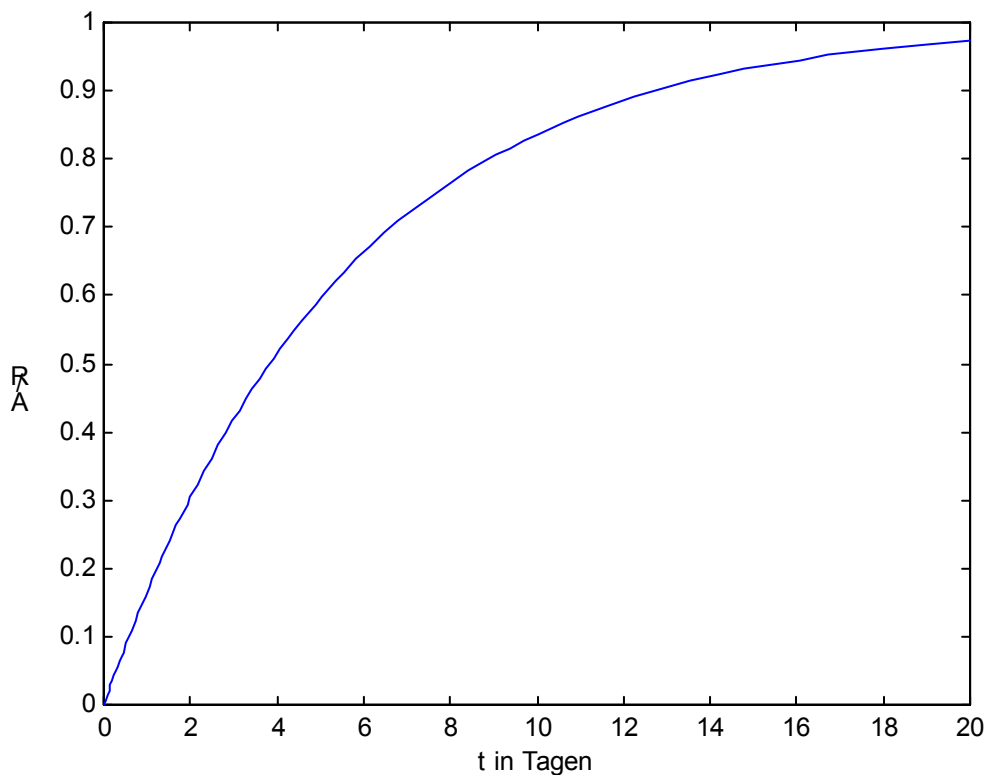


Abb. 5.1: Graphische Darstellung der Aktivitätsentwicklung  $A(t)$  durch Emanation von  $^{222}\text{Rn}$

Bemerkungen:

- Die Steigung von  $N(t)$  zu Beginn ist gleich der Emanationsrate:  $\dot{N}(0) = R$
- Die Steigung von  $A(t)$  zu Beginn ist  $\dot{A}(0) = R \cdot \lambda$
- Für  $t \rightarrow \infty$  stellt sich die Gleichgewichtsaktivität  $A_{GG} = R$  ein. Man beachte, daß die Halbwertszeit nicht  $A_{GG}$  beeinflusst, sondern lediglich die Zeit, in der sich  $A_{GG}$  einstellt.
- $A(t_{1/2}) = R/2$  nach Ablauf einer Halbwertszeit von 3,8 d.
- Emanationsrate  $R$ : experimentell zu bestimmende Materialkonstante (Kap. 5.4.)



## 5.2. Verringerung des radoninduzierten Untergrunds in "Modul zero"

### 5.2.1. Lösungsmöglichkeiten

Das Radon-Problem im Rahmen von "Modul zero" entsteht durch die Kontamination während der Säulenchromatographie. Es kommen zwei verschiedene Lösungsmöglichkeiten in Betracht:

Zum einen kann der Szintillator bzgl. Radon gereinigt werden, indem er mit Stickstoff gespült wird ("Blubbern"). Bei dieser Verringerung der Radon-Konzentration im Szintillator nutzt man die gasförmige Eigenschaft von Radon aus. Man bringt den Szintillator über eine möglichst große Oberfläche mit Stickstoff in Kontakt, so daß die Radonatome in dieses gasförmige Medium übertreten können. Im Prinzip ist diese Methode auf alle Verunreinigungen anwendbar, deren Dampfdruck im entsprechenden Temperaturbereich (10 – 15°C) größer ist als der Dampfdruck des Szintillators; andernfalls würden hauptsächlich Szintillatormoleküle verdampfen und sich die Schmutzkonzentration erhöhen. Deshalb ist die Methode wirkungslos im Kampf gegen Feststoff-Verunreinigungen wie U, Th, Po, Bi, Pb und andere.

In den Buffer-Tanks ist dieser Lösungsansatz auf zwei verschiedene Arten, die Blubbervorrichtung ("sparger") und den Zerstäuber ("nozzle"), verwirklicht worden. Insbesondere ist im Rahmen des PXE-Tests der CTF2 der Sparger verwendet worden, um das durch die Chromatographiesäule gepumpte PXE wieder von Radon zu befreien. Damit läßt sich sowohl die Gesamteffizienz dieser Reinigungsmethode bestimmen (Kap. 5.2.2.) als auch deren zeitliches Verhalten rekonstruieren (Kap. 5.2.3.). Ein gewisses Problem dieser nachträglichen Reinigungsweise stellt allerdings der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfall in der Zeitperiode zwischen Rn-Emanation und Rn-Reinigung dar. Jeder dort erfolgte Zerfall führt über Po-, Pb- und Bi-Isotope zu einem  $^{210}\text{Pb}$ -Kern ( $t_{1/2}=22,3$  a) und kann deshalb nicht mehr mittels  $\text{N}_2$ -Blubbern ausgelöst werden. Er trägt dann vollständig zum Untergrund in BOREXINO bei. Eine quantitative Abschätzung darüber findet man in Kap. 5.2.4.

Zum anderen könnte die Kontamination des Szintillators während der Säulenchromatographie verringert werden durch die Benutzung eines Silicagels mit höherem Reinheitsgrad. Eine geringere Konzentration an U, Th und letztendlich auch Ra bringt eine geringere Emanationsrate mit sich. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Produkt eines schwedischen Herstellers daraufhin untersucht. Kapitel 5.4 faßt die Untersuchungsmethode sowie das Ergebnis der Emanationsmessung zusammen und vergleicht es mit bereits bekannten Werten.

### 5.2.2. Effizienz des $\text{N}_2$ -Blubberns

Im Rahmen der ersten Füllaktion des PXE-Tests, CTF2 ("1m<sup>3</sup>-run") betrug die Kontaktzeit des Szintillators mit der Silicagelsäule etwa 15 h. In diesem Bereich ( $t < t_{1/2}$ ) kann der unter 5.1.2. bestimmte Verlauf der freigesetzten Aktivität  $A(t)$  linear approximiert werden. Dann ist

$$A(t) \approx \dot{A}(0) \cdot t = R \lambda t \quad (t < t_{1/2})$$

Die Radon-Emanationsrate  $R$  des Silicagels wurde im Rahmen der CTF1 zu  $R_{\text{CTF1}} / \text{m} = 0,17$  Bq/kg bestimmt. Allerdings unterscheidet sich das in CTF2 verwendete Silicagel bzgl. des  $^{226}\text{Ra}$ -Gehaltes ( $A_{\text{Ra}} = 3,8 \pm 0,2$  Bq/kg im Verhältnis zu  $2,28 \pm 0,11$  Bq/kg bei CTF1, [Sch00]). Da bisherige Messungen auf ein konstantes Verhältnis  $A_{\text{Ra}} / R$  hinweisen (Kap. 5.4.4.), wird die Emanationsrate des in CTF2 verwendeten Silicagels mithilfe des Verhältnisses der beiden  $^{226}\text{Ra}$ -Gehalte aus der Emanationsrate von CTF1 abgeschätzt:

$$\frac{R}{m} = \frac{3,8}{2,28} \cdot 0,17 \frac{Bq}{kg} = 0,29 \frac{Bq}{kg}$$

Mit der Kontaktzeit  $t=15$  h sowie der Masse der verwendeten Silicagelsäule  $m=21,5$  kg ergibt sich eine Aktivität der gesamten Menge gereinigten Szintillators PXE von:

$$A = 0,70 \text{ Bq} \quad (\text{Vor } N_2\text{-Blubbern})$$

Nach Durchlaufen der Säule wurde der Szintillator im Buffer-Tank East mit Stickstoff geblubbert. Anschließend wurde diese Menge PXE (ca. 1000 kg) in die Inner Vessel der CTF gefüllt. Dort konnte die Aktivität über die Signatur der  $^{214}\text{Bi}$ - $^{214}\text{Po}$ -Koinzidenz bestimmt werden zu  $A = 0,12 - 1,2$  mBq [Res00]<sup>1</sup>. Da bis zur Datennahme etwa ein Tag vergangen war, läßt sich die Aktivität bei Ende des Blubbers grob abschätzen zu:

$$A = 0,14 - 1,4 \text{ mBq} \quad (\text{Nach } N_2\text{-Blubbern})$$

Daraus ergibt sich die Reinigungseffizienz des  $N_2$ -Blubbers im "Modul zero" bzgl. der Radonaktivität zu einem Faktor  $\varepsilon$  im Bereich von:

$$\varepsilon = \frac{A_{\text{vor}}}{A_{\text{nach}}} = 500 - 5000$$

Es sei darauf hingewiesen, daß dieser Wert eine Abschätzung darstellt. Deshalb wurde auf eine Bestimmung der Meßgenauigkeit verzichtet.

### 5.2.3. Zeitlicher Verlauf des Reinigungsvorgangs

Mithilfe der Anzahl  $N$  an Radon-Atomen vor und nach dem  $N_2$ -Spülen (errechnet sich aus den Aktivitäten im letzten Abschnitt) sollte es möglich sein, über ein theoretisches Modell den Verlauf  $N(t)$  zu rekonstruieren.

Dazu wird angenommen, daß die Zahl der durch den Blubbervorgang aus dem Szintillator ausgelösten Radonatome  $dN_B$  zu jeder Zeit direkt proportional zur Anzahl  $N$  aller Radon-Atome ist (Proportionalitätsfaktor  $B$ ). Diese Annahme sei im Folgenden begründet. An der Grenzfläche einer Stickstoffblase setzt sich mit Blick auf Abb. 5.2 der Gesamtstrom  $j$  an Radonatomen in die erwünschte Richtung (Sz.  $\rightarrow N_2$ ) zusammen aus:

---

<sup>1</sup> Die ungewöhnlich große Unsicherheit ist auf Ausfälle der Elektronik in den ersten Tagen der Meßzeit zurückzuführen.

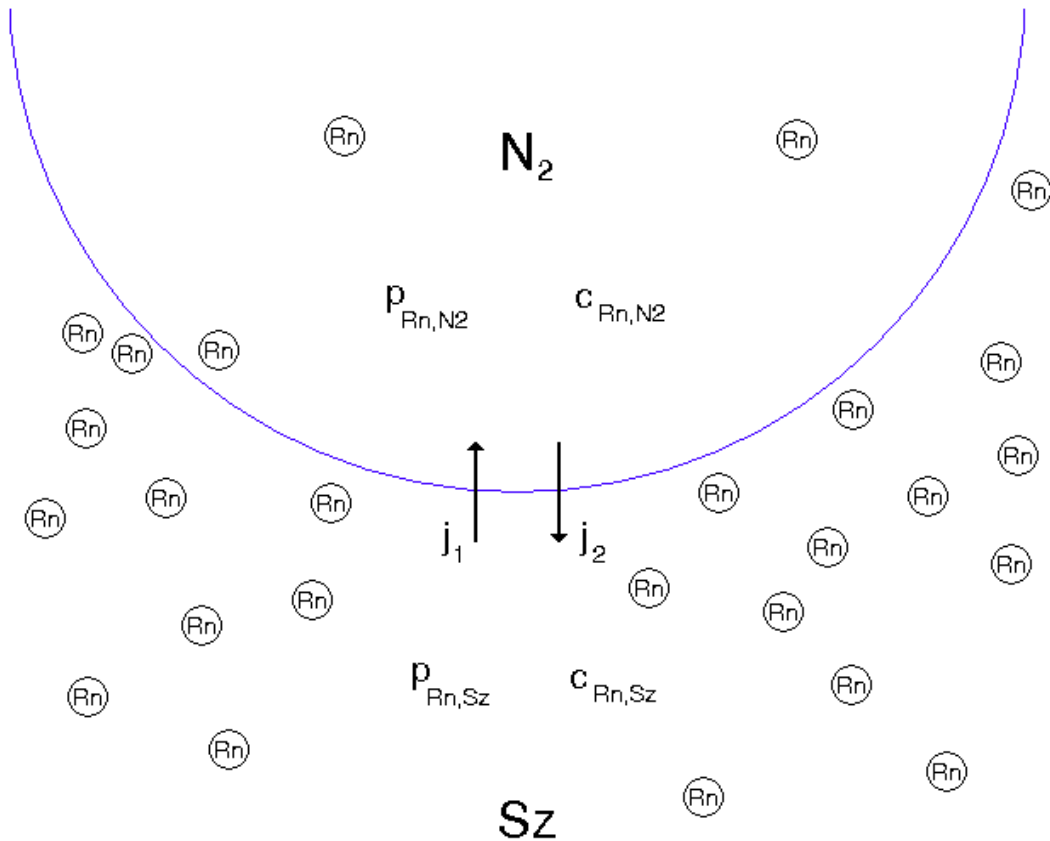


Abb. 5.2: Schematische Darstellung der Vorgänge an einer  $N_2$ -Blase im Szintillator

$$j = j_1 - j_2, \quad \text{wobei } j_1 \sim p_{Rn,Sz} \sim c_{Rn,Sz}, \quad \text{sowie } j_2 \sim p_{Rn,N_2} \sim c_{Rn,N_2}$$

$p$  steht dabei für die Partialdrücke und  $c$  für die entsprechenden Konzentrationen. Solange man noch weit genug vom Gleichgewichtszustand ( $c_{Rn,Sz} = S \cdot c_{Rn,N_2}$ ) entfernt ist, darf  $j_2$  vernachlässigt werden, d.h.

$$j \sim c_{Rn,Sz} \quad \text{für } c_{Rn,Sz} \gg S \cdot c_{Rn,N_2}$$

Dabei ist  $S$  die Löslichkeit von Radon in Szintillator im Verhältnis zu Radon in Stickstoff. Für Pseudocumol ist  $S_{PC} = 11,5 \pm 1,8$  [Zuz00]. Man vergleiche dazu den Wert  $S_{H_2O} = 0,29$  für Radon in Wasser [Rau99].

Berücksichtigt man nun zusätzlich, daß für eine kurze Verweildauer  $\Delta t$  einer  $N_2$ -Blase im Szintillator die Anzahl der in sie übertretenden Radonatome  $dN_B$  in etwa proportional zu  $\Delta t$  ist, so erhält man mit der Tatsache, daß sich die Blase mit konstanter Geschwindigkeit  $v$  nach oben bewegt:

$$dN_B \sim c_{Rn,Sz} \cdot \Delta t = \frac{c_{Rn,Sz} \cdot h}{v} = \frac{N_{Rn,Sz}}{A \cdot v} \sim N$$

wobei  $A$  die konstante Querschnittsfläche des Buffer-Tanks ist und  $h$  die Füllhöhe des Szintillators.

Zusammenfassend läßt sich also die durch den Blubbervorgang verursachte Änderung der Anzahl an Radonatomen mit  $dN_B = -B \cdot N$  quantifizieren unter der Voraussetzung, daß die Radonkonzentration im verwendeten Stickstoff weit genug unter der des Szintillators liegt. Der Radonzerfall weist mit  $dN_A = -\lambda \cdot N$  genau dieselbe Systematik auf.

