

Tritiumtechnologie für die fensterlose Quelle WGTS von KATRIN

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
von der Fakultät für Physik
des Karlsruher Instituts für Technologie
genehmigte
DISSERTATION
von

Dipl. Phys., Dipl.-Ing. (FH) Florian Priester
aus Saarbrücken

Angefertigt am Institut für Technische Physik und
am Institut für Experimentelle Kernphysik
der Fakultät für Physik
des Karlsruher Instituts für Technologie

Erstgutachter:
Zweitgutachter:

Prof. Dr. G. Drexlin
Prof. Dr.-Ing. M. Noe

Tag der mündlichen Prüfung: 14.06.2013

Erklärung

Ich versichere hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur unter Zuhilfenahme der angegebenen Hilfsmittel und Quellen angefertigt habe.

Florian Priester
Leopoldshafen, den 26.04.2013

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	v
Tabellenverzeichnis	ix
1. Einleitung.....	1
2. Die KATRIN Tritiumquelle WGTS	25
2.1. Physik und Konzept der KATRIN Tritiumquelle	25
2.2. Methode zur Bestimmung der KATRIN Quellaktivität	30
2.3. Einfluss einer magnetgelagerten TMP auf die KATRIN Tritiumquelle	32
3. Das Testexperiment TriReX.....	35
3.1. Physikalische Anforderungen	35
3.2. Physikalische Grundlagen von BIXS	37
3.2.1. Der Tritium- β -Zerfall.....	37
3.2.2. Wechselwirkung von Elektronen mit Materie	38
3.2.3. Nachweis von Röntgenstrahlung.....	41
3.2.3.1. Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie.....	41
3.2.3.2. Transmission von Röntgenstrahlung durch Materie	42
3.2.3.3. Funktionsweise eines Silizium-Driftdetektors (SDD).....	43
3.3. Experimenteller Aufbau	45
3.3.1. Technische Anforderungen	46
3.3.2. Aufbau des Testexperiments TriReX.....	47
3.4. Inbetriebnahme von TriReX	51
3.4.1. Charakterisierung des verwendeten Detektors	51
3.4.2. Verfahrenstechnische Inbetriebnahme	54
3.5. Aktivitätsmessungen einer gasförmigen Tritiumquelle	56
3.5.1. Vorbereitungen zur Durchführung von Messungen.....	58
3.5.2. Diskussion der Spektren	59
3.5.2. Nachweisgrenzen von TriReX.....	61
3.5.4. Temperaturabhängigkeit, Linearität und Reproduzierbarkeit.....	64
3.5.5. Nachweis von Schwankungen der Aktivität einer Tritiumquelle	69
3.5.6. Permeation von Tritium durch goldbeschichtetes Beryllium	69

3.6.	Bewertung der Ergebnisse	73
4.	Das Testexperiment TriToP.....	77
4.1.	Motivation und Anforderungen.....	77
4.2.	Grundlagen der Hauptkomponenten	78
4.2.1.	Funktionsweise eines Massenspektrometers	78
4.2.1.1.	Ionisationsquelle.....	79
4.2.1.2.	QMS Filtersystem	79
4.2.1.3.	Nachweissystem	81
4.2.2.	Funktionsweise einer Turbomolekularpumpe	82
4.3.	Experimenteller Aufbau	84
4.3.1.	Technische Anforderungen	84
4.3.2.	Aufbau von TriToP	85
4.3.2.1.	Details zur TMP Leybold MAG W2800	87
4.3.2.2.	Details zum Massenspektrometer MKS HPQ2S.....	90
4.3.3.	Verfahrenstechnische Inbetriebnahme	92
4.3.3.3.	Kalibrierung des Massenspektrometriesystems	94
4.4.	Tritiummessungen.....	96
4.4.1.	Ergebnisse der Langzeitmessungen unter Tritiumatmosphäre	97
4.4.2.	Ergebnisse der Messungen ohne Tritium.....	112
4.5.	Bestimmung der Gaszusammensetzung mit Laser-Raman-Spektroskopie	119
4.6.	Demontage der Turbomolekularpumpe MAG W2800	120
4.6.1.	Aktivitätsbestimmungen im Zusammenhang mit der Demontage	128
4.6.1.1.	Bestimmung der Oberflächenkontamination mittels Wischtest.....	129
4.6.1.2.	Bestimmung des Inventars von Pumpenteilen mittels Kalorimeter .	130
4.7.	Bewertung der Ergebnisse	132
5.	Zusammenfassung und Ausblick	135
Anhang	139
A.	Beschreibung des Kalibrierpräparates	139
B.	Verwendete Fluoreszenzen zur Kalibrierung.....	140
C.	R&I Schema TriReX nach Update.....	141
D.	Messstellenliste TriReX.....	141
E.	Auszug Werkstoffzertifikat des TriReX-Rezipienten	142
F.	Untergrundspektrum TriReX März 2013	143
G.	Datenblatt TriToP-QMS-System.....	144

H.	Tabelle der Fragmentierungsmuster.....	148
I.	Berechnung des Tritiumdurchsatzes in TriToP	150
J.	Vergleichs-Fragmentierungsmuster	151
K.	Messstellenliste TriToP	153
L.	R&I Diagramm KATRIN-Inner Loop Handschuhboxenteil.....	154
M.	Technische Daten der in TriToP verwendeten Pumpen	155

Abbildungsverzeichnis

1.1: Neutrino-Massenskala	7
1.2: Einfluss der Neutrinomasse auf die großräumige Strukturbildung im Universum.	10
1.3: Anteil der Materiedichte im Kosmos und Neutrinomassen.....	11
1.4: Doppel- β -Zerfall.....	15
1.5: Schema der spektroskopischen Methoden zur Neutrinomassenbestimmung.....	16
1.6: Übersicht über das KATRIN-Experiment.	19
1.7: Schematische Darstellung der Gassäule in der WGTS.	20
1.8: Prinzip des MAC-E Filters im Hauptspektrometer.	22
2.1: CAD Grafik des WGTS-Kryostaten.....	26
2.2: Schematische Darstellung der Komponenten im Inner- und Outer Loop	26
2.3: Schematische Darstellung einer Messung mit der BIXS Methode.	27
2.4: Schematische Darstellung des KATRIN <i>Inner Loop</i>	29
2.5: Berechneter Verlauf des Tritium β -Spektrum und eines Fitintervalls.	31
2.6: Schematische Darstellung eines integrierten Tritium- β -Spektrums.....	32
2.7: Schematische Darstellung des TriToP-Experiments.	33
3.1: Verlauf eines Bremsstrahlungsspektrums und Richtungsverteilung der Strahlung.....	40
3.2: Bezeichnung der charakteristischen Linien in der Röntgenspektroskopie.....	41
3.3: Schematischer Aufbau eines SDD.....	44
3.4: Vergleich β - und Bremsstrahlungsspektrum und Detektoreffizienz.....	45
3.5: Ausgangssignal eines SDD.....	45
3.6: Schematische Darstellung der TriReX Hauptkomponenten.....	49
3.7: Fließbild des TriReX-Aufbaus.	50
3.8: KETEK AXAS M1 Detektor.	50
3.9: Untergrundsignal des TriReX SDD.....	53
3.10: Kalibrierspektrum einer ^{241}Am Quelle mit Filterfolien.....	55
3.11: Versuchsaufbau zur Bestimmung der He-Leckrate.	55
3.12: Langzeitlecktest des TriReX-Be-Fensters.	56
3.13: Intrinsischer Detektoruntergrund im TriReX Aufbau.....	56
3.14: Schematische Darstellung des TriReX-Umbaus.	57
3.15: Das sich im Aufbau befindliche TriReX-Experiment.	58
3.16: Beispielhaftes Bremsstrahlungsspektrum mit Fluoreszenzen.	60
3.17: Detail Bremsstrahlungsspektrum.....	61
3.18: Messung zur Bestimmung der unteren Nachweisgrenze.....	63
3.19: B-Feld Einfluss auf das Tritium-Bremsstrahlungsspektrum.	64
3.20: Anstieg des Untergrundsignals.	66
3.21: Temperaturdrift der Position der Fe- $K\alpha$ -Linie.	68

3.22: Funktion der Zählrate in Abhängigkeit des Drucks im Rezipienten.	68
3.23: Schwankungen der Zählrate bei wiederholten Tritiummessungen.....	70
3.24: Schwankungen der Zählrate bei wiederholten Tritiummessungen.....	71
3.25: Nachweis von relativen Schwankungen der Aktivität auf einem 10^{-3} Niveau.	72
3.26: Niederenergetischer Teil eines Bremsstrahlungsspektrums.	73
3.27: Vorschlag zur Implementierung von zwei BIXS-Systemen bei KATRIN.	75
4.1: Schematische Darstellung eines Quadrupol-MS.	82
4.2: Funktionsprinzip einer Turbomolekularpumpe.	84
4.3: Schematischer Aufbau des TriToP-Kreislaufes.	88
4.4: TriToP Aufbau in der Altex Handschuhbox.	89
4.5: Leybold MAG W2800.....	90
4.6: Querschnitt durch eine magnetisch gelagerte TMP (schematisch).....	91
4.7: Abmessungen und Aufbau des Quadrupolsystems.....	94
4.8: R&I Schema von TriToP.....	95
4.9: Ergebnis des integralen Lecktests von TriToP.....	96
4.10: Massenspektrum vor Kalibrierung des QMS.	97
4.11: Massenspektrum nach Kalibrierung des QMS.	97
4.12: Exemplarisches Massenspektrum von TriToP.....	100
4.13: Ausgewählte Massenspektren der 1. Messreihe.	103
4.14: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 1.	104
4.15: Verlauf von Druck und Temperatur während Messreihe 1.....	104
4.16: Ausgewählte Massenspektren der 3. und 4. Messreihe.	106
4.17: Täglicher Tritiumdurchsatz bei Messreihe 3 und 4.	106
4.18: Ausgewählte Massenspektren der 5. Messreihe.	108
4.19: Verlauf von Druck und Temperatur während Messreihe 5.....	108
4.20: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 5.	109
4.21: Massenspektren von Anfang und Ende der 6. Messreihe.....	110
4.22: Verlauf von Druck und Temperatur während Messreihe 6.....	111
4.23: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 6.	111
4.24: Ausgewählte Massenspektren von Messreihe 8.	113
4.25: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 8.	113
4.26: Druck und Temperatur bei Messreihe 8.	114
4.27: Darstellung der Abfolge der Messreihen.	115
4.28: Beobachtetes Massenspektrum beim Start von Messreihe 7.....	116
4.29: Massenspektren aus Messreihe 7 nach IBN der Boxenklimatisierung.	117
4.30: Druck und Temperatur bei Messreihe 7.	118
4.31: Druck und Temperatur bei Messreihe 9.	118
4.32: Ausgewählte Massenspektren aus Messreihe 9.....	119
4.33: Massenspektren der Dekontamination mit H_2	120
4.34: Ramanspektrum mit Gas aus Messreihe 8.....	122
4.35: Blick in den Vorvakuumbereich der TMP.	123
4.36: Detail der äußeren Dichtung.....	124

4.37: Pumpenrotor und Magnetlagerkartusche.....	125
4.38: Einteiliger Aluminiumrotor mit Dragstufe.	126
4.39: Ausgebaute Magnetlagerkartusche und Verkabelung.....	126
4.40: z-Achsen-Magnetlager.....	128
4.41: Demontierte Magnetlagerkartusche.....	128
4.42: Antriebswelle mit CFK-Schutzmantel und Schutzlack.	129
4.43: Verlauf der Boxenluftaktivität vor, während und nach der Demontage.	129
4.44: Verlauf der Boxenluftaktivität während der Demontage der TMP.	130
4.45: Zuordnung der kalorimetrisch untersuchten Proben zur Position in der TMP. ..	134

Tabellenverzeichnis

1.1: Leptonen und Quarks im Standardmodell.	4
1.2: Experimentell bestimmte Werte der Oszillationsparameter.	11
3.1: Zusammenfassung der Fluoreszenzlinien in TriReX-Spektren.	62
3.2: Anstieg der Untergrundrate nach Tritiummessungen.	66
4.1: Erwartete Peakpositionen und relative Intensitäten.	98
4.2: Übersicht aller Messreihen in TriToP.	99
4.3: Interpretation eines typischen Massenspektrums von TriToP.	101
4.4: Beiträge von tritiiertem und untritiiertem Methan zum Massenspektrum.	109
4.5: Oberflächen und Aktivitäten innerhalb der TMP MAG W2800.	131
4.6: Ergebnisse der Inventarbestimmung mittels Kalorimeter.	133

1. Einleitung

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen des Karlsruhe Tritium Neutrino Experiments (KATRIN). Das Ziel von KATRIN ist die Bestimmung der „Elektronantineutrinomasse“ mit einer Sensitivität von $0,2 \text{ eV}/c^2$ (90 % C.L.). KATRIN nutzt dazu eine fensterlose, gasförmige Tritiumquelle in einem geschlossenen Tritiumkreislauf. In diesem Kapitel soll ein Überblick über die Entdeckungen und den derzeitigen Stand der Neutrinophysik gegeben werden, gefolgt von einem Überblick über das KATRIN-Experiment. Zum Abschluss werden die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Untersuchungen motiviert.

Eine kurze Geschichte des Neutrinos

Bei den ersten Untersuchungen des β -Spektrums durch J. Chadwick [Cha14] wurde entsprechend den damaligen Vorstellungen des β -Zerfalls als Zwei-Körper-Prozess

$$n \rightarrow p + e^- \quad (1.1)$$

eine monoenergetische Linie im Spektrum erwartet. Experimentell zeigte sich jedoch ein kontinuierliches Energiespektrum der β -Elektronen. Unter der Annahme einer Kinematik entsprechend Gleichung 1.1 verstößt diese Beobachtung unter anderem gegen die Energie- und Drehimpulserhaltung. Daher führte W. Pauli 1930 ein weiteres, beim β -Zerfall entstehendes Teilchen ein ($\bar{\nu}_e$), um diese fundamentalen Erhaltungssätze zu retten [Pau30]:

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.2)$$

Dieses von Pauli noch als Neutron bezeichnete Teilchen wurde nach der Entdeckung des Neutrons wenige Jahre später von E. Fermi Neutrino getauft [Fer34] (heute: Elektron-Antineutrino, $\bar{\nu}_e$). Fermi entwickelte kurz darauf eine Theorie zur Beschreibung des β -Zerfalls. In Übereinstimmung mit damals verfügbaren, experimentellen Daten kam er zu dem Schluss, dass die Masse des Neutrinos entweder Null oder zumindest sehr viel kleiner als die Masse des Elektrons sein muss [Fer34].

Der erste experimentelle Nachweis für die Existenz von Neutrinos gelang im Jahre 1953 F. Reines und C.L. Cowan ([Rei53], [Cow56]). Sie führten am Savannah River Reaktor in den 50er und 60er Jahren Experimente mit Reaktor-neutrinos bei hohen Neutrinoflüssen durch [Rei60]. Dabei wurde der inverse β -Zerfall an den freien Protonen von H_2O ausgenutzt. Das nach Gleichung 1.3 entstehende Positron (e^+) annihiliert mit einem Elektron (e^-). Die beiden entstehenden Photonen werden direkt nachgewiesen. Das Neutron thermalisiert und wird von im H_2O Target enthaltenen Cd eingefangen. Cd sendet beim Übergang in den Grundzustand wiederum ein γ -Quant aus, welches als verzögertes Ereignis der (e^+ , n) Koinzidenz nachgewiesen wird.



Die von Reines und Cowan durchgeführten Experimente gelten als der erste Nachweis von Neutrinos, wofür F. Reines 1995 den Nobelpreis erhielt.

Mit dem Homestake-Experiment wurden wenige Jahre später das erste Mal die von der Sonne kommenden Elektron-Neutrinos nachgewiesen ([Dav94], [Cle95]). Dabei wurde in einer C_2Cl_4 -Lösung nach ν_e Einfangreaktionen



von solaren Neutrinos gesucht. In einem aufwändigen radio-chemischen Verfahren wurde anschließend aus dem 615 Tonnen umfassenden C_2Cl_4 Target das radioaktive ^{37}Ar Isotop, das nach Gleichung 1.4 gebildet wird, extrahiert und über die Rückreaktion nachgewiesen. Insgesamt wurde nur ca. $\frac{1}{3}$ des erwarteten Neutrinoflusses detektiert. Dieses Defizit wurde als „solares Neutrino problem“ bekannt [Bah73].

Die zweite von insgesamt drei Neutrinosorten, welche das Standardmodell der Elementarteilchenphysik voraussagt, wurde am Brookhaven Alternating Gradient Synchrotron von L.M. Lederman, M. Schwartz und J. Steinberger 1962 nachgewiesen [Gai62]. Sie untersuchten dazu den Pionzerfall



und wiesen nach, dass diesen Neutrinos nur Myonen erzeugen. 1988 erhielten sie daher den Nobelpreis für die Entdeckung des Myon-Neutrinos.

Die letzte der drei Neutrinogenerationen, das Tau-Neutrino (ν_τ), wurde im Jahr 2000 am Fermilab beim DONUT-Experiment entdeckt [Kod02]. Dabei wurden durch einen 800 GeV Protonenstrahl D_s - Mesonen im Target erzeugt, bei deren Zerfall ein ν_τ ausgesendet wird. In der anschließenden Auswertung von ν - induzierten Ereignissen in einem Stahl-Filmemulsions-Target wurden vier ν_τ - Kandidaten gefunden. In den dabei benutzten Filmemulsionen machte sich das erzeugte τ - Lepton als *kink* in der Trajektorie der Zerfallsprodukte bemerkbar.

Die bisher einzigen auf der Erde nachgewiesenen Neutrinos aus einer Supernova (SN1987a) wurden 1987 im Kamiokande-Detektor (zusammen mit dem Irvine-Michigan-Brookhaven Detector und dem Baksan Neutrino Observatory) registriert [Arn89]. Kamiokande war ein mit Reinstwasser gefüllter Detektor, in welchem Neutrinos beim Durchqueren elastisch mit Elektronen des Wassers stoßen, welche dann charakteristisches Cherenkov-Licht aussenden. Auch im Verlauf der Experimente am Kamiokande-Detektor stieß man auf das „solare Neutrino problem“, hier fehlten ca. 50 % des auf der Erde erwarteten Neutrinoflusses von der Sonne.

Nachdem gegen Ende der 1990er Jahre die erwarteten drei Neutrinogenerationen (ν_e , ν_μ , ν_τ) entdeckt waren, bestand mit dem „solaren Neutrino problem“ noch immer ein Defizit im experimentell nachgewiesenen Neutrinofluss von der Sonne auf der Erde und ein Indiz für neue Physik. Hier brachte das Sudbury Neutrino Observatory (SNO) letztlich

den Durchbruch durch den Nachweis der Mischungseffekte in solaren Neutrinos [SNO01]. SNO ist ein sphärischer Detektor, gefüllt mit 1000 t schwerem Wasser (D₂O). Neben der Streuung von Neutrinos an Elektronen des Detektormaterials ist SNO auch auf sog. *charged current* (CC) und insbesondere auf *neutral current* (NC) Reaktionen [Gei03]

$$\text{CC: } \nu_e + d \rightarrow p + p + e^- \quad (1.6)$$

$$\text{NC: } \nu_x + d \rightarrow n + p + \nu_x \quad (1.7)$$

sensitiv ($x = e, \mu, \tau$). Das Verhältnis von NC/CC wird direkt von möglichen Neutrino-flavouroszillationen beeinflusst. Die Daten von SNO zeigen, dass der vom Standardsonnenmodell vorhergesagte Neutrinofluss korrekt ist, jedoch nur ca. $\frac{1}{3}$ der Neutrinos auf der Erde als Flavoureigenzustand ν_e ankommen. Die restlichen $\frac{2}{3}$ kommen auf der Erde in einen anderen Flavoureigenzustand (ν_μ bzw. ν_τ) ab. Da SNO auch auf diese Zustände sensitiv war, konnte erstmals der integrale Neutrinofluss der Sonne in SNO nachgewiesen werden. Da dieser integrale Wert der Theorie entsprach, war das „solare Neutrinoproblem“ gelöst [Zub11].

Das Neutrino im Standardmodell der Elementarteilchenphysik

Das heutige Standardmodell der Elementarteilchenphysik (SM) [Dem05] bietet eine solide Grundlage zur Beschreibung von Elementarteilchen und ihren Interaktionen. Das SM beschreibt sechs Quark-Flavours (up, down, charm, strange, top, bottom) in drei Familien (Tabelle 1.1). Diese tragen eine Farbladung (r, g, b) und eine elektrische Ladung (u, c, t: $+\frac{2}{3}$ und d, s, b: $-\frac{1}{3}$). Zusätzlich beinhaltet das SM sechs Leptonen in ebenfalls drei Familien (e, μ , τ , ν_e, ν_μ, ν_τ), wobei nur e, μ , τ eine elektrische Ladung von -1 tragen. Alle Quarks und Leptonen tragen als Fermionen einen Spin von $\frac{1}{2}$. Aus diesen Elementarteilchen setzt sich die sichtbare, baryonische Materie zusammen. Die fundamentalen Wechselwirkungen zwischen den Elementarteilchen werden durch Eichbosonen beschrieben. Das SM beinhaltet Gluonen, welche die starke Kraft zwischen den Quarks vermitteln, die Z^0 - und W^\pm -Bosonen sowie die Photonen (γ), welche die elektroschwache Kraft vermitteln. Die Gravitation einschließlich ihres Austauschbosons, dem Graviton, wird vom SM nicht beschrieben. Die Masse der Elementarteilchen entsteht im SM durch die Wechselwirkung der Teilchen mit dem Higgsboson, für welches 2012 am LHC eine überzeugende Evidenz gefunden wurde ([CMS12], [ATL12]). Im SM wechselwirken Neutrinos entsprechend ihrer Händigkeit jedoch nicht mit dem Higgsboson und werden daher im Rahmen dieser Theorie als masselos angesehen.

Die fundamentale Annahme, dass Neutrinos eine Masse von Null besitzen, steht jedoch im Widerspruch zu Beobachtungen bei Neutrinooszillationsexperimenten.

Tabelle 1.1: Leptonen und Quarks im Standardmodell.

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

Neutrinooszillationen

Wie oben erwähnt, besitzen Neutrinos im Rahmen des Standardmodells keine Masse. Das „solare Neutrinoproblem“ und die Untersuchung von atmosphärischen Neutrinos lieferten jedoch überzeugende Hinweise darauf, dass Neutrinos oszillieren.

Im Folgenden sollen die theoretischen Grundlagen von Neutrinooszillationen erläutert sowie anhand von verschiedenen Beispielen der derzeitige Kenntnisstand auf diesem Gebiet zusammengefasst werden. Die ersten Überlegungen zu diesem Phänomen gehen auf V. Gribov und B. Pontecorvo aus dem Jahr 1969 zurück [Gri69].

Die Oszillation von Neutrinos von einem in einen anderen Flavoureigenzustand ist ein quantenmechanisches Interferenzphänomen, welches erfordert, dass mindestens ein Neutrinozustand eine Masse ungleich Null besitzt. Weitere Erläuterungen dazu finden sich im Folgenden.

Neutrinooszillationen basieren auf der Erkenntnis, dass die Flavoureigenzustände ν_α ($\alpha = e, \mu, \tau$) nicht zwangsläufig identisch mit den Masseeigenzuständen ν_i ($i = 1, 2, 3$) sind. Ein Flavoureigenzustand ν_α ist damit eine quantenmechanische Überlagerung von Masseneigenzuständen ν_i . Diese Überlagerung wird durch

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}^* |\nu_i\rangle \quad (1.8)$$

und

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

beschrieben. U bezeichnet dabei eine 3×3 Matrix, welche als Pontecorvo-Maki-Nakagawa-Sakata (PMNS) bezeichnet wird und nach [PDG12]

$$U = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

$$\cdot \begin{pmatrix} e^{i\alpha_{21}/2} & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\alpha_{31}/2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

parametrisiert werden kann, mit $s_{ij} = \sin \theta_{ij}$, $c_{ij} = \cos \theta_{ij}$ und dem Mischungswinkel θ_{ij} . Die Werte der PNMS-Matrix definieren die Zusammensetzung eines Flavoureigenzustandes aus der Überlagerung der drei Masseneigenzustände. Handelt es sich beim Neutrino um ein Diraceteilchen¹, so besitzt es nur die CP-verletzende Phase (δ). Handelt es sich um Majoranateilchen², so kommen zusätzlich die beiden Majoranaphasen α_{21} und α_{31} [PDG12] ins Spiel.

Um eine Oszillation von Neutrinos von einem Flavoureigenzustand in einen anderen zu erhalten, benötigt man eine zeitliche Entwicklung der Masseneigenzustände. Dies erfolgt, indem man den Zeitentwicklungsoperator auf den Masseneigenzustand anwendet [Fuk03]:

$$|v_i(t)\rangle = e^{-i\frac{E_i t}{\hbar}} |v_i\rangle \quad (1.11)$$

mit

$$E_i = \sqrt{p^2 \cdot c^2 + m_i^2 \cdot c^4} \approx_{p \gg m_i c} p \cdot c + \frac{m^2 \cdot c^3}{2 \cdot p} \quad (1.12)$$

Aus Gleichung 1.9 und 1.11 erhält man somit eine Beschreibung, wie ein Flavoureigenzustand sich als Funktion der Zeit t umwandelt (oszilliert):

$$|v_i(t)\rangle = \sum_i U_{\alpha i} \cdot e^{-i\frac{E_i t}{\hbar}} |v_i\rangle \quad (1.13)$$

Die Übergangswahrscheinlichkeit P von einem Zustand α in einen Zustand β berechnet sich nach [Fuk03]

$$P_{\alpha \rightarrow \beta} = \sum_i |U_{\alpha i} U_{\beta i}^*|^2 + 2 \cdot \text{Re} \sum_{j>i} U_{\alpha i} U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\beta j}^* e^{-i\frac{(E_i - E_j)t}{\hbar}} \quad (1.14)$$

wobei nach Gleichung 1.11 und 1.12 der Ausdruck $(E_j - E_i) \propto (\Delta m_{i,j})^2$ ist und somit die anfängliche Behauptung unterstützt, dass mindestens eine Neutrinomasse ungleich Null sein muss.

¹ Bei Dirac-artigen Elementarteilchen ist das Teilchen ungleich dem Antiteilchen und trägt eine erhaltene Quantenzahl, z.B. die Leptonenzahl.

² Majoranateilchen sind ihre eigenen Antiteilchen und verletzen die Leptonenzahlerhaltung.

Im Folgenden wird aus Gründen der Übersichtlichkeit nur der vereinfachte Fall von zwei Neutrinogenerationen betrachtet. Somit reduziert sich die 3×3 Matrix auf eine 2×2 Matrix mit nur einem Mischungswinkel θ :

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_\mu \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.15)$$

Die Wahrscheinlichkeit, ein ν_e im Abstand L als ν_μ zu finden, ergibt sich dann zu

$$P = \sin^2(2\theta) \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 L}{4E}\right) \quad (1.16)$$

mit

$$\Delta m^2 = m_2^2 - m_1^2 \quad (1.17)$$

Es sind verschiedene Szenarien [Pas05] für die Massenskala von Neutrinos denkbar [PDG12]. Es sei bereits an dieser Stelle erwähnt, dass Neutrinooszillationen aufgrund ihres Interferenzcharakters nur Massenunterschiede Δm^2 messen können, nicht aber die fundamentale Massenskala von Neutrinos. Folgende Massenskalen sind in der Diskussion [PDG12]:

1. Hierarchische Massenskala mit $m_1 \ll m_2 < m_3$ und kleine Neutrinomassen mit $m_3 \approx 0,048 \text{ eV}/c^2$. Die Neutrinomassen sind dabei klein, verglichen mit ihren Abständen.
2. Invertierte hierarchische Massenskala mit $m_3 \ll m_1 < m_2$ und $m_{1,2} \approx 0,048 \text{ eV}/c^2$
3. Quasidegenerierte Massenskala mit $m_1 \approx m_2 \approx m_3$. Alle Neutrino flavours besitzen in diesem Fall in etwa die gleiche Masse ($m_j \geq 0,10 \text{ eV}/c^2$), welche im Vergleich zu den Masseunterschieden groß ist.

Es werden nach Gleichung 1.16 verschiedene Oszillationslängen L benötigt um den gesamten, in Frage kommenden Bereich des Parameters Δm^2 abzutasten. Dazu sind unterschiedliche Experimente notwendig, welche jeweils auf ein bestimmtes Δm^2 sensitiv sind. Die bisher gefundenen Werte für die Massenunterschiede Δm^2 und Mischungswinkel θ sollen im Folgenden jeweils kurz diskutiert werden.

