

AUFBAU UND TEST DES  
INNER-LOOP-SYSTEMS DER  
TRITIUMQUELLE VON KATRIN

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN  
bei der Fakultät für Physik des  
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl. Phys. Michael Sturm  
aus Karlsruhe

Tag der mündlichen Prüfung: 25.06.2010

Referent: Prof. Dr. G. Drexlin  
Institut für Experimentelle Kernphysik, KIT

Korreferent: Prof. Dr. Th. Müller  
Institut für Experimentelle Kernphysik, KIT



## Zusammenfassung

KATRIN untersucht spektroskopisch das Energiespektrum der beim Tritium  $\beta$ -Zerfall  ${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \bar{\nu}_e$  entstehenden Elektronen nahe dem kinematischen Endpunkt von 18,6 keV. Mit einer fensterlosen molekularen gasförmigen Tritiumquelle hoher Luminosität und einem hochauflösenden elektrostatischen Filter mit bisher unerreichter Energieauflösung  $\Delta E = 1$  eV wird KATRIN eine modellunabhängige Bestimmung der Neutrinomasse mit einer erwarteten Sensitivität von 0,2 eV (90% CL) ermöglichen. Für eine derart präzise Massenbestimmung ist insbesondere die Stabilität der Quelle bezüglich ihrer  $\beta$ -Aktivität und ihrer Isotopenreinheit ein Schlüsselparameter. Um die erforderliche Stabilität der Quelle auf 0,1% zu gewährleisten, ist eine stabile Tritiumeinspeisung in die Quelle erforderlich. Diese wird mithilfe geschlossener Tritiumkreisläufe realisiert. Dazu wurde ein spezielles Gasprozessierungssystem – das „Inner-Loop-System“ – entwickelt. Die Überwachung der Zusammensetzung des zirkulierten Gasgemisches erfolgt mithilfe von Laser-Ramanspektroskopie. Die Aufgabenstellung dieser Arbeit umfasst den Aufbau und Test des Inner-Loop-Systems der Tritiumkreisläufe von KATRIN, sowie die Implementierung der Laser-Raman-Spektroskopie in den geschlossenen Tritiumkreislauf von KATRIN.

Bei den ersten Messungen mit dem „Inner-Loop-System“ konnte die geforderte Druckstabilisierung auf 0,1% im Einlassbehälter um einen Faktor 5 übertroffen werden. Die Sensitivität der durchgeführten Laser-Raman-Messungen genügt den Anforderungen von KATRIN.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Das KATRIN-Experiment</b>	<b>13</b>
2.1	Prinzip eines Tritiumzerfallsexperimentes . . . . .	13
2.1.1	Das Tritium- $\beta$ -Spektrum und die Neutrinomasse . . . . .	13
2.1.2	Der allgemeine Aufbau . . . . .	15
2.1.3	Die Funktionsweise eines MAC-E-Filter . . . . .	16
2.1.4	Aktuelle Grenzen für die Neutrinomasse und Anforderungen an ein Tritiumzerfallsexperiment der neusten Generation . . .	17
2.2	Der Aufbau des KATRIN-Experiments . . . . .	19
2.2.1	Die Tritiumquelle . . . . .	20
2.2.2	Das Transportsystem . . . . .	23
2.2.2.1	Die differentielle Pumpstrecke DPS2-F . . . . .	23
2.2.2.2	Die kryogene Pumpstrecke CPS . . . . .	26
2.2.3	Energieanalyse und Elektronennachweis . . . . .	27
2.2.3.1	Das Spektrometersystem . . . . .	27
2.2.3.2	Der Detektor . . . . .	29
2.2.4	Das Rear-System . . . . .	30
2.3	Notwendigkeit eines stabilen Tritiumkreislaufes und einer permanen- ten Überwachung der Isotopenreinheit . . . . .	31
2.3.1	Sensitivität von KATRIN . . . . .	31
2.3.2	Wichtige quellspezifische systematische Effekte . . . . .	32
2.3.3	Folgerungen für einen stabilen Tritiumkreislauf und die Über- wachung der Isotopenreinheit . . . . .	33

<b>3 Die Tritiumkreisläufe von KATRIN</b>	<b>35</b>
3.1 Theoretische Modellierung der KATRIN-Quelle . . . . .	35
3.1.1 Realisierung des Gaseinlasses in die WGTS . . . . .	35
3.1.2 Berechnung des Gasdichteprofiles in der Quelle . . . . .	36
3.2 Das Prinzip der Tritiumkreisläufe . . . . .	39
3.2.1 Die stabilisierte Tritiumgaseinspeisung („Inner Loop“) . . . . .	39
3.2.2 Bereitstellung von Tritium hoher Reinheit („Outer-Loop“) . . . . .	40
3.3 Der experimentelle Aufbau der Tritiumkreisläufe . . . . .	42
3.3.1 Die Designkriterien für ein tritiumführendes System . . . . .	42
3.3.2 Überblick über den Aufbau der Tritiumkreisläufe . . . . .	42
3.3.3 Der Innere Tritiumkreislauf . . . . .	45
3.3.3.1 Der Innere Tritiumkreislauf in der ISS-Handschuhbox	45
3.3.3.2 Der Innere Tritiumkreislauf außerhalb der ISS-Hand-	47
schuhbox . . . . .	
3.3.4 Der Äußere Tritiumkreislauf . . . . .	47
3.3.4.1 Der Äußere Tritiumkreislauf in der ISS-Handschuhbox:	47
3.3.4.2 Der Äußere Tritiumkreislauf an der DPS2-F . . . . .	48
3.3.4.3 Der Äußere Tritiumkreislauf an der CPS . . . . .	51
3.3.5 Das Prozessleitsystem für die Tritiumkreisläufe . . . . .	51
3.4 Montage und Inbetriebnahme der Tritiumkreisläufe . . . . .	52
3.4.1 Vorgehensweise für die schrittweise Montage der Tritiumkreis-	53
läufe . . . . .	
3.4.2 Montage des Handschuhboxenteils der Tritiumkreisläufe in der	55
ISS-Box . . . . .	
3.4.3 Die Verrohrung der Anlage . . . . .	55
3.4.4 Die Inbetriebnahme des ISS-Box-Teils der Anlage . . . . .	57
3.4.5 Gewonnene Erfahrungswerte bei der Montage in Handschuh-	58
boxen . . . . .	
3.5 Erste inaktive Messungen mit dem Circulation-Loop . . . . .	62
3.5.1 Überblick über die Messungen . . . . .	62
3.5.2 Run#1: Der erste Testlauf mit Stickstoff . . . . .	63

3.5.3	Run#2: Test des Systems bei unterschiedlichen Einlassdrücken	66
3.5.4	Run#3: Die erste Messung mit Deuterium . . . . .	67
3.5.5	Run#4: Langzeittest des Circulation-Loop mit Deuterium . .	69
3.5.6	Run#5: Fortsetzung des Langzeittests . . . . .	70
3.5.7	Ergebnisse der Testmessungen . . . . .	73
3.6	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	73
<b>4</b>	<b>Laser-Raman-Spektroskopie (LARA) zur Überwachung der Isotopenreinheit der KATRIN-Tritiumquelle</b>	<b>75</b>
4.1	Motivation und physikalische Anforderungen an LARA für KATRIN .	75
4.2	LARA: Die Grundlagen . . . . .	76
4.2.1	Raman-Streuung . . . . .	76
4.2.2	Rotationsanregungen . . . . .	78
4.2.3	Schwingungsanregungen . . . . .	78
4.2.4	Rotations-Schwingungsanregungen . . . . .	80
4.2.5	Intensität des Streulichts . . . . .	81
4.3	Technische Anforderungen an LARA für KATRIN . . . . .	85
4.4	Der Aufbau des LARA-Systems . . . . .	85
4.4.1	Der optische Aufbau außerhalb der Handschuhbox: Die LARA-Box . . . . .	86
4.4.2	Die Laser-Raman-Zelle . . . . .	88
4.4.3	Der LARA-Appendix für die ISS-Box . . . . .	89
4.5	LOOPINO: Ein Testkreislauf für erste Laser-Raman-Testmessungen mit zirkulierendem Tritium am TLK . . . . .	92
4.5.1	Motivation . . . . .	92
4.5.2	Aufbau und Inbetriebnahme von LOOPINO . . . . .	92
4.5.3	Vorgesehene Messungen mit LOOPINO . . . . .	95

<b>5</b>	<b>Erste Laser-Raman-Messungen mit Tritium am TLK</b>	<b>97</b>
5.1	Überblick über die durchgeführten Messungen . . . . .	97
5.2	Ablauf einer Messung . . . . .	99
5.3	LARA-Messungen mit statischer Zelle . . . . .	101
5.3.1	LARA-Messungen mit Protium und Deuterium . . . . .	101
5.3.2	LARA-Messungen mit geringen Tritiumaktivitäten unter einem Abzug . . . . .	105
5.3.3	Diskussion der Messungen und Zusammenfassung . . . . .	108
5.4	LARA-Messungen am Testkreislauf LOOPINO . . . . .	111
5.4.1	Überblick über die Messungen . . . . .	111
5.4.2	LOOPINO-Testlauf#1 mit zirkulierendem Deuterium . . . . .	112
5.4.3	LOOPINO-Testlauf#2 mit einer niedrigtritierten Gasmischung	117
5.4.4	LOOPINO-Testlauf#3 mit einer niedrigtritierten Gasmischung	123
5.4.5	LOOPINO-Testlauf#4 mit hoher Tritiumkonzentration . . . . .	128
5.4.6	Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse . . . . .	134
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>137</b>
<b>A</b>	<b>Die sicheren Zustände</b>	<b>149</b>
A.1	Der Sichere Zustand A1 . . . . .	149
A.2	Der Sichere Zustand A2 . . . . .	149
A.3	Der Sichere Zustand A3 . . . . .	149
A.4	Der Sichere Zustand A4 . . . . .	150
A.5	Der Sichere Zustand A5 . . . . .	150
A.6	Der Sichere Zustand A6 . . . . .	150
A.7	Der Sichere Zustand A7 . . . . .	150
A.8	Der Sichere Zustand B . . . . .	150
<b>B</b>	<b>Technische Daten WGTS-Bypassrohr</b>	<b>153</b>
<b>C</b>	<b>Permeatoraktivierung</b>	<b>155</b>

<b>D</b>	<b>Modifikationen für den späteren KATRIN-Betrieb</b>	<b>157</b>
<b>E</b>	<b>Optische Justierung von LARA</b>	<b>161</b>
<b>F</b>	<b>Linienpositionen der Wasserstoffisotopologe</b>	<b>163</b>



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Die hierarchische und die degenerierte Massenskala . . . . .	8
2.1	Das Energiespektrum der Elektronen aus Tritium- $\beta$ -Zerfällen. . . . .	15
2.2	Bisherige Ergebnisse von Tritiumzerfallsexperimenten . . . . .	16
2.3	Prinzip eines MAC-E-Filters . . . . .	18
2.4	Der Aufbau von KATRIN . . . . .	19
2.5	Schematischer Aufbau der WGTS . . . . .	20
2.6	Dichteprofil in der Quelle . . . . .	21
2.7	Der KATRIN-Quellmagnetkryostat „WGTS“. . . . .	22
2.8	Das Quell- und Transportsystem von KATRIN . . . . .	23
2.9	Schnitt durch die DSP2-F . . . . .	24
2.10	Die DSP2-F bei der Ankunft am KIT . . . . .	25
2.11	Die kryogene Pumpstrecke CPS . . . . .	26
2.12	Das Spektrometersystem von KATRIN . . . . .	28
2.13	Blick in den Hauptspektrometertank von KATRIN . . . . .	28
2.14	Prototyp und 3D-Entwurf des Detektors. . . . .	30
2.15	Konzeptvorschlag des Rear-Systems. . . . .	31
3.1	Der Tritiumeinlass an der WGTS . . . . .	36
3.2	Skizze des Quellrohres . . . . .	36
3.3	Der geschlossene Tritiumkreislauf des TLK . . . . .	39
3.4	Vereinfachtes Fließbild der stabilisierten Tritiumeinspeisung. . . . .	41
3.5	Vereinfachtes schematisches Fließbild der Tritiumkreisläufe . . . . .	44

3.6	Fließbild des Circulation-Loop . . . . .	46
3.7	Fließbild der Tritiumkreisläufe an der WGTS . . . . .	47
3.8	Fließbild des Feed-Loop . . . . .	48
3.9	Fließbild des Exhaust-Loop . . . . .	49
3.10	Verfahrenstechnisches Fließbild der Tritiumkreisläufe an der DPS2-F. . . . .	50
3.11	Schaltschränke der Tritiumkreisläufe . . . . .	52
3.12	3D-Layout des ISS-Boxteils der Tritiumkreisläufe . . . . .	54
3.13	Interventionsbereich um die ISS-Box . . . . .	56
3.14	Einbauarbeiten in der Handschuhbox . . . . .	56
3.15	Der Einbau in der Handschuhbox . . . . .	61
3.16	Vereinfachtes Fließbild des Circulation-Loop . . . . .	62
3.17	Einschwingverhalten Run#1 . . . . .	64
3.18	Ergebnisse von Run#1 . . . . .	65
3.19	Funktionierende Temperaturstabilisierung auf 40°C . . . . .	67
3.20	Messwerte bei Run#3 . . . . .	68
3.21	Ergebnisse von Run#4 . . . . .	69
3.22	Histogramm Drucksensor RPM80102 bei Run#4 . . . . .	70
3.23	Ergebnisse von Run#5 . . . . .	71
3.24	Histogramm Drucksensor RPM80102 bei Run#5 . . . . .	72
4.1	Vereinfachte Darstellung der Energieniveaus zur Beschreibung der Ramanstreuung. . . . .	77
4.2	Rotation eines zweiatomigen Moleküls . . . . .	79
4.3	Energiezustände des harmonischen und des anharmonischen Oszillators . . . . .	80
4.4	Theoretisches Raman-Spektrum für T <sub>2</sub> . . . . .	83
4.5	Theoretisches Raman-Spektrum für alle Isotopologe . . . . .	84
4.6	LARA an der ISS-Handschuhbox . . . . .	86
4.7	Der Laser-Raman-Aufbau . . . . .	87
4.8	Laser-Ramanzelle . . . . .	89
4.9	Der LARA-Appendix . . . . .	91

4.10	Fließbild von LOOPINO . . . . .	93
4.11	Foto von LOOPINO . . . . .	94
5.1	Ablauf einer LARA-Messung . . . . .	99
5.2	Rohdaten der CCD . . . . .	100
5.3	Aufbereitung der mit der CCD gewonnenen Daten . . . . .	100
5.4	Spektren der inaktiven Wasserstoffisotopologe . . . . .	103
5.5	Spektren der inaktiven Wasserstoffisotopologe . . . . .	104
5.6	Spektren von tritiumhaltigen Gasmischungen . . . . .	106
5.7	Spektren von tritiumhaltigen Gasmischungen . . . . .	107
5.8	Spektrum einer evakuierten Zelle . . . . .	109
5.9	Bestimmung des Rauschens . . . . .	110
5.10	LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#1 . . . . .	114
5.11	Spektrum der evakuierten Zelle bei LOOPINO . . . . .	115
5.12	LOOPINO Run#1 . . . . .	116
5.13	LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#2 . . . . .	119
5.14	Verlauf der absoluten Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#2 . . . . .	121
5.15	Verlauf der relativen Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#2 . . . . .	122
5.16	LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#3 . . . . .	124
5.17	Verlauf der absoluten Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#3 . . . . .	126
5.18	Verlauf der relativen Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#3 . . . . .	127
5.19	LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#4 . . . . .	130
5.20	Verlauf der absoluten Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#4 . . . . .	131
5.21	Verlauf der relativen Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#4 . . . . .	132
5.22	Bestimmung der Präzision bei LOOPINO-Testlauf#4 . . . . .	133
B.1	Technische Zeichnung WGTS-Bypassrohr . . . . .	154
C.1	Vereinfachtes Fließbild des Feed-Loop . . . . .	155
C.2	Füllvorgang über den Permeator vor und nach Aktivierung der Membran. . . . .	156
D.1	Fließbild der Tritiumkreisläufe in der Handschuhbox und LOOPINO .	159
D.2	Fließbild der Tritiumkreisläufe . . . . .	160



# Tabellenverzeichnis

1.1	Die 12 fundamentalen Fermionen des Standardmodells . . . . .	4
3.1	Komponentenbezeichnungen gemäß des KATRIN-Nummerierungssystems . . . . .	43
3.2	Überblick über die durchgeführten Testläufe . . . . .	63
3.3	Run#2. Überblick über die angefahrenen Messwerte und die erzielten Genauigkeiten . . . . .	66
4.1	Auswahlregeln für die Ramanstreuung . . . . .	77
5.1	Überblick über die LARA-Messungen . . . . .	98
5.2	Überblick über die LARA-Messungen mit Protium und Deuterium . .	102
5.3	Überblick über die LARA-Messungen mit geringen Tritiumaktivitäten	105
5.4	GC-Analyse von CAPER der Gasmischungen zu Beginn der Messung	111
5.5	Intensitäten der-Q <sub>1</sub> -Ramanlinien bei Testlauf#2 . . . . .	120
5.6	Parameter der linearen Regression . . . . .	120
5.7	Intensitäten der-Q <sub>1</sub> -Ramanlinien bei Testlauf#3 . . . . .	125
5.8	Parameter der linearen Regression . . . . .	125
F.1	Werte der Konstanten $\tilde{\nu}_e$ , $B_v$ und $D_v$ . . . . .	163
F.2	Linienpositionen der S <sub>0</sub> -Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe . . . . .	164
F.3	Linienpositionen der S <sub>1</sub> -Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe . . . . .	165
F.4	Linienpositionen der Q <sub>1</sub> -Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe . . . . .	166
F.5	Linienpositionen der O <sub>1</sub> -Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe . . . . .	167
F.6	Linienpositionen tritierter Methane . . . . .	168



## Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel und Quellen verfasst habe.

Michael Sturm  
Karlsruhe, den 9. Juni 2010



# Kapitel 1

## Einleitung

Die Existenz des Neutrinos wurde 1930 von Wolfgang Pauli postuliert, da sich das kontinuierliche Energiespektrum des  $\beta$ -Zerfalls als Zweikörperproblem nicht in Einklang mit Energie- und Drehimpulserhaltung bringen lässt. Dadurch konnte der  $\beta$ -Zerfall als Dreikörperproblem beschrieben werden und der scheinbare Widerspruch zur Energie- und Drehimpulserhaltung war gelöst [Pau30].

Enrico Fermi griff diese Idee in seiner Theorie des Kern- $\beta$ -Zerfalls auf und benannte das ursprünglich von Pauli Neutron getaufte Teilchen in „Neutrino“ um. In dieser (heutigen) V-A-Theorie wird das Neutrino als masseloses Teilchen betrachtet [Fer34].

Nach Paulis Postulat sollten allerdings noch 26 Jahre vergehen, ehe 1956 Neutrinos - genauer Elektronantineutrinos - erstmals experimentell durch Reines und Cowan am Reaktor nachgewiesen werden konnten [Rei59]. Als Nachweisreaktion wurde der inverse  $\beta$ -Zerfall des Neutrons ausgenutzt:



Das Myonneutrino  $\nu_\mu$  wurde 1962 am BNL entdeckt, 2000 folgte der Nachweis des Tauneutrino  $\nu_\tau$  am DONUT-Experiment [Kod01]. Neutrinos sind elektrisch neutrale Leptonen, die weder der elektromagnetischen noch der starken Wechselwirkung unterliegen. Obwohl Neutrinos die zweithäufigsten Teilchen<sup>1</sup> im Universum sind, ist relativ wenig über sie bekannt. Ursache dafür ist ihre mit dem kleinen Wirkungsquerschnitt der schwachen Wechselwirkung verbundene schwierige experimentelle Nachweisbarkeit.

Heute sind Neutrinos Bestandteil des Standardmodells, das die vereinheitlichte Theorie der elektroschwachen Wechselwirkung und der Quantenchromodynamik umfasst.

---

<sup>1</sup>Die häufigsten Teilchen sind die Photonen mit einer Dichte von  $411/\text{cm}^3$ , die zweithäufigsten die Neutrinos mit einer Dichte von  $336/\text{cm}^3$  [Sch97].

**Tabelle 1.1: Die 12 fundamentalen Fermionen des Standardmodells.**

Familie	1	2	3
Leptonen	$\begin{pmatrix} \nu_e \\ e \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \nu_\mu \\ \mu \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \nu_\tau \\ \tau \end{pmatrix}$
Quarks	$\begin{pmatrix} u \\ d \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} c \\ s \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} t \\ b \end{pmatrix}$

Im Standardmodell gibt es - neben den Austauschbosonen - Quarks und Leptonen als elementare Fermionen. Diese werden in drei „Familien“ oder „Generationen“ angeordnet. Der Partner des  $\nu_e$  ist das Elektron, der des  $\nu_\mu$  das Myon und der des  $\nu_\tau$  das Tauon. Zu jedem Fermion gibt es das entsprechende Antifermion mit gleicher Masse, aber entgegengesetzter Ladung, Farbe und dritter Komponente des schwachen Isospins. Tabelle 1.1 gibt einen Überblick über die 12 fundamentalen Fermionen.

### Was sind Quellen der Neutrinos?

- **Solare Neutrinos:** Bei dem in der Sonne stattfindenden Fusionsprozess entstehen eine Vielzahl Neutrinos unterschiedlicher Energien. Die Nettoreaktion lautet:



Dabei wird eine Energie von 26,73 MeV frei, wobei im Mittel 0,6 MeV auf die Neutrinos entfallen [Ams08].

- **Primordiale Neutrinos:** Als primordiale Neutrinos werden die im thermodynamischen Gleichgewicht des Urknalls entstandenen Neutrinos bezeichnet. Die primordialen Neutrinos sind mit einer Dichte von  $336/\text{cm}^3$  nach den Photonen die zweithäufigsten Teilchen im Universum. Sie besitzen Energien im Bereich  $10^{-6}$  bis  $10^{-3}$  eV [Sch06].
- **Atmosphärische Neutrinos** Atmosphärische Neutrinos entstehen beim Zerfall von Pionen und Kaonen, welche durch Wechselwirkung von kosmischer Strahlung in der Erdatmosphäre erzeugt werden. Dabei entstehen myonische und elektronische Neutrinos im Verhältnis 2:1 mit Energien im Bereich einige MeV bis hin zu  $10^6$  GeV bei einem Maximum von 100 MeV [Sch97].
- **Neutrinos aus Supernovae:** Zunächst fusioniert der Stern in der Phase des Wasserstoffbrennens Millionen bzw. Milliarden Jahre lang Wasserstoff zu Helium. Neigt sich im Sterninneren eine Brennphase ihrem Ende zu, weil der nukleare Brennstoff nahezu aufgebraucht ist, sinkt der Strahlungsdruck und

das Plasma wird durch die Gravitation verdichtet. Dichte und Temperatur steigen an und die nächste Stufe der Kernfusion startet. Das führt zu einem Schalenbau des Sterns: während im Inneren schon die Fusion schwerer Elemente beginnt, fusionieren in den äußeren Schalen noch die leichten Elemente. Auf das Wasserstoffbrennen folgen Helium-, Kohlenstoff- und Siliziumbrennen. Letzten Endes entstehen Nickel und Eisen, welche die größte Bindungsenergie pro Nukleon besitzen. Weder durch Fusion noch Spaltprozesse kann weitere Energie gewonnen werden.

Der Strahlungsdruck im Stern nimmt ab. Die äußeren Hüllen beginnen auf den Eisenkern zu stürzen. Durch Dissoziation von Eisenkernen und Elektroneneinfang an freien Protonen (Deleptonisierung) werden Neutrinos emittiert, die ungehindert entweichen und den Kern kühlen [APP07]. In der heißen Phase des Kollaps bilden thermische Photonen Elektron-Positron-Paare, die über ein virtuelles  $Z_0$  in Neutrino-Antineutrino-Paare zerfallen und Energie aus dem Kern heraustransportieren. Der gesamte Neutrinoburst umfasste bei der Supernova SN1987A  $10^{58}$  Neutrinos, selbst auf der Erde war über einen kurzen Zeitraum der Neutrinofluss aus der Supernova mit dem aus der Sonne vergleichbar [Pag08].

- **Künstliche Neutrinoquellen:** In Kernreaktoren entstehen Elektronantineutrinos beim  $\beta^-$ -Zerfall von Spaltprodukten mit Neutronenüberschuss. Im Schnitt entstehen pro Kernspaltung 6 Neutrinos mit Energien im Bereich 1-10 MeV.

In Beschleunigern wird typischerweise ein Protonenstrahl auf ein Target leichter Kerne geschossen. Dabei entstehen Pionen und Kaonen. Diese Teilchen werden entsprechend ihrer Ladung getrennt und in einen Zerfallstunnel geleitet. Dort zerfallen sie in Myonen und myonische Neutrinos [Sch97].

- **Geoneutrinos:** Neutrinos entstehen auch durch die natürliche Radioaktivität. Insbesondere die Zerfallsreihen der in der Erde vorhandenen Isotope  $^{238}_{92}\text{U}$ ,  $^{232}_{90}\text{Th}$  und  $^{40}_{19}\text{K}$  beinhalten  $\beta$ -Zerfälle, bei denen Antineutrinos erzeugt werden. Mit diesen sogenannten Geoneutrinos können Informationen über das Erdinnere gewonnen werden.

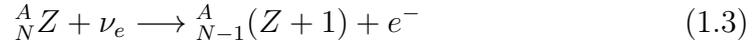
## Woher wissen wir, dass Neutrinos eine Masse haben?

Das Standardmodell der Teilchenphysik ging bis vor kurzem davon aus, dass Neutrinos masselose Teilchen sind. Experimentell gewonnene Daten waren damit verträglich. Hingegen ermöglicht eine nichtverschwindende Neutrinomasse Neutrinooszillationen. Diese Idee wurde erstmals 1958 von Pontecorvo entwickelt [Pon58].

Erste experimentelle Anzeichen einer nichtverschwindenden Neutrinomasse lieferten Experimente, die den Fluss der solaren Neutrinos auf die Erde untersuchten:

- Das Homestake-Experiment, Gallex/GNO sowie SAGE maßen ein Defizit der solaren  $\nu_e$  um einem Faktor 2-3 [Dav94, Ham99, Alt00, Abd04]. Zum Nachweis

wurde der Neutrinoeinfang verwendet:



Diese radiochemischen Experimente können nur Elektronneutrinos  $\nu_e$  nachweisen.

- Die Kamiokande-Experimente (Kamiokande I-III und Super-Kamiokande) weisen Neutrinos über die elastische Neutrino-Elektronstreuung nach [Fuk96]<sup>2</sup>:

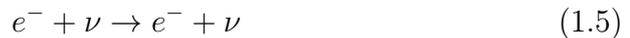


Nachgewiesen wird die von den rückgestoßenen Elektronen ausgesandte Cherenkov-Strahlung. Ein Vorteil eines Cherenkov-Experiments gegenüber radiochemischen Experimenten ist, dass Energie und Richtung der nachgewiesenen Neutrinos rekonstruierbar sind. So ist sichergestellt, dass die nachgewiesenen Neutrinos aus der Richtung der Sonne kommen [Fuk96, Fuk99]. Mit dem (Super-)Kamiokande-Experiment wurden nur etwa 40% des erwarteten Flusses der solaren Elektronneutrinos nachgewiesen.

Die Lösung dieses „solaren Neutrinoproblems“ erfolgte durch neuere Experimente:

- Das SNO-Experiment (**S**udbury **N**eutrino **O**bservatory) benutzte 1000 t schweres Wasser D<sub>2</sub>O als Target, das in einem Acryltank eingefasst ist. In schwerem Wasser ist der Nachweis von Neutrinos durch drei unterschiedliche Reaktionen möglich [SNO02]:

1. Elektron-Neutrino-Streuung (elastic scattering (es))



2. geladene schwache Ströme (charged current (cc))



3. neutrale schwache Ströme (neutral current (nc))



Die ersten beiden Nachweisreaktionen sind nur empfindlich auf Elektronneutrinos. Diese bestätigten das Defizit der Elektronneutrinos. Die Nachweisreaktion über neutrale schwache Ströme hingegen ist empfindlich auf alle drei Neutrino flavors. Mit dieser Reaktion wurde nachgewiesen, dass der nachgewiesene Gesamtfluss der solaren Neutrinos auf die Erde in Übereinstimmung mit dem anhand des Standardsonnenmodells vorhergesagten Fluss ist [SNO02].

---

<sup>2</sup>Prinzipiell werden mit der elastischen Neutrino-Streuung alle drei Neutrino flavors nachgewiesen. Der Wirkungsquerschnitt für die Streuung von  $\nu_\tau$  bzw.  $\nu_\mu$  an Elektronen ist jedoch um einen Faktor 7 kleiner als für die Streuung von  $\nu_e$  an Elektronen, so dass effektiv nur Elektronneutrinos nachgewiesen werden.

- Das in Japan befindliche KamLAND-Experiment (**K**amioka **L**iquid scintillator **A**nti-**N**eutrino **D**etector) weist Elektronantineutrinos aus Kernreaktoren nach. Als Nachweisreaktion dient hier der inverse  $\beta$ -Zerfall:

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow n + e^+ \quad (1.8)$$

KamLAND weist ebenfalls weniger Elektronantineutrinos nach als erwartet [Egu03].

Durch den experimentellen Nachweis der Existenz von Neutrinooszillationen ist belegt, dass Neutrinos unterschiedliche Massen besitzen und somit nicht alle Massen verschwindend sind [Ams08]. Neutrinooszillationen lassen sich im Modell dadurch erklären, dass die Flavoreigenzustände  $|\nu_\alpha\rangle$  mit  $\alpha = e, \mu, \tau$  nicht identisch mit dem Masseneigenzuständen  $|\nu_i\rangle$  mit  $i = 1, 2, 3$  sind. Sie sind durch eine unitäre Transformation miteinander verknüpft. Formal lässt sich die leptonische Mischung analog zur CKM-Mischung im Quarksektor aufstellen [Sch97]:

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}^* |\nu_i\rangle \quad (1.9)$$

bzw.

$$|\nu_i\rangle = \sum_\alpha U_{\alpha i} |\nu_\alpha\rangle \quad (1.10)$$

Dabei ist  $U$  die sogenannte leptonische Mischungsmatrix. Neutrinooszillationsexperimente können nur die Differenz der Massenquadrate  $\Delta m^2 = |m_i^2 - m_j^2|$  bestimmen. Eine Aussage über die absolute Massenskala ist mit Hilfe der Differenzen  $\Delta m^2$  nicht möglich.

Die aktuellen Ergebnisse aus den Oszillationsexperimenten für die Differenz der Massenquadrate lauten [Ams08]:

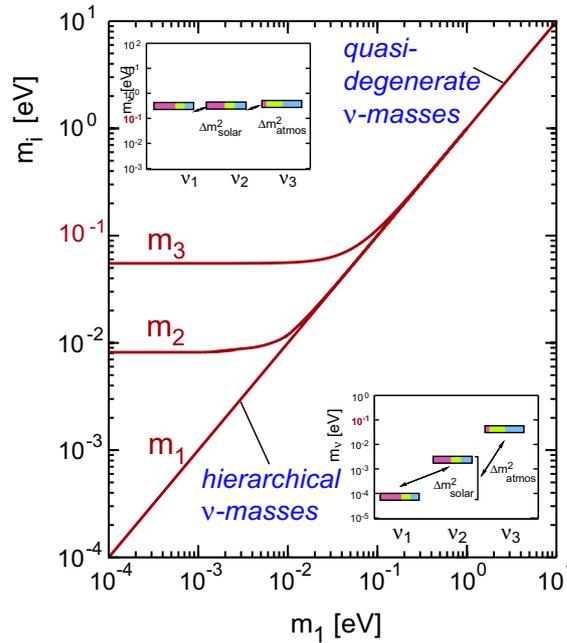
$$\Delta m_{12} = \Delta m_{\text{solar}}^2 = (8, 0_{-0,4}^{+0,6}) \cdot 10^{-5} \text{ eV}^2/\text{c}^4 \quad (1.11)$$

sowie

$$1,9 \cdot 10^{-3} \text{ eV}^2/\text{c}^4 < \Delta m_{23}^2 < 3,0 \cdot 10^{-3} \text{ eV}^2/\text{c}^4 \quad (90\% \text{ C.L.}) \quad (1.12)$$

Die theoretischen Untersuchungen zur Generierung von Neutrinomassen liefern zwei unterschiedliche Massenmodelle, die in Abbildung 1.1 dargestellt sind [Fuk03, Alt03]:

- Die hierarchische Massenskala: Für die Massen gilt:  $m_1 \ll m_2 \ll m_3$ . Die Massen sind hierarchisch angeordnet und relativ klein ( $< 0,2 \text{ eV}/\text{c}^2$ ).
- Die quasi-degenerierte Massenskala: Für die Massen gilt:  $m_1 \approx m_2 \approx m_3$ . Die Massen liegen im Bereich  $0,2 - 2 \text{ eV}/\text{c}^2$ .



**Abbildung 1.1:** Die hierarchische und die degenerierte Massenskala von Neutrinos ([KAT04]). Dargestellt sind die Werte der drei Neutrinomassen  $m_1$ ,  $m_2$  und  $m_3$  als Funktion der leichtesten Masse  $m_1$ .

### Warum sind Neutrinomassen so interessant?

Im Standardmodell der Teilchenphysik erhalten die geladenen Fermionen Masse durch Yukawa-Kopplung an das Higgs-Feld. Die Massen selber werden durch das Standardmodell nicht vorhergesagt, sie sind freie Parameter, die experimentell bestimmt werden müssen.

Eine nichtverschwindende Neutrinomasse ist ein klares Anzeichen für Physik jenseits des Standardmodells. Es gibt eine Vielzahl theoretischer Modelle, die erklären, wie Neutrinos ihre Masse erhalten. Abhängig von der Größe der Neutrinomasse und ihrer Hierarchie können einige dieser Modelle untermauert und andere widerlegt werden. Die Kenntnis der Neutrinomasse ist von enormer Wichtigkeit für das Verständnis darüber, wie Fermionen ihre Masse erhalten, insbesondere deshalb, weil Neutrinos um einen Faktor  $> 10^5$  leichter sind, wie alle anderen elementaren Fermionen.

Neutrinos spielen in astrophysikalischen und kosmologischen Prozessen eine fundamentale Rolle (beispielsweise bei Supernovae). Es gibt etwa eine Milliarde mal mehr Neutrinos als Baryonen als Überbleibsel des Urknalls. Sie könnten in der Entwicklung großräumiger Strukturen im Universum als heiße dunkle Materie eine wichtige Rolle gespielt haben.

In jedem Fall haben die Neutrinos abhängig von der Größe ihrer Masse, die Strukturbildung im frühen Universum beeinflusst. Das manifestiert sich heute in der Verteilung von Galaxienhaufen. Je kleiner die Neutrinomasse ist, umso feinere Strukturen

konnten sich ausbilden.

### Wie kann man die Neutrinomasse bestimmen?

Die Bestimmung der absoluten Masse der Neutrinos kann über direkte oder indirekte Messprinzipien erfolgen. Die direkten Methoden kommen ohne weitere Modellannahmen aus, während die indirekten modellabhängig sind.

#### Indirekte Methoden umfassen:

- **Kosmologische Abschätzungen:** Massive Neutrinos beeinflussen die Bildung von Strukturen im Universum und wirken sich auf das Spektrum der 2,7 K Hintergrundstrahlung, sowie die Verteilung von Galaxien aus. Der Rückschluss von experimentellen Daten auf die Neutrinomasse durch kosmologische Beobachtungen ist möglich und sehr sensitiv, aber auch sehr modellabhängig. Die Kosmische Hintergrundstrahlung wurde mit WMAP vermessen [Hin08]. Aus diesen Daten kann eine Obergrenze für die Summe der Neutrinomassen bestimmt werden [Fuk06]:

$$\sum m_\nu < 2,0 \text{ eV}/c^2 \quad (1.13)$$

Eine Analyse, die zusätzlich Daten von Supernovae Typ Ia und großräumige Strukturen mitberücksichtigt, gibt folgende Obergrenze an [Han06]:

$$\sum m_\nu < 0,62 \text{ eV}/c^2 \quad (1.14)$$

Es sei an dieser Stelle betont, dass abhängig von den zugrundeliegenden Modellen Neutrinomassen im Bereich  $< 0,1 \text{ eV}$  bis  $2 \text{ eV}$  ermittelt werden.

- **Neutrinoloser Doppel- $\beta$ -Zerfall:** Der Doppel- $\beta$ -Zerfall ist ein Übergang zwischen Kernen gleicher Massenzahl  $A$ , der die Kernladung  $Z$  um zwei Einheiten ändert. Er wird nur beobachtet, wenn der einfache  $\beta$ -Zerfall energetisch nicht möglich ist. Der Doppel- $\beta$ -Zerfall kann sowohl als Doppel- $\beta^+$ - als auch als Doppel- $\beta^-$ -Zerfall auftreten. Im Folgenden wird zur Vereinfachung nur der Doppel- $\beta^-$ -Zerfall betrachtet. Der Zerfall kann unter Aussendung von zwei Elektronantineutrinos erfolgen, bei dem die Leptonenzahl  $L$  erhalten ist ( $2\nu\beta\beta$ ):

$$(A, Z) \longrightarrow (A, Z + 2) + 2 e^- + 2 \bar{\nu}_e \quad (1.15)$$

Im Gegensatz dazu verletzt der neutrinolose Doppel- $\beta$ -Zerfall ( $0\nu\beta\beta$ )

$$(A, Z) \longrightarrow (A, Z + 2) + 2 e^- \quad (1.16)$$

die Leptonenzahl  $L$  um zwei Einheiten ( $\Delta L = 2$ ). Der neutrinolose Doppel- $\beta$ -Zerfall ist nur unter folgenden Annahmen möglich:

1. Das Neutrino muss sein eigenes Antiteilchen sein ( $\nu = \bar{\nu}$ ). Neutrinos müssen daher bei Beobachtung des neutrinolosen Doppel- $\beta$ -Zerfalls Majorana-Teilchen sein.
2. Die beiden beim neutrinolosen Doppel- $\beta$ -Zerfall virtuell ausgetauschten Neutrinos müssen eine gemischte Helizität besitzen, da das Neutrino am ersten Zerfallsvertex als linkshändiges Teilchen emittiert und am zweiten als rechtshändiges Teilchen absorbiert wird. Dies ist nur für massebehaftete Neutrinos möglich.

Der neutrinolose Doppel- $\beta$ -Zerfall unterscheidet sich vom „klassischen“ Doppel- $\beta$ -Zerfall (Gleichung 1.15) durch die Form des Gesamtenergiespektrums der beim Zerfall entstehenden  $\beta$ -Elektronen. Wird der neutrinolose Doppel- $\beta$ -Zerfall beobachtet, kann die Neutrinomasse aus der gemessenen Halbwertszeit bei bekanntem Kernmatrixelement bestimmt werden. Wird der neutrinolose Doppel- $\beta$ -Zerfall nicht beobachtet, so kann man zumindest eine Obergrenze für die Neutrinomasse angeben, allerdings unter der Annahme, dass Neutrinos Majorana-Teilchen sind. Das Heidelberg-Moskau-Experiment meldete die Beobachtung des neutrinolosen Doppel- $\beta$ -Zerfall von  $^{76}\text{Ge}$  mit einem Konfidenzgehalt von  $4,2\sigma$  und damit eine Neutrinomasse von [Kla04]:

$$m_{\nu_e} = 0,39 \text{ eV}/c^2 \quad (95\% \text{ C.L.}) \quad (1.17)$$

Dieses Resultat konnte bis jetzt jedoch nicht von anderen Gruppen bestätigt werden, zukünftige Experimente wie GERDA und EXO-200 streben eine Überprüfung dieses bisher umstrittenen Resultats an.

### Direkte Methoden zur Bestimmung der Neutrinomasse sind:

- **Flugzeitmessungen:** Beim Prinzip der Flugzeitmessung wird die Zeit gemessen, die Neutrinos einer bestimmten Energie zum Zurücklegen einer bestimmten Weglänge benötigen. Daraus kann dann die Masse bestimmt werden. Voraussetzung dafür ist die Gültigkeit der relativistischen Energie-Impuls-Beziehung

$$E^2 = p^2 c^2 + m^2 c^4 \quad (1.18)$$

Bei der Supernova SN1987A konnte eine solche Messung erstmals durchgeführt werden. Als obere Grenze für die Masse des Elektronneutrinos konnte so ein Wert von  $m_\nu < 5,7 \text{ eV}$  (95% C.L.) ermittelt werden [Ams08]. Eine Hauptunsicherheit dabei ist die unbekanntes Verteilung der Startzeitpunkte der Neutrinos.

- **Untersuchung der Kinematik schwacher Zerfälle:** Bei der Untersuchung der Kinematik schwacher Zerfälle werden die geladenen Zerfallsprodukte gemessen.

Zur Bestimmung der Masse des Myonneutrinos  $\nu_\mu$  wurde der Pionzerfall am PSI<sup>3</sup> untersucht:

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu \quad \text{oder} \quad \pi^- \rightarrow \mu^- + \bar{\nu}_\mu \quad (1.19)$$

Zur Bestimmung der Masse des  $\tau$ -Neutrinos  $\nu_\tau$  wurde der Zerfall des  $\tau$ -Teilchens in 5 Pionen und  $\nu_\tau$  am LEP<sup>4</sup> untersucht. Diese Untersuchungen ergaben folgende Obergrenzen für die Masse des Myonneutrinos, bzw. des Tauneutrinos [Ams08]:

$$m_{\nu_\tau} < 18,2 \text{ MeV}/c^2 \quad (95\% \text{ C.L.}) \quad (1.20)$$

$$m_{\nu_\mu} < 190 \text{ keV}/c^2 \quad (90\% \text{ C.L.}) \quad (1.21)$$

Untersuchungen schwacher  $\beta$ -Zerfälle (z.B. Tritiumzerfall) ermöglichen die Bestimmung der Masse des Elektronneutrinos. Durch die Resultate der Oszillationsexperimente ist eine direkte Bestimmung der Masse von  $\nu_\mu$  und  $\nu_\tau$  nicht nötig, da durch die Bestimmung der Masse des Elektronantineutrinos die allgemeine Massenskala festgelegt wird.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 wird das KATRIN-Experiment vorgestellt. Anschließend werden in Kapitel 3 die Tritiumkreisläufe von KATRIN, deren Aufbau, sowie erste Testmessungen beschrieben. Kapitel 4 beschäftigt sich mit dem Laser-Raman-Aufbau zur Überwachung der Isotopenzusammensetzung des in die Quelle eingespeisten Gasgemisches. Die Ergebnisse der Laser-Ramanmessungen im Tritiumlabor Karlsruhe werden in Kapitel 5 präsentiert.

Den Abschluss bildet die Zusammenfassung der Ergebnisse und ein Ausblick auf weitere Messungen in Kapitel 6.

---

<sup>3</sup>Paul Scherrer Institut

<sup>4</sup>Large Electron-Positron Collider, CERN



# Kapitel 2

## Das KATRIN-Experiment

Das vorliegende Kapitel gibt einen Überblick über Tritiumzerfallsexperimente und insbesondere über das KATRIN-Experiment (**K**arlsruher **T**ritium **N**eutrino-**E**xperiment). In Abschnitt 2.1 wird eine Einführung in die Physik und Technik von Tritiumzerfallsexperimenten zur Bestimmung der Neutrinomasse gegeben und der allgemeine Aufbau eines Tritiumzerfallsexperimentes vorgestellt. In Abschnitt 2.2 werden der experimentelle Aufbau und die Anforderungen an das im Aufbau befindliche KATRIN-Experiment beschrieben.

### 2.1 Prinzip eines Tritiumzerfallsexperimentes

#### 2.1.1 Das Tritium- $\beta$ -Spektrum und die Neutrinomasse

Die Präzisionsmessung der Kinematik schwacher Zerfälle ermöglicht eine modellunabhängige direkte Massenbestimmung des Elektronantineutrinos. Besonders gut dazu geeignet ist der  $\beta$ -Zerfall von Tritium ( ${}^3\text{H}$ ):



Die Vorteile der Verwendung von Tritium als  $\beta$ -Strahler sind:

- Tritium besitzt die zweitniedrigste Endpunktsenergie von  $E_0 = 18,6$  keV. Der relative Anteil der Elektronen mit Energien unmittelbar unter dem Endpunkt des Spektrums ist verhältnismäßig hoch.
- Tritium besitzt eine kurze Halbwertszeit von 12,3 Jahren und somit eine hohe spezifische Aktivität.
- Das Wasserstoffisotop  ${}^3\text{H}$  und sein Tochterkern  ${}^3\text{He}^+$  verfügen über eine einfache Elektronenkonfiguration in der Hülle. Eine exakte Berechnung des Spektrums ist möglich.

- Der Tritiumzerfall ist ein übererlaubter Übergang.

Die Bestimmung der Masse des Elektronantineutrinos erfolgt durch die Vermessung des Verlaufs des Energiespektrums der beim Zerfall entstehenden Elektronen. Ihr Energiespektrum lässt sich theoretisch mit Fermi's Goldener Regel berechnen [Wei03]:

$$\frac{d^2 N}{dt dE} = A \cdot F(E, Z + 1) p(E + m_e) (E_0 - E) \sqrt{(E_0 - E)^2 - m_\nu^2} \Theta(E_0 - E - m_\nu) \quad (2.2)$$

Dabei bezeichnet  $E$  die kinetische Energie des Elektrons,  $m_e$  die Masse des Elektrons,  $p$  den Impuls des Elektrons und  $m_\nu$  die Masse des Elektronantineutrinos.  $E_0$  bezeichnet die Endpunktsenergie. Die Fermifunktion  $F(E, Z + 1)$  berücksichtigt die Coulombwechselwirkung der Elektronen im Endzustand. Die Stufenfunktion  $\Theta(E_0 - E - m_\nu c^2)$  berücksichtigt, dass ein Neutrino nur dann erzeugt werden kann, wenn die verfügbare Energie größer als seine Ruhemasse ist. Die Konstante  $A$  ist gegeben durch:

$$A = \frac{G_F^2}{2\pi^3 \hbar^7} \cos^2 \theta_C |M_{had}^2| \quad (2.3)$$

Dabei bezeichnet  $G_F$  die Fermikonstante,  $\theta_C$  den Cabibbowinkel und  $M_{had}$  das hadronische Übergangsmatrixelement.

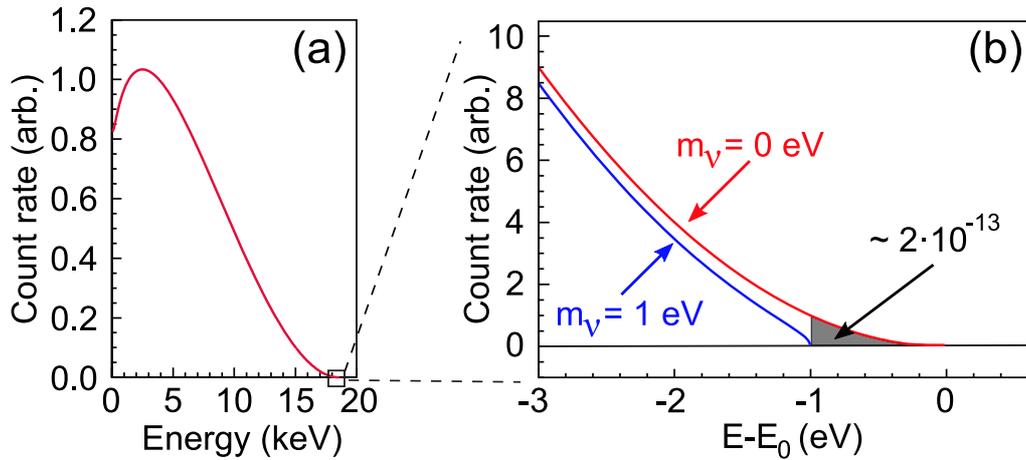
Zusätzlich muss noch berücksichtigt werden, dass sich das Hüllenelektron des entstehenden  ${}^3\text{He}^+$ -Ions in einem angeregten Zustand befinden kann. Die Form des Spektrums ist daher eine gewichtete Summe der Einzelspektren 2.2 mit unterschiedlichen Endpunktsenergien. Das Energiespektrum lautet daher:

$$\begin{aligned} \frac{d^2 N}{dt dE} = & A \cdot F(E, Z + 1) p(E + m_e) \\ & \times \sum_i W_i (E_i - E) \sqrt{(E_i - E)^2 - m_\nu^2} \Theta(E_i - E - m_\nu) \quad (2.4) \end{aligned}$$

Dabei ist  $W_i$  die Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron in einem angeregten Zustand mit Anregungsenergie  $V_i$  endet.  $E_i = E_0 - V_i$  bezeichnet die Endpunktsenergie der Zerfälle in die angeregten Zustände. Weitere Effekte (Rotation, Vibration) entstehen beim Zerfall molekularen Tritiums.

Die Fermi-Funktion  $F(E, Z + 1)$  und das Matrixelement  $M_{had}$  hängen nicht von der Neutrinomasse  $m_\nu$  ab.  $M_{had}$  ist zudem unabhängig von der Energie  $E$ , da der Tritiumzerfall übererlaubt ist. Der Einfluss des Massenquadrats der Neutrinomasse  $m_\nu^2$  auf die Form des  $\beta$ -Spektrums macht sich nur nahe an dessen Endpunkt bei  $E \approx E_0$  bemerkbar. Hier ist die Zählrate extrem klein. Bei Tritium liegt nur ein Bruchteil von  $10^{-10}$  aller Zerfälle im Intervall der letzten 10 eV unterhalb der Endpunktsenergie.

In Abbildung 2.1 ist der Einfluss einer nichtverschwindenden Neutrinomasse auf die Form des Spektrums dargestellt. Tritiumzerfallsexperimente zur Bestimmung der Neutrinomasse benötigen daher sowohl eine starke Tritiumquelle als auch ein Spektrometer mit einer sehr guten Auflösung (im eV-Bereich).



**Abbildung 2.1: Das Energiespektrum der Elektronen aus Tritium- $\beta$ -Zerfällen.** In (a) dargestellt ist das komplette Energiespektrum der Elektronen aus Tritium- $\beta$ -Zerfällen. In (b) ist der Verlauf des Spektrums für eine verschwindende Neutrinomasse  $m_\nu = 0$  eV und für eine Neutrinomasse  $m_\nu = 1$  eV dargestellt. Die Neutrinomasse beeinflusst die Form des Spektrums knapp unterhalb der Endpunktsenergie  $E_0$ .

### 2.1.2 Der allgemeine Aufbau

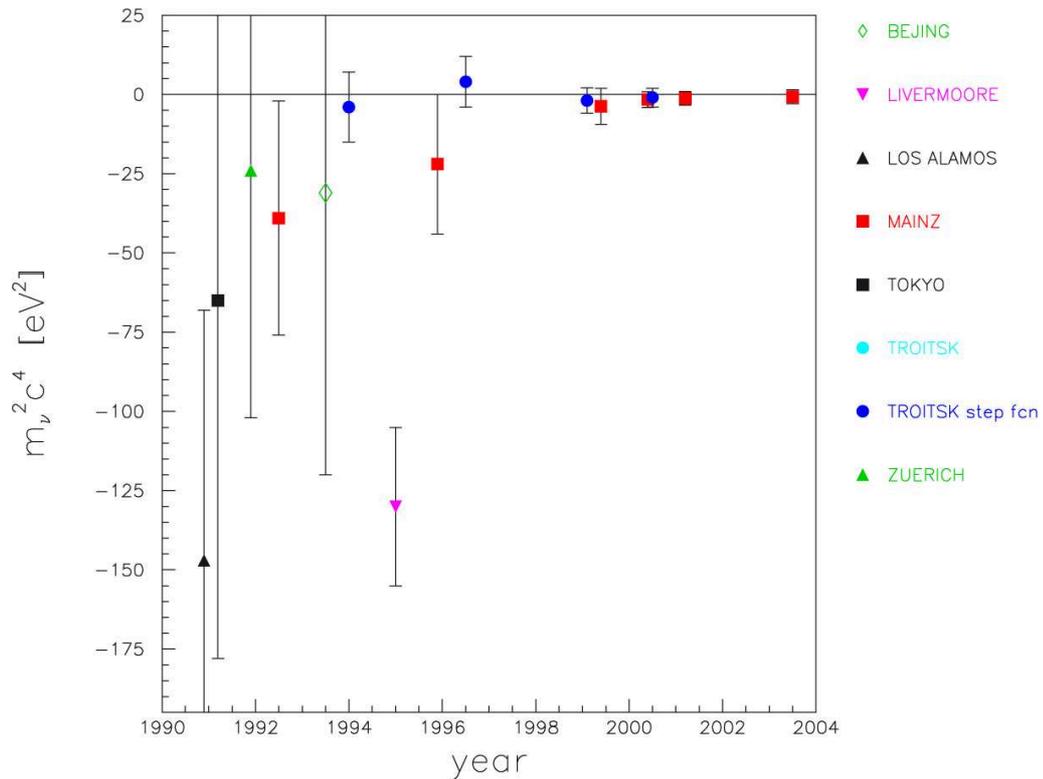
Die Tritiumzerfallsexperimente der letzten Generation haben prinzipiell alle den gleichen Aufbau. Sie bestehen aus vier Hauptkomponenten:

- Eine Tritiumquelle, die die Zerfallselektronen bereitstellt.
- Ein Transportsystem, das einerseits für den Transport der Zerfallselektronen in das Spektrometer zuständig ist und andererseits verhindert, dass Tritium in das Spektrometer gelangt.
- Ein Spektrometer, das als Energiefilter fungiert.
- Ein Detektor, der die Elektronen zählt, die das Spektrometer passiert haben.

Die vier Hauptkomponenten werden im Abschnitt 2.2 am Beispiel des KATRIN-Experiments näher erläutert.

Abbildung 2.2 gibt einen Überblick über die Ergebnisse einer Reihe bereits durchgeführter Tritiumzerfallsexperimente. Die Steigerung der Sensitivität der Tritiumzerfallsexperimente in Mainz und Troizk konnte nur durch die Verwendung eines sogenannten MAC-E-Filters<sup>1</sup> als Spektrometer erreicht werden.

<sup>1</sup>Magnetic Adiabatic Collimation with an Electrostatic Filter



**Abbildung 2.2: Bisherige Ergebnisse von Tritiumzerfallsexperimenten ([KAT04]).** Dargestellt sind die Resultate vergangener Tritiumzerfallsexperimente auf die Observable  $m_\nu^2 c^4$ . Bei den Experimenten in Livermoore, Los Alamos, Tokyo und Zürich wurden magnetische Spektrometer verwendet. In Mainz und Troitzk wurde mit elektrostatischen Spektrometern (MAC-E-Filter) gemessen. Zu sehen ist, dass viele der bisherigen Experimente einen negativen Wert für das Quadrat der Masse der Neutrinomasse ermittelten. Dieses Problem der „negativen Massenquadrate“ wurde durch besseres Verständnis systematischer Effekte und bessere experimentelle Aufbauten gelöst.

### 2.1.3 Die Funktionsweise eines MAC-E-Filter

Bei den Experimenten in Mainz und Troitzk kam ein neuer Typ von elektrostatischen Spektrometern zum Einsatz: das MAC-E-Filter ([Lob85], [Bac88], [Bon99]). Ein MAC-E-Filter zeichnet sich durch eine hohe Raumwinkelakzeptanz und eine hohe Energieauflösung aus.

In Abbildung 2.3 ist schematisch ein MAC-E-Filter dargestellt. Zwei Magnete erzeugen ein inhomogenes Führungsmagnetfeld für die Elektronen. Elektronen, die aus der Quelle links in den rechten Halbraum emittiert werden, werden auf Zyklotronbahnen um die magnetischen Flusslinien geführt und in die Mitte des Spektrometers geleitet. Der akzeptierte Raumwinkel beträgt dabei maximal  $2\pi$ . Die Stärke des Magnetfeldes nimmt dabei bis zur Mitte des MAC-E-Filters (Analyseebene) um mehrere Grö-

benordnungen ab. Die magnetische Gradientenkraft  $\vec{F}_{\nabla} = \vec{\nabla}(\vec{\mu} \cdot \vec{B})$  wirkt auf das Elektron und wandelt fast die gesamte Zyklotronenergie  $E_{\perp}$  in longitudinale Bewegungsenergie um. Elektronen bewegen sich in der Analysierebene nahezu parallel zu den magnetischen Flusslinien und können daher durch ein paralleles elektrisches Gegenfeld energetisch analysiert werden. In der Abbildung ist die Transformation durch einen Impulsvektor dargestellt. Da sich das magnetische Feld über einen Zyklotronumlauf nur langsam ändert, ist eine adiabatische Transformation des Impulsvektors gewährleistet. Das magnetische Moment

$$\mu = \frac{E_{\perp}}{B} \quad (2.5)$$

ist erhalten.<sup>2</sup>

Die Elektroden erzeugen ein elektrisches Gegenfeld. Elektronen, deren longitudinale Energie kleiner als der durch die Elektroden erzeugte Potentialberg ist, werden reflektiert. Elektronen, deren Energie größer als der Potentialberg ist, werden hinter der Analysierebene wieder beschleunigt und zum Detektor geführt.

Das MAC-E-Filter arbeitet als integrierender Energiehochpassfilter. Die relative Schärfe des Filters  $\Delta E/E$  wird durch die maximale Stärke des Magnetfelds  $B_{max}$  und die Stärke des Magnetfelds in der Analysierebene  $B_{min}$  festgelegt:

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{B_{min}}{B_{max}} \quad (2.6)$$

Das (integrale) Energiespektrum der Elektronen kann durch schrittweise Änderung der Filterenergie gemessen werden.

### 2.1.4 Aktuelle Grenzen für die Neutrinomasse und Anforderungen an ein Tritiumzerfallsexperiment der neusten Generation

Die Neutrinomassenexperimente in Troizk und Mainz verwendeten ähnliche Spektrometer aber unterschiedliche Tritiumquellen und haben daher unterschiedliche systematische Fehler.