Verkompliziert wird der Sachverhalt noch durch die Tatsache, daß sich der zu untersuchende Blubbervorgang (1m<sup>3</sup>-run PXE in CTF2) in zwei Teile gliedert: Zum einen wurde der Stickstofffluß unter Verwendung von lp-N<sub>2</sub> bereits in Betrieb gesetzt, sobald sich der Buffer-Tank begann zu füllen. Dabei ist zu berücksichtigen, daß der "sparger" erst ab einer gewissen Füllhöhe wirksam wird, die ca. 100 – 150 Liter entspricht. Zum anderen wurde der volle Tank gegen Ende nochmals rund 3-4 Stunden lang mit dem saubereren hp-N<sub>2</sub> geblubbert.

Es muß also der Füllvorgang in die Untersuchung des Blubbervorgangs einbezogen werden. Die Anzahl der durch den Füllvorgang eingebrachten Radonatome pro Zeiteinheit entspricht genau der Emanationsrate R der verwendeten Silicagelsäule. Die zeitliche Änderung der Anzahl an Radonatomen im Buffer-Tank setzt sich somit folgendermaßen zusammen:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N - BN + R \approx -BN + R$$

Dabei kann die Abnahme durch den radioaktiven Zerfall ( $t_{1/2}=3,8$  d) gegenüber dem Blubbervorgang vernachlässigt werden, denn letzterer reduziert die Radon-Aktivität im Zeitraum von etwa 10 h um rund 3 Größenordnungen (Kap. 5.2.2.).

Die allgemeine Lösung der DGL lautet:  $N(t) = \text{const} \cdot e^{-Bt} + \frac{R}{B}$  für  $B \neq 0$   
sowie:  $N(t) = R \cdot t + \text{const}$  für  $B=0$

In [Gia99] wird ebenfalls von einer exponentiellen Abnahme der Rn-Konzentration während der Reinigung ausgegangen, solange man die Rn-Konzentration im Stickstoff vernachlässigt und der Stickstofffluß konstant ist.

In den verschiedenen Bereichen

- (1)  $t < t_1$ : Füllen des Tanks mit Rn-haltigem Szintillator bei unwirksamem Sparger ( $B=0, R>0$ )
- (2)  $t_1 < t < t_2$ : Füllen bei wirksamem Sparger ( $B>0, R>0$ )
- (3)  $t_2 < t < t_3$ : Blubbern des vollen Tanks ( $B>0, R=0$ )
- (4)  $t > t_3$ : Nur radioaktiver Zerfall ( $B=0, R=0$ )

ergeben sich unter Anpassung der Parameter B,R und der Randbedingung  $N(0)=0$ :

$$N(t) = \begin{cases} R \cdot t & \text{für } t < t_1 \\ N(t_1) \cdot e^{-B(t-t_1)} + \frac{R}{B} (1 - e^{-B(t-t_1)}) & \text{für } t_1 < t < t_2 \\ N(t_2) \cdot e^{-B(t-t_2)} & \text{für } t_2 < t < t_3 \\ N(t_3) \cdot e^{-\lambda_{Rn}(t-t_3)} & \text{für } t > t_3 \end{cases}$$

Im Spezialfall des 1m<sup>3</sup>-run des PXE-Tests im Rahmen der CTF2 sind:

$t_1 = 1$  h , d.h. der Sparger wird ab einer Füllmenge von ca. 120 Litern wirksam

$t_2 = 5^{50} \text{ h}$  bei Beendigung des Füllvorgangs  
 $t_3 = 9^{30} \text{ h}$  bei Beendigung des  $\text{N}_2$ -Blubbers  
 $R = 0,29 \text{ s}^{-1} \text{ kg}^{-1} \cdot 21,5 \text{ kg} = 22400 \text{ h}^{-1}$  wie in Kap. 5.3.1.

Mit der zusätzlichen Forderung, daß die Aktivität bei Beendigung des Blubbers im Rahmen von  $0,14 - 1,4 \text{ mBq}$  ist, läßt sich die Blubberkonstante  $B$  bestimmen zu:

$$B = 0,96 - 1,47 \text{ h}^{-1}$$

Dies bedeutet, daß sich die Radonmenge im Buffer-Tank mittels des "spargers" in einem Zeitrahmen von 41 bis 62 Minuten um den Faktor  $1/e$  reduzieren läßt. Diese quantitative Abschätzung bezieht sich auf einen am Sparger angelegten statischen  $\text{N}_2$ -Druck von etwa  $1,5 \text{ bar}$ . Für den Fall  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$  ist der zeitliche Verlauf der Anzahl  $N(t)$  an Radonatomen im Tank graphisch dargestellt:

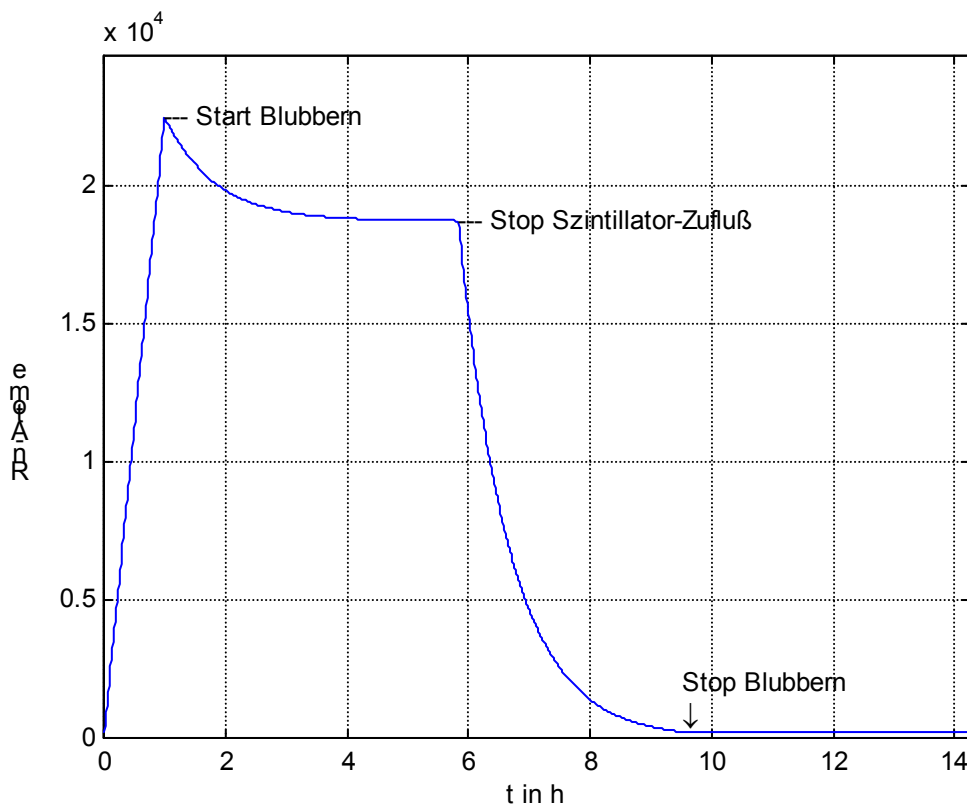


Abb. 5.3: Zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Anzahl für die Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=1\text{h}$ ,  $t_2=5^{50}\text{h}$ ,  $t_3=9^{30}\text{h}$ , entsprechend der Situation beim  $1\text{m}^3$ -Füllen des PXE-Tests, CTF2

Es muß allerdings noch überprüft werden, ob zu jeder Zeit  $t$  die oben genannte Bedingung  $c_{\text{Rn,Sz}} \gg S \cdot c_{\text{Rn,N}_2}$  eingehalten wird:

Die Reinheit des während  $t_1 < t < t_2$  verwendeten lp- $\text{N}_2$  beträgt  $50 - 500 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , entsprechend einer Rn-Konzentration von  $24 - 240 \text{ m}^{-3}$ . Die Anzahl an Radonatomen in  $1\text{m}^3$  PXE zum Zeitpunkt  $t_2$  bleibt mit  $N(t_2) = 15000 - 23000$  um 2 Größenordnungen darüber.

Die Reinheit des während  $t_2 < t < t_3$  verwendeten hp- $\text{N}_2$  beträgt  $0,5 - 1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ , entsprechend einer Rn-Konzentration von  $0,24 - 0,48 \text{ m}^{-3}$ . Hier bleibt der Wert  $N(t_3) = 69 - 690$  ebenfalls um mehr als 2 Größenordnungen darüber.

Somit ist die durchgeführte Näherung gerechtfertigt, falls die Löslichkeit von Radon in PXE  $S_{\text{PXE}} < 100$  ist. Es liegt leider kein Meßwert vor, allerdings dürfte  $S_{\text{PXE}}$  etwa in der Größenordnung von  $S_{\text{PC}}=11,5$  liegen, mit genügend Abstand zur genannten Obergrenze.

### 5.2.4. Radoninduzierter $^{210}\text{Pb}$ -Untergrund

Das Isotop  $^{222}\text{Rn}$  hat eine Halbwertszeit von 3,8 Tagen, so daß seine Aktivität in einem noch akzeptablen Zeitrahmen weit genug abklingt. Die zunächst entstehenden Radontöchter  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$  sind kurzlebiger (längste Halbwertszeit 26,8 min), das eigentliche Problem entsteht erst durch das nachfolgende langlebige Isotop  $^{210}\text{Pb}$  ( $t_{1/2}=22,3$  a). Dabei hat jeder  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfall genau einen solchen  $^{210}\text{Pb}$ -Kern zur Folge und verursacht somit einen dauerhaften Untergrund in BOREXINO. Zwar kann Pb durch die Silicagelsäule zurückgehalten werden, nicht allerdings durch den "sparger" oder die "nozzle" im Buffer-Tank. Im folgenden soll die Menge an  $^{210}\text{Pb}$  quantifiziert werden, die aufgrund von Radonemanation in der Chromatographiesäule mit nachfolgendem  $\text{N}_2$ -Blubbern vom Szintillator in BOREXINO eingetragen wird.

Es tragen drei auf unterschiedliche Weise berechenbare Anteile bei, abhängig vom Ort des Radonzerfalls:

- (1)  $^{222}\text{Rn}$ , das im Rohr zwischen der Säule und dem Buffer-Tank zerfällt. Dort ist die Rn-Konzentration am höchsten, die Verweildauer allerdings relativ kurz.
- (2)  $^{222}\text{Rn}$ , das im Buffer-Tank zerfällt. Es dauert einige Zeit bis der Sparger die Radon-Konzentration des einströmenden Szintillators weit genug gedrosselt hat.
- (3) Der Rest an  $^{222}\text{Rn}$ , der nicht durch den Sparger ausgelöst werden konnte. Er entspricht der Radon-Aktivität nach dem Blubbern.

Dabei wurde angenommen:

- $^{210}\text{Pb}$ , das in der Silicagelsäule entsteht, wird vollständig zurückgehalten.
- Die Silicagelsäule hält kein Radon zurück (konservativer Ansatz).

Berechnung:

- (1) Das Rohrvolumen zwischen dem unteren Ausgang der Säule und dem oberen Anschluß des Buffer-Tanks beläuft sich etwa auf  $V=3$  l. Ansonsten besteht hauptsächlich die Abhängigkeit vom Fluß (Beispiel PXE-Test, CTF2:  $\Phi=150$  l/h) sowie der emanierten Gesamtaktivität ( $A=0,70$  Bq):

$$N_{^{210}\text{Pb}} = A \cdot \frac{V}{\Phi} = 52$$

Die Verweildauer  $t = V/\Phi$  beträgt dabei 74 s.

- (2) Dieser Beitrag berechnet sich aus dem unter 5.2.3. rekonstruierten Verlauf  $N_{\text{Rn}}(t)$ :

$$N_{^{210}\text{Pb}} = \lambda_{\text{Rn}} \int_{t=0}^{t=t_3} N_{\text{Rn}}(t) dt =$$

$$= \lambda_{\text{Rn}} \left( \frac{R}{2} t_1^2 + \left( \frac{R t_1}{B} - \frac{R}{B^2} \right) (1 - e^{-B(t_2-t_1)}) + \frac{R}{B} (t_2 - t_1) + \frac{N_{\text{Rn}}(t_2)}{B} (1 - e^{-B(t_3-t_2)}) \right)$$

wobei  $N_{\text{Rn}}(t_2) = R t_1 \cdot e^{-B(t_2-t_1)} + \frac{R}{B} (1 - e^{-B(t_2-t_1)})$

Dabei bedeuten wie unter 5.2.3.:

- R Emanationsrate des Silicagels
- B Blubberkonstante im Buffer-Tank
- $t_1$  Zeit beim Einsetzen des Spargers
- $t_2$  Zeit bei Beendigung des Füllens über die Säule
- $t_3$  Zeit bei Ende des Blubbers

Für den PXE-Test, CTF2 erhält man eine Anzahl im Bereich von  $N_{210\text{Pb}} = 760 - 1100$ .

Mit dem Wert  $B=1,2\text{ h}^{-1}$  aus Abb. 5.3 ergibt sich folgender Verlauf der Anzahl erfolgter Radon-Zerfälle. Der Wert zur Zeit  $t_3$  entspricht obiger Bedeutung von  $N_{210\text{Pb}}$ .

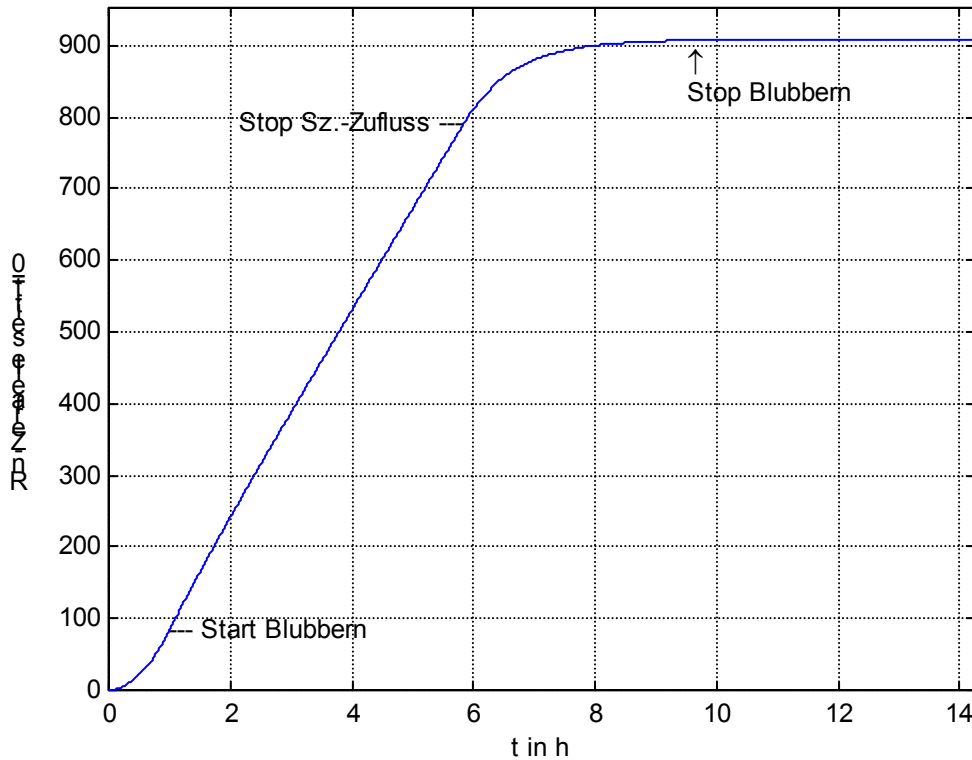


Abb. 5.4: Zeitlich integrierter Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle für die Parameter  $B=1,2\text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400\text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=1\text{ h}$ ,  $t_2=5^{50}\text{ h}$ ,  $t_3=9^{30}\text{ h}$ , entsprechend der Situation beim  $1\text{ m}^3$ -Füllen des PXE-Tests, CTF2

- (3) In Kap. 5.2.2. wurde eine Aktivität von  $0,14 - 1,4\text{ mBq}$  nach dem Blubbern angegeben. Dies ergibt eine Anzahl von  $N_{210\text{Pb}} = 69 - 690$ .