Atmosphärische Neutrinos

Die Erde ist einem ständigen Schauer kosmischer Strahlung ausgesetzt, wie bereits 1912 V. Hess erkannte [Hes12]. Primärteilchen der kosmischen Strahlung mit Energien bis zu 10^{20} eV [Sig12] treffen auf die Moleküle der oberen Erdatmosphäre und produzieren in Teilchenkaskaden unter anderem auch Neutrinos [Gei03]. Es entstehen in diesen Prozessen ν_e und ν_μ sowie die zugehörigen Antiteilchen. Die ersten Anzeichen für Oszillationen atmosphärischer Neutrinos lieferte das SuperKamiokande-Experiment [Sup98]. Neuere Daten von Super-Kamiokande bei Energien im Bereich von $0,1 - 10000 \text{ GeV}$ liefern [Sup05]

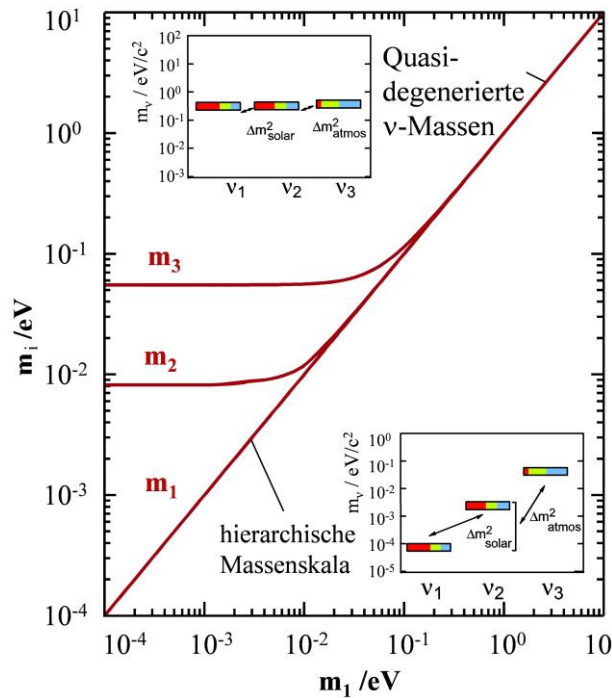


Abbildung 1.1: Neutrino-Massenskala.

Aufgetragen sind die Neutrino-masseneigenzustände m_i als Funktion von m_1 , dem leichtesten Massenzustand. Die Aufspaltung der Massen basiert auf Neutrinooszillationsmessungen für $(\Delta m_{ij})^2$. Bei kleinen Werten von m_1 erhält man eine hierarchische Ordnung der Neutrino-massen, wohingegen man bei großen Werten für m_1 das quasidegenerierte Szenario erhält. Die Farben der Balken (rot, grün, blau) im Inlet repräsentieren die Mischung der Flavoureigenzustände (e , μ , τ). Nach [KAT04].

$$\sin^2(2\theta_{23}) > 0,92 \text{ (90 \% C. L.)} \quad (1.18)$$

$$1,5 \cdot 10^{-3} < \Delta m_{23}^2 < 3,4 \cdot 10^{-3} \frac{\text{eV}^2}{c^4} \quad (1.19)$$

Neutrinos aus Beschleunigern

Eine weitere wichtige irdische Neutrinoquelle sind hochenergetische Protonenbeschleuniger. In diesem Fall ist die Energie des Primärstrahls einstellbar und damit die Energie der entstehenden Zerfallsprodukte. Dies erlaubt Präzisionsmessungen mit den dabei entstehenden Neutrinos [Gei03]. Experimente dieser Art sind auch sensitiv auf die Parameter θ_{23} und $(\Delta m_{23})^2$, d.h. die sogenannte „atmosphärische“ ν -Massenmischungsskala. Das erste *Long-Baseline-Experiment*, welches Neutrinos von einem Protonenbeschleuniger untersuchte, war K2K (**KEK to Kamioka**). Der Strahl wurde am japanischen KEK-Beschleuniger produziert und ca. 250 km bis zum Super-Kamiokande-Detektor geschickt [K2K06]. Weitere wichtige Experimente in diesem Zusammenhang sind:

- **OPERA (*Oscillation Project with Emulsion tRacking Apparatus*)**
OPERA nutzte einen am CERN-SPS (Super-Proton-Synchrotron) erzeugten ν_μ -Strahl, welcher ca. 730 km zum Gran Sasso Untergrundlabor geschickt wurde. Dort befand sich der Detektor, welche wie der Detektor des DONUT-

Experiments (siehe oben) Photoplatten zum Nachweis einer Teilchenspur benutzte. Ein *kink* in der Teilchenspur diente auch bei OPERA als Signatur von ν_τ (bisher wurden drei ν_τ aus $\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$ Oszillationen gefunden) [OPE09].

- T2K (*Tokai to Kamioka*)
Ähnlich wie beim K2K-Experiment wird hier ein Strahl vom J-PARC Beschleuniger in Tokai/Japan zum Super-Kamiokande-Detektor gesendet. Die Entfernung zwischen Quelle und Beschleuniger beträgt 295 km [T2K11].
- MINOS (*Main Injector Neutrino Oscillation Search*)
MINOS erhält vom 735 km entfernten Fermilab-Beschleuniger einen hochenergetischen ν_μ Neutrinostrahl im GeV-Bereich. Der Detektor befindet sich im Untergrundlabor in der Soudan-Mine und besteht aus einem massiven Eisen-Szintillator-Kalorimeter, welches ideal für die ν_μ -*Disappearance* geeignet ist [MIN11].

Es ergeben sich aus den Daten des MINOS-Experiments [MIN12] für die ν_μ -*Disappearance* folgende Werte für die Mischung der zweiten und dritten Generation:

$$\sin^2 2\theta_{23} > 0,9 \text{ (90 \% C. L.)} \quad (1.20)$$

$$\Delta m_{23}^2 = (2,62_{-0,28}^{+0,31} \pm 0,09) \cdot 10^{-3} \frac{\text{eV}^2}{\text{c}^4} \quad (1.21)$$

Die Werte deuten in Übereinstimmung mit atmosphärischen Neutrinos auf eine sehr starke, möglicherweise maximale Mischung hin.

Solare Neutrinos

Solare Neutrinoexperimente besitzen im Prinzip die längste Baseline (mittlerer Abstand Quelle – Detektor ca. 149,6 Millionen km = 1 AE) aller beschriebenen Neutrinooszillationsexperimente. Sie sind sensitiv auf den Mischungswinkel θ_{12} sowie auf das Massendifferenzquadrat $(\Delta m_{12})^2$, auch $(\Delta m_{\text{sol}})^2$ genannt.

Das erste Experiment zum Nachweis (Homestake) von solaren Neutrinos wurde bereits am Anfang dieses Kapitels beschrieben. Weitere Experimente, welche solare Neutrinos durch eine radiochemische Reaktion nachgewiesen haben, waren u.a. Gallex [GAL99] und SAGE [SAG02].

Der erste Echtzeitdetektor war Kamiokande [KAM96], gefolgt von dem bereits beschriebenen Super-Kamiokande-Detektor. Hier ist neben dem Nachweis von Neutrinos in Echtzeit auch eine Richtungsrekonstruktion der eintreffenden Neutrinos möglich.

Neben diesen beiden Detektoren war auch das eingangs erwähnte Sudbury Neutrino Observatory (SNO) [SNO01] in der Lage, solare Neutrinos über elastische Neutrino-Elektron-Streuung nachzuweisen.

$$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + (e^-)^* \quad (1.22)$$

mit x : e, μ, τ
 $(e^-)^*$: durch Stoß mit ν angeregtes Elektron. Es entsteht durch die Bewegung des e^- im Targetmaterial Cherenkovlicht³, welches über PMTs nachgewiesen werden kann.

Aus einer globalen Analyse von Daten der SNO-Kollaboration [SNO08] erhält man

$$\theta_{12} > 34,4^\circ \text{ }^{+1,3^\circ}_{-1,2^\circ} \text{ (90 \% C. L.)} \quad (1.23)$$

$$\Delta m_{12}^2 = 7,59^{+0,19}_{-0,21} \cdot 10^{-5} \frac{\text{eV}^2}{c^4} \text{ (90 \% C. L.)} \quad (1.24)$$

Reaktorneutrinos

Bei Spaltreaktionen in Kernkraftwerken werden $\approx 6\%$ der Energie isotrop in Form von Neutrinos emittiert. Spaltreaktoren stellen damit die irdische Neutrinoquelle mit dem höchsten Fluss dar [Zub11]. Bei einem Abstand von Quelle zu Detektor von etwa 1 km sind Experimente an Kernreaktoren auf ein Δm^2 von $\approx 10^{-2} - 10^{-3} \text{ eV}^2/c^4$ sensitiv und damit ideal geeignet zur Untersuchung des Mischungswinkels θ_{13} . Aktuell existieren drei Experimente, welche den Mischungswinkel θ_{13} untersuchen. Es sind dies Double Chooz [DOU12], Daya Bay [DAY12] und RENO [REN12]. Aus der kombinierten Analyse der Daten der drei Experimente ergibt sich ein aktueller Wert von [PDG12]

$$\sin^2 \theta_{13} = 0,0251 \pm 0,034 \quad (1.25)$$

Betrachtet man die Ergebnisse eines globalen Fits [PDG12] der von den einzelnen Experimenten zusammengetragenen Informationen, so ergeben sich die in Tabelle 1.2 zusammengefassten Resultate für Mischungswinkel und Differenzen der Massenquadrate.

Neutrinos in der Kosmologie

In der Kosmologie wird davon ausgegangen, dass sich das Universum nach dem sog. *Big-Bang* aus einem heißen und dichten Zustand in den heute beobachtbaren Zustand entwickelt hat [Ber06], [PDG12]. Dementsprechend ergeben sich aus der Urknalltheorie mehrere Hintergrundfelder, unter anderem der Kosmische Mikrowellenhintergrund (CMB), der 1964 entdeckt wurde [Pen65]. Analog zum CMB sagt die Kosmologie einen Neutrinohintergrund voraus, welcher ebenfalls seinen Ursprung in Prozessen kurz nach dem *Big-Bang* hat und der darauf folgenden Entkopplung der Neutrinos von der restlichen Materie [Les12]. Der Theorie zufolge existieren ≈ 339 Neutrinos/cm³ [Les12] im gesamten Universum. Damit ist das Neutrino neben den Photonen des CMB das häufigste Elementarteilchen überhaupt im Universum. Aufgrund dieser Häufigkeit kann

³ Cherenkovlicht entsteht dann, wenn ein geladenes Teilchen sich schneller bewegt, als Licht im Medium. Somit setzt die Entstehung von Cherenkovlicht immer ein Medium mit einer Brechzahl größer als $n = 1$ voraus und kann im Vakuum nicht entstehen ($v_{\text{Teilchen, Vakuum}} < v_{\text{Photon, Vakuum}}$). Der emittierte Lichtkegel erlaubt eine Richtungsrekonstruktion des eingefallenen Teilchens ab einer typischen Schwellenenergie von ≈ 5 MeV.

auch eine kleine Neutrinomasse signifikant zur Gesamtmasse im Universum beitragen (Abbildung 1.3). Da Neutrinos nicht elektromagnetisch sondern ausschließlich schwach wechselwirken, sind sie der einzige bisher bekannte Bestandteil der „Dunklen Materie“. Der Anteil f_ν , den Neutrinos zur gesamten Masse im Universum beitragen, ist nach [Les12] gegeben zu:

$$f_\nu = \frac{\Omega_\nu}{\Omega_m} = \frac{\sum m_\nu}{93,14 \cdot \Omega_m \cdot h^2} \frac{1}{\text{eV}} \cong 0,08 \cdot \frac{\sum m_\nu}{\text{eV}} \quad (1.26)$$

mit Ω_ν : Energiedichte der Neutrinos
 Ω_m : Gesamtenergiedichte der Materie
 h : skaliertes Hubbleparameter ($h = 0,01 \cdot H \cdot \text{km}^{-1}\text{s} \cdot \text{Mpc}^{-1}$)
 m_ν : Neutrinomasse

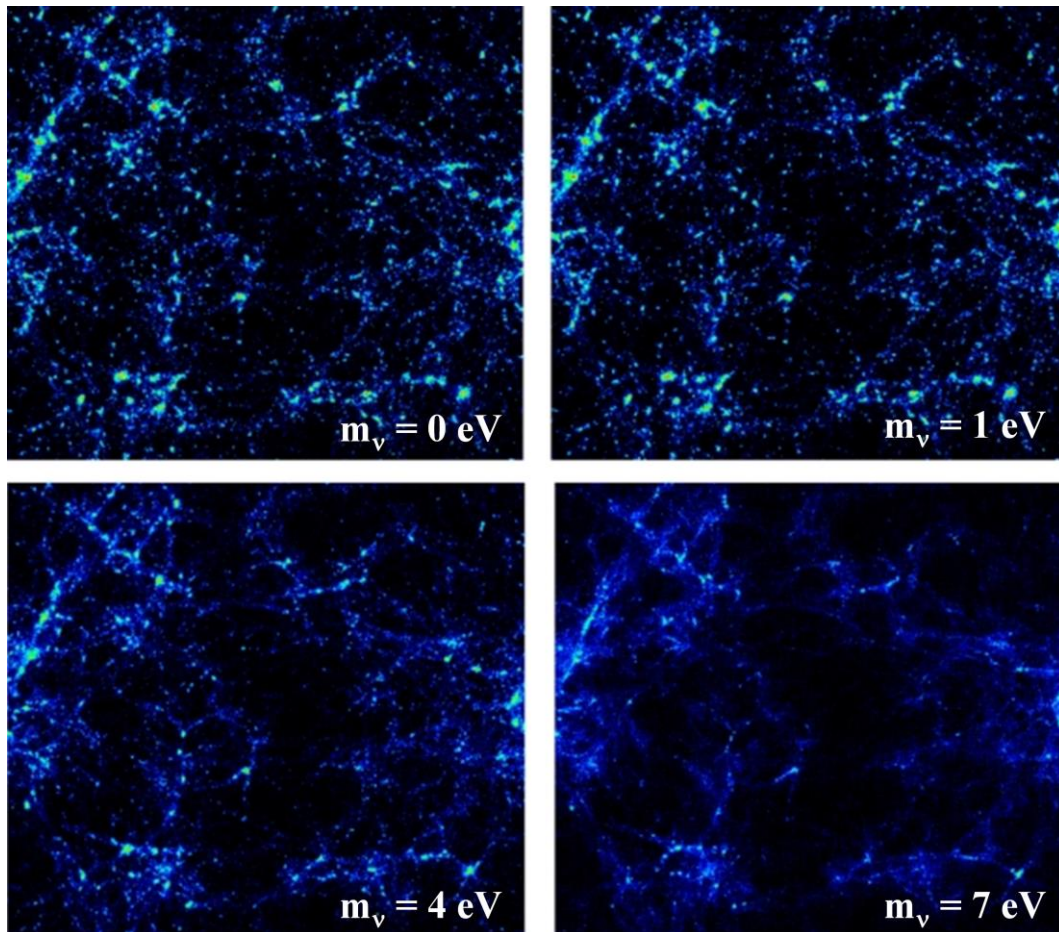


Abbildung 1.2: Einfluss der Neutrinomasse auf die großräumige Strukturbildung im Universum. Die Grafiken sind das Resultat der Simulation einer großen, würfelförmigen Region des Universums. In der Simulation wurde die Neutrinomasse als Parameter verändert (entnommen aus [Dre12]).

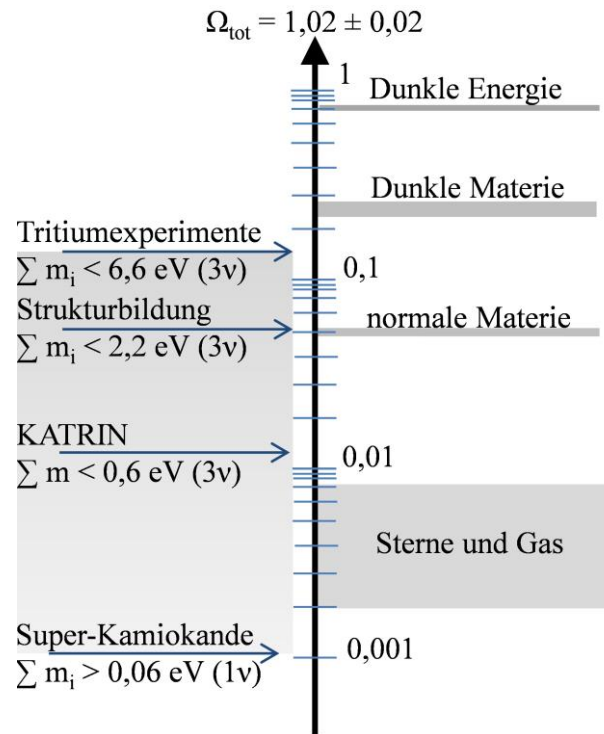


Abbildung 1.3: Anteil der Materiedichte im Kosmos und Neutrinomassen

Rechts der logarithmischen Skala der „ Ω -Leiter“ sind die Anteile der Materie-/Energieverteilung im Kosmos dargestellt. Auf der linken Seite ist der durch aktuelle Forschung mögliche Bereich markiert, in welchem Neutrinos zur Gesamtmateriedichte beitragen können (nach [KAT04]).

Tabelle 1.2: Experimentell bestimmte Werte der Oszillationsparameter.

Die Werte stammen aus einem globalen Fit von [PDG12].

Größe	Best-fit ($\pm 1\sigma$)
Δm_{12}^2	$7,58^{+0,22}_{-0,26} \cdot 10^{-5} \frac{\text{eV}^2}{\text{c}^4}$
$ \Delta m_{13}^2 $	$2,35^{+0,12}_{-0,09} \cdot 10^{-3} \frac{\text{eV}^2}{\text{c}^4}$
$\sin^2 \theta_{12}$	$0,312^{+0,018}_{-0,015}$
$\sin^2 \theta_{13}$	$0,0251^{+0,0034}_{-0,0034}$
$\sin^2 \theta_{23}$	$0,42^{+0,08}_{-0,03}$

Eine genaue Kenntnis der absoluten Massenskala m_ν ist für die Bestimmung der Zusammensetzung der Dunklen Materie von großem Interesse, da eine von Null verschiedene Neutrinomasse die großräumige Strukturbildung im Universum beeinflusst [Spr06]. Dies zeigen die Simulationsergebnisse aus Abbildung 1.2.

Darin erkennt man den Einfluss massiver Neutrinos anhand des „Auswaschens“ großräumiger Strukturen bei großen Neutrinomassen ($m_\nu > 1$ eV).

Ein aktuell stark beachteter Zugang zur Bestimmung der Neutrinomasse beruht auf kosmologischen Daten auf der Basis der präzisen Bestimmung des kosmischen Mikrowellenhintergrunds (CMB). Anhand der Form und Lage der Peaks im sogenannten *Power Spectrum* dieser großräumigen Strukturen kann eine Abschätzung der Summe der Neutrinomassen erfolgen. Nach letzten Berechnungen aus Daten des Planck-Satelliten ergibt sich nach [Ade13] eine Obergrenze für die Neutrinomasse von

$$\sum m_\nu < 0,66 \frac{\text{eV}}{c^2} \text{ (95\% C. L.)} \quad (1.27)$$

Aus Galaxiendurchmusterungen, wie z.B. dem *Sloan Digital Sky Survey* (SDSS-III, [San12]) oder dem *2-Degree Field Galaxy Redshift Survey* [Elg02], bei welchen die großräumige Verteilung von Galaxien und Galaxienclustern beobachtet wird, lässt sich nach [San12] die Summe der Neutrinomassen bestimmen zu:

$$\sum_i m_{\nu_i} < 0,61 \frac{\text{eV}}{c^2} \text{ (95\% C. L.)} \quad (1.28)$$

Eine Ableitung der Neutrinomasse aus dem Vergleich der Beobachtung großräumiger kosmischer Strukturen mit Simulationsdaten ist jedoch immer stark modellabhängig und variiert stark mit den Randbedingungen für die freien Parameter.

Auch der Nachweis von Neutrinos aus Supernovaexplosionen (SN) ermöglicht die Abschätzung einer Massengrenze. Bei einer Kernkollaps-SN vom Typ II werden während und kurz nach der Kollapsphase durch Elektroneneinfang an Protonen (Gleichung 1.29, [Bri07], [Raf12]) sowie durch thermische Prozesse (Gleichung 1.30) bis zu 99 % der Gravitationsenergie in ν_e abgestrahlt. Dies entspricht einem Fluss von $\approx 10^{58}$ Neutrinos mit einigen MeV kinetischer Energie/Neutrino innerhalb weniger Sekunden. Aufgrund der hohen Anzahl und Energie im MeV-Bereich können diese dann auch noch in einigen 10000 Lichtjahren Entfernung auf der Erde nachgewiesen werden, wie es bei der SN 1987A in einigen Experimenten gelang (siehe oben).



Da jedoch die detaillierte zeitliche Modellierung des komplexen Prozesses der Emission von Neutrinos in den ersten Sekunden nach dem Kollaps nicht völlig verstanden ist, müssen viele modellabhängige Annahmen getroffen werden. Man kann trotzdem aus

den aufgezeichneten Daten der SN 1987A eine Obergrenze der Masse des Elektron-Antineutrinos ν_e von

$$m_{\nu_e} < 5,7 \frac{\text{eV}}{c^2} \quad (1.31)$$

ableiten [Lor02].

Im Falle einer nächsten galaktischen Supernova können neue Neutrinooteleskope wie ICECUBE [Ahr04] oder ANTARES [Age11] dieses Limit in Zukunft verbessern. Einen Überblick über aktuelle Entwicklungen und Projekte auf dem Gebiet kann in [Han10] gefunden werden.

Massebehaftete Neutrinos

Das Standardmodell der Teilchenphysik (SM) postuliert eine verschwindende Neutrinomasse für alle drei Neutrino-Flavours. Andererseits geht aus Neutrinooszillationsexperimenten hervor, dass mindestens eine Masse von Null verschieden sein muss. Um diese Diskrepanz zwischen SM und experimenteller Beobachtung zu erklären existieren unterschiedliche Ansätze, welche im Folgenden kurz diskutiert werden sollen.

Um das Prinzip der Eichinvarianz zu gewährleisten, sind im SM zuerst alle Elementarteilchen masselos. Durch den Mechanismus der „spontanen Symmetriebrechung“ erhalten die Elementarteilchen durch den in [Hig64], [Kib67] beschriebenen Higgsmechanismus ihre Masse. Die Größe der Fermionenmasse ist durch die Kopplung an den Vakuumerwartungswert v des skalaren Higgsfeldes festgelegt:

$$\phi_0 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ v \end{pmatrix} \quad (1.32)$$

Φ_0 koppelt dabei sowohl an das linkshändige Fermiondoublet (ν_{eL}, e_L) als auch an das rechtshändige Singlet (e_R) [Zub11]. Da im SM jedoch keine rechtshändigen Neutrinosinglets (ν_R) existieren, können Neutrinos nicht an den Vakuumerwartungswert v des Higgsfeldes koppeln und besitzen daher im Rahmen des SM keine Masse.

Um massive Neutrinos im Rahmen eines erweiterten SM trotzdem zuzulassen, sind verschiedene Ansätze möglich.

- Die einfachste Möglichkeit besteht darin, rechtshändige Neutrinos (ν_R) zum SM hinzuzufügen, was eine Higgskopplung ermöglichen würde. Die Kopplungskonstante wäre jedoch um mehr als einen Faktor 10^6 kleiner als bei geladenen Fermionen, was diesen Mechanismus seitens der Theorie eher unwahrscheinlich erscheinen lässt [Moh07].
- Eine weitere Möglichkeit basiert auf dem See-Saw Typ I Mechanismus [Moh07]. Dazu werden schwere Majorana-Neutrinos (N_R) und leichte Dirac-Neutrinos (ν_L) eingeführt. Nach [Zub11] kann für jeden Neutrino-Eigenzustand eine Dirac-Majorana-Massenmatrix eingeführt werden:

$$\mathcal{L}_{DM} = \frac{1}{2}(\bar{\nu}_L, \bar{N}_L) \begin{pmatrix} 0 & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_R \\ N_R \end{pmatrix} + h.c. \quad (1.33)$$

Es ergibt sich aus der Matrix $m_L = 0$ für die Masse von ν_L . N_R besitzt jedoch einen großen Masseterm ($m_R \gg m_D$). Der Wert für m_D ist dabei im Bereich der geladenen Fermionen (MeV- oder GeV-Skala) [Zub11]. Aus Gleichung 1.31 lassen sich für die Massen des leichten m_ν und des schweren Neutrinos m_N die Beziehungen

$$m_\nu \approx \frac{m_D^2}{m_R} \quad (1.34)$$

und

$$m_N \approx m_R \quad (1.35)$$

ableiten.

In einem alternativen Szenario, See-Saw Typ II genannt [Laz81], wird durch eine Modifikation der Massenmatrix bewirkt, dass $m_L > 0$ ist und dadurch eine Kopplung an den Vakuumerwartungswert v des Higgsfeldes stattfindet. In diesem Fall erhält man eine quasidegenerierte Massenskala.

- Andere Ansätze wie Theorien mit Extradimensionen [Ark01] oder Supersymmetrie [Nas06] sind weitere Möglichkeiten, welche jedoch aufgrund der Komplexität und Anzahl der darin enthaltenen freien Parameter nicht komplett untersucht und verstanden sind.

Neutrinos und die Bestimmung der absoluten Massenskala

Aus Oszillationsexperimenten erhält man, wie bereits oben kurz erwähnt, nur die Aufspaltung der Neutrinomasseneigenzustände, jedoch fehlt ein Absolutwert. Zur Bestimmung der absoluten Massenskala stehen verschiedene Möglichkeiten zur Verfügung, welche im Folgenden diskutiert werden sollen.

Indirekte Methoden zur Bestimmung der absoluten Neutrinomasse

Indirekte Methoden beinhalten immer eine Modellvorstellung der dahinterliegenden Physik, z.B. der Art und Weise wie ein massives Neutrino bestimmte beobachtbare Effekte beeinflusst. Durch Beobachtung und Messung kann dann auf die gesuchte Größe in Abhängigkeit des Modells zurück geschlossen werden. Somit sind Ergebnisse, welche auf indirekten Methoden beruhen, immer modellabhängig, obwohl sie prinzipiell einen sehr sensitiven Zugang zu einer gesuchten Größe erlauben. Im Falle der Bestimmung der Neutrinomasse sind Beispiele für indirekte Methoden die bereits besprochenen kosmologischen Beobachtungen sowie der im Folgenden besprochene neutrinolose Doppel- β -Zerfall ($\beta\beta 0\nu$).

Beim Doppel- β -Zerfall ($\beta\beta_{2\nu}$) handelt es sich um einen schwachen Prozess zweiter Ordnung, der dann beobachtbar wird, wenn der normale β -Zerfall ($\beta\nu$) energetisch verboten oder stark unterdrückt ist [Kot85] (Abbildung 1.4, links). Dabei handelt es sich um einen gleichzeitigen β -Zerfall von zwei Neutronen. Diese Art des Zerfalls ist konsistent mit dem Standardmodell der Elementarteilchenphysik.

Der neutrinolose Doppel- β -Zerfall ($\beta\beta_{0\nu}$) hingegen tritt nur auf, wenn das Neutrino sein eigenes Antiteilchen, also ein Majoranateilchen ist. Dann kann ein an einem Vertex ausgesandtes Neutrino am anderen Vertex als Anti-Neutrino absorbiert werden und man beobachtet nur die beiden monoenergetischen Elektronen (Abbildung 1.4, rechts). Die Beobachtung dieses Prozesses würde außerdem die Erhaltung der Leptonenzahl verletzen und daher auf neue Physik jenseits des Standardmodells hinweisen. Durch Messung der Halbwertszeit des $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls kann auf die Neutrinomasse geschlossen werden [Eli02]. Die größte Unsicherheit kommt dabei von der Kenntnis der zur Berechnung der Masse notwendigen Übergangsmatrixelemente. Diese sind nur auf ca. einen Faktor 3-9 genau bekannt was zu Unsicherheiten in der Bestimmung der Halbwertszeit führt [Eli02].

Von experimenteller Seite wird mit einer Vielzahl von Detektortechnologien nach dem $0\nu\beta\beta$ gesucht.

Ein Teil der Kollaboration des Heidelberg-Moskau-Experiments, welches den ($\beta\beta_{0\nu}$) Zerfall von ^{76}Ge untersucht hat, veröffentlichte ein bisher unbestätigtes Resultat, wonach ein statistisch signifikanter Nachweis einer effektiven Majorana-Neutrinomasse mit [Kla09]

$$m_{ee} = (0,32 \pm 0,03) \text{ eV}/c^2 \quad (1.36)$$

gelungen sei.

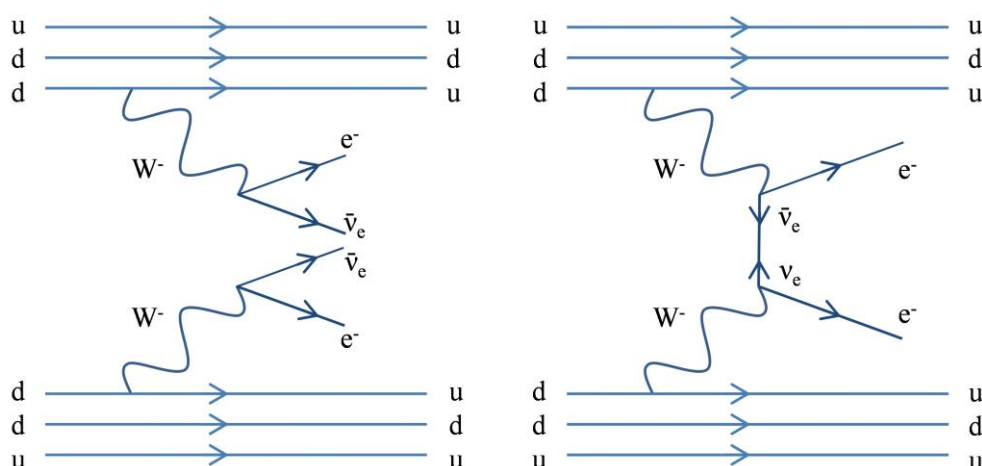


Abbildung 1.4: Doppel- β -Zerfall.

Links dargestellt ist der vom SM erlaubte Doppel- β -Zerfall, bei welchem zwei Neutronen gleichzeitig zerfallen und je ein Elektron und ein Elektron-Antineutrino aussenden. Rechts ist der vom SM nicht beschriebene neutrinolose Doppel- β -Zerfall dargestellt, welcher voraussetzt, dass das Neutrino ein Majoranateilchen ist, d.h. sein eigenes Antiteilchen. Man beobachtet in diesem Fall zwei monoenergetische e^- .