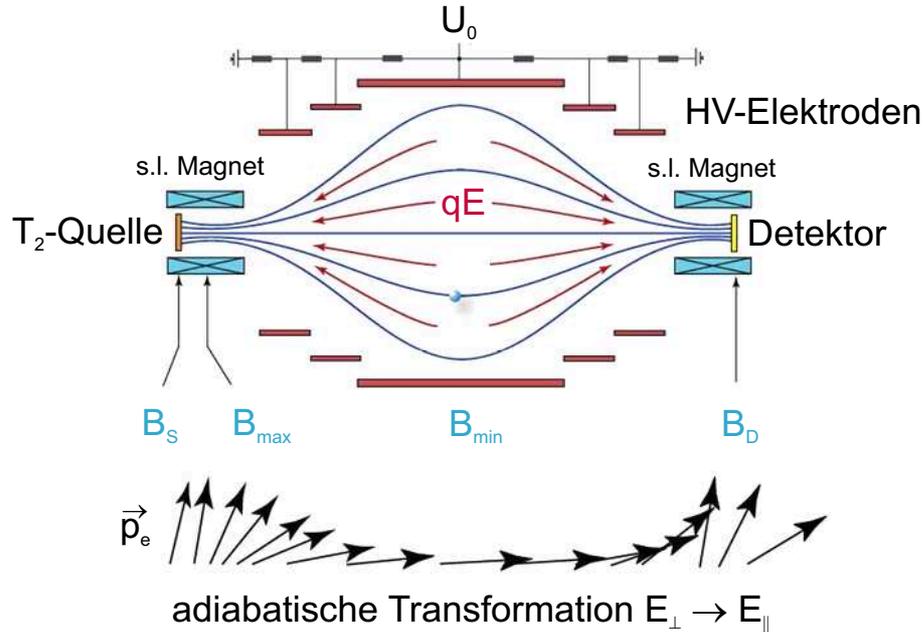
Das Troizker Experiments ergab unter Berücksichtigung einer empirischen Stufenfunktion zur Beschreibung einer spektralen Anomalie [Lob99]:

$$m_{\nu}^2 = -1,9 \pm 2,2_{sys.} \pm 3,4_{stat.} \text{ eV}^2/c^4 \quad (2.7)$$

Dies entspricht einer oberen Grenze der Neutrinomasse von:

$$m_{\nu} < 2,5 \text{ eV}/c^2 \quad (95\% \text{ C.L.}) \quad (2.8)$$

<sup>2</sup>Für relativistische Teilchen ist  $(\gamma + 1) \cdot E_{\perp}/B$  die adiabatische Invariante der Bewegung. Dabei bezeichnet  $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-v^2/c^2}}$  den relativistischen  $\gamma$ -Faktor.



**Abbildung 2.3: Prinzip eines MAC-E-Filters.** Elektronen aus der Quelle, die von links in das Spektrometer eintreten, werden auf Zyklotronbahnen entlang der magnetischen Flusslinien geführt. Da sich das von den beiden supraleitenden Magneten aufgespannte Magnetfeld um mehrere Größenordnungen ändert, ist in der Analysierebene in der Mitte des Spektrometers ein Großteil der Zyklotronenergie in longitudinale Bewegungsenergie umgewandelt worden. Das an den Elektroden anliegende Potential  $U_0$  formt ein Gegenfeld, das Elektronen reflektiert, deren Energie nicht ausreicht, um den Potentialberg zu überwinden.

Das Endergebnis des Mainzer Experiments lautet [Kra03]:

$$m_\nu^2 = -0,6 \pm 2,2_{sys.} \pm 2,2_{stat.} \text{ eV}^2/c^4 \quad (2.9)$$

$$m_\nu < 2,3 \text{ eV}/c^2 \quad (95\% \text{ C.L.}) \quad (2.10)$$

Die Particle Data Group gibt als aktuelle Obergrenze für die Neutrinomasse das kombinierte Ergebnis aus beiden Experimenten als aktuelles Limit an [Ams08]:

$$m_\nu = 2,0 \text{ eV}/c^2 (95\% \text{ C.L.}) \quad (2.11)$$

Die beiden Experimente haben ihr intrinsisches Sensitivitätslimit erreicht. Weitere Messungen hätten die Sensitivität nicht entscheidend verbessert, da die systematischen Unsicherheiten der beiden Experimente nicht in ausreichendem Maß weiter reduziert werden konnten. Um eine sub-eV Empfindlichkeit zu erreichen, muss ein Tritiumzerfallsexperiment neuer Generation gebaut werden. Die Anforderungen an das neue Experiment sind [KAT04]:

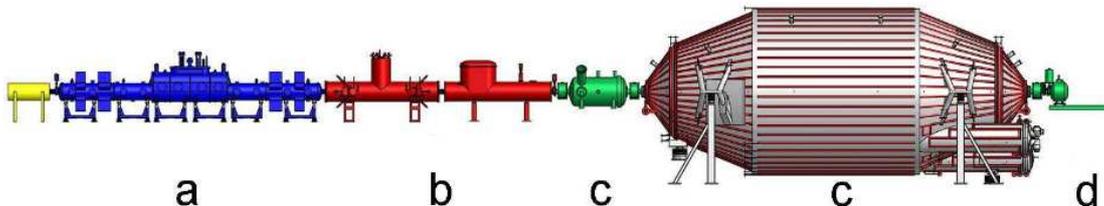
- Hohe Signalrate im Endpunktsbereich des Tritiumspektrums und damit eine um etwa einen Faktor 100 höhere Quellstärke als bei den Vorläuferexperimenten in Mainz und Troizk.

- Energieauflösung des Spektrometers  $< 1$  eV.
- Reduzierung der Untergrundbeiträge auf einen Beitrag  $< 1$  mHz.
- Reduzierung der systematischen Fehler auf die Observable  $m_\nu^2 c^4$  um etwa einen Faktor 100 im Vergleich zu den Experimenten in Mainz und Troizk.

## 2.2 Der Aufbau des KATRIN-Experiments

Das Karlsruher Tritium Neutrino Experiment ist das Tritiumzerfallsexperiment der neuesten Generation. Ziel des Experiments ist die Bestimmung der Neutrinomasse mit einer Sensitivität von  $0,2 \text{ eV}/c^2$  (90% C.L.). Das Experiment wird im KATRIN-Designreport [KAT04] detailliert beschrieben. Eine starke internationale Kollaboration baut KATRIN aktuell auf dem Gelände des Campus Nord des **K**arlsruher **I**nstitut für **T**echnologie (KIT)<sup>3</sup> auf. Der Campus Nord besitzt die für das Experiment notwendige Infrastruktur. Insbesondere kann auf das Tritiumlabor Karlsruhe (TLK) zurückgegriffen werden. Das TLK besitzt sowohl die Erfahrung als auch die Infrastruktur, um die KATRIN Tritiumquelle aufzubauen und zu betreiben. Das TLK ist lizenziert mit 40 g Tritium umzugehen.

In Abbildung 2.4 ist der rund 70 m lange Aufbau des KATRIN-Experiments gezeigt. In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Komponenten von KATRIN näher vorgestellt.



**Abbildung 2.4: Der Aufbau von KATRIN.** Zu sehen ist der 70 m lange Aufbau des KATRIN-Experiments mit seinen Komponenten: a) die fensterlose gasförmige Tritiumquelle (WGTS), b) das Transportsystem, bestehend aus der differentiellen Pumpstrecke (DPS) und der kryogenen Pumpstrecke (CPS), c) die beiden elektrostatischen Spektrometer und d) der Detektor zum Nachweis der Elektronen.

<sup>3</sup>ehemals Forschungszentrum Karlsruhe, (FZK)

### 2.2.1 Die Tritiumquelle

Bei KATRIN wird eine fensterlose gasförmige Tritiumquelle verwendet (WGTS: **W**indowless **G**aseous **T**ritium **S**ource). Solch eine Tritiumquelle bietet die Vorteile einer hohen Quellstärke bei geringen systematischen Unsicherheiten.

In der Abbildung 2.5 ist der schematische Aufbau der WGTS dargestellt. Die WGTS besteht im wesentlichen aus dem 10 m langen Quellrohr mit einem Durchmesser von 90 mm. An dieses angeschlossen sind die beiden differentiellen Pumpstrecken DPS1-R und DPS1-F. In der Mitte des Quellrohrs wird kontinuierlich gasförmiges Tritium über eine Kapillare mit einer auf 0,1% stabilisierten Einlassrate eingelassen. Die Tritiummoleküle strömen ungehindert von der Mitte des Quellrohres zu den beiden Enden hin und werden durch mehrere differentiell angebrachte Turbomolekularpumpen in der DPS1-F und der DPS1-R abgepumpt. Dadurch wird entlang des Quellrohres ein zeitlich konstantes Dichteprofil an Tritiummolekülen erzeugt (siehe Abbildung 2.6).

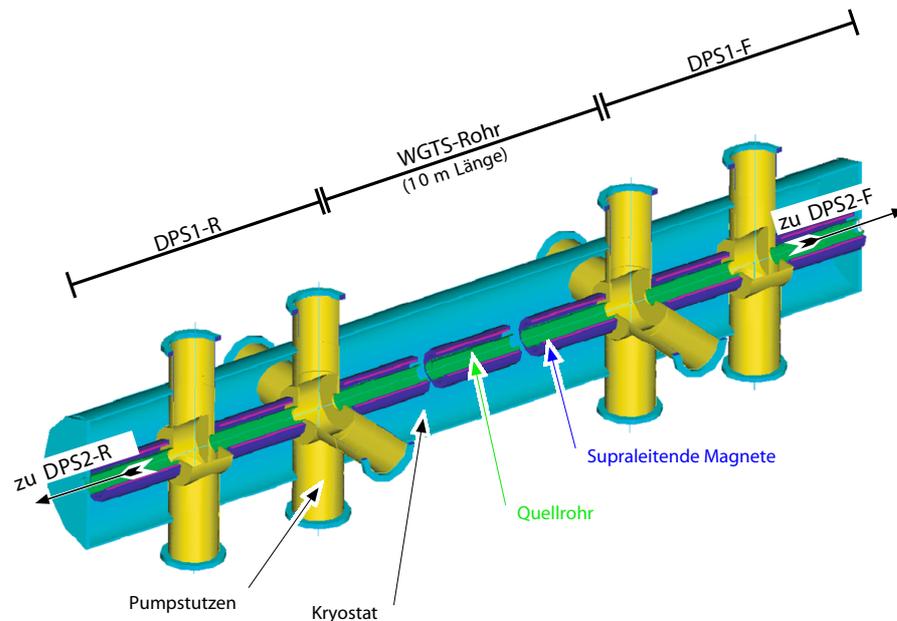
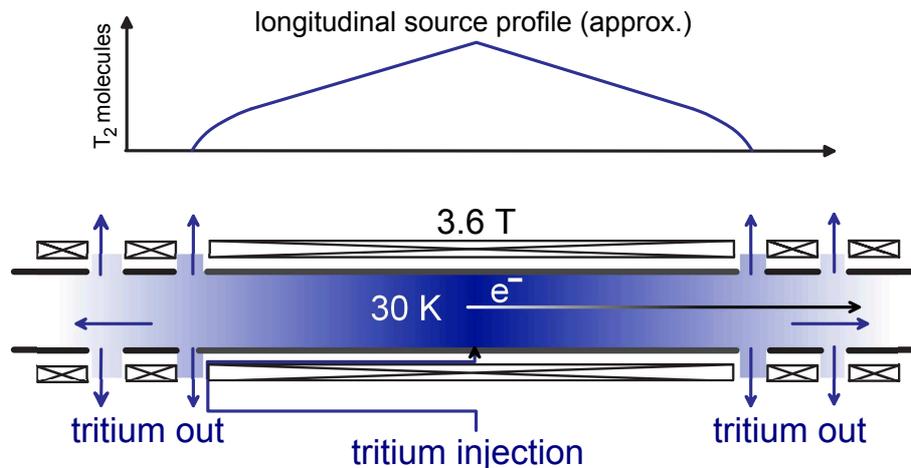


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau der fensterlosen gasförmigen Tritiumquelle (WGTS) nach [KAT04].

Die wichtigsten Anforderungen an die Quelle sind ([KAT04]):

- Bereitstellung einer konstanten Säulendichte von  $\rho d = 5 \cdot 10^{17}$  Molekülen/cm<sup>2</sup>. Dies entspricht einer Zerfallsrate von  $9,5 \cdot 10^{10}$  Zerfällen/s im vom magnetischen Fluss ( $191 \text{ T cm}^2$ ,  $B=3,6 \text{ T}$ ) durchsetzten Volumen der Quelle. Dazu müssen etwa 40 g Tritium pro Tag mit einer Einlassrate von 1,853 mbar  $\ell$ /s eingespeist und abgepumpt werden.
- Der Tritiumgehalt des eingespeisten Gases muss  $> 95\%$  sein.



**Abbildung 2.6: Dichteprofil in der Quelle.** Oben dargestellt ist das Gasdichteprofil in der Quelle über eine Länge von 10 m. Unten zu erkennen ist die Position der Magnete und des Tritiumeinlasses.

- Die Säulendichte  $\rho d$  muss auf 0,1% stabil gehalten werden, um systematische Unsicherheiten auf ein vertretbares Maß zu minimieren. Dies wird durch eine Stabilisierung der Einlassrate und der Temperatur auf 0,1% erreicht.
- Um Dopplerverbreiterungen zu minimieren, erfolgt der Normalbetrieb bei einer Temperatur von 30 K.

Diese Anforderungen werden durch folgende Maßnahmen realisiert:

- Die Temperaturstabilisierung des Quellrohres wird durch Kühlung des Quellrohres mit Zweiphasenneon durch zwei an das Quellrohr angelötete Kupferrohre verwirklicht. Das Quellrohr ist im Inneren supraleitender Magnete angebracht, die ein Führungsmagnetfeld von maximal 3,6 T erzeugen. Dies erfordert den Bau eines der anspruchvollsten Magnetkryostate der Welt, genannt „WGTS“ (durch die Firma VARIAN<sup>4</sup>).
- Die kontinuierliche Tritiumversorgung der Quelle mit hochreinem Tritium mit einem Durchsatz von 40 g Tritium pro Tag, erfordert ein hochkomplexes Gasprozessierungssystem und ist in Form geschlossener Tritiumkreisläufe realisiert. Aufbau und Inbetriebnahme der Tritiumkreisläufe ist Thema dieser Arbeit und wird in Kapitel 3 vorgestellt.
- Die Überwachung der Zusammensetzung des in die Quelle eingespeisten Gasgemisches erfolgt mit Hilfe der Laser-Raman-Spektroskopie. Diese ist Thema der Kapitel 4 und 5 der vorliegenden Arbeit.

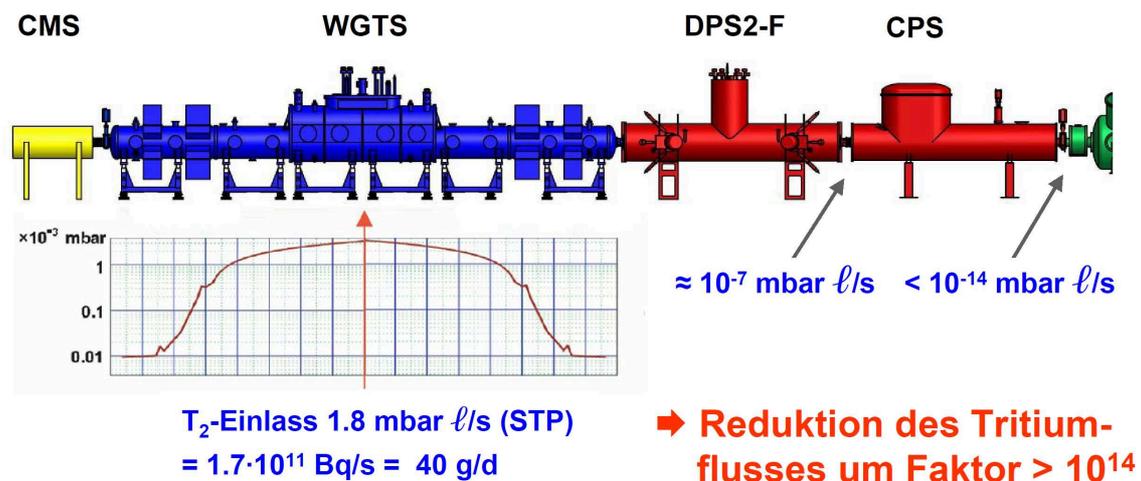
<sup>4</sup>Der ursprüngliche Vertrag wurde mit der Firma ACCEL geschlossen. 2007 wurde ACCEL von VARIAN Medical Systems aufgekauft, so dass der neue Vertragspartner VARIAN ist.



**Abbildung 2.7:** Der KATRIN-Quellmagnetkryostat „WGTS“. Dargestellt ist ein Entwurf der Firma VARIAN. Die gesamte Länge beträgt 16 m.

## 2.2.2 Das Transportsystem

Das Transportsystem hat die Aufgabe, die  $\beta$ -Elektronen aus den Tritiumzerfällen in der Quelle mittels supraleitender Magnete adiabatisch in die Spektrometer zu führen und den Tritiumfluss aus der Quelle in das Spektrometer um sehr viele Größenordnungen zu unterdrücken. In Abbildung 2.8 ist die Reduktion des Tritiumflusses durch das Transportsystem schematisch dargestellt.



**Abbildung 2.8:** Das Quell- und Transportsystem von KATRIN (nach [CPS06]). Die Aufgabe des Transportsystems von KATRIN ist der adiabatische Transport von Elektronen aus Tritium- $\beta$ -Zerfällen in der WGTS in die Spektrometer. Gleichzeitig wird der Tritiumfluss aus der WGTS in die Spektrometer um mehr als 14 Größenordnungen unterdrückt. Dies geschieht in der differentiellen Pumpstrecke DPS1-F (Teil des WGTS-Kryostaten), der DPS2-F und durch die kryogene Pumpstrecke CPS.

### 2.2.2.1 Die differentielle Pumpstrecke DPS2-F

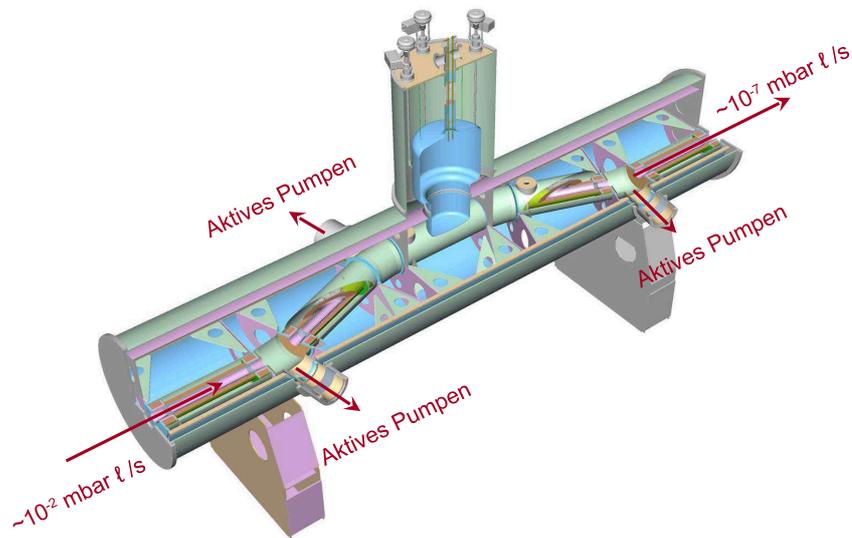
Der maximal erlaubte Tritiumfluss in das Vorspektrometer beträgt  $10^{-14}$  mbar  $\ell/s$  ([KAT04]). Die differentielle Pumpstrecke DPS2-F reduziert den Tritiumfluss in Spektrometerrichtung mit differentiell angeordneten Turbomolekularpumpen um einen Faktor von mindestens  $10^5$ . Eine weitere Reduktion ist nur durch gasbindende Vakuumpumpen möglich.

Das Rohr der DPS2-F weist mehrere Knicke von  $15^\circ$  auf. Dadurch wird verhindert, dass Tritiummoleküle geradlinig durch die DPS2-F fliegen können.<sup>5</sup> Die fünf je 1 m

<sup>5</sup>Bei dem in der DPS2-F herrschendem Druck bewegen sich die Gasmoleküle wechselwirkungsfrei, d.h. geradlinig, bis sie auf eine Wand treffen (Molekularströmung).

langen Rohrsegmente werden auf 77 K gekühlt. Ein Führungsmagnetfeld der maximalen Stärke von 5,6 T führt die Elektronen adiabatisch durch die DPS2-F in Richtung der Spektrometer.

Die DPS2-F wurde im Juli 2009 geliefert. Abbildung 2.10 zeigt ein Foto vom Einbringen der DPS2-F beim Einbringen in die KATRIN-Transporthalle. Momentan laufen die Abnahmetests und erste Testmessungen. Ionen in der DPS2-F werden mit Hilfe von FT-ICR gemessen und mit elektrischen Dipolen entfernt ([Sch08b], [Ubi09]), [Zol09]).



**Abbildung 2.9: Schnitt durch die DPS2-F.** In der DPS2-F wird der Tritiumfluss in Richtung der Spektrometer durch differentielles Pumpen um 5 Größenordnungen reduziert. [KAT04].



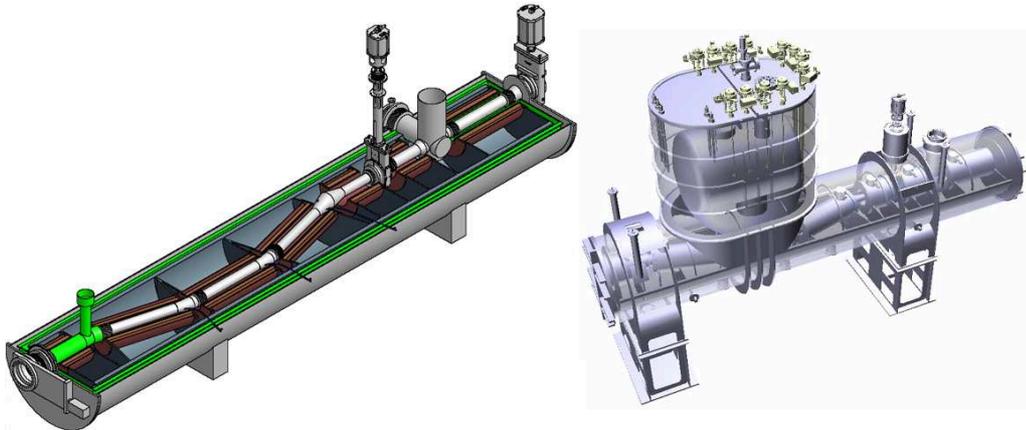
Abbildung 2.10: Die DSP2-F bei der Ankunft am KIT.

### 2.2.2.2 Die kryogene Pumpstrecke CPS

Die kryogene Pumpstrecke CPS hat die Aufgabe, den Tritiumfluss aus der DPS2-F um einen weiteren Faktor  $> 10^7$  auf  $10^{-14}$  mbar  $\ell/s$  zu unterdrücken.

Im Inneren des heliumkalten Strahlrohrs (4.5 K) der kryogenen Pumpstrecke wird eine Argonfrostschiicht (Dicke 1-2  $\mu\text{m}$ ) präpariert. Auf dieser Argonfrostschiicht kryosorbieren Teilchen aus der Gasphase, so auch Tritiummoleküle. Es wird erwartet, dass pro Tag ca.  $10^{17}$  Tritiummoleküle in der CPS gebunden werden. Um auszuschließen, dass ein Inventar  $> 1$  Ci (37 GBq) in der CPS gesammelt wird, wird die CPS nach 60 Tagen Betrieb regeneriert. Dazu wird das Strahlrohr auf 100 K aufgewärmt und gleichzeitig von der dem Spektrometer zugewandten Seite der CPS kontinuierlich mit Helium gespült. Wie bei der DPS2-F weist auch das Strahlrohr der CPS mehrere Knicke auf, um einen geradlinigen Weg der Tritiummoleküle durch die CPS zu verhindern. Das Strahlrohr mit 75 mm Durchmesser befindet sich in einem von supraleitenden Magnetspulen erzeugten Magnetfeld der Stärke 5,6 T.

Im Testexperiment TRAP (Tritium Argon Frost Pump) im Tritiumlabor Karlsruhe wurde das Prinzip der Tritiumrückhaltung auf einer Argonfrostschiicht erfolgreich demonstriert ([Eic08], [Stu07]). Abbildung 2.11 zeigt einen Entwurf der momentan bei der Firma ASG im Bau befindlichen CPS.



**Abbildung 2.11: Die kryogene Pumpstrecke CPS.** Links dargestellt ist ein Schnitt durch die CPS mit Strahlrohr, rechts ein 3D-Design des momentan im Bau befindlichen Kryostaten [CPS08].

## 2.2.3 Energieanalyse und Elektronennachweis

### 2.2.3.1 Das Spektrometersystem

Bei KATRIN wird ein Tandem-Spektrometersystem aus einem Vor- und einem Hauptspektrometer eingesetzt. Beide sind MAC-E-Filter.

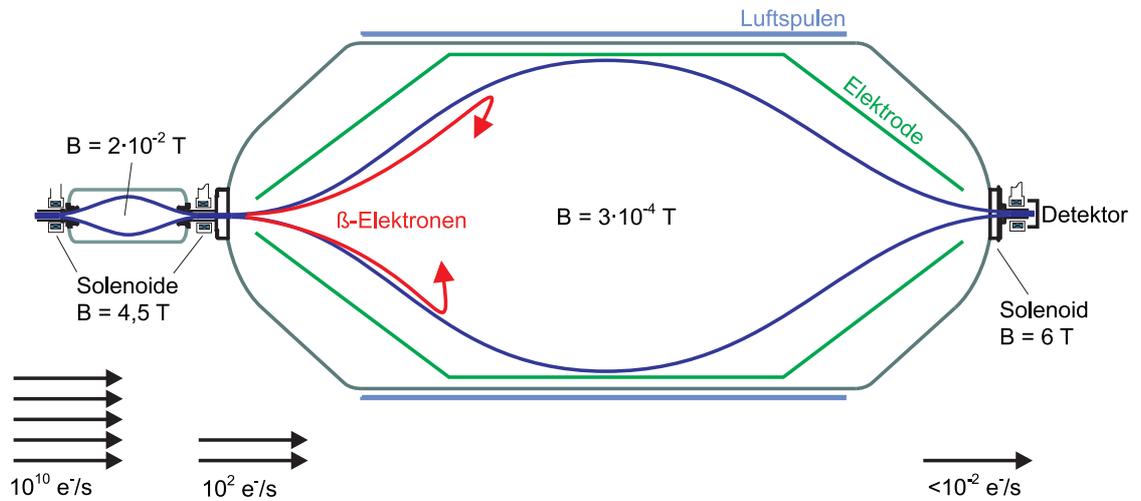
**Das Vorspektrometer:** Es dient zur Vorfilterung der Elektronen und lässt nur Elektronen durch, deren Energie knapp unterhalb des Endpunkts des Tritium- $\beta$ -Spektrums bei 18,6 keV liegen. Das Vorspektrometer ist ein zylindrischer Tank der Länge 3,38 m und einem äußeren Durchmesser von 1,7 m. Der Tank wird auf -18,3 kV gelegt, eine innere (Gitter-)Elektrode, die sich auf etwas höherem negativen Potential befindet, formt das Retardierungspotential. Das Vorspektrometer wird bei einem Druck  $p < 10^{-11}$  mbar betrieben. Dieser Druck wurde bei Testmessungen routinemäßig bei  $T=20^\circ\text{C}$  erreicht. Dadurch werden Ionisationsprozesse unterdrückt und der Untergrund minimiert. Das Vorspektrometer reduziert den eingehenden Fluss der  $\beta$ -Elektronen um einen Faktor  $10^6$  in das Hauptspektrometer. Dadurch werden dort Untergrundbeiträge durch Restgasionisation unterdrückt.

**Das Hauptspektrometer:** Die eigentliche Energieanalyse bei KATRIN erfolgt mit dem Hauptspektrometer. Sein Aufbau ähnelt dem des Vorspektrometers. Der Vakuumentank besitzt eine Länge von rund 23,3 m und einen Durchmesser von 10 m. Das Hauptspektrometer wird wie das Vorspektrometer bei einem Druck  $p < 10^{-11}$  mbar betrieben. Der Hauptspektrometertank wird auf ein Potential von -18,5 bis -18,7 kV gelegt. Das  $\beta$ -Spektrum kann entweder durch Variation des Potentials des Spektrometers bei konstantem Quellpotential oder umgekehrt durch Variation des Potentials der Quelle bei konstantem Potential des Spektrometers vermessen werden. Das (ebenfalls variable) innere Drahtelektrodensystem befindet sich stets auf höherem negativen Potential relativ zum Tank. Elektronen, die von den Wänden kommen, werden so reflektiert und Untergrundbeiträge von außen minimiert.

Das inhomogene Magnetfeld wird durch supraleitende Magnete an den beiden Enden der Spektrometer aufgespannt. Die Parameter des Hauptspektrometers sind [KAT04]:

- Betrieb bei einer Hochspannung von -18,5 bis 18,7 kV.
- Eine Magnetfeldstärke in der Analysierebene von  $B_{min} = 3 \cdot 10^{-4}$  T
- Eine Energieauflösung  $\Delta E = 0,93$  eV.

Abbildung 2.13 zeigt einen Blick ins Innere des Hauptspektrometertanks, der im November 2007 geliefert wurde. Momentan wird das Innere Elektrodensystem, das von der Arbeitsgruppe Weinheimer der Universität Münster hergestellt wird ([Geb08], [Rei07], [Tem07]). Im Rahmen des Spektrometersystems entstanden bereits mehrere Diplom- und Doktorarbeiten ([Fra06], [Hug08] [Lam09], [Wan09], [Val09]).



**Abbildung 2.12:** Das Spektrometersystem von KATRIN (nach [KAT04]). Das Spektrometersystem von KATRIN besteht aus einem Vor- und einem Hauptspektrometer. Das Vorspektrometer dient als Filter, um Untergrundbeiträge im Hauptspektrometer zu minimieren und als Testaufbau für das Hauptspektrometer.



**Abbildung 2.13:** Blick in den Hauptspektrometertank von KATRIN. Aktuell wird das Innere Elektrodensystem auf einem Schienensystem installiert. Die Montage erfolgt unter Zuhilfenahme des im Bild zu sehenden Gerüsts.

### 2.2.3.2 Der Detektor

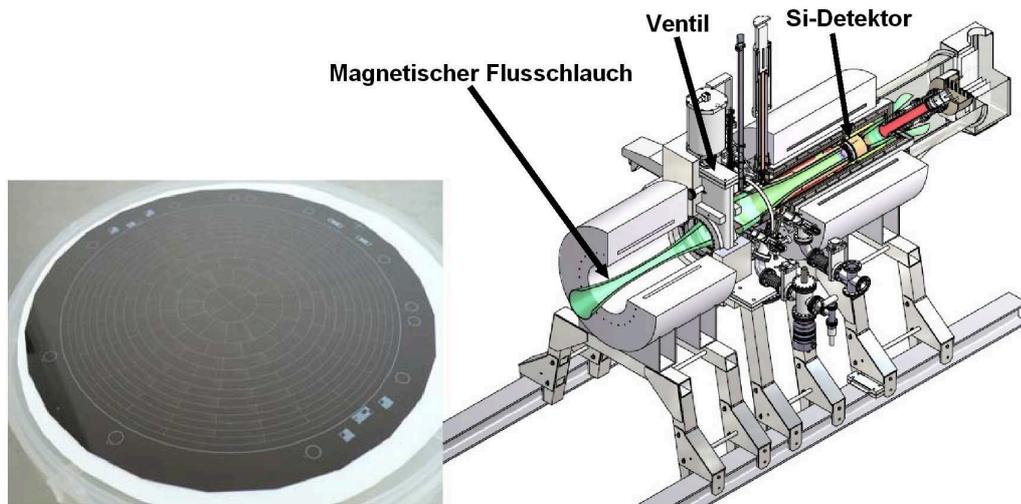
Alle  $\beta$ -Elektronen, die das Retardierungspotential des Hauptspektrometers überwinden, werden wieder auf ihre ursprüngliche Energie beschleunigt und durch ein Magnetfeld zum Detektor geführt. Die Aufgabe des Detektors ist der Nachweis der transmittierten Elektronen. Zusätzlich sollen mit ihm systematische Messungen für die gesamten Strahlführungselemente durchgeführt werden.

Die Anforderungen an den Detektor sind:

- Eine hohe Nachweiseffizienz der Elektronen ( $\epsilon > 0,9$ ) aus dem Tritiumzerfall ( $E \geq 18$  keV).
- Eine gute Energieauflösung  $\Delta E < 600$  eV.
- Eine gute Ortsauflösung zur Untersuchung der Transporteigenschaften und der Homogenität des Querschnitts der Quelle.
- Gute Unterdrückung des Untergrunds unter 1 mHz durch aktive und passive Abschirmung.
- Eine Zeitauflösung  $\Delta t < 0,5 \mu\text{s}$ , um Störungen durch Pile-up-Effekte bei Messungen mit der hochintensiven Elektronenkanone zu minimieren und um Differenzzeitmessungen durchzuführen.
- Die Fähigkeit, große Zählraten zu verarbeiten ( $\sim 1$  MHz), um Testmessungen mit einer Elektronenkanone durchführen zu können.

Das Referenzdesign sieht als Detektor eine segmentierte PIN-Diode mit 148 Pixeln vor.

Eine Anbringung des Detektor direkt am Hauptspektrometer ist nicht praktikabel. Bei Wartungsarbeiten am Detektor würde gleichzeitig das UHV des Spektrometers zerstört werden. Der Detektor ist daher in einer separaten, durch ein Ventil abgetrennten, Einheit untergebracht. Der Detektor befindet sich damit aber nicht mehr in der Fokalebene des Magneten des Hauptspektrometers. Daher ist ein weiterer Magnet notwendig, um den kompletten Flusschlauch von  $191 \text{ T cm}^2$  auf den Detektor abzubilden. In Abbildung 2.14 ist links der Prototyp der segmentierten PIN-Diode dargestellt. Rechts ist eine 3D Ansicht des gesamten Aufbaus dargestellt. Neben dem Magnetsystem und dem eigentlichen Detektor beinhaltet das System noch Komponenten um den Si-Detektor zu kühlen. Dies dient der Verminderung von Rauschen. Eine erste Prüfung des am MIT und University of Washington - Seattle in den USA und IPE (Institut für Prozessdatenverarbeitung und Elektronik) entwickelten und hergestellten Prototyps soll Anfang 2010 statt finden und bis Ende 2010 abgeschlossen sein.



**Abbildung 2.14: Prototyp (links) und 3D-Entwurf (rechts) des Detektors.** Links dargestellt ist der Prototyp des Detektors. Gut zu erkennen ist die Segmentierung. Die segmentierte PIN Diode besteht aus 148 Segmenten mit je  $42 \text{ mm}^2$  Fläche und einem Gesamtdurchmesser von ca. 10 cm. Rechts ist eine 3D Ansicht der gesamten Einheit dargestellt [Doe98].

## 2.2.4 Das Rear-System

Das Rear-System bildet den rückwärtigen Abschluß der WGTS. In ihm befindet sich zum einen die Rear Plate, die den elektrostatischen Abschluß der WGTS bildet und maßgeblich das elektrostatische Potential der WGTS definiert. Ein zusätzlicher Monitordetektor soll den Elektronenfluss in Rückwärtsrichtung kontinuierlich messen. Zu Kalibrationszwecken ist vorgesehen, mit einer Elektronenkanone monoenergetische Elektronen durch die WGTS in die Spektrometer und letzten Endes auf den Detektor zu schießen. Ein Konzeptvorschlag liegt vor (Abbildung 2.15). Aktuell wird im Rahmen der Rear-Section-Arbeitsgruppe am Design des Systems gearbeitet [RSW08].

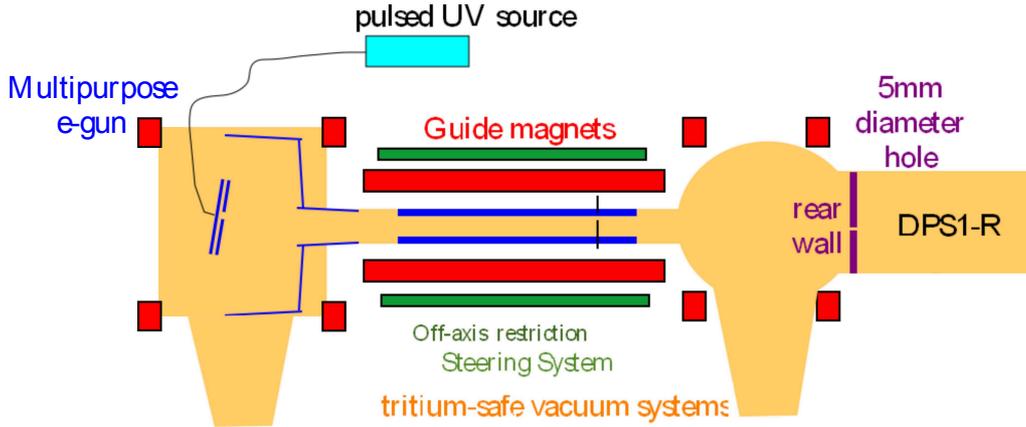


Abbildung 2.15: Konzeptvorschlag des Rear-Systems [Leb10].

## 2.3 Notwendigkeit eines stabilen Tritiumkreislaufes und einer permanenten Überwachung der Isotopenreinheit

### 2.3.1 Sensitivität von KATRIN

KATRIN wurde so ausgelegt, dass die absolute systematische Unsicherheit des Experiments bei

$$\sigma_{\text{syst,tot}} \leq 0,017 \text{ eV}^2/\text{c}^4 \quad (2.12)$$

liegt.

Die Sensitivität von KATRIN auf die Neutrinomasse  $m_\nu$  wird durch die systematischen und statistischen Unsicherheiten auf die Observable  $m_\nu^2$  bestimmt. Es wird erwartet, dass nach 3 Jahren Messzeit der statistische Fehler und der systematische Fehler die gleiche Größe haben werden. Dies führt zu einem Gesamtfehler von  $\sigma_{\text{tot}} \approx 0,025 \text{ eV}^2/\text{c}^4$  [KAT04]. KATRIN kann eine Neutrinomasse von

$$m_\nu = 0,35 \text{ eV}/\text{c}^2 \quad (2.13)$$

mit  $5 \sigma$  Entdeckungspotential bestimmen Die Sensitivität auf die Neutrinomasse ist ( $L(90\% \text{ C.L.}) = \sqrt{1,64 \cdot \sigma_{\text{tot}}}$ ). Wenn KATRIN nach 3 Jahren Messzeit keine Evidenz für eine von Null verschiedene Neutrinomasse findet, ist somit eine neue Obergrenze von

$$0,2 \text{ eV}/\text{c}^2 \quad (90\% \text{ C.L.}) \quad (2.14)$$

für die Neutrinomasse bestimmt.

### 2.3.2 Wichtige quellspezifische systematische Effekte

Viele der systematischen Unsicherheiten von KATRIN hängen mit der Quelle zusammen. Quellspezifische systematische Effekte sind:

- **Kernrückstoß**

Die Rückstoßenergie des entstandenen Moleküls lässt sich durch

$$E_{rec} \approx E \cdot \frac{m_e}{M_{^3\text{HeT}/\text{H}^+}} \quad (2.15)$$

abschätzen [KAT04].

Beim Zerfall  $\text{T}_2 \rightarrow ^3\text{HeT}^+$  ( $\text{HT} \rightarrow ^3\text{HeH}^+$ ) beträgt die Rückstoßenergie  $E_{rec}^{\text{T}_2} = 1,72 \text{ eV}$  ( $E_{rec}^{\text{HT}} = 2,58 \text{ eV}$ ) [Sae00].

- **Endzustände**

Die Anregungsenergie des niedrigsten angeregten elektronischen Zustands von  $^3\text{HeT}^+$  beträgt  $27 \text{ eV}$  [Sae00]. Elektronische Anregungen spielen fast keine Rolle im zu analysierenden Energiebereich nahe am Endpunkt. Allerdings kann eine Vielzahl von Rotations-Vibrations-Zuständen angeregt werden. Deren mittlere Energie beträgt  $1,89 \text{ eV}$ .

- **Dopplerverbreiterung**

Die thermische Bewegung der zerfallenden Atome bzw. Moleküle ändert die Energie der emittierten  $\beta$ -Elektronen relativ zum Schwerpunktssystem.

- **Energieverlust durch Stöße an Molekülen**

Die beim Zerfall entstehenden Elektronen können elastisch oder inelastisch mit Molekülen in der Quelle stoßen. Der Energieverlust der Elektronen durch elastische Streuung beträgt [Lan76]:

$$\Delta E = 2 \frac{m_e}{m_{\text{mol}}} E (1 - \cos \theta) \quad (2.16)$$

$m_{\text{mol}}$  bezeichnet dabei die Masse des Moleküls, an dem gestreut wird. Die Streuung findet hauptsächlich in Vorwärtsrichtung statt, daher ist dieser Effekt gering. Der Energieverlust durch inelastische Streuprozesse beträgt mindestens  $\epsilon_1 = 12,6 \text{ eV}$  [Ase00]. Elektronen mit Energien zwischen Endpunkt  $E_0$  und  $E_0 - \epsilon_1$  haben zuvor nicht inelastisch gestoßen. Elektronen mit geringeren Energien können Energie durch Stöße verloren haben. Die Streuwahrscheinlichkeit hängt von der Säulendichte  $\rho d$  ab.

- **Schwankungen der Quellstärke**

Bei KATRIN wird das Spektrum am Endpunkt integral durch schrittweise Variation des Retardierungspotentials vermessen. Änderungen in der Quellstärke verfälschen das Messergebnis.

Die spektralen Effekte der einzelnen Quellparameter sind denen einer nichtverschwindenden Neutrinomasse ähnlich und verursachen somit bei einer Nichtberücksichtigung deutliche systematische Effekte [Hoe09].

Änderungen der magnetischen Feldstärke in der Quelle führen zu einer Änderung des maximalen Akzeptanzwinkels und somit zu einer Änderung der mittleren Weglänge der Elektronen zum Spektrometer, sowie der Anzahl der in die Spektrometer geführten Elektronen. Weitere systematische Unsicherheiten ergeben sich u.a. aus Schwankungen der Retardierungsspannung der Spektrometer oder durch Anhäufung von Elektronen in Penningfallen.

### 2.3.3 Folgerungen für einen stabilen Tritiumkreislauf und die Überwachung der Isotopenreinheit

Die Bestimmung der Neutrinomasse mit KATRIN erfordert die genaue Kenntnis der systematischen Einflüsse. Ein Hauptanteil der systematischen Unsicherheiten liefert die Tritiumquelle. Die Zählrate am Detektor  $N$  hängt direkt von der Aktivität in der Quelle ab:

$$N \sim \rho d \epsilon_t \quad (2.17)$$

Die systematischen Effekte hängen direkt ab von:

- a) Der Säulendichte  $\rho d$ . Von ihr hängt auch die Streuwahrscheinlichkeit in der Quelle und somit der Energieverlust ab.
- b) Der Zusammensetzung  $\epsilon_t$  des in die Quelle eingespeisten Gases. Von ihr hängt die Quellaktivität ab. Je nach Art des Molekül (HT, DT, T<sub>2</sub>) unterscheiden sich die Energieverluste durch Stöße, die Endzustände und die Kernrückstoßenergie.

Die genaue Kenntnis der Aktivität der Quelle und die Stabilisierung der Quelle auf mindestens 0,1 % sind essentiell für den Erfolg von KATRIN. Sie wird durch Monitordetektoren in Vor- und Rückwärtsrichtung überwacht ([Sch08],[Bab10]) werden.

Zusätzlich kann die Aktivität auch mit dem Detektor bestimmt werden. Dazu wird zu genau festgelegten Zeiten mit reduzierter Retardierungsspannung (z.B.  $U_0 - 500$  V) gemessen.

Die Säulendichte  $\rho d$  und die Zusammensetzung  $\epsilon_T$  müssen präzise stabilisiert und überwacht werden.  $\rho d$  hängt ab von der Temperatur des Quellrohres, der Einlassrate und dem Druck an den Pumpstutzen ab. Die Aufrechterhaltung des Gasdichteprofiles in der Quelle auf 0,1% wird mit Hilfe geschlossener Tritiumkreisläufe gewährleistet, deren Aufbau und Inbetriebnahme Thema dieser Arbeit sind. Die Überwachung der Zusammensetzung mit mindestens 0,1% Präzision in 250 s Messintervallen erfolgt mittels Inline-Laser-Ramanmessungen erfolgen. Dies stellt beides eine große technische und physikalische Herausforderung dar und liegen an der Grenze des momentan

technisch Machbaren.

Im folgenden Kapitel wird Aufbau, Inbetriebnahme und erste Messungen mit dem Herzstück der Tritiumkreisläufe, dem sogenannten „Circulation Loop“ vorgestellt. Der Teil der Tritiumkreisläufe stellt die auf 0,1% stabilisierte Tritiumgaseinspeisung in das Quellrohr der WGTS dar. Der Circulation Loop wurde im Rahmen der Arbeit zusammen mit dem sogenannten „Feed Loop“ und dem sogenannten „Exhaust Loop“ aufgebaut und erfolgreich in Betrieb genommen. Die Kapitel 4 und 5 beschäftigen sich mit Laser-Raman-Messungen zur Überwachung der Isotopenreinheit.

# Kapitel 3

## Die Tritiumkreisläufe von KATRIN

Eine der Schlüsselkomponenten von KATRIN ist die fensterlose gasförmige Tritiumquelle (WGTS). Sie wird im Tritiumlabor Karlsruhe (TLK) aufgebaut. Die Tritiumkreisläufe von KATRIN ermöglichen einerseits die stabilisierte Tritiumgaseinspeisung („Inner Loop“) in die Quelle und garantieren andererseits die Bereitstellung von Tritium hoher Reinheit („Outer Loop“).

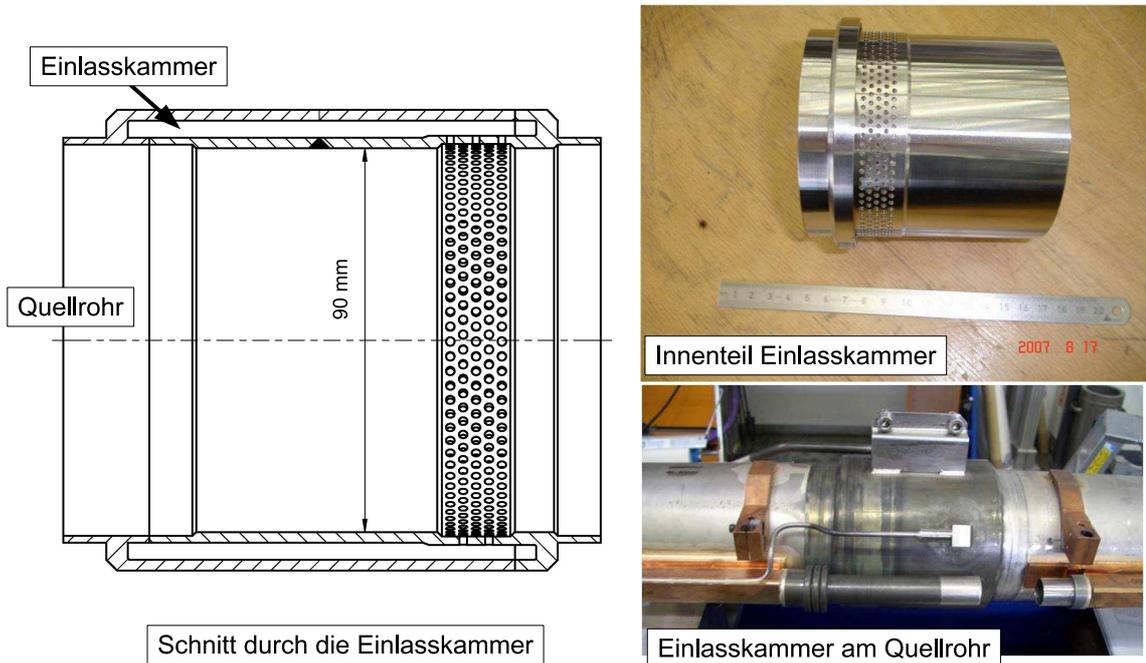
In Abschnitt 3.1 werden die Anforderungen an die Tritiumkreisläufe motiviert. Das Prinzip der Tritiumkreisläufe wird in Abschnitt 3.2 vorgestellt. In Abschnitt 3.3 wird ihr experimenteller Aufbau vorgestellt und die Montage und die Inbetriebnahme in 3.4. Die ersten Messungen werden in Abschnitt 3.5 präsentiert.

### 3.1 Theoretische Modellierung der KATRIN-Quelle

In diesem Abschnitt wird dargestellt, wie anhand der Anforderung der Säulendichte von  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  Einlassdruck und Einspeiserate in das Quellrohr von KATRIN berechnet werden. Diese Werte waren Grundlage für die Auslegung der Tritiumkreisläufe. In Abschnitt 3.1.1 wird die Realisierung der Gaseinspeisung am Quellrohr vorgestellt. Abschnitt 3.1.2 werden die Grundlagen zur Berechnung des Dichteprofiles im Quellrohr von KATRIN vorgestellt.

#### 3.1.1 Realisierung des Gaseinlasses in die WGTS

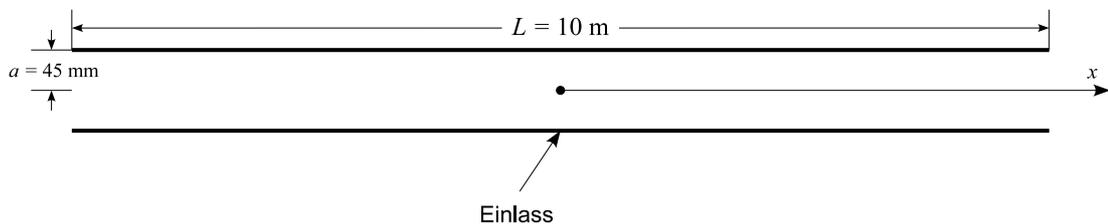
Abbildung 3.1 zeigt einen Schnitt durch die Gaseinlasskammer am Quellrohr der WGTS. Um die Mitte des Quellrohrs ist eine Einlasskammer angebracht, aus der das einzuspeisende Gas über Löcher in das Quellrohr einströmt. Bei geeigneter Wahl der Parameter ist gewährleistet, dass die Einspeisung wirbel- und schockwellenfrei verläuft, sowie mit gleicher Temperatur eingespeist wird.



**Abbildung 3.1: Der Tritiumeinlass an der WGTS.** Der Tritiumeinlass wird mit einer Einlasskammer an der Mitte des Quellrohres realisiert. Dargestellt ist ein Schnitt durch die Gaseinlasskammer an der WGTS. Tritium wird über eine Kapillare in die um das Quellrohr angebrachte Einlasskammer eingespeist. Aus der Einlasskammer wird es über 415 Löcher (Radius 2 mm) im mittleren Umkreis des Quellrohres eingelassen.

### 3.1.2 Berechnung des Gasdichteprofiles in der Quelle

Die Tritiumquelle von KATRIN lässt sich geometrisch als ein Rohr der Länge  $L = 10$  m und Radius  $a = 45$  mm modellieren (siehe Abbildung 3.2).



**Abbildung 3.2: Skizze des Quellrohres.**

Die Berechnung des Dichteprofiles und der Einspeiserate, die nötig ist, um im Quellrohr die von KATRIN geforderte Gassäulendichte von  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  zu realisieren ist sehr komplex. Die Vorgehensweise wird im Folgenden vorgestellt.

Ein Parameter, der die Gasdichte beschreibt, ist der Verdünnungsfaktor  $\delta$ :

$$\delta = \frac{aP}{\mu v_0} \quad (3.1)$$

$\mu$  bezeichnet hier die Viskosität,  $v_0$  die wahrscheinlichste Geschwindigkeit:

$$v_0 = \left( \frac{2N_a kT}{m} \right)^{1/2} \quad (3.2)$$

mit der Avogadrozahl  $N_a$ , der Boltzmannkonstanten  $k$  und der Masse  $m$  [Son06]. Für  $\delta \gg 1$  befindet man sich im Bereich des hydrodynamischen Regimes. Für  $\delta \ll 1$  liegt Molekularströmung vor. Bei  $\delta \approx 1$  liegt der Übergangsbereich vor. In der KATRIN-Quelle gilt  $0 < \delta < 23$ . Der Gasfluss kann weder als hydrodynamisch noch als Molekularströmung betrachtet werden, da der in der Quelle herrschende Druckbereich sowohl das hydrodynamische Regime (Navier-Stokes-Gleichungen), den Bereich freier Molekularströmung als auch den Übergangsbereich dazwischen umfasst.

Eine einheitliche Beschreibung der Gasdynamik in der Quelle erfolgt mit der Boltzmann-Gleichung [Son06]:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} = Q(f, f_*) \quad (3.3)$$

$f(\vec{r}, \vec{v}, t)$  bezeichnet dabei die Verteilungsdichte,  $Q(f, f_*)$  das Kollisionsintegral:

$$Q(f, f_*) = \int (f' f'_* - f f_* ) |\vec{v} - \vec{v}_*| \frac{d\sigma(\Omega)}{d\Omega} d\Omega d\vec{v}_* \quad (3.4)$$

mit dem Wirkungsquerschnitt  $\frac{d\sigma(\Omega)}{d\Omega}$ .

Die Teilchenzahldichte  $n$ , Temperaturverteilung  $T$ , Durchschnittsgeschwindigkeit  $\vec{u}$  und die Wärmestromdichte  $\vec{q}$  ergeben sich aus der Verteilungsdichte wie folgt:

$$n(t, \vec{r}) = \int f(\vec{r}, \vec{v}, t) d\vec{v} \quad (3.5)$$

$$T(t, \vec{r}) = \frac{m}{3nk} \int f(\vec{r}, \vec{v}, t) V^2 d\vec{v} \quad \text{mit } \vec{V} = \vec{v} - \vec{u} \quad (3.6)$$

$$\vec{u}(t, \vec{r}) = \frac{1}{n} \int f(\vec{r}, \vec{v}, t) \vec{v} d\vec{v} \quad (3.7)$$

$$\vec{q}(t, \vec{r}) = \frac{m}{2} \int f(\vec{r}, \vec{v}, t) V^2 \vec{V} d\vec{v} \quad (3.8)$$

Die Boltzmann-Gleichung stellt einen Satz von  $N$  (Teilchenanzahl) über das Kollisionsintegral gekoppelten Differentialgleichungen dar. Sowohl die theoretische, als auch die numerische Lösung dieser Gleichung ist sehr aufwändig.

Ein häufig verwendetes Modell für das Kollisionsintegral ist das BGK-Modell [Bha54]:

$$Q(f, f_*) = \nu (f^M - f) \quad \text{mit } f^M = n \left( \frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} \exp \left[ -\frac{m(\vec{v} - \vec{u})^2}{2kT} \right] \quad \text{und } \nu = \frac{a dP}{P dx} \quad (3.9)$$

Dieses liefert jedoch keine korrekte Beschreibung im Falle nicht isothermer Strömung. Das S-Modell liefert in diesem Fall eine bessere Beschreibung ([Sha68]) und wird bei KATRIN zur Berechnung verwendet:

$$Q(f, f_*) = \frac{P}{\mu} \left\{ f^M \left[ 1 + \frac{2m}{15n(kT)^2} \vec{q} \cdot \vec{V} \left( \frac{mV^2}{2kT} - \frac{5}{2} \right) \right] - f \right\} \quad (3.10)$$

Im Falle des KATRIN-Quellrohres gilt  $L \gg a$ . Folgende Annahmen sind daher gerechtfertigt [Sha96]:

- Die Variation des Temperatur- und des Druckgradienten entlang des Quellrohres kann vernachlässigt werden. Temperatur und Druck hängen von der Position  $x$  entlang des Quellrohres ab.
- Die mittlere Geschwindigkeit  $\vec{u}$  und der Wärmefluss  $\vec{q}$  haben nur eine longitudinale Komponente, die entlang des Rohres konstant ist.
- Es stellt sich ein stationärer Gasfluss ein.

Unter diesen Annahmen kann die Boltzmann-Gleichung linearisiert und numerisch gelöst werden. Dies wurde von Felix Sharipov in [Sha96] durchgeführt (unter der Annahme, diffuser Streuung an der Rohroberfläche).

Aus der Boltzmann-Gleichung erhält man die dimensionslosen Flussraten  $G_P$  und  $G_T$  in Abhängigkeit vom Verdünnungsfaktor  $\delta$ . Sie finden sich tabelliert in [Sha96]. Mit diesen numerisch errechneten dimensionslosen Flussraten ergibt sich der Durchfluss  $q$  durch das Quellrohr zu:

$$q = \pi a^3 v_0 \frac{273,15\text{K}}{\sqrt{TT_0}} \left[ -G_P(\delta) \frac{dP}{dx} + G_T(\delta) \frac{P(x)}{T(x)} \frac{dT}{dx} \right] \quad (3.11)$$

Die Differentialgleichung wird mit den Randbedingungen  $P = P_{in}$  bei  $x = 0$  und  $P = 0$  bei  $x = L/2$  gelöst. Der Koordinatenursprung ist dabei in die Mitte des Quellrohres gelegt.

Sind Temperaturverlauf  $T(x)$  und Druckverlauf  $P(x)$  bekannt, lässt sich die Teilchendichte bestimmen:

$$n(x) = \frac{P(x)}{kT(x)} \quad (3.12)$$

Die Säulendichte  $N$  berechnet sich dann zu

$$N = 2 \int_0^{L/2} n(x) dx \quad (3.13)$$

Es lässt sich so bestimmen, bei welchem Einlassdruck und Durchsatz die Säulendichte von  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  erreicht wird. Sharipov ermittelte so die Werte [Sha04]: Durchsatz  $q = 1,853 \text{ mbar } \ell/\text{s}$  und Einspeisedruck in der Mitte des Quellrohres  $P_{in} = 3,006 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ . Daraus folgt, dass der Tritiumkreislauf so dimensioniert werden muss, dass ein Durchsatz von 40 g Tritium pro Tag stabil erreicht wird.

## 3.2 Das Prinzip der Tritiumkreisläufe

Die KATRIN Quelle wird bei einer Tritiumreinheit von mindestens 95% (stabilisiert auf 0.1%, Rest Protium und Deuterium) mit weniger als 1 ppm Verunreinigungen (beispielsweise Methan, Stickstoff oder Helium) betrieben. Dieses Ziel wird durch zwei Maßnahmen erreicht:

- Im Inneren Tritiumkreislauf „Inner Loop“ wird ein Palladium/Silber-Membranfilter („Permeator“) installiert, der nur für Wasserstoffisotope durchlässig ist.
- Um die hohe Tritiumkonzentration von mindestens 95% im Quellrohr der WGTS sicherzustellen, wird ein bestimmter Anteil des zirkulierenden Gases (ca. 1%) aus dem Inner Loop entnommen und zur Reinigung und Isotopentrennung in den Äußeren Tritiumkreislauf „Outer Loop“ von KATRIN geschickt. Der Inner Loop wird parallel durch Tritiumgas der gewünschten Reinheit aus einem Vorratsbehälter wieder aufgefüllt. Der Äußere Tritiumkreislauf gewährleistet eine stationäre Reinheit des Tritiums in der WGTS und umfasst nahezu die gesamte Infrastruktur des TLK. In Abbildung 3.3 ist dargestellt wie KATRIN in die Infrastruktur des TLK eingebunden ist.