Als Summe aller dreier Beiträge erhält man  $N_{210\text{Pb}} = 880 - 1850$ .

Dabei ist Beitrag (1) vernachlässigbar, evtl. sogar Beitrag (3). Das Hauptproblem besteht in Beitrag (2).

Die für BOREXINO zu erwartende Untergrundaktivität setzt sich aus der Aktivität von  $^{210}\text{Pb}$  und seiner Zerfallstöchter  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$  zusammen. Während die Energie des  $^{210}\text{Pb}$ -Zerfalls außerhalb des  $^7\text{Be}$ -v-Fensters ( $250 - 800\text{ keV}$ ) liegt, tragen  $^{210}\text{Bi}$  mit 59,0% und  $^{210}\text{Po}$  mit 100% ihrer Zerfälle [Nef96] folgende Untergrundaktivität innerhalb dieses Fensters bei:

	250 keV < E < 800 keV	800 keV < E < 1500 keV
Anteil der $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität	<0,01%	<0,01%
Anteil der $^{210}\text{Bi}$ -Aktivität	59,0%	6,0%
Anteil der $^{210}\text{Po}$ -Aktivität	100%	<0,01%
Aktivität pro $^{210}\text{Pb}$ -Kern (einschl. Tochterkerne)	$1,35 \cdot 10^{-4} \text{ d}^{-1}$	$5,11 \cdot 10^{-6} \text{ d}^{-1}$
Aktivität in $1\text{m}^3$ PXE/CTF2	$(0,12 - 0,25) \text{ d}^{-1}$	$(4,5 - 9,4) \cdot 10^{-3} \text{ d}^{-1}$

Tab. 5.1: Aktivität beim  $1\text{m}^3$ -run, PXE/CTF2 durch eingebrachtes  $^{210}\text{Pb}$ , das von Radon aus der Chromatographiesäule stammt.

### 5.2.5. Schlußfolgerungen

An einem weiteren Beispiel seien einige Besonderheiten im Verhalten der Funktionen  $N_{\text{Rn}}(t)$  und  $N_{\text{Pb}}(t)$  veranschaulicht. Dazu wurden die drei Zeitparameter auf  $t_1=3\text{h}$ ,  $t_2=12\text{h}$ ,  $t_3=19\text{h}$  abgeändert.

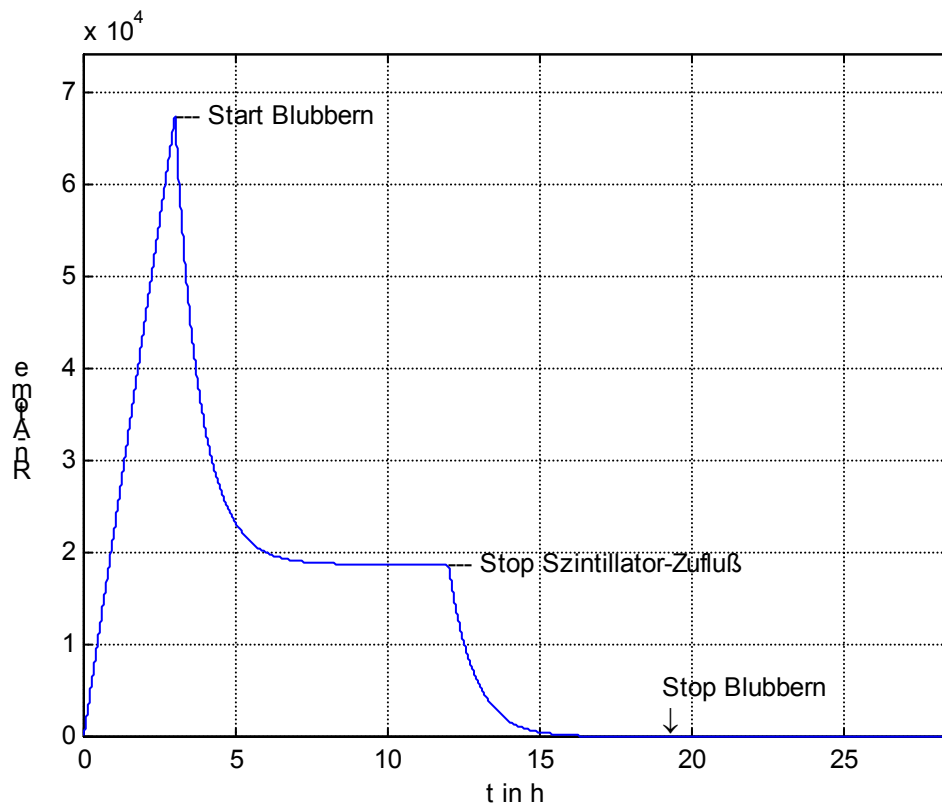


Abb. 5.5: Zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Anzahl für die fiktiven Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=3\text{h}$ ,  $t_2=12\text{h}$ ,  $t_3=19\text{h}$



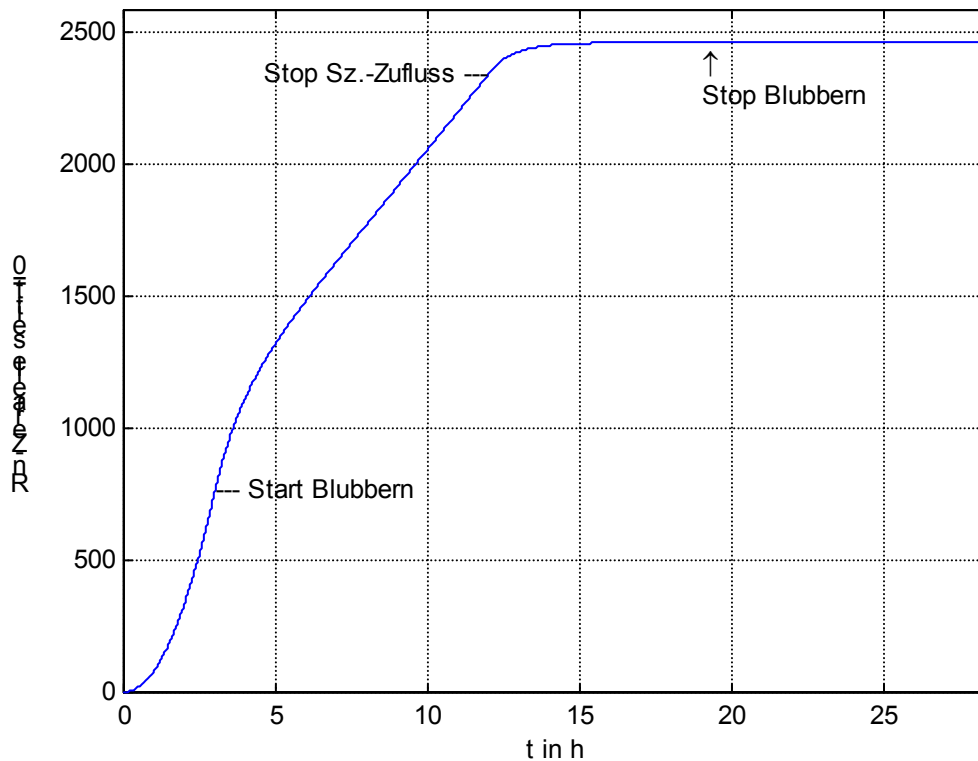


Abb. 5.6: Zeitlich integrierter Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle für die fiktiven Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=3\text{h}$ ,  $t_2=12\text{h}$ ,  $t_3=19\text{h}$

Man sieht folgendes:

- Ein späterer Beginn des  $\text{N}_2$ -Blubbern ist zu vermeiden, da die Radonaktivität bis zu diesem Zeitpunkt quadratisch ansteigt. Dies wirkt sich auf die Anzahl der  $^{210}\text{Pb}$  aus.
- Die Anzahl der  $^{222}\text{Rn}$ -Atome strebt während des gleichzeitigen Blubbern und Füllens mit der Zeitkonstante  $1/B$  den Gleichgewichtswert  $R/B$  an. Ein Ingangsetzen des Spargers für  $t < 1/B \approx 1\text{h}$  würde deshalb keinen großen Vorteil bringen.
- Während der Buffer-Tank gefüllt wird (Gleichgewicht  $R/B$ ), steigt  $N_{\text{Pb}}$  linear mit der Zeit. Deshalb ist ein schnelleres Füllen, d.h. eine **höhere Flußrate** durch die Säule, von Vorteil. Man beachte, daß der Zufluß an emanierten Radonatomen gleichbleibt, auch wenn sich der Szintillatorfluß verringert.
- Eine hohe Flußrate ist ebenfalls vorteilhaft, um während der Zeit  $1/B$  den Betrieb des Spargers zu garantieren, der einen Mindestfüllstand im Bereich von 100 – 150 l voraussetzt.
- Der Beitrag aus (1), der Rn-Zerfall im Rohr, ist nur vernachlässigbar, wenn die Verweildauer dort klein genug ist. Auch dafür ist genügender Durchfluß nötig.
- Längeres Blubbern nach Ende des Füllens sollte für Beitrag (3) Vorteil bringen, solange der Szintillator noch nicht die 11.5-fache Reinheit (Löslichkeit  $S=11.5$  für Pseudocumol) des  $\text{hp-N}_2$  ( $0.5\text{-}1 \mu\text{Bq/m}^3$ ) erreicht hat. Dies war beim PXE-Test der CTF2 ( $t_3-t_2=3^{40}\text{h}$ ,  $N_{\text{Rn}}(t_3)=69\text{-}690$ ) noch lange nicht der Fall. Im obigen Beispiel ( $t_3-t_2=7\text{h}$ ,  $N_{\text{Rn}}(t_3)=4.2$ , entsprechend  $c_{\text{Rn,Sz}}=8.8 \mu\text{Bq/m}^3$ ) dürfte man etwa in der Gegend der maximal erreichbaren Reinheit liegen. Dann ist allerdings die Bedingung  $c_{\text{Rn,Sz}} \gg S \cdot c_{\text{Rn,N}_2}$  nicht mehr erfüllt, so daß man gegen Ende mit einer Verschlechterung der Blubberkonstante rechnen muß.

- Der dominante Beitrag (2) des Rn-Zerfalls im Buffer-Tank während der Füllens könnte durch eine **geringere Emanationsrate** R entscheidend verringert werden. Dazu wäre ein Silicagel mit höherem Reinheitsgrad bzgl. U, Th und somit auch Ra nötig. In Kap. 5.4. wird eine Methode zur Bestimmung der Emanationsrate beschrieben sowie das Produkt eines schwedischen Herstellers daraufhin untersucht.

### 5.2.6. Betrachtung im Hinblick auf die Untergrundgrenze von BOREXINO

Im Rahmen von BOREXINO sollte die Untergrundgrenze von 1 Ereignis pro Tag zwischen 250 und 800 keV in 100 m<sup>3</sup> Szintillator durch die Radonkontamination während der Säulenchromatographie nicht überschritten werden. Die folgende Betrachtung quantifiziert die eingebrachte <sup>210</sup>Pb-Menge im Rahmen des bereits betrachteten Szenarios (Säulenchromatographie + N<sub>2</sub>-Blubbern) unter Verwendung von für BOREXINO realistischen Parameterwerten.

Wenn möglich sollte ein radiumarmes Silicagel eingesetzt werden wie das der schwedischen Firma Eka Nobel. Dessen Obergrenze für Radonemanation  $R < 1,11$  mBq/kg wird hier verwendet. Als Masse der Silicagelsäule wird 20 kg angenommen.

Da das feinkörnige Silicagel von Eka Nobel einen großen Widerstand bietet, wird ein erniedrigter Fluß durch die Säule von 100 l/h angenommen (d.h. 100 m<sup>3</sup> in 42 Tagen). Der Buffer-Tank (1m<sup>3</sup>) fließt dann in  $t_2=10$  h voll. Der Sparger wird etwa bei  $t_1=1,2$  h wirksam, und das Blubbern kann 2 Stunden nach dem Vollwerden des Tanks beendet werden ( $t_3=12$  h), da sich aufgrund des Radon-Gehalts im Stickstoff keine wesentliche Verbesserung mehr erzielen läßt. Als Blubberkonstante wird die ungünstigere Grenze  $B=0,96$  h<sup>-1</sup> verwendet. Die Bestimmung von B bezieht sich auf einen statisch am Sparger anliegenden N<sub>2</sub>-Druck von ca. 1,5 bar.

Für die drei in Kap. 5.2.4 beschriebenen Beiträge an <sup>210</sup>Pb ergeben sich die folgenden Werte. Die Bezeichnung der Variablen wurde von dort übernommen. Die Berechnung geschieht analog, zur Veranschaulichung dienen die Abbildungen 5.7, 5.8.

$$(1) N_{210\text{Pb}} = R \cdot \lambda_{\text{Rn}} \cdot t_2 \cdot \frac{V}{\Phi} = 0,18$$

$$(2) N_{210\text{Pb}} = 6,6$$

$$(3) N_{210\text{Pb}} = 12,1$$

Die Summe der eingebrachten <sup>210</sup>Pb-Atome beträgt dann 18,9. Das bedeutet nach Tab. 5.1 einschließlich der Tochterkerne eine Aktivität von 0,00255 d<sup>-1</sup> zwischen 250 und 800 keV in 1m<sup>3</sup> Szintillator, also 0,255 d<sup>-1</sup> in 100 m<sup>3</sup>. Dadurch wird die geforderte Grenze von 1 d<sup>-1</sup> eingehalten. Die Tatsache, daß der geforderte Wert nur um den Faktor  $\approx 4$  unterschritten wird, zeigt allerdings auch die Notwendigkeit der geringen Emanationsrate des Silicagels von Eka Nobel. Da sämtliche Beiträge (1), (2), (3) direkt proportional zur Emanationsrate R sind, kann die Grenze bei Benutzung eines Silicagels von Merck mit einer mehr als 200-fachen Emanationsrate nicht eingehalten werden.

Es muß noch darauf hingewiesen werden, daß es die niedrige Radon-Konzentration im Szintillator ( $c_{\text{Rn,Sz}}(t_2)=174$  µBq/m<sup>3</sup>) bereits während dem Zufluß über die Säule erfordert, beim Blubbern "high-purity"-Stickstoff zu verwenden.