Dieses Ergebnis konnte von anderen Experimenten bisher nicht bestätigt werden [Exo12a]. Andere existierende und zukünftige Experimente auf diesem Gebiet sind unter anderem MAJORANA [Phi12], CUORE [Ard05], GERDA [GER04] oder KamLAND-Zen [Gan12].

Direkte Methoden zur Bestimmung der absoluten Neutrinomasse

Im Gegensatz zu den oben beschriebenen indirekten Methoden sind die direkten Methoden weitestgehend modellunabhängig, d.h. sie beruhen nicht auf unabhängigen und bisher ungeklärten Annahmen. Dies eliminiert viele Unsicherheiten in der Berechnung von m_ν und lässt damit eine exaktere und verlässlichere Bestimmung der Neutrinomasse zu.

Eine bereits oben diskutierte Methode stellt die sog. *Time-of-flight* (ToF) Messung von Neutrinos aus Supernovaexplosionen dar. Diese Art der Bestimmung der Neutrinomasse konnte bisher nur ein einziges Mal bei den nachgewiesenen Neutrinos aus der Supernova SN1987A angewendet werden ([Kam87], [IMB87], [Ale87]).

Die im Folgenden diskutierten Experimente leiten die Neutrinomasse aus der Messung der Form eines β -Spektrums ab, wie es schematisch in Abbildung 1.5 dargestellt ist. Dabei gibt es zwei unterschiedliche experimentelle Ansätze.

Die eine Möglichkeit verfolgen Experimente auf der Basis von Kryobolometern. In diesem Fall sind Quelle und Detektor identisch und die Experimente nutzen einen β -Emitter mit niedriger Endpunktsenergie (typischerweise $E_{\max} < 3$ keV). Ein Kristall des β -Emitters dient daher gleichzeitig als Detektor. In diesem wird die gesamte durch den beim β -Zerfall frei werdende Energie deponiert, abgesehen von der vom Neutrino davon getragenen Energie. Die Detektoren werden bei kryogenen Temperaturen (im mK-Bereich) betrieben und besitzen üblicherweise eine Masse von wenigen 100 μg bis einigen mg. Die geringen Detektormassen sind der Forderung nach einer sehr kleinen spezifischen Wärmekapazität geschuldet, daher müssen viele hundert bis tausend Einzeldetektoren parallel betrieben werden, um eine ausreichende Statistik der Messung zu erhalten.

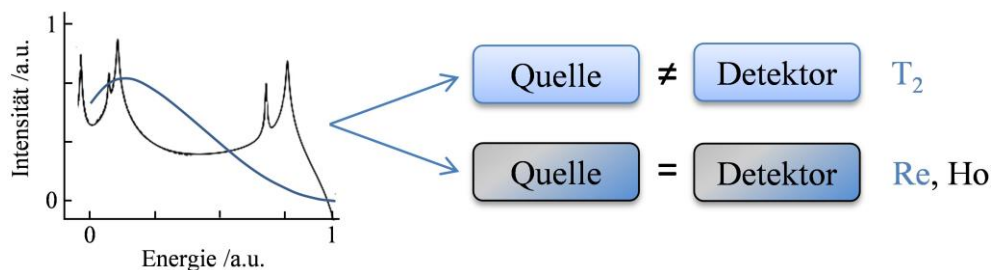


Abbildung 1.5: Schema der spektroskopischen Methoden zur Neutrinomassenbestimmung. Dargestellt ist das Schema beim β -Zerfall (blaue Linie) bzw. beim Elektroneneinfang an ^{163}Ho (schwarze Linie).

Durch den β -Zerfall entstehen Phononen im Detektor, welche mit hochempfindlichen Thermistoren registriert werden (TES, *transition edge sensor*⁴). Diese Technik ist ähnlich zu der bei Experimenten zum Doppel- β -Zerfall [Ard05] oder zur kalten dunklen Materie [EDE12].

Die zweite Möglichkeit besteht darin, dass β -Quelle und Detektor räumlich getrennt voneinander sind. Dadurch kann man durch Filterung der β -Elektronen nur den interessierenden Bereich des Spektrums untersuchen, wogegen bei der Methode mit Kryobolometern immer das gesamte Spektrum aufgenommen werden muss.

Beim ersten Typ kommen derzeit zwei verschiedene β -Emitter bzw. Detektorkristalle zum Einsatz. Eine Variante basiert auf Rhenium (^{187}Re), welches eine Halbwertszeit von $T_{1/2} = 4,3 \cdot 10^{10}$ Jahren und mit $E_{\max} = 2,67$ keV die niedrigste bekannte β -Endpunktsenergie besitzt [Fir99]. Ein Nachteil von ^{187}Re ist die sehr lange Halbwertszeit, wodurch die spezifische Aktivität relativ niedrig ist. Gegenüber gasförmigen β -Emittieren wie z.B. Tritium hat ^{187}Re jedoch den Vorteil, dass durch die niedrigere Endpunktsenergie die relative Zählrate nahe am Endpunkt (welcher für die Neutrinomassenbestimmung von Interesse ist) um ca. einen Faktor 350 erhöht ist [Wei13].

Eine weitere Möglichkeit basiert auf dem Zerfall von Holmium (^{163}Ho) über Elektreneinfang (EC) [Ruj82]. Die maximal frei werdende Energie von $E_{\max} = 2,56$ keV ist ähnlich niedrig wie die von ^{187}Re . Jedoch besitzt ^{163}Ho eine signifikant kürzere Halbwertszeit von 4570 Jahren [Gal12], was die Zählrate gegenüber ^{187}Re basierten Experimenten bei gleicher Detektormasse erhöhen sollte.

Derzeitige Experimente, welche die Neutrinomasse mit Hilfe von kryogenen Bolometern bestimmen möchten, sind:

- Das MANU-Experiment [Per06] nutzt 1 mg schwere Detektoren aus metallischem ^{187}Re . Das Experiment liefert eine Neutrinomassenobergrenze von [Gat01]

$$m_{\nu_e} < 26 \frac{\text{eV}}{c^2} \quad (95\% \text{ C. L.}) \quad (1.37)$$

- Das MIBETA-Experiment nutzt ebenfalls den β -Zerfall von ^{187}Re . Im Gegensatz zum MANU-Experiment kommt hier kein metallisches ^{187}Re zum Einsatz, sondern Kalorimeter mit einer Masse von ca. 0,3 mg aus AgReO_4 [Arn03]. Es wurde ein Neutrinomassenlimit von

$$m_{\nu_e} < 15 \frac{\text{eV}}{c^2} \quad (90\% \text{ C. L.}) \quad (1.38)$$

berichtet [Sis04].

⁴ Bei einem TES handelt es sich um einen Supraleiter, welcher nahe seiner Sprungtemperatur betrieben wird, sodass bei einer Energiedeposition eine deutliche Änderung des Widerstandes entsteht, welche registriert wird.

- Das MARE-Experiment nutzt in einer ersten Phase 72 Bolometer, welche später auf bis zu 50000 Einzelmodule erweitert werden sollen [Nuc08], [MAR12].

Das Isotop ^{163}Ho wird derzeit noch in keinem Experiment in größerem Umfang verwendet, jedoch untersuchen sowohl die MARE-Kollaboration [Ran12] als auch die ECHO-Kollaboration [Bur08] die Möglichkeit der Verwendung von ^{163}Ho , das unter Elektroneneinfang (EC) zerfällt.

Die Methode mit der derzeit höchsten Sensitivität und den geringsten Unsicherheiten zur direkten Bestimmung der Neutrinomasse und welche die derzeit besten Obergrenzen liefert, ist die spektroskopische Untersuchung des Tritium- β -Zerfalls. Tritium ist ein β -Emitter mit einer relativ kurzen Halbwertszeit ($T_{1/2} \approx 12,3$ Jahre) und einer niedrigen Endpunktsenergie von $E_{\text{max}} \approx 18,6$ keV.

Die beiden Experimente mit der bislang besten Sensitivität wurden von den Kollaborationen aus Mainz und Troitsk durchgeführt. Beide nutzten ein Spektrometer des MAC-E Typs (Funktionsweise weiter unten im Text, Abbildung 1.8). Die Kollaboration aus Mainz nutzte als Quelle eine sogenannte *Quench Condensed Tritium Source* (QCTS), während in Troitsk eine *Windowless Gaseous Tritium Source* (WGTS) zum Einsatz kam, wie sie auch KATRIN verwenden wird. Beide Experimente haben ihr Sensitivitätslimit bereits erreicht. In einer kombinierten Analyse der PDG wurde die Obergrenze der Neutrinomasse ermittelt zu [PDG12]

$$m_{\nu_e} < 2 \frac{\text{eV}}{c^2} \quad (1.39)$$

Ein darauf aufbauendes Experiment der nächsten Generation, welches spektroskopisch den Tritium- β -Endpunkt mit bisher unerreichter Präzision untersuchen wird, befindet sich derzeit im Aufbau. Dabei handelt es sich um das Karlsruhe Tritium Neutrino Experiment (KATRIN). Gegenüber den Vorgängerexperimenten werden die systematischen Unsicherheiten deutlich reduziert und die Statistik wesentlich verbessert, um so die Sensitivität für die Neutrinomasse um einen Faktor 10 auf einen Wert von $200 \text{ meV}/c^2$ zu verbessern. Das Experiment wird im Folgenden sowie in Kapitel 2 näher beschrieben, da es das direkte wissenschaftliche Umfeld dieser Arbeit darstellt.

Einen Überblick über weitere, aktuelle Neutrinomassenexperimente, welche die Massenbestimmung anhand von direkten Methoden durchführen, findet sich in [Dre13].

Das Karlsruhe Tritium Neutrino Experiment KATRIN

Das Ziel des Karlsruhe Tritium Neutrino Experiments (KATRIN) ist die Bestimmung der „Elektron-Antineutrinomasse“ mit einer Sensitivität von $0,2 \text{ eV}/c^2$ (90% CL.). KATRIN untersucht dazu spektroskopisch das Elektronenspektrum des Tritium- β -Zerfalls nahe am kinematischen Endpunkt von $18,6$ keV. Mit einer bisher unerreichten Präzision in der β -Spektroskopie wird eine modellunabhängige Bestimmung der Neutrinomasse im wichtigen sub-eV Bereich möglich. KATRIN benutzt hierzu eine fensterlose, gasförmige Tritiumquelle hoher Aktivität ($1,1 \cdot 10^{11}$ Bq) und ein hochauflösendes

elektro-statisches Filter mit einer Energieauflösung von $\Delta E = 0,93$ eV bei $E = 18,6$ keV [Bab12]. Der tritiumführende Teil des KATRIN-Experiments wird am Tritiumlabor Karlsruhe (TLK) aufgebaut. Im Folgenden soll ein Überblick über das in Abbildung 1.6 gezeigte KATRIN Experiment und seine Hauptkomponenten gegeben werden.

Die tritiumführende Quell- und Transportsektion (*source and transport section*, STS) setzt sich zusammen aus den folgenden funktionalen Einheiten:

- dem rückwärtigen System CMS (*control and monitoring system*).
- der gasförmigen, fensterlosen Tritiumquelle WGTS (*windowless gaseous tritium source*).
- der differentiellen Pumpstrecke DPS (*differential pumping section*).
- der kryogenen Pumpstrecke CPS (*cryogenic pumping section*).
- den dazugehörigen Tritiumkreisläufen Loops (*inner und outer Loop*).

Das grundlegende Prinzip der Tritiumquelle WGTS (*windowless gaseous tritium source*) ist in Abbildung 1.7 dargestellt. In der Mitte des Quellrohres wird Tritiumgas mit einer Rate von 40 g/Tag und einer Reinheit $\epsilon_T \geq 95$ % eingelassen. Da prinzipbedingt (*windowless* = fensterlos, d.h. kein mechanischer Abschluss) kontinuierlich gasförmiges Tritium in die WGTS eingelassen wird, muss dieses auch kontinuierlich und mit gleichbleibender Rate abgepumpt werden. Es bildet sich daher eine Gassäule mit einem räumlich und zeitlich konstanten Dichteprofil aus. Relative Schwankungen im Dichteprofil müssen kleiner 10^{-3} sein [KAT04]. Dies wird erreicht durch das konstante Einspeisen mit einem dedizierten Gasinjektionssystem ([Stu10], [Pri10]) sowie dem konstanten Abpumpen durch insgesamt 12 große Turbomolekularpumpen. Durch diese erste Pumpstufe wird eine Reduktion des Tritiumflusses in Richtung Spektrometer um einen Faktor 10^2 erreicht [KAT04]. Das abgepumpte Gas wird dann zur Reinigung in das Gasinjektionssystem zurückgeleitet und reinjiziert (geschlossener Tritiumkreislauf, *Inner Loop*).

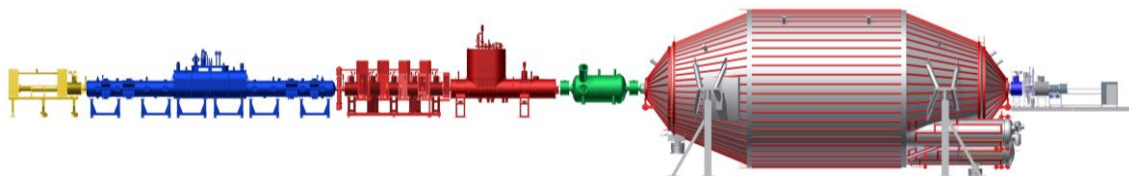


Abbildung 1.6: Übersicht über das KATRIN-Experiment.

Dargestellt ist das KATRIN-Experiment mit seinen beiden Hauptteilen, der Quell-(STS) und der Spektrometersektion (SDS). Der STS-Bereich setzt sich von links nach rechts aus dem rückwärtigen System (CMS, gelb), der gasförmigen, fensterlosen Tritiumquelle (WGTS, blau) und dem Transportsystem aus differentieller und kryogener Pumpstrecke (DPS und CPS, rot) zusammen. Der SDS-Bereich besteht aus dem Vorspektrometer (grün) sowie dem Hauptspektrometer (grau) und dem Fokalebendendetektor (grau, ganz rechts).

Transportstrecke und Rear Section

An den WGTS Kryostaten schließen sich die differentielle (DPS2-F) und die kryogene (CPS) Pumpstrecke an. Diese werden zusammengefasst als Transportstrecke bezeichnet und sind funktional integriert in den *Outer Loop*. Dort abgepumptes Gas wird nicht wieder in das Gasinjektionssystem zurück geleitet, sondern zur Reinigung an die Infrastruktur des Tritiumlabors abgegeben [Dör05]. Das Ziel von DPS2-F und CPS ist es, den Tritiumfluss aus der Quelle in das Spektrometersystem um insgesamt zwölf Größenordnungen zu reduzieren. Außerdem muss ein adiabatischer Transport der Zerfallselektronen von der Quelle hin zum Spektrometer gewährleistet werden. Dies wird durch den Einsatz von supraleitenden Magneten mit Feldstärken entlang der Strecke von $B = 0,5 \text{ T} - 5,6 \text{ T}$ erreicht.

Den Abschluss des WGTS-Kryostaten auf der Seite der DPS1-R stellt das rückwärtige System (CMS) dar. Neben einer Elektronenkanone zur Bestimmung von wesentlichen Parametern der KARTIN-Quelle [Bab12] beinhaltet das CMS auch die sog. *Rear Wall*, welche als Potentialreferenz die Startenergie der β -Zerfallselektronen aus der WGTS relativ zur Analysierebene des Hauptspektrometers festlegt. Gleichzeitig treffen über 99,9% aller Elektronen aus dem Tritium β -Zerfall auf die *Rear Wall* und lösen dort Röntgenbremsstrahlung aus. Deren Intensität ist ein direktes Maß für die aktuelle Tritiummenge in der WGTS.

An der DPS2-F befinden sich vier differentiell pumpende TMPs großer Saugleistung zur Reduktion des Tritiumflusses um einen weiteren Faktor 10^5 . Diese sind an ein gewinkeltes Strahlrohr montiert, so dass keine direkte Sichtlinie für Tritium hin zum Spektrometer existiert und der molekulare *beaming*-Effekt vermieden wird. Durch den Einsatz von weiteren TMPs ist es nicht möglich, den in [KAT04] für den erfolgreichen Betrieb geforderten, niedrigen Tritiumpartialdruck von $\leq 10^{-20}$ mbar zu erreichen. Daher erfolgt in einer zweiten Rückhaltestufe die Reduktion des Tritiumflusses um einen weiteren Faktor 10^7 durch eine andere Methode. In dieser kryogenen Pumpstrecke (CPS) [KAT04] wird eine Schicht aus Argon auf dem heliumkalten Strahlrohr der CPS aufgefroren („Argonschnee“).

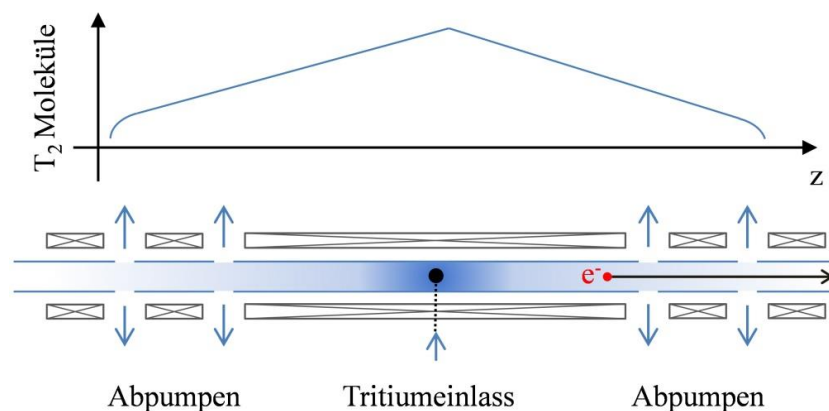


Abbildung 1.7: Schematische Darstellung der Gassäule in der WGTS.

Dargestellt ist schematisch das WGTS-Quellrohr mit supraleitenden Magnetspulen und Pumpports (unten) sowie das sich ausbildende Gasdichteprofil im WGTS-Quellrohr (oben).

Auf dieser Schicht wird anschließend im regulären KATRIN-Betrieb Tritium adsorbiert und Tritium so aus dem Volumen entfernt. Ist die Argonschicht zu ca. 1% (entsprechend ca. $1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$) mit Tritium belegt, muss aus sicherheitstechnischen Gründen (Anhäufung eines zu großen Inventars) die Regenerierung der CPS eingeleitet werden. Da Tritium an der Oberfläche der Argonschicht adsorbiert und nicht direkt am Stahlrohr, ist es durch Aufwärmen der CPS auf $\approx 100 \text{ K}$ möglich, das gesamte adsorbierte Tritium zusammen mit der Argonschicht mittels He-Spülgasstrom zu extrahieren. Dieses Verfahren wurde in einem Testaufbau erfolgreich verifiziert ([Stu07], [Eic08], [Kaz08], [Eic09]).

Spektrometer- und Detektorsektion

Die Energieanalyse sowie der Nachweis der Zerfallselektronen aus dem STS-Bereich erfolgt in der tritiumfreien Spektrometer- und Detektorsektion (SDS). Diese setzt sich zusammen aus den Komponenten

- Vorspektrometer (*pre-spectrometer*),
- Hauptspektrometer (*main spectrometer*) und
- Detektorsystem (*Focal Plane Detector*).

Das elektrostatische Vorspektrometer arbeitet nach dem MAC-E Prinzip (*magnetic adiabatic collimation combined with an electrostatic filter* [Kru83]) und besitzt einen Durchmesser von ca. 1,7 m. Es wirkt als energetischer Hochpassfilter bei einer Filterenergie von ca. 18,4 keV. In diesem Vorfiltermodus werden Elektronen mit einer Energie $\leq 18,4 \text{ keV}$ elektrostatisch reflektiert so dass sie nicht zu einer Erhöhung der Untergrundzählrate im Hauptspektrometer durch Ionisationsprozesse beim Filterprozess beitragen.

Das Hauptspektrometer stellt mit einem Durchmesser von 10 m prinzipiell ein wesentlich vergrößertes Vorspektrometer dar, da es ebenfalls nach dem MAC-E Prinzip arbeitet. Im Hauptspektrometer wird durch eine sehr präzise einstellbare Hochspannung ([Thu11], [Thu09]) ein Retardierungspotential $U_0 \approx 18,6 \text{ keV}$ erzeugt, mit dessen Hilfe Elektronen aus dem β -Zerfall hinsichtlich ihrer Longitudinalenergie vermessen werden. Elektronen, welche die Analysierebene (dies entspricht der Ebene senkrecht zur Strahlrichtung mit dem höchsten elektrischen Feld, Abbildung 1.8) passiert haben, werden im symmetrischen E-Feld des Hauptspektrometers wieder auf ihre ursprüngliche kinetische Energie beschleunigt. Das Prinzip des MAC-E Filters wird in Abbildung 1.8 detailliert erläutert.

Die durch Vor- und Hauptspektrometer energetisch selektierten Elektronen ($\Delta E = 0,93 \text{ eV}$) werden mit Hilfe des Detektorsystems registriert und gezählt. Es handelt sich dabei um eine segmentierte Silizium-PIN-Diode (148 Einzelsegmente gleicher Fläche mit einem Durchmesser von ca. 10 cm, die den gesamten Flusschlauch aus der WGTS abbildet.

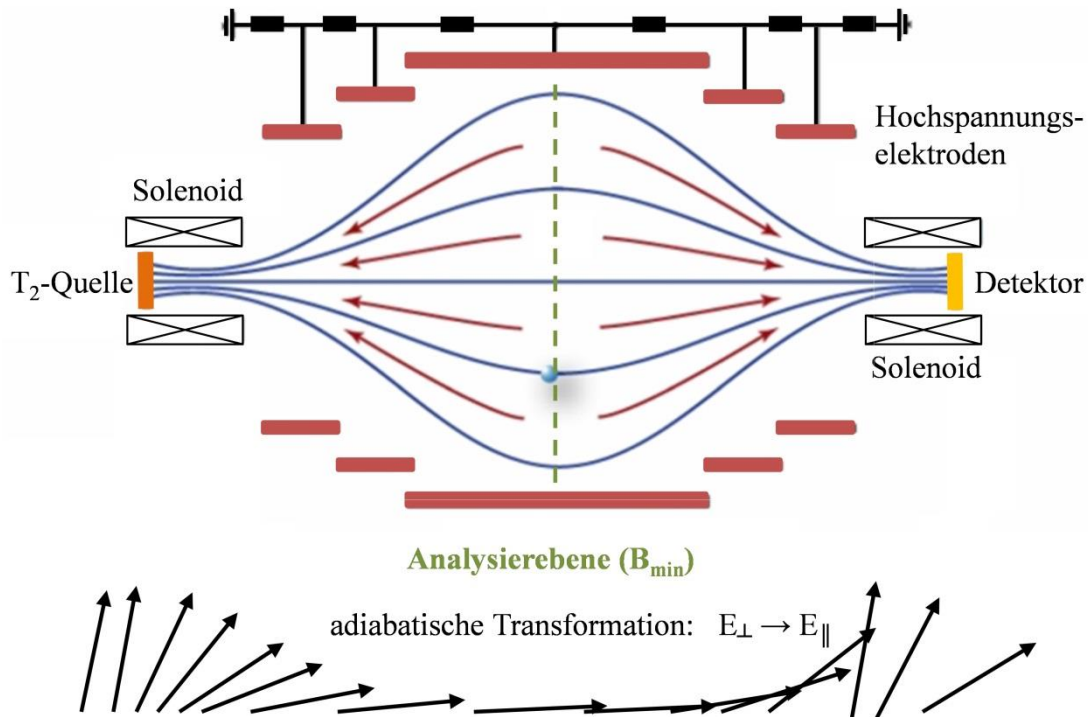


Abbildung 1.8: Prinzip des MAC-E Filters im Hauptspektrometer.

Dargestellt ist der schematische Aufbau eines MAC-E Filters. Dabei erfolgt eine adiabatische Transformation des ursprünglich isotropen Elektronenimpulses parallel zu den magnetischen Feldlinien. Durch Einstellen der Hochspannung kann die Filterschwelle des Hochpassfilters variiert und damit das Elektronenspektrum gescannt werden. Durch das symmetrische Potential im Spektrometer werden Elektronen nach der Transmission durch die Analyseerebene wieder auf ihre ursprüngliche Energie beschleunigt und zum Detektor geführt.

Die vorliegende Arbeit ist thematisch fokussiert auf den Quellbereich von KATRIN und behandelt zwei für KATRIN sehr wichtige Fragestellungen im Hinblick auf die erforderliche sehr hohe Stabilität der Quellaktivität:

1. Neben der permanenten Überwachung der stabilen Einspeisung des Tritiums in die WGTS ist es notwendig, die tatsächliche Quellaktivität mit einer unabhängigen Methode zu überprüfen. Eine sehr sensitive Methode hierzu basiert auf der Messung der durch β -Elektronen erzeugten Röntgenstrahlung an der *Rear Wall* (BIXS, **beta induced X-ray spectroscopy**). Die Intensität der Röntgenstrahlung stellt dabei ein direktes Maß für die in der WGTS stattfindenden Tritiumzerfälle dar. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sollte dazu ein dediziertes Experiment am TLK entwickelt, aufgebaut und betrieben werden (TriReX⁵). Dieses hat zum Ziel, grundlegende Fragestellungen zu dieser Messmethode unter KATRIN-Bedingungen zu untersuchen. Neben der prinzipiellen Ausrichtung im Hinblick auf die Machbarkeit einer Aktivitätsüberwachung einer gasförmigen Tritiumquelle mittels der BIXS-Methode betreffen weitere offene Fragestellungen die nachfolgenden Themengebiete:

⁵ Tritium Rear Wall Experiment

- Ausmaß der Permeation von Tritium durch ein für niederenergetische Röntgenstrahlung ($E_\gamma \leq 20 \text{ keV}$) transparentes Fenster,
 - Größe des „Memoryeffekts“ durch Adsorption/Absorption von Tritium,
 - Reproduzierbarkeit der Ergebnisse und
 - Möglichkeit des Nachweises von Schwankungen der β -Aktivität auf einem 0,1% Niveau in Intervallen von unter 1000 Sekunden [KAT04].
2. Das Sicherstellen der ordnungsgemäßen und zuverlässigen Funktion der verwendeten Turbomolekularpumpen stellt für KATRIN nicht nur aus experimenteller Sicht, sondern auch aus sicherheitstechnischen sowie wirtschaftlichen Gründen⁶ einen entscheidenden Faktor dar. Der Einfluss von TMPs auf die Zusammensetzung eines zirkulierenden Tritiumgasstromes ist von entscheidender Bedeutung für die Abschätzung KATRIN-relevanter Betriebsparameter. Da es bisher noch keinen Dauertest dieses Pumpentyps unter KATRIN-Bedingungen gab, sollte im Rahmen der vorliegenden Arbeit ein entsprechendes Experiment entworfen, aufgebaut und durchgeführt werden. Die Ziele des TriToP⁷ genannten Experiments formulieren sich wie folgt:
- Die durch Tritium als Prozessgas entstehenden Belastungen einer TMP während etwa einem Jahr KATRIN Messzeit sollen durch einen Dauerbetrieb simuliert werden. Dazu wird eine TMP mit dem bei KATRIN erwarteten Tritiumgasfluss von 0,22 mbarl/s (bei 20 °C) über einen Zeitraum von einem Jahr betrieben. Dies entspricht einem Tritiumdurchsatz von über 1 kg/Jahr, weshalb das Experiment nur in einer entsprechenden Umgebung (Tritiumlabor Karlsruhe) durchgeführt werden kann.
 - Regelmäßige Gasanalysen ohne Probennahme und ohne Veränderung der Gaszusammensetzung sind durchzuführen. Weiterhin sind Veränderungen in der Gaszusammensetzung und –menge in Hinblick auf Konsequenzen für KATRIN zu bewerten.
 - Die an den Betrieb anschließende Demontage der TMP soll potentielle Abnutzungen und Schwachstellen der TMP offen legen, Verbesserungsmöglichkeiten aufzeigen und zur Abschätzung des in der TMP deponierten Inventars beitragen.

Die vorliegende Arbeit behandelt im folgenden Kapitel zunächst die wissenschaftlichen Grundlagen der KATRIN Tritiumquelle WGTS. Darauf aufbauend werden die daraus entstehenden Fragen bezüglich der Tritiumkompatibilität des Vakuumsystems des *Inner Loops* sowie der Möglichkeit der in-situ Überwachung der Quellaktivität diskutiert. Danach werden in Kapitel 3 und Kapitel 4 die entsprechenden Testexperimente TriToP sowie TriReX vorgestellt und die Ergebnisse der Messungen präsentiert. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick sowie mehreren Anhängen zu Detailspekten.

⁶ Preis pro Turbomolekularpumpe ca. 50000€

⁷ **Tritium Test of Pumps**

2. Die KATRIN Tritiumquelle WGTS

KATRIN wird als β -Elektronenquelle eine fensterlose, gasförmige Tritiumquelle (WGTS, *windowless, gaseous tritium source*) höchster Intensität und Stabilität verwenden. Der die Tritiumquelle sowie die sich daran anschließenden differentiellen Pumpstrecke umfassende Kryostat ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Im folgenden Kapitel 2.1 soll näher auf die technische Realisierung der Gasquelle eingegangen werden. Kapitel 2.2 und 2.3 erläutern dann den wissenschaftlichen Zusammenhang zwischen der WGTS und den in der weiteren Arbeit vorgestellten Testexperimenten TriReX und TriToP.