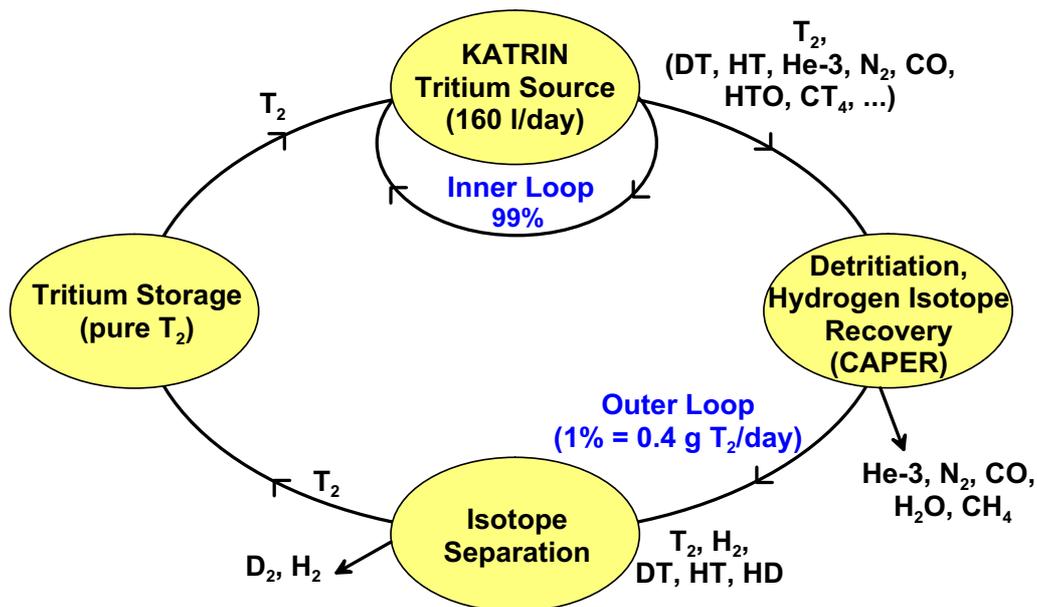


Abbildung 3.3: Der geschlossene Tritiumkreislauf des TLK.

### 3.2.1 Die stabilisierte Tritiumgaseinspeisung („Inner Loop“)

Wie in Abschnitt 3.1 gezeigt wurde, erfordert die Aufrechterhaltung der von KATRIN geforderten Gassäulendichte im Quellrohr eine auf 1‰ stabilisierte Tritiumeinspeiserate von 1,853 mbar  $\ell$ /s (Bezugstemperatur 273 K). Dies entspricht einem Durchsatz

von  $1,7 \cdot 10^{11}$  Bq/s oder 40 g Tritium pro Tag. Solch ein Durchsatz kann nur mittels geschlossener Tritiumkreisläufe realisiert werden<sup>1</sup>. Dabei wird das Gesamtinventar in den Tritiumkreisläufen im Betrieb bis zu 10 g Tritium betragen.

Abbildung 3.4 zeigt ein vereinfachtes Fließbild der Tritiumkreisläufe von KATRIN. Mit einem handelsüblichen Flussregler kann die Einspeiserate nicht mit der für KATRIN erforderlichen Stabilität geregelt werden. Bei KATRIN wird das Tritiumgas aus einem Einlassbehälter über eine Kapillare in das Quellrohr der WGTS eingespeist. Der Einlassbehälter wird druck- und temperaturstabilisiert. Die Einspeiserate in das Quellrohr wird über den Leitwert der Kapillare und den Druck im Einlassbehälter bestimmt<sup>2</sup>.

Das mit Turbomolekularpumpen aus dem Quellrohr abgepumpte Gas wird mittels Transferpumpen durch einen Palladium-Membranfilter (Permeator) in einen Vorratsbehälter gefördert. Aus diesem Vorratsbehälter wird wiederum der Einlassbehälter über ein Regelventil gespeist. Der Innere Kreislauf ist geschlossen.

Die Palladium-Silbermembran des Permeators ist nur für Wasserstoffisotope durchlässig. An ihr dissoziieren Wasserstoffatome, gehen in Lösung, diffundieren atomar hindurch und rekombinieren auf der anderen Seite. Verunreinigungen, wie Kohlenwasserstoffe oder  $^3\text{He}$  sammeln sich mit der Zeit vor dem Permeator an und können diesen blockieren. Daher wird vor dem Permeator ein Teilstrom des zirkulierten Gasgemisches (ca. 1%) entnommen, in einen Abfallbehälter gegeben und dann schubweise über den sogenannten Outer-Loop gereinigt. Die entnommene Gasmenge wird durch reines Tritiumgas aus der Isotopentrennanlage des TLK ersetzt.

Dieses Prinzip der stabilisierten Tritiumeinspeisung wurde erfolgreich mit dem inaktiven Testexperiment TILO (**T**est of **I**nner **L**oop) demonstriert, das schon die wesentlichen Hardware-Komponenten des echten Systems enthielt ([Kaz08]).

### 3.2.2 Bereitstellung von Tritium hoher Reinheit („Outer-Loop“)

Der Outer-Loop gewährleistet die von KATRIN geforderte Isotopenreinheit und deren Stabilität. Der Outer-Loop umfasst die gesamte bestehende Infrastruktur des TLK. Im Folgenden werden die einzelnen Stationen kurz beschrieben:

- **Tritiumlager:** Tritium wird chemisch auf Uran-Getterbetten gebunden gespeichert. Die Einlagerung erfolgt bei Raumtemperatur in gebundener Form als  $\text{UT}_x$ . Zur Zersetzung des Urantritids wird dieses auf max.  $490^\circ\text{C}$  erhitzt. Das Tritiumlager beinhaltet 9 Urangetterbetten, sowie ein Zirkon-Kobaltgetterbett. Insgesamt können laut Genehmigung bis zu 30 g Tritium im existierenden Tritiumlager gespeichert werden [Bes03].

<sup>1</sup>Das TLK besitzt eine Umgangsgenehmigung für 40 g Tritium, bei einem aktuellen Inventar von 25 g.

<sup>2</sup>Die Verbindungsleitung zur Quelle und die Einlasskapillare sind ebenfalls temperaturstabilisiert um den Leitwert konstant zu halten.

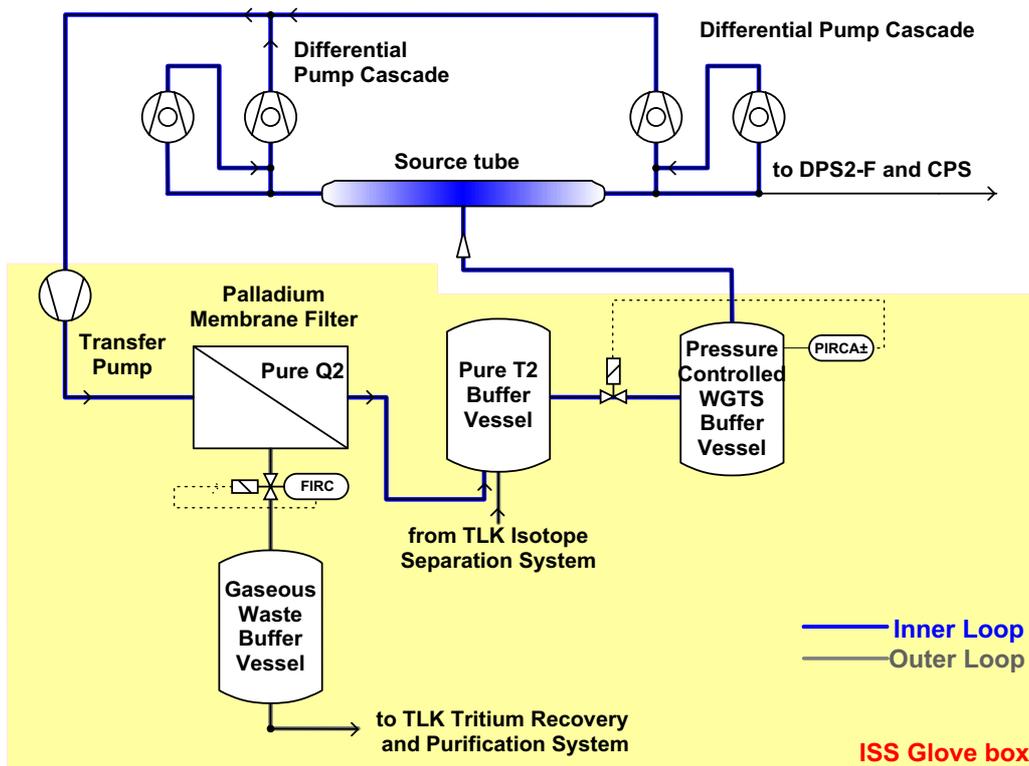


Abbildung 3.4: Vereinfachtes Fließbild der stabilisierten Tritiumeinspeisung

- Tritiumrückgewinnung:** In einem 3-Stufenprozess (CAPER Prozess), der im TLK entwickelt und realisiert worden ist, wird verunreinigtes Tritium wieder zurückgewonnen. Die erste Stufe beinhaltet einen Front-end-Permeator, der Wasserstoffisotope und Verunreinigungen trennt. Im darauf folgenden katalytischen Prozess werden Kohlenwasserstoffe thermisch zersetzt und Wasserdampf durch Kohlenstoffmonoxid reduziert. In einer dritten Stufe wird das Gas durch Isotopenaustausch in einem Gegenstromverfahren mit reinem Protium dekontaminiert. Es ist möglich Gase mit diesem 3-Stufenprozess auf Aktivitäten  $< 1 \text{ Ci/m}^3$  zu dekontaminieren [Bor03].
- Wasserstoffisotopentrennung:** Das TLK ist mit einer gaschromatografischen Isotopentrennanlage (ISS) ausgerüstet. In der Anlage werden Wasserstoffisotopengemische mittels Verdrängungsgaschromatografie in ihre Isotopenfraktionen getrennt. Sie beinhaltet eine Säule mit Palladium beschichtetem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , die bei Raumtemperatur und Atmosphärendruck betrieben wird [Doe02]. Es kann ein Mol Gas pro Tag (8 h) getrennt werden. Eine Tritiumreinheit von bis zu 99% kann erreicht werden und wird später bei KATRIN mittels Laser-Ramanspektroskopie überwacht. Die Isotopentrennanlage ist in der Handschuhbox aufgebaut, in der auch ein Teil des Inner-Loop eingebaut wird.

## 3.3 Der experimentelle Aufbau der Tritiumkreisläufe

### 3.3.1 Die Designkriterien für ein tritiumführendes System

Der Umgang mit Tritium führt zu Designkriterien, die in den Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen (TLA) des Tritiumlabors Karlsruhe festgelegt sind [TLA04]. Einige wichtige Auszüge seien hier erwähnt:

- 50% der Schweißnähte der Tritium führenden Komponenten sind einer Durchstrahlprüfung zu unterziehen<sup>3</sup>.
- Die Leckrate der Einzelkomponenten darf  $1 \cdot 10^{-9}$  mbar  $\ell/s$  nicht überschreiten, während die integrale Leckrate des Gesamtsystems maximal  $1 \cdot 10^{-8}$  mbar  $\ell/s$  betragen darf.
- Tritium führende Rohre und Behälter sind aus rostfreiem Edelstahl mit Materialzeugnis nach DIN EN 10204 zu fertigen.
- Dichtungen müssen metallisch sein (CF oder VCR-Dichtungen, kein Viton oder Teflon).
- Volumina sind klein zu halten, um das Inventar an Tritium zu minimieren.
- Behälter und Rohre sind so zu schweißen, dass sie im Innenraum spaltfrei sind.
- Oberflächen sollen möglichst glatt sein, um die Oberflächenkontamination gering zu halten (glasperlengestrahlt oder elektropoliert).

### 3.3.2 Überblick über den Aufbau der Tritiumkreisläufe

Abbildung 3.5 zeigt ein Übersichtsfließbild der Tritiumkreisläufe von KATRIN. Der Circulation-Loop und die Tritiumkreisläufe an der WGTS bilden den Inneren Tritiumkreislauf. Feed-Loop, Exhaust-Loop, die Tritiumkreisläufe an DPS2-F und CPS den Teil des Äußeren Tritiumkreislaufes, der nicht von der Infrastruktur des Tritiumlabors abgedeckt wird.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden der Tritium-Circulation-Loop, der Tritium-Feed-Loop und der Tritium-Exhaust-Loop aufgebaut und in Betrieb genommen. Diese drei Bereiche stellen den Teil der Tritiumkreisläufe dar, der innerhalb der ISS-Handschuhbox eingebaut wurde. Der andere Teil wird erst dann komplett aufgebaut, wenn die Magnetkryostate WGTS, DPS2-F und CPS vor Ort sind.

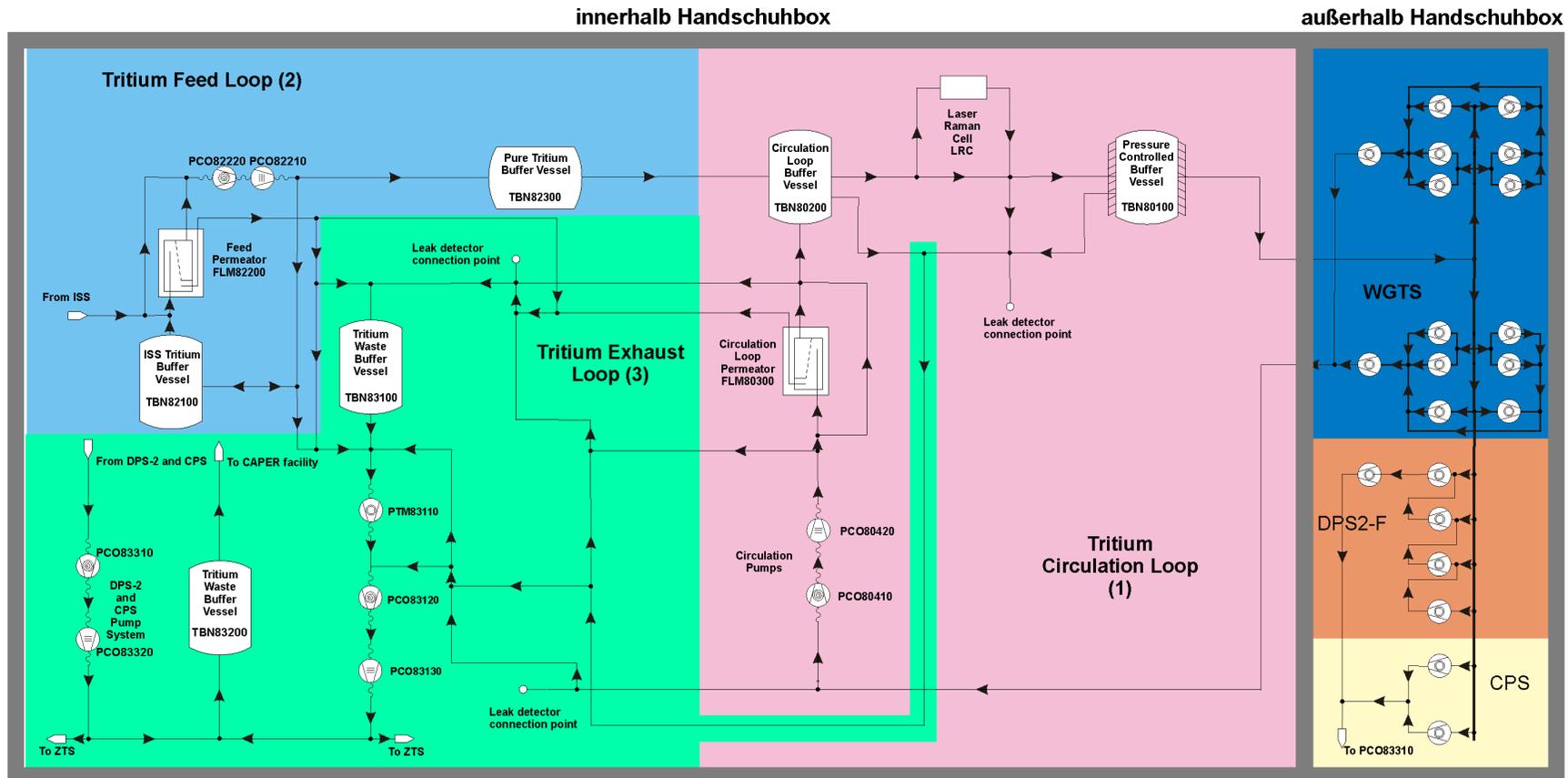
---

<sup>3</sup>Abweichend von den TLAs wurden 100% der Orbitalschweißnähte der Rohrleitungen des hier vorgestellten Systems einer Durchstrahlprüfung unterzogen, da sich die Schweißnähte als problematisch erwiesen.

**Tabelle 3.1:** Die für das Verständnis der Fließbilder relevanten Präfixe sind in der folgenden Tabelle aufgeführt:

Präfix	Komponententyp	Präfix	Komponententyp
FLM	Permeator	PCO	Pumpe
HEE	Heizung	PTM	Turbomolekularpumpe
LRC	Laser-Ramanzelle	TBN	Behälter
RPM	Membrandruckaufnehmer	VAI	automatisches Regelventil
RTC	Thermoelement	VAO	Automatikventil
FLM	Permeator	VMO	Handventil
RTP	Temperatursensor		

In den folgenden Abschnitten werden Fließbilder der einzelnen Teilbereiche der Tritiumkreisläufe präsentiert. Die dort dargestellten Komponenten sind gemäß KATRIN-Nummerierungssystem [Bor07] bezeichnet. Jede Komponente besitzt eine eindeutige Bezeichnung. Diese besteht aus einem Präfix, bestehend aus drei Buchstaben, gefolgt von einer 5-stelligen Zahlenkombination als Suffix. Die Buchstabenkombination gibt den Typ der Komponente an, der für jede Komponente eindeutige numerische Suffix dient der Identifizierung und Lokalisierung der Komponente. Die für das Verständnis der Fließbilder relevanten Präfixe sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Als Förderpumpen verwendet werden Pumpenkombinationen aus Spiraltaumelpumpe Typ Normetex 15 m<sup>3</sup>/h und Faltenbalgpumpe Typ Metal Bellows MB601DC. Als Turbomolekularpumpen werden Typ Leybold MAG 2800 entlang des Strahlrohrs von KATRIN eingesetzt. Als Druckaufnehmer finden standardmäßig ganzmetallische Druckaufnehmer des Herstellers MKS Verwendung. Ventile stammen von V.A.T. bzw. Swagelok.



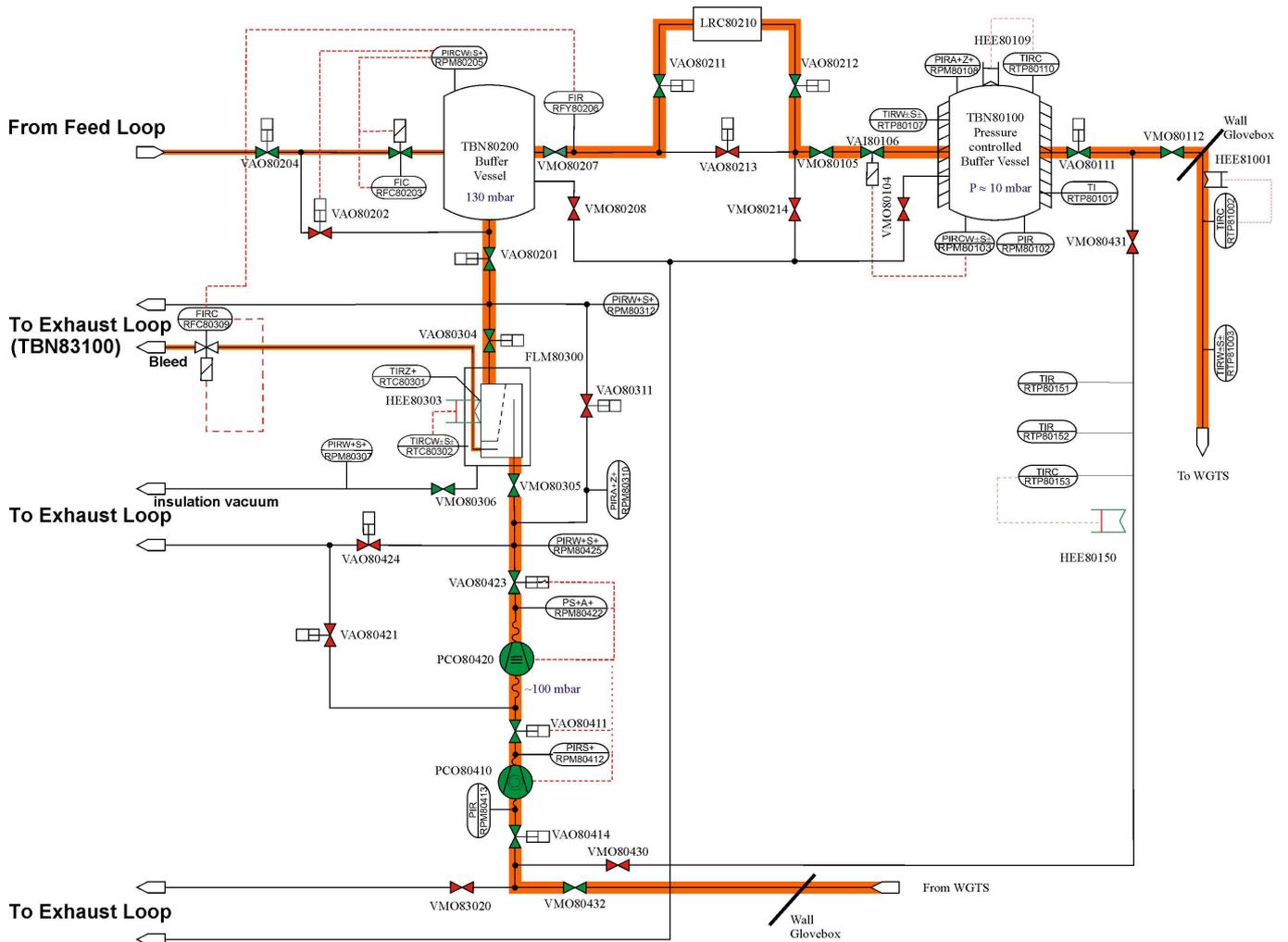
**Abbildung 3.5: Vereinfachtes Fließbild der Tritiumkreisläufe von KATRIN.** Die Tritiumkreisläufe sind in unterschiedliche funktionelle Bereiche aufgeteilt: die im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Bereiche Circulation-Loop, Feed-Loop und Exhaust-Loop in der ISS-Handschuhbox, sowie die Tritiumkreisläufe an WGTS, DPS2-F und CPS.

### 3.3.3 Der Innere Tritiumkreislauf

#### 3.3.3.1 Der Innere Tritiumkreislauf in der ISS-Handschuhbox

Das Herzstück der stabilisierten Tritiumeinspeisung in die WGTS ist der **Tritium-Circulation-Loop**. Er ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Tritium wird aus einem druck- und temperaturstabilisierten Einlassbehälter über eine Kapillare in das Quellrohr der WGTS eingespeist. Das dort abgepumpte Gas wird über einen Permeator in einen Pufferbehälter gefördert. Aus diesem Pufferbehälter wird der Einlassbehälter gespeist.

Der Druck im Einlassbehälter wird im Bereich 10 - 20 mbar liegen. Dieser Wert wird auf  $\pm 0,1\%$  druckstabilisiert. Der genaue Wert wird erst bestimmt werden können, wenn das Quell- und Transportsystem von KATRIN komplett aufgebaut ist. Die Einlassrate ist abhängig vom Druck im Einlassbehälter und vom Leitwert der Zuleitung zum Quellrohr. Diese besteht aus der Einlasskapillare und der Verbindungsleitung zwischen ISS-Box und der Einlasskapillare. Der genaue Wert für den Druck im Einlassbehälter, der für die Aufrechterhaltung der Säulendichte von  $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  benötigt wird, wird am kompletten System experimentell bestimmt werden, da dies von der technischen Realisierung der Einlasskapillare an der WGTS abhängt. Auch muss das Regelsystem variabel genug sein, um KATRIN mit anderen Einlassraten und daraus resultierend anderen Gassäulendichten im Quellrohr stabil zu betreiben. Dies wird beispielsweise für systematische Messungen zur Bestimmung der Energieverlustfunktion notwendig sein. Bei dieser Art von Messungen wird der Energieverlust von Elektronen, die z.B. von einer monoenergetischen Elektronenkannonen stammen und in der Tritiumquelle inelastisch streuen, gemessen. Der Strahl muss zu diesem Zweck die gesamte WGTS bei verschiedenen Tritiumdichten durchlaufen. Bei diesen für KATRIN sehr wichtigen Messungen müssen Säulendichten im Bereich 10% - 100% angefahren und stabilisiert werden können.



**Abbildung 3.6: Verfahrenstechnisches Fließbild des Circulation-Loop.**

Der Weg des Tritiums ist orange hinterlegt. Tritium wird aus Einlassbehälter TBN80100 (Pressure Controlled Buffer Vessel) über eine Kapillare in das Quellrohr der WGTS geleitet. Das in der WGTS abgepumpte Tritium wird mit PCO80410 und PCO80420 über Permeator FLM80300 in Pufferbehälter TBN80200 (Buffer Vessel) gefördert. Am Permeator FLM80300 werden Verunreinigungen aus dem zirkulierten Wasserstoffstrom abgetrennt. Ca. 1% des zirkulierten Volumenstroms wird vor dem Permeator abgetrennt und in den Tritium-Exhaust-Loop gegeben. Über Pufferbehälter TBN80200 wird Einlassbehälter TBN80100 über ein Regelventil gespeist und so auf einen Wert im Bereich 10 - 20 mbar auf  $\pm 0,1\%$  druckstabilisieren. In Laser-Ramanzelle LRC80210 wird die Zusammensetzung des Gases mittels Laser-Ramanspektroskopie in-line überwacht (Mehr dazu in den Kapiteln 4 und 5). TBN80100 wird durch eine Heizung auf  $45^\circ\text{C} \pm 0,3^\circ\text{C}$  temperaturstabilisiert. Auf die absolute Temperaturskala bezogen ist das eine Stabilisierung auf 0,1%. Über Drucksensor RPM80103 wird der Druck geregelt. Drucksensor RPM80102 ist besser aufgelöst und dient als vom Regler unabhängiger Referenzsensor.

Um die am Permeator abgetrennte Gasmenge zu ersetzen, wird der Circulation-Loop mit Tritium aus dem Feed-Loop nachgespeist.

Zur Druckstabilisierung im Einlassbehälter wird ein thermostabiler hochpräziser Membrandruckaufnehmer Typ MKS Baratron 690A verwendet (Auflösung: 0,0001 mbar).

### 3.3.3.2 Der Innere Tritiumkreislauf außerhalb der ISS-Handschuhbox

Der Teil des Kreislaufs besteht aus dem Quellrohr der WGTS, sowie den Pumpen, Sensoren und Ventilen, die direkt daran angebaut werden. Abbildung 3.7 zeigt das Fließbild der Tritiumkreisläufe an der WGTS. Über eine Kapillare wird in die Mitte des Quellrohrs der WGTS Tritium aus dem Circulation-Loop eingespeist. Das mit Turbomolekularpumpen aus der Quelle abgepumpte Tritium wird wieder in den Circulation-Loop zurückgeführt.

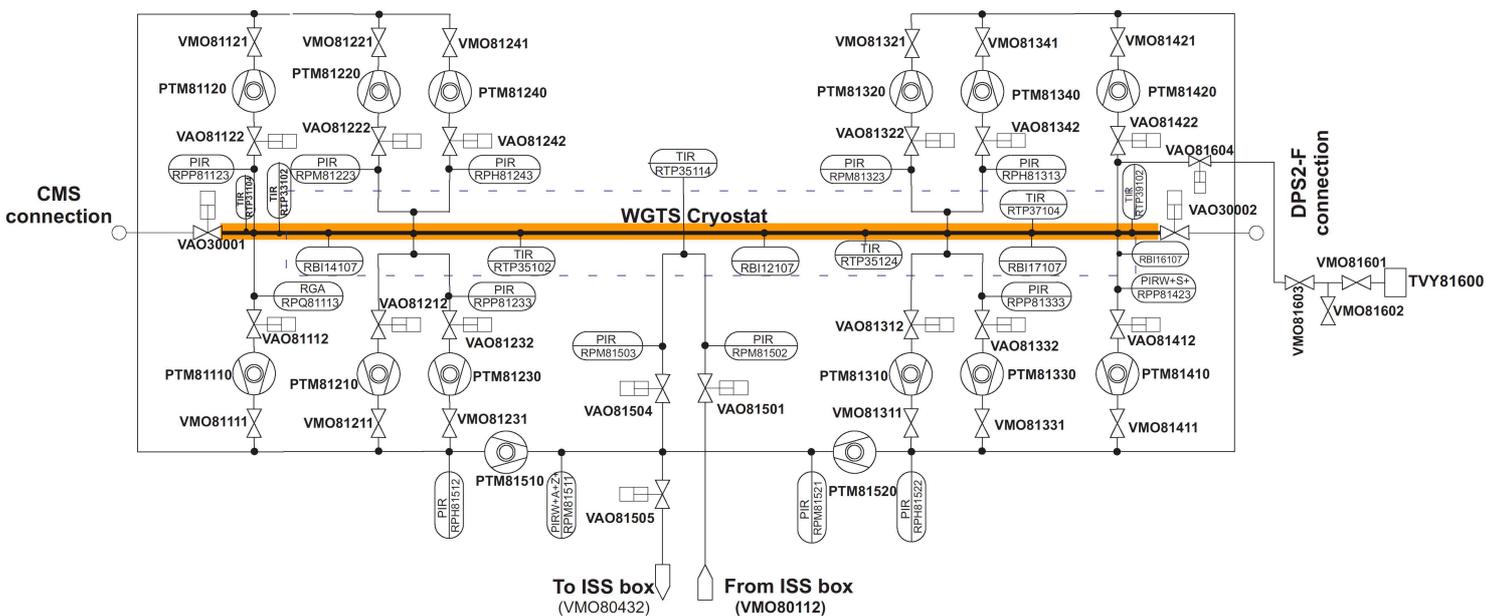
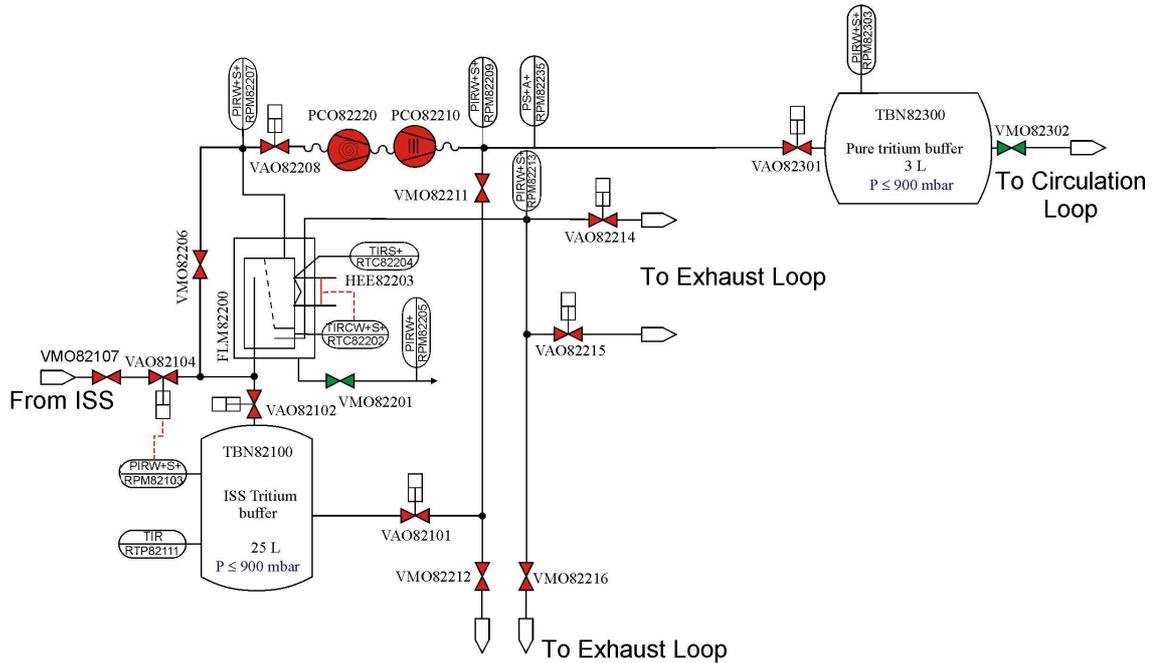


Abbildung 3.7: Fließbild der Tritiumkreisläufe an der WGTS. Tritium aus dem Circulation-Loop wird in der Mitte des Quellrohrs eingespeist, strömt zu beiden Seiten und wird mit den 12 Turbomolekularpumpen abgepumpt und wieder dem Circulation-Loop zugeführt.

### 3.3.4 Der Äußere Tritiumkreislauf

#### 3.3.4.1 Der Äußere Tritiumkreislauf in der ISS-Handschuhbox:

**Der Tritium-Feed-Loop:** Der Tritium-Feed-Loop stellt dem Tritium-Circulation-Loop das für den Betrieb benötigte Tritium zur Verfügung. Er ist in Abbildung 3.8 dargestellt. Ein Pufferbehälter dient als Vorratsbehälter für den Tritium-Circulation-Loop. Dieser wird über einen Permeator und einen weiteren Pufferbehälter mit Tritium aus der ISS befüllt.

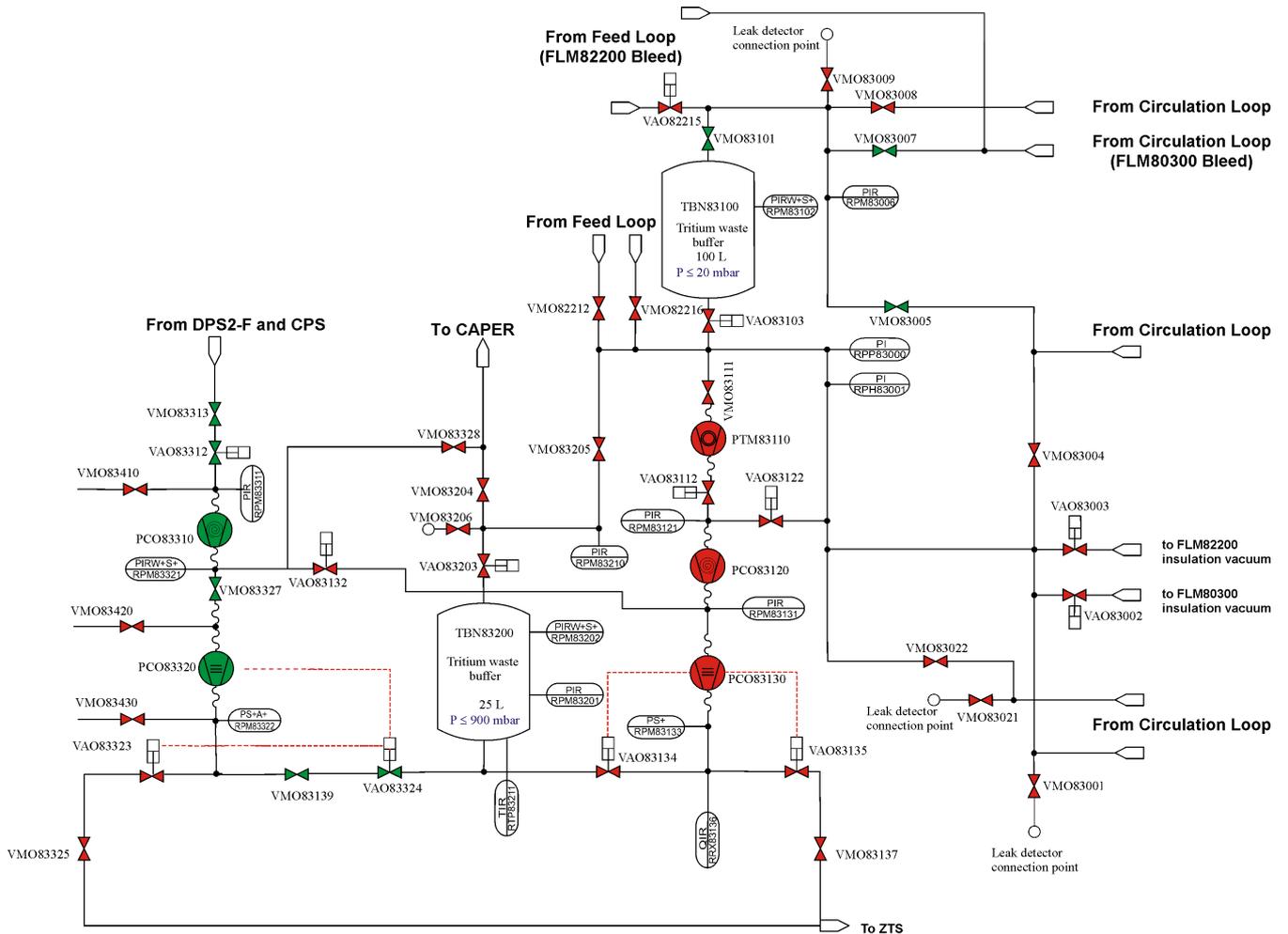


**Abbildung 3.8: Verfahrenstechnisches Fließbild des Feed-Loop.** Der Tritium-Feed-Loop stellt dem Tritium-Circulation-Loop das für den Betrieb benötigte Tritium zur Verfügung. Pufferbehälter TBN82300 (Pure Tritium buffer) dient als Vorratsbehälter für den Tritium-Circulation-Loop. TBN82300 wird über Permeator FLM82200 mit den Pumpen PCO82220 und PCO82210 mit Tritium aus Pufferbehälter TBN82100 (ISS Tritium Buffer) aufgefüllt. TBN82100 wird direkt mit Tritium aus der ISS befüllt.

**Der Tritium-Exhaust-Loop:** Der Tritium-Exhaust-Loop sammelt das Tritium, das nicht mehr dem Tritium-Circulation-Loop zugeführt wird und dient zum Evakuieren der Tritiumkreisläufe. Das Fließbild ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Eine Pumpenkombination fördert das in DPS2-F und CPS abgepumpte Gas in einen Pufferbehälter. Aus diesem wird das Gas zur Tritiumrückgewinnung an die CAPER-Anlage abgegeben.

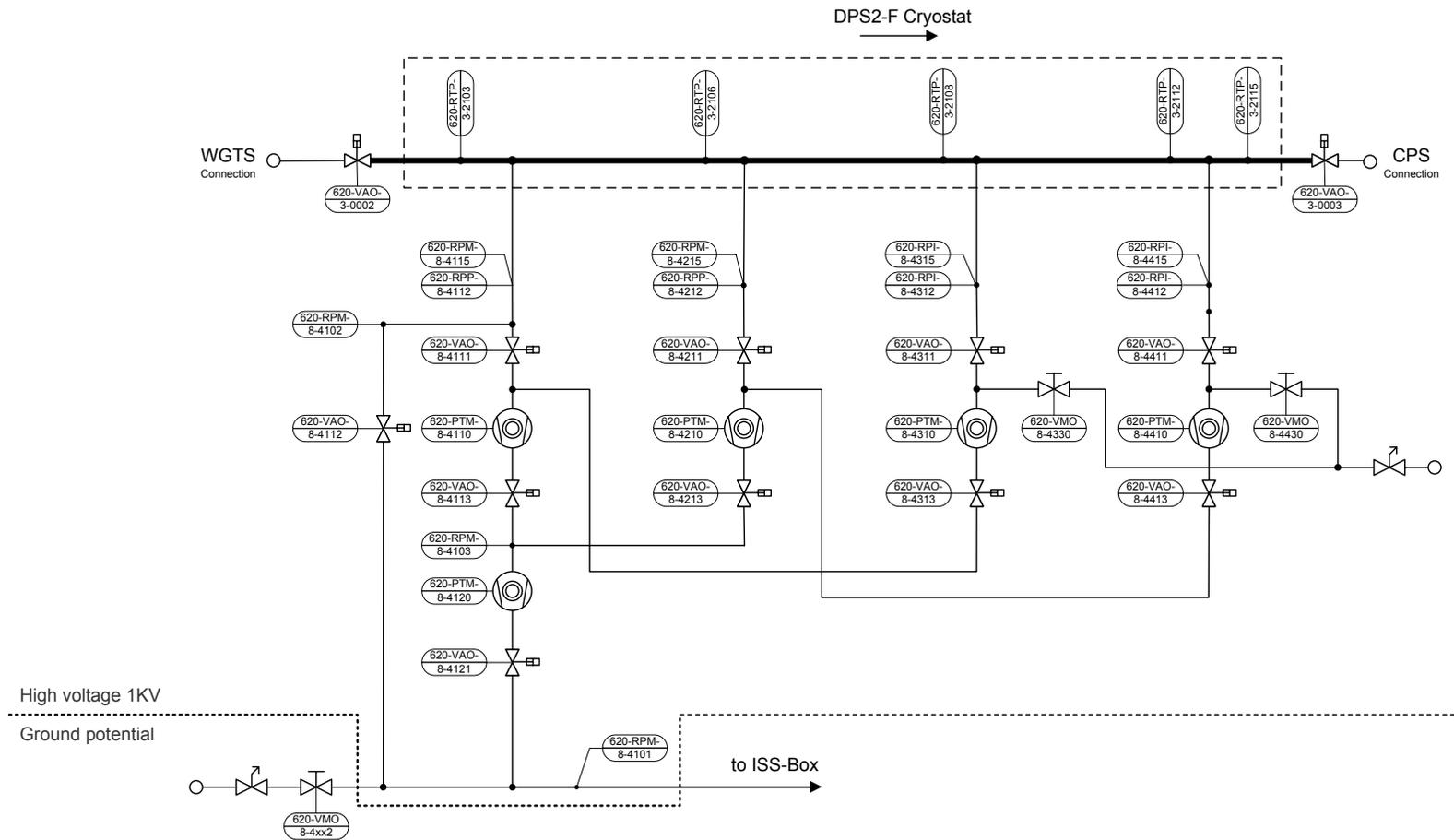
### 3.3.4.2 Der Äußere Tritiumkreislauf an der DPS2-F

An die Quelle schließt sich die DPS2-F an. In sie strömt  $\lesssim 10^{-2}$  mbar  $\ell/s$  Tritium ( $\sim 10^9$  Bq/s ( $\sim 0,03$  Ci/s)) aus der Quelle. Am Strahlrohr der DPS2-F pumpen differentiell angeordnete Turbomolekularpumpen das Tritium ab und geben es an den Tritium-Exhaust-Loop ab. Abbildung 3.10 zeigt das Fließbild der Tritiumkreisläufe an der DPS2-F.



**Abbildung 3.9: Verfahrenstechnisches Fließbild des Exhaust-Loop.**

Der Exhaust-Loop sammelt das im Circulation-Loop abgetrennte Gas und das Gas, das in der differentiellen Pumpstrecke abgepumpt wird. In Pufferbehälter TBN83100 (Tritium waste buffer 100 L) wird das am Permeator des Tritium-Circulation-Loop abgetrennte Gas gegeben. Dieser Pufferbehälter ist mit 100 l Volumen so dimensioniert, dass sein Druck während einer Messphase auf nicht mehr als 20 mbar ansteigt, ohne dass er zusätzlich evakuiert werden muss. Er dient daher auch als „passive Pumpe“ bei Sicherheitsabschaltungen. TBN83100 kann mit Spiraltaumpumpe PCO83120 und Faltenbalgpumpe PCO83130 sowie PTM83110 in TBN83200 evakuiert werden. Zudem dient er der Evakuierung der gesamten Anlage. Aus der DPS2-F abgepumptes Gas wird über PCO83310 und PCO83330 in TBN83200 gefördert. Der Inhalt von TBN83200 wird an CAPER zur Reinigung und Tritiumrückgewinnung abgegeben.



**Abbildung 3.10:** Verfahrenstechnisches Fließbild der Tritiumkreisläufe an der DPS2-F. Mit differenziell angeordneten Turbomolekularpumpen wird Gas aus dem Strahlrohr der DPS2-F abgepumpt und an den Exhaust-Loop abgegeben.

### 3.3.4.3 Der Äußere Tritiumkreislauf an der CPS

Als letzte Rückhaltstufe für Tritium vor den Spektrometern ist der DPS2-F eine kryogene Pumpstrecke nachgeschaltet. In ihr werden Tritiummoleküle, die die DPS2-F passieren, an einer Argonfrostschrift adsorbiert. Beim Regenerieren der CPS wird das abgepumpte Spülgas über den Exhaust-Loop zur Tritiumrückgewinnung abgegeben. Das endgültige Layout liegt noch nicht vor. Mit dem Testexperiment TRAP wurde bereits erfolgreich demonstriert, dass die Tritiumflussreduktion von Tritium mit einer Argonfrostschrift auf dem für KATRIN relevanten Level möglich ist ([Eic08], [Stu07]).

### 3.3.5 Das Prozessleitsystem für die Tritiumkreisläufe

Der sichere Betrieb der Tritiumkreisläufe wird durch die Fortführung der bisherigen TLK-Prinzipien gewährleistet.

Die Tritiumkreisläufe von KATRIN werden von einem (eigenen) lokalen Prozessleitsystem (LLS) gesteuert und überwacht. Dieses ist an das zentrale Prozessleitsystem des TLK sowie an die Sicherheitsschaltung des TLK gekoppelt, so dass in allen Fällen die Überwachung und ggf. die Überführung in sichere Zustände gewährleistet ist. Der steuerungstechnische Teil basiert auf einer speicherprogrammierbaren Steuerung (Siemens Simatic PCS7). Zur Bedienung, Beobachtung und Datenaufnahme dient ein PC mit der entsprechenden Anwendersoftware. Bei Überschreiten definierter Grenzwerte wird vom LLS einer der Sicheren Zustände A1 - A7 angefahren. Eine Beschreibung der Sicheren Zustände befindet sich in [STB09] und in Anhang A.

Für alle sicherheitstechnisch relevanten Messstellen sowie für Messstellen des Komponentenschutzes gibt es redundante, fest verdrahtete Schaltkreise der Sicherheitsschaltung. Bei Überschreiten vorgegebener Grenzwerte oder Betätigung einer der Not-Aus-Schalter werden die Tritiumloops durch die Sicherheitsschaltung abgeschaltet.

Schaltgrenzwerten sind immer Warngrenzwerte vorgeschaltet, die den Operateur auf eine beginnende Abweichung vom Sollzustand aufmerksam machen. Dadurch kann der Operateur durch entsprechende Eingriffe den Sollzustand wieder herbeiführen und somit vermeidbare Abschaltungen verhindern. Die Schaltgrenzwerte zum LLS und zur Sicherheitsschaltung sind gestaffelt, so dass die Sicherheitsschaltung im Allgemeinen erst handelt, wenn erforderliche Schaltungen vom LLS nicht greifen.

Die Programmierung und Erstellung des Prozessleitsystems wurde durch die MAT-Gruppe (Mess- und Automatisierungstechnik) des Tritiumlabors durchgeführt. Der Aufbau der Schaltschränke (Abbildung 3.11) und die Verkabelungen erfolgten durch die Firma ALPHA unter Aufsicht der MAT-Gruppe des TLK.



Abbildung 3.11: Schaltschränke der Tritiumkreisläufe.

### 3.4 Montage und Inbetriebnahme der Tritiumkreisläufe

Der Aufbau der Tritiumkreisläufe von KATRIN erfolgt in mehreren Schritten, die durch das Lieferdatum der Komponenten WGTS, DPS2-F und CPS beeinflusst werden:

- Als erstes wird der in der Handschuhbox befindliche Teil der Kreisläufe aufgebaut, in Betrieb genommen und getestet.
- In einem 2. Schritt werden die Verbindungsleitungen zur TLK-Infrastruktur montiert (Verbindungsleitung zur Isotopentrennanlage, Verbindungsleitung zu CAPER), aber noch nicht an die Tritiumkreisläufe von KATRIN angeschlossen.
- Nach Lieferung und Installation der WGTS, der DPS2-F und der CPS werden Pumpen, Sensoren und Ventile an die Großkomponenten montiert und dann über Verbindungsleitungen mit dem in der Handschuhbox befindlichen Teil der Tritiumkreisläufe verbunden. Danach werden die Zweiten Hüllen installiert.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der in der Handschuhbox befindliche Teil der Tritiumkreisläufe aufgebaut und in Betrieb genommen, sowie die Verbindungsleitungen zu CAPER und zur ISS installiert und in Betrieb genommen. An Aufbau und Planung waren eine Vielzahl Personen beteiligt, unter anderem Florian Priester, der hierzu seine Diplomarbeit anfertigte ([Pri10]).

### 3.4.1 Vorgehensweise für den schrittweisen Aufbau der Tritiumkreisläufe in der Handschuhbox

Vor Beginn der vorliegenden Arbeit war, basierend auf den Erfahrungen des Testexperimentes TILO ([Kaz08]) ein verfahrenstechnisches Fließbild der Tritiumkreisläufe erarbeitet worden. Die benötigten Komponenten wurden identifiziert. Als Einbauort wurde eine existierende Handschuhbox des Tritiumlabors gewählt. Diese befindet sich in dem Bereich des Labors, in dem auch der WGTS-Kryostat installiert werden wird. In dieser Handschuhbox befand sich bis dato alleinig die Isotopentrennanlage des TLK (ISS). Durch einen Umbau dieser Anlage konnten nicht mehr benötigte Anlagenteile aus der Handschuhbox ausgebaut und somit Platz für einen zusätzlichen Einbau geschaffen werden.

Die Komponenten wurden unter Berücksichtigung der technischen Liefer- und Abnahmebedingungen des TLKs ([TLA04]) hergestellt bzw. erworben. Behälter und Permeatoren wurden von BTI-F (Bereich Technische Infrastruktur - Fertigung) des Forschungszentrums Karlsruhe (jetzt TID-DGT-TEC des Campus Nord) hergestellt. Vor Einbau wurden diese auf ihre Funktion und Dichtigkeit überprüft<sup>4</sup>. Die für die Dokumentation notwendigen Unterlagen (Typenblätter, Materialzeugnisse usw.) wurden archiviert.

Anhand des zur Verfügung stehenden Platzes war in Zusammenarbeit mit dem IRS (Institut für Reaktorsicherheit) ein 3D-Modell der geometrischen Anordnung der Tritiumkreisläufe und der Rohrleitungsverläufe in der Handschuhbox mit dem CAD-Programm CATIA erstellt worden (Abb. 3.12). Dieses entstand unter Berücksichtigung der bestehenden Rahmenstruktur und der bereits vorhandenen Einbauten. Dieses Modell war die Basis für den Einbau.

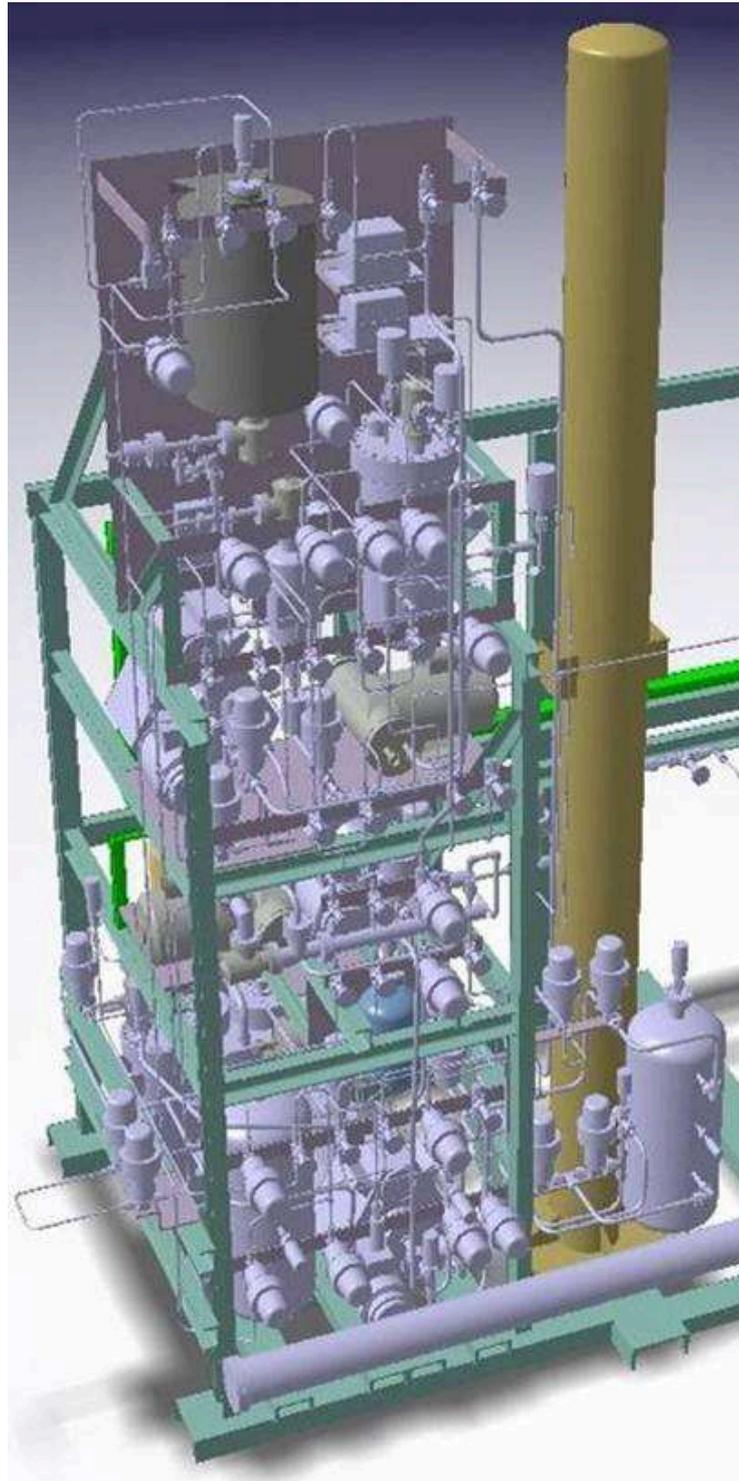
Die Tritiumkreisläufe werden erst nach erfolgter Anlieferung und Abnahme des WGTS-Kryostaten mit Tritium in Betrieb genommen<sup>5</sup>. Um dennoch Laser-Raman-Messungen mit zirkulierendem Tritiumgas durchführen zu können, wurde parallel dazu der Testkreislauf LOOPINO installiert. Loopino greift auf Komponenten des Exhaust-Loop zurück. Dieser Teil der Anlage wird erst unmittelbar vor Beginn der Tritiummessungen mit dem gesamten Kreislauf an die Anlage angeschlossen werden und kann somit für einen zwischenzeitlichen Testaufbau verwendet werden. LOOPINO wird in Abschnitt 4.5 vorgestellt.

Parallel zum Aufbau wurden die für die Genehmigung benötigte Sicherheitstechnische Beschreibung erstellt und eine HAZOP-Studie (Hazard and Operability) durchgeführt ([STB09], [HAZ09]).

---

<sup>4</sup>Pufferbehälter wurden vor Einbau zusätzlich gereinigt.

<sup>5</sup>Sobald eine Anlage mit Tritium betrieben wurde, ist diese kontaminiert, eine vollständige Dekontamination ist praktisch nicht durchführbar



**Abbildung 3.12: 3D-Layout des ISS-Boxteils der Tritiumkreisläufe.** Dargestellt ist das 3D-Layout des ISS-Boxteils der Tritiumkreisläufe, das Basis für den Einbau war. Dieses Modell war vorab mit dem CAD-Programm CATIA erstellt worden (mit Unterstützung durch das IRS).

### 3.4.2 Montage des Handschuhboxenteils der Tritiumkreisläufe in der ISS-Box

Bei der ISS-Handschuhbox handelt es sich um ein bereits bestehendes kontaminiertes Gewerk des Tritiumlabors. Eine Öffnung einer Handschuhbox und Einbau einer Anlage muss unter Beachtung der vom Strahlenschutz geforderten Auflagen erfolgen. Zur Montage der einzelnen Bauteile in der Box waren u.a. folgende Maßnahmen erforderlich:

- Die Isotopentrennanlage musste außer Betrieb gesetzt werden. Das in der Anlage befindliche Tritium wurde an andere Gewerke der TLK-Infrastruktur abgegeben. Dies erfolgte durch die Verfahrenstechnikgruppe des TLK.
- Ein abgesperrter Interventionsbereich um die Handschuhbox herum wurde eingerichtet. Dazu wurde der Bereich um die Box weiträumig abgesperrt und mit Folie ausgelegt (siehe Abb. 3.13).
- Die Handschuhbox wurde dekontaminiert und danach Kontaminationskontrollen durch Wischtests durchgeführt. Dabei wurden Oberflächenkontaminationen ermittelt, die im Bereich unter  $10 \text{ Bq/cm}^2$  – weit unterhalb der Freigrenze von  $100 \text{ Bq/cm}^2$  – lagen.
- Die Strahlenschutzauflagen mussten eingehalten werden: Bei Arbeiten an der geöffneten Handschuhbox wurde die Raumluft mit einem Proportionalzähler auf Aktivität überwacht. Regelmäßige Wischtests durch den Strahlenschutz wurden durchgeführt. Auch hier lagen die Oberflächenkontaminationen unter  $10 \text{ Bq/cm}^2$ . Arbeiten wurden im Overall und mit Handschuhen und Überschuhen durchgeführt. Die am Aufbau beteiligten Personen wurden mittels Urinproben auf Kontamination mit Tritium überwacht. Keine der am Aufbau beteiligten Personen hat durch den Aufbau eine Dosis erhalten.
- Zum Einbau musste die bestehende Rahmenstruktur angepasst werden. Massive Edelstahl-U-Profile mussten in beengten Platzverhältnissen mit Handsägen herausgetrennt werden. Zusätzliche Rahmenprofile mussten eingeschweisst werden (siehe Abbildung 3.14).

Nach Durchführung dieser zeitaufwändigen Maßnahmen erfolgte die Montage der Komponenten, teilweise unter Zuhilfenahme eines Krans.

### 3.4.3 Die Verrohrung der Anlage

Nach Montage der Einzelkomponenten in der ISS-Box wurde im November 2008 mit den Verrohrungsarbeiten durch die Firma MHC Anlagentechnik GmbH begonnen. Zum Verbinden der einzelnen Komponenten untereinander wurden mehr als 70 Rohrleitungen angefertigt.