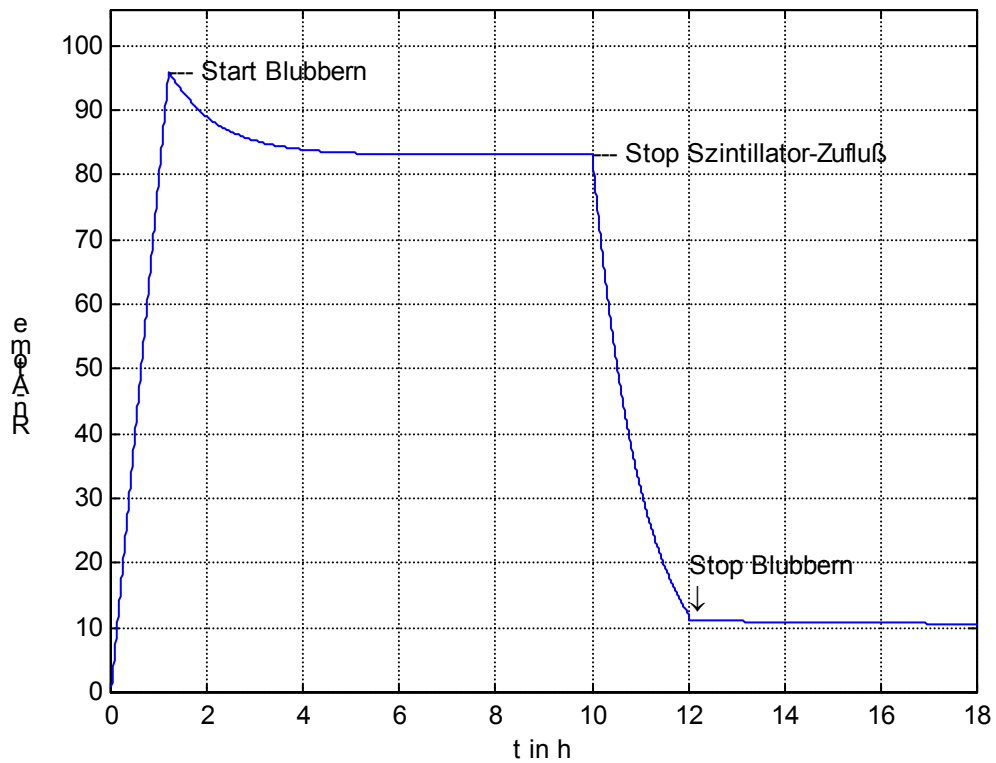


Abb. 5.7: Simulierter zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Anzahl für mögliche Parameterwerte bei einer Szintillatorreinigungsaktion für BOREXINO. Angenommen werden die ungünstigere Grenze von  $B=0,96 \text{ h}^{-1}$ , die Rn-Emanationsgrenze von  $20\text{kg}$  Eka-Nobel-Silicagel  $R=79,9 \text{ h}^{-1}$ , sowie die realistischen Zeitpunkte  $t_1=1,2\text{h}$ ,  $t_2=10\text{h}$ ,  $t_3=12\text{h}$ .

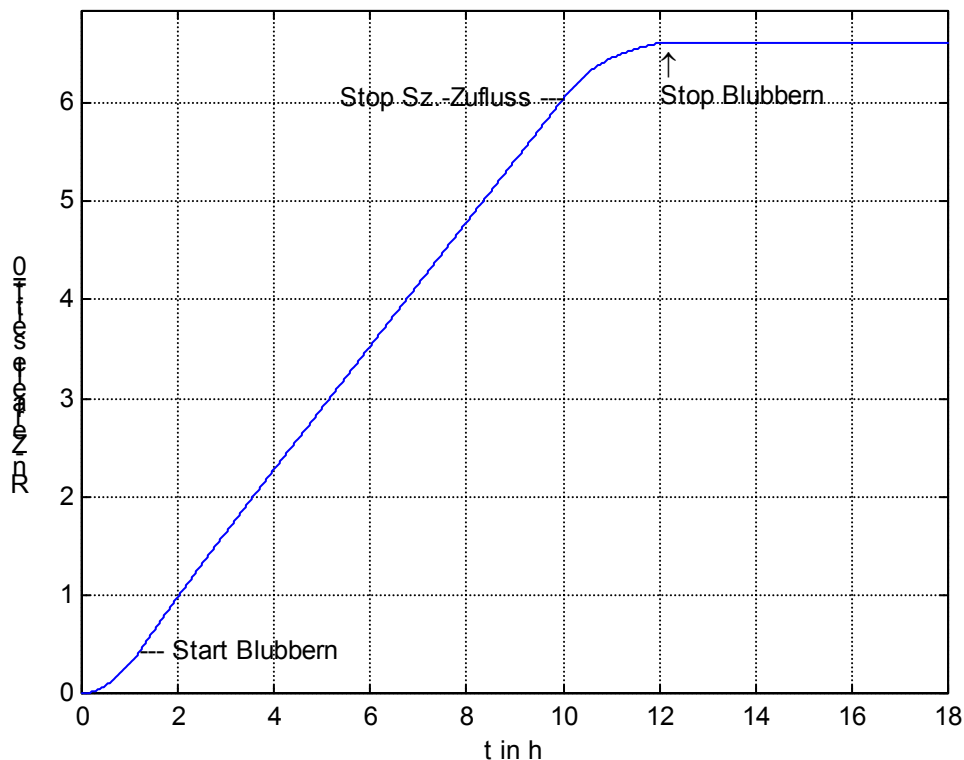


Abb. 5.8: Simulierter zeitlich integrierter Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle für mögliche Parameterwerte bei einer Szintillatorreinigungsaktion für BOREXINO. Angenommen werden die ungünstigere Grenze von  $B=0,96\text{ h}^{-1}$ , die Rn-Emanationsgrenze von  $20\text{kg}$  Eka-Nobel-Silicagel  $R=79,9\text{ h}^{-1}$ , sowie die realistischen Zeitpunkte  $t_1=1,2\text{h}$ ,  $t_2=10\text{h}$ ,  $t_3=12\text{h}$ .

### 5.3. Auslösen von Radon durch $\text{N}_2$ -Blubbern als Laborexperiment

#### 5.3.1. Motivation und experimentelle Realisierung

Wie bereits in Kapitel 5.1.1 ausführlicher beschrieben wurde, ist das Auslösen von Radon aus dem für BOREXINO verwendeten Flüssigszintillator von höchster Bedeutung. Es kann in den Buffer-Tanks des „Modul zero“ durchgeführt werden. Die dafür in Kap. 5.2.3 hergeleitete Zeitabhängigkeit der Radon-Konzentration im Szintillator soll nun im kleinen Maßstab experimentell überprüft werden.

Dazu wurde eine Menge von ca. 230 g Pseudocumol (incl. dem Wellenlängenschieber PPO) während eines Zeitraums von 5d 18h unter Verwendung einer  $^{226}\text{Ra}$ -Quelle mit  $^{222}\text{Rn}$  angereichert. Anschließend wurde versucht, das gasförmig gelöste Radon mithilfe einer Gaswaschflasche (s. Abb. 5.9) wieder auszulösen. Als Gas wurde Flaschenstickstoff der Reinheitsklasse 5.0 verwendet. Der Auslösungsprozeß („Blubbern“) wurde in mehrere Zeitintervalle aufgeteilt, um zu verschiedenen Zeiten Aktivitätsmessungen durchzuführen. Dazu wurde jeweils eine Szintillatorprobe von ca. 10 g aus der Gaswaschflasche entnommen und in eine Meßdose aus Teflon gefüllt. Die bisher beschriebenen Schritte geschahen in einer sog. „Glovebag“ unter Stickstoffatmosphäre, damit der Szintillator nicht mit Sauerstoff in Kontakt kam. Anschließend wurde die Masse der entnommenen Menge PC mit einer Waage bestimmt.

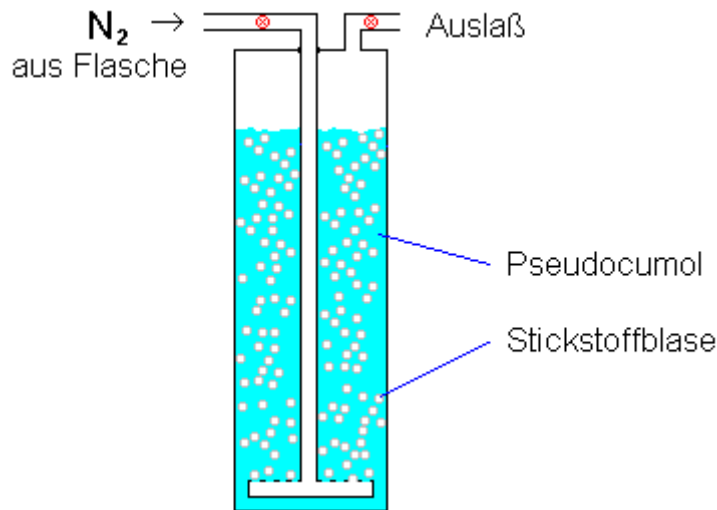


Abb. 5.9: Auslösen von Radon aus dem Szintillator durch Blubbern mit Stickstoff

Die verwendeten Teflonmeßdosen sind dieselben wie in Abb. 4.7 und zumindest im nötigen Zeitrahmen von einigen Stunden luftdicht verschließbar. Zur Messung der Aktivität mithilfe eines Photomultipliers wurde ebenfalls der in Abb. 4.7 gezeigte Aufbau verwendet. Die Radon-Zerfälle wurden aufgrund der  $^{214}\text{Bi}$ - $^{214}\text{Po}$ -Koinzidenz (s. Zerfallskette Abb. 5.14) von den anderen Ereignissen getrennt. Dabei hatte das Gate für den mit einer Halbwertszeit von  $164\ \mu\text{s}$  erfolgenden  $\alpha$ -Zerfall des  $^{214}\text{Po}$  eine Breite von etwa  $820\ \mu\text{s}$ , was 5 Halbwertszeiten entspricht. Mithilfe zweier Diskriminatoren wurden zwei verschiedene Energieschwellen für die  $\beta$ -Ereignisse des  $^{214}\text{Bi}$  (etwa 50-100 keV) und die  $\alpha$ -Ereignisse des  $^{214}\text{Po}$  (etwa 240-290 keV) gesetzt.

Das  $\beta$ -Spektrum des  $^{214}\text{Bi}$  hat eine Endpunktenergie von 3270 keV. Der unter der Energieschwelle von etwa 50-100 keV liegende Anteil wurde anschließend für jede Einzelmessung getrennt hinzuaddiert, wobei die Form des korrigierten  $\beta$ -Spektrums aus Abb. 4.8 verwendet wurde. Ungenauigkeiten aufgrund von Effekten der Gefäßwand (s. Kap. 4.2.3, 4.2.4) werden zu einem erheblichen Anteil aufgrund des Prinzips der Relativmessung eliminiert und deshalb nicht weiter berücksichtigt.

Der  $\alpha$ -Peak hat eine Energie von 7834 keV, liegt aber aufgrund des  $\alpha$ -Quenchings im Szintillator energetisch wesentlich niedriger. Man vergleiche dazu den etwas niederenergetischeren  $\alpha$ -Peak von  $^{210}\text{Po}$  aus den Abb. 4.10 und 4.11, der anstatt bei 5407 keV im Bereich von 300-600 keV liegt. Deshalb dürfte wohl der gesamte  $\alpha$ -Peak des  $^{214}\text{Po}$  über der genannten Energieschwelle von 290 keV liegen.

Die Anzahl der Koinzidenzen wurden mit einem Scaler gezählt. Die Rate der zufälligen Koinzidenzen liegt im Bereich von 0,002-0,02 Hz und wurde bei jeder Einzelmessung subtrahiert. Davon abgesehen entspricht die Koinzidenzrate der Anzahl der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle, da sich während der Anreicherungszeit von 5d 18h ein Zerfallsgleichgewicht zu  $^{214}\text{Bi}$  und  $^{214}\text{Po}$  eingestellt hat. Aus Kontrollgründen wurden ebenfalls das Gesamtspektrum sowie das Spektrum der koinzidenten, zweiten Ereignisse über ADC und Computer ausgelesen.

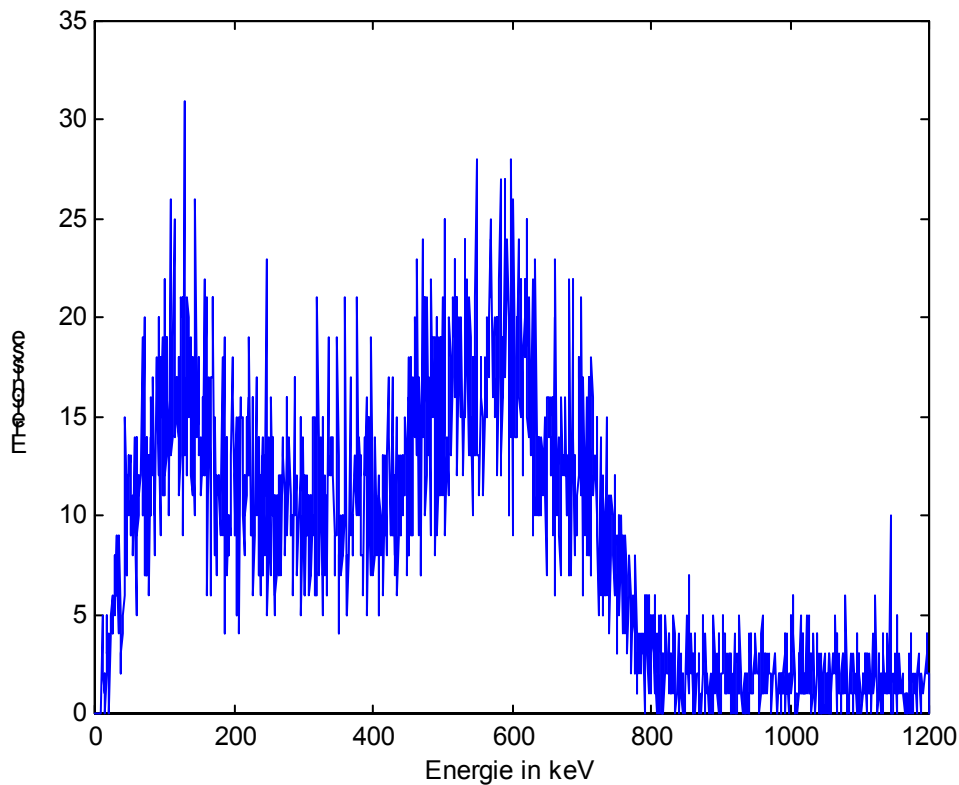


Abb. 5.10: Gesamtspektrum des angereicherten Szintillators vor Beginn des Reinigungsschrittes. Der breite Peak zwischen 400 und 800 keV enthält u.a. die zu zählenden  $\alpha$ -Ereignisse von  $^{214}\text{Po}$ . Sie sind teilweise überlagert von zwei weiteren  $\alpha$ -Peaks ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ), den  $\beta$ -Spektren von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  sowie dem Untergrund.