2.1. Physik und Konzept der KATRIN Tritiumquelle

Aus physikalischer Sicht handelt es sich bei der WGTS um eine offene Tritiumgassäule von 10 m Länge, 90 mm Durchmesser und einer Säulendichte von $\rho \cdot d = 5 \cdot 10^{17}$ Molekülen/cm² [KAT04]. Diese wohldefinierte Quellregion befindet sich innerhalb eines homogenen Magnetfeldes mit einer Stärke von $B = 3,6$ T. Im Idealfall besitzt diese Gassäule eine Tritiumreinheit von $\epsilon_{\text{Tritium}} = 1$, eine homogene Temperatur von $T \approx 30$ K sowie keinerlei räumlichen oder zeitlichen Schwankungen.

Realisiert wird die Tritiumgassäule durch einen zentralen Tritiumeinlass in das WGTS-Strahlrohr. In der Mitte des 10 m langen Edelstahlrohres befinden sich über 300 Kapillaren, die auf einem schmalen Streifen über den Umfang verteilt sind. Dort wird molekulares Tritiumgas mit einem Druck von $p_{\text{in}} \approx 3 \cdot 10^{-3}$ mbar eingelassen. Das injizierte Gas diffundiert in ≈ 1 s zu beiden Enden der WGTS und den sich dort anschließenden differentiellen Pumpstrecken DPS1-R (Richtung rückwärtiges System, CMS) und DPS1-F (Richtung Hauptspektrometer). Dabei wird das Gas zu über 99 % abgepumpt und zur Reinigung in den *Inner Loop* (Abbildung 2.2) zurück geleitet.

Durch diese Anordnung wird ein Druck von $p_{\text{out}} \approx 5 \cdot 10^{-5}$ mbar am Ausgang der DPS1-R/F erreicht. Um eine zeitlich und räumlich konstante Gassäule zu erhalten, ist es notwendig

- die Temperatur des Strahlrohres,
- den Druck im druck- und temperaturstabilisierten Behälter (Abbildung 2.4) und (bei einem konstanten Leitwert der Verbindungsleitung zur WGTS) damit die Einlassrate und
- den sich einstellenden Auslassdruck vor den TMPs bei DPS1-R/F

konstant zu halten. Die stringenten Anforderungen des KATRIN-Experiments erlauben für jeden dieser Schlüsselparameter eine relative Schwankung von höchstens 0,1 %.

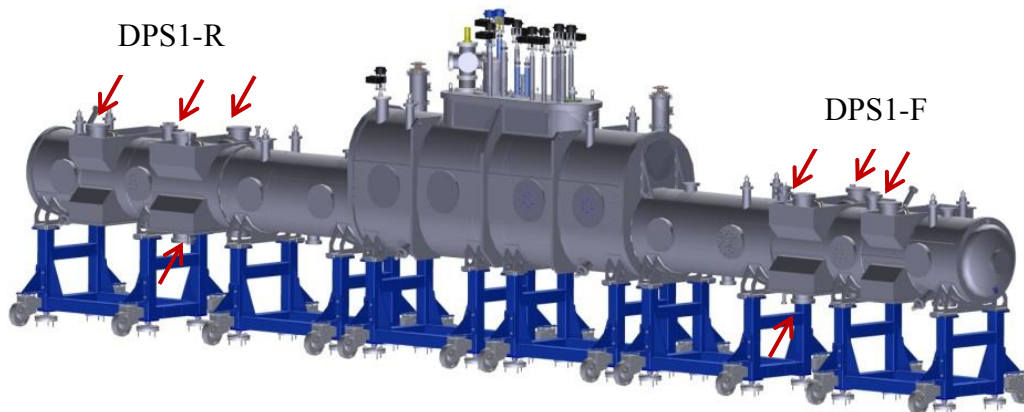


Abbildung 2.1: CAD Grafik des WGTS-Kryostaten.

Dargestellt ist ein Computermodell des ca. 16 m langen und 4 m hohen WGTS-Kryostaten. Zu erkennen sind die TMPs der DPS1-R und DPS1-F (Pfeile). Je zwei weitere TMPs werden durch den Kryostaten verdeckt.

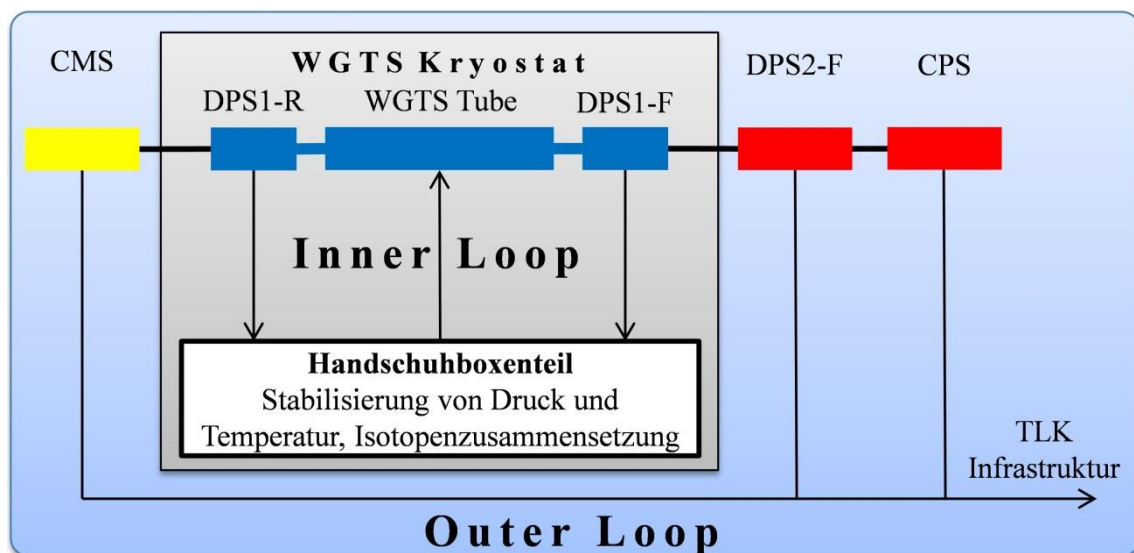


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Komponenten im Inner- und Outer Loop.

Um außerdem eine konstante Tritiumkonzentration innerhalb der Gassäule zu erhalten ist es zusätzlich notwendig die Isotopenreinheit auf besser 0,1 % zu kennen. KATRIN wird bei den Langzeitmessungen Tritiumgas mit einer Reinheit $\epsilon_T \geq 0,95$ verwenden, wobei der Anteil $c(T_2)$ von molekularem Tritium (T_2) etwa 0,9 betragen wird. Der Rest wird sich aus DT ($c(DT) < 0,1$) und Spuren von HT, D_2 und H_2 zusammensetzen [Bab12], [KAT04]. Da sich unterschiedliche β -aktive Wasserstoffisotopologe aufgrund ihrer Endzustandsverteilung (*Final State Distribution*) unterscheiden und somit Einfluss auf die Messung der Neutrinomasse nehmen, wurden diese im Rahmen von detaillierten quantenchemischen Berechnungen untersucht [Dos06]. Um von experimenteller Seite die jeweilige Gaszusammensetzung zu kennen und entsprechende Korrekturen bezüglich der Endzustandsverteilungen der Wasserstoffisotopologe durchführen zu können,

wurde am TLK ein Laser-Raman-System (LARA) entwickelt. Mit dessen Hilfe ist es möglich, alle sechs Wasserstoffisotopologe (H_2 , D_2 , T_2 , HD , HT , DT) mit der erforderlichen Präzision und Genauigkeit zu bestimmen [Sch11]. Dieses System wird im *Inner Loop* in-line montiert und erlaubt somit eine Überwachung des gesamten, durch die WGTS zirkulierenden Inventars (Abbildung 2.4).

Zum Einstellen der Temperatur ist das Strahlrohr der WGTS mit einem Zweiphasen-Ne-Kühlsystem ausgestattet ([Gro09], [Gro11]). Damit ist es möglich, das Strahlrohr auf eine Temperatur von $T \approx 30$ K zu kühlen. Dieser gewählte Wert stellt einen Kompromiss dar, da unterhalb dieser Temperatur die Tritiummoleküle zur Clusterbildung und Kondensation neigen und oberhalb der Effekt der Dopplerverbreiterung zunimmt. Zum anderen steigt bei höheren Temperaturen der Leitwert und damit die Flussrate. Dies hat zur Folge, dass mehr Tritium pro Zeiteinheit durch die WGTS geleitet werden müsste um die gleiche Säulendichte von $5 \cdot 10^{17}$ Moleküle/cm² [Bab12] einzustellen. Um die Temperaturstabilität untersuchen und optimieren zu können, wurde mit dem original Strahlrohr sowie dem original Kryostaten unter Verwendung sogenannter „dummy“-Kaltmassen anstelle der supraleitenden Magnete ein Testexperiment aufgebaut („WGTS-Demonstrator“). Die dabei erzielten Ergebnisse zeigen eine maximale Fluktuation der Temperatur von ± 3 mK, was die ursprünglichen KATRIN Anforderungen um eine Größenordnung unterbietet ([Gro09], [Gro11]).

Die beiden letzten wichtigen experimentellen Faktoren zur Erzeugung einer stabilen Gassäule sind

- das kontrollierte und stabile Einspeisen von Gas in das WGTS-Quellrohr und
- das ebenso stabile Evakuieren des eingeleiteten Gases aus dem WGTS-Quellrohr.

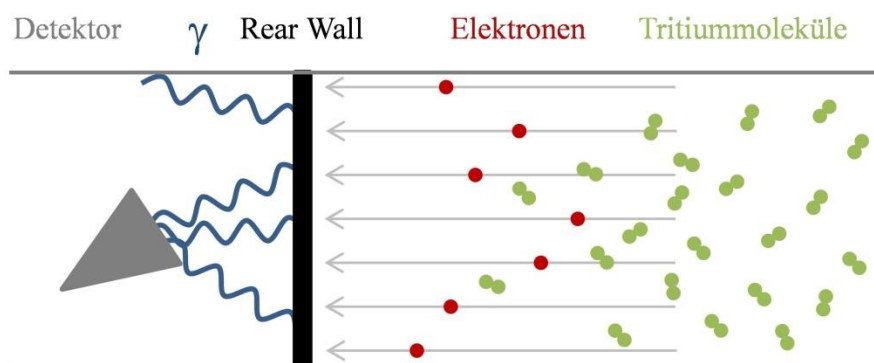


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung einer Messung mit der BIXS Methode.

Dargestellt ist der prinzipielle Aufbau zur Messung entstehender Röntgenstrahlung an der KATRIN *Rear Wall*. Diese entsteht, wenn Elektronen (rot) aus dem β -Zerfall von Tritium auf die *Rear Wall* (schwarz) auftreffen und dabei Röntgenbremsstrahlung (γ , blau) sowie charakteristische Röntgenstrahlung (γ) entsteht. Mit Hilfe eines Detektors (grau) für Röntgenstrahlung kann diese nachgewiesen werden. Dabei ist es auf Grund der nicht kollimierten Abstrahlung der γ nicht notwendig auf der Strahlachse zu messen, sondern der Detektor kann unter einem beliebigen Winkel stehen.

Der schematische Aufbau der Tritiumzirkulation ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Das stabilisierte Einspeisen folgt dem Prinzip des Ohm'schen Gesetzes. Ein konstanter Druck p führt bei einem konstanten Leitwert L zu einem konstanten Gasfluss q .

$$q = p \cdot L = \text{const.} \quad (2.1)$$

Bei genauerer Betrachtung ergibt sich jedoch eine Abhängigkeit des Flusses q von der Temperatur, da sowohl der Druck p eines eingeschlossenen Gases als auch der Leitwert L einer Verbindungsleitung temperaturabhängig sind. Man erhält

$$q_{(T)} = p_{(T)} \cdot L_{(T)} \quad (2.2)$$

Der Schlüssel zur konstanten Einspeisung ist daher neben einem stabilen Druck im Einspeisebehälter eine stabile Temperatur bzw. ein stabiler Temperaturgradient der Verbindungsleitung vom Einspeisebehälter (Abbildung 2.4, „Druck- und temperaturstabilisierter Behälter“) zum WGTS Quellrohr sowie des Einspeisebehälters selbst.

Während die DPS1-F zur spektrometerseitigen DPS2-F hin offen ist, wird die DPS1-R in Richtung zum rückwärtigen System durch die *Rear Wall* abgeschlossen. Es handelt sich dabei jedoch nicht um einen gasdichten Abschluss, sondern um ein Element zur Definition des Potentials der β -Zerfallselektronen in der WGTS relativ zur Analysespannung des Hauptspektrometers. Die *Rear Wall* wird realisiert durch eine senkrecht zur Strahlachse stehende, kreisrunde Scheibe mit einem Durchmesser von ca. 150 mm. Diese ist im rückwärtigen System montiert und soll neben der Aufgabe als Potentialreferenz eine Überwachungsfunktion für die Aktivität der WGTS erfüllen. In der *Rear Wall* wird durch auftreffende Elektronen aus dem Tritium β -Zerfall Röntgenstrahlung erzeugt, welche mit geeigneten Detektoren registriert werden kann. Die so erhaltene Zählrate der Detektoren ist direkt proportional zur in der WGTS befindlichen β -Aktivität. In ersten Vorexperimenten wurden mit einer Elektronenkanone und goldbeschichteten Kunststofffolien bereits erste Erfahrungen im Umgang mit einem Röntgendetektorsystem gesammelt [Mau09]. Aufbauend darauf sollte jetzt ein Experiment entworfen, aufgebaut und betrieben werden, in welchem erstmals ein Volumen mit gasförmigen Tritium als Quelle für Elektronen dienen sollte.

Die beiden aus KATRIN-Sicht wichtigsten Fragen in diesem Themenkomplex sind:

Ist es möglich, die Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle mit Hilfe eines Röntgendetektors zu messen und können Fluktuationen $\leq 0,1$ % registriert werden?

Um eine spätere Nutzung dieses Messprinzips in KATRIN als unabhängige Methode zur Überwachung der Quellaktivität zu ermöglichen, ist es von grundlegender Bedeutung, dass diese beiden Fragen bezüglich der BIXS-Methode positiv beantwortet werden können.

Das in der Mitte des WGTS Quellrohres eingelassene Tritium wird zu über 99 % in den differentiellen Pumpstrecken DPS1-F und DPS1-R wieder abgepumpt, welche beide integrale Teile des WGTS-Kryostaten sind (Abbildung 2.1). Dort finden je sechs TMPs

„Leybold MAG W2800“ mit DN250 CF Anschluss und einer Saugleistung von 2800 l/s (für N₂) Verwendung. Diese sind pro Pumpstrecke auf zwei Pumpkammern verteilt montiert und reduzieren den Tritiumfluss aus dem WGTS-Quellrohr in die DPS2-F um einen Faktor 100. Damit sich eine stabile Tritiumgassäule im WGTS Quellrohr ausbilden kann, ist es notwendig, dass diese TMPs mit einer konstanten und gleichbleibenden Rate Tritium aus dem KATRIN-Experiment evakuieren. Da es bisher noch kein Testexperiment zur Untersuchung der Verträglichkeit der verwendeten TMPs unter Tritiumatmosphäre gab, sollte mit Hilfe des Experiments TriToP diese Fragestellung detailliert untersucht werden. Die grundlegendsten Fragen sind hierbei:

Ist es möglich, eine TMP des Typs „Leybold MAG W2800“ über einen Zeitraum von mindestens einem Jahr unter KATRIN-ähnlichen Bedingungen ohne Ausfall zu betreiben? Welchen Einfluss haben mögliche, durch die TMP verursachte Verunreinigungen des Tritiumgases auf den KATRIN-Betrieb und die Bestimmung der Neutrinomasse?

Die Festlegung auf einen Testzeitraum von einem Jahr Betrieb ergibt sich aus den bisherigen Erfahrungswerten am TLK, die dahingehend zusammengefasst werden können, dass Komponenten im Betrieb mit sehr großem Tritiumdurchfluss tendenziell entweder nach kurzer Zeit versagen oder jedoch eine normale, mehrjährige Betriebsdauer überstehen.

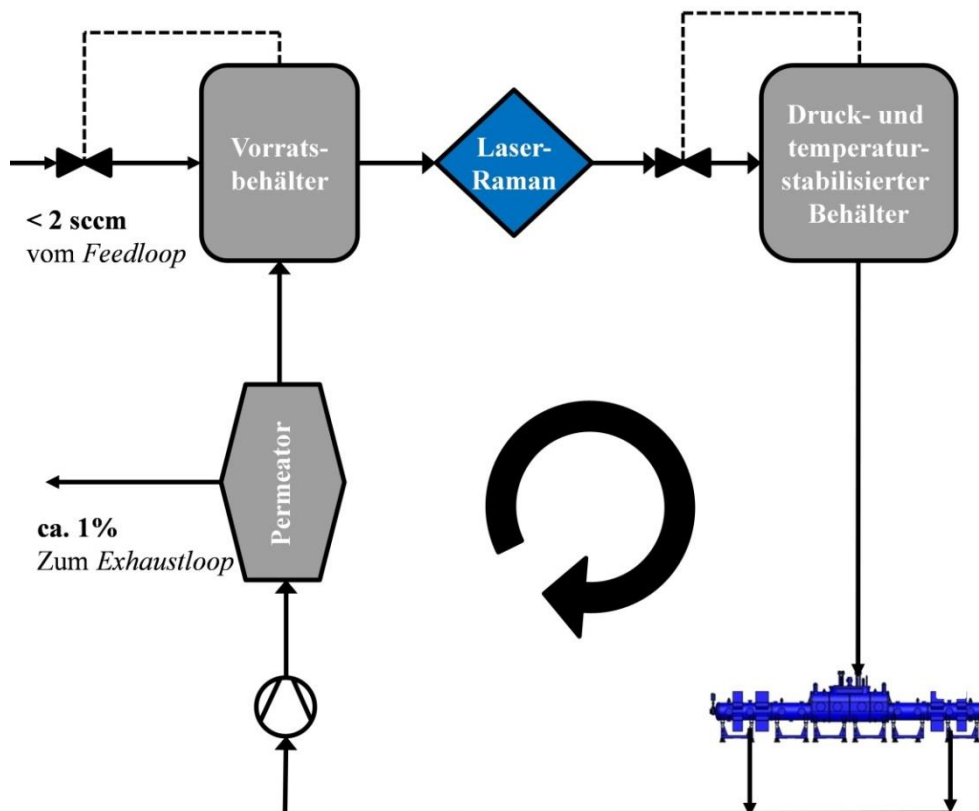


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung des KATRIN Inner Loop.

Dargestellt ist der KATRIN Inner Loop mit seinen wichtigsten Komponenten zur druckstabilisierten Einspeisung, Reinigung (Permeator) sowie Überwachung (Laser-Raman-Zelle) von zirkulierendem Tritiumgas.

2.2. Methode zur Bestimmung der KATRIN Quellaktivität

Wie in Kapitel 2.1 bereits kurz erwähnt, soll die Aktivität der KATRIN-Tritiumquelle WGTS mit Hilfe der BIXS-Methode (*beta induced x-ray spectroscopy*) bestimmt und es sollen Fluktuationen in der Aktivität auf besser 0,1% bestimmt werden. Dazu wird die Röntgenstrahlung untersucht, welche beim Auftreffen der β -Elektronen auf der *Rear Wall* entsteht. Die so gemessene Rate ist direkt proportional zur Aktivität im WGTS-Quellrohr. Abbildung 2.3 zeigt das Prinzip einer BIXS Messung.

Neben der Bestimmung der Tritiumkonzentration durch das Laser Raman System und den sog. *Forward Beam Monitor* [Bab12] am Ausgang der CPS, bietet die BIXS Methode einen unabhängigen, direkten und sehr sensitiven Zugang zur Messung der Gesamtaktivität in der WGTS.

Eine genaue Kenntnis der Aktivität und speziell der Fluktuationen in der Aktivität in der WGTS ist aufgrund des Messprinzips von KATRIN essentiell, da hierbei ein Hochpassfilter vom MAC-E Typ [Kru83] zur Analyse der Energien der Zerfallselektronen verwendet wird. Dies bedeutet, dass alle Elektronen über einer bestimmten minimalen Energie E_i im Spektrometer transmittiert und im nachfolgenden Detektor registriert werden. Alle 100-200 Sekunden wird diese Energieschwelle (Abbildung 2.5, $U_{0,1}$ - $U_{0,3}$) verändert und somit das integrale β -Spektrum als Funktion der Filterspannung ermittelt. Dieser Vorgang wird während der KATRIN Messzeit mehrere 100-mal für jeden Punkt im interessierenden Bereich des β -Spektrums durchgeführt (Abbildung 2.5, rechts). Summiert man alle Resultate (Anzahl der Ereignisse pro Einzelmessung) eines bestimmten Wertes für $U_{0,i}$, so erhält man einen Verlauf wie in Abbildung 2.6 schematisch dargestellt. Sind die Fluktuationen der Aktivität der Tritiumquelle hinreichend klein ($< 0,1\%$), so ergibt sich der Zusammenhang wie in Abbildung 2.6 (links) gezeigt. Man erhält durch Faltung des theoretischen Tritium- β -Spektrums mit der Rückstreuungsfunktion, der Energieverlustfunktion, der Transmissionsfunktion und der Nachweiseffizienz des Detektors eine Beschreibung des gemessenen β -Spektrums [Bor00]

$$\frac{dN}{dU} = \left(Ap(E + m_e c^2) F \sum_n W_n \varepsilon_n \sqrt{\varepsilon_n^2 - m_\nu^2 c^4} \otimes f_{\text{bsc}} \otimes f_{\text{eloss}} \otimes f_{\text{trans}} \otimes f_{\text{det}} \right) + B \quad (2.3)$$

mit	A:	Amplitude des Spektrums
	p, E:	Impuls und kin. Energie des Elektrons
	F:	Fermifunktion
	ε_n :	$\varepsilon_n = E_0 - V_n - E$
	E_0 :	β -Endpunktsenergie
	m_e, m_ν :	Ruhemasse von Elektron und Neutrino
	W_n, V_n :	Amplitude und Anregungsenergie der elektronischen Endzustände des Tochtermoleküls
	B:	konstanter Untergrund

Bei einem Standardfit, dessen Ergebnis etwa dem Verlauf der in Abbildung 2.6 gezeigten blauen Kurve entspricht, werden die vier freien Parameter A , E_0 , $(m_\nu)^2$ und B an die Daten angepasst. Dabei zeigt Abbildung 2.6 (links) das schematische Ergebnis einer Summation für den Fall, dass Änderungen in der Aktivität zwischen Einzelmessungen entweder vernachlässigbar klein waren oder erfolgreich korrigiert wurden.

Existieren hingegen nicht vernachlässigbare Fluktuationen der Aktivität der Tritiumquelle und werden diese nicht in der Auswertung berücksichtigt, ergibt sich nicht der erwartete Verlauf (blaue Linie), sondern wie in Abbildung 2.6 (rechts) zu sehen eine Streuung der jeweiligen Einzelwerte. In diesem Fall ist es nicht mehr möglich, einen sinnvollen und/oder konvergierenden Fit mit Gleichung 2.3 zu erzielen.

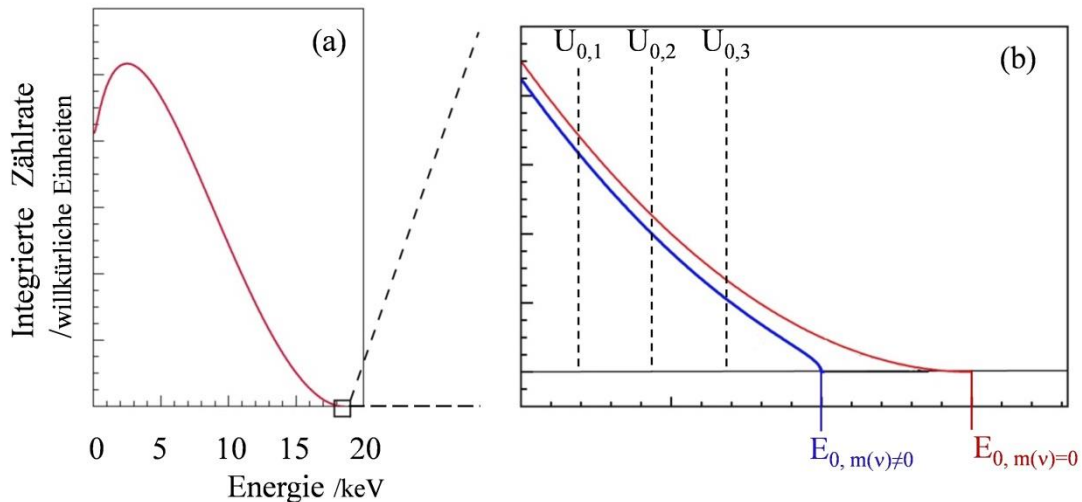


Abbildung 2.5: Berechneter Verlauf des Tritium β -Spektrum und eines Fitintervalls.

In (a) dargestellt ist das vollständige Tritium- β -Spektrum, (b) zeigt den für KATRIN relevanten Bereich nahe des kinematischen Endpunkts mit den zu erwartenden Unterschieden im Endbereich des Spektrums für eine Neutrinomasse $m_\nu = 0$ (rot) sowie $m_\nu \neq 0$ (blau). $U_{0,1}$ - $U_{0,3}$ geben exemplarisch drei unterschiedliche Retardierungspotentiale im Hauptspektrometer an, welche ein jeweiliges Fitintervall bestimmen. Eine Messung mit $U_{0,1}$ - $U_{0,3}$ summiert alle Ereignisse auf, welche rechts der markierten Position innerhalb eines bestimmten Zeitintervalls auftreten (nach [KAT04]).

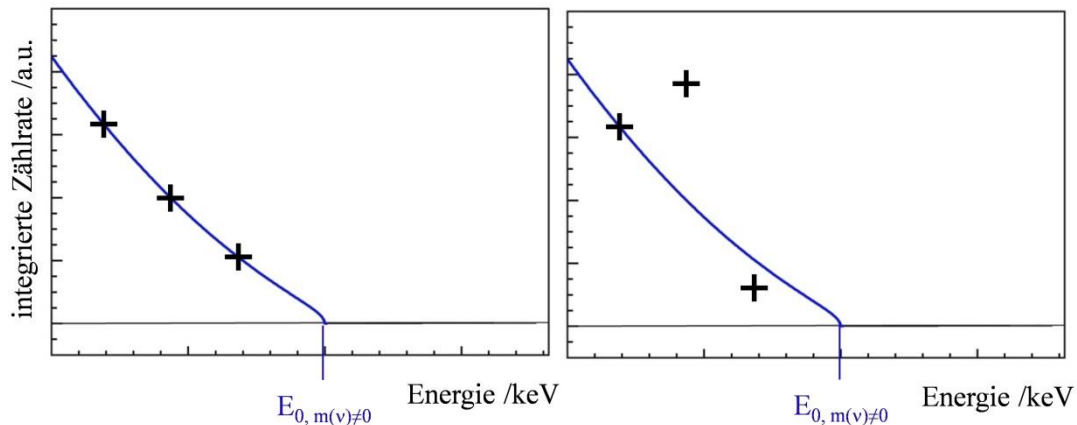


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung eines integrierten Tritium- β -Spektrums.

Links sind exemplarisch drei Messpunkte (schwarze Kreuze) mit stabiler Aktivität während den jeweiligen Einzelmessungen dargestellt. Rechts hingegen fluktuierte die Aktivität während den Einzelmessungen in einer unkontrollierten Art. In Folge dessen verschieben sich die Ergebnisse der Summation der Einzelmessungen gegenüber dem erwarteten Verlauf. Daher besitzt KATRIN hohe Stabilitätsanforderungen von 10^{-3} oder besser an alle die Form des Spektrums beeinflussenden Parameter (nach [KAT04]).

2.3. Einfluss einer magnetgelagerten TMP auf die KATRIN Tritiumquelle

Wie bereits in Kapitel 2.1 erwähnt, ist es zum Einstellen einer stabilen Säulendichte neben einem stabilen Einspeisen von Tritiumgas in das WGTS-Quellrohr auch erforderlich, dass das eingelassene Tritiumgas an beiden Enden des Quellrohres ebenso stabil wieder abgepumpt wird. Dies wird bei KATRIN mit magnetisch gelagerten Turbomolekularpumpen (TMP) Typ „Leybold MAG W2800“ erfolgen, von denen entlang des KATRIN-Strahlrohres insgesamt 16 Einheiten in der Quell- und Transportsektion montiert sind.

Alle Pumpen sind als Teil des geschlossenen Tritiumkreislaufes von KATRIN teilweise bereits nach kurzer Zeit (\approx Monate) stark kontaminiert ($> 10^{10}$ Bq/Pumpe). Dies stellt bei einer notwendigen Wartung oder einem Austausch das Personal vor große Herausforderungen, da die Sicherheit des Personals zu jedem Zeitpunkt gewährleistet sein muss. Außerdem würde eine Wartung/Reparatur den Messbetrieb von KATRIN für Wochen bis Monate unterbrechen und somit das gesamte Experiment erheblich verzögern. Neben den terminlichen und sicherheitstechnischen Fragen muss auch an die wirtschaftlichen Konsequenzen gedacht werden, die bei einem regelmäßigen Wechsel von TMP auftreten würden, denn jede TMP dieses Typs kostet ca. 50000 €. Neben der Bedeutung, welche ein zuverlässiger Betrieb der TMPs für KATRIN in jeder Hinsicht darstellt, ist es zusätzlich notwendig die dabei entstehenden, schädlichen Verunreinigungen des Tritiuminventars vorher zu kennen. Da eine magnetisch gelagerte TMP nichtmetallische Oberflächen dem Prozessgas aussetzt, kann es auf Grund von radiochemischen Prozessen zu einer Veränderung dieser Oberflächen kommen. Diese Oberflächen könnten dann, je nach verwendetem Material, ätzende Stoffe in Verbindung mit Wasserstoffiso-

topen produzieren. Ein in diesem Zusammenhang wichtiges Beispiel ist die Entstehung von Flußsäure (HF oder mit Tritium TF).