Abbildung 3.13: Interventionsbereich um die ISS-Box.

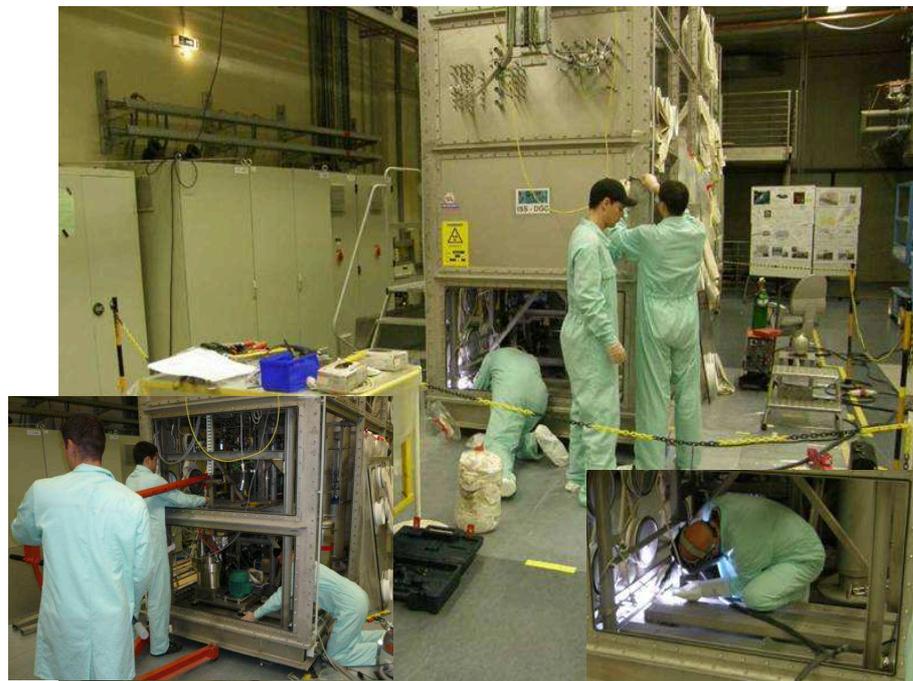


Abbildung 3.14: Einbauarbeiten in der Handschuhbox.

Das Anfertigen einer Leitung umfasste folgende Schritte:

- Festlegung des Verlaufs der Rohrleitung: Vor Anfertigung einer Rohrleitung

wurde ihr Verlauf festgelegt. Es zeigte sich, dass die durch das CAD-Programm CATIA automatisch erstellten Rohrleitungsverläufe in einem Großteil der Fälle nicht praktikabel waren und ein anderer Verlauf gewählt werden musste. Die Gründe dafür finden sich in Abschnitt 3.4.5.

- Biegen und Zuschneiden der Leitungen.
- Zusammenschweißen der Rohrleitungen unter Einhaltung des zugrundeliegenden Schweißplans: Elemente wie Anschweißstutzen, Kreuz-, T-, oder Übergangsstücke wurden durch Orbitalschweißung eingeschweißt.
- Nummerierung der Leitung gemäß des KATRIN-Nummerierungssystems [Bor07].
- Erstellung einer isometrischen Zeichnung der Leitung und einer Stückliste.
- Vorläufige Montage in der Box: die fertiggestellte Leitung wurde vorab in der Anlage montiert, so dass eine Kollision mit später gefertigten Leitungen vermieden wurde.

Nachdem alle Leitungen hergestellt und vormontiert waren, wurden diese wieder demontiert und vom Strahlenschutz freigemessen. Anschließend erfolgte eine Durchstrahlprüfung aller Schweißnähte nach DIN EN ISO 5817:2003-12 mit Zusatzmerkblatt für Orbitalschweißungen durch die Firma DEKRA. Leitungen, deren Schweißnähte die Durchstrahlprüfung bestanden hatten, wurden gereinigt und einem Lecktest unterzogen. Isometrien und Stücklisten wurden überprüft. Danach erfolgte die Endmontage. Leitungen mit fehlerhaften Schweißnähten wurden repariert bzw. neu gefertigt. Ein Großteil der Arbeit erfolgte im Rahmen der Diplomarbeit von Florian Priester [Pri10]. Eine detaillierte Beschreibung der Anfertigung und Qualitätssicherung der Rohrleitungen ist dort zu finden.

#### 3.4.4 Die Inbetriebnahme des ISS-Box-Teils der Anlage

Nach Zusammenbau der Anlage wurde eine Dichtheitsprüfung der Anlage und die elektrische Inbetriebnahme durchgeführt. Die Dichtheitsprüfung erfolgte mit einem Heliumleckdetektor, der an die Anlage angeschlossen wurde<sup>6</sup>. Die Lecksuche umfasste folgende Schritte:

- Von den einzelnen Anschlusspunkten des Lecksuchers aus wurden Rohrleitungen und Komponenten durch Öffnen der entsprechenden Ventile schrittweise zum geprüften Bereich hinzugefügt. Die Anschlussflansche der einzelnen Komponenten wurden von außen mit Helium angesprüht. Lag die Leckrate über den geforderten  $10^{-9}$  mbar  $\ell/s$  wurde die Lecksuche unterbrochen, die Leckage beseitigt und die Komponente erneut überprüft.

---

<sup>6</sup>Der Untergrund des Lecksuchers lag im Bereich im Bereich  $1 - 7 \cdot 10^{-10}$  mbar  $\ell/s$ . Mit diesem Gerät kann eine Dichtheitsprüfung auf die für Primärsysteme geforderte Einzelleckrate  $< 10^{-9}$  mbar  $\ell/s$  durchgeführt werden.

- Die Dichtheitsprüfung wurde anhand der Komponenten- und Rohrleitungsliste dokumentiert.

Nach Einzelprüfung der mehr als 200 Einzelkomponenten wurde ein integraler Lecktest durchgeführt. Dazu wurde die Handschuhbox geschlossen. Der Lecksucher wurde über eine Boxendurchführung an das Vakuumsystem der Tritiumkreisläufe angeschlossen, und sämtliche Ventile innerhalb der Kreisläufe geöffnet. Die Handschuhbox wurde mit Helium geflutet. Die Gesamtleckrate lag unter den geforderten  $10^{-8}$  mbar  $\ell/s$ .

Die erfolgreich durchgeführte und dokumentierte elektrische Inbetriebnahme umfasste folgende Punkte:

- Verkabelung der Sensoren, Pumpen und Heizungen und Anschluss an den Schaltschrank.
- Pneumatikanschluss<sup>7</sup> der Automatikventile und Verkabelung der Endlagenschalter.
- Funktions- und Plausibilitätsprüfung der Ventile, Rückmeldeeinheiten, Sensoren und Pumpen.
- Test des Auslösens der Sicheren Zustände (Anhang A) bei Anfahren der Schwellwerte.

### 3.4.5 Gewonnene Erfahrungswerte bei der Montage in Handschuhboxen

Während der Einbauphase traten eine Vielzahl von Problemen auf, die gelöst werden mussten. Bereits vor Beginn der vorliegenden Arbeit lag ein CAD-Modell vor, das den in der Handschuhbox verfügbaren Platz, sowie die Geometrien der Komponenten und Rohrleitungen beinhaltet. Darauf basierend wurden zusätzliche Rahmenstrukturen vorbereitet. Ursprünglich wurde die Platzierung der Komponenten beim Einbau weitestgehend übernommen. Ein wichtiger Aspekt bei einer Anlage, die später mit Tritium betrieben werden soll, ist die Zugänglichkeit der Komponenten bei Bedienung durch Handschuhe. Das war nicht überall gewährleistet. Während des Einbaus wurden einige problematische Anordnungen identifiziert.

- Ventile waren im CAD-Modell so angeordnet, dass sie weitestgehend gut erreichbar sind und im Falle eines Defekts mit vertretbarem Aufwand getauscht werden können. Ein Verbesserungspotential für zukünftige Aufbauten wäre hier: Halteplatten und Stützkonstruktionen hätten kleiner dimensioniert werden können. Damit würde die Handhabung in der Box erleichtert.

---

<sup>7</sup>Die zur Ansteuerung der Automatikventile verwendete Ventilinsel befindet sich innerhalb der Handschuhbox. Sie wird mit Stickstoff anstatt Druckluft betrieben.

- Für die verwendeten Komponenten wurden im CAD-Modell falsche und unvollständige Geometriedaten verwendet. Die verwendeten 1/2-Zoll Automatikventile hatten falsche Geometrien. Bei den Faltenbalgpumpen Typ Metal Bellows waren Ein- und Ausgang vertauscht, sowie die Geometrie nicht vollständig nachgebildet worden. Die Anordnungen konnten so nicht realisiert werden, sondern mussten abgeändert werden.
- In der CAD-Planung war - entgegen sämtlicher Warnhinweise des Herstellers - bei allen Spiraltaumelpumpen vom Typ Normetex vorgesehen, diese starr an den Rohrleitungsverlauf anzuschliessen. Die Anordnung der Komponenten wurde abgeändert, um die Verwendung von Standardwellbälgen zu ermöglichen. Bei einer der Pumpen wurde ursprünglich eine platzsparende Spezialanfertigung verwendet. Bei dieser versagte bereits kurz nach Inbetriebnahme der Pumpe eine Schweißnaht. Die Anordnung in der Handschuhbox wurde geändert, um einen Austausch gegen Standardkomponenten zu ermöglichen.
- Im CAD-Modell wurden mehrfach Komponenten an Stellen platziert, die bereits mit Rohrleitungen und Komponenten der Isotopentrennanlage (kontaminierte Rohrleitungen, Verteilerkästen) belegt waren. Eine Änderung der geplanten Platzierung der KATRIN-Komponenten wäre nur noch mit großem zeitlichen Aufwand möglich gewesen. Die Komponenten der Isotopentrennanlage, die mit dem geplanten Aufbau kollidierten, wurden verlegt.
- Eine der verwendeten Pumpen wurde in einen anderen Teil der Handschuhbox verlegt. Ein Einbau am ursprünglich vorgesehene Platz war nicht praktikabel. Erreichbarkeit und insbesondere ein Austausch der Pumpe wäre an der ursprünglich vorgesehenen Stelle in der Praxis, d.h. nach erfolgter Inbetriebnahme mit Tritium nicht durchführbar gewesen.
- Der Platzbedarf für die elektrischen und pneumatischen Anschlüsse der Komponenten war nicht berücksichtigt worden.
- Eine ursprünglich vorgesehene Kolbenpumpe Typ Thales wurde gegen eine Pumpenkombination bestehend aus einer Spiraltaumelpumpe und einer Faltenbalgpumpe getauscht<sup>8</sup>, da die Kolben Abrieb produzierten.
- Unabhängig davon war der vom CAD-Programm automatisch erstellte Rohrleitungsverlauf nicht verwendbar (zu geringe Abstände, zu komplizierte Rohrleitungsverläufe, Kollisionen).

Zu Beginn der Testmessung mit Deuterium löste die Balgbruchüberwachung einer der vier verwendeten Faltenbalgpumpen aus<sup>9</sup>. Diese tritiumkompatiblen Pumpen

---

<sup>8</sup>Mit der Spiraltaumelpumpe wird ein Enddruck  $< 10^{-3}$  mbar erreicht. Sie kann aber nur bei einem Druck am Ausgang  $< 200$  mbar betrieben werden. Daher wird sie mit einer Faltenbalgpumpe als Vorpumpe betrieben.

<sup>9</sup>Der genaue Zeitpunkt des Auftretens des Defekts ist nicht nachvollziehbar. Er bestand mit hoher Wahrscheinlichkeit schon länger. Die Balgbruchüberwachung sprach vorher nicht an, da die

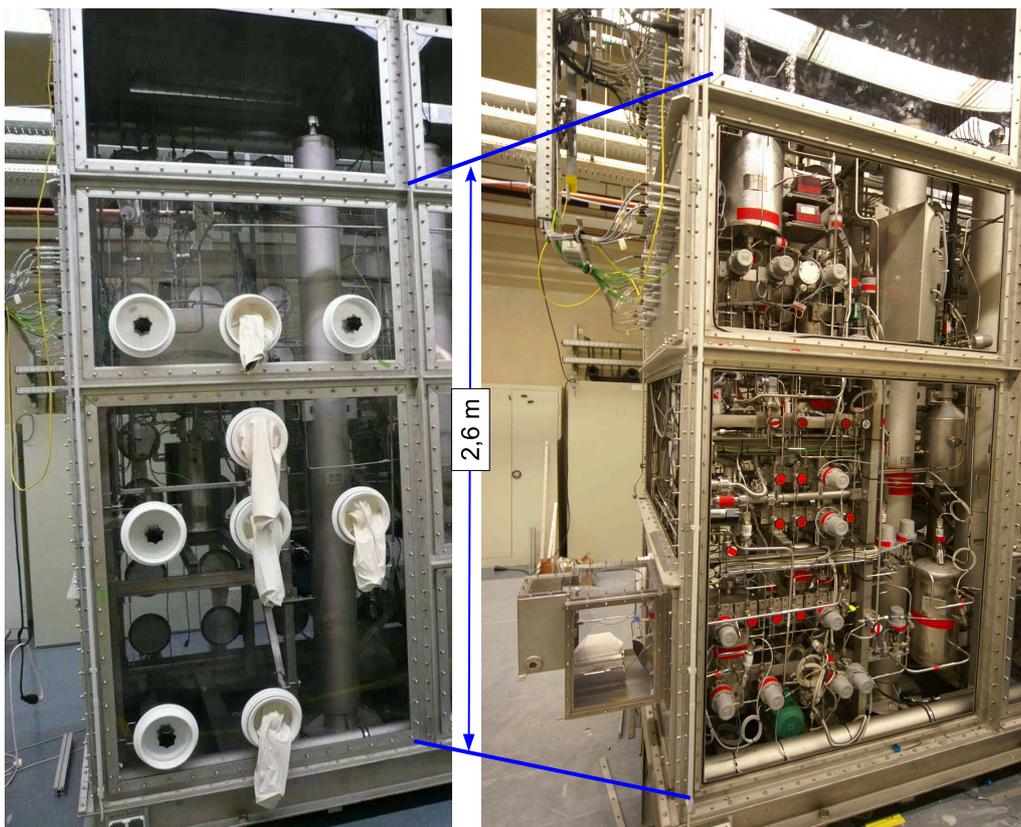
besitzen Lieferzeiten von mindestens 6 Monaten. Daher musste kurzfristig Ersatz gefunden werden. Als Ersatz wurde eine Reservepumpe der TLK-Infrastruktur identifiziert, die durch Austausch des Motors an die engen räumlichen Verhältnisse in der Box angepasst wurde.

Während der insgesamt mehr als Jahr dauernden Einbauarbeiten in die ISS-Box wurden umfangreiche Erfahrungen im Aufbau eines Gewerkes in einer Handschuhbox gesammelt. Wichtige Erkenntnisse, die noch einmal betont werden sollen, sind:

- Intensive Kommunikation mit Personen, die bereits langjährige Erfahrung in Aufbau und Betrieb vergleichbarer Anlagen haben, ist unabdingbar für den Erfolg des Aufbaus.
- An vielen Stellen muss ein Kompromiss gefunden werden zwischen dem physikalisch optimalen Aufbau und dem technisch noch realisierbaren. Ein einfacherer Zugang zu einer Komponente, die durch eine andere Platzierung und in vertretbarem Maße längere Rohrleitungen realisiert werden kann, ist einer defacto Komplettzerlegung der Anlage zum Austausch dieser Komponente vorzuziehen. Dies sollte bereits in der Planung berücksichtigt werden. Auf diese Weise ließen sich geschicktere Lösungen finden.
- Es darf nicht nur die Erreichbarkeit der Ventile beim Standardbetrieb als Kriterium gelten. Auch der Austausch von Komponenten in einer geschlossenen Box muss unter Handschuhen möglich sein.
- Im Gegensatz zu CAD-Modellen für eine Großserienfertigung muss ein CAD-Modell für einen einmaligen Aufbau unter Umständen flexibel umgestaltet werden.

---

Pumpe zuvor bei einem Druck  $< 200$  mbar am Ausgang betrieben wurde.



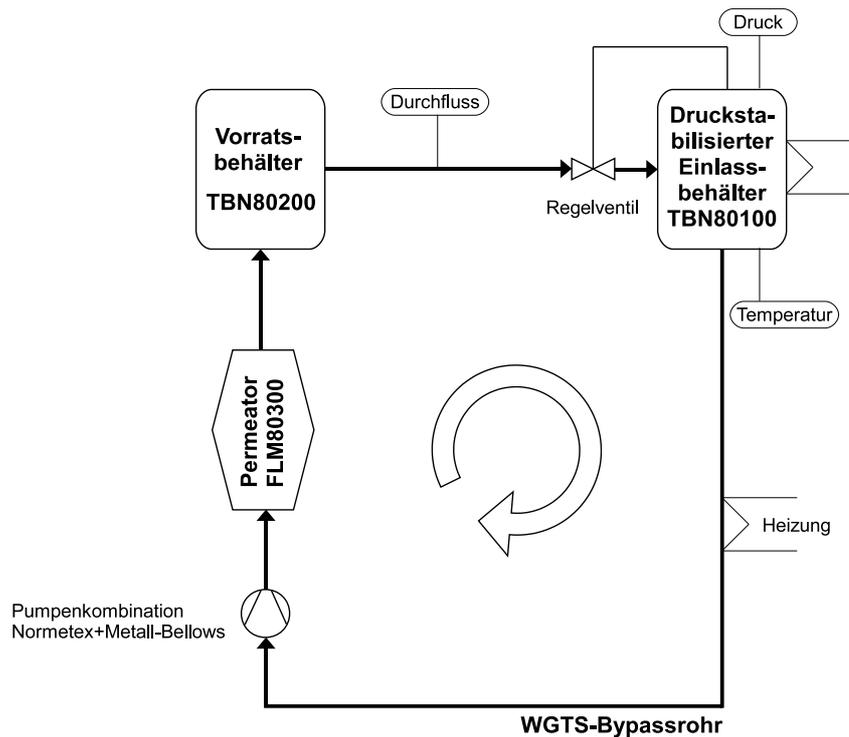
**Abbildung 3.15: Der Einbau in der Handschuhbox.** Zu sehen sind unterschiedliche Einbaustadien. Links dargestellt ist die geschlossene Handschuhbox vor Beginn der Einbauarbeiten. Rechts zu sehen ist der fertige Einbau bei noch geöffneter Box.

## 3.5 Erste inaktive Messungen mit dem Circulation-Loop

### 3.5.1 Überblick über die Messungen

Nach bestandenem Lecktest und erfolgter elektrischer Inbetriebnahme wurden die ersten inaktiven Testmessungen mit dem Kreislauf durchgeführt. Da die WGTS zu diesem Zeitpunkt noch nicht verfügbar war, wurde das Gas über ein in der Handschuhbox befindliches Bypassrohr (Technische Daten siehe Anhang B) zirkuliert. Dieses Bypassrohr weist einen vergleichbaren Vakuumleitwert wie die Einlasskapillare in die WGTS auf. Es kann zusätzlich beheizt werden. Messungen mit Tritium werden erst durchgeführt werden, wenn das Quell- und Transportsystem von KATRIN komplett aufgebaut und in Betrieb genommen worden ist.

In Abbildung 3.16 ist zum besseren Verständnis der Messwerte ein vereinfachtes Fließbild des Circulation-Loop dargestellt. Die gewonnenen Daten wurden in 2 s Intervallen gespeichert.



**Abbildung 3.16: Vereinfachtes Fließbild des Circulation-Loop.** Dargestellt ist ein vereinfachtes Fließbild des Circulation-Loop, das alle zum Verständnis der Messungen relevanten Komponenten enthält.

**Tabelle 3.2: Überblick über die durchgeführten Testläufe.**

Run #	Gas	Dauer [h]	Ziel
1	Stickstoff	140	Verfahrenstechnische Inbetriebnahme Finden von Regelparametern, Langzeittest
2	Stickstoff	320	Auffindung optimierter Regelparameter für Druck- und Temperaturstabilisierung
3	Deuterium	1	erster Test mit Deuterium, Abbruch wegen Pumpendefekts
4	Deuterium	220	Langzeittest
5	Deuterium	450	Langzeittest

Die ersten Messungen der Tritiumkreisläufe wurden mit Stickstoff durchgeführt. Bei Messungen mit Stickstoff kann der Kreislauf nur mit Permeator FLM80300 im Bypass getestet werden, da er für Stickstoff undurchlässig ist. Zu Beginn der Messungen war der gesamte Aufbau evakuiert. Die Befüllung des Feed-Loop mit Stickstoff bzw. Deuterium erfolgte mittels einer Gasflasche.

Tabelle 3.2 gibt einen Überblick über die durchgeführten Messungen. Eine detaillierte Diskussion der durchgeführten Testmessungen findet sich in der Diplomarbeit von Florian Priester [Pri10]. In den folgenden Abschnitten werden wichtige Ergebnisse aus den ersten Testläufen zusammengefasst.

### 3.5.2 Run#1: Der erste Testlauf mit Stickstoff

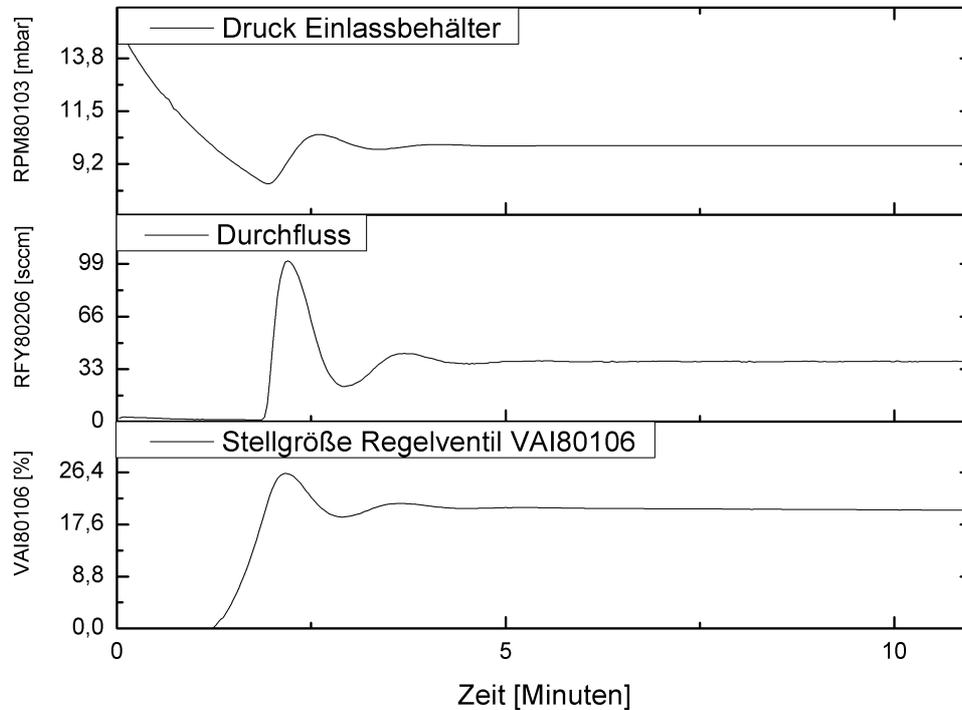
Run#1 wurde vom 12.8.09 bis 19.08.09 durchgeführt. Die Machbarkeit der Realisierbarkeit der Druckstabilisierung im Einlassbehälter TBN80100 auf einem Level von  $< 0,1$  % sollte demonstriert werden. Die Heizung des Einlassbehälters war zu diesem Zeitpunkt noch nicht betriebsbereit. Das ist für diesen Testlauf allerdings nicht relevant, weil hier der Hauptaugenmerk auf der Demonstration der Druckstabilisierung lag.

Pufferbehälter TBN80200 wurde aus dem Feed-Loop mit Stickstoff befüllt. Anschließend wurde der Kreislauf angefahren. Ein Sollwert von 10 mbar im Einlassbehälter wurde vorgegeben.

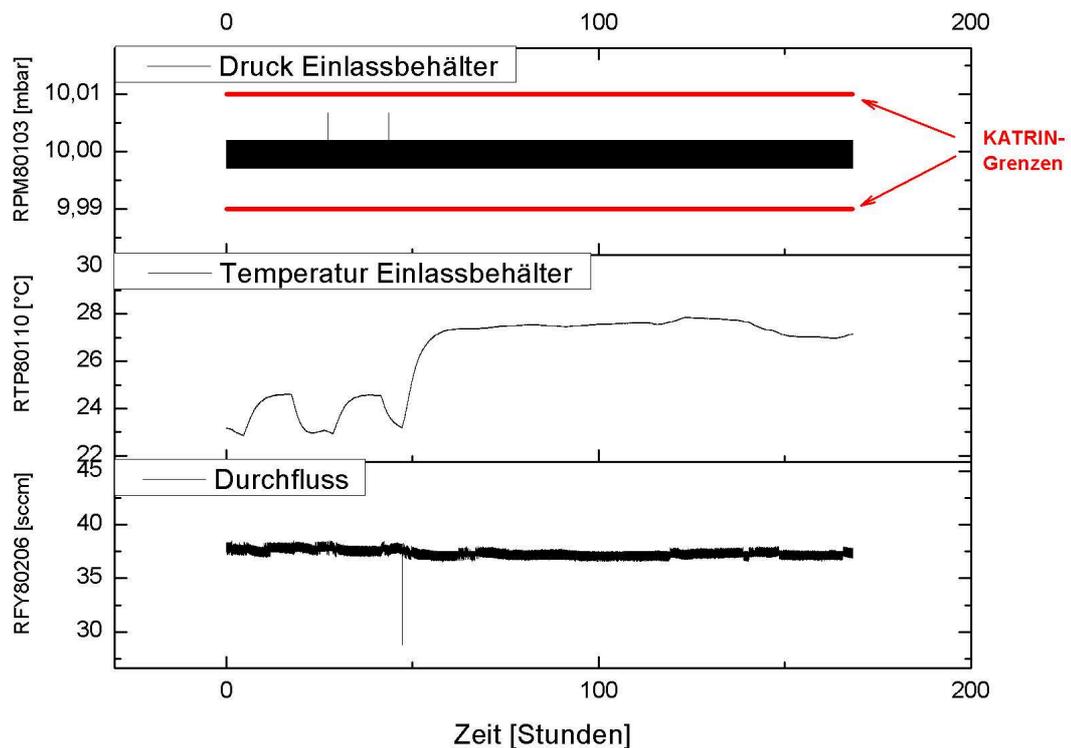
Abbildung 3.17 zeigt das Einschwingverhalten auf 10 mbar im Einlassbehälter. Es dauert weniger als 15 Minuten, bis der eingestellte Sollwert stabil steht.

Der Kreislauf wurde über einen Zeitraum von 7 Tagen aufrechterhalten, um die Langzeitstabilität zu demonstrieren. In Abbildung 3.18 sind die Messgrößen Druck, Temperatur im Einlassbehälter, sowie der Fluss in den Einlassbehälter dargestellt.

Es ist klar erkennbar, dass die Druckstabilisierung – hier demonstriert über 7 Tage – den von KATRIN vorgegebene Wert von 0,1% übertrifft.



**Abbildung 3.17: Einschwingverhalten Run#1.** Dargestellt ist das Einschwingverhalten des Druckes auf den am PI-Regler eingestellten Sollwert. Dargestellt ist der Druck im Einlassbehälter, die von der SPS ausgegebene Steuergröße für das automatische Regelventil VAI80106, sowie der Durchfluss.



**Abbildung 3.18: Ergebnisse von Run#1.** Dargestellt sind die Größen Druck im Einlassbehälter, Temperatur des Einlassbehälters und Flussrate in den Einlassbehälter bei Run#1. Ein Sollwert von 10,000 mbar wurde vorgegeben. Der Mittelwert von RPM80103 betrug 10,000 mbar. Der Maximalwert betrug 10,007 mbar der Minimalwert 9,997 mbar. Es waren nur Schwankungen des Analog-Digitalkonverters zu sehen. (Der direkt über serielle Schnittstelle ausgelesene und besser aufgelöste Referenzsensor RPM80102 wurde bei diesem Testlauf aufgrund eines Initialisierungsfehlers nicht mitgespeichert.)

### 3.5.3 Run#2: Test des Systems bei unterschiedlichen Einlassdrücken

Run#2 wurde vom 26.08.09 bis zum 09.09.09 durchgeführt. Die Reproduzierbarkeit der Druckstabilisierung aus Run#1 sollte gezeigt werden, sowie unterschiedliche Drücke im Einlassbehälter angefahren werden. Unterschiedliche Drücke im Einlassbehälter führen zu unterschiedlichen Einspeiseraten in das Quellrohr der WGTS und somit zu unterschiedlichen Gassäulendichten. Dies ist später bei KATRIN im Rahmen von systematischen Messungen zwingend erforderlich.

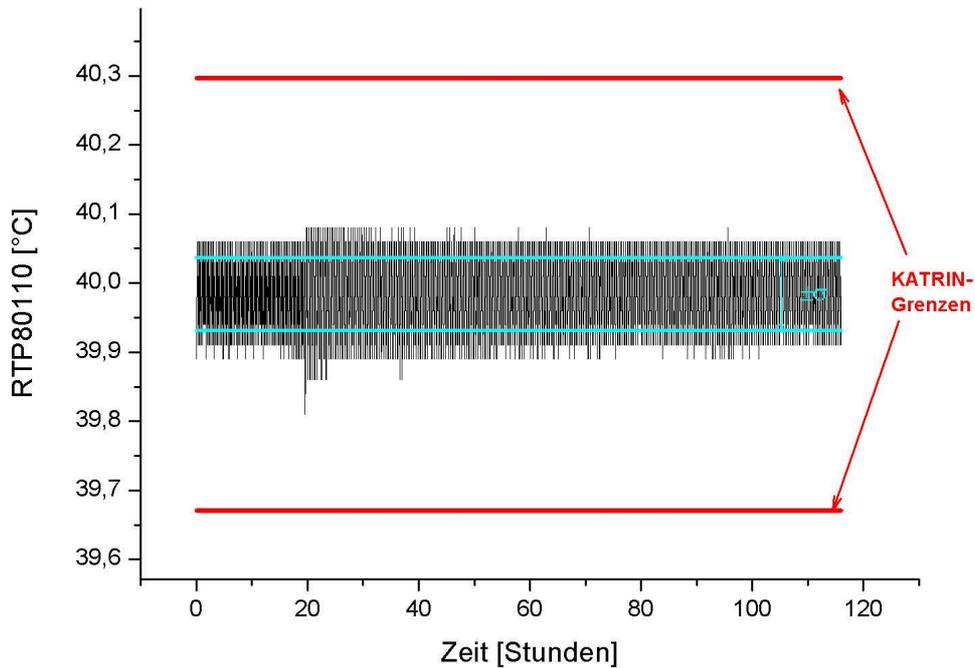
Die Heizung des Einlassbehälters wurde in Betrieb genommen und deren Regelparameter optimiert. Die Temperatur im Einlassbehälter wurde auf  $39,98 \pm 0,05^\circ\text{C}$  stabilisiert (Abbildung 3.19).

Zu Beginn wurde über einen Zeitraum von 2 Tagen die Druckstabilisierung auf 10 mbar aus Run#1 wiederholt. Danach wurden Schritt für Schritt über kürzere Zeiträume unterschiedliche Drücke angefahren. Tabelle 3.3 fasst die unterschiedlichen Sollwerte und die erzielten Genauigkeiten zusammen.

Die Regelung wurde erfolgreich für alle angefahrenen Sollwerte auf 0,1 % Standardabweichung demonstriert.

**Tabelle 3.3: Run#2. Überblick über die angefahrenen Messwerte und die erzielten Genauigkeiten.**

Sollwert [mbar]	Mittelwert [mbar]	sigma [mbar]	Peak to Peak [mbar]	Dauer [h]
10	10,0145	0,0013	0,014	48
1	0,998	0,001	0,009	136
2	1,999	0,001	0,006	0,75
4	4,003	0,001	0,007	0,5
6	6,006	0,002	0,01	0,5
8	8,0096	0,0011	0,006	0,5
10	10,014	0,002	0,007	3,5
12	12,0222	0,0013	0,007	0,5
14	14,0269	0,0016	0,011	16
16	16,0300	0,0018	0,01	0,5
18	18,0344	0,00092	0,005	0,5
20	20,0378	0,00092	0,011	118



**Abbildung 3.19: Funktionierende Temperaturstabilisierung auf 40°C.** Dargestellt ist der Verlauf der Temperatur im Einlassbehälter bei vorgegebenem Sollwert von 40°C während Run#2 über 120 Stunden. Die Temperatur wurde auf  $39,98 \pm 0,05^\circ\text{C}$  stabilisiert. Der Minimalwert betrug  $39,81^\circ\text{C}$ , der Maximalwert  $40,08^\circ\text{C}$

### 3.5.4 Run#3: Die erste Messung mit Deuterium

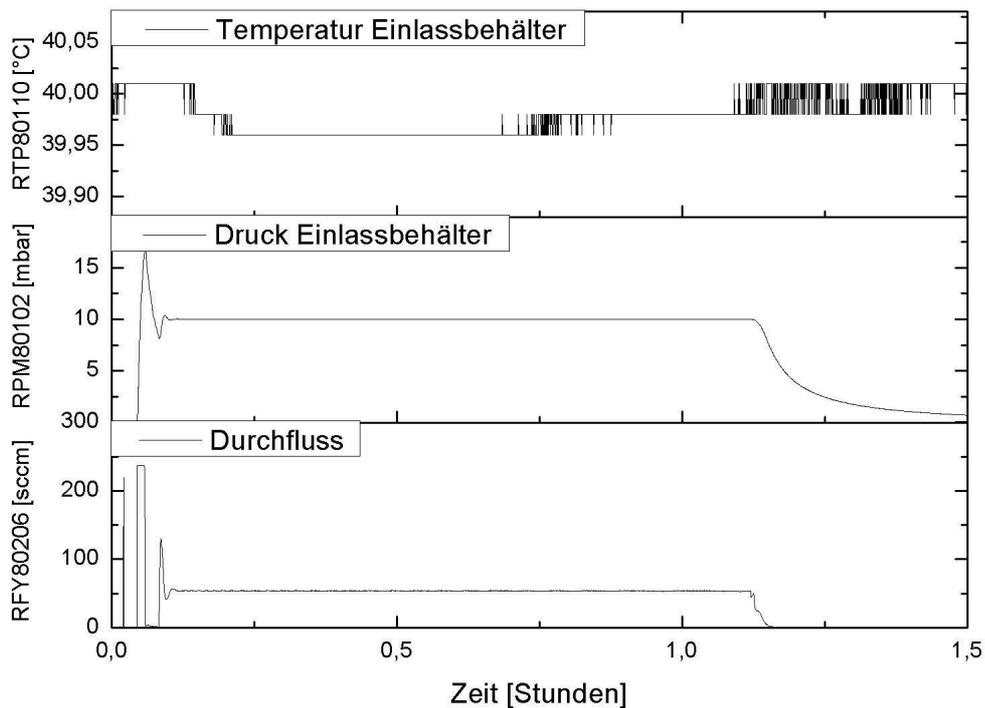
Run#3 stellt den ersten Betrieb des Kreislaufes mit Deuterium dar und entspricht daher mehr den KATRIN-Bedingungen, wie die vorherigen wichtigen Testläufe mit Stickstoff, da hier über den Permeator zirkuliert wird und ein Wasserstoffisotop verwendet wird. Die Deuteriumzufuhr erfolgte hierbei auch erstmalig über den Permeator im Feed-Loop. Beim ersten Versuch des Befüllens über diesen Permeator wurde eine zu geringe Durchlässigkeit festgestellt. Er wurde daher aktiviert (siehe Anhang C).

Nach erfolgter Aktivierung wurde der Kreislauf mit Deuterium angefahren und über den Permeator zirkuliert. Abbildung 3.20 zeigt den Druckverlauf im Einlassbehälter bei Run#3. Die Zirkulation über den Permeator wurde erfolgreich demonstriert.

Nach etwas mehr als einer Stunde musste der Testlauf abgebrochen werden, da bei Faltenbalgpumpe PCO83320 im Exhaust-Loop ein Balgbruch nach innen aufgetreten war. Die Isoliervakua der beiden bei einer Temperatur von  $400^\circ\text{C}$  betriebenen Permeatoren hätten ohne diese Pumpe nicht über einen längeren Zeitraum aufrecht-

erhalten werden können<sup>10</sup>. Die Anlage wurde evakuiert, die defekte Pumpe ausgebaut und durch eine Reservepumpe ersetzt.

Solch ein Vorfall würde im späteren KATRIN-Betrieb zu einem mehrmonatigen Stopp der Datennahme führen, da der Ausbau der Pumpe unter Handschuhen inklusive der dafür erforderlichen Dekontaminationsmaßnahmen und der Einbau einer Ersatzpumpe in die dann kontaminierte Anlage sehr kompliziert und zeitaufwendig ist.

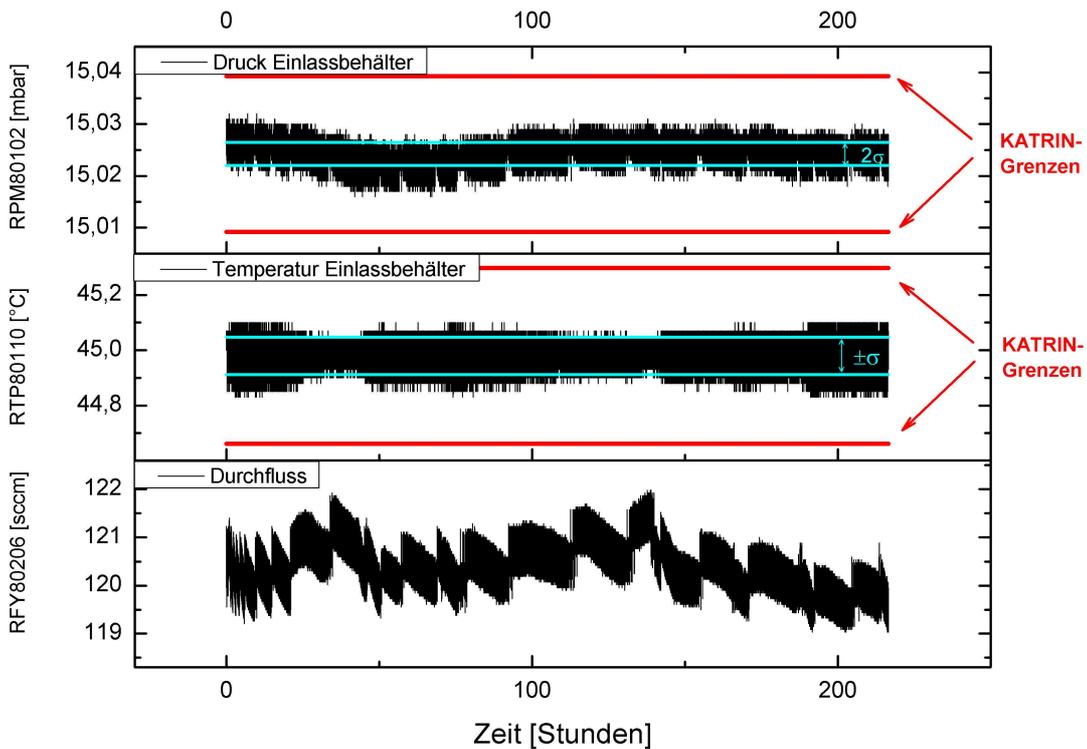


**Abbildung 3.20: Messwerte bei Run#3.** Dargestellt sind Druck, Temperatur und Durchfluss bei Run#3. Der Einlassbehälter war auf 40°C temperaturstabilisiert. Links zu sehen ist das Einpendeln des Drucks auf den gewählten Sollwert von 10 mbar. Nach etwa einer Stunde wurde der Run wegen eines Pumpendefekts im Exhaust-Loop abgebrochen.

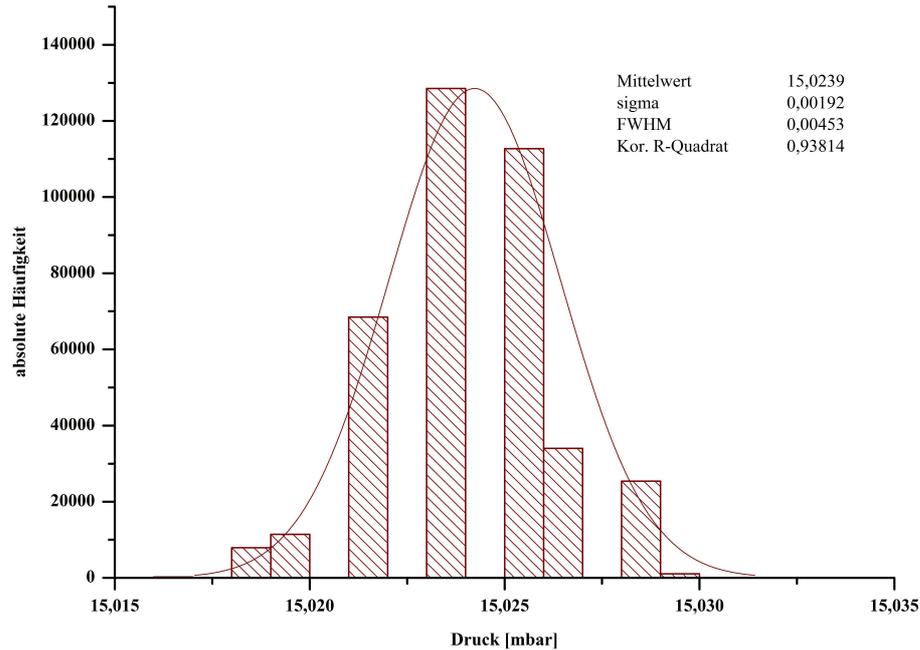
<sup>10</sup>Die Palladium-Silber-Röhrchen der Permeatoren können zerstört werden, wenn sie Wasserstoff bei Raumtemperatur ausgesetzt sind.

### 3.5.5 Run#4: Langzeittest des Circulation-Loop mit Deuterium

In diesem Testlauf sollten die Druck- und die Temperaturstabilität im Einlassbehälter im Langzeitbetrieb mit Deuterium demonstriert werden. Als Sollwerte im Einlassbehälter wurden 15 mbar und 45 °C vorgegeben. Nach 225 Stunden Laufzeit wurde durch ein anderes Gewerk in der ISS-Box ein Sicherer Zustand ausgelöst und der Kreislauf unterbrochen. Bis dahin war der Testlauf erfolgreich. Abbildung 3.21 zeigt die relevanten Messgrößen. In Abbildung 3.24 ist die Verteilung der Werte für den Einlassdruck in Run #5 dargestellt. Die Druckstabilisierung im Einlassbehälter wurde über mehr als 9 Tage auf  $15,024 \text{ mbar} \pm 0,013 \%$  erfolgreich demonstriert, die Temperaturstabilisierung auf  $44,98 \text{ °C} \pm 0,02 \%$ . Dies übertrifft den von KATRIN geforderten Wert für die Stabilität von 0,1 % um ein Vielfaches.



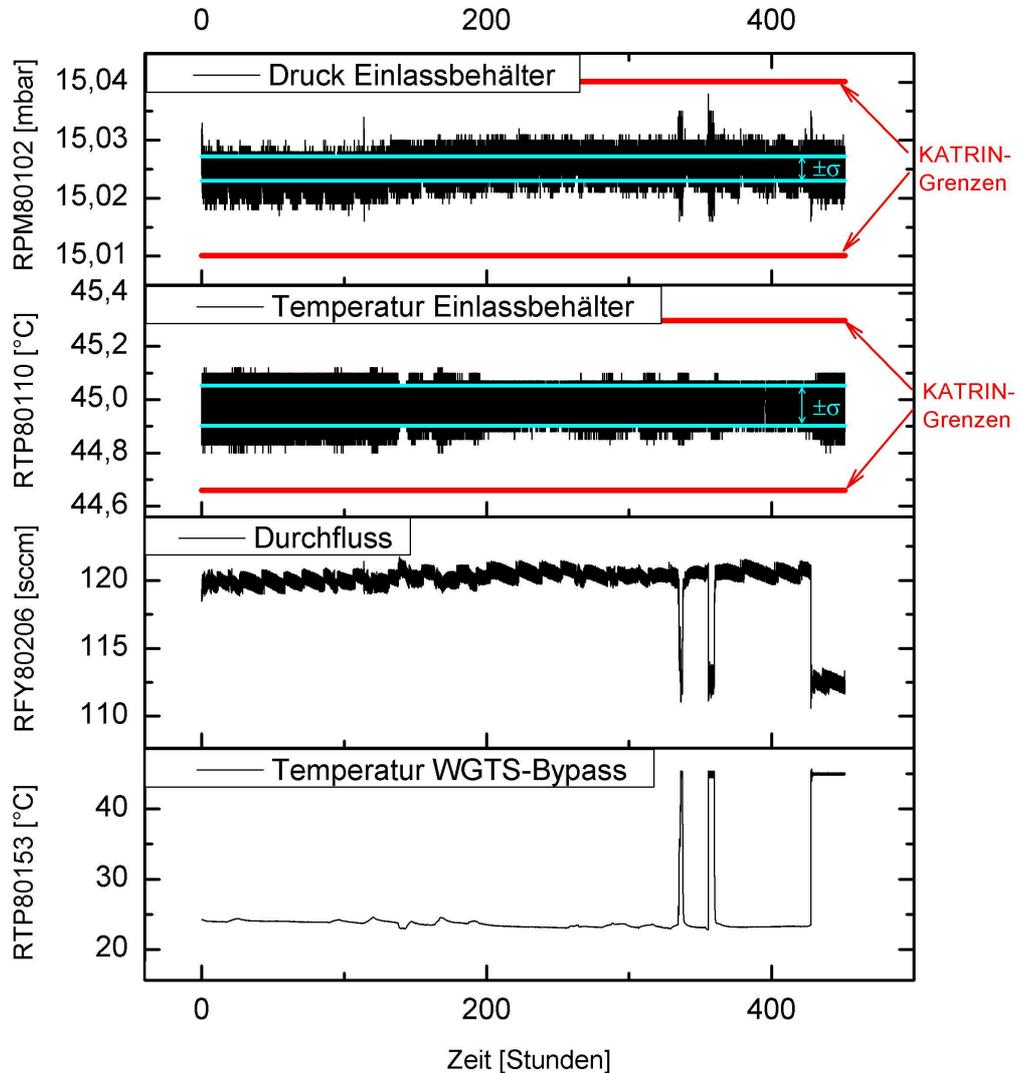
**Abbildung 3.21: Ergebnisse von Run#4.** Dargestellt sind der Verlauf von Temperatur und Druck im Einlassbehälter sowie der Fluss in den Einlassbehälter während Run#4. Am Temperaturregler wurde ein Sollwert von 45,00 °C vorgegeben. Die Temperatur wurde auf  $44,98 \pm 0,07 \text{ °C}$  stabilisiert (Minimalwert: 44,83 °C, Maximalwert 45,10 °C). Dem Druckregler wurde ein Sollwert von 15,00 mbar vorgegeben. Der Regler regelt über Drucksensor RPM80103. Am hier dargestellten Referenzsensor RPM80102 wurde ein Mittelwert von  $15,024 \pm 0,002 \text{ mbar}$  gemessen (Minimalwert: 15,016 mbar, Maximalwert: 15,033 mbar).



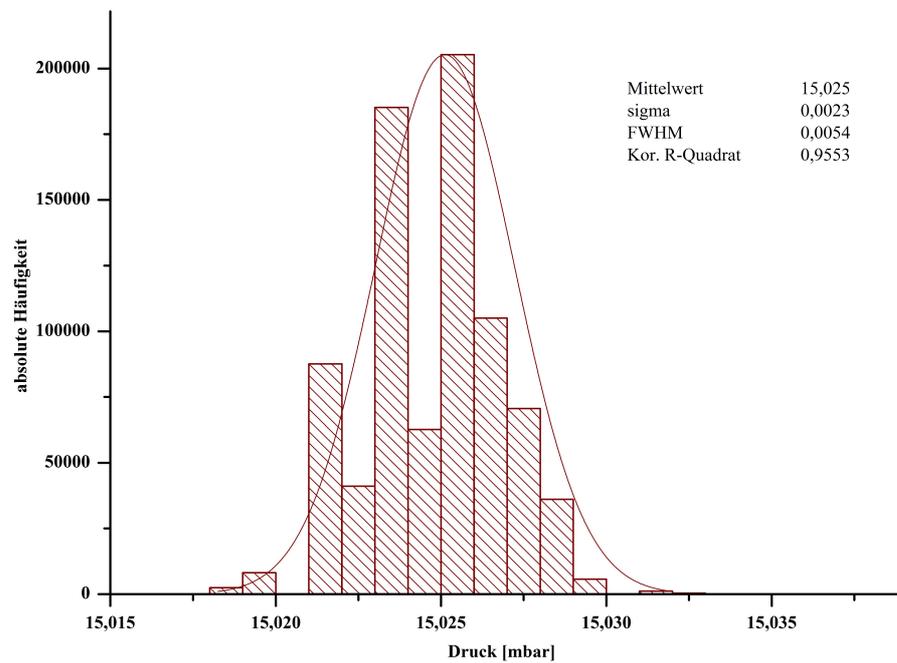
**Abbildung 3.22: Histogramm Drucksensor RPM80102 bei Run#4.** Dargestellt ist die Verteilung der Messwerte bei eingestelltem Sollwert von 15 mbar. Zusätzlich wurde eine Gaußkurve an die Verteilung angepasst.

### 3.5.6 Run#5: Fortsetzung des Langzeittests

Run#5 wurde mit den gleichen Parametern wie bei Run#4 durchgeführt. Prinzipiell kann man beide Runs auch als einen Testlauf betrachten, der durch eine Pause von ca. einer halben Stunde unterbrochen ist. Zusätzlich wurden Störgrößen durch Beheizen des Bypassrohres aufgebracht (siehe Abbildung 3.16). Abbildung 3.23 zeigt die relevanten Messgrößen. In Abbildung 3.24 ist die Verteilung der Werte für den Einlassdruck in Run#5 dargestellt. Die Druckstabilisierung im Einlassbehälter wurde über mehr als 18 Tage auf  $15,025 \text{ mbar} \pm 0,015 \%$  erfolgreich demonstriert, die Temperaturstabilisierung auf  $44,98 \text{ °C} \pm 0,02 \%$ . Auch bei Variation der Temperatur des Bypassrohres liegen Druck- und Temperatur im Einlassbehälter weit innerhalb der von KATRIN geforderten Grenzen.



**Abbildung 3.23: Ergebnisse von Run#5.** Dargestellt sind der Verlauf von Temperatur und Druck im Einlassbehälter, Fluss in den Einlassbehälter, sowie die Temperatur des Bypassrohres während Run#5. Am Temperaturregler des Einlassbehälters wurde ein Sollwert von 45,00 °C vorgegeben. Die Temperatur wurde auf  $44,98 \pm 0,07$  °C stabilisiert. Dem Druckregler wurde ein Sollwert von 15,00 mbar vorgegeben. An Drucksensor RPM80102 wurde ein Mittelwert von  $15,025 \pm 0,002$  mbar gemessen (Minimalwert: 15,016, Maximalwert: 15,038 mbar). Zusätzlich wurde im letzten Drittel des Testlaufs das Bypassrohr beheizt und somit durch gezieltes Verändern des Gasleitwerts durch Temperaturerhöhung eine Störgröße aufgebracht. Die Druck- und Temperaturstabilisierung liegt wie oben zu sehen nach wie vor innerhalb der 0,1%-Grenze von KATRIN.



**Abbildung 3.24:** Histogramm Drucksensor RPM80102 bei Run #5. Dargestellt ist die Verteilung der Messwerte bei eingestelltem Sollwert von 15 mbar. Zusätzlich wurde eine Gaußkurve an die Verteilung angepasst.

### 3.5.7 Ergebnisse der Testmessungen

Aus den Testläufen 4 und 5 kann auf eine hohe Präzision der Druckstabilisierung und Vernachlässigbarkeit der Umgebungseinflüsse geschlossen werden. Die Druck- und Temperaturstabilisierung auf 0,1 % wurde erfolgreich demonstriert. Für die Langzeitmessungen mit Deuterium (Run#4 und Run#5) wurde ein Einlassdruck von 15 mbar gewählt. Damit wurde eine Durchflussrate erreicht, die in etwa den späteren KATRIN-Bedingungen entspricht.

## 3.6 Diskussion der Ergebnisse

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Circulation-Loop, Exhaust-Loop und Feed-Loop in die bestehende Handschuhbox der ISS eingebaut und getestet. Zum späteren Betrieb bei KATRIN sind noch Modifikationen notwendig (siehe Anhang D). Die bisherigen Messungen wurden inaktiv über das WGTS-Bypassrohr durchgeführt.

Folgende Resultate wurden erzielt:

- Das System wurde erfolgreich in die kontaminierte ISS-Handschuhbox eingebaut.
- Der Kreislauf wurde bei unterschiedlichen Sollwerten für Druck und Temperatur im Einlassbehälter betrieben. Es ist möglich einen beliebigen Sollwert im Bereich von 1 - 20 mbar im Einlassbehälter einzustellen und über einen beliebigen Zeitraum innerhalb der von KATRIN geforderten Grenzen zu betreiben. Dies entspricht Einlassraten im Bereich von 0,5 - 145 sccm. Bei einem Einlassdruck von 15 mbar wurde eine Flussrate von  $\approx 120$  sccm erreicht (entspricht dem KATRIN-Standardwert). Das Regelsystem bietet zudem genügend Spielraum, um später bei KATRIN für systematische Messungen mit einer Elektronenkanone unterschiedliche Säulendichten im Quellrohr anfahren und aufrechterhalten zu können.
- Das System ist stabil im Hinblick auf das Aufbringen von Störgrößen. Selbst Variationen des Leitwertes des Bypassrohres durch Druckänderung um  $\Delta T \approx 20$  K haben einen verschwindenden Einfluss auf die Druckstabilisierung ([Pri10]).
- Die Stabilität des Systems wurde gezeigt. Die Schwankungen von Temperatur und Druck im Einlassbehälter sind kleiner als die von KATRIN geforderten 0,1%. Dies bietet Potential, um die Sensitivität von KATRIN auf die Neutrinomasse zu verbessern.



# Kapitel 4

## Laser-Raman-Spektroskopie (LARA) zur Überwachung der Isotopenreinheit der KATRIN-Tritiumquelle

In Kapitel 3 wurden Aufbau und erste inaktive Messungen mit den Tritiumkreisläufen vorgestellt. Die Druck und Temperaturstabilisierung im Einlassbehälter wurde erfolgreich demonstriert. Ein weiterer wichtiger Gesichtspunkt ist die Überwachung der Reinheit des eingespeisten Gasgemisches. Bei KATRIN wird hierzu Laser-Raman-Spektroskopie (LARA) verwendet werden. In Abschnitt 4.1 werden die physikalischen Anforderungen von KATRIN an LARA vorgestellt. In Abschnitt 4.2 erfolgt eine Einführung in die Grundlagen der Laser-Raman-Spektroskopie. Die technischen Anforderungen werden in Abschnitt 4.3 diskutiert. In den Abschnitten 4.4 und 4.5 werden der Laser-Raman-Aufbau und der Tritiumkreislauf LOOPINO vorgestellt.

### 4.1 Motivation und physikalische Anforderungen an LARA für KATRIN

Zur Stabilisierung der Säulendichte im Quellrohr von KATRIN ist neben der Stabilisierung und Überwachung von Druck und Temperatur die Überwachung der Zusammensetzung des eingespeisten Gasgemisches ein Schlüsselparameter für KATRIN. Die Überwachung erfolgt in-line und fast in Echtzeit<sup>1</sup> mittels Laser-Raman-Spektroskopie.

---

<sup>1</sup>d.h. ohne Probenahme und gemittelt über 250 s

Raman-Spektroskopie ist zwar eine Standardtechnik zur Analyse von Stoffen, dennoch stellen die Anforderungen von KATRIN eine große Herausforderung dar:

- Um selbst kleinste Verunreinigungen im Gas nachzuweisen, soll die Nachweisgrenze  $< 0,1$  mbar bei einem Gesamtdruck von 100-200 mbar und einer Messzeit von 250 s sein<sup>2</sup>.
- Die Überwachung der Zusammensetzung der in KATRIN eingespeisten Gas Mischung soll mit einer Präzision von 0,1% erfolgen.

Dazu wurde beim Kollaborationspartner University of Swansea ein Laser-Raman-System entwickelt [Lew07] und im KIT zusammen mit dem Testaufbau des Inner-Loop TILO [Kaz08] erfolgreich mit Wasserstoff und Deuterium getestet [Lew08]. Der nächste Schritt waren Messungen mit Tritium. Über deren Ergebnisse wird in Kapitel 5 berichtet.

## 4.2 LARA: Die Grundlagen

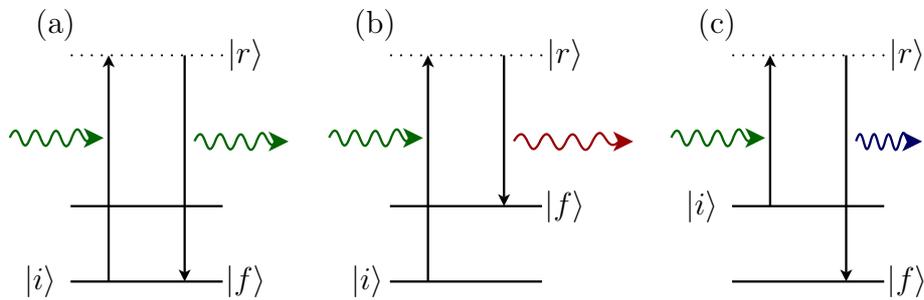
Als Raman Effekt wird die 1928 von C.V. Raman entdeckte inelastische Lichtstreuung bezeichnet [Sin02]. Bei der Laser-Raman-Spektroskopie wird das Spektrum von inelastisch an einer Probe gestreutem Laserlicht gemessen. Die Wellenlänge des gestreuten Photons ist gegenüber der des einfallenden Photons verschoben. Die Energiedifferenz entspricht einem Übergang zwischen Rotations-/Schwingungsanregungen des Moleküls.

Im Folgenden wird der für die 6 Wasserstoffisotopologe H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>, T<sub>2</sub>, HD, HT und DT relevante Fall eines zweiatomigen Moleküls betrachtet und dessen Anregungszustände erläutert.