Zusammenfassend geschah die Berechnung der wirklichen  $^{222}\text{Rn}$ -Rate über die Beziehung

$$f_{^{222}\text{Rn}} = \frac{f - f_0}{m_{\text{PC}}} \cdot \frac{1}{e^{-\lambda_{\text{Rn}} t_0}} \cdot \frac{1}{1 - (\frac{1}{2})^5} \cdot \frac{N_{\beta, \text{total}}}{N_{\beta, E < S}} \quad \text{wobei} \quad f_0 = f_1 f_2 t_{\text{Gate}}$$

Darin bedeutet:

- $f_0$  Rate der zufälligen Koinzidenzen, die sich über die Energieschwellen der beiden Diskriminatoren und den darauf beruhenden Ereignisraten  $f_1, f_2$  sowie die Gatebreite  $t_{\text{Gate}} = 820 \mu\text{s}$  berechnen läßt.
- $m_{\text{PC}}$  Masse der Pseudocumolprobe
- $1/\exp(-\lambda_{\text{Rn}} t_0)$  Faktor für den Zeitunterschied  $t_0$  zwischen Anreicherungsende und den einzelnen Meßzeiten
- $1/(1 - (\frac{1}{2})^5)$  Faktor für Zählratenverluste durch die endliche Gatebreite für den  $\alpha$ -Zerfall von 5 Halbwertzeiten
- $N_{\beta, \text{total}}/N_{\beta, E < S}$  Faktor zur Berücksichtigung der  $\beta$ -Ereignisse unterhalb der Diskriminatorschwelle S

### 5.3.2. Ergebnisse

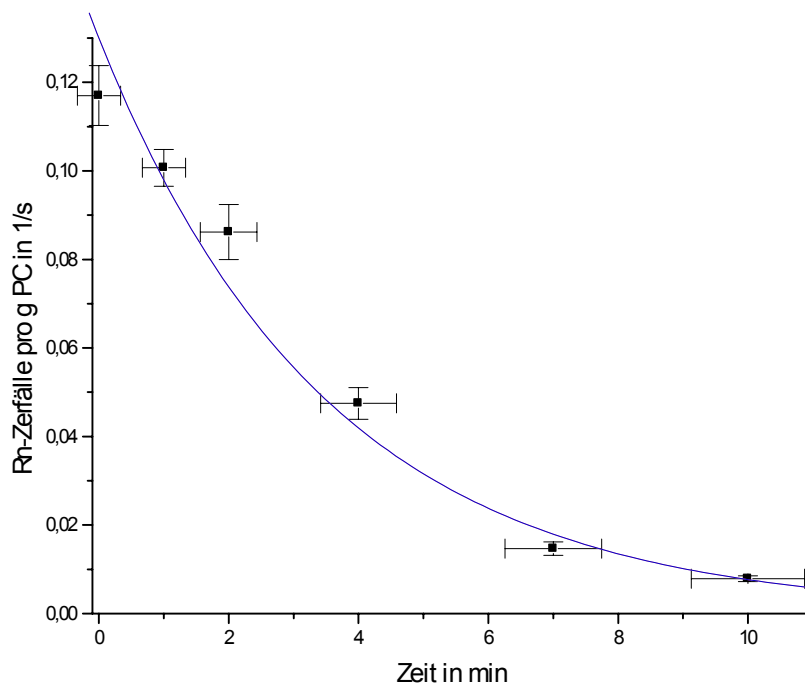


Abb. 5.11: Graphische Darstellung der gemessenen  $^{222}\text{Rn}$ -Aktivitäten in Abhängigkeit von der Reinigungszeit, mit angefitzter Exponentialfunktion

Die Fehlergrenzen der Aktivitäten entstammen der Statistik des radioaktiven Zerfalls sowie der Ungenauigkeit in der Bestimmung der unteren Energieschwelle, bei der das  $\beta$ -Spektrum von  $^{214}\text{Bi}$  abgeschnitten wurde. Fehler beim Wiegen der Szintillatorproben oder bei der Messung des Zeitunterschieds zwischen Anreicherungsende und den einzelnen Meßzeiten sind vergleichsweise klein und werden vernachlässigt.

Die Radonkonzentration im verwendeten Stickstoff (handelsübliche Flasche, Reinheitsklasse 5.0) sollte nach [Fre00] zwischen 0,1 und 2,5 mBq/m<sup>3</sup> liegen und kann im Hinblick auf die gemessenen Aktivitäten ebenfalls vernachlässigt werden.

Eine anderweitige Kontamination des Szintillators kann auch ausgeschlossen werden, da bei der letzten Meßprobe ( $t=10$  min) ein weiteres Abklingen der Aktivität im Rahmen der Halbwertszeit von Radon beobachtet wurde.

Die zeitlichen Fehlergrenzen resultieren hauptsächlich aus der praktischen Schwierigkeit, den  $\text{N}_2$ -Fluß während des Blubbers konstant einzustellen. Die zur Verfügung stehende Versuchsanordnung ( $\text{N}_2$ -Flasche mit Druckregler) beinhaltet keine Möglichkeit, diesen Fluß exakt zu kontrollieren, denn dazu war der zum Blubbern nötige Gasdruck zu klein. Die Flußmenge mußte mit dem Auge (Anzahl der  $\text{N}_2$ -Blasen pro Zeit in der Gaswaschflasche) abgeschätzt werden. Dazu kamen noch gelegentliche Schwankungen des Druckreglers. Da sich (bei konstanter Blasengröße) der Reinigungseffekt mit der Anzahl  $n$  der  $\text{N}_2$ -Blasen im Szintillator ergibt (s. Kap. 5.2.3 und [Gia99]) und  $n$  jeweils linear vom Fluß und der Zeit abhängt ( $n \sim \Phi \cdot t$ ), kann bzgl. Abb. 5.11 der Fehler im Fluß in einen Fehler der Zeit uminterpretiert werden. Es ist durchaus vorstellbar, daß er bis zu 25% betragen könnte. Bei mehreren Blubber-Perioden und mehrfacher Nachregulierung schwankt der Fluß dann innerhalb dieses Intervalls. Deshalb sollten sich diese Schwankungen zeitlich teilweise ausgleichen, ähnlich wie bei der Rate eines radioaktiven Zerfalls. Analog dazu wird eine Proportionalität des Fehlers zur Wurzel der Zeit angenommen.

Dazu kommt noch ein zusätzlicher Fehler im Bereich von 5s durch die Zeitnahme während des Blubbers, denn zu Beginn muß der  $\text{N}_2$ -Fluß kontinuierlich bis zu einem vernünftigen Wert erhöht werden. Ideal dagegen wäre, den Fluß plötzlich einsetzen zu lassen.

Um den Wert  $\pm 20\text{s}$  bei einer Minute Blubber-Zeit zu erreichen, wird der Fehler angenommen zu  $\Delta t = (15\text{s}) \cdot (t/1\text{min})^{1/2} + 5\text{s}$ . Für den Wert bei der Zeit  $t=0$  erweist sich die Annahme desselben Fehlers wie bei  $t=1\text{min}$  als sinnvoll.

In der graphischen Darstellung aus Abb. 5.11 deutet sich durchaus eine Bestätigung der erwarteten exponentiellen Abhängigkeit an. Die Fitkurve entsteht aus:

$$A(t) = (0,130 \pm 0,004) \cdot e^{-(3,53 \pm 0,11) \cdot t/\text{min}}$$

Man vergleiche dazu  $N(t) = \text{const.} \cdot e^{-Bt} + R/B$  aus Kapitel 5.3.2, wobei hier natürlich während des Blubbers die Emanationsrate  $R=0$  ist. Demnach beträgt die „Blubberkonstante“ der Versuchsanordnung  $B = (3,53 \pm 0,11) \text{ min}^{-1}$

#### **5.4. Bestimmung der Radon-Emanationsrate von Silicagel**

Am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg wurde in den letzten Jahren eine Anlage für Emanationsmessungen aufgebaut, an der bereits zahlreiche Messungen für BOREXINO durchgeführt wurden [Rau00].

Eine Emanationsmessung gliedert sich im Wesentlichen in drei Phasen, nämlich den Emanationsvorgang selbst, das Füllen des emanierten Radons ins Zählrohr und die Aktivitätsmessung. Die ersten beiden Schritte werden an einer Emanationsanlage realisiert, die in 5.4.1 näher beschrieben werden soll. Die Aktivitätsmessung mit einem Zählrohr wird in 5.4.2 erläutert. Anschließend wird auf die Auswertung sowie die Ergebnisse durchgeführter Messungen eingegangen.



### 5.4.1. Emanationsanlage

Die folgende Skizze 5.5 zeigt den schematischen Aufbau der Emanationsanlage.

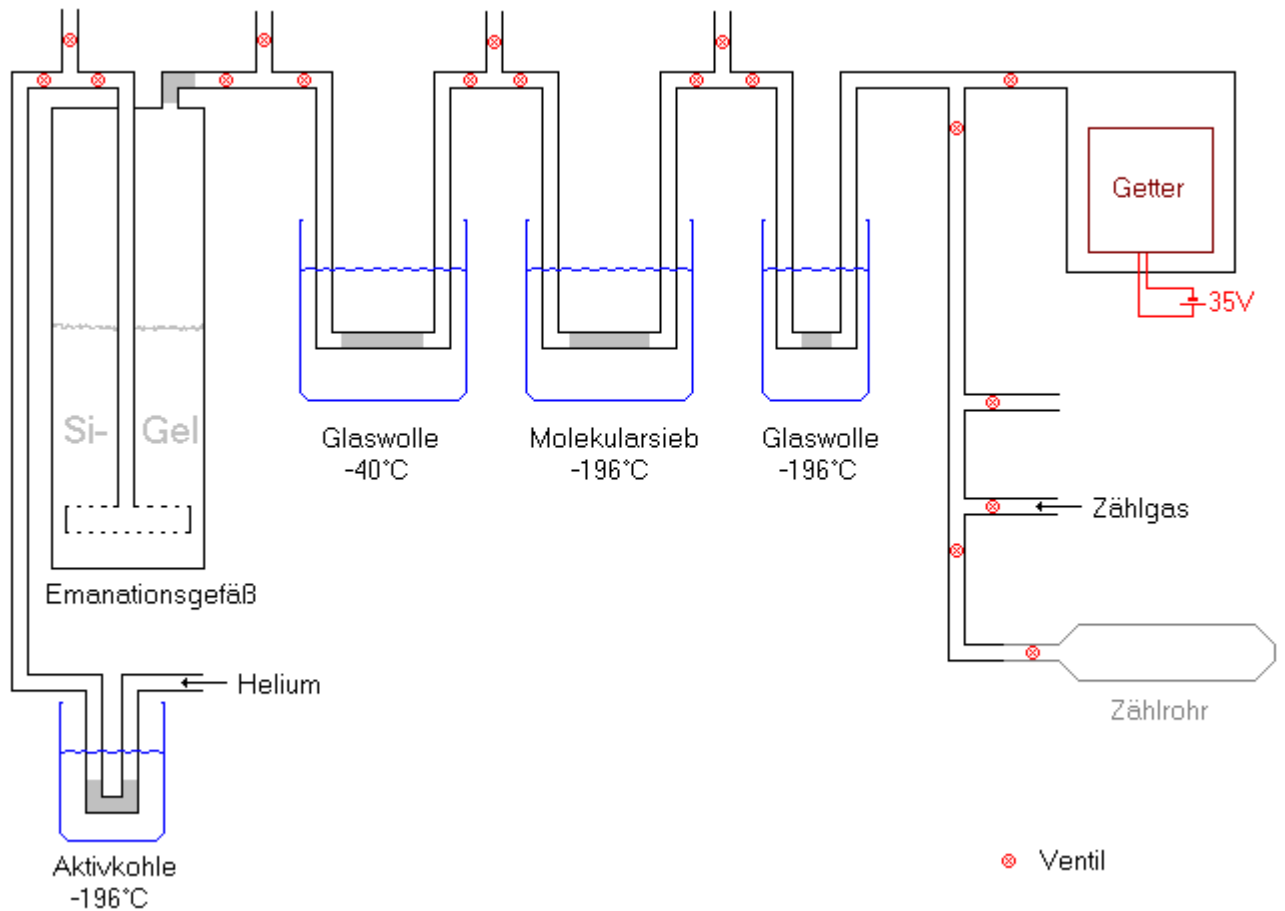


Abb. 5.12: Schematischer Aufbau der Emanationsanlage am MPI für Kernphysik in Heidelberg

Während des Vorgangs der Emanation und der Probenaufbereitung (d.h. Einbringen des Radons ins Zählrohr) ist es essentiell, zum einen kein Radon nach außen zu verlieren sowie zum anderen keines durch Teile der Meßanordnung einzutragen. Deshalb ist die gesamte aus Glasgefäßen und Glasrohren bestehende Anlage vakuumdicht gegen die äußere Umgebung abgeschlossen. Vor Benutzung werden die Adsorberfallen (Glaswolle, Molekularsieb, Aktivkohle) bei einer Temperatur von 150 – 200°C mindestens eine Stunde lang mit Helium gespült, um noch vorhandene Reste von Radon vollständig auszutreiben. Bei Bedarf können sämtliche Teile evakuiert werden, dazu stehen über die Ausgänge (in der Skizze: oben) zwischen den einzelnen Elementen der Anlage einige Vakuumpumpen zur Verfügung. Um im folgenden kein Radon mehr von außen einzutragen, wird das benutzte Helium durch eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Aktivkohlefall geleitet. Bei dieser Temperatur kondensiert Radon als Feststoff (Siedepunkt  $-62^{\circ}\text{C}$ , Schmelzpunkt  $-71^{\circ}\text{C}$ ).

Für den Emanationsvorgang wird die Meßprobe in das Emanationsgefäß gefüllt. Anschließend wird sie darin mit (radonfreiem) Helium gespült, um sie zu Beginn der Emanationszeit von bereits zuvor emanierendem Radon oder Radon aus der Luft zu befreien. Die Emanationszeit beträgt etwa vier Tage. Während dieser Zeit können die Ventile in den Gefäßeingängen geschlossen und das Gefäß von der Emanationsanlage entfernt werden.

Zur Probenaufbereitung wird das Emanationsgefäß wieder an die Anlage angekoppelt und das emanierte Radon anschließend mit Helium als Trägergas ausgespült. Der Ausspülprozeß aus den Poren der Probe kann durch erhöhte Temperatur (100-200°C) beschleunigt werden, was im Sinne einer geringeren Spülzeit erwünscht ist (siehe Molekularsieb). Diese Zeit sollte bei 10 – 30 Minuten liegen.

Im folgenden soll sowohl die Trägergasmenge wesentlich reduziert als auch gasförmige Verunreinigungen wie u.a. H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> zurückgehalten werden, denn diese können aufgrund ihrer im Verhältnis zum Zählgas erhöhten Elektronenaffinität die Zählrohrfunktion beeinträchtigen.

Das Gasgemisch durchläuft beim Spülen in der oben veranschaulichten Weise die ersten Elemente der Anlage: Nach einem einfachen Staubfilter aus Glaswolle hält eine Trockenfalle (Glaswolle bei etwa -40°C, realisiert durch flüssigen Alkohol) gasförmiges Wasser zurück. Radon kondensiert darin noch nicht, wohl aber in der anschließenden Molekularsiebfalle (Kühlung durch flüssiges N<sub>2</sub>). Dieses Molekularsieb mit der Eigenschaft eines hohen Adsorptionskoeffizienten ist erforderlich, um das Radon bei konstantem Heliumfluß während des Spülens vollständig aufzunehmen. Das Problem, aufgenommenes Radon trotz des durchströmenden Flusses zu halten sowie die Tatsache, daß das Molekularsieb <sup>226</sup>Ra enthält und somit selbst Radon emaniert, begrenzen schließlich die Länge der Spülzeit. Das Helium wird nach durchlaufen der Molekularsiebfalle abgepumpt, der Zugang zu den übrigen Elementen der Anlage bleibt während der Spülzeit verschlossen. Leider nimmt das Molekularsieb auch einen hohen Anteil der gasförmigen Verunreinigungen auf, was weitere Reinigungsschritte notwendig macht.

Nach Beendigung des Spülens wird das Molekularsieb auf etwa 120°C erhitzt und das freiwerdende Gas mithilfe einer wesentlich geringeren Menge Helium auf die nächste Kühlfalle (Glaswolle in flüssigem N<sub>2</sub>) übertragen. Diese besitzt einen wesentlich geringeren Adsorptionskoeffizienten als die Molekularsiebfalle, was zum einen geringeren Heliumfluß zur Übertragung erfordert, zum anderen aber eine geringere Aufnahme an Verunreinigungen gewährleistet. Der nicht kondensierte Anteil (Radon kondensiert zum Großteil) kann somit durch abpumpen entfernt werden.

Anschließend wird das Gas (Radon mit geringen Verunreinigungen) wiederum mittels Erhitzen der Glaswollefalle im Vakuum freigesetzt und mit einem sogenannten Getter in Berührung gebracht. Dies ist eine als Katalysator wirkende Metalloberfläche, die im erhitzten Zustand (Heizspannung 35V) gasförmige Verbindungen anlagert und in ihre Bestandteile zersetzt. Da Edelgase von diesem Verhalten ausgenommen sind, kann Radon durch den Getter auf effektive Weise von den die Zählrohrfunktion beeinträchtigenden Verunreinigungen getrennt werden.