Da bislang keine ausreichende Datenlage zum Betrieb einer magnetisch gelagerten TMP unter Tritiumatmosphäre existiert, wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit das Testexperiment TriToP (**T**ritium **T**est of **P**umps) entwickelt, aufgebaut und betrieben. Da für den Betrieb von TriToP signifikante Mengen an Tritium ($\approx 10^{12}$ Bq bzw. ≈ 30 Ci oder ≈ 3 mg pro Messreihe) erforderlich waren, musste das Experiment im Tritiumlabor Karlsruhe durchgeführt werden. Durch das hohe Gefahrenpotential dieser Tritiummenge mussten sämtliche konstruktiven und sicherheitstechnischen Aspekte für tritiumführende Systeme berücksichtigt werden.

Das Ziel von TriToP war es, die Turbomolekularpumpe Typ „Leybold MAG W2800“ ca. ein Jahr unter KATRIN-relevanten Bedingungen in einem geschlossenen Kreislauf (Abbildung 2.7) zu betreiben und gleichzeitig die Veränderungen in der Zusammensetzung des zirkulierenden Gases zu überwachen. Aus den beobachteten Veränderungen sollten dann Implikationen sowohl für den Betrieb von KATRIN als auch die Messung der Neutrinomasse abgeleitet werden.

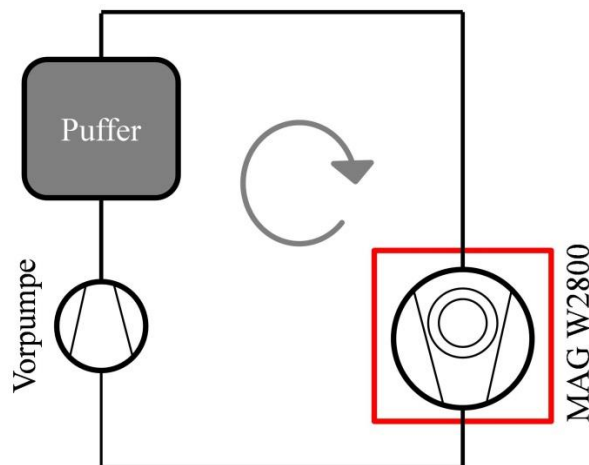


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des TriToP-Experiments.

Dargestellt sind die Kernkomponenten zum Betrieb von TriToP. Eine Vorpumpe ist zum Betrieb der TMP notwendig, da der Vordruck der TMP unter 3 mbar gehalten werden muss. Zur Stabilisierung des Gasflusses wurde zusätzlich ein Puffervolumen von ca. 1,5 l verbaut. Nicht dargestellt ist die Instrumentierung zum Überwachen des Prozesses sowie zur Gasanalyse.

3. Das Testexperiment TriReX

In diesem Abschnitt soll das Testexperiment TriReX (*Tritium Rear Wall eXperiment*) erläutert werden. Dieses wurde als Funktionsdemonstrator für die spätere Aktivitätsüberwachung an der KATRIN-WGTS-Quelle mittels Röntgenbremsstrahlung konzipiert. Nachdem in Kapitel 3.1 die Anforderungen an das Experiment aus physikalischer Sicht dargestellt werden, behandelt Kapitel 3.2 die physikalischen Grundlagen um die in Kapitel 3.5 präsentierten Ergebnisse interpretieren zu können. Die Abschnitte 3.3 und 3.4 stellen die Auslegung und den Aufbau des TriReX-Aufbaus vor sowie die Vorgehensweise bei der Inbetriebnahme.

3.1. Physikalische Anforderungen

Das im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebaute Testexperiment TriReX hat die Aufgabe, unter möglichst KATRIN-nahen Bedingungen die Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle zu bestimmen. Daraus resultieren verschiedene, physikalische Anforderungen:

- **Aktivität**
Die Gesamtaktivität der gasförmigen Tritiumquelle in TriReX soll der späteren Aktivität im WGTS-Quellrohr entsprechen, d.h. $1,1 \cdot 10^{11}$ Bq [KAT04].
- **Druck**
Es soll ein Druck einstellbar sein, welcher dem erwarteten Druck von ca. $5 \cdot 10^{-5}$ mbar an der KATRIN-Rear Wall entspricht [Bab12]. Diese Forderung steht im Konflikt mit der ersten (Aktivität). Da TriReX ein deutlich kleineres Rezipientenvolumen zur Verfügung hat als das spätere KATRIN-WGTS-Quellrohr (ca. 1/32 des Volumens), muss der Druck im Bereich von 10^{-5} - 1 mbar variabel sein, um beiden Forderungen entsprechen zu können.
- **Zählrate**
Beim β -Zerfall handelt es sich um einen statistischen Prozess, welcher einer Poissonverteilung folgt. Die Standardabweichung σ bei einer für KATRIN relevanten Messzeit von $t_{\text{mess}} = 100$ s ergibt sich dadurch nach [KKk04] zu

$$\sigma = \sqrt{\dot{N} \cdot 100 \text{ s}} \geq 1000 \hat{=} 0,1\% \cdot N_{\text{gesamt}} \quad (3.1)$$

Die Zählrate \dot{N} im Detektor bei maximaler Aktivität im Rezipienten muss daher $> 10^4$ cps sein, um eine Überwachung auf dem 0,1% Niveau zu ermöglichen.

- **Realistischer Rear Wall Kandidat**

Zum Zeitpunkt der Auslegung von TriReX stand der endgültige Aufbau der zukünftigen KATRIN *Rear Wall*, d.h. des Bremsstrahlung produzierenden Elements in KATRIN (Abbildung 2.3) noch nicht fest. Ein aktuell vielversprechender Kandidat ist ein Gold/Beryllium Schichtsystem, welches zusätzlich auch als Detektorschutzfenster zum Einsatz kommen soll. Dieses bietet eine optimale Transparenz für niederenergetische Röntgenstrahlung (Be) bei gleichzeitig effizienter Produktion von Röntgenbremsstrahlung (Au).
- **Adsorption**

Mit Hilfe des TriReX-Aufbaus soll der Frage nach der Adsorption von Tritium auf Edelstahl und Gold nachgegangen werden. Adsorbiertes Tritium trägt zum Untergrundsignal im TriReX-Aufbau wie auch später bei KATRIN bei. Um sensitiv auf Änderungen der Aktivität zu sein, muss dieser Beitrag kleiner sein als 0,1% der Zählrate bei maximaler Aktivität von $1.1 \cdot 10^{11}$ Bq im Rezipienten.
- **Permeation**

Die Menge an Tritium, welche durch ein goldbeschichtetes Berylliumfenster mit einer Dicke von ca. 250 μm permeiert, wurde experimentell bisher nicht verifiziert. Durch das Be-Fenster permeierendes Tritium würde direkt am Röntgendetektor von TriReX und dem späteren KATRIN Aktivitätsmonitordetektor zerfallen, unabhängig von der sich im Rezipienten befindlichen, tatsächlichen Aktivität. Dieser zusätzliche Beitrag zum Untergrundsignal schränkt die Nachweissensitivität ein und muss daher vermieden werden. TriReX soll daher eine mögliche Permeation von Tritium durch Beryllium untersuchen und im Nachweisfall minimieren.
- **Führung von Elektronen**

Wie im späteren KATRIN Experiment sollen auch bei TriReX die Elektronen aus dem Tritium- β -Zerfall magnetisch geführt werden. Auf den Einsatz einer supraleitenden Spule sollte aus Gründen der Handhabung verzichtet werden.
- **Langzeitstabilität und Reproduzierbarkeit**

TriReX soll in der Lage sein, die Frage nach der Stabilität von Aktivitätsmessungen über einen Zeitraum von mehreren Tagen zu beantworten.
- **Aktivitätsschwankungen im Bereich von 0,1%**

Der TriReX-Aufbau soll unter Zuhilfenahme geeigneter Mittel die Möglichkeit zur Verfügung stellen, wohldefinierte Schwankungen der Aktivität der Tritiumquelle im Bereich von 0,1% zu erzeugen. Damit soll demonstriert werden, dass derartige Schwankungen noch nachgewiesen werden können. Dies resultiert aus der KATRIN-Anforderung an einen Aktivitätsmonitor, Schwankungen der Tritiumquelle auf 0,1% oder besser in kurzen Messzeitintervallen nachweisen zu können.
- **Zeitauflösung**

Um innerhalb der von KATRIN geforderten Zeit von $t_{\text{mess}} \leq 100$ Sekunden (entspricht etwa der Messzeit pro Retardierungspotential U_0 am Hauptspektrometer) den Einfluss der statistischen Unsicherheit aus der Zeitmessung auf 0,1% zu reduzieren, muss eine Zeitauflösung Δt_{mess} des verwendeten Messsystems von (deutlich) besser als eine Sekunde erreicht werden.

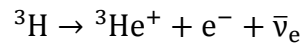
3.2. Physikalische Grundlagen von BIXS

In diesem Abschnitt sollen die Grundlagen der BIXS-Methode (*beta induced x-ray spectroscopy*) erläutert werden, die zum Verständnis der im weiteren Verlauf gezeigten Messungen notwendig sind. Eine erste Vorbedingung ist eine sehr gute Kenntnis des Energiespektrums der verwendeten β -Elektronenquelle zur Anregung von Röntgenstrahlung. Darüber hinaus sollen die Grundlagen erläutert werden die für die Entstehung von Röntgenstrahlung durch Wechselwirkung der β -Elektronen mit Materie notwendig sind sowie die Mechanismen beschreiben werden die beim Nachweis der entstehenden Röntgenstrahlung verwendet werden.

3.2.1. Der Tritium- β -Zerfall

Beim Testexperiment TriReX wird, wie auch im späteren KATRIN-Experiment, hochreines, molekulares Tritium die Quelle der Elektronen sein, welche durch die in Kapitel 3.2.2 erläuterten Mechanismen Röntgenstrahlung erzeugen. Daher ist es von Interesse, den Tritium- β -Zerfall näher zu betrachten. Im Nachfolgenden wird dies für atomares Tritium erläutert, beim verwendeten molekularen Tritium ergeben sich geringfügige Änderungen [Sch13a].

Tritium (${}^3\text{H}$, T) ist ein reiner β -Strahler, d.h. es zerfällt unter Aussendung eines Elektrons und eines Elektronantineutrinos in ${}^3\text{He}$.



Dabei erhält das Elektron einen kontinuierlichen Anteil der Maximalenergie von $E_{\text{max}} = 18,6 \text{ keV}$ [Fir99] und weist eine mittlere Energie von $5,7 \text{ keV}$ auf. Elektronen mit $18,6 \text{ keV}$ stellen somit gleichzeitig die maximale Energie dar, welche zur Erzeugung von Röntgenstrahlung zur Verfügung steht. Das kontinuierliche Energiespektrum der Elektronen aus dem Tritiumzerfall kann mit Fermi's goldener Regel berechnet werden [Alt03] zu:

$$\frac{d^2 N}{dt dE} = C \cdot F_{(E,Z+1)} \cdot p \cdot (E + m_e c^2) \cdot (E_0 - E) \cdot \sqrt{(E_0 - E)^2 - m_{\nu_e}^2 \cdot c^4} \cdot \Theta(E_0 - E - m_{\nu_e} \cdot c^2) \quad (3.2)$$

mit E, m_e, p : kin. Energie, Masse des Elektrons, Impuls
 m_{ν_e} : Masse des Elektronantineutrinos
 c : Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
 E_0 : Endpunktsenergie, bei Tritium $18,6 \text{ keV}$
 F : Fermifunktion

Die Konstante C in Gleichung 3.2 berechnet sich zu

$$C = \frac{G_F^2}{2 \cdot \pi^3 \cdot c^5 \cdot \hbar^7} \cdot \cos^2(\Theta_c) \cdot |M_{\text{had}}^2| \quad (3.3)$$

mit G_F : Fermikonstante
 θ_C : Cabibbowinkel
 M_{had} : Übergangselement des hadronischen Matrixelements

Mit Hilfe dieser Gleichungen ergibt sich das in Abbildung 2.5 (a) gezeigte kontinuierliche β -Spektrum.

3.2.2. Wechselwirkung von Elektronen mit Materie

Bei ihrem Nachweis wechselwirken Elektronen mit Materie über die elektromagnetische Wechselwirkung (WW). Interagieren zwei elektrisch geladene Teilchen miteinander, so kann diese WW durch das klassische Coulombgesetz beschrieben werden. Bei der WW von geladenen Teilchen mit Atomen kann prinzipiell zwischen vier Prozessen unterschieden werden:

- Elastische Streuung an
 - i. Hüllenelektronen,
 - ii. Atomkernen,
- Inelastische Streuung an
 - iii. Hüllenelektronen,
 - iv. Atomkernen.

Bei der elastischen Streuung werden keine Photonen produziert, diese ist somit für ein System zum Nachweis von Röntgenstrahlung nicht weiter von Interesse. Daher beschränkt sich die nachfolgende Diskussion auf die inelastische Streuung, bei der Photonen produziert werden.

Die inelastische Streuung von freien Elektronen an Hüllenelektronen (iii) findet durch Ionisation der Hüllenelektronen statt. Der spezifische Energieverlust pro Wegstrecke lässt sich nach der von Bethe hergeleiteten Formel berechnen zu [Dem05]

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{Ion}} \approx \frac{Z_1^2 \cdot e^4 \cdot n_e}{4 \cdot \pi \cdot \epsilon_0^2 \cdot m_e \cdot v^2} \ln\left(\frac{m_e \cdot v^2}{2\langle E_b \rangle}\right) \quad (3.4)$$

mit $\langle E_b \rangle$: mittlere Bindungsenergie
 Z : Kernladungszahl des Mediums
 n_e : Elektronendichte im Medium
 v : Geschwindigkeit des Elektrons
 m_e : Elektronenmasse
 ϵ_0 : el. Feldkonstante

Die bei der Reorganisation der Atomhülle entstehende Röntgenstrahlung ist abhängig von der Elektronenkonfiguration des jeweiligen Atoms. Daher ist die nach Gleichung 3.4 entstehende Strahlung charakteristisch für jedes Element („charakteristische Strahlung“ oder „Fluoreszenz“).

Neben der inelastischen Streuung an Hüllenelektronen von Atomen können Elektronen auch an den Atomkernen inelastisch streuen. Im Coulombfeld eines Atomkerns erfährt das Elektron eine Beschleunigung und strahlt Photonen ab („Bremsstrahlung“). Dies wird beschrieben durch [Dem05]

$$\left(\frac{dE_e}{dx}\right)_{\text{Brems}} = \frac{4 \cdot n_a \cdot Z^2 \cdot \alpha^3 \cdot (\hbar \cdot c)^2 \cdot E_e}{m_e^2 \cdot c^4} \cdot \ln\left(\frac{a_{(E)}}{Z^{1/3}}\right) \quad (3.5)$$

mit	E_e :	Energie des Elektrons
	n_a :	Atomdichte im Medium
	Z :	Kernladungszahl des Mediums
	m_e :	Elektronenmasse
	$a_{(E)}$:	energieabhängiger Stoßparameter des Elektrons
	c :	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
	α, \hbar :	Feinstrukturkonstante ($\approx 1/137$)
	\hbar :	$= h/2\pi = 1,04083 \cdot 10^{-33} \text{ kg} \cdot \text{m}^2/\text{s}$

Beide Mechanismen (Gleichung 3.4 und 3.5) zeigen eine Abhängigkeit sowohl von der Kernladungszahl Z als auch der Massendichte ρ (über n_a und n_e). Diese Erkenntnis ist wichtig, um den in Kapitel 3.3.2 beschriebenen Aufbau und speziell die verwendeten Materialien besser zu verstehen.

Die beiden WW-Mechanismen der Bremsstrahlung und der charakteristischen Strahlung erzeugen unterschiedliche Detektorsignale mit sich deutlich unterscheidenden Intensitätsverläufen. Da beide Anteile später bei der Diskussion der TriReX-Ergebnisse in den resultierenden Spektren als Überlagerung vorhanden sind, sollen diese im Folgenden kurz erläutert werden.

Intensitätsverlauf bei der Röntgenbremsstrahlung

Als Bremsstrahlung bezeichnet man einen kontinuierlichen Beitrag zum Röntgenspektrum. Die Maximalenergie der Röntgenphotonen (γ) ist durch die maximal zur Verfügung stehende Energie der Elektronen (18,6 keV bei Tritium) gegeben. Das kontinuierliche Spektrum wird durch die Kramer'sche Regel beschrieben [Kra23] und ist in Abbildung 3.1 (links) schematisch dargestellt. Im Wesentlichen ist die Intensitätsverteilung proportional zu:

$$\frac{dI}{dE} \propto IZ \left(\frac{E_{\text{max}}}{E} - 1 \right) \quad (3.6)$$

mit	E_{max} :	Maximal zur Verfügung stehende Elektronenenergie
	E :	Energie der Bremsstrahlung
	I :	Elektronenstrom
	Z :	Kernladungszahl des Mediums

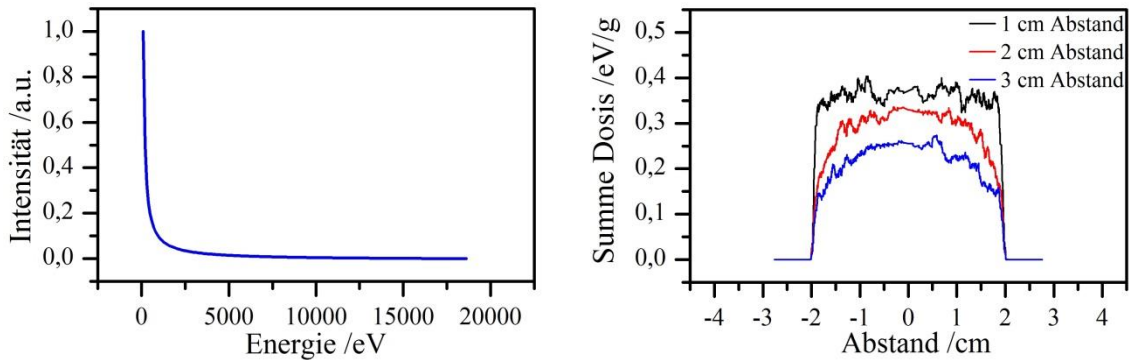


Abbildung 3.1: Verlauf eines Bremsstrahlungsspektrums und Richtungsverteilung der Strahlung. Links dargestellt ist der nach Gleichung 3.6 berechnete Intensitätsverlauf des Bremsstrahlungsspektrums als Funktion der Energie für monoenergetische Elektronen mit der maximalen, beim T_2 -Zerfall frei werdenden Energie von 18,6 keV. Rechts ist die Richtungsverteilung anhand der Dosis der entstehenden Röntgenstrahlung für drei verschiedene Abstände vom Entstehungsort aufgetragen (nach [Röll3]).

Bremsstrahlung besitzt einen gerichteten Charakter. Für ein dünnes Target und niedrige Energien ($E_{\max} < 30$ keV) wird sie tendenziell senkrecht zur Richtung der einfallenden Elektronen emittiert. Bei dicken Targets und hohen Energien ($E_{\max} > 300$ keV) erfolgt die Emission in der Richtung des einfallenden Elektrons [Kri07]. Diese Richtungsabhängigkeit (Abbildung 3.1, rechts) wird in Gleichung 3.6 nicht berücksichtigt, ist jedoch für die Auswertung der TriReX-Ergebnisse nicht von Belang.

Intensitätsverlauf bei der charakteristischen Röntgenstrahlung

Charakteristische Röntgenstrahlung entsteht, wenn ein Elektron aus dem β -Zerfall ein Elektron aus der Schale eines Atoms herausschlägt oder auf eine höhere, unbesetzte Schale anhebt (i.d.R. wird ein Atom bei diesem Prozess ionisiert). Beim Auffüllen der Leerstelle durch Hüllenelektronen aus höheren Schalen wird die Differenzenergie in Form eines Photons (γ) radiativ abgestrahlt. Da Elektronenhüllenkonfigurationen für jedes Element unterschiedlich sind, können Elemente mit Hilfe der charakteristischen Strahlung identifiziert werden. Es handelt sich dabei um monoenergetische Photonen (unter Vernachlässigung der natürlichen Linienbreite). Diese eigentlich scharfen Linien sind in einem experimentellen Spektrum als gaußförmige Kurven zu erkennen, in Abhängigkeit der endlichen Energieauflösung eines realen Detektorsystems. Die Halbwertsbreite einer gaußförmigen Kurve kann für den hier betrachteten Energiebereich von ca. 150 eV bis zu einigen keV reichen, stark abhängig von der verwendeten Detektorart und der jeweiligen Energie. Die Übergänge folgen bestimmten Auswahlregeln, welche durch die Änderung der Quantenzahlen festgelegt sind. Erlaubt sind dabei Übergänge, welche

- i. $\Delta n \neq 0$, (Hauptquantenzahl, $n \in \mathbb{N}$)
- ii. $\Delta l = \pm 1$, (Drehimpulsquantenzahl, $l \in \{0, 1, \dots, n - 1\}$)
- iii. $\Delta j = \pm 1, 0$ (Gesamtdrehimpulsquantenzahl, $j = l + s$ mit $s = \pm 1/2$)

erfüllen [Dem09].

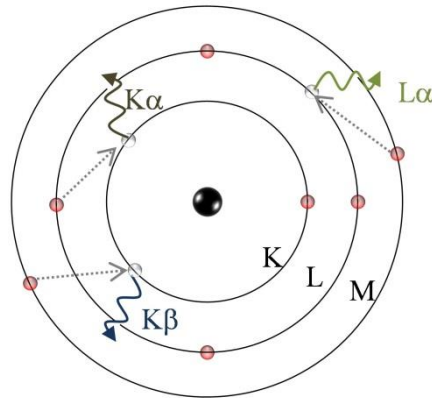


Abbildung 3.2: Bezeichnung der charakteristischen Linien in der Röntgenspektroskopie.

Dargestellt sind einige Bezeichnungen von Übergängen, welche charakteristische Linien produzieren (dargestellt im Bohr'schen Atommodell). Die Bezeichnung der Elektronenschalen lauten (von innen nach außen) K, L, M, N. Wird ein Elektron durch eine äußere Quelle (z.B. β -Elektron aus Tritiumzerfall) ionisiert, so wird die entstandene Lücke durch ein Elektron einer höheren Schale gefüllt. Die Energiedifferenz wird in Form charakteristischer Röntgenstrahlung frei.

Die in Abbildung 3.2 gezeigte Nomenklatur der Strahlungsübergänge entspricht der im weiteren Verlauf dieser Arbeit verwendeten („Siegbahn-Notation“). Der Großbuchstabe (K, L, M, N) gibt den Ort der aufzufüllenden Leerstelle an, der griechische Buchstabe (α , β , γ , ...) die relative Herkunft des Elektrons, welches die Lücke auffüllt. Eventuelle Aufspaltungen in den Energieniveaus werden mit einem numerischen Index am griechischen Buchstaben gekennzeichnet. Die monoenergetischen Linien der charakteristischen Röntgenstrahlung überlagern sich mit dem kontinuierlichen Bremsstrahlungsuntergrund.

3.2.3. Nachweis von Röntgenstrahlung

In Kapitel 3.2.2 wurden die Mechanismen zur Entstehung von Röntgenstrahlung erläutert. In diesem Abschnitt sollen nun die Grundlagen erläutert werden, welche notwendig sind, um die später getroffene Materialauswahl des TriReX-Experiments sowie die grundlegende Funktion des verwendeten Detektorsystems zu verstehen.

3.2.3.1. Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Um Röntgenstrahlung (γ) nachweisen zu können, muss diese mit dem Material des verwendeten Detektors wechselwirken. Grundsätzlich stehen dazu die folgenden Prozesse zur Verfügung [Dem05]:

- i. elastische Streuung (Rayleigh- oder Thomsonstreuung)
- ii. inelastische Streuung (Comptoneffekt)
- iii. Absorption in der Elektronenhülle (Photoeffekt)
- iv. Absorption durch Atomkerne (Kernphotoeffekt)
- v. Erzeugung von $e^+ e^-$ Paaren durch Röntgenphotonen (Paarbildung)

Bei Energien $E_\gamma < 10^5$ eV, wie sie bei der hier besprochenen BIXS-Methode mit Tritium ausschließlich vorliegen, dominieren Compton- und Photoeffekt bei der WW von Röntgenphotonen mit Materie [Dem05].

Beim Photoeffekt wird durch ein Elektron der Atomhülle ein einfallendes Photon absorbiert. Das Elektron erhält dabei so viel Energie zugeführt, dass es die Atomhülle mit der Energie $E_{\text{kin}} = E_\gamma - E_{\text{bind}}$ verlässt. Dabei entspricht E_γ der Energie des Röntgenphotons und E_{bind} der Bindungsenergie des Elektrons im Atom.

Nach [Dem05] wird der überwiegende Teil des Wirkungsquerschnitts beim Photoeffekt durch die Bindungsenergie der K-Schalen-Elektronen bestimmt. Für Bindungsenergien $E_b(\text{K}) < E_\gamma < 500$ keV ergibt sich nach [Hei84] der Wirkungsquerschnitt zu

$$\sigma_{ph} \sim \sigma_0 \cdot Z^5 \cdot \left(\frac{m_e \cdot c^2}{E_\gamma} \right)^{7/2} \quad (3.7)$$

mit σ_0 : Konstante ($8/3 \cdot \pi \cdot r_e$)
 Z : Kernladungszahl des Mediums
 m_e : Masse des Elektrons
 c : Vakuumlichtgeschwindigkeit
 E_γ : Energie des einfallenden Photons

Unter Comptonstreuung versteht man die inelastische Streuung eines Photons an einem quasi-freien Elektron (Elektronen aus höheren Schalen eines Atoms). Nach [Jac88] kann für Energien $E_b \ll E_\gamma \ll m_e c^2$ der Wirkungsquerschnitt als Entwicklung

$$\sigma_c = \sigma_0 \cdot Z \left(1 - \frac{2 \cdot E_\gamma}{m_e \cdot c^2} + \frac{26}{5} \left(\frac{E_\gamma}{m_e \cdot c^2} \right)^2 + \dots \right) \quad (3.8)$$

mit σ_0 : Konstante ($8/3 \cdot \pi \cdot r_e$)
 Z : Kernladungszahl des Mediums
 m_e : Masse des Elektrons
 c : Vakuumlichtgeschwindigkeit
 E_γ : Energie des einfallenden Photons

geschrieben werden. Da die WW-Wahrscheinlichkeit von Photonen mit Materie von den Wirkungsquerschnitten σ_{ph} und σ_c bestimmt werden, beeinflussen diese die Transmission (und Absorption) von Photonen in Materie.

3.2.3.2. Transmission von Röntgenstrahlung durch Materie

Photonen besitzen in Materie, im Gegensatz zu Strahlung aus geladenen (z.B. Protonen, Elektronen) oder neutralen Teilchen (Neutronen), keine maximale Reichweite. Es gibt immer einen Anteil Photonen, welcher nicht wechselwirkt. Dieser transmittierte Anteil ($I_{(x)}$) wird beschrieben durch [Dem05]

$$I_{(x)} = I_0 \cdot e^{\int \mu_{(x)} dx} \quad (3.9)$$

mit x : Durchquerte Strecke im Medium
 I_0 : Anfangsintensität des Strahls
 $\mu_{(x)}$: Materialspezifischer linearer Schwächungskoeffizient

Der Wirkungsquerschnitt σ aus den Wechselwirkungsprozessen geht dabei mit

$$\mu = n \cdot \sigma \quad (3.10)$$

mit n : Teilchendichte in Teilchen/m³

in Gleichung 3.9 ein.

Aus praktischen Gründen wird meist nicht der lineare Schwächungskoeffizient μ verwendet, sondern der auf die Dichte des jeweiligen Materials normierte Massenschwächungskoeffizient μ/ρ . Tabellierte Daten für den Parameter μ/ρ sind unter anderem über NIST¹ zu erhalten.

In [Röl11] wurde berechnet, dass für ein Siliziumsubstrat ($Z = 14$) mit 0,45 mm Dicke für Photonenenergien $E_\gamma < 10$ keV der transmittierte Anteil nahezu verschwindet. Somit kann im experimentellen Aufbau von TriReX durch die Verwendung von Tritium als β -Quelle mit einer maximalen Energie von 18,6 keV davon ausgegangen werden, dass der überwiegende Anteil der Photonen, welche den Si-Detektor erreichen, registriert werden².

3.2.3.3. Funktionsweise eines Silizium-Driftdetektors (SDD)

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten die Erzeugung von Röntgenstrahlung sowie ihre Wechselwirkung und Transmission durch Materie erläutert wurde, soll in diesem Abschnitt näher auf den Nachweis der Röntgenphotonen eingegangen werden. Da es sich beim in TriReX verwendeten Nachweissystem um einen Silizium Driftdetektor (SDD, silicon drift detector) handelt, beschränkt sich dieses Kapitel auf die Erläuterung der Funktionsweise eines SDD.

Halbleiternaterialien wie Silizium besitzen eine höhere Dichte im Vergleich zu gasgefüllten Zählern. Insbesondere benötigt Si nur 3,62 eV zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares, während dies bei Gasen ca. 30 eV beträgt [HXF06]. Dadurch werden auch ohne lawinenartige Verstärkung pro deponierter Energie durch ein Photon mehr Elektron-Loch-Paare erzeugt als in Gasen. Dadurch reduziert sich die statistische Verbreiterung der monoenergetischen Linien im Spektrum.

¹ National Institute of Standards and Technology, <http://www.nist.gov>

² Der in TriReX eingesetzte Detektor besitzt eine Substratdicke von 0,5 mm.