### 4.2.1 Raman-Streuung

Die Streuung von Licht an einem Molekül ohne Energieübertrag wird Rayleigh-Streuung genannt. Bei der Raman-Streuung findet ein Energieübertrag durch Wechselwirkung mit Rotations- und Schwingungszuständen des Moleküls statt. Die quantenmechanische Beschreibung der Ramanstreuung ist in Abb. 4.1 dargestellt. Ein einfallendes Photon wechselwirkt mit einem Molekül. Es wird über einen virtuellen Zwischenzustand in einen höher angeregten Zustand angehoben. Der Energieverlust bzw. der Raman-Shift entspricht der Energiedifferenz zwischen Ausgangszustand und angeregtem Zustand. Dieser Prozess wird Stokes-Raman-Streuung genannt. Der umgekehrte Prozess, d.h. wenn das Photon Energie gewinnt, bezeichnet man als Anti-Stokes-Raman-Streuung. Bei den Prozessen sind zwei Photonen beteiligt. Daher sind nur Übergänge mit  $\Delta J = 0, \pm 2$  erlaubt.

<sup>2</sup>Dies entspricht den typischen Messzeitintervallen pro Messpunkt im  $\beta$ -Spektrum im KATRIN-Standardbetrieb.



**Abbildung 4.1: Vereinfachte Darstellung der Energieniveaus zur Beschreibung der Ramanstreuung (nach [Lon02]).** Das einfallende Photon wechselwirkt mit dem Molekül und hebt es aus dem Ausgangsniveau  $|i\rangle$  in ein virtuelles Zwischenenergieniveau  $|r\rangle$ . Der Übergang in das Endniveau  $|f\rangle$  erfolgt unter Abstrahlung des gestreuten Photons. Drei Fälle sind möglich: (a) Sind Ausgangszustand und Endzustand identisch ( $|i\rangle = |f\rangle$ ) liegt Rayleighstreuung vor. (b) Wird das Molekül in einen höheren Endzustand angeregt ( $|i\rangle < |f\rangle$ ), spricht man von Stokes-Ramanstreuung. (c) Landet das Molekül in einem niedrigeren Energieniveau ( $|i\rangle > |f\rangle$ ), spricht man von Anti-Stokes-Ramanstreuung.

**Tabelle 4.1: Auswahlregeln für die Ramanstreuung.** Aufgelistet ist die verwendete Notation für die Zweige der Ramanspektren.  $\tilde{\nu}_p$  bezeichnet dabei die Wellenzahl des einfallenden Photons.

Streuart	Auswahlregeln		Zweig	Raman-Shift
	$\Delta v$	$\Delta J$		
Rayleigh	0	0	$Q_0$	-
Stokes Raman (reine Rotation)	0	+2	$S_0$	$\tilde{\nu}_p - \tilde{\nu}_{\text{rot}}$
Stokes Raman (Rotations- Schwingung)	1	-2	$O_1$	$\tilde{\nu}_p - \tilde{\nu}_{\text{vib}} + \tilde{\nu}_{\text{rot}}$
	1	0	$Q_1$	$\tilde{\nu}_p - \tilde{\nu}_{\text{vib}}$
	1	+2	$S_1$	$\tilde{\nu}_p - \tilde{\nu}_{\text{vib}} - \tilde{\nu}_{\text{rot}}$

### 4.2.2 Rotationsanregungen

Das einfachste Modell eines zweiatomigen Moleküls ist das eines starren Rotators. Quantenmechanisch betrachtet lauten die Energien der Rotationseigenzustände eines solchen zweiatomigen starren Rotators [Hak03]:

$$E_{\text{rot}} = \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1) \quad (J = 0, 1, 2, \dots) \quad (4.1)$$

$I$  bezeichnet dabei das Trägheitsmoment,  $J$  die Drehimpulsquantenzahl.

Eine in der Spektroskopie übliche Notation ist die Angabe in Wellenzahlen:

$$\tilde{\nu} = \frac{1}{\lambda} = \frac{\nu}{c} = \frac{E}{hc} \quad [\text{cm}^{-1}] \quad (4.2)$$

Die übliche Bezeichnung in Wellenzahlen für die Rotationsenergie (Gleichung 4.1) ist  $\tilde{F}(J)$  mit der für das betrachtete Molekül charakteristischen Rotationskonstanten  $B = \frac{h}{8\pi^2 c I}$

$$\tilde{F}(J) = \frac{E_{\text{rot}}}{hc} = BJ(J+1) \quad (4.3)$$

Die Wellenzahlverschiebung bei einem erlaubten Übergang ( $\Delta J = 2$ ) ist gegeben durch:

$$\tilde{F}(J+2) - \tilde{F}(J) = B(4J+6) \quad (4.4)$$

Dies bedeutet, dass der Abstand zwischen den einzelnen Raman-Linien zueinander für all diese Übergänge  $4B$  (bzw.  $6B$  beim Übergang  $J = 0 \rightarrow 2$ ) wäre. In Raman-Spektren, die mit hinreichend großer Auflösung aufgenommen werden, kann man jedoch sehen, dass die Näherung des starren Rotators für große  $J$  nicht mehr gültig ist. Durch die Rotation vergrößert sich der Abstand der beiden Atome. Man kann dies berücksichtigen, indem man die beiden Atome durch eine Federkonstante gekoppelt betrachtet (siehe auch Abb. 4.2). Der korrigierte Ausdruck lautet dann:

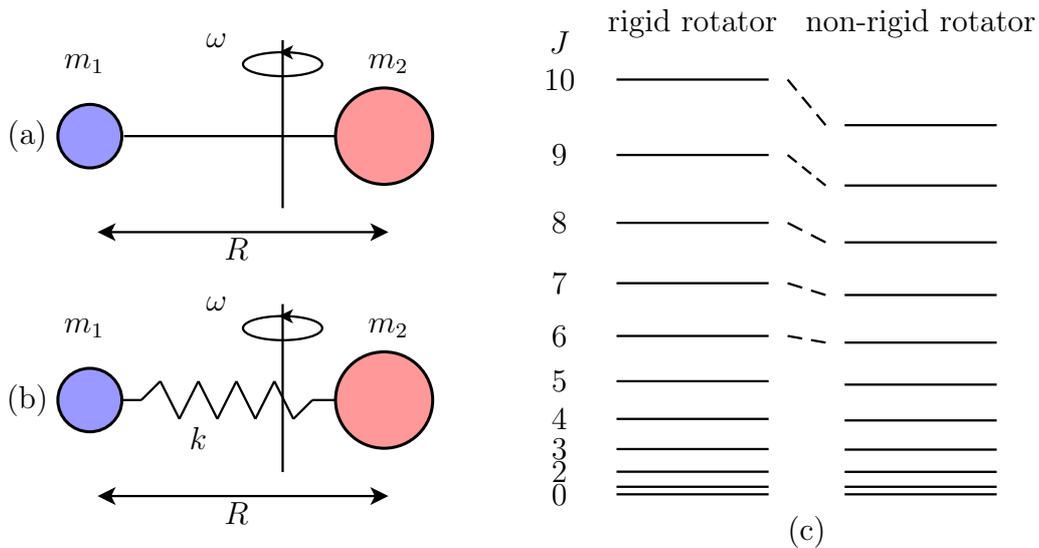
$$\tilde{F}(J) = BJ(J+1) - DJ^2(J+1)^2 \quad (4.5)$$

$D$  bezeichnet die Dehnungskonstante mit  $D/B \approx 4 \cdot 10^{-4} - 8 \cdot 10^{-4}$  [Lew07]. Der Korrekturterm  $DJ^2(J+1)^2$  bewirkt, dass mit zunehmender Quantenzahl  $J$  der Abstand zwischen den einzelnen Linien abnimmt.

### 4.2.3 Schwingungsanregungen

Betrachtet man das Hantelmolekül in einer einfachen Näherung als zwei Massen, die mit der Federkonstanten  $k$  gekoppelt sind, so ergibt sich folgende potentielle Energie [Hak03]:

$$V = \frac{k}{2}(R - R_e)^2 \quad (4.6)$$



**Abbildung 4.2: Rotation eines zweiatomigen Moleküls.** (a) zeigt einen starren Rotator mit festem Abstand zwischen den beiden Atomen. Im Falle eines nicht-starren Rotators (b) sind beide Atome durch eine Federkonstante  $k$  gekoppelt betrachtet. Der Effekt auf das Energieschema ist in (c) dargestellt. Die Energiezustände sind im Vergleich zu den Zuständen eines starren Rotators nach unten verschoben (nach [Hak03]).

$R$  beschreibt die Auslenkung aus dem Gleichgewichtsabstand  $R_e$ . Die Energien eines Schwingungszustandes dieses zweiatomigen harmonischen Oszillators lauten somit:

$$E_{\text{vib}} = \hbar\omega\left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (v = 0, 1, 2, \dots) \quad (4.7)$$

$v$  bezeichnet dabei die Schwingungsquantenzahl,  $\omega = \sqrt{\frac{k}{\mu}}$ .

In der Molekülspektroskopie ist auch hier die Angabe in Wellenzahlen üblich:

$$\tilde{G}_v = \frac{E_{\text{vib}}}{hc} = \tilde{\nu}_e\left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (4.8)$$

mit

$$\tilde{\nu}_e = \frac{1}{2\pi c} \sqrt{\frac{k}{\mu}} \quad (4.9)$$

$\mu$  ist dabei die reduzierte Masse.

Die Wellenzahlunterschiede für einen Übergang sind in dieser einfachen Näherung für einen Übergang  $\Delta\nu = 1$  wieder konstant. Bei hinreichend großer Auflösung zeigen sich hier auch wieder Unterschiede: Die Potentialkurve eines zweiatomigen Moleküls ist nicht wie bis jetzt angenommen parabelförmig. Ein oft verwendeter empirischer Ansatz ist das Morse-Potential [Hak03]:

$$V = D_e \left[1 - e^{-a(R-R_e)}\right]^2 \quad (4.10)$$

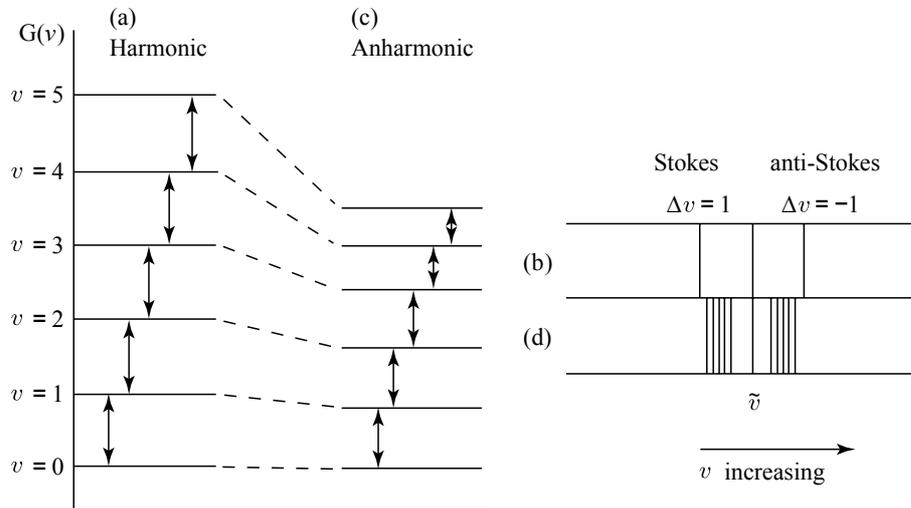
Dabei bezeichnet  $D_e$  die Dissoziationsenergie,  $a = \sqrt{\frac{\mu}{2D_e}} \cdot \tilde{\nu}$ .

Näherungsweise erhält man so für den anharmonischen Oszillator:

$$\tilde{G}_v = \tilde{\nu}_e \left( v + \frac{1}{2} \right) - x_e \tilde{\nu}_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2 \quad (4.11)$$

$$= \underbrace{\tilde{\nu}_e \left( 1 - x_e \left( v + \frac{1}{2} \right) \right)}_{\tilde{\nu}_v} \left( v + \frac{1}{2} \right) \quad (4.12)$$

$x_e$  bezeichnet die anharmonische Konstante. Sie ist in der Größenordnung 0,01. Mit zunehmender Quantenzahl  $v$  nimmt die Frequenz  $\nu_v$  ab. (siehe auch Abb. 4.3).



**Abbildung 4.3: Energiezustände des harmonischen (a) und des anharmonischen (c) Oszillators [Lon02].** Zur Beschreibung des anharmonischen Oszillators wurde das Morse-Potential (Formel 4.10) verwendet. (b) Mit der Näherung eines harmonischen wäre – neben der Rayleighlinie – nur eine Stokes- bzw. Anti-Stokes-Linie im Spektrum beobachtbar. (d) Mit dem realistischeren Ansatz des Morse-Potentials sind mehrere Schwingungsramanlinien sichtbar [Lon02].

#### 4.2.4 Rotations-Schwingungsanregungen

Bis jetzt wurden die Rotations- und Schwingungsanregungen getrennt voneinander betrachtet. Zusammengesetzte Anregungen aus Rotations- und Schwingungszuständen können allerdings nicht einfach durch

$$E(v, J) = E_{\text{vib}}(v) + E_{\text{rot}}(J) \quad (4.13)$$

beschrieben werden. Es besteht eine Kopplung zwischen Rotations- und Schwingungszuständen. Zum einen vergrößert sich bedingt durch das anharmonische Potential der mittlere Abstand der beiden Atome mit zunehmender Quantenzahl  $v$ . Zum anderen ist die Rotationskonstante  $B$  sowie die Dehungskonstante  $D$  abhängig von  $v$ . Ihr Verhalten lässt sich durch folgenden Ansatz beschreiben [Hak03]:

$$B_v = B - \frac{\alpha}{2}\left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (4.14)$$

$$D_v = D - \beta\left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (4.15)$$

dabei sind  $\alpha$  und  $\beta$  molekulspezifische Werte.

Das Termschema lautet somit:<sup>3</sup>

$$\tilde{T}_{v,J} = \tilde{G}_v + \tilde{F}_{v,J} \quad (4.16)$$

$$= \tilde{\nu}_e\left(v + \frac{1}{2}\right) - x_e\tilde{\nu}_e\left(v + \frac{1}{2}\right)^2 + B_v J(J+1) - D_v [J(J+1)]^2 \quad (4.17)$$

Rotations-Schwingungsspektren entsprechen den erlaubten Übergängen zwischen den einzelnen Rotations-Schwingungszuständen. Mit Hilfe dieses Modells wurden die im folgenden Abschnitt präsentierten theoretischen Spektren berechnet [Lew07].

### 4.2.5 Intensität des Streulichts

Mit den spektroskopischen Konstanten  $B_v$ ,  $D_v$ ,  $\tilde{\nu}_e$  und  $x_e$  lassen sich die Linienpositionen im Ramanspektrum berechnen, nicht jedoch die dazugehörigen Intensitäten. Die Intensität  $I(\Theta, p^s, p^i)$  von an zweiatomigen Molekülen gestreutem Licht ist gegeben durch [Lon02]:

$$I(\Theta, p^s, p^i) = k_{\tilde{\nu}} \cdot N_i \cdot \tilde{\nu}_s^4 \cdot \Phi(a^2, \gamma^2, \Theta) \cdot \mathcal{I} \quad (4.18)$$

$\Theta$  definiert den Raumwinkel des gestreuten Lichts.

$\mathbf{p}^s, \mathbf{p}^i$  Die beiden Größen bezeichnen die Polarisation des gestreuten und des einfallenden Lichts.

$k_{\tilde{\nu}}$  Der Vorfaktor  $k_{\tilde{\nu}}$  beinhaltet die Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_0$ .

$$(k_{\tilde{\nu}} = \frac{\pi^2}{\epsilon_0} \approx 1.259 \cdot 10^{23} F^{-2} m^2)$$

---

<sup>3</sup>Der Ausdruck stellt eine näherungsweise Beschreibung der Zustände dar. Ist eine höhere Genauigkeit erforderlich müssen weitere Effekte und Korrekturen berücksichtigt werden.

$N_i$  Die Besetzungszahl  $N_i$  berücksichtigt die Anzahl von Molekülen im Ausgangszustand  $|i\rangle$

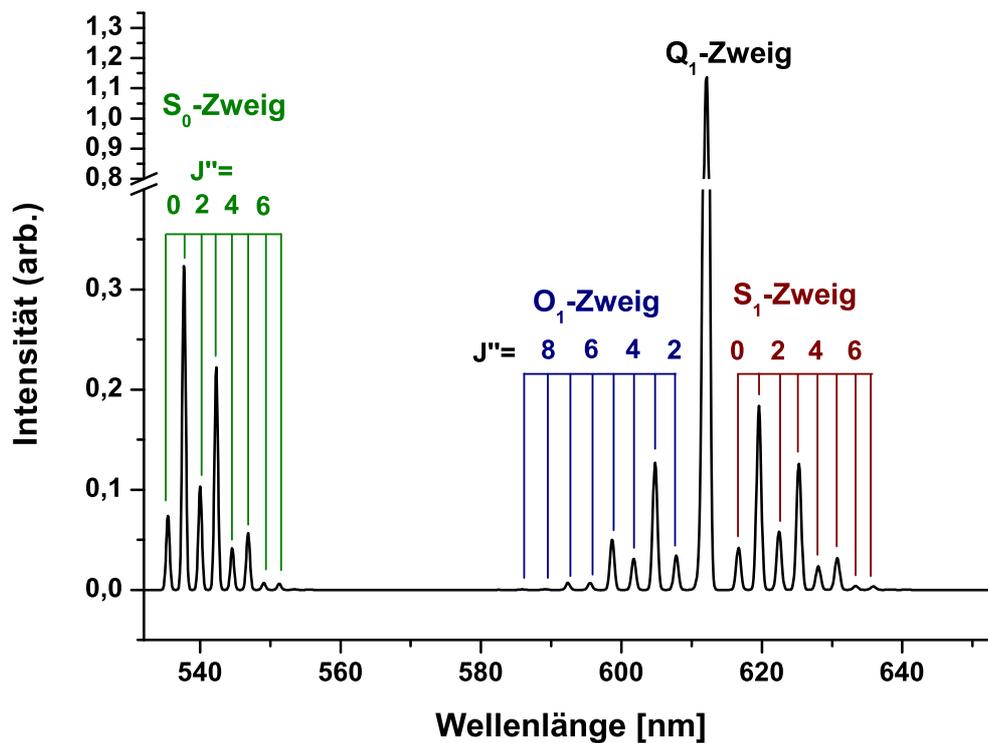
$$N_i = \frac{N \cdot g_i \exp\left(-\frac{E_i}{kT}\right)}{\sum_j g_j \exp\left(-\frac{E_j}{kT}\right)} \quad (4.19)$$

$N$  ist die Anzahl der Moleküle im Streuvolumen und proportional zum Partialdruck,  $kT$  die thermische Energie,  $g_i$  der Entartungsgrad,  $E_i$  die Energie des Ausgangszustands. Der Nenner von Ausdruck 4.19 ist die Zustandssumme. Die Schwingungszustände sind nicht entartet ( $g_{v_j} = 1$ ). Bei den Rotationszuständen müssen zusätzlich Kernspineinflüsse mitberücksichtigt werden ([Atk96], [Her50]). Für HD, DT und HT ist  $g_J = 1$ . Anders sieht es aus bei  $H_2$ ,  $D_2$  und  $T_2$ . Für ungerade  $J$  ist  $g_J = 3$ . Bei geradem  $J$  ist im Falle von  $H_2$  und  $D_2$   $g_J = 1$ , bei  $T_2$  ist  $g_J = 6$ .

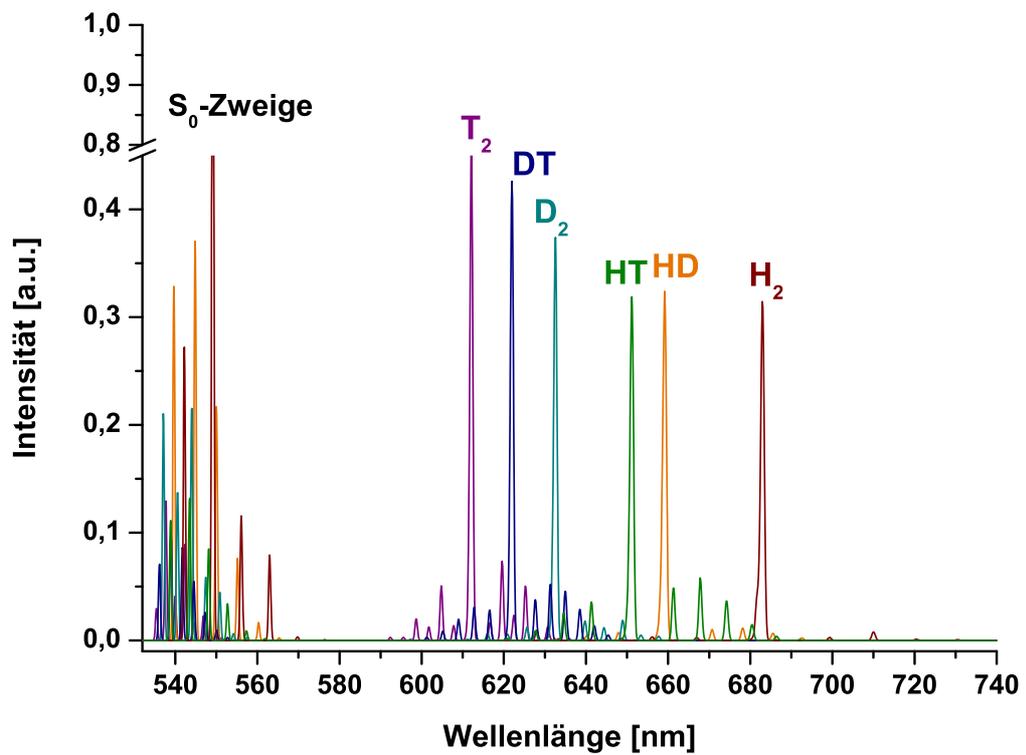
$\tilde{\nu}_s^4 \cdot \Phi(\mathbf{a}^2, \gamma^2, \Theta)$  Die Übergangswahrscheinlichkeit  $\tilde{\nu}_s^4 \cdot \Phi$  hängt ab von der vierten Potenz der absoluten Wellenzahl  $\tilde{\nu}_s$ , der Polarisierbarkeit  $a$ , der Anisotropie  $\gamma$  und der Experimentgeometrie. Sie ist spezifisch für jedes einzelne Isotopolog. Eine detaillierte Beschreibung liegt nicht im Fokus dieser Arbeit. Es wird daher auf [Lon02] verwiesen. In dem in dieser Arbeit diskutierten Aufbau wird das Streulicht im Winkel  $\Theta = 90^\circ$  zum anregenden Laserstrahl abgegriffen. Der anregende Laserstrahl ist in Anregungs- und Beobachtungsrichtung linear polarisiert.

$\mathcal{I}$  berücksichtigt die Intensität des eingestrahnten Lichtfeldes. Dieser Faktor hat keinen Einfluss, wenn man nur relative Intensitäten berechnen will, sollte aber konstant gehalten werden.

In Abbildung 4.4 ist ein berechnetes Raman-Spektrum für  $T_2$  bei Anregung mit 532 nm dargestellt. In Abbildung 4.5 die Spektren für alle 6 Wasserstoffisotopologe. Die Linienpositionen sind charakteristisch für jedes einzelne Wasserstoffisotopolog. Kennt man die Linienpositionen und die dazugehörigen Übergangswahrscheinlichkeiten, ist eine quantitative Aussage über die Zusammensetzung der untersuchten Probe möglich.



**Abbildung 4.4: Theoretisches Raman-Spektrum für  $T_2$ .** Das dargestellte Raman-Spektrum von  $T_2$  (Anregung mit 532 nm, Peakbreite  $\sigma = 8,5$ ) wurde mit SpecGen [Lew07] berechnet. Der Rayleigh-Peak bei 532 nm ist nicht dargestellt. Die Intensitäten der  $S_0 : S_1 : O_1 : Q_1$ -Zweige sind nur näherungsweise korrekt dargestellt (Abweichungen bis 4%), da für die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten für  $T_2$  zu wenig experimentelle Daten verfügbar sind. Sie wurde für alle Übergänge gleich 1 gesetzt. Innerhalb der  $S_0$ ,  $S_1$  und  $O_1$ -Zweige ist die Variation der Intensität für gerade/ungerade Werte von  $J$  gut erkennbar.



**Abbildung 4.5: Theoretisches Raman-Spektrum für alle Isotopologe.** Die dargestellten Raman-Spektren aller 6 Wasserstoffisotopologe wurden mit den gleichen Parametern wie das Spektrum in Abbildung 4.4 berechnet. Die  $Q_1$ -Linien aller 6 Wasserstoffisotopologe sind klar voneinander getrennt.

## 4.3 Technische Anforderungen an LARA für KATRIN

Um bei KATRIN die Zusammensetzung des in die Quelle eingespeisten Gasgemisches zu überwachen, muss der Aufbau folgende technische Anforderungen erfüllen:

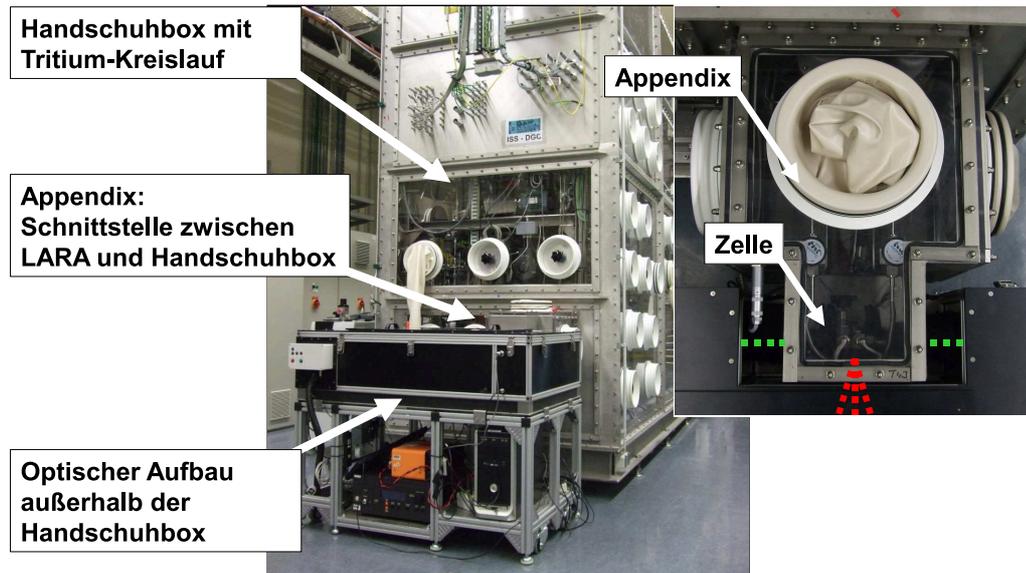
- Die Messungen müssen in der Handschuhbox durchgeführt werden. Die zur Messung verwendete Probenzelle muss tritiumkompatibel gefertigt sein. Es gelten die in den Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen [TLA04] aufgeführten und in Abschnitt 3.3.1 zusammengefassten Anforderungen.
- Es muss verhindert werden, dass Streulicht – beispielsweise von Lampen – das Spektrum überlagert.
- Der Aufbau muss mechanisch robust und bedienerfreundlich sein und darf nicht durch Vibrationen oder andere Einflüsse von Pumpen in der Handschuhbox beeinträchtigt werden.
- Laser und Elektronik müssen auch im Langzeitbetrieb (3 Monate) stabil und zuverlässig funktionieren.

## 4.4 Der Aufbau des LARA-Systems

Um diese Anforderungen zu erfüllen, wurde ein Aufbau gewählt, der in 3 Elemente unterteilt ist. Der an der ISS-Box installierte Gesamtaufbau ist in Abbildung 4.6 zu sehen. Der Aufbau gliedert sich in 3 Komponenten:

- Der optische Aufbau außerhalb der Handschuhbox: Er enthält Laser, Spektrometer, CCD, sowie sämtliche optische Komponenten.
- Der Appendix an der Handschuhbox: Er stellt die Schnittstelle zwischen dem optischen Aufbau außerhalb der Handschuhbox und der LARA-Zelle in der Box dar.
- Die LARA-Zelle mit Verbindungsleitungen zu den Tritiumkreisläufen in der Box.

Der Aufbau wird in den folgenden Abschnitten vorgestellt.



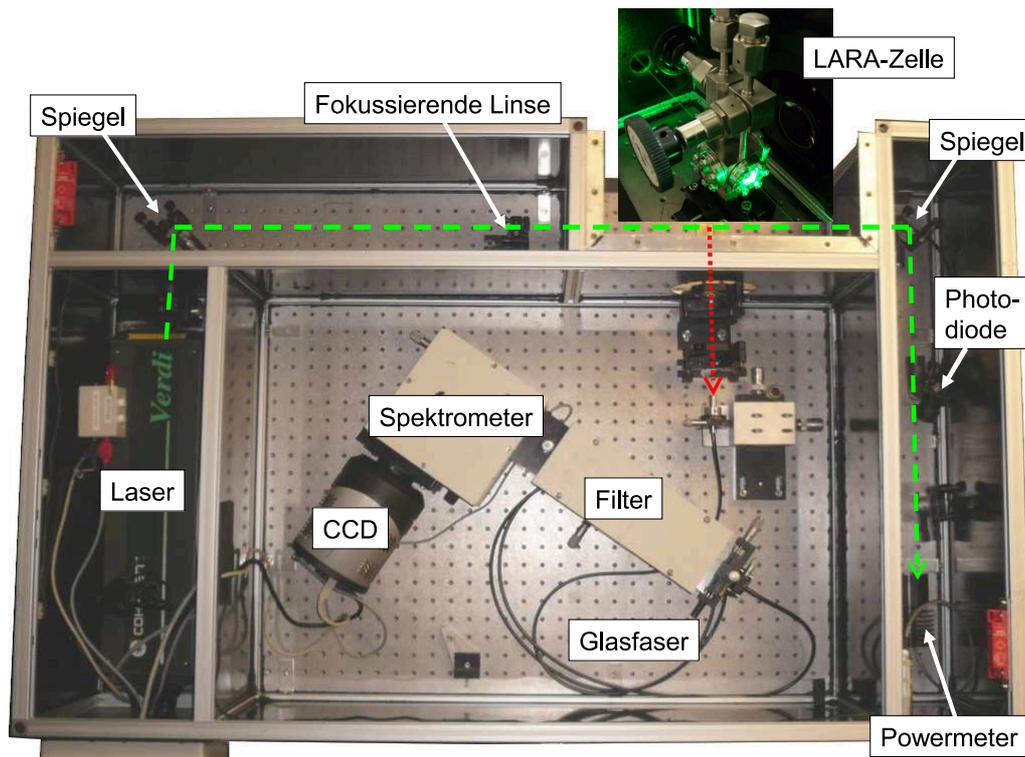
**Abbildung 4.6: LARA an der ISS-Handschuhbox.** Der optische Aufbau befindet sich außerhalb der Handschuhbox und kann daher nicht kontaminiert werden. Die Laser-Ramanzelle befindet sich innerhalb des Appendix der ISS-Handschuhbox.

#### 4.4.1 Der optische Aufbau außerhalb der Handschuhbox: Die LARA-Box

Das bei KATRIN verwendete Laser-Raman-System wurde von 2005-2007 durch den Kollaborationspartner University of Swansea entwickelt [Lew07]. Der komplette optische Aufbau befindet sich außerhalb der Handschuhbox. Der optische Tisch ist als mobiler Aufbau mit Rollen konzipiert. Für die Verwendung am Appendix (weiter unten im Text) wurde er gegenüber dem ursprünglichen Aufbau modifiziert. Der grundlegende Aufbau wurde beibehalten.

Der Aufbau der LARA-Box ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Der optische Aufbau befindet sich auf einem optischen Tisch, der durch lichtdichte PVC-Platten in mehrere Abteilungen unterteilt ist. Der Deckel ist zweigeteilt, der eine Teil deckt den Bereich ab, durch den der Laserstrahl geführt wird, der andere das separate Spektrometerabteil. Ein drittes Abteil nimmt den LARA-Appendix mit der Laser-Ramanzelle auf<sup>4</sup>. Justierarbeiten am Spektrometer bzw. der Sammelseite können so bei abgedecktem Laserstrahl durchgeführt werden. Unter dem optischen Tisch befinden sich das Lasernetzteil, sowie der PC zur Datenaufnahme.

<sup>4</sup>Wenn Messungen außerhalb der Handschuhbox durchgeführt werden, nimmt es die LARA-Zelle direkt auf.



**Abbildung 4.7: Der Laser-Raman-Aufbau.** Dargestellt ist ein Blick von oben auf den geöffneten optischen Aufbau. Der optische Tisch ist in mehrere Abteile unterteilt, die einzeln abgedeckt werden können. Der Laserstrahl ist so gegenüber dem Spektrometer gekapselt. Dies vereinfacht Justierarbeiten am Spektrometer, da hier der Laserstrahl bei geschlossenem Deckel nicht zugänglich ist. Öffnet man im Betrieb die Abdeckung der laserführenden Bereiche, wird der Laserstrahl durch einen Shutter unmittelbar vor dem Laser unterbrochen und ist nicht mehr zugänglich.

Der optische Aufbau beinhaltet folgende Komponenten:

- **Laser:** Als Laser wird ein Nd:Vanadate ( $\text{Nd:YVO}_4$ ) Laser verwendet (Coherent Verdi V5). Die Ausgangsleistung lässt sich von Hand im Bereich 50 mW bis 5 Watt einregeln. Der Laser wurde aus einem vorherigen Laser-Raman-Experiment am TLK ([Tay01]) übernommen, mit dem nur Messungen an Protium/Deuterium-Mischungen durchgeführt wurden.
- **Optische Komponenten:** Linsen, Spiegel und Halterungen stammen vom Hersteller Thorlabs und sind mit einer Entspiegelung<sup>5</sup> versehen.
- **Glasfaser:** Die Glasfaser leitet das Streulicht in das Spektrometer. Sie besteht aus 48 linear angeordneten Fasern mit je 100  $\mu\text{m}$  Durchmesser.

<sup>5</sup>< 0,4% Reflexionsgrad im Wellenlängenbereich 350 nm bis 700 nm

- **Shutter:** Ein Shutter unterbricht den Laserstrahl sobald das Gehäuse geöffnet wird.
- **Wellenlängenfilter:** Der Wellenlängenfilter unterdrückt das elastisch gestreute Laserlicht.
- **Spektrometer:** Das Spektrometer zerlegt das Streulicht spektral. Verwendet wird ein Linsenspektrometer von Princeton Instruments (Typ HTS-Lens-Spectrograph) mit einem Öffnungsverhältnis  $f/1.8$ .
- **CCD:** Die CCD nimmt das Spektrum auf. Verwendet wird eine Pixis 2KB von Princeton Instruments mit einer Auflösung von 2048x512 Pixeln (27,6 x 6,9 mm Bildfläche).

Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus findet sich in der Diplomarbeit von Magnus Schlösser [Sch09].

#### 4.4.2 Die Laser-Raman-Zelle

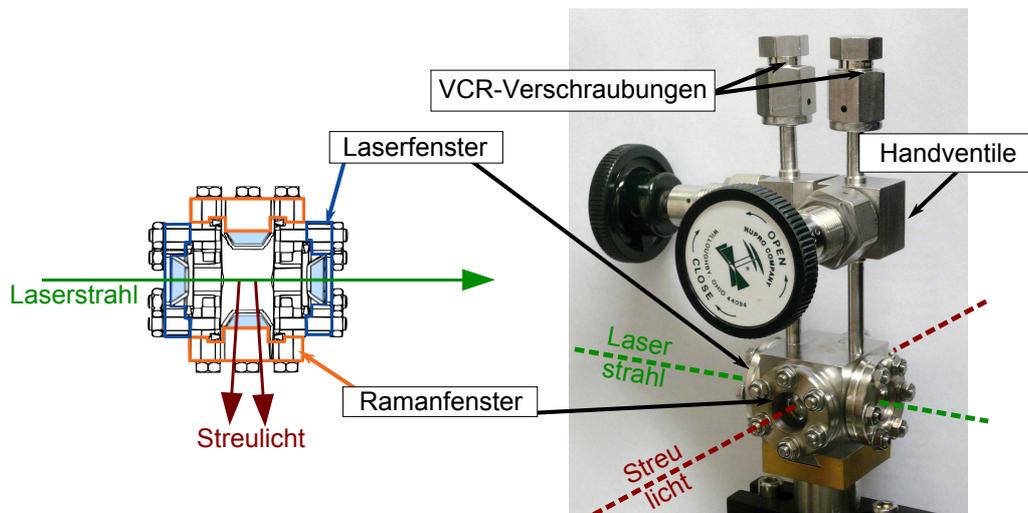
Kommerziell erhältliche Gasküvetten sind für die Analytik tritierter Gasgemische nicht brauchbar. Die bei KATRIN verwendeten LARA-Zellen (siehe Abbildung 4.8) bestehen aus einem ganzmetallischen Zellgrundkörper an den zwei ganzmetallische Faltenbalgventile mit 1/4-Zoll-VCR-Flanschen angeschweißt sind, über die der Anschluss an die Tritiumkreisläufe erfolgt. An den Grundkörper sind in CF16-Flansche UHV-dicht eingefasste Laserfenster aus Quarzglas angebracht.

Die Flansche mit den eingefassten Fenstern wurden von der UKAEA Fusion Special Techniques Group<sup>6</sup> angefertigt. Für die problematische Verbindung zwischen optischem Material und Edelstahl wurde ein geeigneter Festkörperdiffusionsverbindungsprozess verwendet. Dieser sorgt für eine mechanisch belastbare und ultrahochvakuumdichte Verbindung zwischen dem Quarzglas des Fensters und einem Tantalring, der mit dem Edelstahl des Flansches im Elektronenstrahl verschweißt wird. Die optischen Fenster wurden durch die Firma Laseroptik GmbH entspiegelt<sup>7</sup>.

Für KATRIN werden bereits bestehende LARA-Zellen aus dem früheren Laser-Raman-Aufbau des TLKs ([Tay01]) verwendet und nachgebaut. Das Design der LARA-Zellen geht zurück auf die im Rahmen der Doktorarbeit von U.Engelmann am Institut für Radiochemie [Eng92] angefertigten LARA-Zellen.

<sup>6</sup>inzwischen Culham Centre for Fusion Energy Special Techniques Group

<sup>7</sup>Sie wurden mit unterschiedlichen Entspiegelungen versehen:  $< 0,3\%$  Reflexionsgrad bei 532 nm für die Fenster, durch die der Laserstrahl geleitet wird,  $< 1\%$  Reflexionsgrad im Bereich 450-750 nm für die Fenster, über die das Streulicht abgegriffen wird.



**Abbildung 4.8: Laser-Ramanzelle.** Die Laser-Ramanzellen bestehen aus einem Edelstahlgrundkörper, an den 2 ganzmetallische Handventile angeschweißt sind. Die optischen Fenster sind in CF-Flansche eingefasst, die an den Grundkörper angeschraubt werden. Die Zellen besitzen ein inneres Volumen von  $8,1 \text{ cm}^3$ .

#### 4.4.3 Der LARA-Appendix für die ISS-Box

Bei den späteren in-line-Messungen mit den Tritiumkreisläufen wird das gesamte in das Quellrohr der WGTS eingespeiste Gasgemisch (ca. 40 g Tritium/Tag) durch die Laser-Ramanzelle geschickt und analysiert. Die Laser-Ramanzelle muss sich daher bei den Messungen innerhalb der zweiten Hülle der Handschuhbox befinden<sup>8</sup>. Es wurde daher im Rahmen dieser Arbeit ein sogenannter Appendix an die ISS-Handschuhbox angebaut (siehe Abbildung 4.9), der die LARA-Zelle samt ihrer Zu- und Ableitungen zum Tritiumkreislauf aufnimmt. In den Wänden des Appendix befinden sich Laserfenster, durch die der Laserstrahl in den Appendix, durch die Zelle und aus dem Appendix wieder hinaus geleitet wird. Das Streulicht wird über ein drittes Fenster abgegriffen.

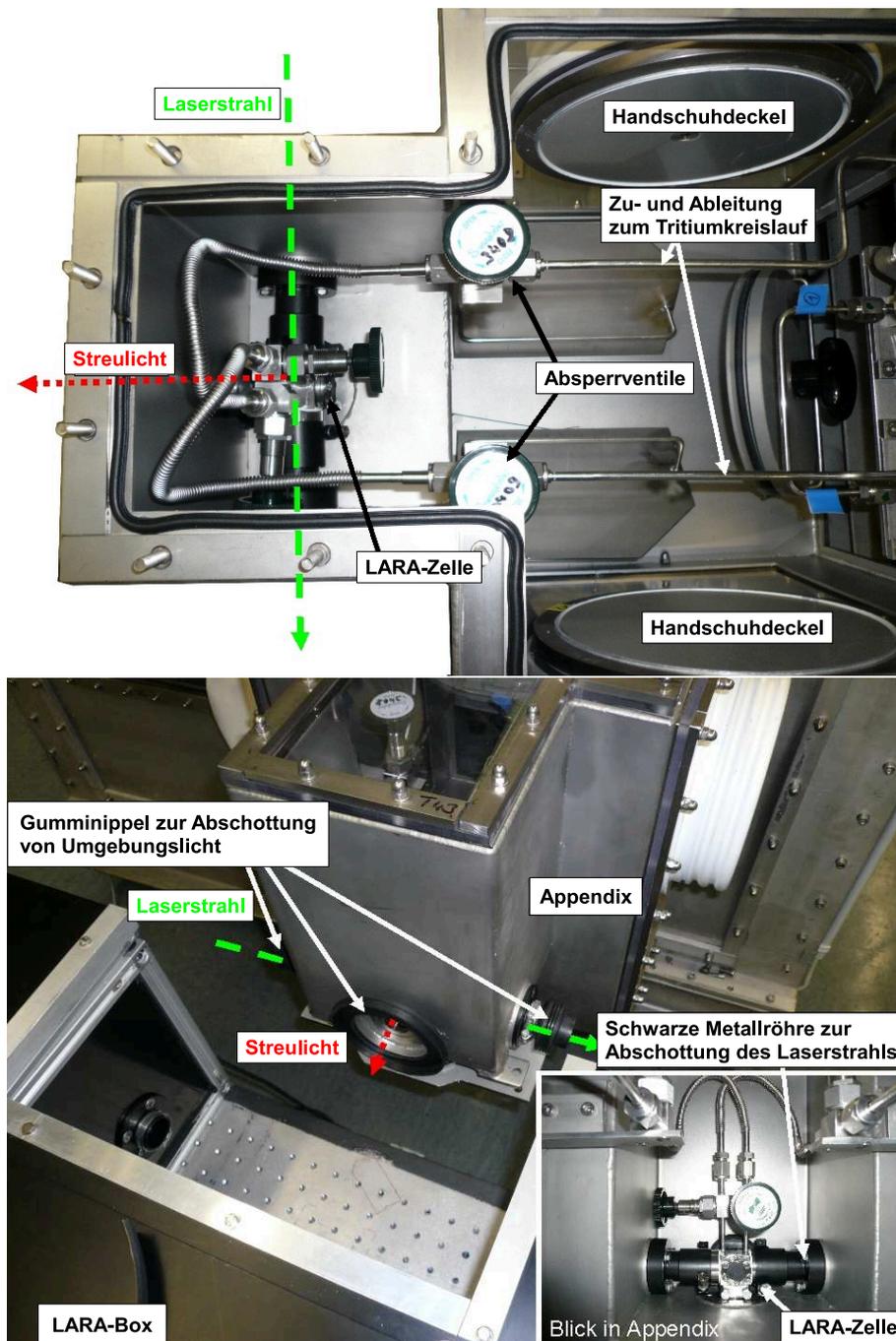
Folgende Anforderungen galt es beim Design des Appendix zu berücksichtigen:

- Bedien- und Austauschbarkeit der Zelle, wobei der Zugriff nur über Handschuhe erfolgt. Es gelten die gleichen Kriterien wie beim Aufbau der Tritiumkreisläufe.
- Abschottung des Strahlenganges gegenüber des Umgebungslichts. Umgebungslicht verfälscht das Spektrum des gestreuten Laserlichts.
- Vermeidung der Übertragung von Vibrationen auf die LARA-Box. Die in den Tritiumkreisläufen und in der Isotopentrennanlage eingesetzten Faltenbalgpumpen verursachen bauartbedingt Vibrationen. Diese werden auf die gesamte

<sup>8</sup>Bei Umgang mit Aktivitäten  $> 10^{10} \text{ Bq}$  muss innerhalb einer 2. Hülle gearbeitet werden. Bei kleineren Aktivitäten kann auch unter einem Abzug gemessen werden.

Handschuhbox übertragen und würden die optischen Messungen stören, wenn die Zelle nicht schwingungstechnisch vom Appendix entkoppelt würde.

Abbildung 4.9 zeigt einen Blick von oben in den Appendix. Die LARA-Zelle wird auf einer Schwalbenschwanzhalterung montiert. Diese befindet sich auf einer Bodenplatte, die über einen Metallfaltenbalg mit dem Appendix verbunden ist, um die Übertragung von Vibrationen auf die LARA-Box zu vermeiden. Sollen LARA-Messungen mit dem Appendix durchgeführt werden, wird die LARA-Box so positioniert, dass das Zellabteil den Appendix aufnimmt. Die Bodenplatte wird mit der LARA-Box verschraubt.



**Abbildung 4.9: Der LARA-Appendix.** Für die Laser-Ramanmessungen innerhalb der Handschuhbox wurde diese mit einem Appendix erweitert [Ste08]. Handschuhöffnungen in den Makrolonabdeckungen gewährleisten Bedien- und Erreichbarkeit innerhalb des Appendix. Der Laserstrahl wird durch zwei entspiegelte Laserfenster durch den Appendix und die darin befindliche LARA-Zelle geführt. Das Streulicht wird durch ein drittes Fenster abgegriffen. Schwarze Rohre und Gummipippel gewährleisten, dass der Laserstrahl von außen nicht zugänglich ist und verhindern, dass Umgebungslicht das Spektrum überlagert.

## 4.5 LOOPINO: Ein Testkreislauf für erste Laser-Raman-Testmessungen mit zirkulierendem Tritium am TLK

### 4.5.1 Motivation

Die Tritiumkreisläufe werden erst nach Anlieferung des WGTS-Kryostaten mit Tritium betrieben. Die grundlegenden Testmessungen mit LARA im Circulation Loop könnten – um diesen nicht vor Lieferung und Inbetriebnahme der WGTS zu kontaminieren – nur mit Deuterium/Wasserstoffgemischen durchgeführt werden. Um dennoch systematische Untersuchungen an zirkulierendem Tritiumgas durchzuführen, wurde kurzfristig ein Teil des Exhaust-Loop (Abschnitt 3.3.4.1) um den Testkreislauf LOOPINO erweitert. Ein Aufbau eines komplett autarken Kreislaufes wäre aufgrund der Kosten für zwei zusätzliche Pumpen und der Platzverhältnisse in der ISS-Handschuhbox nicht möglich gewesen.

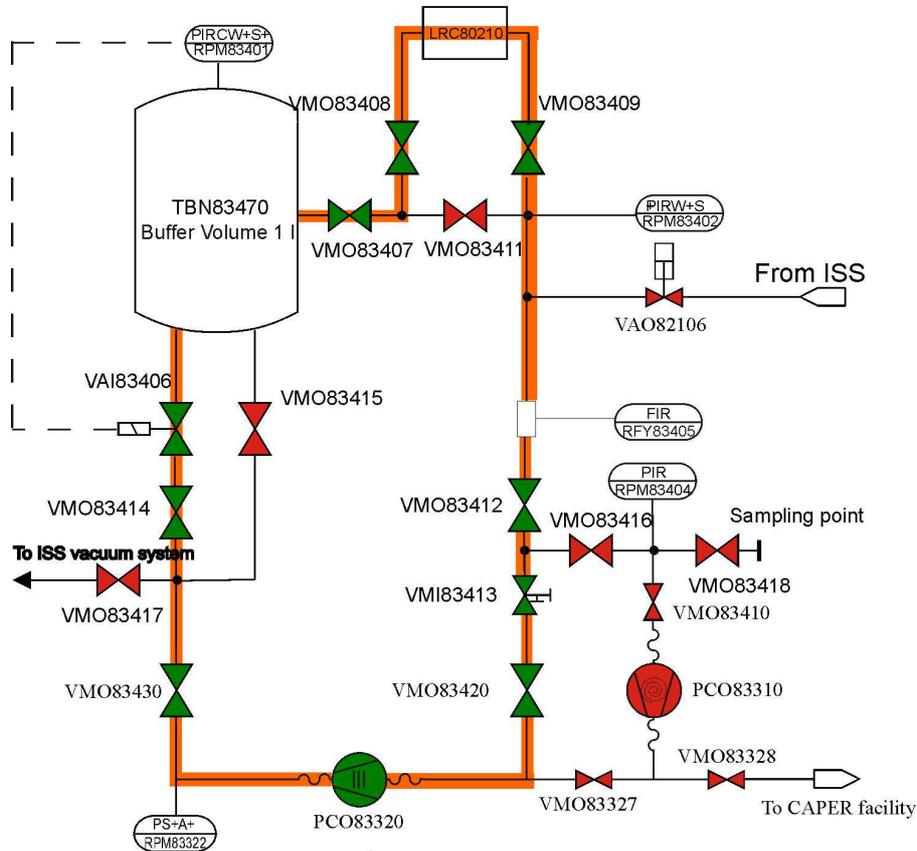
Mit LOOPINO können wichtige Untersuchungen durchgeführt werden, noch bevor KATRIN komplett aufgebaut ist:

- Demonstration der Stabilität des Systems (Langzeituntersuchungen).
- Untersuchung systematischer Effekte, die nur in Verbindung mit Tritium auftreten (z.B. Isotopenaustauscheffekte und Entstehung von Methanen).

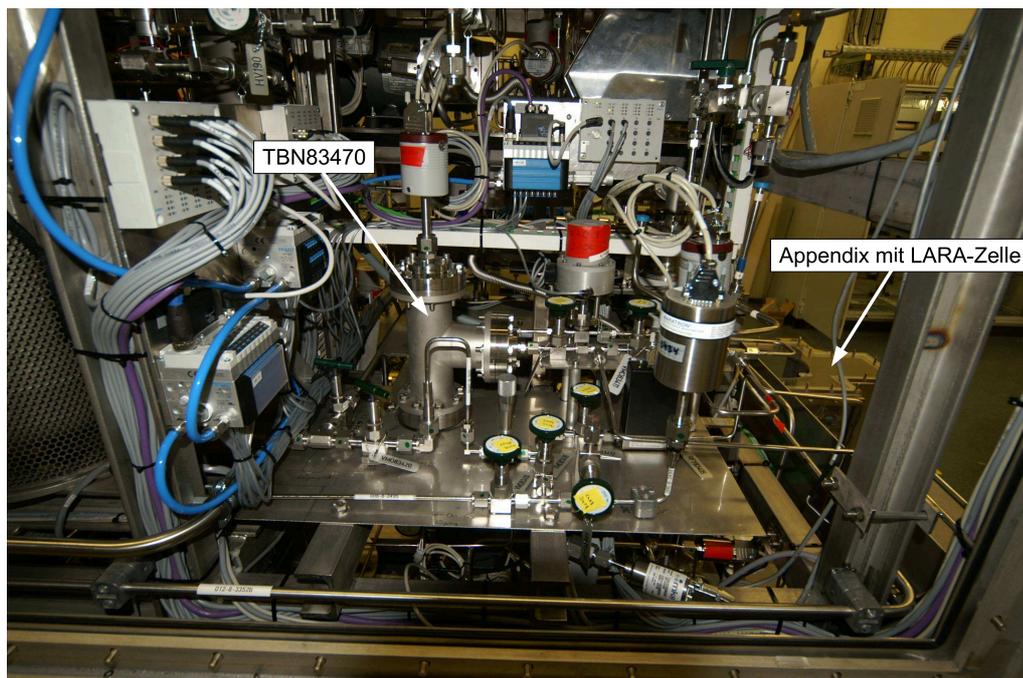
### 4.5.2 Aufbau und Inbetriebnahme von LOOPINO

Der Aufbau von LOOPINO erfolgte parallel zum Einbau der Tritiumkreisläufe und nach den gleichen Kriterien, die auch beim Einbau der Tritiumkreisläufe angewandt wurden. Ebenso wurde eine Sicherheitstechnische Beschreibung erstellt [STB09b]. Abbildung 4.10 zeigt das Fließbild von LOOPINO, Abbildung 4.11 ein Bild des Aufbaus in der ISS-Handschuhbox. LOOPINO greift auf den Bereich des Exhaust-Loop zurück, mit dem später Gas aus der DPS2-F und der CPS gefördert wird, sowie auf die Laser-Ramanzelle. LOOPINO wird betrieben werden, bis die Tritiumkreisläufe von KATRIN mit Tritium in Betrieb genommen werden (voraussichtlich 2012).

LOOPINO wird direkt mit Tritium aus der Isotopentrennanlage versorgt. Das Gas wird an CAPER (siehe Abschnitt 3.2.2) zur Tritiumrückgewinnung abgegeben. LOOPINO ist dabei über die selben Schnittstellen mit den beiden Gewerken verbunden, über die die Tritiumkreisläufe von KATRIN später angebunden werden.



**Abbildung 4.10: Fließbild von LOOPINO.** Der Weg des zirkulierten Gases ist farblich hinterlegt. Tritium wird aus einem Pufferbehälter (TBN83470) über die Laser-Ramanzelle (LRC80210) mit einer Faltenbalgpumpe (PCO83320) zirkuliert. Für Testmessungen an zirkulierendem Gas wird der Kreislauf mit Gas aus der Isotopentrennanlage auf einen Druck von ca. 200 mbar befüllt. Am PID-Regler für VAI83406 wird ein Sollwert zwischen 60 und 220 mbar vorgegeben und danach die Kreislaufpumpe PCO83320 angeschaltet. Nach dem Einschalten wird gewartet bis sich der Druck auf den vorgegebenen Wert stabilisiert hat. Mit dem Nadelventil VMI83413 wird der Durchfluss auf den gewünschten Wert eingeregelt. Der Testkreislauf besitzt ein Volumen von insgesamt ca. 2 l. Steigt der Druck in Pufferbehälter TBN83470 oder nach der LARA-Zelle über 400 bzw 450 mbar an, erfolgt eine Abschaltung durch das lokale Leitsystem. Ein Druckschalter auf der Druckseite von Faltenbalgpumpe PCO83320 schaltet bei 950 mbar ab. Die Spiraltaumelpumpe PCO83310 wird zur Evakuierung von LOOPINO nach CAPER verwendet. Dabei wird das Gas über eine ca. 55 m lange Verbindungsleitung von CAPER aus leerpumpt, die Pumpe PCO83310 unterstützt dies.



**Abbildung 4.11: Foto von LOOPINO.** Zu sehen ist ein Foto von LOOPINO vor Schließung der Handschuhbox. Nicht im Bild zu sehen sind die beiden Pumpen PCO83310 und PCO83320, die sich in einem anderen Teil der Handschuhbox befinden.

### 4.5.3 Vorgesehene Messungen mit LOOPINO

Mit LOOPINO ist es möglich, Messungen an zirkulierendem Tritiumgas unter ähnlichen Bedingungen wie im späteren KATRIN-Betrieb durchzuführen. Der Druck im Pufferbehälter und damit auch in der Zelle<sup>9</sup> wird über einen PID-Regler auf einen vorgegebenen Sollwert zwischen 60 und 220 mbar stabilisiert. Mit dem Nadelventil wird der Durchfluss auf den gewünschten Wert reguliert.

Im Gegensatz zum Circulation-Loop besitzt LOOPINO keinen Permeator der Verunreinigungen aus dem Gasfluss abtrennt und für eine Equilibrierung des zirkulierten Wasserstoffgemisches sorgt.

Mit dem Testkreislauf LOOPINO sind folgende Messungen möglich:

- Durchführung von Langzeitmessungen mit zirkulierendem Tritium unter vergleichbaren Bedingungen wie im späteren KATRIN-Betrieb.
- Test des Gastransfers von der ISS und des Gastransfers zu CAPER.
- Nachweis der Durchführbarkeit von LARA-Messungen in einer Handschuhbox.
- Untersuchung von systematischen Effekten im Langzeitbetrieb.
- Untersuchung von Wand- und Austauscheffekten wie Bildung von tritiierten Kohlenwasserstoffen, Isotopenaustausch mit in den Edelstahlwänden befindlichem Wasserstoff und Isotopenaustausch mit anderen Molekülen im zirkulierten Gasgemisch.

Die oben genannten Messungen sind von größter Wichtigkeit für KATRIN, da sie helfen, systematische Effekte der KATRIN-Quelle besser zu verstehen. Die ersten Messungen dieser Art werden im folgenden Kapitel vorgestellt.

---

<sup>9</sup>Den größten Strömungswiderstand haben dabei das Nadelventil, sowie der Flussmesser vor dem Eingang der Pumpe, der Druck in der LARA-Zelle ist daher identisch mit dem Druck im Einlassbehälter.



# Kapitel 5

## Erste Laser-Raman-Messungen mit Tritium am TLK

In diesem Kapitel werden die Laser-Ramanmessungen vorgestellt, die im Rahmen dieser Arbeit mit dem in Kapitel 4 vorgestellten Aufbau durchgeführt wurden. Ein Überblick über diese für KATRIN sehr wichtigen Testmessungen erfolgt in Abschnitt 5.1. In Abschnitt 5.2 wird der Ablauf einer Messung diskutiert, insbesondere der Weg vom 2-dimensionalen Bild der CCD zum Spektrum. Messungen an statischen Gasproben mit inaktiven Protium/Deuteriumgemischen und die Messungen mit geringen Tritiumkonzentrationen unter einem Abzug werden in Abschnitt 5.3 vorgestellt. Die Messungen mit zirkulierenden tritiumhaltigen Wasserstoffgemischen im Testkreislauf LOOPINO in der ISS-Handschuhbox werden in Abschnitt 5.4 vorgestellt.

### 5.1 Überblick über die durchgeführten Messungen

Tabelle 5.1 gibt einen Überblick über die durchgeführten Messungen. Die ersten Messungen erfolgten mit inaktiven Protium-/Deuteriumgemischen an einer statischen Zelle. Danach wurden die ersten LARA-Messungen an Tritium im TLK mit statischen Zellen mit geringen Tritiumaktivitäten ( $< 10^{10}$  Bq) unter einem Abzug durchgeführt. Zu diesem Zeitpunkt waren LOOPINO und Appendix noch nicht verfügbar. Später erfolgten die Messungen mit höheren Tritiumaktivitäten in LOOPINO.

Tabelle 5.1: Überblick über die LARA-Messungen.