Schließlich wird Radon als das weitgehend einzig verbleibende Gas (geringe Spuren von Edelgas-Verunreinigungen wie He, Ar stören nicht) mit dem Zählgas (90% Argon, 10% Methan) vermischt und ins Zählrohr gefüllt. Der Druck im Zählrohr beträgt etwa eine Atmosphäre. Zur Aktivitätsbestimmung kann das Zählrohr verschlossen und von der Anlage abgekoppelt werden.

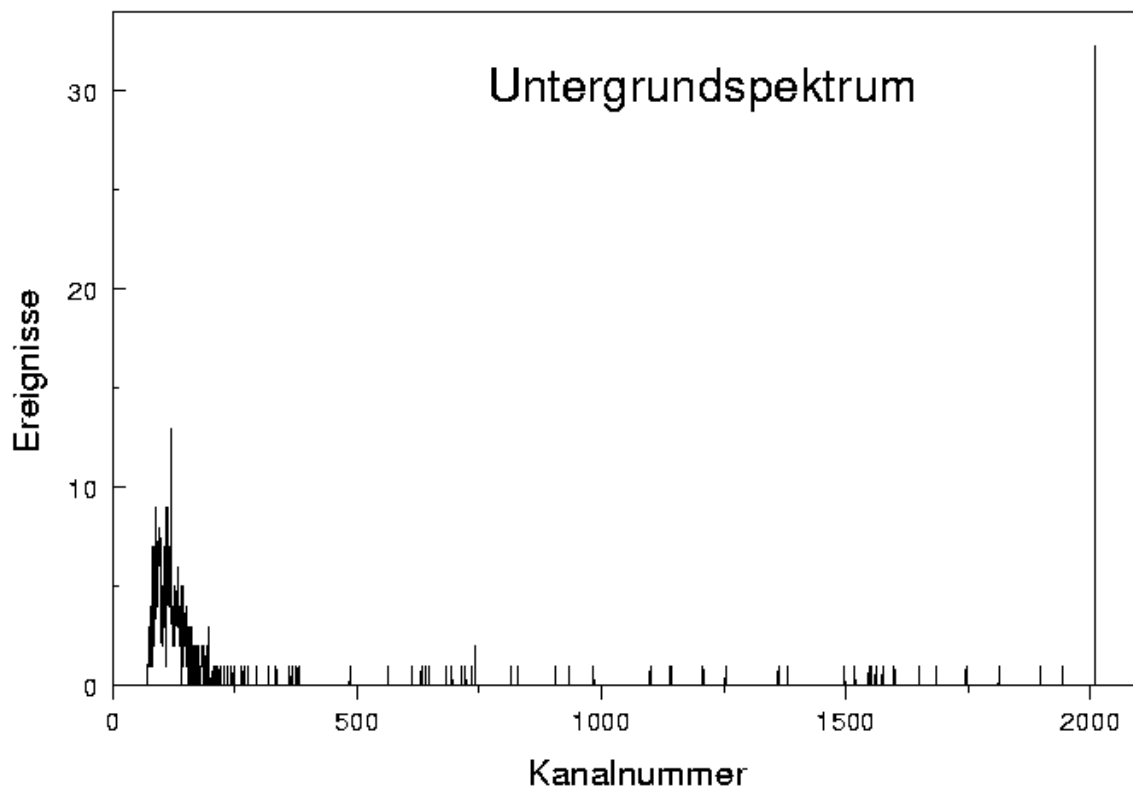
Detailliertere Untersuchungen und Angaben über Beiträge der Emanationsanlage zum Meßwert finden sich in [Rau99].

### 5.4.2. Aktivitätsmessung mit Zählrohren

Die Aktivitätsbestimmung geschieht in einem Untergrundlabor, dessen Abschirmung durch das Erdreich etwa 15 m Wasseräquivalent entspricht. Darüber hinaus werden die Zählrohre mit einer etwa 20 cm dicken Bleischicht abgeschirmt.

Zur Beschreibung der Meßelektronik sei auf [Rau99] verwiesen.

Die geringen Abmessungen der Zählrohre (Volumen ca. 1 cm<sup>3</sup>, Länge ca. 3 cm) haben zur Folge, daß die Energien darin stattfindender Zerfälle nur teilweise im Zählrohr deponiert werden. Dieser Effekt tritt bei  $\beta$ -Ereignissen, die gewöhnlich weniger als 50 keV im Detektor deponieren, noch wesentlich stärker zu Tage als bei  $\alpha$ -Ereignissen, welche bei durchaus höheren Energien zu sehen sind, allerdings ihre monoenergetische Form verlieren. Deshalb bleibt auch externer Strahlungsuntergrund zum überwiegenden Teil unter 50 keV und kann somit durch Setzen einer Energieschwelle ausgeschlossen werden. Die wenigen Ereignisse über 50 keV haben ihre Ursache hauptsächlich in  $\alpha$ -Zerfällen des langlebigen Nuklids <sup>210</sup>Pb, das sich in der Radon-Zerfallskette bildet und sich als Folge des Radon-Nachweises im Zählrohr absetzt. Dieser Untergrund würde theoretisch mit jeder weiteren Messung ansteigen, kann aber aufgrund der Geringfügigkeit der nachgewiesenen Radonmengen als konstant angenommen werden.



*Abb. 5.13: Untergrundspektrum im Zählrohr (Kanal 250 entspricht 50 keV). Die Ereigniszahl im letzten Kanal ist in der Darstellung um 25% reduziert. Entnommen aus [Rau99].*

Zum Radon-Signal trägt nur das Isotop <sup>222</sup>Rn bei, da evtl. vorhandenes kurzlebige <sup>220</sup>Rn ( $t_{1/2} = 55,6$  s) und <sup>219</sup>Rn ( $t_{1/2} = 3,96$  s) während der Probenaufbereitung praktisch vollständig zerfällt. Das Signal von <sup>222</sup>Rn setzt sich mit Blick auf die Zerfallskette folgendermaßen zusammen:

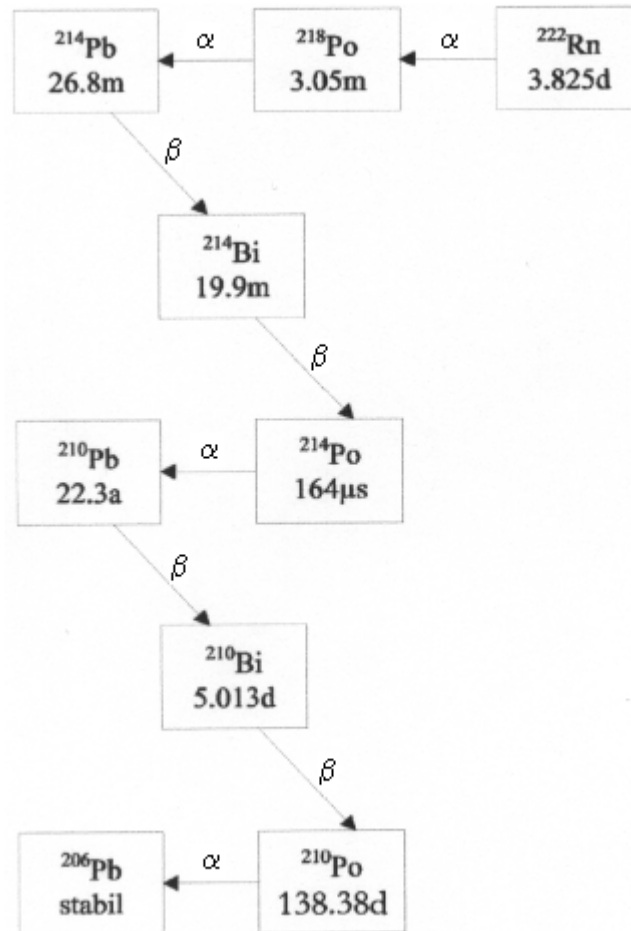


Abb. 5.14: Zerfallskette von  $^{222}\text{Rn}$

Bis hin zum nächsten langlebigen Isotop  $^{210}\text{Pb}$  treten drei  $\alpha$ -Zerfälle und zwei  $\beta$ -Zerfälle auf. Eine Energieschwelle von 50 keV schneidet die von beiden  $\beta$ -Zerfällen stammenden Ereignisse weg, trotzdem ist dies aufgrund der Untergrundproblematik vorteilhaft. Die Energien der  $\alpha$ -Zerfälle liegen mit Werten zwischen 5,5 MeV und 7,7 MeV weit genug über der Energieschwelle.

Die Anzahl der mit dieser Meßanordnung pro Radon-Zerfall detektierten Ereignisse wurde in [Rau99] mit  $1,48 \pm 0,02$  bestimmt. Dies erklärt sich folgendermaßen: Wegen Verlusten durch Totvolumen außerhalb der Zählrohrkathode, durch den Endeffekt (geringere Feldstärke und somit geringere detektierte Energie am Rohrende drückt Ereignisse unter die Schwelle) sowie durch Zerfälle in Wandnähe (in diesem Fall können die  $\alpha$ -Teilchen u.U. nur einen geringen Teil ihrer Energie im Gasvolumen deponieren) sieht man nur ca. 70% aller  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle. Das entstehende  $^{218}\text{Po}$  sowie alle folgenden Nuklide lagern sich an der Zählrohrwand an, was zu einem weiteren Faktor  $1/2$  in der Nachweiswahrscheinlichkeit der anderen beiden  $\alpha$ -Zerfälle führt. Eine grobe Abschätzung ergibt  $\varepsilon = 0,7 + 2 \cdot 0,5 \cdot 0,7 = 1,4$  in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert.

Die Nachweisgrenze liegt im Bereich von 50  $\mu\text{Bq}$ , was etwa 25  $^{222}\text{Rn}$ -Atomen entspricht. Sie ergibt sich aus dem zusätzlichen Radon-Signal durch die Probenaufbereitung, dem Zählrohruntergrund und der begrenzten Meßzeit.

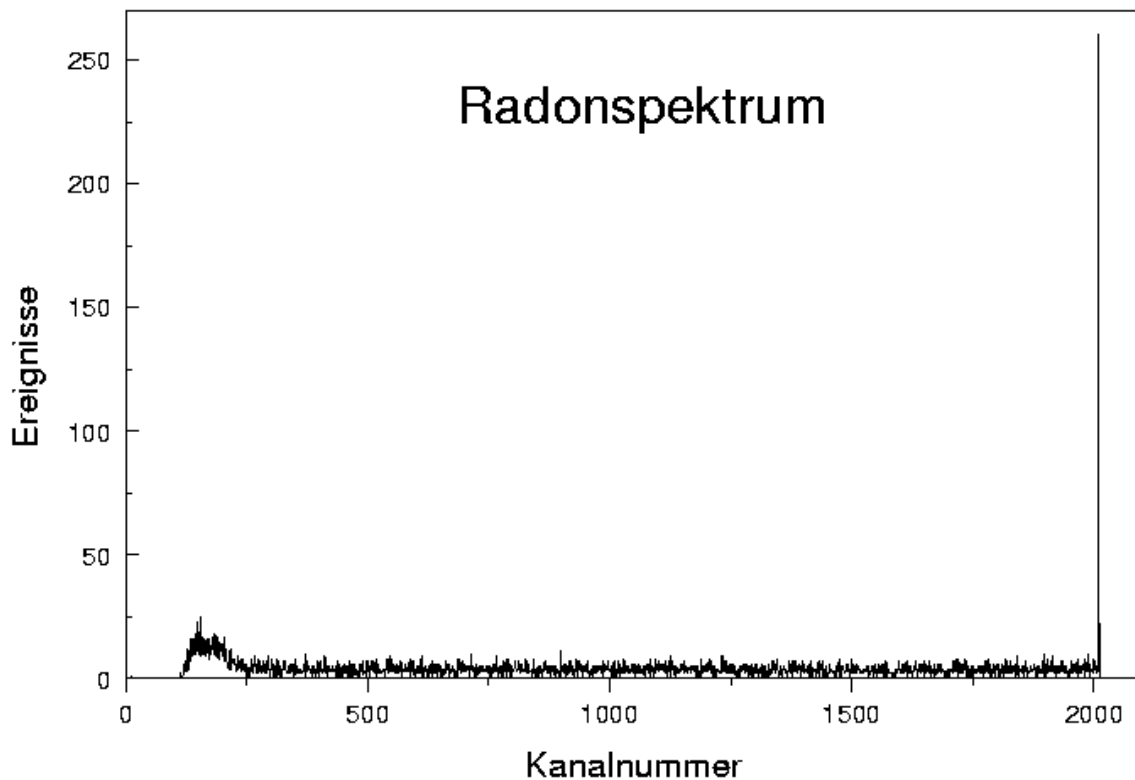


Abb. 5.15: Radonspektrum im Zählrohr (Kanal 250 entspricht 50 keV). Die Ereigniszahl im letzten Kanal ist in der Darstellung um 93% reduziert. Entnommen aus [Rau99].

### 5.4.3. Auswertung und Ergebnis der Messungen

Aus der Anzahl der Ereignisse im Radonspektrum über 50 keV läßt sich mithilfe einiger Parameter, welche die Beeinflussung des Meßwertes durch die Probenaufbereitung berücksichtigen, die Radonaktivität  $A$  zum Zeitpunkt der Zählrohrfüllung bestimmen:

$$A = \left( \frac{n - n_u}{\tau \cdot \left( \sum q_i \right) \cdot (1 - r)} - a \right) \cdot \frac{1}{\varepsilon}$$

- $n$  Anzahl der Ereignisse über der Energieschwelle
- $n_u$  Anzahl der Untergrundereignisse über der Energieschwelle in der Meßzeit ( $< 35 \mu\text{Bq}$ )
- $\tau$  Lebensdauer von  $^{222}\text{Rn}$  ( $= 5,5 \text{ d}$ )
- $\sum q_i$  Anteil des Radons, das während der (evtl. mehreren) Meßperioden zerfällt.
- $r$  Restgasanteil, der beim Zählrohrfüllen in der Anlage zurückbleibt (ca. 0,5%)
- $a$  Anzahl der Ereignisse, die von Radon stammen, das durch die Probenaufbereitung eingebracht wird:  $(40 \pm 20) \mu\text{Bq}$
- $\varepsilon$  Nachweiswahrscheinlichkeit ( $1,48 \pm 0,02$ ); berücksichtigt aufgrund der Art ihrer experimentellen Bestimmung auch Verluste an den Adsorberfallen

Aus A wird dann bei bekannter Emanationszeit über die in 5.1. beschriebene Theorie die sich einstellende Gleichgewichtsaktivität  $A_{GG}$  berechnet, welche zugleich den Wert für die Emanationsrate R liefert. Für den Vergleich mit anderen Messungen bezieht man sie noch auf die Probenmasse des emanierenden Materials.

In der Absicht, die bzgl. Szintillatorreinheit strengen Anforderungen von BOREXINO zu erfüllen, wurde die Emanationsrate des folgenden Silicagels bestimmt. Leider kann nur eine Obergrenze angegeben werden.

Firma: Eka Chemicals AB, Akzo Nobel  
 Produkt: Kromasil, sphärisch  
 Herstellungsweise: synthetisch  
 Durchschnittskorngröße: 16  $\mu\text{m}$   
 Porengröße: 60  $\text{\AA}$   
 Menge: 45,5 g, nach Konditionierung 42,8 g

Emanationsrate:  $R \leq 1,11 \text{ mBq/kg}$  ([Buc00], Confidence level: 90%)

#### 5.4.4. Vergleichswerte bisheriger Messungen mit Silicagel

Es wurden bereits einige Messungen auf diesem Gebiet, mit Ausnahme der letzten alle im Rahmen von BOREXINO, getätigt. Die folgende Tabelle gibt einen Vergleich sowohl untereinander als auch mit den Aktivitäten von  $^{226}\text{Ra}$  des emanierenden Silicagels.