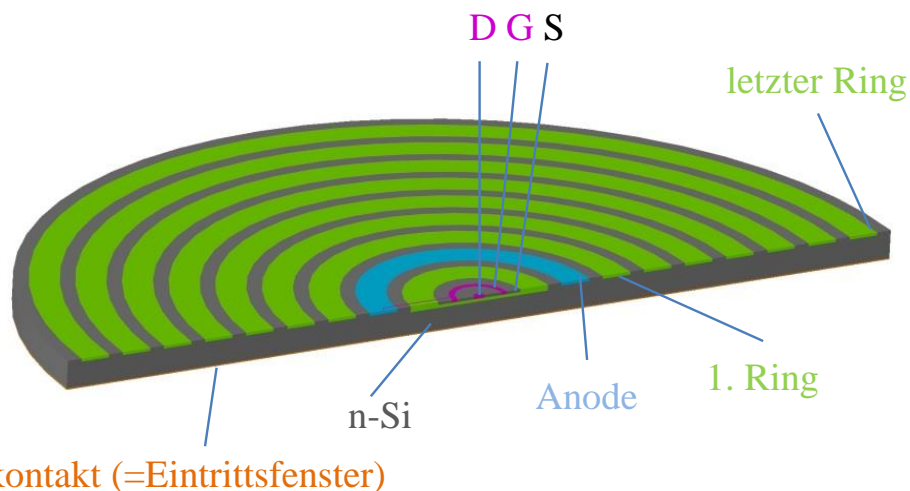


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau eines SDD.

Dargestellt ist der typische Aufbau eines Si-Driftdetektors. In grün dargestellt sind die sog. Driftringe. Der äußerste Ring liegt dabei auf dem negativsten Potential (typ. -130 V), die Anode (blau) auf 0 V. Durch dieses Potentialgefälle driften Elektronen durch das n-Silizium zur Anode. D (drain), G (gate), S (source) kennzeichnen den integrierten JFET-Verstärker. Die nachzuweisende Strahlung tritt durch den Rückkontakt (orange) in das Detektorvolumen ein.

Ein SDD wird charakterisiert durch die vorderseitig aufgetragenen Driftringe. Die äußerste Ringstruktur eines SDD (Abbildung 3.3) liegt auf dem tiefsten Potential (ca. -130 V), während die Anode üblicherweise auf 0 V liegt. Das Potential des rückwärtigen Kontakts liegt etwa bei -60 V. Übliche Substratdicken liegen im Bereich von 300-500 μm . Die durch ionisierende Strahlung im Substrat erzeugten Elektronen wandern entlang den von den Ringelektroden und dem rückwärtigen Kontakt erzeugten elektrischen Feldlinien zur zentralen Anode, während die Löcher an den p^+ dotierten Ringen neutralisiert werden [HXF06].

Der Hauptvorteil eines Si-Driftdetektors ist seine kleine Anodenfläche und damit eine geringe (typischerweise 100 fF) Auslesekapazität. Diese Kapazität ist nahezu unabhängig von der Detektorfläche, da die Ausleselektrode immer die gleiche Fläche besitzt. Da bei Halbleiterdetektoren das elektronische Rauschen die dominante Rauschquelle darstellt, welche proportional zur Kapazität und damit der Anodenfläche ist, ist es bei SDDs möglich besonders rauscharme Systeme zu konzipieren. Durch den als erste Verstärkerstufe direkt auf dem Substrat integrierten JFET³ (Transimpedanzwandler) können außerdem parasitäre Effekte auf dem Weg zum Hauptverstärker minimiert werden. [HXF06].

Die untere Energieschranke für den Nachweis von Photonen wird maßgeblich durch den Rückkontakt definiert, welcher als Strahleintrittsfenster dient. Alle SDDs besitzen eine hohe Quanteneffizienz (Verhältnis Anzahl der produzierten Elektronen-Lochpaare pro deponierter Energiemenge) von über 60% bei 200 eV und über 95% bei Energien über 1 keV [HXF06] sowie eine sehr gute Energieauflösung von 150-250 eV FWHM⁴ bei ca. 6 keV (Photonen). Die hohe Nachweiseffizienz bei niedrigen Energien erlaubt es, das

³ JFET: junction field effect transistor

⁴ FWHM (Full Width at Half Maximum): Breite des Peaks bei halber Peakhöhe.

Tritiumspektrum bis herab zu sehr kleinen Elektronenenergien auszunutzen, insbesondere im Hinblick auf das in Abbildung 3.4 dargestellte Bremsstrahlungsspektrum, welches bei sehr kleinen Energien peakt.

Nach einer gewissen Zeit bzw. einer gewissen, an der Anode gesammelten Ladungsmenge muss der integrierte JFET zurückgesetzt werden. Dies geschieht mit Hilfe eines Löschkontaktes (in Abbildung 3.3 nicht dargestellt), welcher kurzzeitig durch einen externen Puls-Reset-Verstärker auf 0 V gelegt wird (siehe Signalverlauf in Abbildung 3.5).

3.3. Experimenteller Aufbau

Eines der beiden grundlegenden Ziele der vorliegenden Arbeit ist der Aufbau und erfolgreiche Betrieb einer Apparatur zur Messung der Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle. Dazu soll die durch die Zerfallelektronen an einer definierten Stelle erzeugte Röntgenstrahlung analysiert und gezeigt werden, dass es mit einem solchen Aufbau möglich ist, die Aktivität im Rahmen der von KATRIN geforderten Stabilität von kleiner 0,1% zu bestimmen.

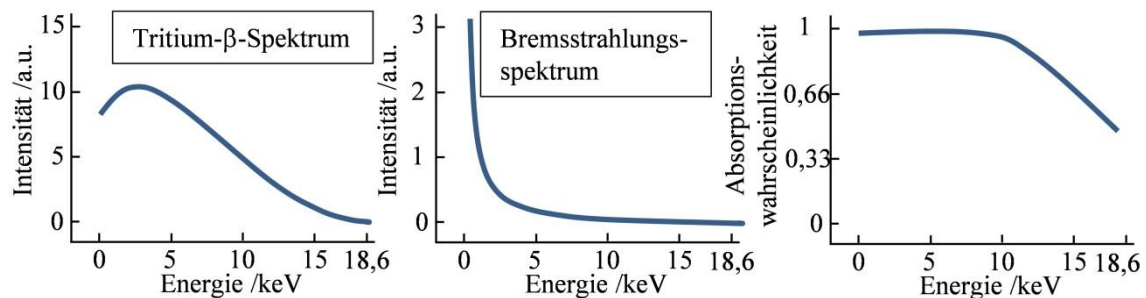


Abbildung 3.4: Vergleich β - und Bremsstrahlungsspektrum und Detektoreffizienz.

Dargestellt ist links ein Tritium β -Spektrum, in der Mitte ein Bremsstrahlungsspektrum und rechts die Absorptionswahrscheinlichkeit eines Röntgenphotons im Si-Driftdetektor (nach [Röll13]).

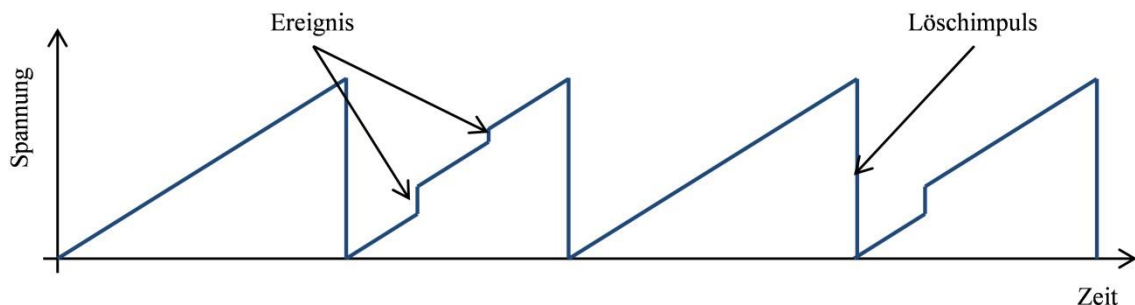


Abbildung 3.5: Ausgangssignal eines SDD.

Dargestellt ist schematisch das Ausgangssignal eines Si-Driftdetektors vor der digitalen Pulsformung. Wird kein Ereignis registriert, so ist das Ausgangssignal eine Rampe. Registrierte Ereignisse zeigen sich als Spannungssprung im Ausgangssignal. Nach Erreichen eines gewissen Schwellwertes wird der Löschimpuls gesetzt und das Signal gelöscht (0 V).

Da es sich bei TriReX um ein tritiumführendes System handelt, sind die speziellen Anforderungen des Tritiumlabors Karlsruhe zu erfüllen. Basierend auf diesen sowie auf den in Kapitel 3.1 beschriebenen physikalischen Anforderungen ergeben sich die in Kapitel 3.3.1 diskutierten technischen Anforderungen.

3.3.1. Technische Anforderungen

Um ein tritiumführendes Experiment aufzubauen und sicher zu betreiben, wurden im TLK die „Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen“ (TLA) definiert [TLA13]. Diese bestimmen z.B. die im Experiment zulässigen Materialien, Leckraten von Verbindungen sowie die zu verwendende Dichtungssysteme.

Neben den aus den TLAs resultierenden Anforderungen an die technische Ausführung des Aufbaus von TriReX sind insbesondere auch die physikalischen Anforderungen (Kapitel 3.1) zu berücksichtigen, um die gestellten Fragen beantworten zu können.

Daraus resultieren die folgenden Rahmenbedingungen für TriReX:

- **Materialien und Leckraten**
Das Primärsystem (= tritiumführendes System) ist nach den TLA ganzmetallisch aufzubauen. Einzelverbindungen müssen He-Leckraten $< 10^{-9}$ mbarl/s und das Gesamtsystem eine He-Leckrate $< 10^{-8}$ mbarl/s aufweisen. Daraus resultiert die Verwendung von UHV-kompatiblen Vakuumbauteilen aus Edelstahl mit metallischen Dichtungen (Conflat CF ®-System oder Swagelok ® VCR).
- **Aktivität**
Aufgrund der Aktivität von ca. 10^{11} Bq muss das Experiment innerhalb einer zweiten Hülle aufgebaut werden. Dabei handelt es sich um eine Handschuhbox, welche eine Leckrate von $< 0,1$ Vol.%/h aufweisen muss [TLA13]. Dementsprechend wurde eine im TLK existierende Handschuhbox (ALTEX) zum Aufbau ausgewählt.
- **Druck**
Um gasförmiges Tritium im benötigten Druckbereich von 10^{-5} – 1 mbar zur Verfügung stellen zu können, ist TriReX mit einer Turbomolekularpumpe ausgestattet. Zur Druckmessung kommen ganzmetallische, kapazitive sowie piezoresistive Drucksensoren zum Einsatz.
- **Nachweissystem**
Das verwendete Nachweissystem für Röntgenstrahlung muss in der Lage sein die Anforderungen im Hinblick auf die Zeitauflösung und Zählrate zu erfüllen. Außerdem sollte der Betrieb in Magnetfeldern möglich sein und das System sollte eine einfache Handhabung ohne zusätzliche Versorgungsmedien (Kühlwasser, LN₂, etc.) besitzen. Aus diesen Gründen wird ein Silizium-Driftdetektor mit dazu passender Ansteuerungs- und Auswertelektronik (DAQ) verwendet.
- **Bremstrahlung erzeugendes Element**
Da für die spätere KATRIN-*Rear Wall* ein Schichtsystem aus Gold/Beryllium zum Einsatz kommen könnte, wird auch in TriReX ein derartiges System ver-

wendet. Die *Rear Wall* wird in TriReX durch ein Be-Fenster dargestellt, welches in einem CF-Flansch verlötet wird. Dieses kommerziell erhältliche Teil wird mit einer Goldschicht von ca. 120 nm versehen. Aufgrund der hohen Kernladungszahl ($Z = 79$, vgl. Gleichung 3.4 - 3.6) von Gold wird Röntgenbremsstrahlung durch β -Elektronen dort besonders effektiv produziert. Umgekehrt handelt es sich bei der Be-Trägerschicht von ca. 250 μm Dicke um ein Material mit sehr niedriger Kernladungszahl ($Z = 4$, vgl. Gleichung 3.7 - 3.8). Demzufolge beginnt es bereits für Röntgenstrahlung ab ca. 2 keV transparent zu werden (Transmission $> 3\%$ [PyM45]). Aufgrund der Geometrie wird dieses Be-Fenster in TriReX gleichzeitig auch als Schutzfenster für den Röntgendeckektor und für die Permeationsmessungen dienen.

- **Führung von Elektronen**

Es wird eine wassergekühlte Luftspule mit einer maximalen Feldstärke von $B = 0,12 \text{ T}$ zum Einsatz kommen. In der Bohrung dieser Spule befindet sich der Rezipient von TriReX, so dass Zerfallselektronen magnetisch auf das bremsstrahlungserzeugende Element geführt werden.

- **Adsorption**

Um die geforderten Messungen zur Adsorption von Tritium auf Gold durchführen zu können, verwendet TriReX ein zweites, dem Detektorschutzfenster gegenüberliegendes Be-Fenster, welches ebenfalls vergoldet ist. Dieses trägt außerdem der Tatsache Rechnung, dass es sich bei TriReX im Gegensatz zur KATRIN-WGTS nicht um ein offenes System handelt. Man erhält durch ein zweites, vergoldetes Be-Fenster eine Referenzfläche, welche dieser wichtigen Tatsache Rechnung trägt.

- **Tritiumversorgung und -entsorgung**

Die Versorgung mit gasförmigem Tritium wird über verschiedene Probenahmezylinder (PNZ) erfolgen. Diese werden mit Hilfe des TLK-Infrastruktursystems mit Tritium befüllt, welches nach der Montage des PNZ an TriReX in den evakuierten Rezipienten expandiert wird. Die Abgabe nach einer Messung erfolgt unter Zuhilfenahme der TMP in TriReX an die TLK-Infrastruktursysteme (CAPER [Dör05]).

3.3.2. Aufbau des Testexperiments TriReX

Der schematische Aufbau von TriReX ist in Abbildung 3.6 dargestellt. TriReX besitzt drei Hauptvolumina. Es sind dies das

- Elektronikvolumen,
- Detektorvolumen,
- Rezipientenvolumen,

sowie zusätzlich die Verrohrung und das Vakuumsystem. Aus experimenteller Sicht beschränkt sich dabei das Primärsystem auf den Rezipienten einschließlich der angeschlossenen Verrohrung. Da es sich genehmigungsrechtlich [TLA13] bei einem 250 μm dicken Berylliumfenster nicht um einen gültigen Abschluss eines Primärsystems handelt

(Bruchgefahr und damit Austritt von Tritium), sind auch Elektronik- und Detektorvolumen nach den stringenten Richtlinien für Primärsysteme ausgelegt. Im Falle des Versagens des Be-Fensters würde jedoch der Detektor so stark Oberflächenkontaminiert, dass weitere Messungen nicht mehr durchgeführt werden könnten (d.h. ein zu hohes Untergrundsignal).

Der Zwischenflansch verbindet den Rezipienten mit dem Elektronikvolumen, während der Abschluss zum Rezipienten durch das goldbeschichtete Be-Fenster gegeben ist. Das sich im Zwischenflansch befindliche Detektorvolumen kann evakuiert werden. Dies ist notwendig, da der verwendete Detektor kein zusätzliches Schutzfenster besitzt. Ein Betrieb des SDDs ist daher nur unter trockener Atmosphäre oder Vakuum zulässig, da Restfeuchte am ca. 240 K kalten SDD-Chip anfrieren würde. Mit Hilfe einer Scrollpumpe⁵ kann das Detektorvolumen auf ca. $5 \cdot 10^{-3}$ mbar evakuiert werden. Den Abschluss des Detektorvolumens seitens des Elektronikvolumens bildet ein DN40 CF Flansch, in welchen wiederum der Detektorfinger eingeschweißt ist.

Den Abschluss der Kernkomponenten bildet das Elektronikvolumen. Dieses beinhaltet die analoge Verstärkerelektronik des Driftdetektors. Da es sich hierbei um eine nicht vakuumtaugliche Elektronik handelt, befindet sich dieser Teil stets auf Umgebungsdruck.

Der Detektor selbst besitzt eine He-Leckrate von ca. $10^{-7} - 10^{-6}$ mbarl/s vom Elektronikvolumen in das Detektorvolumen. Daher muss die verwendete Scrollpumpe am Detektorvolumen kontinuierlich laufen, um einen Druck ca. $5 \cdot 10^{-3}$ mbar aufrecht zu erhalten.

Die benötigten Magnetfelder werden von einer wassergekühlten Spule bereitgestellt. Zum Erreichen der maximalen Feldstärke von 0,12 T sind Ströme bis zu 150 A bei ca. 20 V notwendig, was spezielle Anforderungen an die elektrischen Durchführungen stellt. Die elektrische Versorgung der Spule erfolgt durch ein spezielles Hochstromnetzteil. Zur Kühlung der Spule wird ein separater Wasserkreislauf verwendet, welcher über einen Wärmetauscher an das laborweite Prozesskühlwasser angebunden ist.

Weitere, zum Betrieb von TriReX benötigte Komponenten sind (Abbildung 3.7):

- **Temperatur- und Drucksensorik**
Zur Überwachung der Temperatur der wassergekühlten Luftspule und der Detektorelektronik sind mehrere Pt1000-Sensoren angebracht. Der Druck wird an verschiedenen Stellen im System mit ganzmetallischen Druckaufnehmern (Bezeichnungen siehe Anhang D) gemessen.
- **Handventile**
Zum Abtrennen verschiedener Bereiche des verfahrenstechnischen Aufbaus werden ganzmetallisch dichtende Handventile (Typ Swagelok[®] SS-8-BG-V51) verwendet. Mit Hilfe dieser Elemente können definierte Gasmengen aus dem Probenahmezylinder in das Experiment geleitet, bzw. durch die TMP abgepumpt werden.

⁵ Auch Spiraltaumelpumpe genannt.

- **Vakuumpumpe**

Zur Erzeugung des notwendigen Drucks von ca. 10^{-5} mbar im TriReX-Aufbau wird eine TMP vom Typ „Oerlikon-Leybold Turbovac SL80[®]“ verwendet. Der zum Betrieb der TMP notwendige Vordruck ($p \leq 5$ mbar) wird durch die CAPER-Anlage [Dör05] zur Verfügung gestellt.

Das Kernstück des Aufbaus ist der in TriReX verwendete Detektor. Es handelt sich hierbei um einen KETEK[®] AXAS M1 mit integrierter Kühlung (im Folgenden als Detektor bezeichnet, Abbildung 3.8 links) und dazu passender Datenerfassungseinheit und Netzteil AXAS M2 [Ket13] (im Folgenden DAQ⁶ genannt).

Der Detektor einschließlich des Kühlfingers besitzt eine Gesamtlänge von ca. 345 mm und beinhaltet den SDD (Vitus H80), die Kühlung des SDD-Chips mittels Peltierelement (auf ca. 240 K) sowie die analoge Verstärkerelektronik. Der in TriReX zum Einsatz kommende Detektor wurde vom Hersteller nach Kundenspezifikation mit einem DN40 CF-Flansch auf dem Detektorfinger versehen. Mit diesem wird der Detektor in TriReX montiert und gleichzeitig ausgerichtet. Der Detektorkopf (Abbildung 3.8 rechts) besteht aus dem eigentlichen SDD-Chip mit 80 mm^2 aktiver Fläche, einem Peltierkühler sowie (in der Standardausführung) einem $25 \mu\text{m}$ dicken Be-Schutzfenster. Um eine Abschwächung der Röntgenstrahlung zu vermeiden, wurde das Fenster beim in TriReX verwendeten Detektorsystem jedoch nicht implementiert.

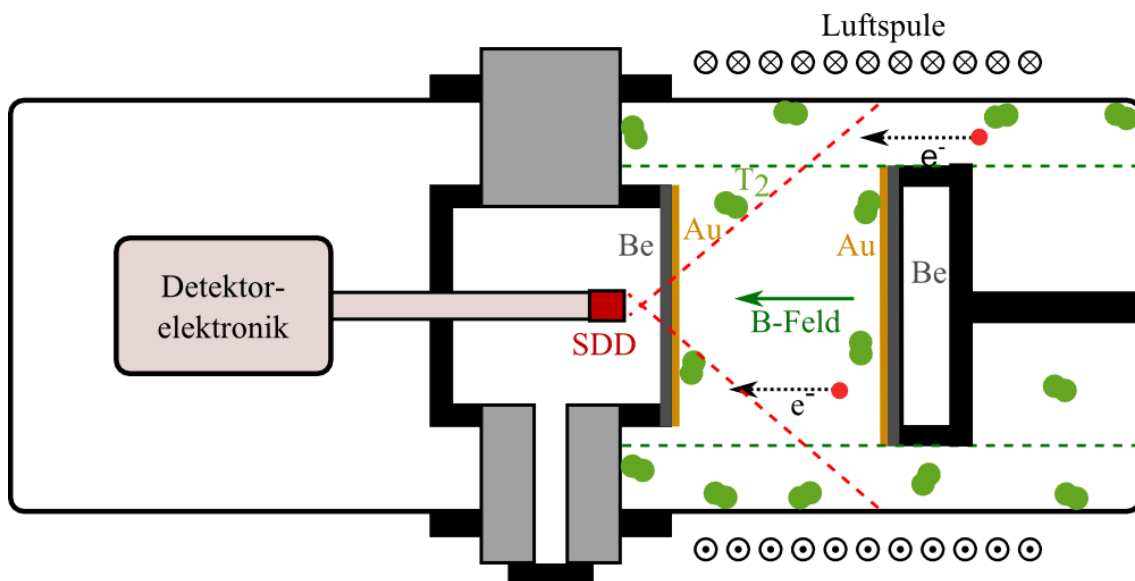


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der TriReX Hauptkomponenten.

Nicht maßstäblich dargestellt sind die drei Hauptvolumina des TriReX-Aufbaus, Elektronikvolumen (V_E), Detektorvolumen (V_D) und Rezipient (V_R). Die rot gestrichelten Linien markieren den Sichtbereich des Detektors (nach [Bab12]). Die Referenz Be/Au Fläche ist vakuumdicht von hinten verschlossen.

⁶ DAQ: Data Acquisition Unit

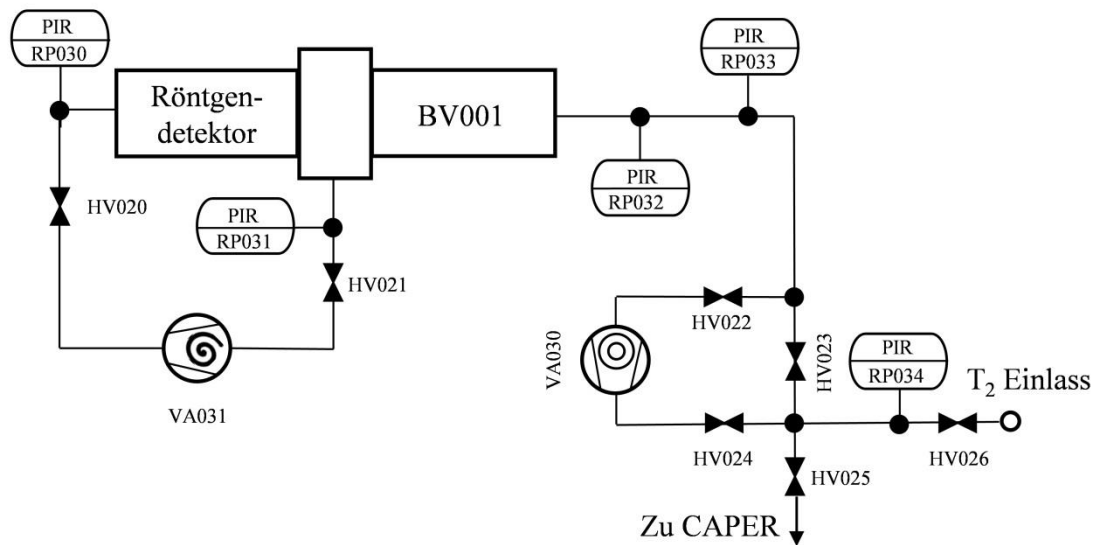


Abbildung 3.7: Fließbild des TriReX-Aufbaus.

Die Abbildung zeigt das verfahrenstechnische Schema von TriReX. Nicht eingezeichnet sind die wassergekühlte Luftspule sowie die Temperaturmessstellen. PIR bezeichnet eine Druckmessstelle (*pressure indicating and recording*), HV ein Handventil und VA eine Vakuumpumpe.

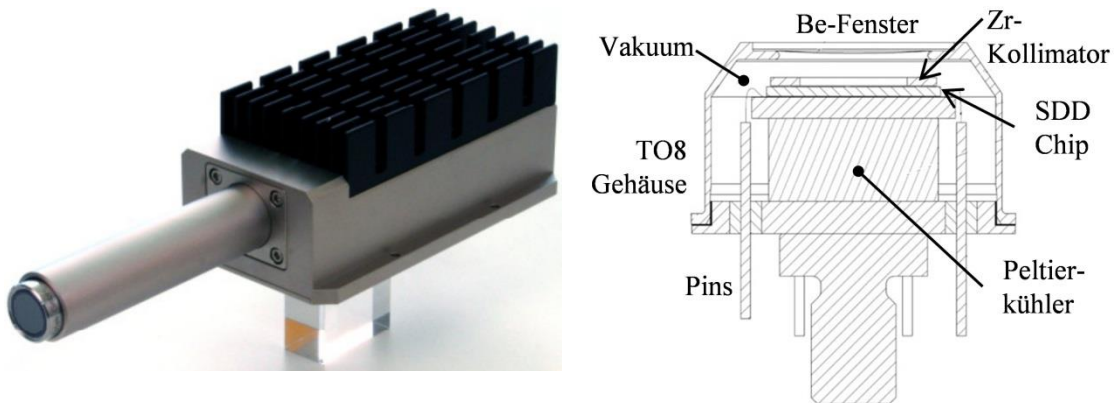


Abbildung 3.8: KETEK AXAS M1 Detektor.

Links dargestellt ist der KETEK AXAS M1 Detektor (Variante mit Be-Schutzfenster). Unter dem Kühlkörper befindet sich die analoge Verstärkerschaltung. Integriert in das Gehäuse ist die SDD-Kühlung mittels Peltierelement. Rechts gezeigt ist ein schematischer Querschnitt durch den SDD-Teil mit Be-Schutzfenster und Peltierkühler. Der Durchmesser beträgt ca. 20 mm [Ket13].

Im DAQ-System findet eine weitere, analoge Pulsformung sowie die Analog-Digital-Umsetzung statt. Das DAQ wird per USB mit dem Steuer- und Speicher-PC verbunden. Mit Hilfe der KETEK-Aufnahmesoftware können Messdaten aufgenommen und gespeichert sowie verschiedene Einstellungen des Detektorsystems vorgenommen werden.

Nähere Informationen zur verwendeten Instrumentierung und Messwertaufnahme sowie zu den eingesetzten Vakuumpumpen und der Luftspule können einer im Rahmen dieser Arbeit betreuten Diplomarbeit [Röl11] entnommen werden.

3.4. Inbetriebnahme von TriReX

Bevor mit dem TriReX-Aufbau Messungen durchgeführt werden können, müssen verschiedene, später nicht mehr zugängliche Parameter und Größen bestimmt werden. Dies betrifft vor allem das verwendete Detektorsystem sowie das goldbeschichtete Berylliumfenster.

Weitere Messungen zur Inbetriebnahme sind aufgrund der speziellen Sicherheitsbestimmungen („verfahrenstechnische Inbetriebnahme nach Strahlenschutzanweisung“) gefordert [TLA13]. Diese betreffen das komplett aufgebaute System im TLK.

3.4.1. Charakterisierung des verwendeten Detektors

Um im späteren Betrieb mit Tritium eine optimale Leistung des verwendeten Detektorsystems zu erreichen, müssen verschiedene Parameter vor dem Einbau in TriReX systematisch untersucht werden. Aus diesem Grund wurden neben der Bestimmung des intrinsischen Detektoruntergrunds die für die Verwendung des Detektorsystems als Aktivitätsmonitor für Tritium optimalen Betriebsparameter ermittelt. Diese werden im Folgenden erläutert und es werden die gewählten Einstellungen beschrieben. Sämtliche Messungen wurden mit einer ^{241}Am -Quelle durchgeführt (Anhang A). Diese stellt durch sechs verschiedene, metallische Filterfolien, welche im Primärstahl des ^{241}Am -Präparats platziert werden können, mehrere charakteristische Röntgenfluoreszenzlinien bereit mit Energien zwischen 8,04 keV (Cu $K\alpha$) bis 50,65 keV (Tb $K\beta$).

Gain

Die Einstellung des Verstärkungsparameters *Gain* ermöglicht das Spreizen der Energie- bzw. Kanalachse des Impulshöhenspektrums. Dabei wird die Kanalnummer mit der jeweiligen Einstellung der *Gain* multipliziert und Zwischenwerte werden interpoliert. Diese Einstellung hat keine Auswirkung auf die physikalische Auflösung des verwendeten Detektors. Jedoch bleiben die höherenergetischen Ereignisse unberücksichtigt, da von der Messwertaufnahme-Software nur die maximal ersten 8192 Kanäle dargestellt werden. Da beim Zerfall von Tritium eine maximale Energie von 18,6 keV zur Produktion von Röntgenphotonen bereitgestellt wird, wird die Einstellung des *Gain* so gewählt, dass Ereignisse mit einer Energie $0 \leq E_g \leq 19$ keV dargestellt werden. Dies entspricht einer Einstellung des *Gain*-Faktors von $G = 10$. Um die im weiteren Verlauf beschriebenen Kalibriermessungen durchführen zu können, wurde ein *Gain*-Faktor von $G = 7$ gewählt. Mit dieser Einstellung konnten dann Fluoreszenzlinien bis ca. 23 keV registriert werden.