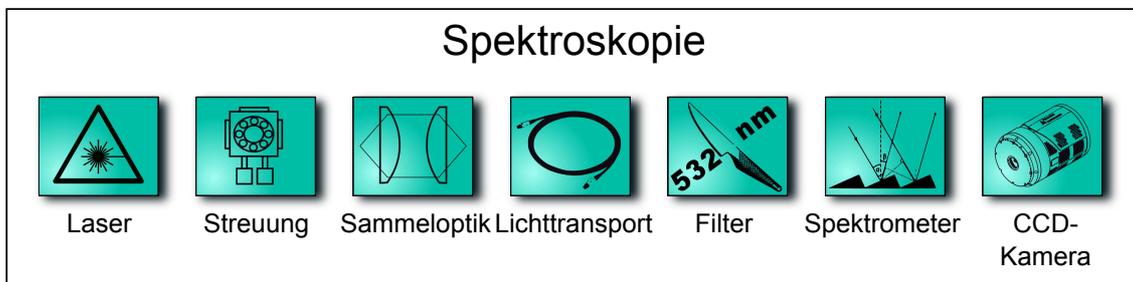
Beschreibung	Ziel der Messungen	Abschnitt
Messungen mit Protium/ Deuteriumgemischen	Charakterisierung des LARA-Systems, Untersuchung der Stabilität des Systems	5.3.1
Messungen mit niedrigen Tritiumaktivitäten unter einem Abzug	Erste LARA-Messungen mit Tritium Verifikation der Linienpositionen, Bestimmung der Nachweisgrenzen	5.3.2
Messungen an LOOPINO	Messungen unter KATRIN-Bedingungen Untersuchung der Langzeitstabilität in einer Handschuhbox, Bestimmung der Präzision, Untersuchung systematischer Effekte, die mit Tritium auftreten	5.4

## 5.2 Ablauf einer Messung

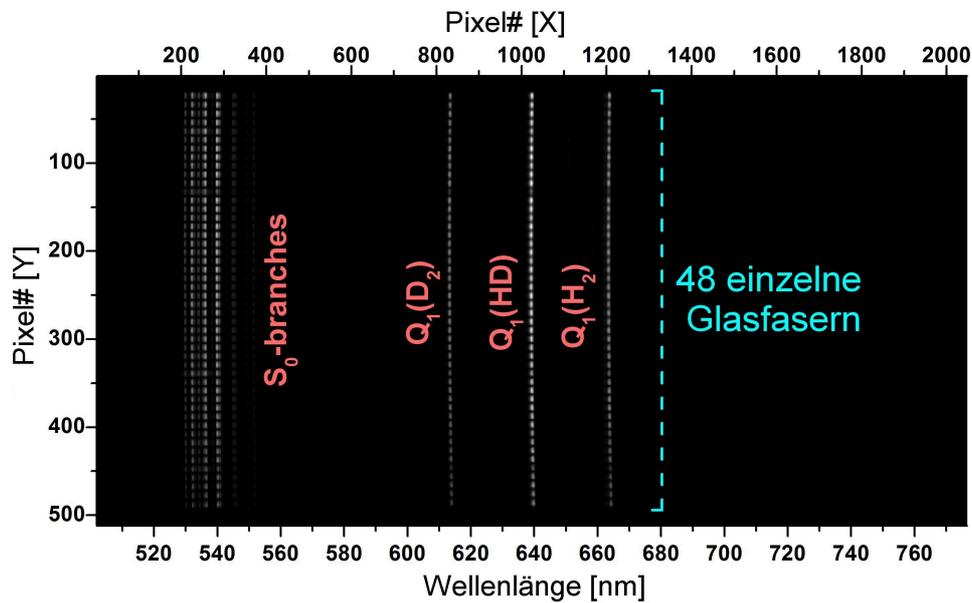
Eine LARA-Messung besteht zum einen aus der Datennahme und zum anderen aus der Datenauswertung. Alle Messungen, die im Folgenden diskutiert werden, laufen nach dem gleichem Schema ab.

In Abbildung 5.1 ist dargestellt, wie ein Spektrum gewonnen wird. Dazu muss das optische System sauber justiert sein (Zur Justierung siehe Anhang E, [Stu08] oder [Sch09]). Laserleistung, Eingangsschlitzbreite, des Spektrometers und Belichtungszeit werden geeignet gewählt und ein Rohspektrum mit der CCD aufgenommen. In Abbildung 5.2 ist solch ein direkt mit der CCD gewonnenes Rohspektrum dargestellt. Um daraus das finale Spektrum zu gewinnen, wird es noch weiter prozessiert. Die Prozessschritte sind in Abbildung 5.3 schematisch dargestellt. Die notwendigen Softwareroutinen wurden von R. Lewis entwickelt ([Lew07]). M. Schlösser erweiterte und integrierte die Routinen in eine einzelne Labview-basierende Softwareumgebung, so dass die Bildnahme und anschließende Prozessierung mit einer bedienerfreundlichen Oberfläche automatisch erfolgen kann [Sch09].

Zur Analyse werden in dieser Arbeit die  $Q_1$ -Linien als Signal für die jeweiligen Wasserstoffisotope verwendet. Diese sind im Gegensatz zu den  $S_0$ -Linien nicht in großem Maße von Untergrundbeiträgen überlagert (siehe auch die Spektren in Abschnitt 5.3.1). Die (berechneten) Linienpositionen finden sich in tabellierter Form in Anhang F.



**Abbildung 5.1: Ablauf einer LARA-Messung.** Das in der Probe inelastisch gestreute Laserlicht wird mit einer Sammeloptik in die Glasfaser abgebildet. Die Glasfaser leitet das Licht über einen Wellenlängenfilter in das Spektrometer. Dort wird das Licht spektral zerlegt und auf die CCD abgebildet. Der Wellenlängenfilter verhindert, das elastisch gestreute Laserlicht in das Spektrometer gelangt. Es wird um einen Faktor  $10^8 - 10^9$  unterdrückt.



**Abbildung 5.2: Rohdaten der CCD.** Dargestellt ist das auf der CCD abgebildete RAMAN-Spektrum einer 29/47/24 H<sub>2</sub>/HD/D<sub>2</sub>-Mischung (1000 s Belichtungszeit, Laserleistung 5 W, Eingangsschlitz Spektrometer 100  $\mu\text{m}$ ).

## Software Nachbearbeitung



**Abbildung 5.3: Aufbereitung der mit der CCD gewonnenen Daten.** Um aus dem Bild der CCD ein Spektrum zu gewinnen, werden folgende Schritte durchgeführt: Die spektrale Kalibrierung ermöglicht die Umrechnung der x-Achse in die zugehörige Wellenlänge. Der Astigmatismus, der zu gekrümmten Linien auf der CCD führt, wird korrigiert. Trifft ein Teilchen aus der kosmischen Strahlung die CCD, so wird ein Pixel belichtet. Eine Software routine sucht im Bild nach diesen lokalisierten Ereignissen und unterdrückt sie. Danach werden die Intensitäten entlang der y-Achse gemittelt.

## 5.3 LARA-Messungen mit statischer Zelle

### 5.3.1 LARA-Messungen mit Protium und Deuterium

Die ersten Messungen im Tritiumlabor an den inaktiven Isotopologen wurden an statischen Zellen, die aus einer Gasflasche befüllt wurden, durchgeführt. Tabelle 5.2 gibt einen Überblick über die Zusammensetzung der untersuchten Gasproben. Die Spektren und Messungen sind in der Diplomarbeit von Magnus Schlösser [Sch09] und in [Stu10] detailliert beschrieben.

In den Abbildungen 5.4 und 5.5 sind LARA-Spektren, die an diesen Mischungen gewonnen wurden, dargestellt. Bei den Messungen wurde die Nulllinie der CCD bereits abgezogen. Auf ein Pixel der CCD werden vom Spektrometer ungefähr 0,13 nm abgebildet. Die Linienbreite beträgt 1 nm.

Im Spektrum, das mit der gekauften equilibrierten Gasmischung aus H<sub>2</sub>, HD und D<sub>2</sub> gewonnen wurde, betragen die relativen Q<sub>1</sub>-Linienintensitäten 29,45%, 47,50% und 23,05%, dies entspricht den Angaben über die tatsächliche Zusammensetzung (siehe Tabelle 5.2). Daher ist es gerechtfertigt, das Verhältnis der Intensitäten zur Bestimmung der Zusammensetzung zu verwenden.

Im Spektrum von H<sub>2</sub> ist eine D<sub>2</sub> Linie sichtbar. Der Anteil von D<sub>2</sub> kann durch das Verhältnis der Intensitäten der Q<sub>1</sub>-Linien abgeschätzt werden:

$$c(D_2)_{\text{rel.}} = \frac{Q_1(D_2)}{Q_1(H_2)} \quad (5.1)$$

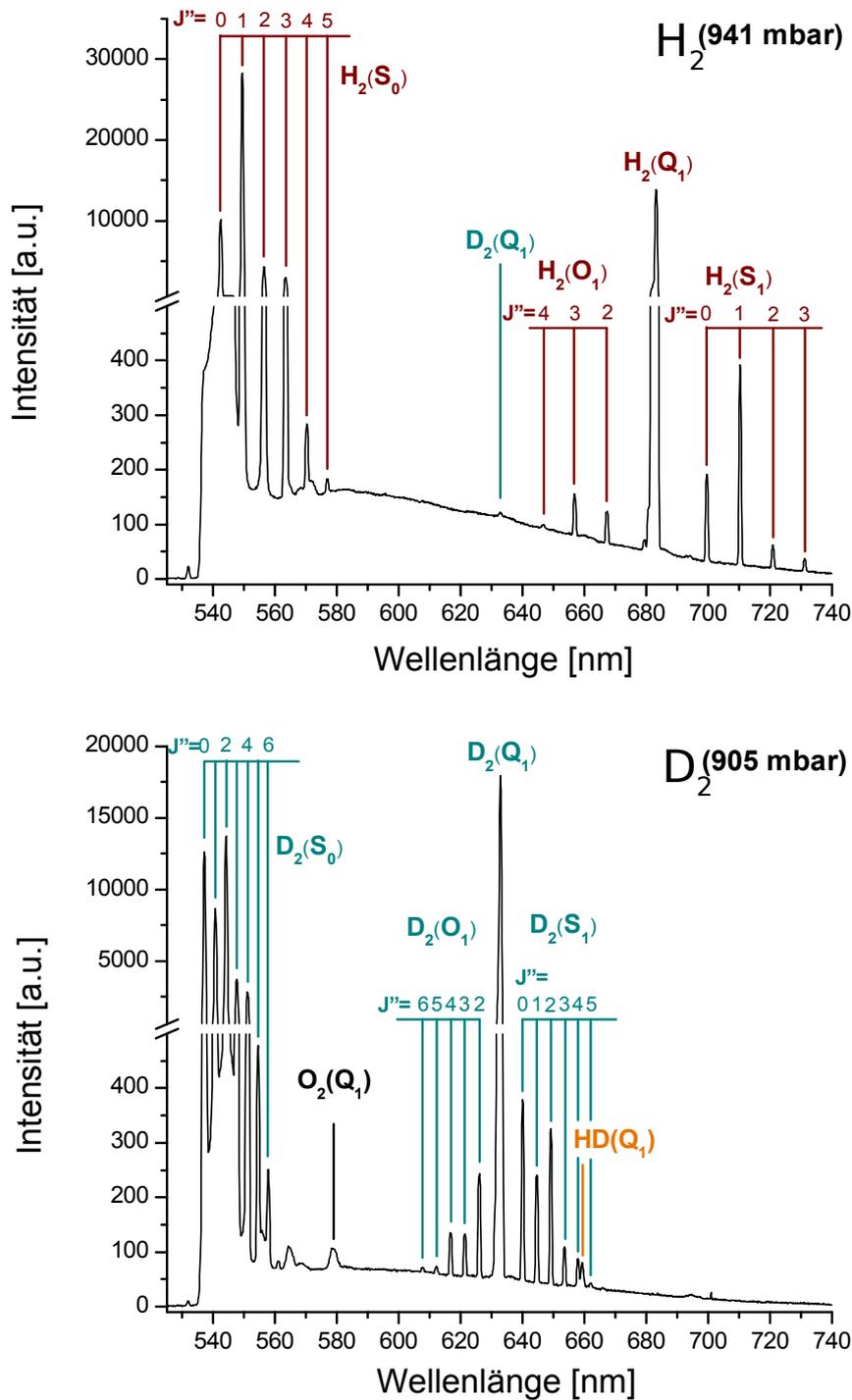
$$= \frac{7}{13800} = 0.05\% \quad (5.2)$$

Dieser Wert ist weitaus größer, als die angegebene Reinheit von 6.0 ( $\geq 99,9999\%$ ) der zum Befüllen der Zelle verwendeten Gasflasche. Dies liegt daran, dass sich in der zum Befüllen der Zellen verwendeten Anlage noch Restgas von vorherigen Experimenten mit Deuterium befand. Im Spektrum von reinem D<sub>2</sub> ist HD mit einer Konzentration von ca. 0,2% sichtbar. Dies entspricht noch der angegebenen Reinheit von 2.7 ( $\geq 99,7\%$ ) der Gasflasche. Zusätzlich ist noch eine Sauerstofflinie sichtbar. Es kann aber ausgeschlossen werden, dass sich Luft in der Zelle befand, da keine Stickstofflinie sichtbar ist. Daraus folgt, dass sich in der Deuteriumflasche noch Spuren von Sauerstoff befanden.

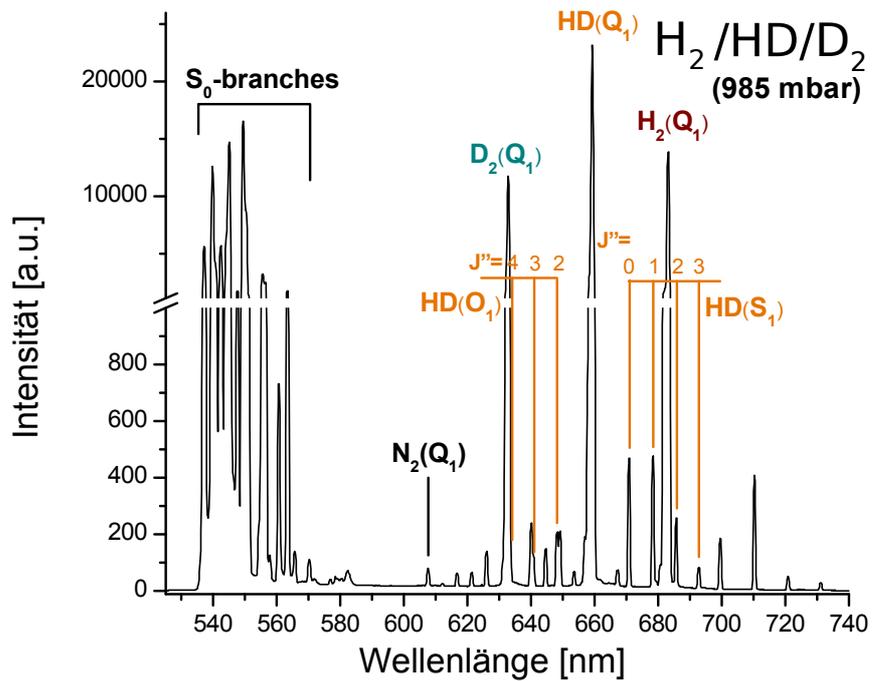
Die ersten Messungen haben gezeigt, dass mit dem LARA-Aufbau auch der Nachweis kleiner Verunreinigungen möglich ist, sowie dass man mit dem Verhältnis der gemessenen Linienintensitäten, die Verhältnisse von H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> und HD in einer Probe auf  $\pm 4\%$  bestimmen kann.

**Tabelle 5.2: Überblick über die verwendeten Gasmischungen bei den LARA-Messungen mit Protium und Deuterium.** Bei den Messungen mit Protium-/Deuteriumgemischen wurde die Zelle direkt aus (gekauften) Gasflaschen befüllt. Die Angaben über die Zusammensetzung sind die Angaben des Herstellers.

Probe	Druck [mbar]	H <sub>2</sub> [%]	HD[%]	D <sub>2</sub> [%]
Wasserstoff 6.0 (Air Liquide)	941 ± 1	100	-	-
Deuterium 2.7 (Messer-Griesheim)	905 ± 1	-	-	99,7
H <sub>2</sub> /HD/D <sub>2</sub> -Mischung (Linde Gas)	985 ± 1	29 ± 1	47 ± 1	24 ± 1



**Abbildung 5.4: Spektren der inaktiven Wasserstoffisotopologe.** Dargestellt sind Spektren, die an H<sub>2</sub> und D<sub>2</sub> gemessen wurden. Zu beachten ist, dass die Justierung bei den einzelnen Messungen unterschiedlich war, so dass ein direkter Vergleich der Intensitäten der unterschiedlichen Spektren nicht möglich ist. (Parameter: Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 1000 s, Schlitzbreite 127  $\mu\text{m}$ ). In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können.



**Abbildung 5.5: Spektren der inaktiven Wasserstoffisotopologe.** Dargestellt sind Spektren, die an einer equilibrierten Mischung aus H<sub>2</sub>, HD und D<sub>2</sub> gemessen wurden. (Parameter: Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 1000 s, Schlitzbreite 127 μm). In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können.

### 5.3.2 LARA-Messungen mit geringen Tritiumaktivitäten unter einem Abzug

Experimente mit Aktivitäten  $< 10^{10}$  Bq dürfen ohne 2. Hülle unter einem Abzug durchgeführt werden. Dies begrenzt zwar den Druck in der Zelle, allerdings sind Messungen unter einem Abzug leichter realisieren, als Messungen innerhalb einer Handschuhbox. Daher wurden die ersten Tritiummessungen mit niedrigen Tritiumkonzentrationen durchgeführt. Das war nicht weiter störend, da der Schwerpunkt dieser Messungen auf der Bestimmung der Linienpositionen lag, sowie auf der Frage, wie stabil eine solche Messung durchgeführt werden kann und welche Untergrundeffekte auftreten.

Für LARA wurde der Abzug folgendermaßen realisiert: Das Zellabteil wurde direkt an den Abluftkanal der Raumabluft angeschlossen, damit im Falle einer Leckage die freigesetzte Aktivität über die Laborabluft abgeführt werden kann.

Die tritiierten Gasmischungen wurden in CAPER hergestellt und in eine LARA-Zelle gefüllt. Tabelle 5.3 gibt einen Überblick über die Zusammensetzung dieser Gasproben. Eine detaillierte Beschreibung der Messung und der Herstellung der Gasmischungen bei CAPER findet sich in der Diplomarbeit von M.Schlösser [Sch09].

In den Abbildungen 5.6 und 5.7 sind Spektren, die mit diesen Gasproben gemessen wurden, dargestellt. Mit dem LARA-Aufbau konnten erstmalig alle 6 Wasserstoffisotopologe im Tritiumlabor Karlsruhe gemessen werden [Stu10].

**Tabelle 5.3: Überblick über die LARA-Messungen mit geringen Tritiumaktivitäten.** Die Mischungen wurden mit der CAPER-Anlage hergestellt. Die Zusammensetzung wurde mit einem Gas-Chromatographen ermittelt, der innerhalb der CAPER-Handschuhbox betrieben wird. Die Genauigkeit beträgt bestenfalls  $\approx 10\%$ , da eine Kalibration innerhalb der Handschuhbox sehr schwer durchführbar ist. Die angegebenen Werte stammen von zwei unabhängigen Analysen (Sie summieren sich nicht zwangsweise zu 100 % auf.).

\*: Druck gemessen bei ( $T = 25 - 28^\circ C$ ); \*\*: Standardbedingungen; nn: nicht nachgewiesen.

Probe	Druck [mbar]	H <sub>2</sub> [%]	HD[%]	D <sub>2</sub> [%]	HT[%]	DT[%]	T <sub>2</sub> [%]
Reines T <sub>2</sub>	$13.0 \pm 0.2^*$	nn	nn	nn	2.2	5.0	96.0
T <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> -Mischung	$95.6 \pm 0.2^{**}$	66.0	3.5	nn	24.0	0.77	2.9
T <sub>2</sub> /D <sub>2</sub> -Mischung	$93.4 \pm 0.2^{**}$	nn	1.9	69.0	0.30	23.0	2.2
T <sub>2</sub> /D <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> -Mischung	$154.8 \pm 0.2^*$	82.0	8.3	nn	8.5	0.49	0.27

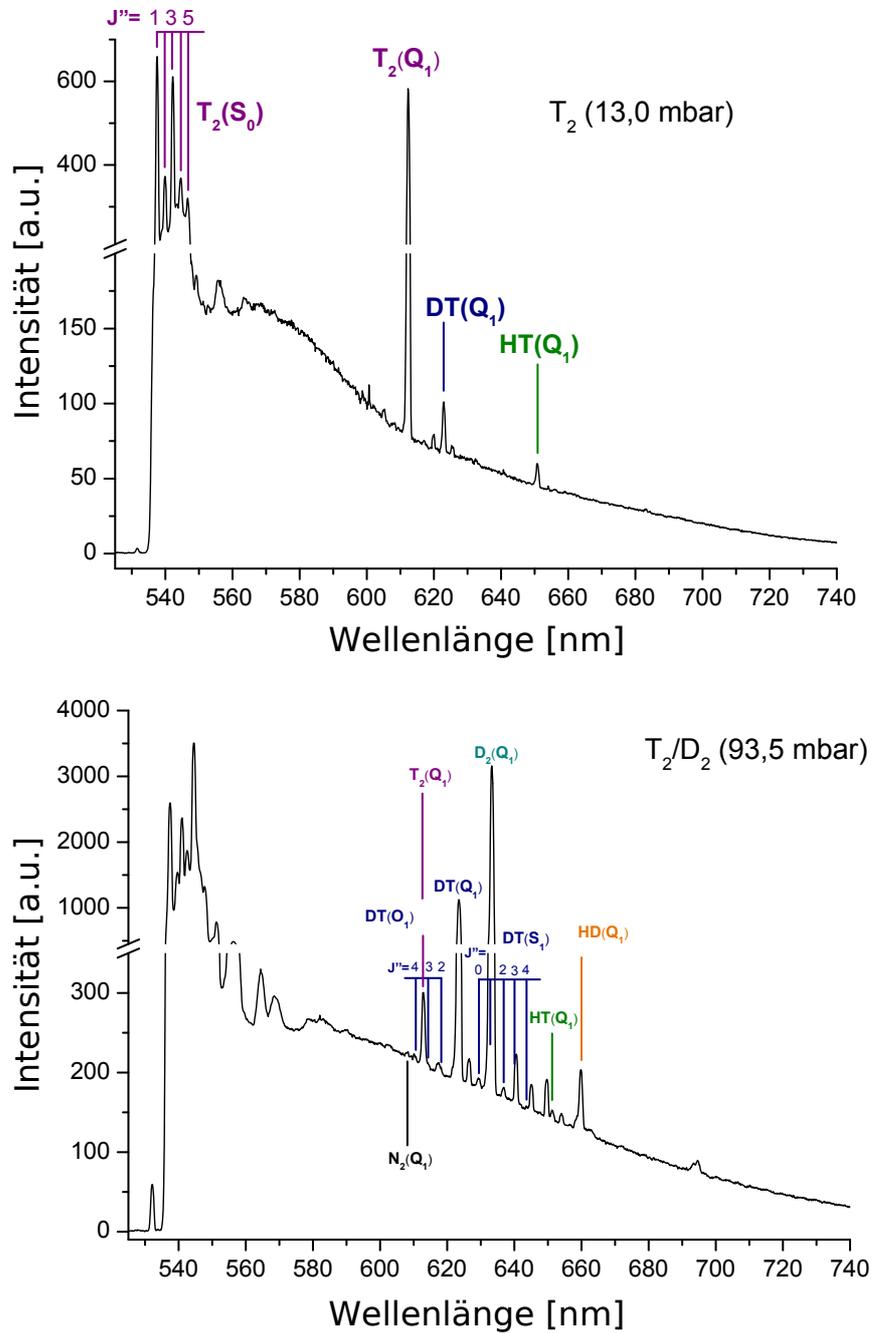
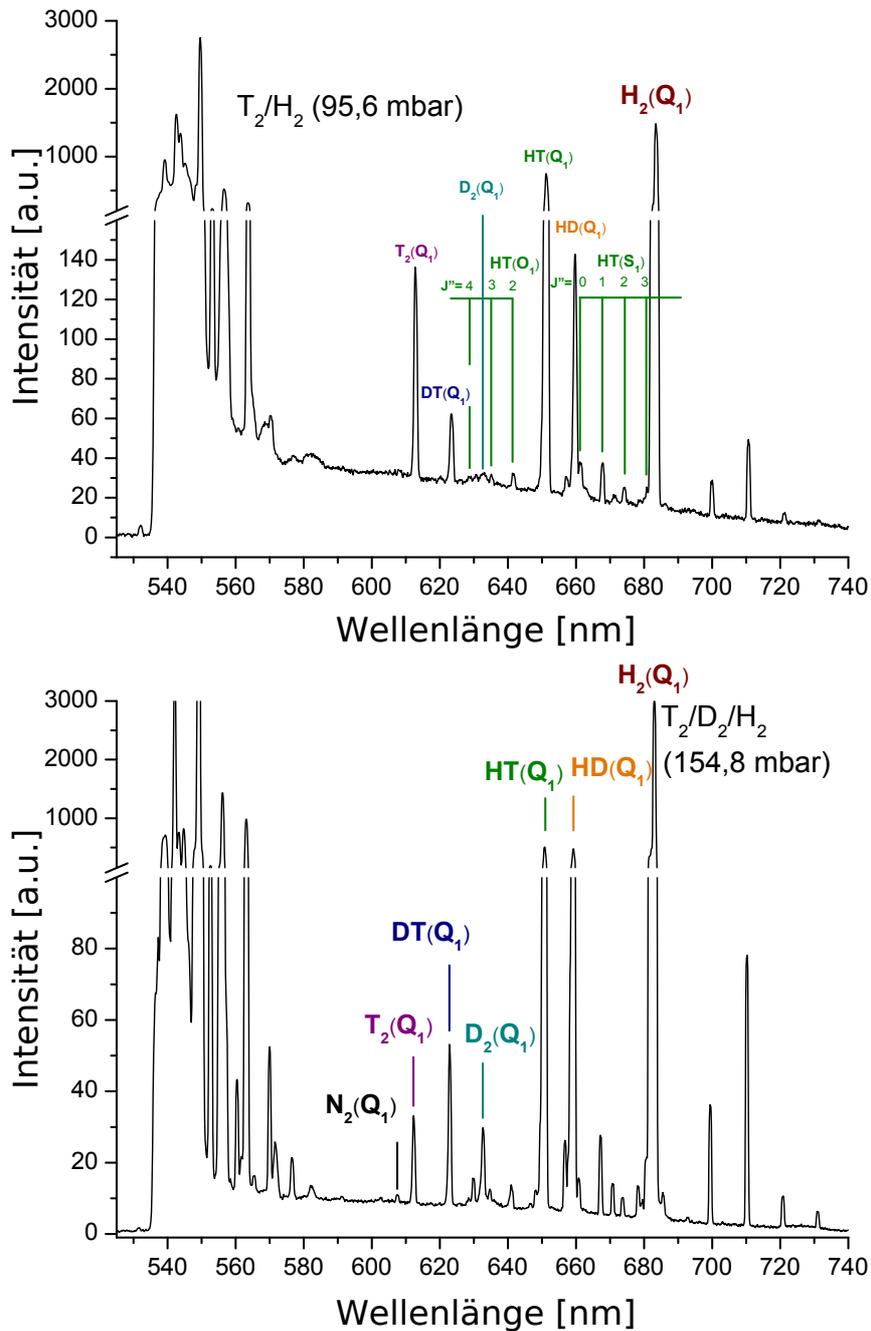


Abbildung 5.6: Spektren von tritiumhaltigen Gasmischungen. Zur Beschreibung der Spektren siehe Abb. 5.7.



**Abbildung 5.7: Spektren von tritiumhaltigen Gasmischungen.** Dargestellt sind Spektren von Wasserstoffgemischen unterschiedlicher Zusammensetzungen und einer Gesamtaktivität  $< 10^{10}$  Bq in der Zelle (Parameter: Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 1000 s, Schlitzbreite  $127 \mu\text{m}$ ). In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können. Die in den Spektren sichtbare Stickstofflinie stammt von Stickstoff, der sich noch in den Rohrleitungen der CAPER-Anlage befand.

### 5.3.3 Diskussion der Messungen und Zusammenfassung

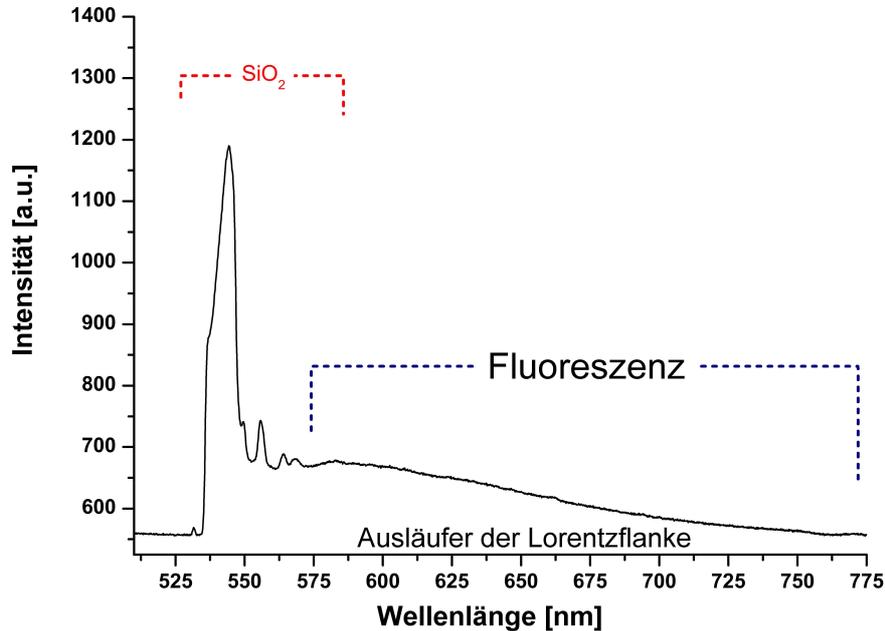
Mit den Messungen an statischen Zelle wurden folgende Erkenntnisse gewonnen:

- Die gleichzeitige Nachweisbarkeit aller 6 Wasserstoffisotope konnte gezeigt werden [Stu10]. Die Stabilität des Aufbaus wurde untersucht und der Aufbau optimiert (z.B. durch stabilere optische Halterungen).

Zur Analyse wird bis jetzt die Intensität der  $Q_1$ -Linien herangezogen. Wie in Abbildung 5.7 zu sehen ist, überlappen mehrere der S/O-Linien mit den  $Q_1$ -Zweigen anderer Isotope. Der  $Q_1$ -Zweig von DT wird von der  $S_1(J''=2)$ -Linie von  $T_2$  überlagert. Bei einer angenommenen Tritiumkonzentration von 95% enthält das bei KATRIN zirkulierte Gas  $\approx 90\%$   $T_2$ ,  $\approx 9\%$  DT und  $\approx 1\%$   $D_2$ . Ein weiterer Überlapp besteht im  $Q_1$ -Zweig von  $D_2$  und der  $S_1(J''=1)$ -Linie von DT. Dies muss in der Analyse berücksichtigt werden.

- Die Spektrallinien sitzen alle auf einem Untergrund. Dies kann man besonders deutlich im Spektrum von  $T_2$  bei 13,0 mbar sehen. Die Herkunft dieses Untergrundes konnte mit Messungen an einer evakuierten LARA-Zelle geklärt werden (Abbildung 5.8):
  - Die linienartige Struktur bei 545 nm wird durch Raman-Streuung in den Ein- und Austrittsfenster des Laserstrahls hervorgerufen. Das in den Quarzglasfenstern gestreute Laserlicht wird diffus an den inneren Zellwänden in die Sammelloptik gestreut. Ramanlicht von  $SiO_2$  liegt im selben Spektralbereich wie die  $S_0$ -Linien der Wasserstoffisotope, die Rotations-Schwingungs-Zweige  $O_1$ ,  $Q_1$  und  $S_1$  hingegen sind unbeeinflusst. Das ist einer der Gründe dafür, warum für die ersten Analysen die Intensität der  $Q_1$ -Linien verwendet wurde.
  - Die Fluoreszenz wird hauptsächlich durch Punktdefekte (hervorgerufen durch Verunreinigungen, Ionen oder Bestrahlung) im Glas hervorgerufen ([SCH04]). Die bei den Zellen verwendeten Gläser bestehen aus Quarzglas, das herstellungsbedingt eine hohe Reinheit aufweist. Die Fluoreszenzausbeute ist im Vergleich zu anderen Glasarten relativ gering.
  - Das komplette Spektrum wird von den Ausläufern der Lorentzflanke der Laserlinie überlagert. Trotz des Wellenlängenfilters, der Wellenlängen unterhalb von 535 nm um mehr als 8 Größenordnungen unterdrückt, wird Licht mit höheren Wellenlängen aus der Flanke der Lorentzverteilung der Laserlinie durchgelassen. Die Intensität des Rayleigh-gestreuten Lichts ist ungefähr 1000-mal intensiver, als die des Raman-gestreuten Lichts. Der Beitrag der Lorentzflanke zum Spektrum ist nicht vernachlässigbar.

Die Intensität des Untergrundes ist abhängig von der Position des Laserstrahls relativ zur Zelle. „Schießt“ der Strahl mittig durch die Zelle, lässt sich der Untergrund minimieren, jedoch nicht vollständig eliminieren. Untersuchungen hierzu finden sich in [Sch09].



**Abbildung 5.8: Spektrum einer evakuierten Zelle.** Das Spektrum der evakuierten Zelle zeigt 3 Beiträge, die jedes Spektrum überlagern. Der Verlauf um 550 nm wird durch Ramanstreuung in den Quarzglasfenstern hervorgerufen. Der schwach abfallende Beitrag wird durch Fluoreszenz in den Fenstern, sowie den Ausläufern der Lorentzkurve des Lasers hervorgerufen [Dem07] (Parameter der Messung: evakuierte Zelle, Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 1000 s).

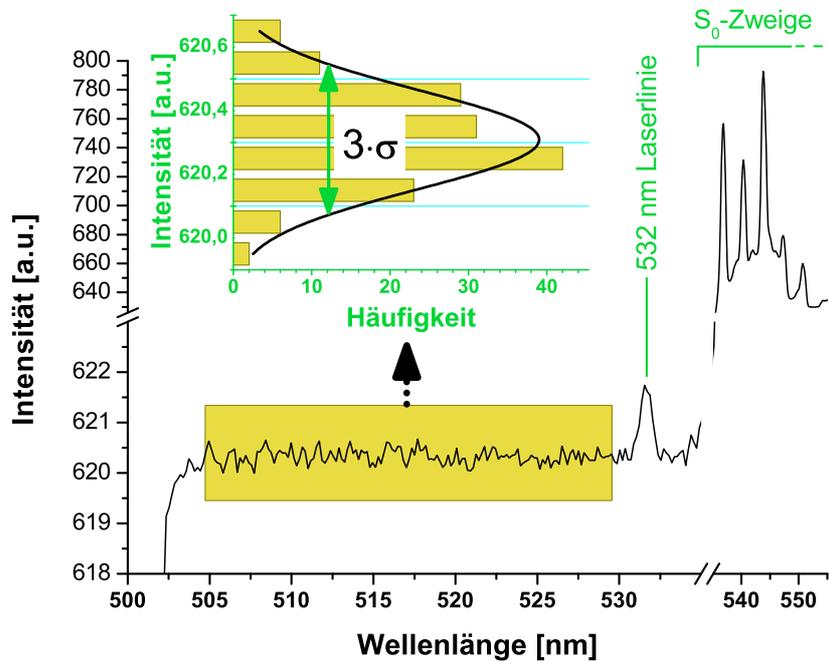
- Die Nachweisgrenze ist ein Maß für die Empfindlichkeit des Systems. Das Rauschen (Dunkelstrom und Ausleserauschen) wird, wie in Abbildung 5.9 dargestellt bestimmt. Die Nachweisgrenze ist definiert als  $I_{\text{LOD}} = 3 \cdot \sigma$  [Lon83]<sup>1</sup>. Der minimal nachweisbare Partialdruck korrespondiert zu diesem Wert (Signal-zu-Rauschen  $\text{SNR}_{\text{min}} = 3$ ). Der Gesamtdruck in der Zelle korrespondiert zur Summe der Intensitäten aller  $\text{Q}_1$ -Linien, wenn man gleiche Streuwahrscheinlichkeiten für alle Isotopologe annimmt. Für  $\text{T}_2$  erhält man so eine Nachweisgrenze von 0,015 mbar bei 1000 s Belichtungszeit und 5 W Laserleistung ([Sch09]). Bei einer Belichtungszeit von 250 s ergibt sich eine Nachweisgrenze von 0,06 mbar ([Sch09]). Im späteren KATRIN-Betrieb werden in der LARA-Zelle Drücke von  $\approx 150$  mbar herrschen. Dies entspricht daher einer Nachweisgrenze von 0,04% im späteren Betrieb. Dies genügt den Anforderungen von KATRIN.

In der Diplomarbeit von M.Schlösser ([Sch09]) wurden Langzeitmessungen an statischen Zellen zur Untersuchung der Stabilität des Aufbaus und Reproduzierbarkeit des Signals durchgeführt und Einflüsse von Instabilitäten des Lasers auf das Signal untersucht. Untersuchungen der Instabilitäten des Lasers sind aktuell auch

<sup>1</sup>LOD = level of detection

Schwerpunkt der Diplomarbeit von Sebastian Fischer [Fis10]. Schwankungen in der Laserleistung und eine Wanderung des Laserstrahls („beam-walk“) schlagen sich in der Intensität des beobachteten Signals nieder. Zur Analyse der Zusammensetzung ist es daher ratsam, nicht mit den absoluten Intensitäten zu arbeiten, sondern mit den relativen.

Weitere Testmessungen an Wasserstoffisotopologen mit statischer Zelle werden durchgeführt werden. Zur Herstellung von inaktiven Gasgemischen beliebiger Mischungsverhältnisse wurde im Tritiumlabor vor kurzem der HYDE-Loop (**H**ydrogen-**DE**uterium-Loop)) aufgebaut, in dem mittels eines Permeators innerhalb von Minuten beliebige thermodynamisch equilibrierte Mischungen aus Wasserstoff und Deuterium hergestellt werden können.



**Abbildung 5.9: Bestimmung des Rauschens (nach [Sch09]).** Dargestellt ist der Bereich des Spektrums um die Laserlinie bei 532 nm. Hier unterdrückt ein Wellenlängenfilter das Licht um 8 bis 9 Größenordnungen. Das Rauschen wird im farblich hinterlegten Bereich bestimmt. Die Häufigkeitsverteilung ist eine Gaußverteilung. Die Nachweisgrenze ist definiert als  $I_{\text{LOD}} = 3 \cdot \sigma$  [Lon83].

## 5.4 LARA-Messungen am Testkreislauf LOOPINO

### 5.4.1 Überblick über die Messungen

Nach erfolgter Installation der Tritiumkreisläufe und von LOOPINO in der Handschuhbox konnten die ersten LARA-Messungen an zirkulierenden Wasserstoffgemischen im TLK erfolgen<sup>2</sup>.

Der erste Testlauf wurde mit Deuterium 2.7 durchgeführt. Die Zusammensetzungen der triti

Bei den Messungen an LOOPINO wurden immer die gleichen Parameter für die LARA-Messung gewählt: 250 s Belichtungszeit, Laserleistung 5 W, Eingangsschlitz Spektrometer 100  $\mu\text{m}$ .

**Tabelle 5.4:** Resultate der GC-Analyse von CAPER der bei den Testläufen mit Tritium verwendeten Gasmischungen. Die einzelnen Werte haben eine Genauigkeit von 10%. Die Werte addieren sich daher nicht zwangsläufig zu 100% auf. Bei den Testläufen #2 und #3 wurde mit der gleichen Gasmischung gemessen (n.n. nicht nachgewiesen).

Isotopolog	Testlauf#2 und #3	Testlauf#4
T <sub>2</sub>	0,878	98,72
DT	8,318	0,87
D <sub>2</sub>	16,3	n.n
HT	8,97	0,41
HD	34,64	n.n
H <sub>2</sub>	31,77	n.n

<sup>2</sup>Gaszirkulation und Druckstabilisierung in LOOPINO wurden bereits vorab mit Stickstoff als zirkulierendem Gas, jedoch ohne LARA-Messungen erfolgreich getestet und sind hier nicht aufgeführt.

### 5.4.2 LOOPINO-Testlauf#1 mit zirkulierendem Deuterium

Das Ziel dieser ersten LARA-Messungen an LOOPINO war:

- Testen der Ankopplung des Systems an den Appendix.
- Untersuchung des Einflusses der Vibrationen, die durch die in der Handschuhbox befindlichen Pumpen verursacht werden.
- Untersuchung des Einflusses der zusätzlichen Fenster des Appendix.
- Untersuchung der Langzeitstabilität des Signals.

#### Experimenteller Überblick:

Die erste LARA-Messung mit LOOPINO wurde mit Deuterium durchgeführt<sup>3</sup>. Während dieser Messung war die ISS-Handschuhbox noch nicht wieder geschlossen. LARA wurde am Appendix installiert und LOOPINO wurde aus einer Gasflasche (Deuterium 2.7) auf 200 mbar befüllt. Die Zirkulation wurde gestartet und der Druck in der Zelle auf 200 mbar<sup>4</sup> stabilisiert bei einem Durchfluss von  $(188,2 \pm 0,7)$  sccm. Es wurden kontinuierlich Spektren zu 250 s Belichtungsdauer genommen.

#### Folgende Erkenntnisse wurden gewonnen:

- Bei der Installation von LARA am Appendix wurde der optische Aufbau auf den Appendix ausgerichtet. Diese erforderliche Ausrichtung des mehr als 100 kg schweren Aufbaus verlangt Geduld: das Lochbild des Appendix muss mit den Bohrungen des optischen Tisches in Deckung gebracht werden. Um Verspannungen der beiden Komponenten gegeneinander zu vermeiden muss dies mit einer Toleranz  $< 1$  mm erfolgen.
- Die Übertragung von Vibrationen von der Handschuhbox auf den optischen Aufbau lässt sich nicht ganz vermeiden, ist aber gering. Vibrationen am optischen Aufbau sind zwar spürbar, jedoch ließen sie sich mit einem empfindlichen Beschleunigungssensor nicht erfassen.
- Abbildung 5.10 zeigt ein zu Beginn der Messung gewonnenes Spektrum und ein am Ende der Messung gewonnenes Spektrum. Beide weisen den gleichen Verlauf auf, eine Änderung in der Zusammensetzung ist für den Zeitraum von 7 Tagen nicht erkennbar, d.h. bis zur Nachweisgrenze des Systems sind keine zusätzlichen Linien sichtbar.
- Abbildung 5.11 zeigt das Spektrum der evakuierten Zelle. Es weist den gleichen Verlauf auf wie Abbildung 5.8. Die zusätzlichen Fenster im Appendix liefern also keine zusätzlichen Untergrundbeiträge.

<sup>3</sup>Erste Tests einer Anlage im Tritiumlabor werden grundsätzlich inaktiv durchgeführt.

<sup>4</sup>Der Wert pendelte zwischen 199,9 und 200,2 mbar, die Auflösung, bedingt durch den verwendeten Analog-Digitalconverter mit dem der Drucksensor ausgelesen wird, beträgt 0,3 mbar

- In Abbildung 5.12 sind die Messgrößen Boxtemperatur, absolute Höhe und Fläche der  $Q_1$ -Zweige von  $D_2$  der gewonnenen Raman-Spektren, sowie der Verlauf des Untergrundes und die Photodiodenspannung als Maß für die Stabilität des Lasers dargestellt. Da eine Auswertung der ca. 2500 einzelnen Spektren von Hand sehr umständlich und in der begrenzten Zeit nicht möglich gewesen wäre, wurden sie mit ORIGIN automatisiert prozessiert. Dabei wird der Untergrund stückweise linear genähert, abgezogen und die Peakintensität bestimmt. Der Anstieg der Boxtemperatur im 24 Stundenrhythmus beruht auf Umschaltung von Tag- auf Nachtbetrieb der Lüftung des TLKs. Dabei ist der Wochenendbetrieb im Bereich 80-140 Stunden nach Beginn der Messung gut zu erkennen und zwar am Fehlen des mit der Umschaltung der Lüftung korrelierten Temperaturanstiegs in der Box.

Schwankungen der Boxtemperatur sind auch ein Indikator für Schwankungen der Labortemperatur (Die Deuteriummessungen wurden außerdem bei noch geöffneter Box durchgeführt). Peakintensität, Peakhöhe und die Spannung an der Photodiode zeigen insgesamt einen Abwärtstrend und weisen Korrelationen mit der Temperatur auf. Eine plausible Erklärung ist, dass der Laserstrahl mit der Temperatur korreliert wandert („Beam-walk“). Das Streulicht wird auf 48 linear angeordnete einzelne Glasfasern abgebildet (Durchmesser  $100\ \mu\text{m}$ ). Eine Strahlwanderung hat mehrere Auswirkungen:

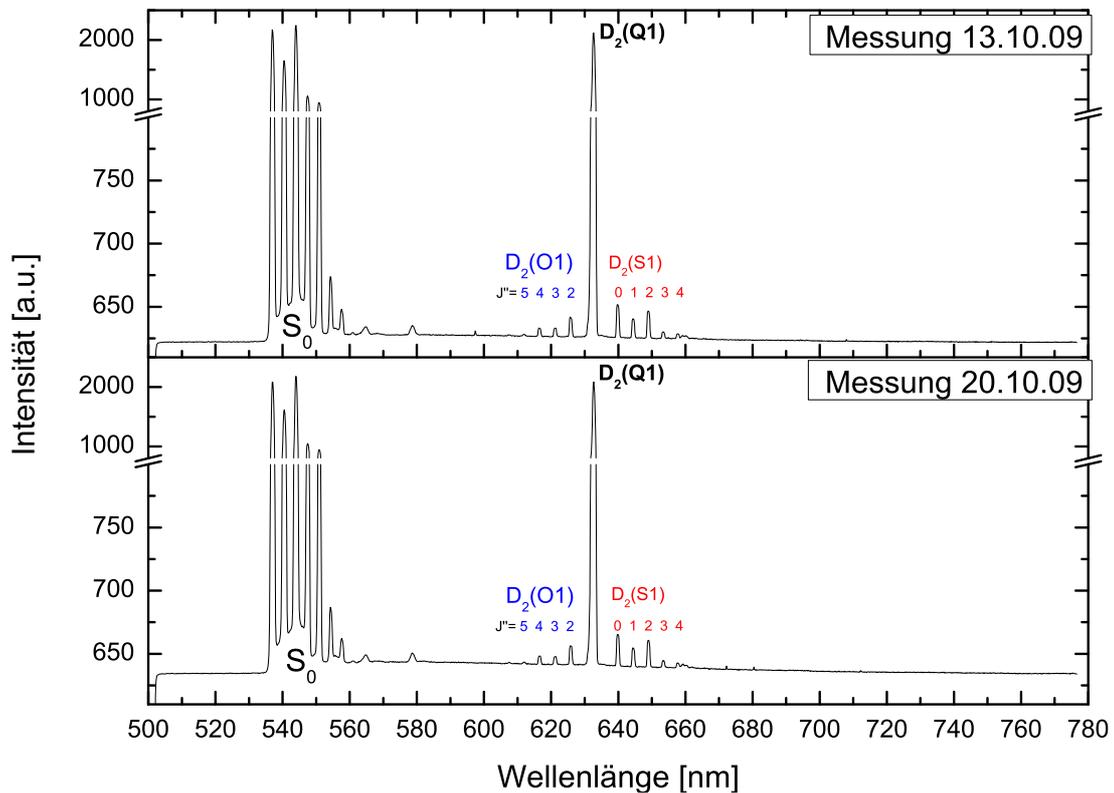
- Wandert der Strahl in der vertikalen, ändert sich das Streuvolumen in der Zelle. Es wird nicht mehr optimal auf die Glasfasern abgebildet. Eine Wanderung in horizontaler Richtung ist weniger kritisch, da nur die Abbildung minimal defokussiert wird, das Licht aber immer noch auf die Glasfasern trifft. Untersuchungen in [Sch09] zeigen, dass eine Versetzung des Laserstrahls um  $38\ \mu\text{m}$  in der vertikalen einen Intensitätsrückgang auf 78% verursacht.
- Die Ausleuchtung der Photodiode ändert sich und somit die Photodiodenspannung.
- Die Untergrundbeiträge durch Streuung und Fluoreszenz der Laserfenster ändern sich.

Alle 3 Effekte wurden beobachtet, so dass davon ausgegangen werden kann, dass der Laserstrahl in der Vertikalen gewandert ist. Würde die Laserleistung mit der Zeit abnehmen, der Strahlengang jedoch stabil stehen, müsste auch der Untergrund abnehmen. Eine Wanderung des Strahlenganges kann hervorgerufen werden durch:

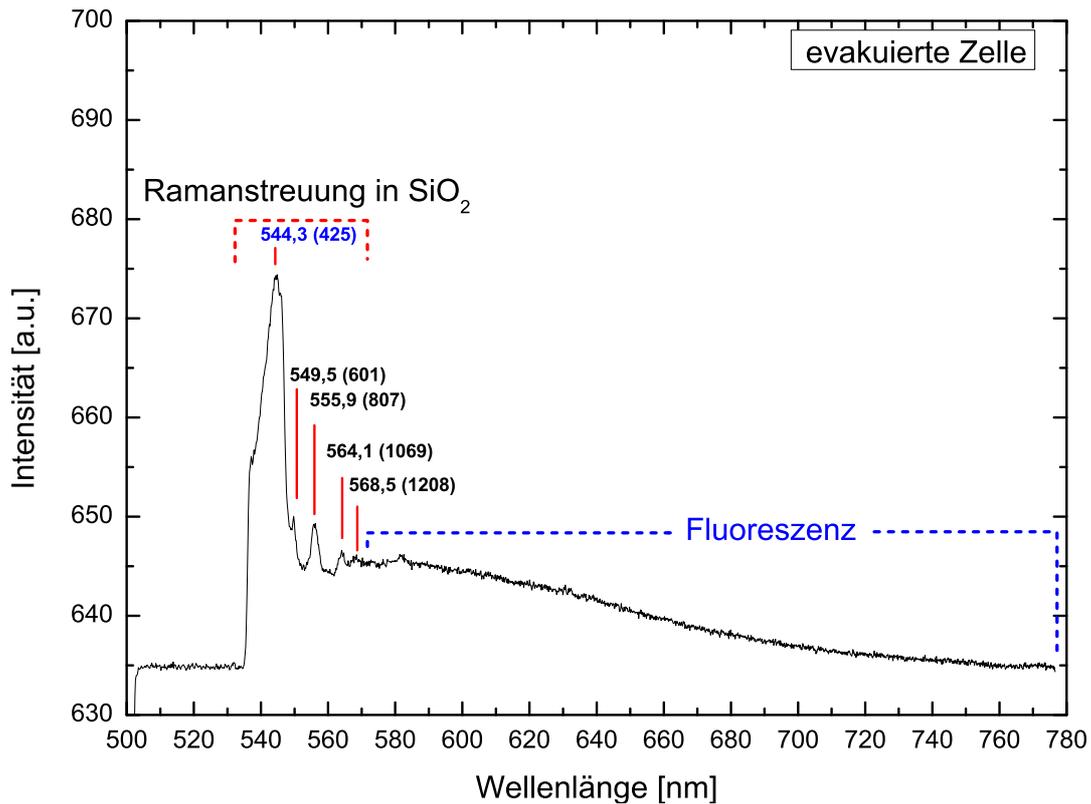
- Instabilitäten des verwendeten Lasers.
- Strahlversetzung durch die Optiken. Thermische Effekte in den Spiegeln und Linsen können prinzipiell zu einer Dejustierung des Strahlenganges führen. Eine andere Möglichkeit ist, dass optische Halterungen sich verstellen. Dies kann theoretisch von Vibrationen verursacht werden, die von

der Handschuhbox auf den optischen Tisch übertragen werden. Verwendet werden ausschließlich „ultra-stable-kinematic mounts“ von Thorlabs. Vibrationen werden trotzdem noch in geringem Maße auf die LARA-Box übertragen. Eine vollständige Entkopplung ist mit dem verwendeten Metallfaltenbalg nicht möglich.

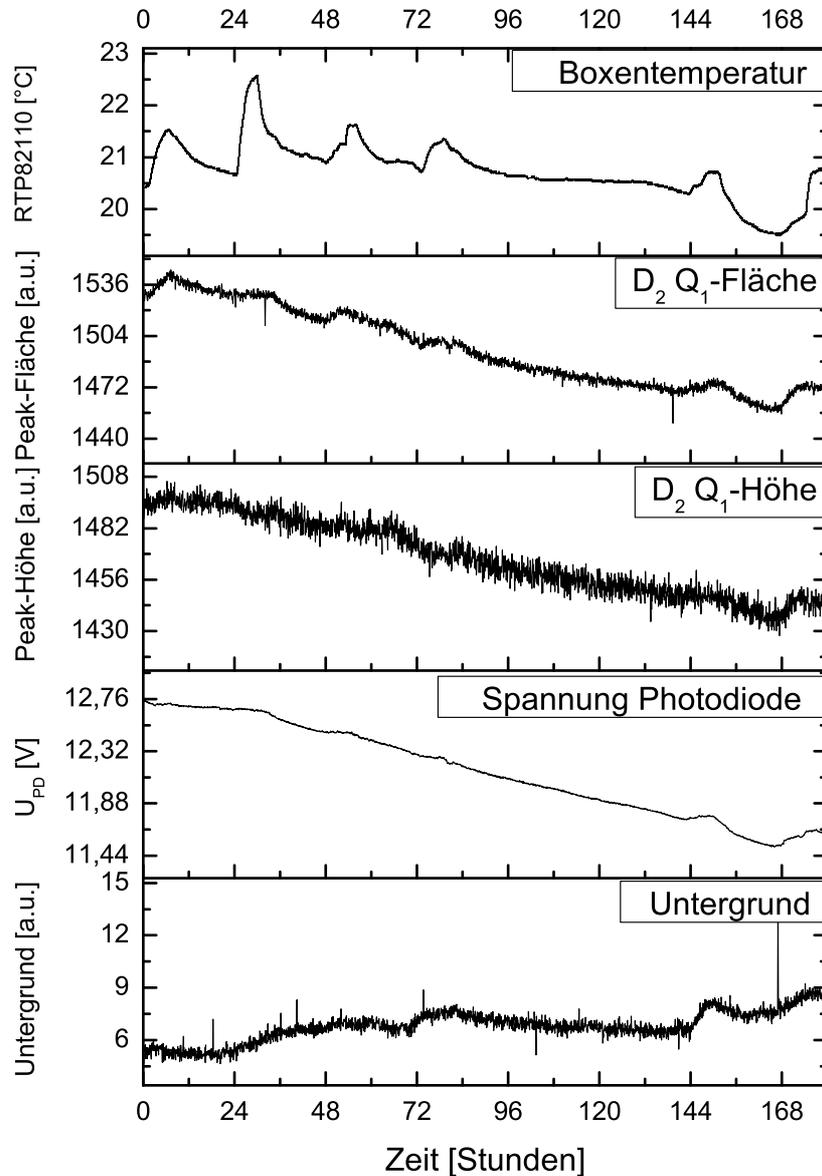
Im Rahmen von [Sch09] wurden auch Langzeitmessungen an statischen Zellen durchgeführt. Auch hier waren die beim ersten LOOPINO-Testlauf aufgetretenen Effekte sichtbar. Die beobachteten Verläufe beruhen allem Anschein nach auf Instabilitäten des Lasers. Im KATRIN-Betrieb würde dies große Probleme verursachen und muss so weit wie möglich vermieden werden. Untersuchungen zur Laserstabilität sind Thema der Diplomarbeit von S. Fischer [Fis10].



**Abbildung 5.10: LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#1.** Dargestellt sind Laser-Ramanspektren zu Beginn ( $t=2$  h) und Ende ( $t=180$  h) von LOOPINO-Testlauf#1. In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können. (Parameter der Messung: Druck 200 mbar, Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 250 s).



**Abbildung 5.11: Spektrum der evakuierten Zelle bei LOOPINO.** Das Spektrum der evakuierten Zelle in LOOPINO weist die gleichen Beiträge auf, wie das in Abbildung 5.8 präsentierte Spektrum. Die zusätzlichen Fenster beeinflussen den Verlauf des Untergrunds nicht. Der Verlauf um 550 nm wird durch Ramanstreuung in den Quarzglasfenstern hervorgerufen. Die Linienpositionen (in Klammern angegeben in  $\text{cm}^{-1}$ ) stimmen ( $\pm 25 \text{ cm}^{-1}$ ) mit den in [Wal81] veröffentlichten Positionen überein. Der schwach abfallende Beitrag wird zum einen hervorgerufen durch Fluoreszenz in den Fenstern, zum anderen durch den Ausläufer der Lorentzflanke des Lasers [Dem07].



**Abbildung 5.12: LOOPINO Run#1.** Während der Messungen wurden kontinuierlich Spektren aufgenommen. Insgesamt wurden so 2500 Spektren gewonnen. Dargestellt ist der Verlauf der Boxtemperatur, der Höhen und Flächen des Q<sub>1</sub>-Zweiges von D<sub>2</sub> der gewonnenen Raman-Spektren, sowie der Verlauf des Untergrundes. Der Untergrund gibt die Differenz der gemessenen Intensitäten bei Pixelreihe 580 (596,037 nm) und 1900 (762,164 nm) an und ist ein Maß für den durch Fluoreszenz und den Ausläufer der Lorentzflanke (siehe Abb. 5.11) verursachten Untergrundbeitrag zum Spektrum.

### 5.4.3 LOOPINO-Testlauf#2 mit einer niedrigtritierten Gasmischung

Nach dem erfolgreichen ersten Testlauf mit Deuterium wurde LOOPINO evakuiert<sup>5</sup>. Die Handschuhbox wurde geschlossen, die 2. Hülle der Handschuhbox wurde von der Infrastrukturgruppe des TLK wieder in Betrieb genommen. Zudem wurde ein Laserleistungsmessgerät des Typs Powermeter Coherent LM45 installiert<sup>6</sup>. Damit kann der Laser mit der Photodiode und mit dem Laserleistungsmessgerät überwacht werden. Bei den mit dem LM45 gemessenen Daten für Leistung und Position ist zu beachten, dass der Laserstrahl größer ist, als die sensitive Fläche des Sensors. Es wird daher eine insgesamt geringere Leistung gemessen. Zur Überwachung der Stabilität des Lasers ist dies nicht von Belang.