Silicagel-Messung	Aktivität A von $^{226}\text{Ra}$ in Bq/kg	Emanationsrate R von $^{222}\text{Rn}$ in mBq/kg	Verhältnis $\frac{A}{R}$
CTF1; Merck, sphärisch, 0.2–0.5 mm, 60 $\text{\AA}$	$2,28 \pm 0,11$	$200 \pm 10$	$11,4 \pm 1,1$
Gaschromatographie, W. Rau; Roth, sphärisch, 2-4 mm	$0,9 \pm 0,2$	$410 \pm 60$	$2,2 \pm 0,8$
Gaschromatographie, W. Rau; Eka Nobel, Kromasil sphärisch, synthetisch, 1-20 $\mu\text{m}$	$\leq 0,09$	$\leq 3,9$	-
Gaschromatographie, Y. Zakharov; Firma: Keller	$5,7 \pm 0,6$	$460 \pm 10$	$12,4 \pm 1,6$
SNO M. Liu et al.	2,4	$240 \pm 30$	$10,0 \pm 1,3$

Tab. 5.2: Emanationsraten von Silicagelsorten mit den zugehörigen Ra-Verunreinigungen  
 Die Meßwerte stammen aus: [Sch00] im Fall der CTF1, sowie [Rau99] und [Liu93].

In der dritten Messung handelt es sich um ein Silicagel aus derselben Produktreihe wie das oben (Kap. 5.4.3) untersuchte. Die Grenze von 3,9 mBq/kg kam allerdings zustande, nachdem es im Verhältnis 20:1 mit Maisstärke vermischt wurde, um die Korngröße zu erhöhen [Rau99].

Während der PXE-Säulenchromatographie im Rahmen von CTF1 wurde eine Anstiegsrate der  $^{222}\text{Rn}$ -Aktivität von  $70 \text{ h}^{-2}$ , bezogen auf 15 kg Silicagel, beobachtet [Sch00]. Daraus ergibt sich (s. Kap. 5.1.2) eine Emanationsrate von  $R = \dot{A}(0)/\lambda_{\text{Rn}} = 170 \text{ mBq/kg}$ . Der Vergleich mit obigem Meßwert  $200 \pm 10 \text{ mBq/kg}$  (Rn-Emanation in  $\text{N}_2$ ) deutet darauf hin, daß die Silicagelsäule von CTF1 keine nennenswerten Mengen an Radon zurückhielt.

Bis auf den Ausreißer in der zweiten Messung stellt man bei Silicagel ein konstantes Verhältnis zwischen  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität und  $^{222}\text{Rn}$ -Emanation fest. Die anderen drei Werte ergeben zusammen:  $A/R = 11,3 \pm 1,3 \quad (1\sigma)$

## Zusammenfassung

Das Experiment BOREXINO kann einen wesentlichen Beitrag zur Lösung des solaren Neutrinorätsels leisten. Es befindet sich in der Aufbauphase und soll in ein bis zwei Jahren fertiggestellt werden. Mit dem Prototyp CTF wurden bereits ermutigende Resultate erzielt.

Diese Arbeit führte die in den letzten Jahren begonnenen Untersuchungen bzgl. Szintillatorreinigung sowie die Aufbauarbeiten an der Liquid-Handling-Komponente "Modul zero" fort.

Im speziellen finden die Ergebnisse Anwendung beim Aufbau des für den Szintillator von BOREXINO geplanten Chromatographiesäulenreinigungssystems in "Modul zero". Die quantitative Betrachtung der Radonemanation verbunden mit den Reinheitsanforderungen in Kapitel 5.2.6 zeigt, daß das zugrunde gelegte synthetische Silicagel der schwedischen Firma Eka Nobel mit seiner geringen Emanationsrate als Adsorber verwendet werden sollte. Gleichzeitig aber stellt Kapitel 4.3 fest, daß sich aus der kleinen Korngröße dieses Silicagels Probleme mit der Flußrate ergeben. Eine Lösungsidee besteht in einer zylindrisch aufgebauten Silicagelsäule, wie sie in Kapitel 4.4 beschrieben wird. Dieses Design weist eine größere angeströmte Fläche und somit eine höhere Durchflußrate auf, erhält aber trotzdem (s. Kap. 4.4) die erwünschte Reinigungsfähigkeit aufrecht.

Deshalb ist die Idee vielversprechend und die Integration solch einer Säule in das "Modul zero" für die nächsten Monate geplant.

Beachtet werden sollte die Notwendigkeit eines zusätzlichen Filters am Zufluß der Säule, um bei einem Versagen der Filtermembran in der Säule das extrem fein zerstäubende Silicagel vom Rest des Systems abzuhalten.

Die bereits existierende Chromatographiesäule des "Modul zero" kann aus den erwähnten Gründen bzgl. der Durchflußrate nur mit grobkörnigerem Silicagel (z.B. der Firma Merck) betrieben werden. Aufgrund von Unterschieden in der Herstellungsweise ist dessen Radonemanationsrate jedoch um mindestens zwei Größenordnungen höher. Die 1. Säule könnte lediglich als Vorreinigungsstufe eingesetzt werden. Anschließend müßte der Szintillator zum Abbau der Radon-Aktivität gelagert werden, um das entstehende  $^{210}\text{Pb}$  in einem weiteren Schritt mit der oben beschriebenen 2. Säule zu entfernen.

Bezüglich des Reinigungsfaktors lassen die Untersuchungen mit dem Silicagel von Eka Nobel eine leichte Verbesserung erhoffen. Zumindest konnte gezeigt werden, daß die synthetische Herstellungsart dieses Silicagels die Reinigungsfähigkeit nicht beeinträchtigt.

Außerdem wurde die Reinigungsmöglichkeit des Stickstoffspülens, um Radon aus dem Szintillator auszulösen, näher untersucht. Der zeitliche Verlauf des Prozesses wurde theoretisch ermittelt und konnte experimentell nachvollzogen werden. Insbesondere gehen die Berechnungen auf die radoninduzierte  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität ein und konnten zeigen, daß die Untergrundgrenze von 1 Ereignis pro Tag zwischen 250 und 800 keV in 100t Szintillator um etwa das 4-fache unterschritten werden kann. Dabei wurden im Rahmen von "Modul zero" die beiden Reinigungsschritte "Säulenchromatographie" und "Stickstoffblubbern" vorausgesetzt, die Verwendung des hochreinen Silicagels von Eka Nobel (wie oben erwähnt) sowie plausible Werte für Durchfluß und verschiedene Zeitintervalle angenommen.

Das langfristige Ziel von "Modul zero", den Beitrag der Szintillatorreinigung im Rahmen einer Füllaktion des BOREXINO-Detektors zu leisten, sollte damit erreichbar sein.



# Tabellenverzeichnis

**Tab. 1.1:** Flüsse monoenergetischer Neutrinos für verschiedene Sonnenmodelle (entnommen aus [Hen99]). **3**

**Tab. 2.1:** In BOREXINO erwartete Neutrinoraten unter Annahme der Materieoszillationslösungen LMA, SMA, LOW sowie unter Annahme des Standardsonnenmodells (SSM) ohne Neutrinooszillationen. Die Berechnung erfolgte im Energiebereich 250-800 keV, mit 113 m<sup>3</sup> PC als Szintillator [BOR00]. **11**

**Tab. 2.2:** Reinheitsanforderungen im Szintillator entsprechend einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator [BOR00]. **17**

**Tab. 2.3:** Radioaktive Nuklide, die durch Myonen und sekundäre Schauerteilchen an <sup>12</sup>C-Targets entstehen können [Fir96], [Hag00a]. **18**

**Tab. 2.4:** In CTF1 gemessene Konzentrationen von <sup>14</sup>C, U und Th in den zwei verschiedenen Szintillatoren PC und PXE. Die U- und Th-Werte gelten unter Annahme eines Zerfallsgleichgewichtes [Hag00a]. **20**

**Tab. 3.1:** Flußmessungen bei VCR-Filtereinsätzen **27**

**Tab. 3.2:** Reinheitsanforderungen an den Szintillator, entsprechend einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator (entnommen aus [BOR00]) **35**

**Tab. 4.1:** Die Reinheitsanforderungen entsprechen einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator [BOR00]. Die PXE-Konzentrationen wurden mittels NAA bestimmt und stammen aus [Hen99]. Die PC-Konzentrationen von U und Th wurden in CTF1 über Bi-Po-Koinzidenzen bestimmt und sind entnommen aus [BOR98a]. Die übrigen PC-Konzentrationen wurden im Dezember 1995 der CTF1 entnommen und mittels NAA bestimmt, sie stammen aus [Gol97]. Das beigemischte PPO war in einem getrennten Schritt gereinigt worden. **38**

**Tab. 4.2:** Die Reinheitsanforderungen entsprechen einer Untergrundrate von einem Ereignis pro Tag im Energiebereich von 250 – 800 keV in 100 t Szintillator, wobei sich für pTP und PPO aufgrund derselben Konzentration im Lösungsmittel (1,5 g/l) kein Unterschied ergibt. Die Verunreinigungswerte in pTP (Firma: Aldrich) sowie in PPO (Firma: Fluka) wurden mittels NAA bestimmt und aus [Gol97] entnommen. **39**

**Tab. 4.3:** Ergebnisse der Säulenchromatographie für <sup>210</sup>Po **53**

**Tab. 4.4:** Ergebnisse der Säulenchromatographie für <sup>210</sup>Bi **53**

**Tab. 4.5:** Ergebnisse der Säulenchromatographie für <sup>210</sup>Po aus [Gri00] **54**

**Tab. 4.6:** Ergebnisse der Säulenchromatographie für <sup>210</sup>Bi aus [Gri00] **54**

**Tab. 4.7:** Flußmessungen mit PC **59**

**Tab. 4.8:** Flußmessungen mit PXE 59

**Tab. 4.9:** Werte für Silicagel "Kromasil" von Eka Nobel für verschiedene Porengrößen 66

**Tab. 5.1:** Aktivität beim 1m<sup>3</sup>-run, PXE/CTF2 durch eingebrachtes <sup>210</sup>Pb, das von Radon aus der Chromatographiesäule stammt. 76

**Tab. 5.2:** Emanationsraten von Silicagelsorten mit den zugehörigen Ra-Verunreinigungen Die Meßwerte stammen aus: [Sch00] im Fall der CTF1, sowie [Rau99] und [Liu93]. 90

## Abbildungsverzeichnis

**Abb. 1.1:** Bei der He-Fusion durch den pp-Zyklus beteiligte Reaktionen mit ihren Verzweungsverhältnissen. Rot in Klammern sind die jeweiligen Bezeichnungen der dabei entstehenden Neutrinos angegeben. Entnommen aus [Gri00]. 1

**Abb. 1.2:** Fluß solarer Neutrinos (Einheit: cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> für monoenergetische Linien, sowie cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> MeV<sup>-1</sup> für kontinuierliche Spektren) in Abhängigkeit von ihrer Energie nach [Bah98]. Die unterschiedlichen Farbtöne zeigen die Energieschwellen der in Kapitel 1.2 beschriebenen Experimente. 2

**Abb. 1.3:** Die gestrichelten Linien zeigen die energieabhängige Überlebenswahrscheinlichkeit solarer  $\nu_e$ 's für die Parameter ( $\theta$ ,  $\Delta m^2$ ) der beiden MSW-Lösungen SMA und LMA. Zum Vergleich ist das Energiespektrum der solaren Neutrinos mit eingezeichnet (entnommen aus [BOR00]). 8

**Abb. 1.4:** Aufgrund von Vakuumoszillationen verträgliche  $\Delta m^2$ - $(\sin 2\theta)^2$ -Wertepaare unter Berücksichtigung des in den Experimenten Homestake, Gallex, SAGE und Superkamiokande gemessenen globalen Neutrinoflusses [Suz00]. Die grün gefärbten Bereiche entsprechen 95%C.L. 9

**Abb. 1.5:** Aufgrund von Materieoszillationen verträgliche  $\Delta m^2$ - $(\sin 2\theta)^2$ -Wertepaare unter Berücksichtigung des in den Experimenten Homestake, Gallex, SAGE und Superkamiokande gemessenen globalen Neutrinoflusses [Suz00]. Die grün gefärbten Bereiche entsprechen 95%C.L. SMA bedeutet Small Mixing Angle, LMA Large Mixing Angle. 10

**Abb. 2.1:** Rückstoßspektrum der <sup>7</sup>Be-Neutrinolinie von 862 keV. Die maximale Rückstoßenergie eines Elektrons beträgt 665 keV. Die gestrichelten Linien symbolisieren die Energieauflösung des Detektors. Die obere Kurve entspricht der Wechselwirkungsrate von  $\nu_e$ , die untere der von  $\nu_\mu$  oder  $\nu_\tau$  (entnommen aus [Hen99]). 12

**Abb. 2.2:** Räumlichkeiten der Halle C des Gran-Sasso-Untergrundlabors [BOR00]. Das „East-Building“ mit „Modul zero“, von dem in Kapitel 3 die Rede sein wird, befindet sich rechts neben dem mit BB gekennzeichneten „Big Building“ zwischen CTF und BOREXINO. 13

- Abb. 2.3:** Schematischer Querschnitt durch den BOREXINO-Detektor (entnommen aus [Hag00a]) 14
- Abb. 2.4:** Schematische Skizze der CTF (entnommen aus [Gri00]) 19
- Abb. 3.1:** Die beiden Buffer-Tanks des "Modul zero", die zum Zeitpunkt der Aufnahme gerade mit (roten) Heizbändern bestückt waren. Im Vordergrund oben das rechteckförmige "obere Manifold" sowie unten eine Pumpe. Links im Hintergrund deutet sich der runde Umriss eines EP-Tanks an. 22
- Abb. 3.2:** Pumpe vom Typ "Trebor Maxim 25", womit bereits der PXE-Test im Rahmen von CTF2 durchgeführt wurde 23
- Abb. 3.3:** Längsschnitt der in "Modul zero" eingebauten Säule 25
- Abb. 3.4:** Aufbau der Bodenplatte mit Filter 26
- Abb. 3.5:** Blick auf den Hauptteil des Rohrsystems sowie einiger Komponenten des "Modul zero" von der vorderen Eingangstür des "East-Buildings" aus 29
- Abb. 3.9:** "Modul zero" in Verbindung mit anderen Liquid-Handling-Komponenten des BOREXINO [Per00] 34
- Abb. 4.1:** Zerfallskette von  $^{238}\text{U}$  (entnommen aus [Gri00]) 40
- Abb. 4.2:** Schematischer Aufbau einer Chromatographieanlage zur Reinigung von Flüssigkeiten, entnommen aus [Gri00] 41
- Abb. 4.3:** Die Oberfläche von Silicagel 42
- Abb. 4.4:** Die Oberfläche eines wassergesättigten Silicagels 42
- Abb. 4.5:**  $\beta$ -Zerfall des  $^{210}\text{Bi}$  und  $\alpha$ -Zerfall des  $^{210}\text{Po}$  (entnommen aus [Gri00]) 45
- Abb. 4.6:** Simulation der Chromatographiesäule durch eine Glasspritze (entnommen aus [Gri00]) 46
- Abb. 4.7:** Meßaufbau zur Detektion der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung (entnommen aus [Gri00]) 47
- Abb. 4.8:** Vergleich des gewöhnlichen  $\beta$ -Spektrums (blau) mit der (roten) korrigierten Kurve (entnommen aus [Gri00]) 49
- Abb. 4.9:** Gemessenes Spektrum und zugehöriger Fit einer gereinigten Szintillatorprobe 50
- Abb. 4.10:** Spektrum des angereicherten Szintillators beim Versuch, eine Summe aus  $\alpha$ -Peak und korrigiertem  $\beta$ -Spektrum anzufitten 51
- Abb. 4.11:** Bestimmung der  $^{210}\text{Po}$ -Aktivität (Fläche des  $\alpha$ -Peaks) durch den Fit einer phänomenologisch ermittelten  $\beta$ -Kurve (blau) zuzüglich  $\alpha$ -Peak (rot) an das Spektrum des angereicherten Szintillators. 52