Threshold

Der Schwellenparameter *Threshold* gibt an, bis zu welcher unteren Energieschranke noch Ereignisse im Detektor registriert werden. Wird dieser Wert zu tief gewählt registriert der Detektor „Ereignisse“, welche von Leckströmen und elektronischem Rauschen erzeugt werden. Dadurch steigt die Totzeit des Detektorsystems entsprechend dem exponentiellen Anstieg des Rauschpeaks stark an. Wird der *Threshold*-Parameter zu hoch gewählt können unter Umständen echte Ereignisse verloren gehen und die Zählrate sinkt und damit die Sensitivität. Nach Daten von [NIS04] ist die Transmission von

Röntgenstrahlung mit einer Energie $E_\gamma \leq 1,5$ keV durch das verwendete 250 μm dicke Be-Fenster $\leq 0,05\%$. Bei einem gewählten *Gain*-Faktor von $G = 10$ entspricht dies der Kanalnummer 638 im Impulshöhenspektrum. Durch den für Siliziumdrift-Detektoren charakteristischen, schnellen Abfall des Rauschpeaks am niederenergetischen Ende des Impulshöhenspektrums kann ein *Threshold* von $T = 5$ gewählt werden, was Kanalnummer 80 oder einer deponierten Energie von 180 eV entspricht.

Die wahrscheinlichste Energie beim Zerfall des Tritiums liegt bei $E_\gamma = 5,9$ keV mit einem starken Abfall der Rate hin zu kleineren Energien (siehe dazu Abbildung 2.5). Mit der gewählten Einstellung von $T = 5$ (entsprechend 180 eV) wird trotz des in Abbildung 3.1 gezeigten Verhaltens nur ein sehr kleiner Anteil der später in TriReX zu erwartenden Zählrate verworfen.

Shaping Time

Als *Shaping Time* wird die Zeitspanne bezeichnet, welche dem System zur Pulsformung und Energieanalyse zur Verfügung gestellt wird. Die Einstellung dieses Parameters stellt oft einen Kompromiss dar zwischen der erreichbaren Energieauflösung einerseits und der erreichbaren Zählrate andererseits. Lange Shaping-Zeiten garantieren, dass das gesamte Ereignis bei der Pulsformung berücksichtigt wird und dass sich Rauschanteile herausmitteln. Dadurch steigt jedoch auch die Totzeit des Detektorsystems und die maximale Zählrate sinkt. Kurze Shaping-Zeiten wirken sich negativ auf die erreichbare Auflösung aus. Außerdem steigt der Rauschanteil. Die auf das Detektorsystem angepasste Anwendersoftware erlaubt eine Einstellung der Shaping-Zeit in diskreten Schritten zwischen 1,32 μs und 13,3 μs .

In [Röll11] wurde die erreichbare Auflösung des Detektors in Abhängigkeit von der Shaping-Zeit untersucht. Dazu wurde die Silberfluoreszenz bei 22,1 keV ($K\alpha$ und $K\beta_{1,3}$) benutzt und die Abhängigkeit der FWHM von der Shaping-Zeit ermittelt. Es ergab sich keine eindeutige Abhängigkeit zur Optimierung, so dass ein mittlerer Wert von 6,1 μs gewählt wurde. Dies ermöglicht die zuverlässige Pulsformung bei den in TriReX erwarteten Zählraten von $10^3 - 10^5$ Ereignissen/Sekunde.

Detektoruntergrund

Nachdem die für den vorgesehenen Einsatzzweck optimierten Parameter des Detektors gefunden waren, musste der Detektoruntergrund ermittelt werden. Dieser bestimmt später die untere Nachweisschwelle bezüglich der Tritiumaktivität in TriReX. Quellen dafür können sein:

- natürliche Radioaktivität in der Umgebungsluft (^{222}Rn),
- natürliche Radioaktivität in Materialien des Aufbaus (z.B. ^{50}Cr aus Edelstahl),
- myoninduzierte Ereignisse aufgrund kosmischer Strahlung,
- kurzlebige Radionuklide aus dem Reaktorunfall in Tschernobyl sowie von oberirdischen Atomwaffentests,
- Kontamination des Stahls bei der Herstellung durch Verwendung kontaminierter oder aktivierter Rohmaterialien.

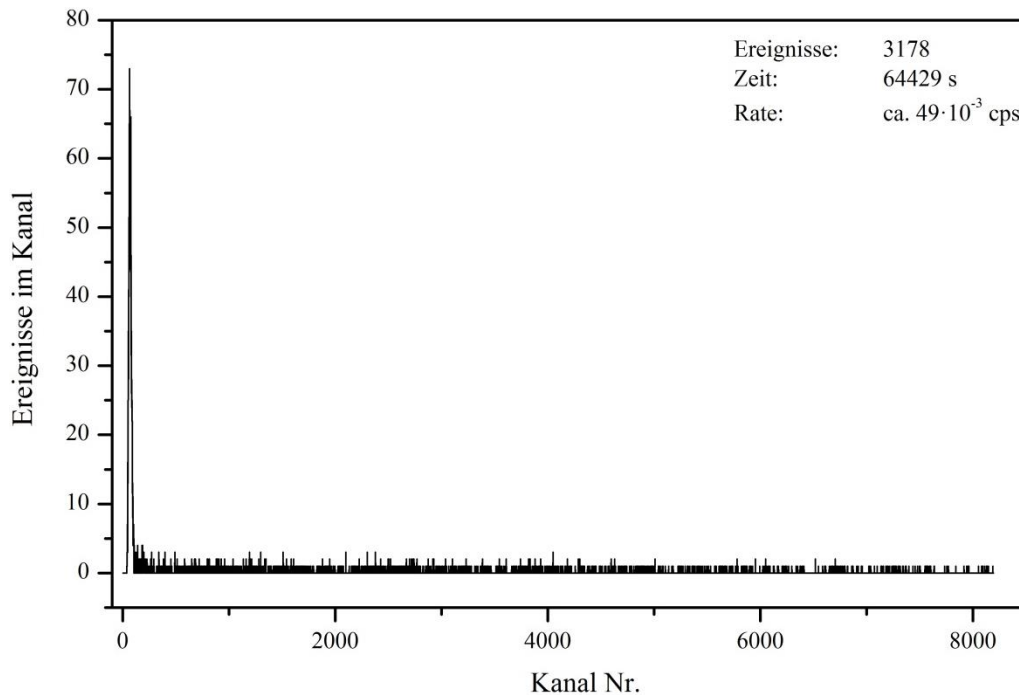


Abbildung 3.9: Untergrundsignal des TriReX SDD.

Dargestellt ist das Untergrundsignal, aufgenommen im Institut für Kernphysik am KIT Campus Nord. Gut zu erkennen ist links im Spektrum der Rauschpeak. Das Maximum liegt ca. bei Kanalnummer 65, entsprechend einer Energie von ca. 150 eV. Das Untergrundsignal stellt das Ergebnis von ca. 18 Stunden Messzeit dar.

Abbildung 3.9 zeigt das Ergebnis der Messung des Untergrundes. Daraus kann man den Detektoruntergrund im Energieintervall von 0,18 – 20 keV zu

$$\dot{N}_{\text{Untergrund}} = \frac{N_{\text{gesamt}}}{t_{\text{gesamt}}} \pm \frac{\sqrt{N_{\text{gesamt}}}}{t_{\text{gesamt}}} = (49,04 \pm 0,87) \cdot 10^{-3} \text{ cps} \quad (3.11)$$

bestimmen.

Reduziert man die Daten um die niederenergetischen Ereignisse der ersten 80 Kanäle, so erhält man $(25,71 \pm 0,63) \cdot 10^{-3} \text{ cps}$ ⁷. Diese Vorgehensweise kann man dadurch begründen, dass der Rauschpeak in einer späteren Datenauswertung nicht berücksichtigt wird. Außerdem entspricht der Bereich von Kanal 0 - 80 einer Energie $E < 0,18 \text{ keV}$ (siehe Abschnitt Energiekalibrierung), für welchen das verwendete Be-Fenster nur zu einem kleinen Bruchteil ($< 0,05\%$, siehe Abschnitt Threshold) transparent ist.

Energiekalibrierung

Unter der Energiekalibrierung des Detektors versteht man (bei einem festen Wert für den Gain) die Zuordnung einer Kanalnummer im Impulshöhenspektrum zu einer Energie. Man erhält dadurch eine Zuordnung der Art

⁷ Die Einheit cps steht für *counts per second* und gibt die Ereignisrate an für Poisson-verteilte, nichtperiodische Signale. Nur bei periodischen Signalen findet die Einheit Hz Anwendung.

$$E \text{ (in eV)} = F \cdot x - 0 \quad (3.12)$$

wobei F der experimentell zu ermittelnde Kalibrierfaktor ist, x die Kanalnummer und 0 einen Offset auf die Kalibriergerade darstellt. Die Kalibrierung wird durchgeführt, indem mit dem nicht kalibrierten System ein Spektrum eines bekannten Kalibrierpräparats aufgenommen wird (Abbildung 3.10). Aufgrund der Kenntnis des Präparats und der Energien der Fluoreszenzlinien kann dann eine Zuordnung der aufgezeichneten Fluoreszenzlinien im Spektrum erfolgen.

Da der Betrieb des Detektors nur unter Vakuum zulässig ist (Kapitel 3.3.2), musste der Detektor in einen entsprechenden Vakuumaufbau montiert werden. Typischerweise bestehen Vakuumkomponenten aus Edelstahl. Diese Eisenbasislegierung beinhaltet als häufigstes Legierungselement Chrom, welches zusammen mit Eisen und dem Zirkonium des Detektorkollimators im Kalibrierspektrum sichtbar wird.

Nachdem die Kalibrierspektren aufgenommen und mit Hilfe von Daten aus [XDB09] identifiziert wurden, konnten die einzelnen Fluoreszenzlinien mittels Ausgleichsrechnung mit Gauß-Kurven angenähert werden.

Man erhält so die beiden gesuchten Parameter aus Gleichung 3.12 zu

$$E \text{ (in eV)} = (2,3407 \pm 0,00072) \frac{\text{eV}}{\text{Kanal}} \cdot x - (11,0 \pm 5,1) \text{ eV} \quad (3.13)$$

Aus den Daten der Rb $K\alpha$ Linie ($E_\gamma = 13,37 \text{ keV}$) (Abbildung 3.10) wurde die Auflösung des Detektorsystems (FWHM) zu $(202,4 \pm 22,6) \text{ eV}$ bestimmt.

3.4.2. Verfahrenstechnische Inbetriebnahme

Bei der Bestimmung der He-Leckrate des goldbeschichteten Be-Fensters wurde der in Abbildung 3.11 dargestellte Aufbau verwendet. Zur Beaufschlagung des Rezipienten fand Helium 6.0⁸ Verwendung. Mit Hilfe dieses Aufbaus konnte neben der eigentlichen Leckrate auch eine mögliche Permeation von He durch das Be-Fenster untersucht werden. Das Ergebnis der insgesamt ca. 290 h umfassenden Messzeit ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Es wurden keine Anzeichen einer Leckage oder Permeation innerhalb des Messzeitraumes gefunden. Bei den in Abbildung 3.12 mit a)-c) gekennzeichneten Linien wurde der Leckdetektor ab- und wieder angeschlossen. An der mit d) gekennzeichneten Position wurde der Rezipient mit Laborluft geflutet, um evtl. noch vorhandenes Helium anschließend besser evakuieren zu können. Die Ergebnisse liegen mit $5 \cdot 10^{-11} \text{ mbarl/s}$ um ca. 1,5 Größenordnungen unterhalb der Spezifikation des Herstellers⁹ ($q < 10^{-9} \text{ mbarl/s}$). Zur Bestimmung des intrinsischen Detektoruntergrunds wurde im fertig aufgebauten TriReX Aufbau die Zählrate vor der ersten Beaufschlagung des Rezipienten mit Tritium bestimmt (Abbildung 3.13). Diese muss bei der erwarteten Zählrate von ca. $10^3 - 10^4 \text{ cps}$ kleiner als die nachzuweisenden Schwankungen in der Aktivität von 0,1% ($< 1 - 10 \text{ cps}$) sein. Die erzielte Untergrundrate von $< 5,64 \cdot 10^{-3} \text{ cps}$ ist um

⁸ Helium 6.0 entspricht einer Reinheit des Heliums von 99,9999%.

⁹ Brush-Wellman/Electrofusion, jetzt Materion.

einen Faktor von $\approx 10^3$ kleiner als die Minimalanforderung und limitiert das System daher nicht. Die Untergrundzählrate ist bei stabilen Betriebsbedingungen (Temperatur, Druck) als konstant zu betrachten.

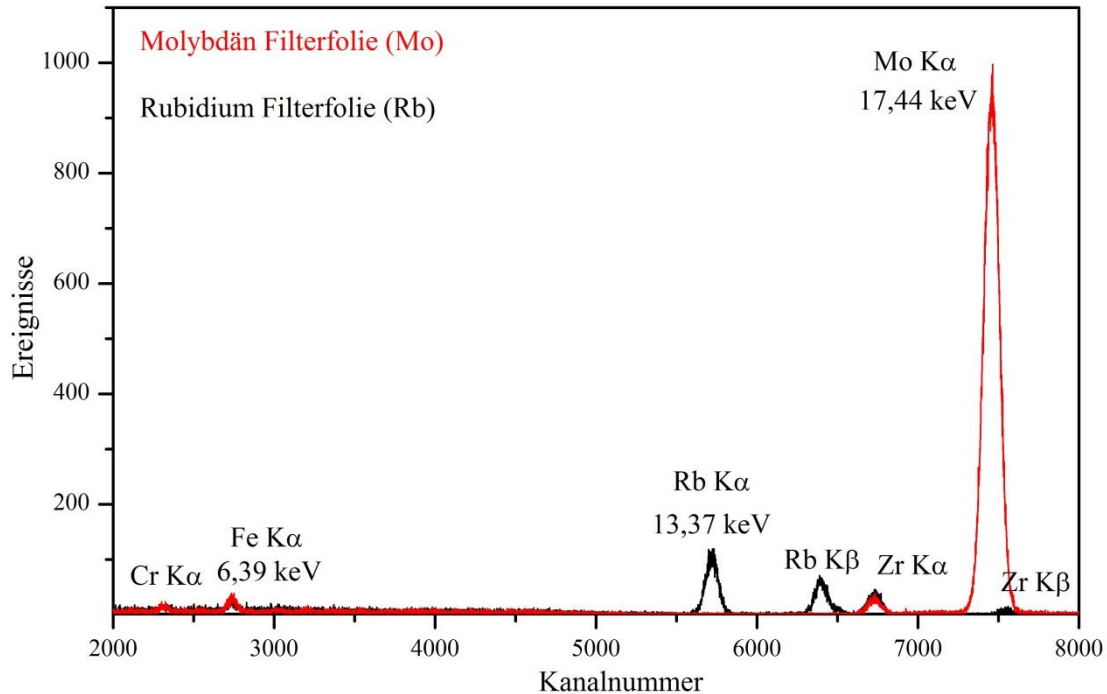


Abbildung 3.10: Kalibrierspektrum einer ^{241}Am Quelle mit Filterfolien.

Dargestellt in schwarz ist das Spektrum bei Verwendung der Rb-Filterfolie ($t_{\text{mess}} = 86807 \text{ s}$) und rot das der Mo-Filterfolie ($t_{\text{mess}} = 73650 \text{ s}$). Zirkon (Zr) ist Bestandteil des Detektorkopfes (Zr-Kollimator), Eisen (Fe) und Chrom (Cr) sind die Hauptbestandteile des Edelstahls aus dem Versuchsaufbau.

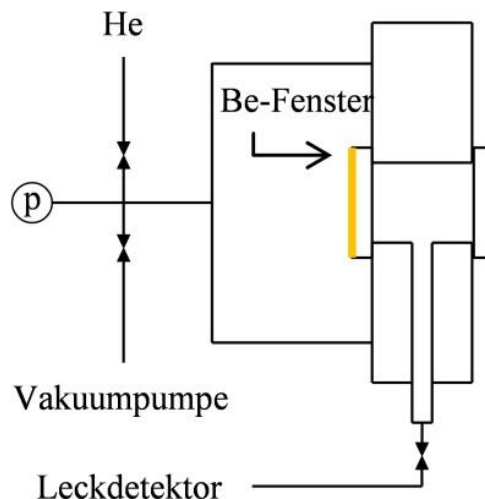


Abbildung 3.11: Versuchsaufbau zur Bestimmung der He-Leckrate.

Dargestellt ist schematisch der Aufbau zur Bestimmung der He-Leckrate und Permeation von He durch das goldbeschichtete Be-Fenster. Mit der verwendeten Membranvakuumpumpe konnte ein Enddruck von ca. 1 mbar erzielt werden.

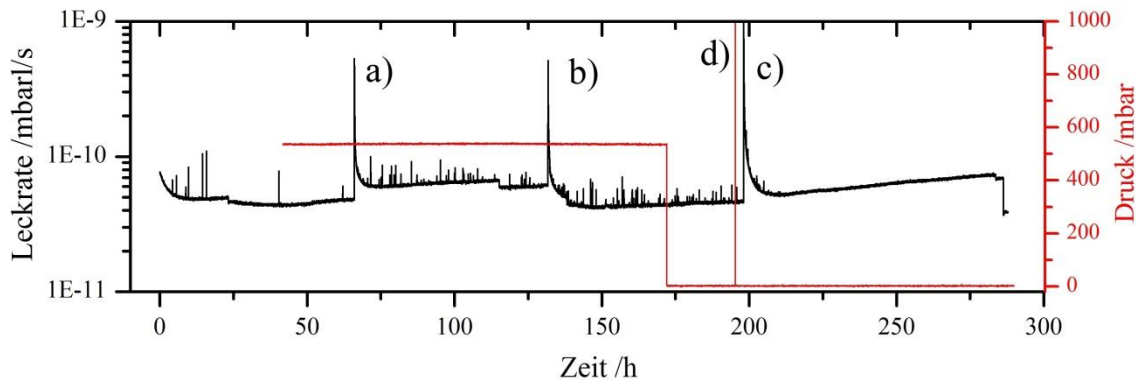


Abbildung 3.12: Langzeitlecktest des TriReX-Be-Fensters.

Dargestellt ist in rot der He-Druck (He 6.0) im Rezipienten und in schwarz die gemessene Leckrate, welche mit Hilfe eines He-Leckdetektors (Adixen ASM 122D) bestimmt wurde. Man erkennt keinen Unterschied im Signal des Leckdetektors zwischen befülltem und evakuiertem Rezipienten.

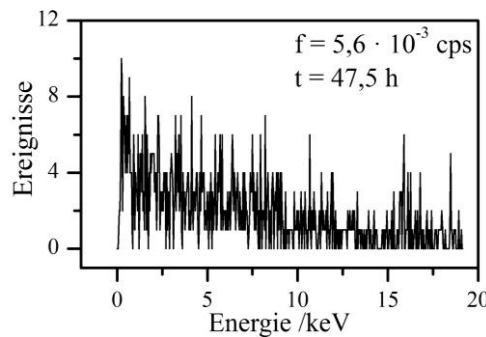


Abbildung 3.13: Intrinsischer Detektoruntergrund im TriReX Aufbau.

Dargestellt sind die Untergrundereignisse (16-fach gebinnt zur besseren Darstellung) im Detektor als Impulshöhenspektrum während einer Messung von $t = 47,51$ h. Es fanden integral 965 Ereignisse im gesamten Energiebereich statt. Dies führt zu einer Untergrundrate von $5,6 \cdot 10^{-3}$ cps. Gerade noch erkennbar ist der Anstieg im niederenergetischen Ende des Spektrums durch den Rauschpeak des Detektors im gebinnnten Impulshöhenspektrum.

Da der Untergrund des Silizium-Driftdetektors derart gering ist, wird auf eine Korrektur bei den späteren Tritiummessungen (Kapitel 3.5) verzichtet. Aufgrund seiner einfachen Handhabung sowie seiner überlegenen Charakteristik (niedriger Untergrund, niedrige untere Nachweisschwelle von wenigen eV) im Vergleich zu anderen Röntgendetektorsystemen (z.B. NaJ Kristalle) eignet sich ein Si-Driftdetektor hervorragend für den Einsatz als stabiler Langzeit-Aktivitätsmonitor für Tritium.

3.5. Aktivitätsmessungen einer gasförmigen Tritiumquelle

Dieses Kapitel behandelt Ergebnisse aus Messungen, welche mit dem TriReX-Aufbau und Tritium als Quelle für β -Elektronen durchgeführt wurden. Es werden ausschließlich Ergebnisse präsentiert, welche nach einer Änderung am TriReX Aufbau erhalten wurden. Diese Umbauten beinhalten eine Änderung des Abstands der in TriReX verbauten, goldbeschichteten Be-Fenster sowie einer weiteren Optimierung des Vakuumsystems. Außerdem wurde ein Testvolumen angebracht, mit welchem Volumenänderungen (und

damit Aktivitätsänderungen) im Bereich von 0,2% erzeugt werden können. Das im Vergleich zu ([Röll11], [Höv12]) geänderte R&I Schema findet sich in Anhang C.

Die aus experimenteller Sicht wichtigste Änderung betrifft den Abstand der goldbeschichteten Be-Fenster (Abbildung 3.14). Während das detektorseitige Fenster neben der Produktion von Bremsstrahlung auch zum Schutz des SDD vor der Tritiumatmosphäre dient, dient das gegenüberliegende Fenster als Referenzoberfläche für Adsorptionsmessungen (Abbildung 3.6).

Das als Referenzoberfläche dienende Be-Fenster kann innerhalb des Rezipienten durch Wechseln seiner Halterung näher an das Detektorschutzfenster gesetzt werden. Dadurch steigt der relative Anteil der Goldoberfläche, welche im für den Detektor sichtbaren Bereich des Rezipienten liegt. Somit werden Fluoreszenzphotonen und Bremsstrahlungsphotonen, welche nicht in den sichtbaren Goldflächen sondern an Edelmetalloberflächen entstehen, effektiver unterdrückt. Gleichzeitig wird jedoch auch das für den Detektor sichtbare Volumen verkleinert (Bereich zwischen den gestrichelten Linien) und damit bei gleichbleibendem Druck auch die Aktivität.

Daher beträgt die effektiv zur Verfügung stehende (für den Detektor „sichtbare“) Aktivität nach der Umrüstung maximal ca. $7 \cdot 10^9$ Bq und nicht mehr wie zuvor 10^{11} Bq. Da eines der Ziele von TriReX darin bestand die Adsorption von Tritium auf Gold zu bestimmen, wurde diese Reduktion in der sichtbaren Aktivität jedoch in Kauf genommen.

Die Ergebnisse der Messungen mit dem ursprünglichen Aufbau (größerer Abstand der goldbeschichteten Be-Fenster) können in [Röll11] und [Höv12] gefunden werden. In [Röll11] finden sich darüber hinaus detaillierte Informationen zur Inbetriebnahme des in Abbildung 3.15 abgebildeten, ursprünglichen experimentellen Aufbaus.

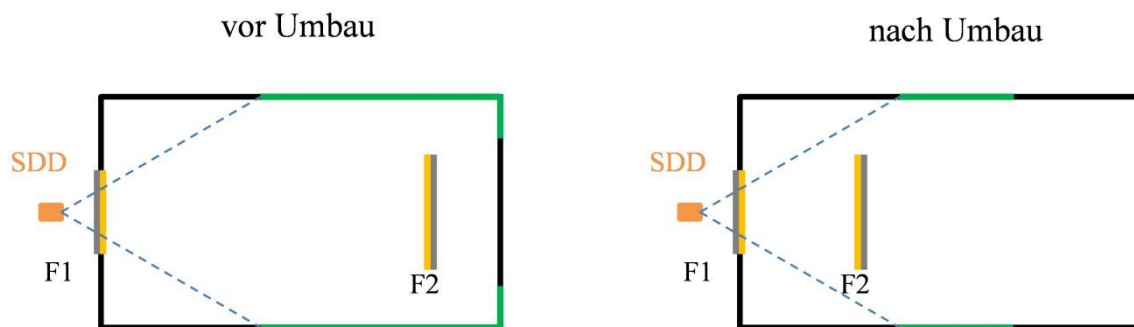


Abbildung 3.14: Schematische Darstellung des TriReX-Umbaus.

Dargestellt sind der Rezipient sowie die beiden goldbeschichteten Be-Fenster (F1 und F2), sowie der Detektor (SDD). Die gestrichelten Linien markieren das für den Detektor sichtbare Volumen. Grün markiert ist der für den Detektor sichtbare Anteil der Edelmetalloberfläche, welcher nach dem Umbau signifikant reduziert ist.

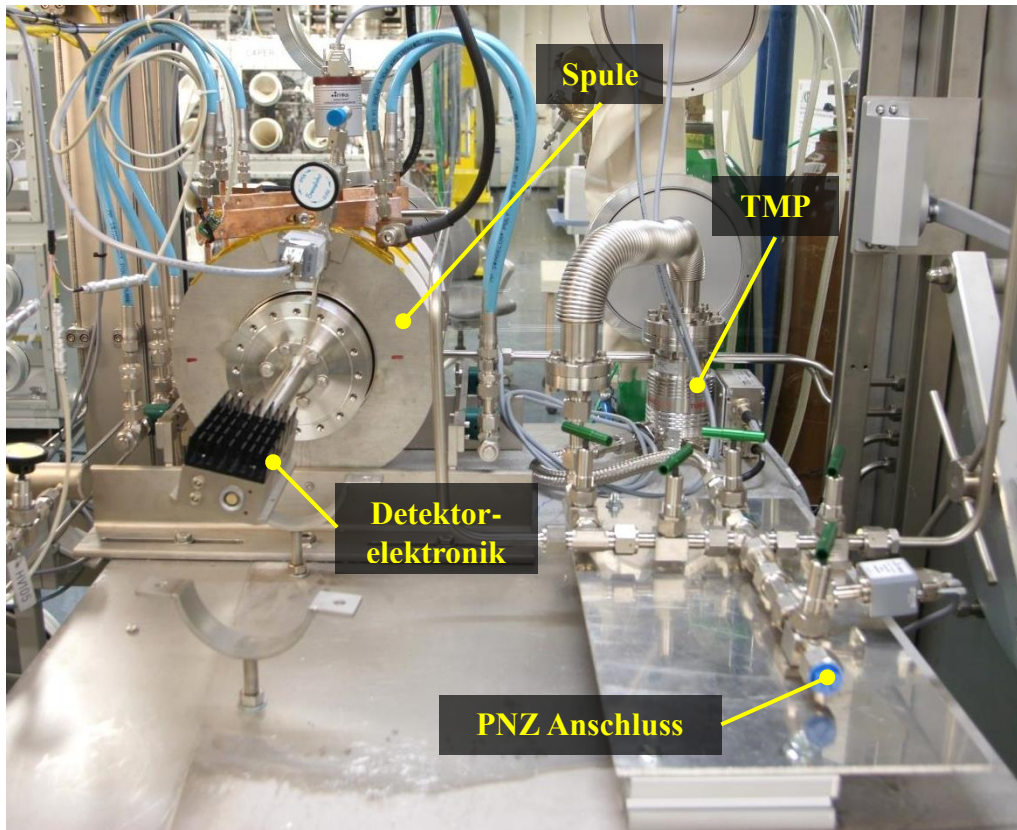


Abbildung 3.15: Das sich im Aufbau befindliche TriReX-Experiment.

Gezeigt ist das noch nicht komplett aufgebaute TriReX-Experiment. Man erkennt die Hauptkomponenten wie Detektor(elektronik), wassergekühlte Luftspule und TMP. Das Elektronikvolumen war zu diesem Zeitpunkt noch nicht verschlossen, ebenso fehlt die Vakuumpumpe zum Evakuieren des Detektorvolumens (VA031).

3.5.1. Vorbereitungen zur Durchführung von Messungen

Um eine Messung des Röntgenspektrums durchführen zu können, muss zuerst der Rezipient mit Tritium beaufschlagt werden. Dazu wird ein Probenahmezylinder (PNZ) mit Hilfe der TLK-Infrastrukturanlagen (CAPER [Bor05]) mit einer definierten Gas Mischung (Tritiumreinheit) und einem definierten Druck beaufschlagt. Der PNZ wird nach dem Ausschleusen aus der zweiten Hülle der CAPER-Anlage in die zweite Hülle von TriReX eingeschleust und an der Probenahmestelle (Abbildung 3.7) montiert. Nach einer Druckanstiegsprüfung (Überprüfung der neuen Verbindung) wird der Rezipient sowie die Anschlussstelle der Probenahme mit Hilfe der TriReX-TMP evakuiert. Anschließend wird der Inhalt des Probenahmezylinders in den TriReX Rezipienten expandiert. Aufgrund der Kenntnis der Volumina von Probenahmestelle, Verrohrung und Rezipient [Höv12] kann über den Druck im PNZ direkt ein gewünschter Druck im TriReX-Rezipienten eingestellt werden. Der SDD wird nach dem Evakuieren des Detektorvolumens über die TriReX-Scrollpumpe auf ca. $5 \cdot 10^{-2}$ mbar gestartet. Nach ca. 10-15 Minuten ist der SDD auf seine empfohlene Betriebstemperatur von 240 K gekühlt. Eine Messung wird über die Datenaufnahmesoftware gestartet. Eine detaillierte Beschreibung des Füllvorgangs findet sich in [Röl11].