Die Ziele dieses ersten Testlaufs mit einer tritiumhaltigen Gasmischung waren:

- Erste Inbetriebnahme von LOOPINO mit einer tritiumhaltigen Gasmischung.
- Erste LARA-Messungen an einer tritiumhaltigen Gasmischung, die in einem Kreislauf umgepumpt wird.
- Untersuchung von Effekten die nur bei tritiumhaltigen Gasmischungen beobachtbar sind, wie Isotopenaustauscheffekte und Wandaustauscheffekte.
- Untersuchung der Langzeitstabilität des Signals.

#### Experimenteller Überblick:

LOOPINO wurde mit einer tritiumhaltigen Gasmischung (ca. 9% Tritiumanteil) aus der ISS auf einen Gesamtdruck von 194 mbar befüllt (Zusammensetzung laut GC-Analyse siehe Tabelle 5.4). Die Zirkulation wurde gestartet und ein Sollwert von 200 mbar im Pufferbehälter vorgegeben. Der Durchfluss lag bei ca. 120 sccm. Die LARA-Messungen wurden gestartet. Nach 160 Stunden Messdauer wurde der Testlauf am 22.12.09 gestoppt, da das Labor über Weihnachten und Neujahr geschlossen war. Die Gasmischung wurde in LOOPINO stehen gelassen.

#### Folgende Resultate wurden erzielt:

- In Abbildung 5.13 sind Spektren zu Beginn und zu Ende des Testlaufs dargestellt, um Änderungen in der Zusammensetzung besser sehen zu können. Man kann folgendes erkennen:
  - Es sind keine zusätzlichen Linien erkennbar.
  - Die Verhältnisse der Linienintensitäten zueinander haben sich weniger als 0,5% geändert.

---

<sup>5</sup>Da LOOPINO bis dahin noch nicht mit Tritium betrieben worden war, wurde mit einem Lecksucher evakuiert.

<sup>6</sup>Zuvor war an dessen Stelle eine Strahlfalle eingebaut, die den Laserstrahl terminierte.

In Abbildung 5.14 sind die Verläufe der absoluten Intensitäten der  $Q_1$ -Linien der Wasserstoffisotopologe, sowie die Messwerte der Photodiode und des LM45-Sensors und die Temperatur der LARA-Zelle<sup>7</sup> dargestellt. Sie weisen einen mit der Temperatur korrelierten Verlauf auf.

- Abbildung 5.15 zeigt die relativen Intensitäten der  $Q_1$ -Linien. Dazu wurde die Intensität einer Linie durch die Summe der Intensitäten aller Linien geteilt.

In Tabelle 5.5 sind die Mittelwerte der absoluten und der relativen Intensitäten angegeben, unter der Annahme, dass die Gasmischung konstant geblieben ist. Unter dieser Annahme erhält man für die Präzision der Messung, wenn man die absoluten Intensitäten betrachtet, Werte im Bereich 3,77% ( $T_2$ )<sup>8</sup> bis 0,5% (HD) und für die relativen Intensitäten 3,77% ( $T_2$ ) bis 0,5% (HD), bzw. Präzisionen  $\approx 0,15$  mbar. Bei einem späteren Partialdruck von  $T_2$  von 150 mbar, würde dies den Anforderungen von KATRIN genügen. Die Implementierung multivariater Analysemethoden, die das gesamte Spektrum und nicht nur einzelne Linien berücksichtigen, bietet das Potential die Präzision der Messung zu verbessern. Arbeiten hierzu sind bereits im Gange.

Die Annahme, dass die Gasmischung konstant geblieben ist, ist aufgrund des Zerfalls von Tritium nur näherungsweise richtig. Im Verlauf der relativen Intensitäten sind Änderungen sichtbar. Ausgleichsgeraden wurden an die einzelnen Verläufe in Abbildung 5.15 angepasst. Die Parameter der Regression sind in Tabelle 5.6 aufgelistet. Die Intensitäten der heteronuklearen Spezies Isotopologe HT und HD nehmen minimal zu, die der homonuklearen Isotopologe ( $H_2$ ,  $D_2$ ,  $T_2$ ) minimal ab. Dieses Verhalten war auch zu erwarten, da Isotopenaustauschreaktionen in tritiumhaltigen Wasserstoffgemischen kein unbekanntes Phänomen sind [Uda92]. Verantwortlich dafür ist die Entstehung von Ionen und Radikalen durch den  $\beta$ -Zerfall. Die in diesem Testlauf verwendete Mischung weist nur eine geringe Tritiumkonzentration (ca. 9%) auf und war bereits zu Beginn der Messung equilibriert. Durch den Tritiumzerfall treten jedoch leichte Änderungen in der Zusammensetzung auf, die zur Bestimmung der Präzision bei dieser Messung vernachlässigt wurden.

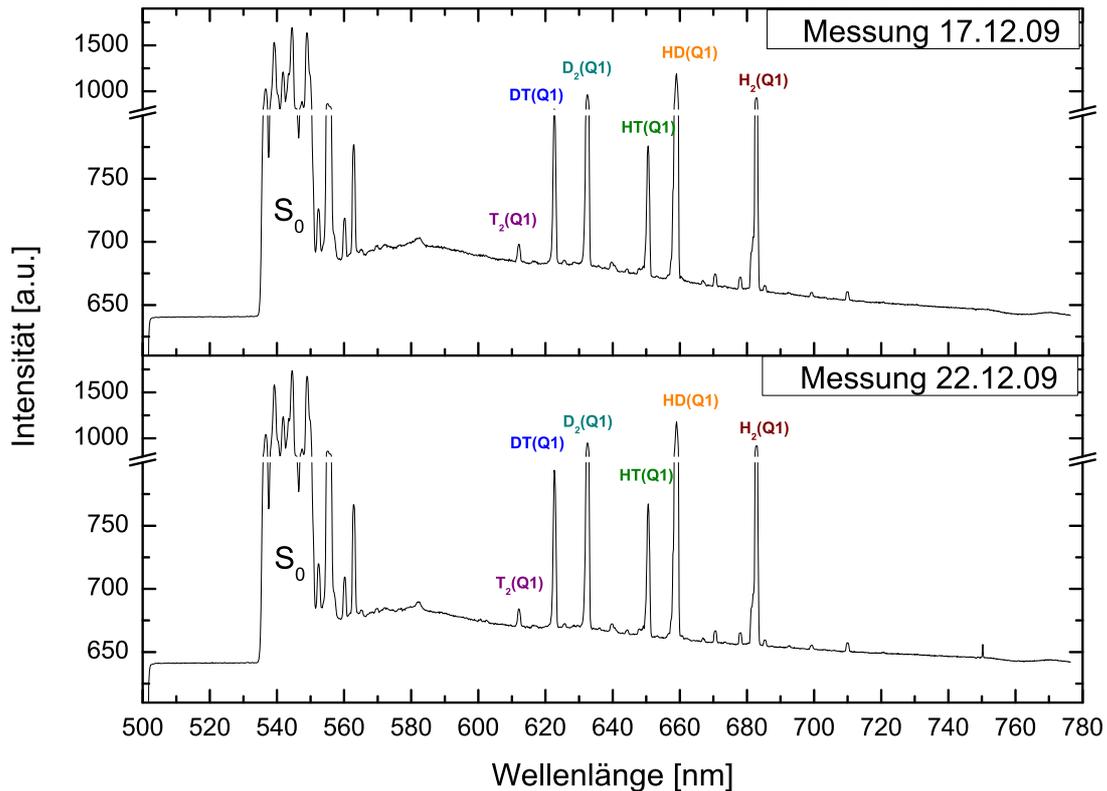
- Das Signal der Photodiode, sowie das Signal für die Laserleistung des Powermeter weisen einen Abwärtstrend auf. Der Laserstrahl ist also während der Messung gewandert, wie man mit den mit dem LM45 gemessenen Positionen für die maximale Intensität auf dem Messkopf erkennen kann. Sie weisen einen mit der Temperatur korrelierten Verlauf auf. Diese werden durch Störungen von außen verursacht (siehe Abschnitt 5.4.6). Eine Temperaturstabilisierung des Lasers ist also von großer Bedeutung. In den Signalen der Photodiode und den Signalen des LM45 für x- und y-Position sind mit einer Periode von

<sup>7</sup>Dazu wurde ein PT1000-Temperatursensor auf der LARA-Zelle installiert. Das Signal wird über eine Boxendurchführung nach außen geführt.

<sup>8</sup>der  $T_2$ -Gehalt ist sehr gering

40 min wiederkehrende Spitzen zu sehen, deren Ursache in den späteren Testläufen (Abschnitte 5.4.4 und 5.4.5) identifiziert werden konnte.

Mit diesem ersten Testlauf wurden erstmals LARA-Messungen mit zirkulierendem tritiumhaltigem Gas im Tritiumlabor Karlsruhe durchgeführt.



**Abbildung 5.13: LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#2.** Dargestellt sind Laser-Ramanspektren bei  $t=50$  h und  $t=182$  h von LOOPINO-Testlauf#2. In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können. (Parameter der Messung: Druck 200 mbar, Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 250 s)

**Tabelle 5.5: Intensitäten der Q<sub>1</sub>-Ramanlinien bei Testlauf#2.** Aufgelistet sind die Mittelwerte der absoluten Intensitäten, der relativen Intensitäten, sowie der daraus errechneten Partialdrücke. Dabei wurde angenommen, dass die Verhältnisse der Linienintensitäten exakt den Verhältnissen der Partialdrücke entsprechen.

	absolute Intensität [a.u.]		relative Intensität [%]		Partialdruck [mbar]	
	Mittelwert	$\sigma$	Mittelwert	$\sigma$	Mittelwert	$\sigma$
T <sub>2</sub>	12,55	0,47	0,92	0,03	1,83	0,07
DT	123,47	1,14	9,01	0,06	18,02	0,12
D <sub>2</sub>	283,95	2,02	20,73	0,08	41,45	0,15
HT	112,97	0,93	8,25	0,06	16,49	0,12
HD	544,05	2,7	39,71	0,07	79,42	0,15
H <sub>2</sub>	293,01	1,66	21,39	0,06	42,77	0,12

**Tabelle 5.6: Parameter der linearen Regression.** Aufgelistet sind Steigung und Achsenabschnitt der Ausgleichsgeraden, die an die Verläufe in Abbildung 5.15 angepasst wurden.

	Steigung [%/Stunde]	Schnittpunkt mit der Y-Achse [%]
T <sub>2</sub>	$-4,08 \cdot 10^5 \pm 1,52 \cdot 10^5$	$0,919 \pm 0,001$
DT	$1,31 \cdot 10^5 \pm 2,72 \cdot 10^5$	$9,011 \pm 0,003$
D <sub>2</sub>	$-6,22 \cdot 10^4 \pm 3,15 \cdot 10^5$	$20,777 \pm 0,003$
HT	$5,80 \cdot 10^4 \pm 2,33 \cdot 10^5$	$8,199 \pm 0,002$
HD	$2,73 \cdot 10^4 \pm 3,26 \cdot 10^5$	$39,690 \pm 0,003$
H <sub>2</sub>	$-2,04 \cdot 10^4 \pm 2,60 \cdot 10^5$	$21,404 \pm 0,002$

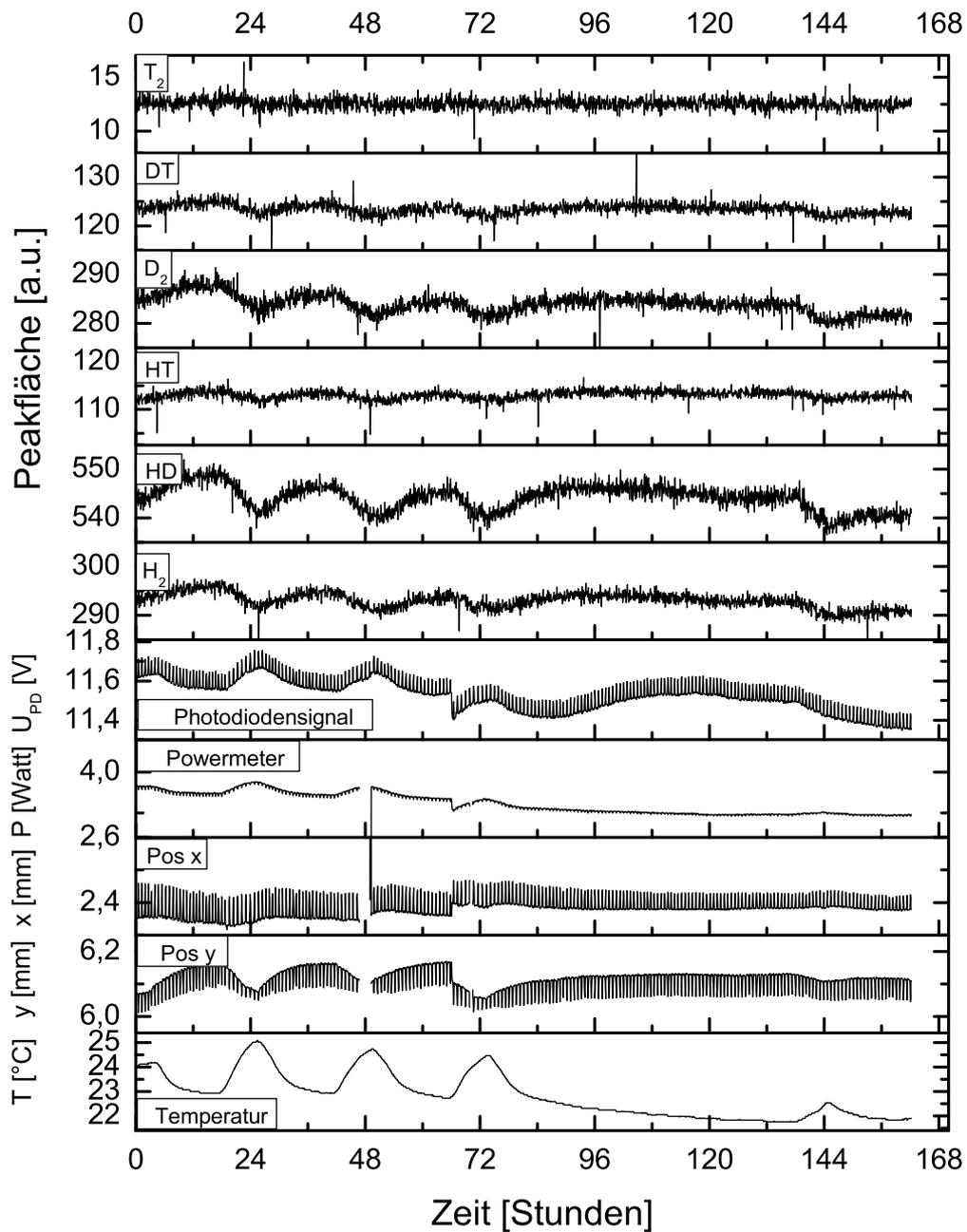


Abbildung 5.14: Verlauf der absoluten Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#2.

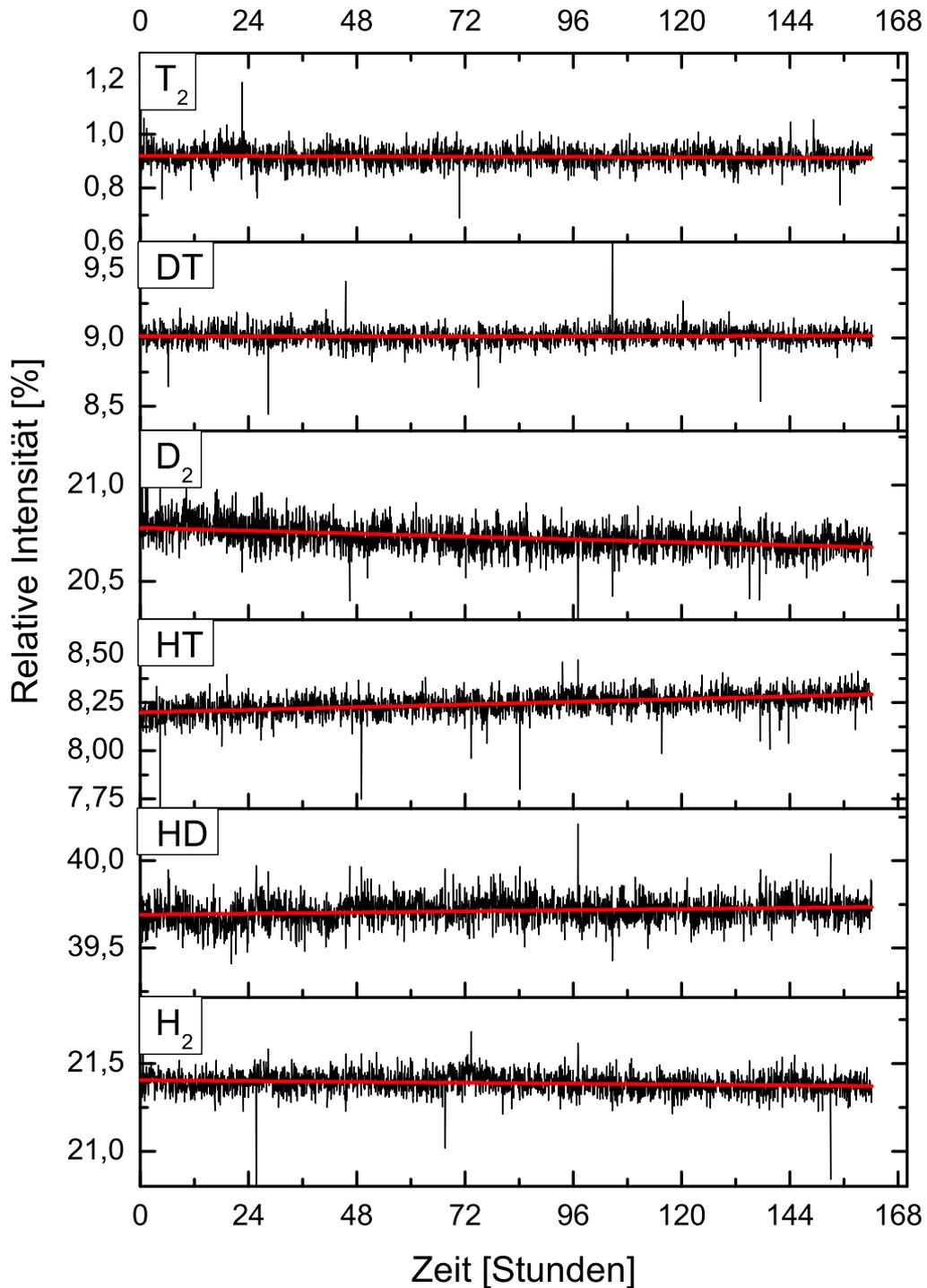


Abbildung 5.15: Verlauf der relativen Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#2. Die relativen Intensitäten wurden durch Division der Intensität einer Linie mit der Summe der Intensitäten aller  $Q_1$ -Linien bestimmt.

### 5.4.4 LOOPINO-Testlauf#3 mit einer niedrigtritierten Gas-mischung

Das Ziel dieses Testlaufs war die Reproduktion der Ergebnisse von Testlauf#2.

#### Experimenteller Überblick:

Am 7.01.10 wurde in LOOPINO die Gaszirkulation mit den gleichen Parametern wie in Testlauf#2 wieder gestartet, ebenso die LARA-Messung. Nach 167 Stunden kontinuierlicher Datennahme wurde gestoppt, LOOPINO wurde nach CAPER evakuiert.<sup>9</sup>

#### Folgende Resultate wurden erzielt:

- Analog zu Testlauf#2 sind in Abbildung 5.16 Spektren zu Beginn und zu Ende von Testlauf#3 dargestellt. Die Spektren unterscheiden sich nur in der Intensität. Änderungen des Verhältnisses der einzelnen Linien liegen wieder unter 0,5%. In den Abbildungen 5.17 sind die Verläufe der Intensitäten der  $Q_1$ -Linien der Wasserstoffisotopologe, sowie Messwerte der Photodiode des LM45-Sensors und die Temperatur der Baseplate des Lasers dargestellt. In Tabelle 5.7 sind analog zu Testlauf#2 die Mittelwerte der absoluten und der relativen Intensitäten angegeben. Für die Präzision der Messung erhält man, wenn man die absoluten Intensitäten betrachtet Werte im Bereich 3,81% ( $T_2$ ) bis 1,65% (HD) und für die relativen Intensitäten 3,52% ( $T_2$ ) bis 0,2% (HD), bzw. Präzisionen im  $< 0,14$  mbar. Die erreichten Präzisionen der relativen Intensitäten sind vergleichbar mit denen des vorangegangenen Testlaufs. Die Präzisionen der absoluten Intensitäten sind, bedingt durch die in diesem Testlauf stärker ausgeprägten Schwankungen des Lasers, schlechter.

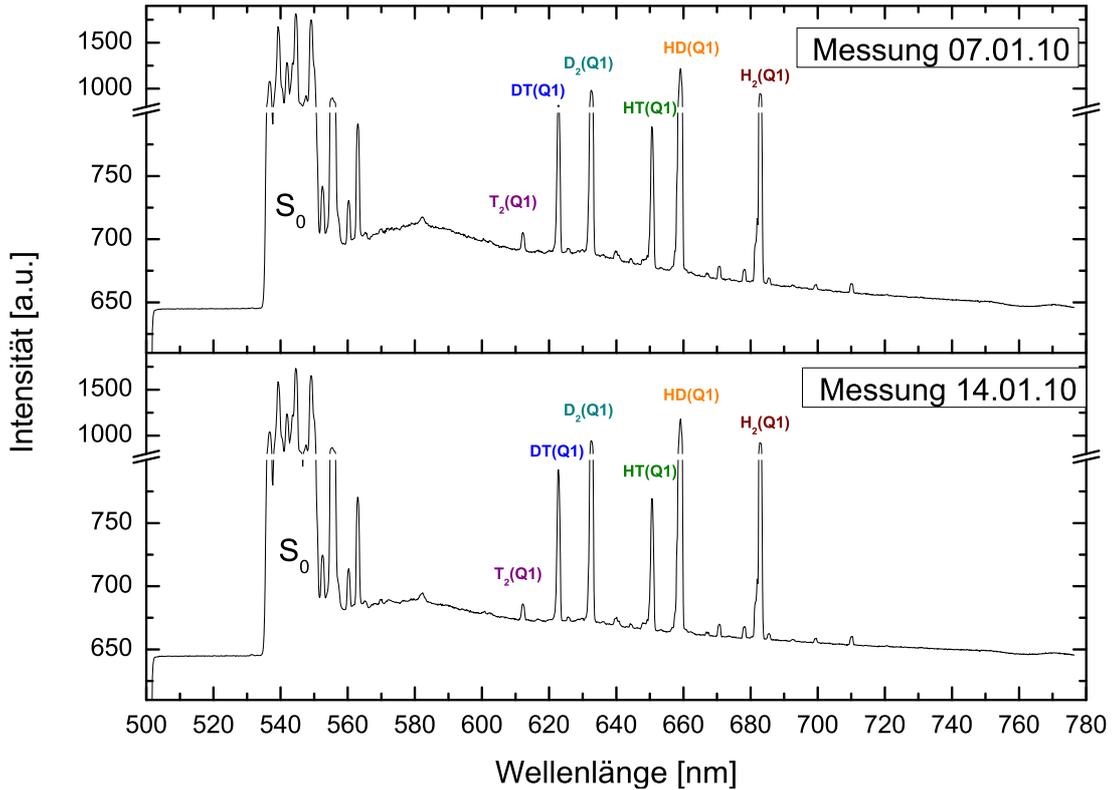
Auch hier sind minimale Änderungen der Zusammensetzung sichtbar. Die Regressionsparameter der Ausgleichsgeraden finden sich in Tabelle 5.8. Die Änderungen in der Zusammensetzung sind geringer als im vorangegangenen Testlauf. Als Grund dafür wird angenommen, dass Austauscheffekte mit der Wand abgenommen haben.

- Vor Beginn von Testlauf#3 wurde ein Problem mit der Boxeninertisierung der ISS-Handschuhbox behoben. Durch ein falsch gestelltes Ventil wurden die pneumatischen Ventile innerhalb der Handschuhbox anstatt mit Stickstoff mit Druckluft versorgt. Die Boxeninertisierung sprang ca. alle 40 Minuten automatisch an. Nach Umstellen der Betätigung der Pneumatikventile auf Stickstoff erfolgte die Inertisierung in Intervallen von ca. 9 Stunden. Die periodischen Störungen auf Photodioden- und LM45-Signal erscheinen jetzt ebenfalls zu diesen Zeitpunkten. Damit konnte die Ursache für die periodischen Störungen identifiziert werden.

---

<sup>9</sup>Dabei wurde auch die Verbindungsleitung der KATRIN-Tritiumkreisläufe zu CAPER in Betrieb genommen und erste wichtige Erfahrungen für den Tritiumtransfer gewonnen.

Mit Testlauf#3 konnten die Ergebnisse von Testlauf#2 reproduziert werden. Die Ursache für die periodischen Störungen auf den Signalen für die Laserleistung konnte identifiziert werden.



**Abbildung 5.16: LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#3.** Dargestellt sind Laser-Ramanspektren zu Beginn ( $t=2$  h) und Ende ( $t=166$  h) von LOOPINO-Testlauf#3. In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können. (Parameter der Messung: Druck 200 mbar, Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 250 s)

**Tabelle 5.7: Intensitäten der Q<sub>1</sub>-Ramanlinien bei Testlauf#3.** Aufgelistet sind die Mittelwerte der absoluten Intensitäten, der relativen Intensitäten, sowie der daraus errechneten Partialdrücke. Dabei wurde angenommen, dass die Verhältnisse der Linienintensitäten exakt den Verhältnissen der Partialdrücke entsprechen.

	absolute Intensität [a.u.]		relative Intensität [%]		Partialdruck [mbar]	
	Mittelwert	$\sigma$	Mittelwert	$\sigma$	Mittelwert	$\sigma$
T <sub>2</sub>	12,43	0,47	0,86	0,03	1,72	0,06
DT	128,11	2,3	8,86	0,05	17,73	0,1
D <sub>2</sub>	297,32	5,1	20,57	0,06	41,14	0,13
HT	120,21	1,94	8,32	0,05	16,64	0,09
HD	577,44	9,19	39,96	0,07	79,91	0,14
H <sub>2</sub>	309,72	5,11	21,43	0,05	42,86	0,11

**Tabelle 5.8: Parameter der linearen Regression.** Aufgelistet sind Steigung und Achsenabschnitt der Ausgleichsgeraden, die an die Verläufe in Abbildung 5.18 angepasst wurden.

	Steigung [%/Stunde]	Schnittpunkt mit der Y-Achse [%]
T <sub>2</sub>	$3,99 \cdot 10^5 \pm 1,33 \cdot 10^5$	$0,857 \pm 0,001$
DT	$-7,52 \cdot 10^5 \pm 2,25 \cdot 10^5$	$8,871 \pm 0,002$
D <sub>2</sub>	$-2,16 \cdot 10^4 \pm 2,80 \cdot 10^5$	$20,590 \pm 0,003$
HT	$1,72 \cdot 10^4 \pm 2,01 \cdot 10^5$	$8,303 \pm 0,002$
HD	$1,68 \cdot 10^4 \pm 3,03 \cdot 10^5$	$39,941 \pm 0,003$
H <sub>2</sub>	$-8,93 \cdot 10^5 \pm 2,30 \cdot 10^5$	$21,438 \pm 0,002$

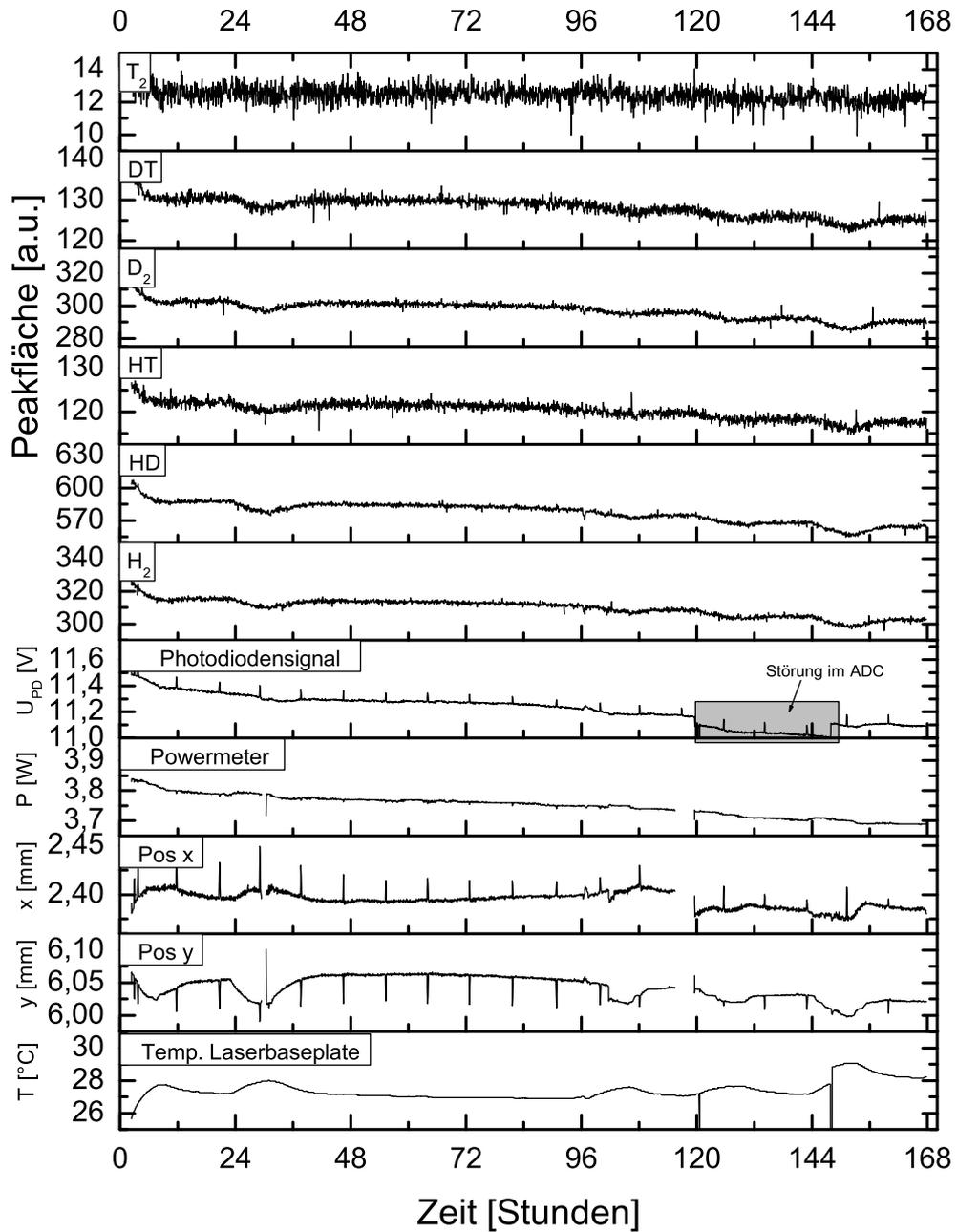


Abbildung 5.17: Verlauf der absoluten Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#3. Im Photodiodensignal ist im Bereich 120 bis 144 Stunden ein Sprung nach unten erkennbar, der durch eine falsch verbundene Massenverbindung am ADC-Eingang verursacht wurde.

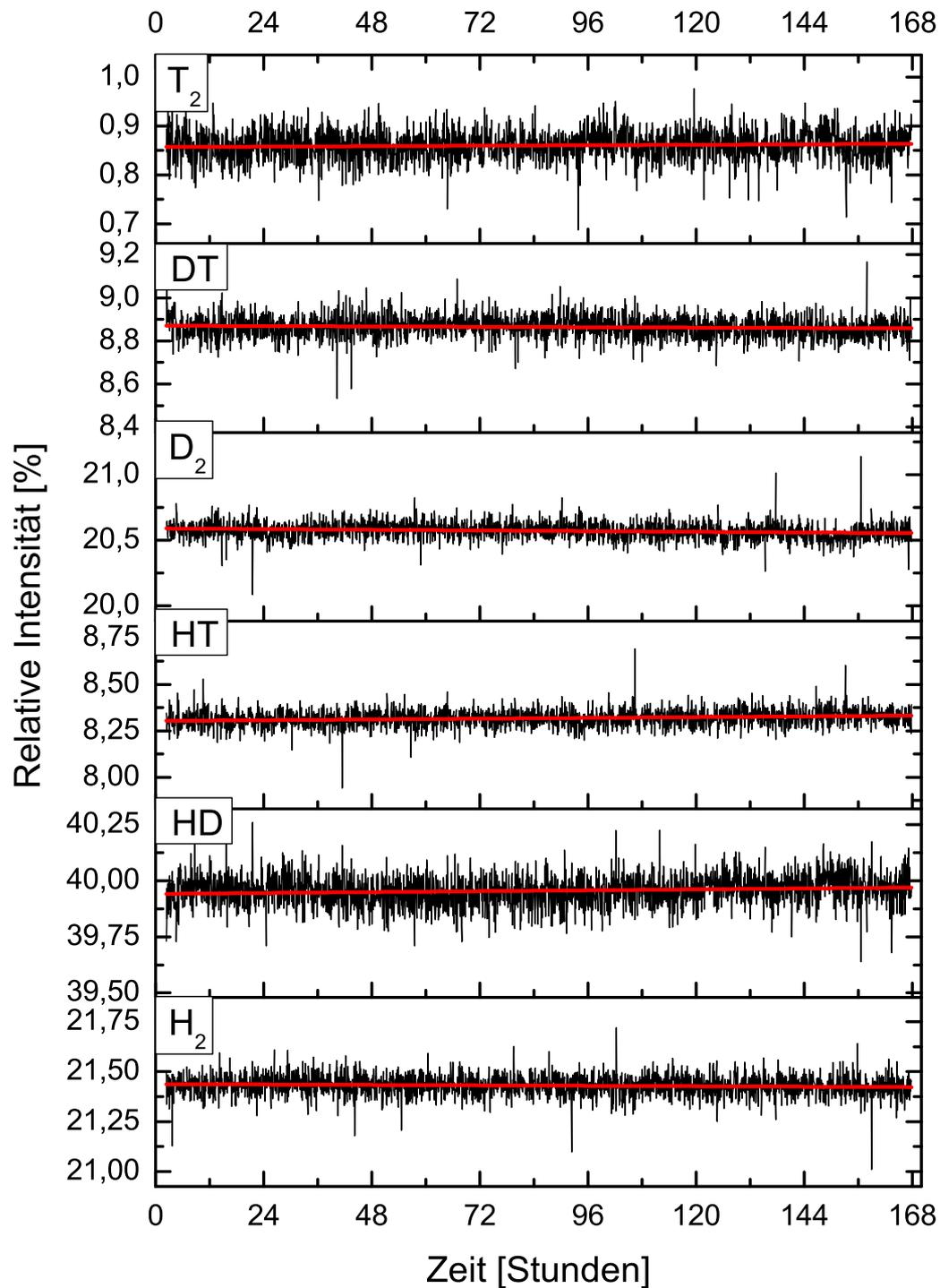


Abbildung 5.18: Verlauf der relativen Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#3.

### 5.4.5 LOOPINO-Testlauf#4 mit hoher Tritiumkonzentration

Die Ziele von LOOPINO-Testlauf#4 waren:

- LARA-Messungen mit einer hochreinen Tritiummischung.
- Untersuchungen systematischer Effekte, die mit Tritium auftreten (z.B. Wandeffekte).

#### Experimenteller Überblick

Am 19.01.2010 wurde LOOPINO mit einer hochtritierten Gasmischung aus der ISS auf einen Druck von 183 mbar befüllt. Die Gasmischung war unmittelbar zuvor hergestellt worden. Die Ergebnisse der gaschromatographischen Analyse durch CAPER (siehe Tabelle 5.4) zeigten als einzigste nachweisbare Bestandteile  $T_2$ , sowie Spuren von HT und DT. Ein Sollwert von 200 mbar wurde vorgegeben, sowie die Zirkulation in LOOPINO (Durchfluss ca. 100 sccm) und die LARA-Messungen gestartet. Nach 215 Stunden wurde die Gaszirkulation in LOOPINO unterbrochen, da der Notausschalter der Handschuhbox versehentlich betätigt wurde. Bis zur Beseitigung des Notausfalls und Wiedereinschaltens der Zirkulation in LOOPINO vergingen 21 Stunden. Die LARA-Messungen wurden nicht unterbrochen. Nach 523 Stunden wurde die Zirkulation gestoppt und nach 546 Stunden kontinuierlicher LARA-Messungen wurde Testlauf#4 am 9.02.10 beendet.

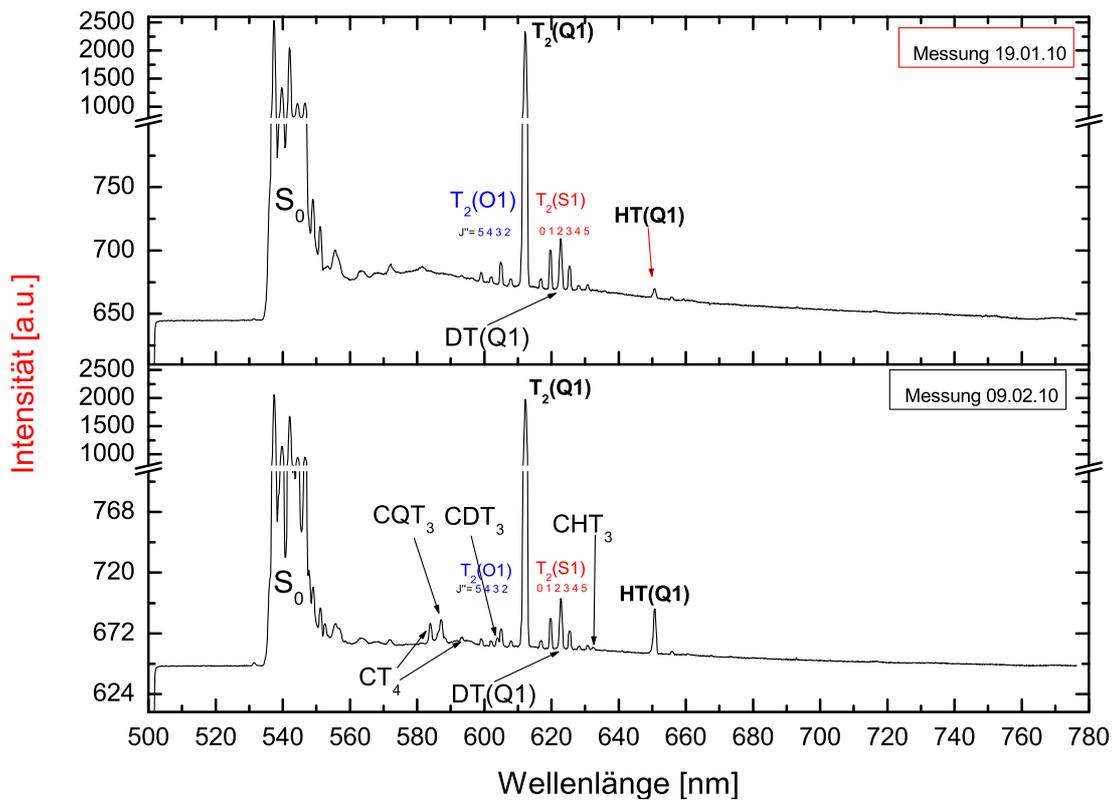
#### Folgende Erkenntnisse wurden gewonnen:

- In Abbildung 5.19 sind Spektren zu Beginn und Ende der Messungen dargestellt. Im Spektrum am Ende des Testlaufs sind zusätzliche Linien sichtbar, deren Positionen sich mit den in [Eng92] veröffentlichten Linienpositionen tritierter Methane decken (Diese sind in F.6 aufgeführt.). Eine Unterscheidung, ob es sich bei dem mit  $CQT_3$  bezeichneten Peak um  $CHT_3$  oder  $CDT_3$  handelt, ist wegen des spektralen Auflösungsvermögens der verwendeten CCD/Spektrometerkombination nicht möglich. Es scheint sich jedoch um eine Überlagerung beider zu handeln, da auch Linien von Oberschwingungen von  $CDT_3$  und  $CHT_3$  im Spektrum sichtbar sind. Die relativen Intensitäten der DT- und HT-Linien ist sichtbar angestiegen (um einen Faktor  $\approx 1,3$  bzw.  $\approx 7$ ).
- Abbildung 5.20 zeigt den Verlauf der absoluten Intensitäten, Abbildung 5.21 den der relativen Intensitäten. Der Verlauf stellt eine Überlagerung aus Equilibrierungs- und Wandaustauschprozessen dar. Die Bildung tritierter Methane ist kein unbekanntes Phänomen. Wird eine Edelstahloberfläche Tritium ausgesetzt, bilden sich triti
- In Abbildung 5.20 ist ein Rückgang der mit LM45 und Photodioden gemessenen Laserleistung um ca. 20% innerhalb von 2 Tagen sichtbar. Ein Rückgang in diesem Ausmaß war bei den vorherigen Messungen nicht zu beobachten.

Eine Sichtkontrolle der Optiken nach Beendigung des Testlaufs ließ keine Verschmutzungen erkennen. Die wahrscheinlichste Ursache ist eine Strahlwanderung. Diese ist auch erkennbar in den x- und y- Koordinaten der Messungen des LM45. Nach Beendigung des Testlaufs wurde bei verminderter Leistung der Strahlengang überprüft. Eine Verschiebung des Strahlengangs in horizontaler Richtung war deutlich erkennbar. Photodiode und Powermeter waren nicht mehr optimal ausgeleuchtet. Dies erklärt den Rückgang der Intensität und der gemessenen Laserleistung. Die genaue Ursache für diese Instabilität muss noch geklärt werden und bedarf weiterer Untersuchungen. Die durch die Boxeninertisierung eingekoppelte periodische Störung ist auch in diesem Testlauf sichtbar in den Signalen der Photodiode und des Powermeter LM45 (siehe Abb. 5.20).

- Die Präzision dieser Messung wurde folgendermaßen bestimmt: An die den Verlauf der relativen Intensität von  $T_2$  wurde eine Kurve der Form  $y = A_1 \cdot e^{-x/t_1} + A_2 \cdot e^{-x/t_2} + y_0$  angepasst (siehe Abb. 5.22). Die Abweichung der Messwerte von diesem angepassten Verlauf wurde als Maß für die Präzision genommen. Man erhält so eine Präzision der Messung von 0,1% ( $1\sigma$ ).

Mit diesem Testlauf konnten wichtige Erkenntnisse für den späteren KATRIN-Betrieb gewonnen werden und Grenzen des bestehenden LARA-Systems aufgewiesen werden.



**Abbildung 5.19: LARA-Spektren von LOOPINO-Testlauf#4.** Dargestellt sind Laser-Ramanspektren zu Beginn ( $t=0,5$  h) und Ende ( $t=511$  h) von LOOPINO-Testlauf#4. In der Darstellung der Spektren wurde die Intensitätskala unterbrochen, um Linien geringer und hoher Intensität gleichzeitig darstellen zu können. (Parameter der Messung: Druck 200 mbar, Laserleistung 5 W, Belichtungszeit 250 s)

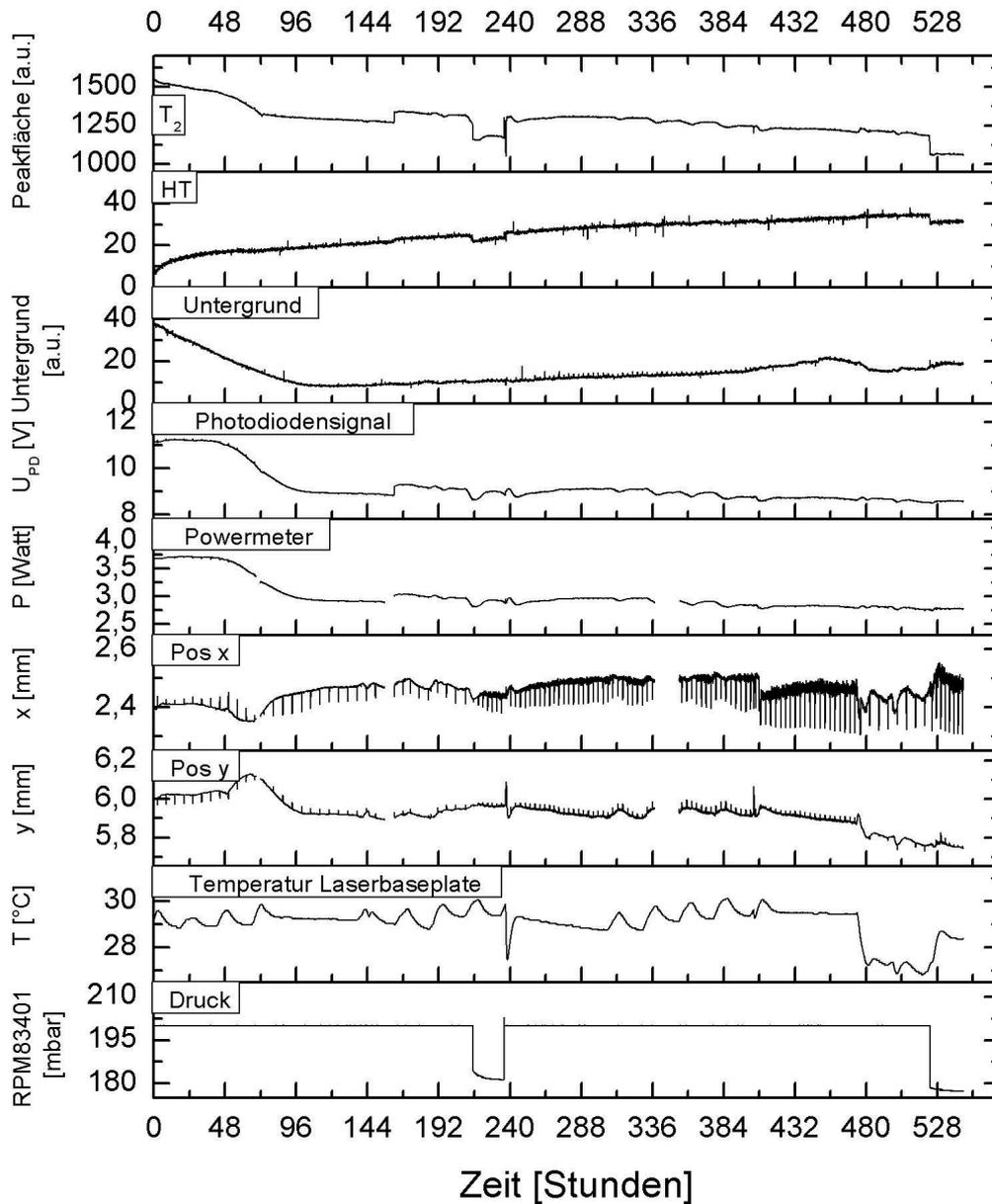


Abbildung 5.20: Verlauf der absoluten Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#4.

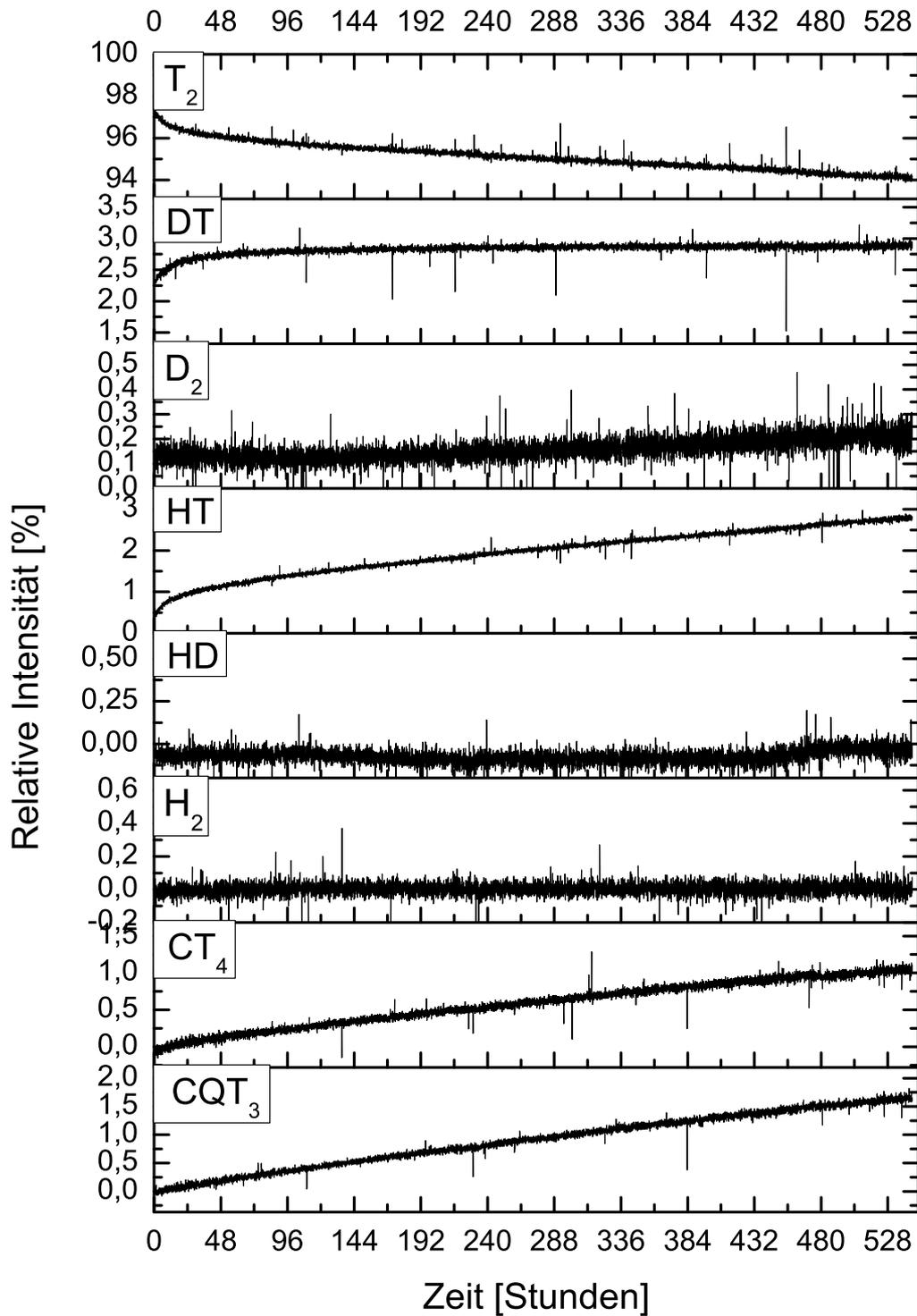
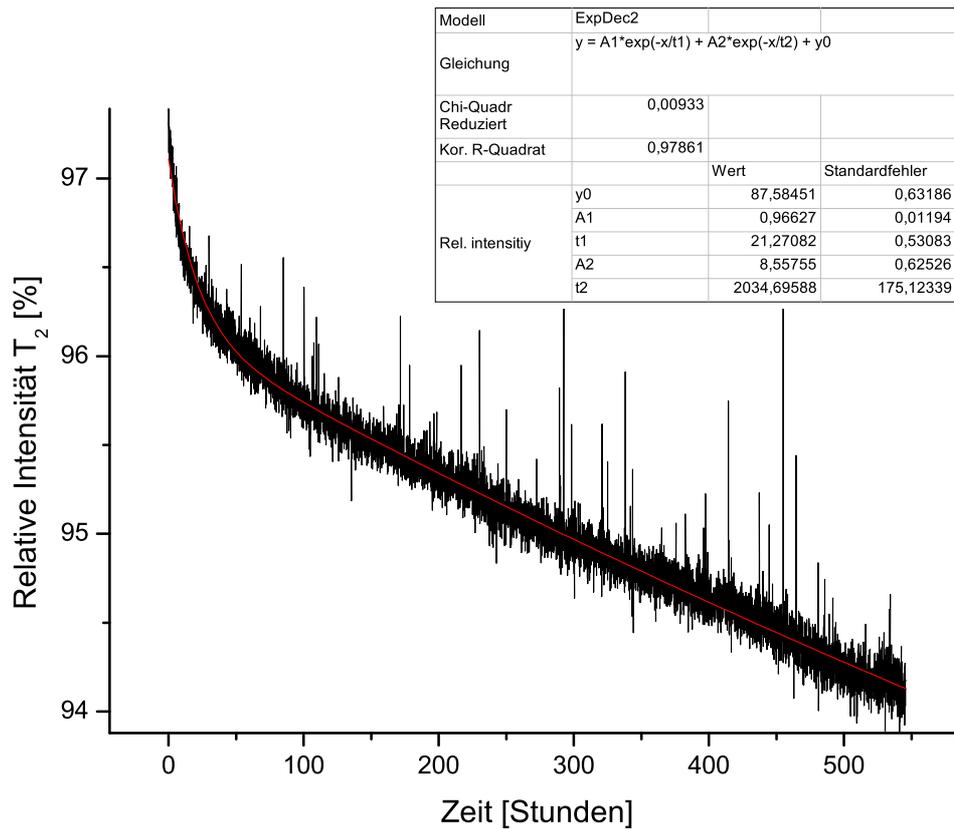


Abbildung 5.21: Verlauf der relativen Intensitäten bei LOOPINO-Testlauf#4.



**Abbildung 5.22: Bestimmung der Präzision bei LOOPINO-Testlauf#4.** Zur Bestimmung der Präzision bei Testlauf#4 wurde an den Verlauf der relativen Intensität von  $T_2$  eine Überlagerung aus 2 exponentiellen Verläufen angepasst und die Abweichung der Werte von diesem angepassten Verlauf als Maß für die Präzision genommen. Die mittlere Abweichung der Messwerte von der angepassten Kurve beträgt 0,096.

### 5.4.6 Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Mit den Laser-Ramanmessungen an LOOPINO konnte demonstriert werden, dass die Überwachung der Gaszusammensetzung im späteren KATRIN-Betrieb mit Laser-Ramanspektroskopie möglich ist.

Der verwendete Laser (Coherent Verdi V5) zeigte im Langzeitbetrieb Instabilitäten, deren Ursache noch gefunden werden muss. Thermische Einflüsse beeinflussen die Stabilität des Lasers, Korrelationen mit der Temperatur sind erkennbar. Eine Temperaturstabilisierung des Lasers bietet die Möglichkeit, dies zu vermindern und wird untersucht werden. Die Ursache für die in Testlauf#4 beobachtete Instabilität ist noch nicht geklärt. Ebenso ist anzumerken, dass der verwendete Verdi V5-Laser bereits 13 Jahre alt ist und seine Pumpdioden bereits mehr als die Hälfte ihrer 10000 Betriebsstunden gelaufen sind. Für den späteren KATRIN-Betrieb wird daher entweder der Austausch beider Dioden – auch mehrmals während des KATRIN-Betriebs – notwendig sein, oder es muss ein neuer Laser angeschafft werden. Die zweite Lösung ist aus technischen und Kostengründen vorzuziehen.

Bisher wurde die Fläche der  $Q_1$ -Linien der einzelnen Wasserstoffisotopologe zur Ermittlung der Konzentrationen herangezogen. In einer ersten Näherung (besser 4% für die inaktiven Isotopologe, besser 10% für die aktiven Isotopologe) kann man annehmen, dass die Verhältnisse der Peakintensitäten der  $Q_1$ -Linien der Wasserstoffisotopologe auch die Zusammensetzung in der untersuchten Gasmischung widerspiegeln. Für eine korrekte quantitative Analyse mit LARA muss das System noch mit bekannten Gasmischungen kalibriert werden. Für die tritiierten Isotopologe und Methane ist dies nicht ohne weiteres zu bewerkstelligen, da Analysen mit dem Gaschromatographen in CAPER eine Unsicherheit von 10% aufweisen<sup>10</sup>. Messungen an einer equilibrierten Gasmischung aus  $H_2$ ,  $D_2$  und HD (siehe Abschnitt 5.3 und Abb. 5.5) zeigen, dass diese Annahme für die inaktiven Isotopologe auf 4% Genauigkeit<sup>11</sup> gerechtfertigt ist. Im Falle der aktiven Isotopologe zeigen Vergleiche mit den gaschromatografischen Analysen der untersuchten Zusammensetzung bei CAPER, die allerdings eine Ungenauigkeit von 10% aufweisen, dass diese Annahme auch hier gerechtfertigt ist. Berechnungen zur Polarisierbarkeit der einzelnen Wasserstoffisotopologe untermauern diese Annahme [Hun85].

Für Kohlenwasserstoffe ist diese Annahme nicht mehr unbedingt gerechtfertigt, da hier eine andere Molekülstruktur zugrunde liegt. Untersuchungen in [Uda91] und [Nav96] an nichttritiumhaltigen Methanen legen jedoch nahe, dass mit dieser Annahme der tatsächliche Methangehalt auf einen Faktor 1/2 bis 2 richtig wiedergegeben wird. Die am 7.4.2010 durchgeführte GC-Analyse<sup>12</sup> lieferte als Resultat einen

<sup>10</sup>Der GC befindet sich in der CAPER-Handschuhbox und kann daher nur mit großem Aufwand kalibriert werden. Die GC-Analyse stellt eine Momentanaufnahme zum Analysezeitpunkt dar.

<sup>11</sup>Dies entspricht der Genauigkeit, mit der die Gaszusammensetzung bekannt war.

<sup>12</sup>Nach Testlauf#4 wurden an der gleichen Gasmischung Depolarisationsmessungen durchgeführt. Diese sind Thema der Arbeit von S. Fischer [Fis10]. Daher wurde die Gasmischung erst am 07.04.10, also erst 57 Tage nach Ende von Testlauf#4, an die CAPER-Anlage abgegeben.

Methangehalt von 5,8. Extrapoliert man den Verlauf der relativen Intensitäten auf dieses Datum, so erhält man mit einer linearen Interpolation einen Methangehalt von  $(9,4 \pm 0,1)\%$ , eine realistischere exponentielle Interpolation sagt zu diesem Zeitpunkt eine relative Gesamtintensität der beiden Methanlinien von  $(5,6 \pm 0,2)\%$  voraus. Auch hier scheinen die relativen Intensitäten die tatsächliche Zusammensetzung wiederzuspiegeln, dies bedarf jedoch weiterer eingehender Untersuchungen.

Bis jetzt wurde nur die Intensität der  $Q_1$ -Linien zur Analyse verwendet. Es ist jedoch sinnvoller multivariate Datenanalyseverfahren zu wählen, die das gesamte Spektrum berücksichtigen. Arbeiten zur Implementierung von Hauptkomponentenanalysen (Principal Component Analysis) sowie Indirect Hard Modelling sind im Gange.