**Abb. 4.12:** Schematische Skizze benachbarter Silicagelkörner mit Zwischenräumen für eine Ansammlung von Körnern mit Radius  $R$  und  $R/2$  56

**Abb. 4.13:** Schematischer Aufbau eines Versuchs zur Messung des Szintillatorflusses durch eine Silicagelsäule 58

**Abb. 4.14:** Einfluß des Drucks  $p$  auf den Fluß  $Q$  61

**Abb. 4.15:** Einfluß der Temperatur auf den Fluß beim Szintillator PC 63

**Abb. 4.16:** Einfluß der Temperatur auf den Fluß beim Szintillator PXE 64

**Abb. 5.1:** Graphische Darstellung der Aktivitätsentwicklung  $A(t)$  durch Emanation von  $^{222}\text{Rn}$  68

**Abb. 5.2:** Schematische Darstellung der Vorgänge an einer  $\text{N}_2$ -Blase im Szintillator 71

**Abb. 5.3:** Zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Anzahl für die Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=1\text{h}$ ,  $t_2=5^{50}\text{h}$ ,  $t_3=9^{30}\text{h}$ , entsprechend der Situation beim  $1\text{m}^3$ -Füllen des PXE-Tests, CTF2 73

**Abb. 5.4:** Zeitlich integrierter Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle für die Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=1\text{h}$ ,  $t_2=5^{50}\text{h}$ ,  $t_3=9^{30}\text{h}$ , entsprechend der Situation beim  $1\text{m}^3$ -Füllen des PXE-Tests, CTF2 75

**Abb. 5.5:** Zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Anzahl für die fiktiven Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=3\text{h}$ ,  $t_2=12\text{h}$ ,  $t_3=19\text{h}$  76

**Abb. 5.6:** Zeitlich integrierter Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle für die fiktiven Parameter  $B=1,2 \text{ h}^{-1}$ ,  $R=22400 \text{ h}^{-1}$ ,  $t_1=3\text{h}$ ,  $t_2=12\text{h}$ ,  $t_3=19\text{h}$  77

**Abb. 5.7:** Simulierter zeitlicher Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Anzahl für mögliche Parameterwerte bei einer Szintillatorreinigungsaktion für BOREXINO. Angenommen werden die ungünstigere Grenze von  $B=0,96 \text{ h}^{-1}$ , die Rn-Emanationsgrenze von  $20\text{kg}$  Eka-Nobel-Silicagel  $R=79,9 \text{ h}^{-1}$ , sowie die realistischen Zeitpunkte  $t_1=1,2\text{h}$ ,  $t_2=10\text{h}$ ,  $t_3=12\text{h}$ . 79

**Abb. 5.8:** Simulierter zeitlich integrierter Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Zerfälle für mögliche Parameterwerte bei einer Szintillatorreinigungsaktion für BOREXINO. Angenommen werden die ungünstigere Grenze von  $B=0,96 \text{ h}^{-1}$ , die Rn-Emanationsgrenze von  $20\text{kg}$  Eka-Nobel-Silicagel  $R=79,9 \text{ h}^{-1}$ , sowie die realistischen Zeitpunkte  $t_1=1,2\text{h}$ ,  $t_2=10\text{h}$ ,  $t_3=12\text{h}$ . 80

**Abb. 5.9:** Auslösen von Radon aus dem Szintillator durch Blubbern mit Stickstoff 81

**Abb. 5.10:** Gesamtspektrum des angereicherten Szintillators vor Beginn des Reinigungsschrittes. Der breite Peak zwischen  $400$  und  $800 \text{ keV}$  enthält u.a. die zu zählenden  $\alpha$ -Ereignisse von  $^{214}\text{Po}$ . Sie sind teilweise überlagert von zwei weiteren  $\alpha$ -Peaks ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ), den  $\beta$ -Spektren von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  sowie dem Untergrund. 82

**Abb. 5.11:** Graphische Darstellung der gemessenen  $^{222}\text{Rn}$ -Aktivitäten in Abhängigkeit von der Reinigungszeit, mit angefitzter Exponentialfunktion 83

**Abb. 5.12:** Schematischer Aufbau der Emanationsanlage am MPI für Kernphysik in Heidelberg **85**

**Abb. 5.13:** Untergrundspektrum im Zählrohr (Kanal 250 entspricht 50 keV). Die Ereigniszahl im letzten Kanal ist in der Darstellung um 25% reduziert. Entnommen aus [Rau99]. **87**

**Abb. 5.14:** Zerfallskette von  $^{222}\text{Rn}$  **88**

**Abb. 5.15:** Radonspektrum im Zählrohr (Kanal 250 entspricht 50 keV). Die Ereigniszahl im letzten Kanal ist in der Darstellung um 93% reduziert. Entnommen aus [Rau99]. **89**

## Literaturverzeichnis

- [Ang97] Godehard Angloher, Diplomarbeit, Technische Universität München, 1997
- [Bah96] J.N.Bahcall, A.Ulmer, „The Temperature Dependence of Solar Neutrino Fluxes“, Physical Review D, 53, 4202-4225 (1996), astro-ph/9602012
- [Bah97] J.N.Bahcall, M.H.Pinsonneault, S.Basu, J.Christensen-Dalsgaard, “Are standard solar models reliable ?”, Physical Review Letters, 78, 171-174 (1997), astro-ph/9610250
- [Bah98] John Bahcall's Homepage:  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/energyspectra.html/Snviewgraphs/>
- [Bah99] E.G.Adelberger, S.M.Austin, J.N.Bahcall, “Solar Fusion Cross Sections”, INT Workshop paper on Solar Fusion reactions:  
<http://www.sns.ias.edu/~jnb/Papers/Preprints/Solarfusion/paper.ps>
- [Bal96] M.Balata et al, Nucl. Instr. and Methods A370 (1996) 605
- [BBP98] J.N.Bahcall, S.Basu, M.H.Pinsonneault, „How uncertain are solar neutrino predictions ?“, Physics Letters B, 433, 1-8 (6.8.1998), astro-ph/9805135
- [Bir64] J.B.Birks, “The Theory and Practice of Scintillation Counting”, Pergamon Press (1964)
- [BOR98a] G.Alimonti et al, BOREXINO-Kollaboration, "Ultra-low background measurements in a large volume underground detektor", Astroparticle Physics 8 (1998) 141-157
- [BOR98b] G.Alimonti et al, BOREXINO-Kollaboration, "A large-scale low background liquid scintillator detector: The Counting Test Facility at Gran Sasso", Nucl. Instr. Meth. A 406 (1998), 411
- [BOR00] G.Alimonti et al, BOREXINO-Kollaboration, wird in Astroparticle Physics veröffentlicht (2000)
- [Buc00] Christian Buck, Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg, persönliche Mitteilung (2000)
- [Cas99] V.Castellani et al, Nucl. Phys. B Proc. Suppl., 70, 301 (1999)
- [Cle97] B.T.Cleveland et al, Proceedings of the „Fourth International Solar Neutrino Conference“, Herausgeber W.Hampel, Heidelberg, 8-11.April 1997, 85
- [Dar96] A.Dar, G.Shaviv, Nucl. Phys. B Proc. Suppl., 48, 335 (1996)
- [Dav98] R.Davis et al, Astrphys. J., 495, 1 (1998)
- [Fir96] R.Firestone et al, Table of Isotopes, John Wiley & Sons, Inc., 8<sup>th</sup> Edition, 1996
- [Fuk96] Y.Fukuda et al, Phys. Rev. Lett., 77, (1996), 1683
- [Fre00] B.Freudiger, Hochempfindliche Radonmessung im  $\mu\text{Bq}$ -Bereich, DPG-Frühjahrstagung, STR 2.4, Universität Bremen, 21-24. März 2000
- [GAL99] GALLEX Collaboration, Phys. Lett. B, 447, 127 (1999)
- [Gia99] M.G.Giammarchi, Dipartimento di Fisica Universita' e INFN di Milano, "Sparging nel Tank della Storage Area", (1999)
- [Gia00] M.G.Giammarchi, Dipartimento di Fisica Universita' e INFN di Milano, persönliche Mitteilung (2000)
- [Gol97] Thomas Goldbrunner, Dissertation, Technische Universität München, 1997
- [Gri00] Christian Grieb, Diplomarbeit, Technische Universität München, 2000
- [Hag00a] Tanja Hagner, Dissertation, Technische Universität München, 2000
- [Hag00b] Tanja Hagner et al, "Muon-induced production of radioactive isotopes in scintillation detectors", Astroparticle Physics 14 (2000) 33-47
- [Hen99] Roger von Hentig, Dissertation, Technische Universität München, 1999
- [Kuc89] H.Kuchling, Taschenbuch der Physik, Verlag Harri Deutsch, 12. Auflage, 1989
- [Lar00] Bernt Larsson, Eka Nobel AB, 44580 Bohus, Schweden, persönliche Mitteilung

- [Liu93] M.Liu et al,  $^{222}\text{Rn}$  emanation into vacuum, Nucl. Instr. and Meth. in Physics Research A329 (1993) 291-298
- [LUN98] LUNA-Collaboration, „First Measurement of the  $^3\text{He}(^3\text{He},2p)^4\text{He}$  Cross Section down to the Lower Edge of the Solar Gamov Peak”, Phys. Rev. C, 57 (1998), 2700
- [Mar80] P.Marmier, "Kernphysik I", Verlag der Fachvereine Zürich (1980)
- [Mot94] T.Motobayashi et al, Phys. Rev. Lett., 73, (1994), 2680
- [Nef96] Marianne Neff, Diplomarbeit, Technische Universität München, 1996
- [Per00] L.Perasso, Genova BOREXINO page, 7.2.2000, [http://www.ge.infn.it/borexino/FluidHandling/piping\\_panel.gif](http://www.ge.infn.it/borexino/FluidHandling/piping_panel.gif)
- [Rau99] Wolfgang Rau, Dissertation, Universität Heidelberg, 1999
- [Rau00] W. Rau, G. Heusser,  $^{222}\text{Rn}$  emanation measurements at extremely low activities, Applied Radiation and Isotopes 53/1-2 (2000) 371-375
- [Res00] Elisa Resconi, Dipartimento di Fisica Università e INFN di Genova, persönliche Mitteilung (2000)
- [SAG95] T.Bowles, SAGE Colaboration, „Results of SAGE on Solar Neutrino Detection“, Proc. of “Int. School on Particles and Cosmology”, Baksan (1995)
- [SAG99] J.N.Abdurashitov, Proceedings der “XVIII. Int. Conference on Neutrino Physics and Astrophysics”, Takajama, Japan 1998, Herausgeber Y.Suzuki und Y.Totsuka, Nucl. Phys. B (Proc. Suppl.), 77, 1999
- [Sch89] H. Schade, E. Kunz, Strömungslehre, deGruyter-Verlag, 2. Auflage, 1989
- [Sch97] S.Schönert, "Probing the Solar MSW Large Mixing Angle Solution with Terrestrial Antineutrinos from European Nuclear Reactors with BOREXINO", Proc. of Topics in Astroparticle and Underground Physics TAUP97, Laboratori Nazionali del Gran Sasso, Italy, 7.-11. September 1997
- [Sch99] S.Schönert, Modul0 - Solid Column Purification System, 16.4.1999, Borexino Internal Report 99-04-01, Preliminary Version
- [Sch00] S.Schönert, Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg, persönliche Mitteilung (2000)
- [Schm97] N.Schmitz, Neutrino Physik, Teubner Verlag Stuttgart, 1997
- [Shi94] X.Shi, D.N.Schramm, D.S.Dearborn, Phys. Rev. D, 50, 2414 (1994)
- [Suz00] Y.Suzuki, XIX. International Conference on Neutrino Physics & Astrophysics, Sudbury, Canada, 16-21.Juni 2000, <http://nu2000.sno.laurentian.ca/Y.Suzuki>
- [Tur93] S.Turck-Chieze, I.Lopez, Astrophys. J., 408, 347 (1993)
- [Ung79] K.K.Unger, "porous silica, ist properties and use as support in column liquid chromatographie", Journal of Chromatographie Library, Vol.16 (1979)
- [Zuz00] G. Zuzel, Inst. of Nucl. Phys., Krakow, persönliche Mitteilung (2000)

# Danksagung

Als erstes möchte ich Prof. Franz von Feilitzsch für die Überlassung des äußerst vielseitigen Themas mit der Ermöglichung von insgesamt 11 Aufenthalten in Italien danken.

Meinem Betreuer Lothar Oberauer danke ich vor allem für die große Freiheit, die er mir während der Anfertigung der Arbeit ließ und trotz der es ihm gelang, mir das nötige Wissen zu vermitteln.

Stefan Schönert danke ich für seine nette Betreuung während der ersten "schweißtreibenden" Monate meiner Arbeit am Gran Sasso.

Caren Hagner und Marianne Neff danke ich insbesondere für die gute, freundschaftliche Zusammenarbeit an gleicher Stelle und die gemeinsamen Wochen im "Princeton-Appartement", sowie allgemein für ihre Hilfsbereitschaft.

Gunther Korschinek danke ich für das kollegiale Verhältnis bei der Weiterführung von Planungen am "Modul zero" und seinen guten Blick fürs Wesentliche.

Tanja Hagner, die mir Teile ihrer Doktorarbeit zur Verfügung stellte, danke ich für die bereitwillige Hilfe während der letzten Wochen.

Christian Grieb danke ich für seine unerschöpfliche Hilfsbereitschaft und Geduld, sowie seinen allgegenwärtigen Humor, egal was passierte.

Christian Lendvai danke ich für seine große Offenheit gegenüber fast allen Dingen, welche zu zahlreichen gemeinsamen Aktivitäten führte, die weit über das Gebiet der Physik hinausgingen.

Meinen Studienfreunden Tobias Lachenmaier, Michael Stark und Alexander Rüdig danke ich für die Begleitung während des Studiums und für alle gemeinsamen Unternehmungen während dieser Zeit.

Karl-Heinz Schuhbeck, Hannes Seidl und Alexander Wingler danke ich für das freundschaftliche Verhältnis gegen Anfang bzw. gegen Ende des Jahres.

Eckhard Kellner danke ich für seine ständige gute Laune, wenn er ins Zimmer kam.

Allen "Kryoleuten" danke ich für die freundschaftliche Atmosphäre am Lehrstuhl, sowie Jean Lanfranchi für die gelegentlichen außerplanmäßigen Kaffeepausen.

Harald Hess, Norbert Gärtner und Erich Seitz danke ich für die große Unterstützung in technischen Dingen, die freundschaftliche Zusammenarbeit am Gran Sasso, sowie die angenehmen Dialoge in der gemeinsamen Muttersprache.

Beatrice van Bellen und Alexandra Földner danke ich für die freundliche Unterstützung bei zahlreichen verwaltungstechnischen Schwierigkeiten.

Der Heidelberger Gruppe Dr. Heusser, Wolfgang Rau, Hardy Simgen und Christian Buck möchte ich für die zwei schönen und interessanten Tage in Heidelberg danken und für ihren Anteil am 5. Kapitel meiner Diplomarbeit.

Prof. Frank Calaprice danke ich für die freundliche Überlassung seines Appartements in L'Aquila, das einen unschätzbaren Beitrag zur Lebensqualität am Gran Sasso lieferte.

Augusto Goretti, Stefano Gazzana und Richard Ford danke ich für die verrückten Tage in Napoli.

Meinen Eltern danke ich vor allem für die moralische und finanzielle Unterstützung während des gesamten Studiums.