Die gleichzeitige Nachweisbarkeit aller 6 Isotopologe wurde gezeigt, weiterhin wurde die Beobachtbarkeit dynamischer Prozesse demonstriert. So konnte die Entstehung von tritiierten Methanen beobachtet werden. Im späteren KATRIN-Betrieb werden zwar Verunreinigungen wie Methan durch einen Permeator aus dem Gasfluss abgetrennt werden, Änderungen in der Zusammensetzung durch Isotopenaustauscheffekte mit den Wänden (Entstehung von HT und DT) werden jedoch auftreten. Die Entstehungsrate hängt mit der Vorgeschichte des Materials zusammen und wird mit der Zeit abnehmen [Mor77].



# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

Mit einer fensterlosen molekularen gasförmigen Tritiumquelle hoher Luminosität und einem hochauflösenden elektrostatischen Filter mit bisher unerreichter Energieauflösung  $\Delta E = 1$  eV, wird KATRIN eine modellunabhängige Bestimmung der Neutrinomasse mit einer erwarteten Sensitivität von  $0,2$  eV/ $c^2$  (90% CL.) ermöglichen. Für eine derart präzise Massenbestimmung ist insbesondere die Stabilität der Quelle bezüglich ihrer  $\beta$ -Aktivität und ihrer Isotopenreinheit ein Schlüsselparаметer. Um die erforderliche Stabilität der Quelle auf 0,1% über einen 60-tägigen Messzyklus zu gewährleisten, ist eine auf  $< 0,1\%$  stabilisierte Tritiumeinspeisung in die Quelle erforderlich, sowie die kontinuierliche Überwachung der Zusammensetzung des eingespeisten Gasgemisches.

Die stabilisierte Einspeisung wird mithilfe geschlossener Tritiumkreisläufe realisiert. Aufbau und Inbetriebnahme eines Teilbereichs dieser Kreisläufe – des in der ISS-Handschuhbox befindlichen Teils – war Thema dieser Arbeit (Kapitel 3). Dabei wurden umfangreiche Erfahrungen zum Aufbau einer solchen hochkomplexen Anlage gewonnen, die für den Betrieb mit radioaktivem gasförmigem Tritium ausgelegt ist.

Da die Hauptkomponenten des Quell- und Transportsystems – der WGTS-Kryostat, die DS2-F und die CPS – noch nicht verfügbar waren, wurden die ersten Testmessungen mit dem Herzstück der stabilisierten Tritiumgaseinspeisung, dem Circulation-Loop durchgeführt. Dabei wurde mit Stickstoff und Deuterium über ein Bypassrohr durchgeführt, das einen ähnlichen Gasleitwert wie die Einlasskapillare der WGTS aufweist, zirkuliert. Bei diesen ersten Testmessungen konnte die geforderte Druck- und Temperaturstabilisierung im Einlassbehälter auf 0,1% im Langzeitbetrieb um ungefähr einen Faktor 5 übertroffen werden (Abschnitt 3.5).

In der nahen Zukunft werden in diesem Bereich noch weitere Messungen durchgeführt werden:

- Langzeitmessungen zur Untersuchung systematischer Effekte und der Stabilität des Systems sind vorgesehen. Dabei soll auch untersucht werden, wie das System auf das Aufbringen weiterer Störgrößen reagiert, etwa durch gezieltes Beimischen von Verunreinigungen zum Gasfluss während des Betriebs.
- In der Handschuhbox werden, bedingt durch die Streufelder der bei KATRIN zum Aufspannen des Führungsmagnetfeldes erforderlichen Magnete, bis zu 30 G herrschen. Der Einfluss dieser Streufelder auf die in der Handschuhbox befindlichen Sensoren muss untersucht werden, ggf. muss eine magnetische Abschirmung dieser Sensoren erfolgen.

Der vollständige Aufbau der Tritiumkreisläufe erfolgt nach Lieferung der Magnetkryostate WGTS, DPS2-F und CPS.

Die Überwachung der Zusammensetzung des in die Quelle eingespeisten Gasgemisches erfolgt mittels Laser-Ramanspektroskopie (Kapitel 4). Da die Tritiumkreisläufe erst dann mit Tritium in Betrieb genommen werden, wenn das komplette Quell- und Transportsystem aufgebaut ist, hätten die grundlegenden Testmessungen mit LARA nur inaktiv durchgeführt werden können. Daher wurde der Kreislauf LOOPINO aufgebaut (Abschnitt 4.5), um Messungen an zirkulierendem Tritium zu ermöglichen.

- Die ersten LARA-Messungen an Tritium erfolgten mit statischen Zellen unter einem Abzug (Abschnitt 5.3) und sind detailliert in [Sch09] und [Stu10] beschrieben.
- Die ersten Messungen im TLK mit zirkulierenden tritiumhaltigen Gasgemischen wurden durchgeführt (Abschnitt 5.4) und die Langzeitstabilität getestet. Der verwendete bereits 13 Jahre alter Laser zeigt Instabilitäten im Langzeitbetrieb, die durch thermische Stabilisierung verringert werden können. Für den späteren KATRIN-Betrieb wird jedoch ein neuer Laser mit spezieller thermischer Stabilisierung verwendet werden, der bereits geordert wurde.
- Der LARA-Aufbau muss noch mit bekannten Gasmischungen quantitativ genau kalibriert werden. Im Rahmen der Genauigkeit, mit der die untersuchten Gaszusammensetzungen bekannt waren, geben die Verhältnisse der Linienintensitäten der Wasserstoffisotopologe ihr Verhältnis in der Zusammensetzung wieder (4% für die inaktiven Wasserstoffisotopologe 10% für die aktiven Isotopologe). Für die tritierten Methane scheint dies ebenfalls – mit einem Unsicherheitsfaktor von 2 – zu stimmen. Weitere Untersuchungen hierzu sind zwingend erforderlich.

- Bei den Langzeitmessungen an LOOPINO wurde das Entstehen tritierter Methane, sowie Isotopenaustauscheffekte beobachtet. Es bedarf weiterer Messungen, um die Entstehungsrate und den Entstehungsprozess genauer zu untersuchen. Zwar werden bei KATRIN Verunreinigungen wie Methane aus dem Gaskreislauf mittels eines Permeators abgetrennt, abhängig davon wieviel Methan entsteht, muss jedoch die Menge des abgeführten, sowie des zugeführten Gases angepasst werden. Dies hat Einfluss darauf, wie oft Tritiumtransfers zur Anlage CAPER zur Rückgewinnung stattfinden werden, sowie darauf, wie oft KATRIN mit Tritium aus der Isotopentrennanlage versorgt muss.
- Nach Beendigung des dritten Testlaufs mit LOOPINO wurden an der Gasmischung Depolarisationsmessungen durchgeführt. Dazu wurde ein zweiter LARA-Aufbau verwendet, der als wesentliche Unterschiede ein anderes Spektrometer beinhaltet, sowie einen Laser mit einer geringeren Leistung von 2W (Laser Quantum Excel 2W). Mithilfe dieser Messungen, die nicht Thema dieser Arbeit sind, können wichtige Größen zur Polarisierbarkeit der tritiierten Isotopologe ermittelt werden (mit größerer Genauigkeit wie die bis jetzt in der Literatur veröffentlichten Werte) und auch in die theoretische Modellierung der Spektren einfließen. Die ersten Untersuchungen hierzu finden sich in [Fis10].
- Zu Ende dieser Messungen wurde die Bildung eines Belages auf den Gläsern der LARA-Zelle beobachtet. Zu diesem Zeitpunkt war die Gasmischung bereits 3 Monate in der Anlage. Für den späteren KATRIN-Betrieb kann dies unter Umständen bedeuten, dass die LARA-Zelle in regelmäßigen Abständen getauscht werden muss. Auch dies bedarf weiterer Untersuchungen.
- Mit dem bis jetzt verwendeten Analyseverfahren, bei dem nur die Intensitäten der  $Q_1$ -Linien zur Bestimmung der Zusammensetzung herangezogen wurden, wurde bei LOOPINO-Testlauf#4 eine Präzision von 0,1% ( $1\sigma$ ) erreicht. Dies genügt der KATRIN-Anforderung von 0,1%. Potential zu einer Verbesserung der Präzision bieten:
  - Die Anwendung multivariater Analyseverfahren. Arbeiten hierzu sind im Gange [Sch13].
  - Eine Verbesserung der Signalausbeute. Dies ist prinzipiell durch Verwendung eines stärkeren Lasers möglich. Davon wird aber abgesehen, um eine Beschädigung der Fenster zu vermeiden. Der Abgriff des Streulichts ist bereits optimiert; eine signifikante Erhöhung der Signalausbeute kann allerdings durch Implementierung von Spiegeln, erhöht werden. Zum einen besteht die Möglichkeit das Streulicht, das in Richtung der der Glasfaser abgewandten Seite gestreut wird, mit einem Spiegel auf die Glasfaser abzubilden, zum anderen kann der Laserstrahl mit einem weiteren Spiegel durch die Zelle zurückreflektiert werden. Untersuchungen zu diesen beiden Möglichkeiten sind im Gange.

Die bisherigen Messungen mit den Tritiumkreisläufen und mit LARA waren erfolgreich. Allerdings besteht insbesondere bei LARA besteht noch Verbesserungspotential bzgl. der Präzision der Messung. Ebenso werden Arbeiten zur Implementierung stimulierter Ramanspektroskopie und Cavity-Ring-Down-Spectroscopy bei KATRIN durchgeführt werden [Sch13]. Diese beiden Methoden bieten Potential, die Überwachung der Gaszusammensetzung und die Nachweisgrenze um mindestens eine Größenordnung zu verbessern zu verbessern.

Kombiniert mit einer besseren Stabilisierung der Quelle bzgl. Einlassrate und Temperatur besteht das Potential die Sensitivität von KATRIN auf die Neutrinomasse gegenüber der ursprünglichen Auslegung zu verbessern.

# Literaturverzeichnis

- [Abd04] Abdurashitov, J. N., et al., 1994, *Physics Letters B*, 328, 234
- [Aha06] B. Aharmim et al., *Measurement of the  $\nu_e$  and Total  $^8\text{B}$  Solar Neutrino Fluxes with the Sudbury Neutrino Observatory Phase I Data Set*
- [Alt00] M. Altmann et al., *Physics Letters B* 490 2000 16-26
- [Alt03] G. Altarelli, *Neutrino mass*, Springer 2003
- [Ams08] C. Amsler et al. (Particle Data Group), *Review of Particle Physics*, *Phys. Lett. B* **667** (2008)
- [APP07] APPEC Peer Review Committee, *Status and Perspective of Astroparticle Physics in Europe*, ASPERA Roadmap Phase I (2007).
- [Ase00] V.N. Aseev et al., *Energy loss of 18 keV electrons in gaseous  $\text{T}_2$  and quench condensed  $\text{D}_2$  films*, *Eur. Phys. J. D* **10** (2000) 39-52
- [Atk96] P.W. Atkins, *Physikalische Chemie*, 2.Auflage, VCH, (1996)
- [Bab10] M. Babutzka, *Diplomarbeit*, Universität Karlsruhe (2010)
- [Bac88] H. BACKE et al., *Phys. Scr. T* **22** (1988) 98
- [Bes03] U. A. Besserer, *Tritiumspeicherung in ZrCo*, Dissertation, Philipps-Universität Marburg, Fachbereich Chemie, 2003
- [Bha54] Bhatnagar, P. L. and Gross, E. P. and Krook, M., *A Model for Collision Processes in Gases. I. Small Amplitude Processes in Charged and Neutral One-Component Systems*, *Phys. Rev.* 94,3,511-525, 1954
- [Bon99] J. BONN et al., *Nucl. Inst. Meth. A* **421** (1999) 256
- [Bor03] B. Bornschein, M. Glugla, K. Gunther, R. Lasser, T. L. Le, K. H. Simon, S. Welte, *Tritium tests with a technical PERMCAT for final clean-up of ITER exhaust gases*, *Fusion Engineering and Design*, Volume 69, Issues 1-4, 22nd Symposium on Fusion Technology, September 2003, Pages 51-56, ISSN 0920-3796, DOI: 10.1016/S0920-3796(03)00234-5.

- [Bor07] KATRIN Numbering System, Beate Bornschein, KATRIN internes Dokument
- [CPS06] CPS Specification: Basic Requirements and Input Data from TRAP, F. Eichelhardt & O. Kazachenko
- [CPS08] ASG SUPERCONDUCTORS, KATRIN CPS - Technical Design Report Part 1, internal document (2008)
- [Dav94] R. Davis, Prog. Part. Nucl. Phys., Vol. 32, pp. 13-32
- [Dem07] W. Demtröder, *Laserspektroskopie - Grundlagen und Techniken*, 5.Auflage, Springer (2007)
- [Doe98] P. DOE, Status of the focal plane detector (FPD), presentation at the 15th KATRIN Collaboration Meeting, Karlsruhe, September 29-30 (2008)
- [Doe02] Doerr, L. et al, *Upgrade of the isotope separation system at the Tritium Laboratory Karlsruhe*, Proc.of the 6th Internat.Conf.on Tritium Science and Technology, Tsukuba, J, November 11-16, 2001, Fusion Science and Technology, 41(2002) S.1155-59
- [Edw78] Edwards, H. G. M., et al. (1978). Pure rotational and vibration-rotational Raman spectra of tritium,  $3\text{H}_2$ . J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2 (74): 1203-1207.
- [Egu03] K. Eguchi et al., Phys.Rev.Lett. 92, 071301 (2004)
- [Eic08] F. Eichelhardt et al., *First tritium results of the KATRIN test experiment TRAP*, Fusion Science and Technology Vol. 54 Aug. 2008
- [Eng92] U. Engelmann, *Ramanspektroskopische und massenspektrometrische Untersuchungen der Wasserstoffisotope und isotop substituierter Methane*, KfK Report 5116, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1992.
- [Fer34] E. Fermi. Versuch einer Theorie der  $\beta$ -Strahlen. Zeitschrift f. Phys. A, 88:161-177, 1934.
- [Fis10] Diplomarbeit Sebastian Fischer, *Investigations of laser stability in the KATRIN Raman setup and first depolarization measurements at TLK*, KIT, 2010
- [Fra06] Diplomarbeit Florian Fränkle, *Erste Messungen der elektromagnetischen Eigenschaften des KATRIN Vorspektrometers*, Universität Karlsruhe 2006
- [Fuk96] Y. Fukuda et al.,Phys. Rev. Lett. 77, 1683 - 1686 (1996)

- [Fuk99] Y. Fukuda et al., Phys. Rev. Lett. 82, 2430 - 2434 (1999)
- [Fuk03] M. Fukugita, *Physics of neutrinos and application to astrophysics*, Springer 2003
- [Fuk06] Fukugita, M. et al., *Limit on the Neutrino Mass from the WMAP Three Year Data*, arXiv:astro-ph/0605362 (2006)
- [Geb08] Diplomarbeit Alexander Gebel, *Entwicklung und Aufbau eines Prototyp-moduls für die Drahtelektrode des KATRIN Hauptspektrometers*, Universität Münster 2007
- [Gel79] M. Gell-Mann, P. Ramond, R. Slansky, *Supergravity*, North Holland, Amsterdam, Editors P. van Nieuwenhuizen, D. Freedman, 1979
- [Her50] Herzberg, G. (1950). *Molecular Spectra and Molecular Structure I. Spectra of Diatomic Molecules*, New York (U.S.A.), Van Nostrand Reinhold Company
- [Hak03] H. Haken and H.C.Wolf, *Molekülphysik und Quantenchemie*, 4.Auflage, Springer (2003)
- [Ham99] W. Hampel et al., Physics Letters B 447 1999 127-133
- [Han06] S. Hannestad, G.G. Raffelt, *Neutrino masses and cosmic radiation density: Combined analysis*, arXiv:astro-ph/0607101v1 (2006)
- [HAZ09] HAZOP-Studie Tritium Loops, KATRIN-internes Dokument
- [Hin08] G. HINSHAW et al., arXiv:astro-ph/0803.0732v2 (2008)
- [Hoe09] Diplomarbeit Markus Hötzel, *Berechnung von KATRIN Messspektren unter Einbeziehung der Eigenschaften der fensterlosen gasförmigen Tritiumquelle*, Institut für Experimentelle Kernphysik, Universität Karlsruhe, 2009
- [Hug08] Diplomarbeit Karen Hugenberg, *Design of the electrode system for the KATRIN main spectrometer*, Universität Münster 2008
- [Hun85] J.L. Hunt et al., *Ab initio calculation of properties of the neutral diatomic hydrogen molecules H<sub>2</sub>, HD, D<sub>2</sub>, HT, DT, and T<sub>2</sub>*, Canadian Journal of Physics (ISSN 0008-4204), vol. 62, Dec. 1984, p. 1719-1723
- [KAT04] KATRIN Design Report 2004
- [Kaz08] O. Kazachenko, B. Bornschein, N. Kernert, L. Doerr, M. Glugla, V. Weber, D. Stern, *Tritium Processing Loop for KATRIN Experiment*, Fusion Science and Technology / Volume 54 / Number 1 / July 2008 / Pages 67-70

- [KK97] H. V. Klapdor-Kleingrothaus and K. Zuber, *Teilchenastrophysik*, Teubner, Stuttgart, 1997
- [Kla04] H.V. Klapdor-Kleingrothaus, I.V. Krivosheina, A. Dietz, O. Chkvorets, *Physics Letters B* 586 (2004) 198-212
- [Kod01] DONUT Collaboration, K. Kodama et al., *Observation of tau neutrino interactions*, *Physics Letters B*, Volume 504, Issue 3, 12 April 2001, Pages 218-224, ISSN 0370-2693, DOI: 10.1016/S0370-2693(01)00307-0.
- [Kra03] Ch. Kraus et al., hep-ex/0412056
- [Kuj38] Th.G. Kujumzelis, *Raman-Spektren von Gläsern*, *Phys. Lett. A Hadrons and Nuclei* **97** 9-10 (1935) 561-569
- [Lam09] Diplomarbeit Melanie Lammers, *Untersuchung der Untergrundrate des KATRIN Vorspektrometers im Bereich hoher Feldstärken*, Karlsruhe Institut für Technologie (KIT), Institut für Experimentelle Kernphysik (IEKP) 2009
- [Lan76] Landau L.D. and Lifshitz E.M. (1976) *Mechanics*, 3rd. ed.
- [Leb09] Michelle L. Leber, PHD-thesis, *Monte Carlo Calculations of the Intrinsic Detector Backgrounds for the Karlsruhe Tritium Neutrino Experiment*, University of Washington, Center for Experimental Nuclear Physics and Astrophysics, 2009
- [Leb10] Vortrag Michelle Leber, Update on the Rear Section: turning a conceptual design into a technical design, 18. KATRIN-Kollaborationstreffen 2010
- [Lew07] Richard James Lewis, *Development of a Raman system for in-line monitoring of Tritium at the Karlsruhe Tritium Neutrino (KATRIN) Experiment*, Department of Physics Swansea University
- [Lew08] R.J. Lewis et al., *Dynamic Raman spectroscopy of hydrogen isotopomer mixtures in-line at TILO*, *Laser Physics Letters*, 5(2008) S.522-31
- [Lob85] V. M. LOBASHEV et al., *Nucl. Inst. Meth. A* **240** (1985) 305
- [Lob99] V.M. Lobashev et al. *Phys. Lett. B* 460 (1999), 227.
- [Lob03] V.M. Lobashev, *Nuclear Physics A*, Volume 719, 2003, 153
- [Lon83] G.L. Long and J.D. Winefordner, *Limit of Detection - A Closer Look at the IUPAC Definition*, *Anal. Chem.* **55** (1983) 712A
- [Lon02] D.A. Long, *The Raman Effect*, John Wiley & Sons, Ltd (2002)

- [Moh02] R.N. Mohapatra, *ICTP Lectures on Theoretical Aspects on Neutrino Masses and Mixings*, 2002, arXiv:hep-ph/0211252
- [Mor77] G. A. Morris, *Methane Formation in Tritium Gas Exposed to Stainless Steel*, Lawrence Livermore Laboratory, Livermore, Calif., UCRL-52262. (1977).
- [Nav96] S.E. Nave: *Rugged fiber optic probes and sampling systems for remote chemical analysis via the Raman technique*, Westinghouse Savannah River Co., Aiken, SC.
- [Ott08] E. W. Otten and C. Weinheimer, Rept. Prog. Phys. **71** (2008) 086201.
- [Pag08] G. Pagliaroli, F. Vissani, M. L. Costantini and A. Ianni, *Improved analysis of SN1987A antineutrino events*, Astropart. Phys. **31** (2009) 163 [arXiv:0810.0466 [astro-ph]].
- [Pau30] W. Pauli, *Brief an die Physikalische Gesellschaft in Tübingen vom 4. Dezember 1930*, nachzulesen in L.M. Brown, Phys. Today **31** (1978), 23
- [Pon58] Pontecorvo B., *Inverse Beta Processes And Nonconservation Of Lepton Charge*, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 1957, Vol. 34, p. 247 [Sov. Phys. JETP 1958, Vol. 7, p. 172].
- [Pov99] Bogdan Povh, Klaus Rith, Christoph Scholz, Frank Zetsche, *Teilchen und Kerne* 5. Auflage 1999, Springer Verlag
- [Pri10] *Systematische Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten des KATRIN Tritiumloop*, Diplomarbeit Florian Priester, Januar 2010
- [Rab97] S. Raby, R. Slansky, *Neutrino Masses - How to add them to the Standard Model*, Los Alamos Science Number 25, 1997
- [Rei59] F. Reines and C.L. Cowan Phys. Rev. **113** (1959), 273
- [Rei07] Diplomarbeit Martina Reinhardt, *Entwicklung eines Lasersensors und Materialcharakterisierung für die Drahtelektroden des KATRIN-Hauptspektrometers*, Universität Münster 2007
- [RSW08] The KATRIN Rear Section Working Group: Physics Requirements of the Rear Section in the KATRIN Experiment, KATRIN-internes Dokument 2008
- [Sae00] A. Saenz et al., *Improved Molecular Final-State Distribution of HeT<sup>+</sup> for the  $\beta$ -Decay Process of T<sub>2</sub>*, Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 242-245
- [Sch97] N. Schmitz, *Neutrino Physik*, Teubner, Stuttgart, 1997.
- [Sch13] Doktorarbeit Magnus Schlösser, vorraussichtlich 2013

- [SCH04] SCHOTT AG, *TIE-36: Fluorescence of optical glass*, Technical Information - Advanced optics (2004)
- [Sch06] P. Schneider, *Extragalactic astronomy and cosmology: an introduction*, XIV, 459 S. (eng), Literaturverz. S. 433 - 435
- [Sch08] Doktorarbeit Udo Schmitt, *Entwicklung eines Monitordetektors für das KATRIN-Experiment*, Universität Karlsruhe (2009)
- [Sch08b] Diplomarbeit Michael Schöppner, *A Prototype Ion Source for the Functionality Test of the KATRIN Transport Section*, Universität Münster 2008
- [Sch09] Diplomarbeit Magnus Schlösser, *First Laser Raman measurements with tritium for KATRIN and studies of systematic effects of the LARA-setup*, KIT, 2009
- [Sel06] Seljak, U., Slosar, A., & McDonald, P. 2006, *Journal of Cosmology and Astro-Particle Physics*, 10, 14
- [Sin02] R. Singh, *C. V. Raman and the Discovery of the Raman Effect*, *Phys.perspect.* 4 (2002), 399 - 420
- [Sha68] E. M. Shakhov, *Generalization of the Krook kinetic relaxation equation*, *Fluid Dynamics*, 3, No.5, 95 (1968)
- [Sha96] Felix Sharipov, *Rarefied gas flow through a long tube at any temperature ratio* *J. Vac. Sci. Technol. A* Volume 14, Issue 4, pp. 2627-2635 (July 1996)
- [Sha04] Felix Sharipov, *Calculations of Tritium flow between the buffer vessel up to the first vacuum system*, KATRIN-interner Report, 2004
- [SNO02] The SNO Collaboration, *Direct Evidence for Neutrino Flavor Transformation from Neutral-Current Interactions in the Sudbury Neutrino Observatory*, *Phys. Rev. Lett.* volume 89, No. 1, 011301 (2002).
- [Son06] Yoshio Sone, *Molecular Gas Dynamics: Theory, Techniques, and Applications* (Modeling and Simulation in Science, Engineering and Technology), Birkhäuser Verlag, 2006
- [STB09] Sicherheitstechnische Beschreibung der Tritiumkreisläufe von KATRIN, KATRIN-internes Dokument
- [STB09b] Sicherheitstechnische Beschreibung LOOPINO, KATRIN-internes Dokument
- [Ste08] Appendixkonstruktion D. Stern

- [Stu07] Diplomarbeit M. Sturm, *Bestimmung der Tritiumflussreduktion einer Tritium-Argon-Frostpumpe für das Neutrinomassensexperiment KATRIN*, 2007
- [Stu08] M. Sturm, M. Schlösser, Arbeitsanweisungen für die Justierung und den Betrieb des Laser-Raman-System (LARA), TLK-internes Dokument
- [Stu10] Sturm, M., Schlösser, M. et al., *Monitoring of all hydrogen isotopologues at tritium laboratory Karlsruhe using Raman spectroscopy*, Laser Physics, Volume 20, Issue 2, pp.493-507
- [Tay01] David J. Taylor, Manfred Glugla, and Ralf-Dieter Penzhorn, *Enhanced Raman sensitivity using an actively stabilized external resonator* Rev. Sci. Instrum. 72, 1970 (2001), DOI:10.1063/1.1353190
- [Tem07] Diplomarbeit Kim Temming, *Aufbau einer vollautomatischen Ultraschallreinigungsanlage für die Drahtelektrode des KATRIN-Hauptspektrometers*, Universität Münster 2007
- [TLA04] Technische Liefer- und Abnahmebedingungen des Tritiumlabors Karlsruhe, 2004. Verfügbar in Ausgaben für „Apparate und Behälter“, „Rohrleitungen“, „Pumpen“ und „Handschuhboxen“.  
<http://fuzzy.fzk.de/bscw/bscw.cgi/0/107836>
- [Ubi09] Ubieto-Diaz, M., Rodriguez, D., Lukic, S., Nagy, S., Stahl, S., & Blaum, K. *A broad-Band FT-ICR Penning TRap System for KATRIN*, 2009, arXiv:0907.3458
- [Uda91] Tatsuhiko Uda et. al, *Preliminary Study of Isotopic Methanes Analysis by Laser Raman Spectroscopy for In Situ Measurement at Fusion Fuel Gas Processing*, Journal of Nuclear Science and Technology, (Academic Journal ,1991 ) 28 / 7 , 618-626
- [Uda92] Tatsuhiko Uda et. al, *Hydrogen Isotope Exchange Reaction Rates in Tritium, Hydrogen and Deuterium Mixed Gases*, Radiochimica Acta, (Academic Journal ,1992 ) 56 / , 209-214
- [Val09] Doktorarbeit Kathrin Valerius, *Spektrometeruntergrund und seine Unterdrückung beim KATRIN Experiment*, Universität Münster 2009
- [Wal81] G.E. Walrafen and P.N. Krishnan, *Model analysis of the Raman spectrum from fused silica optical fibres*, Appl. Optics **21** (1981) 359-360
- [Wan09] Diplomarbeit Nancy Wandkowsky, *Design and Background Simulations for the KATRIN Main Spectrometer and Air Coil System*, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Institut für Experimentelle Kernphysik (IEKP) 2009

- [WGTS04] Specification of the Superconducting Magnet System WGTS for the KATRIN Experiment, B. Bornschein, R. Gehring 2004
- [Wei03] C. Weinheimer, *Laboratory Limits on Neutrino Masses*, in: G. Altarelli and K. Winter, Neutrino Mass, Springer 2003
- [Yan78] T. Yanagida, Prog. Th. Physics B135 (1978) 66
- [Zol09] Diplomarbeit Marcel Zoll, *Development of tools and methods for KATRIN DPS2-F test experiments*, Universität Karlsruhe 2009

# Anhang A

## Die sicheren Zustände

Im folgenden wird ein Überblick über die Sicheren Zustände gegeben. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in [STB09].

### A.1 Der Sichere Zustand A1

Die Tritiumzufuhr in die WGTS wird unterbrochen. Die WGTS und die DPS2-F werden evakuiert und das Tritiuminventar aus WGTS, DPS2-F und den Rohrleitungen wird in TBN83100 und TBN83200 gefördert. Alle laufenden Pumpen und Heizungen bleiben angeschaltet.

### A.2 Der Sichere Zustand A2

Die Tritiumzufuhr in die WGTS wird unterbrochen. Die WGTS und die DPS2-F werden evakuiert und das Tritiuminventar aus WGTS, DPS2-F und den Rohrleitungen in TBN83100 und TBN83200 gefördert. (Insbesondere wird Permeator FLM80300 evakuiert) Permeatorheizung HEE80303 wird sofort abgeschaltet, um den Permeator vor Beschädigungen zu schützen. Alle anderen laufenden Heizungen und Pumpen bleiben angeschaltet.

### A.3 Der Sichere Zustand A3

Der Sichere Zustand A3 wird bei Anzeichen möglicher Defekte von PCO80420 ausgelöst. Ein Bypassventil zum Umgehen dieser Pumpe wird geöffnet. Die Tritiumzufuhr in die WGTS wird unterbrochen. Die WGTS und die DPS2-F werden evakuiert und das Tritiuminventar aus WGTS, DPS2-F und den Rohrleitungen in TBN83100 und TBN83200 gefördert.

## A.4 Der Sichere Zustand A4

Der Sichere Zustand A4 wird bei Anzeichen möglicher Defekte von PCO83320 ausgelöst. PCO83130 wird angeschaltet und ein Bypass über diese Pumpe geschaltet um die Evakuierung der DPS2-F zu gewährleisten. Die Tritiumzufuhr in die WGTS ist unterbrochen. Die WGTS und die DPS2-F werden evakuiert und das Tritiuminventar aus WGTS, DPS2-F und den Rohrleitungen Tritiuminventar in TBN83100 und TBN83200 gefördert.

## A.5 Der Sichere Zustand A5

Der Sichere Zustand A5 wird ausgelöst wenn der Druck in TBN83100, in den der an Permeator FLM80300 abgetrennte Gasstrom über 25 mbar ansteigt. Das Abtrennen von Verunreinigungen aus dem Wasserstoffstrom wird unterbrochen, ein weiteres Füllen von TBN83100 wird verhindert. Die Nachspeisung der Tritiumkreisläufe aus dem Tritium Feed Loop wird unterbrochen. Die Pumpen bleiben angeschaltet Der Tritiumkreislauf wird vorerst aufrechterhalten.

## A.6 Der Sichere Zustand A6

Der Sichere Zustand A6 wird ausgelöst, wenn der Druck in Behälter TBN82100 oder TBN82300 auf über 950 mbar ansteigt. Der Sichere Zustand A6 verhindert ein Überfüllen von TBN82100 oder TBN82300. Er kann nur bei einem Bedienfehler beim Füllen von TBN82100 oder TBN82300 oder durch Leckage auftreten. Der Tritiumkreislauf wird vorerst aufrechterhalten.

## A.7 Der Sichere Zustand A7

Der Sichere Zustand A7 unterbricht den Füllvorgang von TBN82100 oder TBN82300. Die Permeatorheizung wird abgeschaltet. Permeator FLM82200 wird in TBN83100 evakuiert Der Tritiumkreislauf wird vorerst aufrechterhalten.

## A.8 Der Sichere Zustand B

Das System wird in den Sicheren Zustand B überführt, wenn die auslösende Betriebsstörung eine Tritium-Freisetzung in die 2. Hülle oder eine irreversible Komponentenbeschädigung verursachen könnte. Der sichere Zustand wird sofort ausgelöst.

Die Abschaltung einzelner Komponenten ist entweder sofort oder mit einer Zeitverzögerung von 15 s realisiert, um eine Evakuierung der WGTS und DPS2-F zu ermöglichen, damit ein Großteil des Tritiums aus WGTS und DPS2-F zurück in die Handschuhbox gefördert werden. Bei einer Handauslösung werden alle Komponenten sofort abgeschaltet



## Anhang B

### Technische Daten WGTS-Bypassrohr



# Anhang C

## Permeatoraktivierung

Nach Abschluss der Testmessungen mit Stickstoff wurde mit den Vorbereitungen für erste Messungen mit Deuterium begonnen. Pufferbehälter TBN82100 wurde mit Deuterium aus einer Gasflasche auf 922 mbar befüllt. In einem weiteren Schritt sollte Deuterium über Permeator FLM82200 mittels der Pumpen PCO82220 und PCO82210 in TBN82300 gefüllt werden. Permeator FLM82200 war auf Betriebstem-

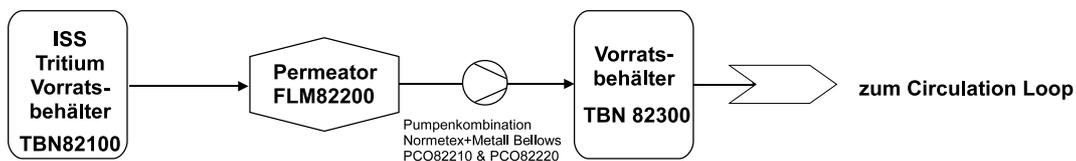
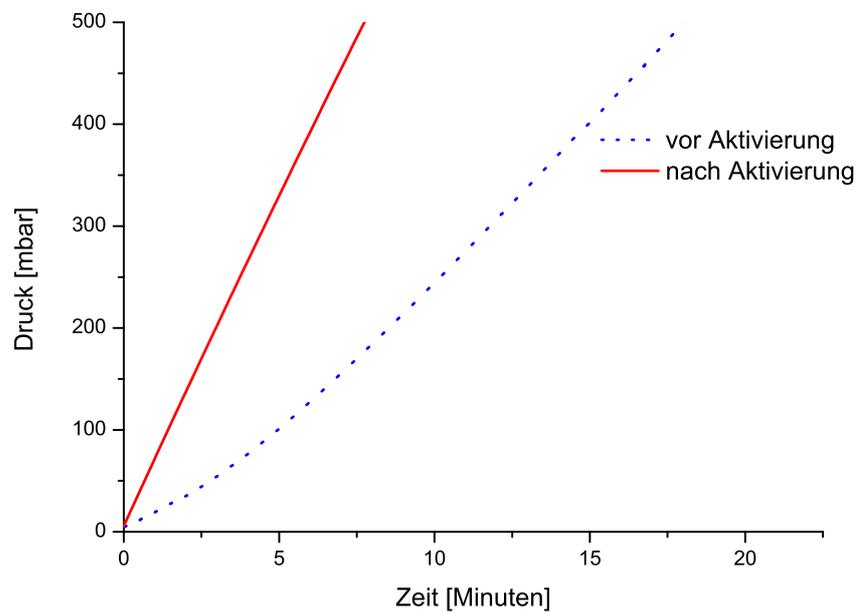


Abbildung C.1: Vereinfachtes Fließbild des Feed-Loop.

peratur (400°C). Der Fülldauer von 0 auf ca. 500 mbar betrug ca. 18 Minuten. Mit dem Volumen von TBN82300 (~ 4 l) lässt sich die Flussrate durch den Permeator zu 100-120 sccm abschätzen. Die Durchlässigkeit des Permeators für Wasserstoffisotope war weitaus geringer als nach erfolgter Aktivierung der Membran bei der direkt nach Lieferung erfolgten Funktionsprüfung. Als Grund wurde eine Bedeckung der Membran mit Kohlenstoff angenommen („Passivierung“). Durch Zufuhr von Sauerstoff bei Betriebstemperatur lässt sich die Bedeckung entfernen („Aktivierung“). Beide Permeatoren wurden evakuiert, um sie mit Laborluft zu aktivieren<sup>1</sup>. Nach erfolgter Aktivierung und Evakuierung wurde der Füllvorgang wiederholt. Die Fülldauer von TBN82300 von 0 auf 578 mbar betrug 9 Minuten. Die Durchflussrate lässt sich zu 270-300 sccm abschätzen. Abbildung C.2 zeigt einen Vergleich des Füllvorgangs vor und nach der Aktivierung bei vergleichbaren Ausgangsbedingungen. Die Aktivierung der Membran war erfolgreich.

<sup>1</sup>Ein Test der Durchlässigkeit von Permeator FLM80300 wurde nicht durchgeführt. Es wurden beide Permeatoren zusammen aktiviert.



**Abbildung C.2: Füllvorgang über den Permeator vor und nach Aktivierung der Membran.** Dargestellt ist der Druckverlauf in Vorratsbehälter TBN82300 während des Füllvorgangs über Permeator FLM82200. Bei beiden Füllvorgängen herrschten vergleichbare Ausgangsbedingungen. Vorratsbehälter TBN82100 war jeweils mit  $\sim 920$  mbar Deuterium gefüllt.

# Anhang D

## Modifikationen für den späteren KATRIN-Betrieb

Für die Anbindung an KATRIN und Verwendung mit WGTS, DPS2-F und CPS sind noch Modifikationen am System notwendig:

- Die Verbindungsleitungen zu WGTS, DPS2-F, CPS müssen installiert werden.
- Der von LOOPINO genutzte Teilbereich des Exhaust-Loop ist - um eine mögliche Kontamination durch Fehlbedienung von Ventilen zu vermeiden - noch nicht an den Rest der Kreisläufe angeschlossen. Vor Betrieb des kompletten Systems mit Tritium werden die Verbindungsleitungen zu diesem Teilbereich angeschlossen.
- Ein bereits zuvor in der Handschuhbox vorhandener Behälter (TBN83100) wurde noch nicht angebunden. Bei diesem handelt es sich um einen bereits kontaminierten Behälter. Stattdessen wurde für die ersten Messungen ein Behälter mit 20 l Volumen eingebaut.<sup>1</sup>
- Für die Langzeitmessungen mit Deuterium (Run#4 und Run#5) wurde ein Einlassdruck von 15 mbar gewählt. Dabei wurde eine Durchflussrate erreicht, die den späteren KATRIN-Bedingungen entspricht. Der später in KATRIN gewählte Druck im Einlassbehälter ist abhängig vom Leitwert der Einlasskapillare in das Quellrohr der WGTS. Diese wird ebenso wie die Quelle auf 30 K temperaturstabilisiert. Das bei den bisherigen Messungen verwendete Bypassrohr weist bei Raumtemperatur einen ähnlichen Leitwert auf wie die Einlasskapillare bei 30 K. Es kann aber die späteren Verhältnisse bei KATRIN nicht exakt reproduzieren. Der Druck im Einlassbehälter beim Betrieb von KATRIN wird erst bei Testmessungen des Circulation-Loop kombiniert mit

---

<sup>1</sup>Ein größerer Behälter wäre aus Platz- und Kostengründen nicht realisierbar gewesen. Der endgültige Behälter wird vor Inbetriebnahme mit Tritium angeschlossen werden.

## 158 ANHANG D. MODIFIKATIONEN FÜR DEN SPÄTEREN KATRIN-BETRIEB

der WGTS bestimmt werden. Das Regelsystem ist jedoch flexibel genug um auf einen beliebigen Wert zwischen 1 mbar und 20 mbar zu stabilisieren.



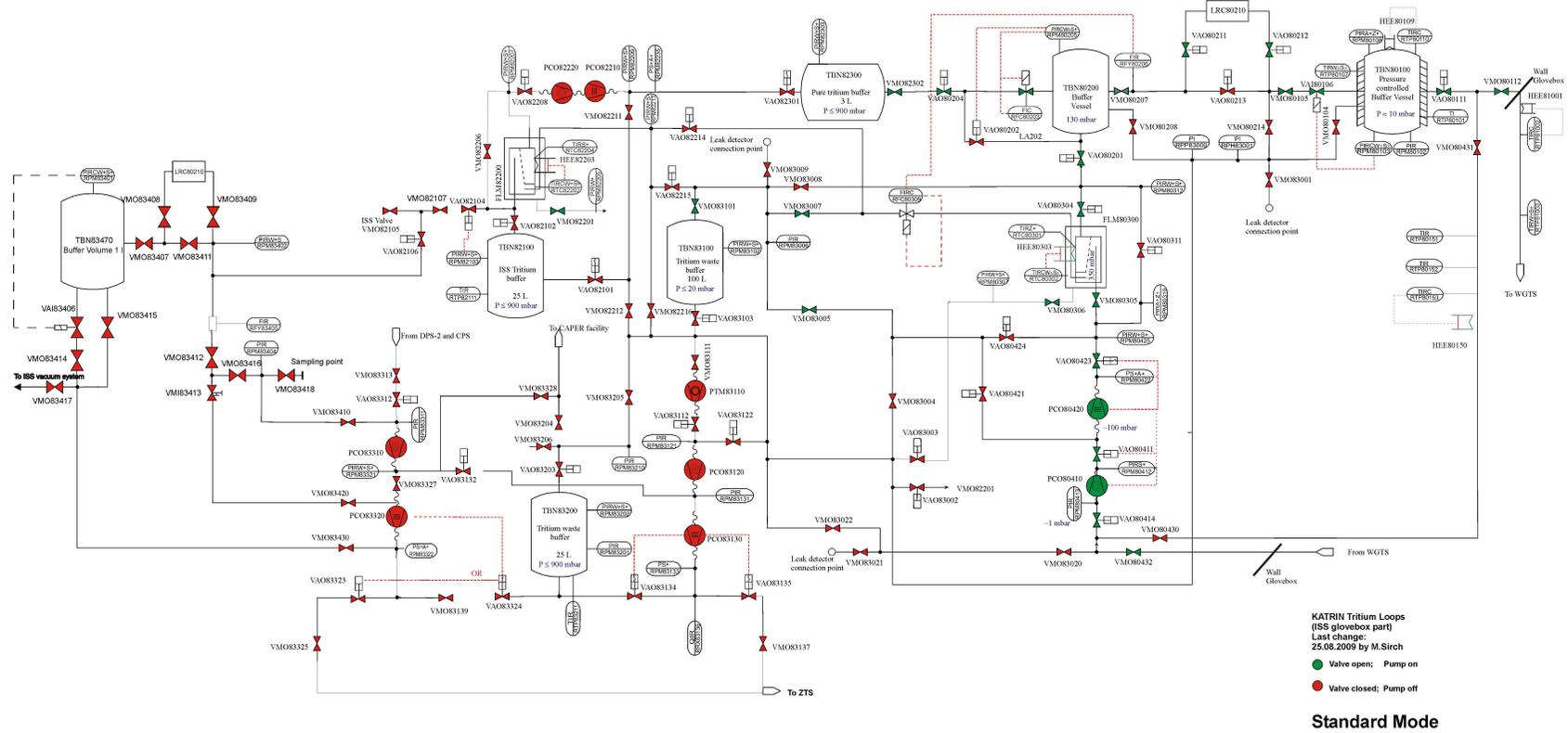


Abbildung D.2: Fließbild der Tritiumkreisläufe. Dargestellt ist das Fließbild der Tritiumkreisläufe in der ISS-Handschuhbox nach Anschluß der WGTS.

# Anhang E

## Optische Justierung von LARA

Im Folgenden wird die Vorgehensweise zur optischen Justierung des LARA-Aufbaus vorgestellt. Dabei wird davon ausgegangen, dass eine vollständige Neujustierung des Systems erforderlich ist. Zu Beginn einer Messung muss auf jeden Fall der Strahlengang des Lasers überprüft werden, sowie die Ausrichtung der Glasfaser auf der Kollektionsseite überprüft werden. Die Justierung des Strahlenganges erfolgt bei reduzierter Laserleistung. Werden Spektrometer bzw. Glasfaser bei voller Laserleistung ausgerichtet ist der Laserstrahl nicht direkt zugänglich. Zur Ausrichtung von Glasfaser und CCD wird in kurzer Folge das Bild der CCD aufgenommen und beobachtet. Die CCD ist dabei auf Betriebstemperatur ( $-75\text{ °C}$ ) gekühlt.

- Ausrichtung der CCD: Es wird überprüft, ob die CCD gerade und im Fokus ist, ggf. erfolgt eine Korrektur.
- Ausrichtung der Glasfaser auf der Spektrometerseite: Es wird mit einer Lichtquelle durch die Glasfaser geleuchtet. Ist die Glasfaser auf der CCD scharf abgebildet, ist der Fokus gefunden. Die vertikale Ausrichtung wird so gewählt, dass die Glasfasern mittig auf die CCD abgebildet werden. Die horizontale Ausrichtung wird so gewählt, dass die an der CCD gemessene Intensität maximiert wird.
- Überprüfung der Ausrichtung des Laserstrahl: Es wird bei auf 100 mW heruntergelegter Leistung der Strahlengang überprüft und ausgerichtet. Der Strahlengang muss mittig durch Zelle verlaufen den Powermeter mittig treffen, der Reflex mittig auf die Photodiode treffen.
- Ausrichtung der Kollektionsseite der Glasfaser. Für eine grobe Ausrichtung ist es hilfreich eine mit Ethanol gefüllte Zelle zu verwenden (höhere Streuintensität) alternativ geht auch Luft (ohne Zelle) oder die Probenzelle selber (problematisch bei geringen Drücken). Die Glasfaser wird so ausgerichtet, dass die an der CCD gemessene Intensität maximiert wird.

- Einbringung der LARA-Zelle, oder Ankoppelung des Appendix: Die Zelle wird in ihrer Schwalbenschwanzhalterung montiert, bzw. der LARA-Aufbau wird mit dem LARA-Appendix der Handschuhbox verbunden.
- Feinjustierung der Ausrichtung auf der Kollektionsseite. Bei der Feinjustierung wird bei voller Laserleistung die Glasfaser auf der Kollektionsseite noch einmal nachjustiert.

# Anhang F

## Linienpositionen der Wasserstoffisotopologe und der tritierten Methane

**Tabelle F.1: Werte der Konstanten  $\tilde{\nu}_e$ ,  $B_v$  und  $D_v$ .** Aufgelistet sind die von SpecGen [Lew07] zur Berechnung der Linienpositionen verwendeten Werte von  $\tilde{\nu}_e$ ,  $B_v$  und  $D_v$ . Die Werte für HT, DT wurden durch Interpolation der bekannten Werte ( $\text{H}_2$ , HD,  $\text{D}_2$  und  $\text{T}_2$ ) unter der Berücksichtigung der reduzierten Massen bestimmt.

Isotopolog	$\tilde{\nu}_e$	$B_v$	$D_v$	Quelle
$\text{H}_2$	4161,14	$56,36 \pm 0,01$	$4,3 \pm 0,1$	[Edw78]
HD	3632,05	$42,74 \pm 0,01$	$4,3 \pm 0,1$	[Edw78]
HT	3445,68	38,39	$4,3 \pm 0,1$	Interpolation
$\text{D}_2$	2993,56	$28,85 \pm 0,01$	$1,1 \pm 0,1$	[Edw78]
DT	2723,46	23,66	0,7	Interpolation
$\text{T}_2$	$2464,324 \pm 0,001$	$19,4530 \pm 0,0007$	$0,470 \pm 0,005$	[Edw78]

**Tabelle F.2: Linienpositionen der S<sub>0</sub>-Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe.** Oben aufgelistet sind die Ramanverschiebungen der ersten 10 Stokes S<sub>0</sub>-Zweige (S<sub>0</sub>(J) angegeben in Wellenzahlen [cm<sup>-1</sup>], unten die Linienpositionen in [nm] für Anregung mit 532 nm.

J''	H <sub>2</sub>	HD	HT	D <sub>2</sub>	DT	T <sub>2</sub>
0	354,39	267,08	239,6	179,06	145,73	120,05
1	587,04	443,09	397,71	297,54	242,32	199,69
2	814,41	616,1	553,43	414,67	338,07	278,73
3	1034,64	785	705,87	529,96	432,66	356,95
4	1246,15	948,82	854,21	642,89	525,77	434,12
5	1447,69	1106,73	997,74	753,01	617,1	510,02
6	1638,41	1258,04	1135,85	859,88	706,37	584,45
7	1817,96	1402,32	1268,06	963,09	793,31	657,21
8	1986,55	1539,33	1394,05	1062,3	877,68	728,11
9	2145,02	1669,13	1513,67	1157,19	959,27	796,98
0	542,22	539,67	538,87	537,12	536,16	535,42
1	549,15	544,84	543,5	540,56	538,95	537,71
2	556,09	550,03	548,14	544	541,74	540,01
3	562,99	555,19	552,76	547,43	544,53	542,3
4	569,77	560,28	557,33	550,84	547,31	544,58
5	576,39	565,28	561,82	554,2	550,06	546,84
6	582,8	570,16	566,21	557,5	552,77	549,07
7	588,96	574,89	570,49	560,73	555,44	551,27
8	594,87	579,45	574,62	563,87	558,06	553,44
9	600,53	583,84	578,59	566,9	560,61	555,56

**Tabelle F.3: Linienpositionen der S<sub>1</sub>-Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe.** Oben aufgelistet sind die Ramanverschiebungen der ersten 10 Stokes S<sub>1</sub>-Zweige (S<sub>1</sub>(J) angegeben in Wellenzahlen [cm<sup>-1</sup>], unten die Linienpositionen in [nm] für Anregung mit 532 nm.

J''	H <sub>2</sub>	HD	HT	D <sub>2</sub>	DT	T <sub>2</sub>
0	4497,75	3887,55	3675,26	3166,26	2865,17	2580,87
1	4712,77	4051,95	3823,31	3278,4	2957,74	2657,03
2	4916,76	4209,37	3965,49	3387,1	3048,13	2731,45
3	5107,8	4358,56	4100,77	3491,86	3136,01	2803,94
4	5284,03	4498,27	4228,11	3592,16	3221,04	2874,28
5	5443,68	4627,22	4346,45	3687,5	3302,91	2942,29
6	5585,05	4744,18	4454,72	3777,41	3381,27	3007,76
7	5706,51	4847,86	4551,83	3861,38	3455,82	3070,51
8	5806,5	4937,02	4636,71	3938,95	3526,22	3130,37
9	5883,52	5010,38	4708,23	4009,64	3592,15	3187,17
0	699,34	670,72	661,3	639,77	627,67	616,67
1	710,01	678,19	667,84	644,39	631,34	619,58
2	720,45	685,51	674,24	648,93	634,97	622,45
3	730,5	692,6	680,45	653,38	638,53	625,27
4	740,03	699,36	686,39	657,69	642,02	628,03
5	748,88	705,73	692,02	661,84	645,41	630,73
6	756,89	711,6	697,24	665,8	648,69	633,34
7	763,91	716,89	701,99	669,54	651,84	635,87
8	769,79	721,5	706,2	673,04	654,85	638,3
9	774,38	725,34	709,79	676,25	657,68	640,62

**Tabelle F.4: Linienpositionen der Q<sub>1</sub>-Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe.**  
 Oben aufgelistet sind die Ramanverschiebungen der ersten 10 Stokes Q<sub>1</sub>-Zweige (Q<sub>1</sub>(J))  
 angegeben in Wellenzahlen [cm<sup>-1</sup>], unten die Linienpositionen in [nm] für Anregung mit  
 532 nm.

J''	H <sub>2</sub>	HD	HT	D <sub>2</sub>	DT	T <sub>2</sub>
0	4161,14	3632,05	3445,68	2993,56	2723,46	2464,32
1	4155,19	3628,19	3442,35	2991,44	2722,12	2463,15
2	4143,37	3620,48	3435,67	2987,21	2719,44	2460,82
3	4125,82	3608,9	3425,62	2980,87	2715,42	2457,34
4	4102,76	3593,45	3412,17	2972,46	2710,07	2452,73
5	4074,47	3574,12	3395,26	2962	2703,4	2447,02
6	4041,31	3550,9	3374,84	2949,53	2695,41	2440,24
7	4003,72	3523,77	3350,82	2935,09	2686,13	2432,44
8	3962,2	3492,72	3323,12	2918,72	2675,55	2423,66
9	3917,33	3457,72	3291,65	2900,5	2663,69	2413,97
0	683,25	659,42	651,41	632,77	622,14	612,27
1	682,98	659,25	651,27	632,69	622,09	612,23
2	682,43	658,91	650,99	632,52	621,99	612,14
3	681,61	658,41	650,56	632,27	621,83	612,01
4	680,54	657,74	649,99	631,93	621,62	611,84
5	679,23	656,91	649,28	631,51	621,37	611,62
6	677,71	655,91	648,42	631,02	621,06	611,37
7	675,98	654,74	647,41	630,44	620,7	611,08
8	674,09	653,41	646,25	629,79	620,29	610,75
9	672,06	651,92	644,94	629,07	619,84	610,39

**Tabelle F.5: Linienpositionen der O<sub>1</sub>-Zweige aller 6 Wasserstoffisotopologe.** Oben aufgelistet sind die Ramanverschiebungen der ersten 10 Stokes O<sub>1</sub>-Zweige (O<sub>1</sub>(J)) angegeben in Wellenzahlen [cm<sup>-1</sup>], unten die Linienpositionen in [nm] für Anregung mit 532 nm.

J''	H <sub>2</sub>	HD	HT	D <sub>2</sub>	DT	T <sub>2</sub>
2	3803,67	3363,1	3204,57	2813,71	2577,23	2343,93
3	3556,09	3177,86	3038,8	2690,82	2477,84	2262,14
4	3297,58	2985,64	2867,15	2564,51	2376,27	2178,63
5	3026,22	2785,19	2688,58	2434,26	2272,2	2093,19
6	2740,15	2575,24	2502,06	2299,56	2165,28	2005,61
7	2437,6	2354,55	2306,51	2159,93	2055,2	1915,71
8	2116,87	2121,85	2100,88	2014,86	1941,62	1823,28
9	1776,32	1875,87	1884,08	1863,86	1824,22	1728,14
10	1414,4	1615,37	1655,02	1706,48	1702,67	1630,12
11	1029,62	1339,06	1412,59	1542,22	1576,66	1529,05
2	666,96	647,92	641,34	625,65	616,53	607,79
3	656,13	640,24	634,59	620,88	612,78	604,78
4	645,19	632,46	627,75	616,05	608,99	601,74
5	634,08	624,54	620,79	611,14	605,15	598,67
6	622,79	616,46	613,69	606,16	601,26	595,54
7	611,27	608,18	606,41	601,07	597,31	592,37
8	599,52	599,69	598,94	595,87	593,28	589,15
9	587,52	590,98	591,26	590,56	589,18	585,86
10	575,29	582,02	583,36	585,12	584,99	582,52
11	562,83	572,81	575,23	579,55	580,71	579,11

**Tabelle F.6:** Aufgelistet sind die Grundschnvingungen tritierter Methane [Eng92] sowie deren Linienposition im Ramanspektrum bei Anregung mit 532 nm.

	Schnvingungstyp	Wellenzahl [cm <sup>-1</sup> ]	$\lambda$ [nm]
CH <sub>3</sub> T	$\nu_1$	1878	591,05
	$\nu_{3a}$	2961	631,47
CH <sub>2</sub> T <sub>2</sub>	$\nu_1$	1825	589,21
	$\nu_{3a}$	2967	631,71
CH <sub>3</sub> T	$\nu_1$	1793	588,1
	$\nu_{3a}$	2983	632,35
CD <sub>3</sub> T	$\nu_1$	1886	591,33
	$\nu_{3a}$	2166	601,29
CD <sub>2</sub> T <sub>2</sub>	$\nu_1$	1817	588,93
	$\nu_{3a}$	2200	602,52
CDT <sub>3</sub>	$\nu_1$	1778	587,58
	$\nu_{3a}$	2225	603,43
CT <sub>4</sub>	$\nu_1$	1668	583,81
	$\nu_{3a}$	1936	593,08

# Danksagung

Hiermit möchte ich allen danken, die mich bei der Durchführung dieser Arbeit unterstützt haben und zum Gelingen beigetragen haben.

- Prof. Dr. Guido Drexlin danke ich, da er mir die Durchführung dieser Arbeit ermöglicht hat.
- Prof. Dr. Thomas Müller danke ich, für die Übernahme des Zweitgutachtens.
- Dr. Beate Bornschein danke ich für die gute Vorortbetreuung am TLK.

Norbert Kernert, Magnus Schlösser, Florian Priester und Sebastian Fischer danke ich für die gute Zusammenarbeit und ihre Beiträge zum Gelingen dieser Arbeit, sowie Prof. Helmut Telle und Dr. Richard Lewis aus Swansea.

Den Mitarbeitern und ehemaligen Mitarbeitern des TLK sei an dieser Stelle für das angenehme Arbeitsklima und ihre Hilfe in verschiedenen Formen gedankt: Hans-Dieter Adami, Dr. Catalin Alecu, Dr. Uwe Besserer, Erhan Cilbir, Dr. David Demange, Helmut Dittrich, Dr. Lothar Dörr, Frank Eichelhardt, Eleonore Fanghänel, Manfred Göckel, Oleg Kazachenko, Beate Kloppe, Frank Kramer, Sylvia Krieger, Long Thanh Le, Christin Melzer, Robert Michling, Dirk Osenberg, Christoph Plusczyk, Eva Porter, Frank Rehlinghaus, Peter Schäfer, Peter Schuster, Karl-Heinz Simon, Monika Sirch, Robert Wagner, Stefan Welte, Dr. Jürgen Wendel und Werner Wurster.

Dank gebührt zudem:

- Der Gruppe Maschinenbau des IK, insbesondere Holger Krause und Dieter Stern, sowie der Werkstatt: Alan Kumb, Stefan Kern und Patrick Krämer, für die Unterstützung beim Einbau der Komponenten in die Handschuhbox, Ludwig Anselment, Holger Frenzel, Siegfried Horn, Mareike Kuhl, Klaus Mehret und Roland Neeb, wenn es mal darum ging Teile anzufertigen, zu reinigen oder mechanische Lösungen zu finden.
- Harry Stober, Philipp Tuchscherer und Werner Kopp von MHC, die die Verrohrung anfertigten.
- Wolfgang Käfer und Marie Kauffmann für das Aufsuchen von Kantinenalternativen.
- Dr. Lutz Bornschein, Dr. Udo Schmitt, Pascal Renschler, Florian Fränkle, Markus Hötzel, Marcel Finger und Michael Wommer, sowie den Karlsruher KATRIN-Diplomanden und Doktoranden.

Gedankt sei auch dem Holger mit Familie, dem Steffen und seinem Geier u.a. für wiederholtes Austesten von Beschleunigungskräften im Selbstversuch, der Doro u.a. für ihr Hefezopfrezept, sowie allen, die ich hier jetzt nicht aufgelistet habe.

An dieser Stelle möchte ich noch meinen Eltern und Verwandten, die sich im Laufe der Zeit an das konsequente Nichtbeantworten von Fragen bzgl. Fertigstellungsterminen gewöhnt haben, danken.