Nach einer vordefinierten Messzeit t_{mess} erhält man ein typisches Bremsstrahlungsspektrum mit überlagerten Fluoreszenzen wie in Abbildung 3.16 dargestellt. Der Grad an Detaillierung hängt dabei neben der Messzeit von der Aktivität im für den Detektor sichtbaren Volumen sowie der Stärke des B-Feldes während der Messung ab. Bei Magnetfeldstärken von ca. 80 mT kann die Ereignisrate im Detektor um ca. 30% gesteigert werden, bei gleichbleibender Aktivität im Volumen (Abbildung 3.19). Diese Sensitivitätssteigerung ist darauf zurückzuführen, dass Zerfallselektronen nun entlang der Feldlinien auf die beiden goldbeschichteten Be-Fenster geführt werden. Ohne B-Feld starten Elektronen unter beliebigen Winkeln und produzieren so auch teilweise Bremsstrahlung außerhalb des Sichtfeldes des Detektors.

3.5.2. Diskussion der Spektren

Im Folgenden soll die Zusammensetzung eines typischen (Abbildung 3.16) TriReX-Röntgenspektrums diskutiert werden. Tabelle 3.1 gibt einen Überblick über die Fluoreszenzlinien und deren mögliche Herkunft. Das Röntgenfluoreszenzspektrum in TriReX setzt sich aus mehreren Komponenten zusammen. Die prominentesten Linien haben ihren Ursprung in folgenden Strukturmaterialien:

- Fe-Linien aus dem Edelstahlrezipienten sowie dem Hauptlegierungselement Cr.
- Der Au-Linien aus der Beschichtung des Be-Schutzfensters und der Referenzfläche.
- Dem Zirkonkollimator des SDD.

Daneben existieren weitere Legierungselemente im Edelstahl, in welchen ebenfalls Fluoreszenzen ausgelöst werden können. Typischerweise finden sich im Edelstahl vom Typ 316L die Legierungselemente (in steigender Konzentration) C ($\approx 0,02\%$), S, P, N, Co, Cu, Mn, Mo, Ni und Cr ($\approx 17\%$). Dies belegt eine begleitende Materialanalyse, welche im Rahmen des Werkstoffzertifikates für den TriReX Rezipienten (Anhang E) vom Hersteller mit geliefert wurde.

In Abbildung 3.17 ist der niederenergetische Bereich von Abbildung 3.16 bis zu einer Energie von 2 keV detailliert dargestellt. Man kann mindestens fünf getrennte Peaks (I - IV) erkennen. Diese setzen sich jedoch jeweils aus mehreren, dicht nebeneinander liegenden Fluoreszenzen (teilweise wenige eV Differenz) praktisch aller in TriReX vorkommenden Elemente zusammen. Eine Trennung dieser Linien ist mit dem vorhandenen Detektorsystem nicht möglich.

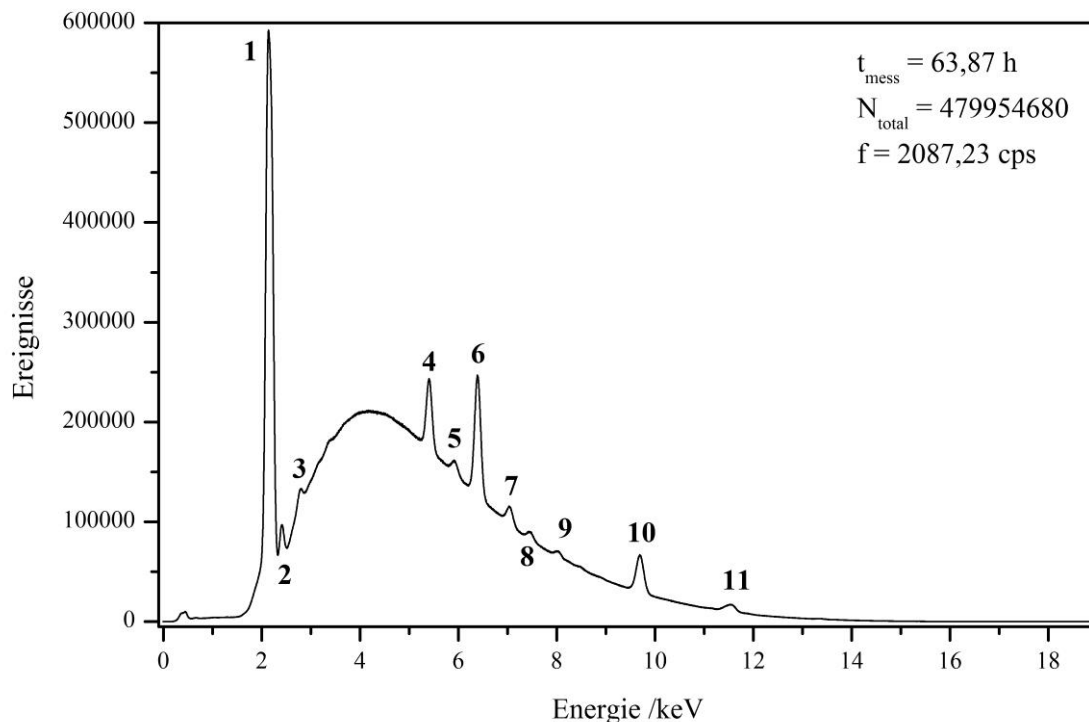


Abbildung 3.16: Beispielhaftes Bremsstrahlungsspektrum mit Fluoreszenzen.

Dargestellt ist ein Röntgenbremsspektrum mit überlagerten Fluoreszenzanteilen (siehe Tabelle 3.1). Das Spektrum ist das Ergebnis von insgesamt 63,87 Stunden Messzeit bei einem Druck im Rezipienten von $(1,02 \pm 0,01) \text{ mbar}$ und $\epsilon_T > 95\%$. Dies entspricht einer Aktivität im für den Detektor sichtbaren Volumen von $(6,87 \pm 0,47) \cdot 10^9 \text{ Bq}$.

Wie in Kapitel 3.3 beschrieben, besitzt TriReX die Möglichkeit zur Erzeugung eines magnetischen Führungsfeldes für die β -Elektronen. Durch Erhöhen des B-Feldes wird die Rate gesteigert, mit welcher Elektronen auf eines der beiden goldbeschichteten Be-Fenster treffen. Die Abhängigkeit der Zählrate vom B-Feld wurde für die erste Konfiguration von TriReX (größerer Abstand der beiden Be-Fenster) in [Röl11] ermittelt. Ein starker Anstieg fand sich bei Feldstärken zwischen 8 mT und 30 mT. Bei Feldstärken über $\approx 80 \text{ mT}$ fand praktisch keine weitere Erhöhung der Zählrate mehr statt. Es konnte bei maximalen B-Feldern etwa eine Verdopplung der Zählrate beobachtet werden. Im geänderten Aufbau von TriReX (kleinerer Abstand der Be-Fenster) ist der Einfluss des B-Feldes dahingehend verändert, dass aufgrund des kleineren Abstandes der Be-Fenster bei gleichem Druck weniger Zerfallselektronen zur Verfügung stehen, welche durch das B-Feld geführt werden können. Daher reduziert sich die Erhöhung der Gesamtzählrate bei gegebenem Druck auf ca. einen Faktor 1,4 [Ebh12]. Der Einfluss des B-Feldes auf die Zählrate im geänderten Aufbau ist in Abbildung 3.19 dargestellt.

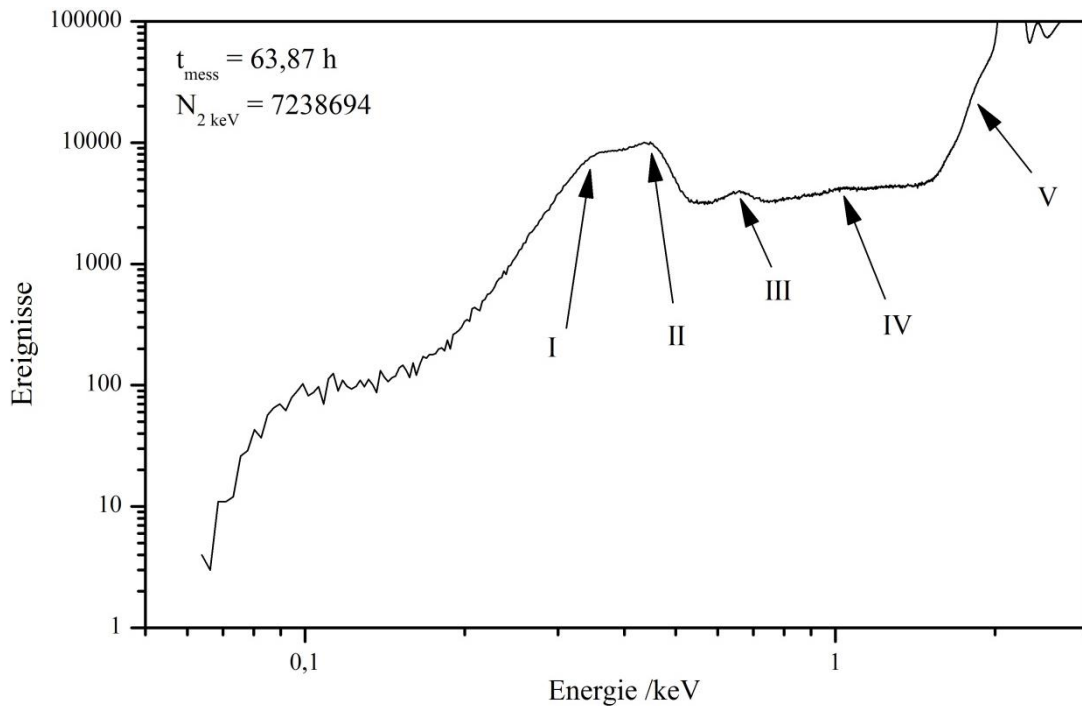


Abbildung 3.17: Detail Bremsstrahlungsspektrum.

Dargestellt ist ein Ausschnitt des Spektrums aus Abbildung 3.16 bis 2 keV. Es werden mehrere Details im niederenergetischen Teil sichtbar. Eine Identifikation der erkennbaren Fluoreszenzen gestaltet sich schwierig, da praktisch alle in TriReX vorkommenden chemischen Elemente niederenergetische Fluoreszenzanteile besitzen. Mögliche, nicht näher identifizierte Liniengruppen sind mit I-V markiert.

3.5.2. Nachweisgrenzen von TriReX

Vor der ersten Füllung des TriReX-Aufbaus mit β -aktivem Tritium (alte Konfiguration, großer Abstand der Be-Fenster) wurde der intrinsische Detektoruntergrund zu $5,6 \cdot 10^{-3}$ cps (Abbildung 3.13) bestimmt. Um die untere Nachweisgrenze für β -induzierte Ereignisse zu ermitteln wurde versucht, eine geringe Menge an Tritium in den Rezipienten einzubringen. Da es verfahrenstechnisch aufgrund von Beschränkungen der Infrastruktursysteme im TLK nicht möglich ist, Tritium lediglich in Spuren aber dennoch mit definierter Quantität bereitzustellen, musste eine andere Methode gewählt werden. Diese bestand darin, einen seit ca. 7,5 Jahren (Stand 2011) nicht mehr benutzten und vor der Einlagerung auf $p < 10^{-3}$ mbar evakuierten PNZ zu benutzen. Per Wischtest¹⁰ wurde die Oberflächenkontamination des Anschlusses auf ca. 2 kBq/cm^2 (bei einer gesamten Oberfläche von ca. 10 cm^2) bestimmt was als Richtwert zu betrachten ist. Nach dem Einbringen des oberflächenkontaminierten PNZ wurde dieser mit der Atmosphäre der zweiten Hülle belüftet und an der Probenahmestelle von TriReX montiert. Das Gas des PNZ wurde anschließend in den evakuierten TriReX-Rezipienten expandiert.

¹⁰ Standardmethode zur Bestimmung von Oberflächenkontamination im TLK. Es wird mit einem Styroporplättchen über eine Oberfläche gewischt, worauf Oberflächenkontamination übertragen wird. Die Auswertung erfolgt unter Zugabe von Szintillationsflüssigkeit in einem Szintillationszähler.

Tabelle 3.1: Zusammenfassung der Fluoreszenzlinien in TriReX-Spektren.

Die Tabelle gibt eine Zuordnung der identifizierten Fluoreszenzlinien (fortlaufende Nummerierung) aus Abbildung 3.16. Neben der Bezeichnung des Elements und des jeweiligen Übergangs in Siegbahn-Notation sind die dazugehörigen Energien sowie die Herkunft im TriReX-Aufbau angegeben. Die Energien der Übergänge wurden [PyM45] entnommen. Setzt sich eine der erkennbaren Fluoreszenzlinien im Spektrum real aus mehreren Linien zusammen, so sind die beiden ersten Energien für Übergänge mit der höchsten Wahrscheinlichkeit angegeben. Aufgrund der Überlagerung mehrerer Fluoreszenzlinien unterschiedlicher Elemente innerhalb der Auflösung des Detektors sind nur die beiden wahrscheinlichsten Elemente pro Fluoreszenzlinie angegeben.

Bez. im Spektrum	Element und Übergang	Energie in keV	Herkunft
1	Zr L α	2,04 2,12	Zr-Kollimator
	Zr L β	2,12 2,2	
	Au M α	2,12 2,2	Au-Beschichtung
2	Zr L α	2,35	Zr- Kollimator
	Zr L γ	2,50	Au-Beschichtung
	Au M α	2,41	
	Mo L α	2,40 2,46	Legierungselement von Edelstahl
3	Ag L α	2,81	Silber-Kupfer-Lot des Be-Fensters
	Au M α	2,78 2,79	Au-Beschichtung
	Mo L γ	2,83	Legierungselement von Edelstahl
4	Cr K α	5,4 5,41	Legierungselement von Edelstahl
5	Cr K β	5,94	Legierungselement von Edelstahl
	Mn K α	5,88 5,98	Legierungselement von Edelstahl
6	Fe K α	6,39 6,4	Edelstahl: Eisenbasiswerkstoff
7	Fe K β	7,05	Edelstahl: Eisenbasiswerkstoff
8	Ni K α	7,46 7,47	Legierungselement von Edelstahl
9	Cu K α	8,02 8,04	Dichtungswerkstoff, Spuren in Edelstahl
10	Au L α	9,62 9,71	Au-Beschichtung
11	Au L α	11,44 11,6	Au-Beschichtung
	Au L β	11,58	Au-Beschichtung

Die Nachweiseffizienz des TriReX Aufbaus (ursprüngliche Konfiguration) beträgt $\approx 10^{-6}$, d.h. 10^6 Bq im Rezipienten ergeben ca. 1 cps Zählrate im Detektor. Auf der Basis dieser Effizienz wurde abgeschätzt, dass knapp 1 kBq Aktivität in den Rezipienten eingebracht wurde. Dies lässt sich durch die um $0,8 \cdot 10^{-3}$ cps gestiegene Rate im Detektor gegenüber der Untergrundmessung berechnen. Das Ergebnis aus insgesamt 65,8 h Messzeit ist in Abbildung 3.18 dargestellt. Es sind bereits die typischen Details erkennbar, welche bei höheren Aktivitäten (Abbildung 3.16, Abbildung 3.19) dann deutlicher zu sehen sind. So kann man die Fluoreszenzen von

- a) Chrom K α ,
- b) Eisen K α und

c) Gold La

in Abbildung 3.18 erkennen. Jedoch beansprucht der Nachweis einer solch geringen Aktivität im Rezipienten eine lange Messdauer (65,8 h). Bei d) handelt es sich wahrscheinlich um ein Artefakt aus dem Binning, da diese Linie bei späteren (ungebinnten) Messungen nicht wieder sichtbar wird. Am niederenergetischen Ende des Spektrums ist der Einfluss der Rauschkante sichtbar.

Da in den folgenden Messungen deutlich höhere Tritiumpartialdrücke appliziert wurden und damit das Untergrundsignal aufgrund eines Memoryeffekts nun im Intervall zwischen 10 - 70 cps liegt, ist es nicht mehr möglich, diese Messung zu wiederholen.

Die Auswirkung des Memoryeffekts und der damit verbundene Anstieg des Untergrundsignals ist in Abbildung 3.20 dargestellt. Nach den Umbauarbeiten an TriReX und dem Schließen und Evakuieren des Primärsystems von TriReX wurde die aktuelle Untergrundrate bestimmt. Es handelt sich dabei um den ersten Wert in Abbildung 3.20 von ≈ 20 cps. In Tabelle 3.2 sind die jeweiligen Zählraten sowie die zuvor applizierten Drücke gelistet.

Eines der wesentlichen Design- und Messkriterien für TriReX ist die Tatsache, dass Tritium auf Edelstahloberflächen in signifikantem Maßstab adsorbiert [Hir84]. Obwohl ein Großteil der für den Detektor sichtbaren Oberfläche nach dem Umbau von TriReX aus vergoldeten Oberflächen besteht, ist immer noch ein signifikanter Anteil des Rezipienten und damit von Edelstahl sichtbar (schematisch angedeutet in Abbildung 3.6 sowie sichtbar im Spektrum, Abbildung 3.17). Die Adsorption von Tritium auf Gold ist nach [Mat85] vernachlässigbar bei Raumtemperatur.

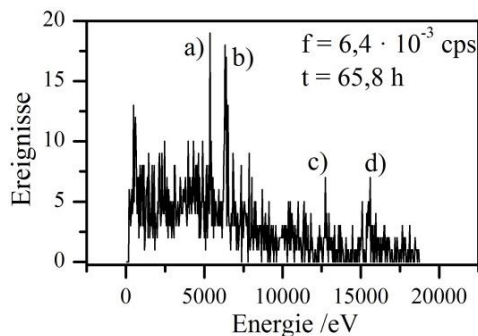


Abbildung 3.18: Messung zur Bestimmung der unteren Nachweisgrenze.

Diese Messung wurde durchgeführt mit dem alten TriReX-Aufbau. Dargestellt sind die Ereignisse (16-fach gebinnt zur besseren Darstellung) im Detektor als Impulshöhenspektrum während einer Messung von $t = 65,8$ h. Es fanden integral 1520 Ereignisse im gesamten Energiebereich statt. Dies führt zu einer Zählrate von $6,4 \cdot 10^{-3}$ cps. Man erkennt Fluoreszenzlinien u.a. von Eisen und Chrom. Eine Erklärung der Zuordnung der Linien von a-d wird im Text gegeben.

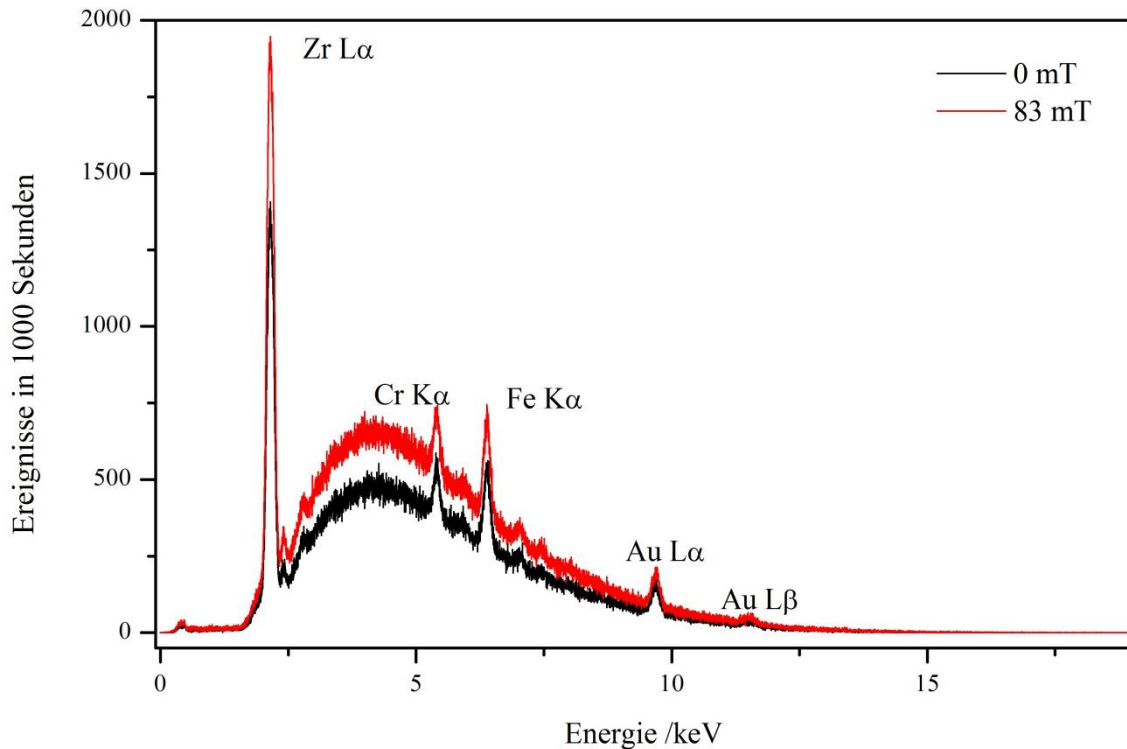


Abbildung 3.19: B-Feld Einfluss auf das Tritium-Bremsstrahlungsspektrum.

Dargestellt sind zwei Bremsstrahlungsspektren aufgenommen mit dem TriReX Aufbau. Der Druck im Rezipienten betrug $(0,51 \pm 0,01)$ mbar bei einer Tritiumreinheit von $(91 \pm 6)\%$. Die Spektren wurden in je 1000 Sekunden aufgenommen. Gekennzeichnet sind die Hauptfluoreszenzlinien, für Details vgl. Abbildung 3.16.

Da das Vakuumsystem und im Besonderen der Rezipient von TriReX nicht ausgeheizt werden kann, besteht keine effiziente Möglichkeit um zuvor an den Edelstahloberflächen adsorbiertes Tritium wieder zu desorbieren. Auch das Abpumpen über mehrere Tage hinweg reduziert die Untergrundrate nicht signifikant. Ein Spülen mit Wasserstoff (H_2) reduziert die Untergrundrate ebenfalls nicht merklich. Ein kontinuierlicher Spülgasstrom ist in TriReX aufgrund des Aufbaus nicht möglich. Durch das Beaufschlagen mit Wasserstoff finden, den Resultaten folgend, nur wenige Austauschreaktionen an der Oberfläche der Rezipientenwand statt.

3.5.4. Temperaturabhängigkeit, Linearität und Reproduzierbarkeit

Der verwendete Detektor besitzt als besonderen Vorzug eine Kühlung des eigentlichen SDD-Chips mittels Peltierkühler. Dies führt zu einer kompakten Baugröße und einer unkomplizierten Handhabung im Betrieb, verglichen mit einer LN_2 -Kühlung für PIN-Dioden.

Ein Peltierelement basiert auf dem Peltier-Effekt und erzeugt bei einem angelegten Strom eine definierte Temperaturdifferenz. Diese ist pro Element limitiert durch den maximalen Strom und die maximal abführbare Wärmemenge. Typischerweise kann ein Peltierelement eine Temperaturdifferenz von 70 K erzeugen.

Die in TriReX verwendete Einheit kühlt den SDD-Chip laut Hersteller auf eine Betriebstemperatur von ca. 240 K über einen einstufigen Peltierkühler. Ein Auslesen der Chiptemperatur ist nicht möglich. Um dennoch einen Anhaltspunkt für die Chiptemperatur zu erhalten, wurde in TriReX der Kühlkörper des Detektors (Abbildung 3.8) mit einem Pt1000-Temperatursensor versehen. An dieser Stelle wird die durch das Peltierelement transportierte Wärme an die Umgebung abgegeben.

Kennt man die Temperatur des Kühlkörpers und das maximale ΔT des Peltierelements, so kann die Temperatur des SDD-Chips abgeschätzt werden. Da sich der Kühlkörper in einem geschlossenen Elektronikvolumen befindet, kann die Wärmeabgabe an die Edelstahlwand des Rezipienten nur über Konvektion erfolgen. Dies ist nicht effizient, so dass es bei einem längeren Betrieb des Detektors zu einem Wärmestau kommt. Die am Kühlkörper gemessene Temperatur T_{KK} steigt dabei auf bis zu 48 °C. Berücksichtigt man die maximale Temperaturdifferenz von 70 K, so erhält man eine Detektortemperatur von ca. 250 K, was 10 K oberhalb der Spezifikation des Detektors liegt.

Um den Einfluss der Temperatur auf den Detektor zu untersuchen, wurden insgesamt zwölf Einzelmessungen von je 10 Minuten Dauer durchgeführt. In diesen Einzelspektren wurde als Referenz die Position der Eisen $K\alpha$ -Linie ermittelt und deren Maximum gegen die mittlere Temperatur während der Messung aufgetragen. Es ergibt sich der in Abbildung 3.21 gezeigte Zusammenhang.

Tabelle 3.2: Anstieg der Untergrundrate nach Tritiummessungen.

Die Tabelle gibt einen Überblick über alle Messungen und Gasproben, welche nach dem Umbau von TriReX verwendet wurden. In der Spalte Zählrate findet sich die maximale Zählrate im Detektor beim angegebenen Druck und T_2 -Reinheit. In der Spalte „Untergrundrate nach Evakuieren“ ist die Rate im Detektor nach Erreichen des minimal möglichen Drucks im Rezipienten im Anschluss an eine jeweilige Messreihe angegeben. Die Nummern der Messungen korrespondieren mit denen aus Abbildung 3.20.

Messung Nr.	Zeit im Rezipienten (Stunden)	Druck (mbar)	T_2 -Reinheit (%)	Ereignisse (cps)	Untergrundrate nach Evakuieren (cps)
0	---	---	---	---	18,98
1	145	1,04	$0,12 \pm 0,1$	21,86	19,38
2	48	0,0123	95 ± 4	29,47	19,41
3	100	0,0559	95 ± 4	129,79	19,73
4	187	0,51	91 ± 6	1076,83	25,7
5	337	1,02	95 ± 4	2106,42	39,09
6	20	1,1	94 ± 4	2270,19	41,11

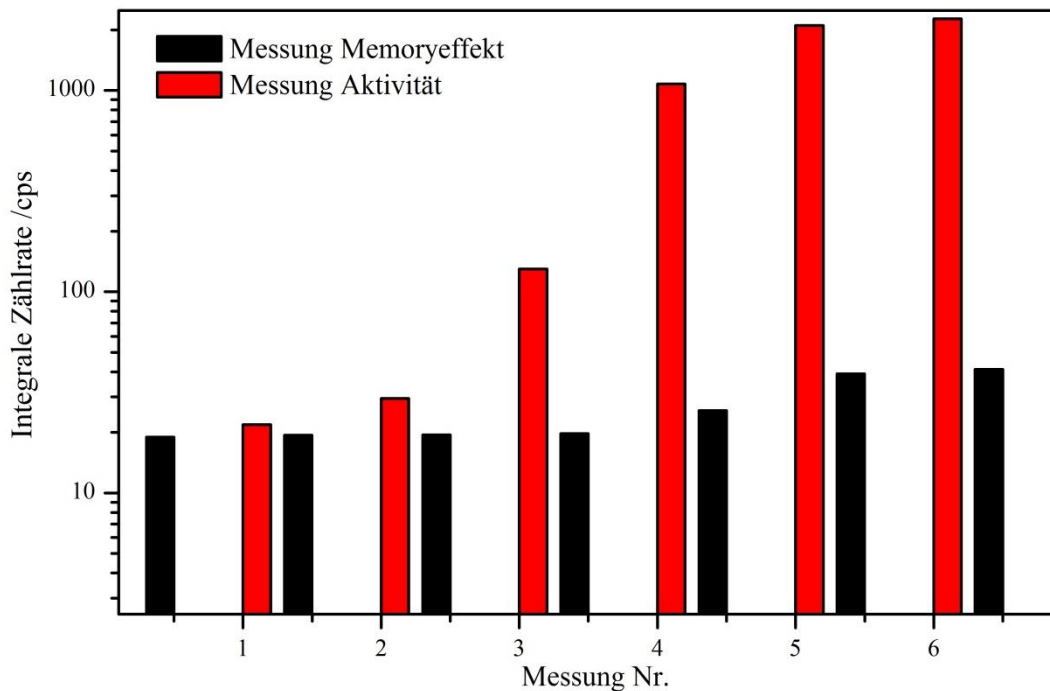


Abbildung 3.20: Anstieg des Untergrundsignals.

Gezeigt ist die Änderung des Untergrundsignals („Memoryeffekt“, schwarz) im TriReX-Aufbau in Abhängigkeit des vorangegangenen Tritiumpartialdrucks im Rezipienten, welcher in Form der resultierenden Zählrate (rot) aufgetragen ist (nach [Röl12]).

Bei Temperaturen am Kühlkörper bis ca. 38 °C liegt die Drift der Position innerhalb der Herstellerspezifikation, jedoch ist auch dort schon ein minimales Driftverhalten zu beobachten. Oberhalb von 38 °C nimmt die Drift stark zu. Von experimenteller Seite wurden die Messwerte über 44 °C zuerst aufgenommen und nach dem Abkühlen auf ca. 30 °C wurden die Punkte unterhalb von 44 °C gemessen. Man erkennt dabei, dass die Steigung der Drifts scheinbar von weiteren, nicht über die Temperatur beeinflussbarer Parametern abhängt.

Die Summe über alle Ereignisse innerhalb des Messzeitraumes von 10 Minuten bleibt jedoch innerhalb der Fehlergrenzen konstant. Bei steigender Temperatur wird das gesamte Impulshöhenspektrum zu höheren Kanalzahlen hin verschoben. Trotz dieser Gainänderung ermöglicht die gewählte Einstellung des Detektorgains ($0 \leq E \leq 20$ keV) immer noch sämtliche Ereignisse zu registrieren. Sollte eine Rekalibrierung des Detektors vorgenommen werden, so ist jedoch unbedingt darauf zu achten, dass die am Kühlkörper gemessene Temperatur nicht größer als 38 °C ist.

Als Konsequenz dieses Sachverhaltes wurde in der Folge eine Klimatisierung in der Handschuhbox installiert, so dass seither die Atmosphäre der zweiten Hülle auf ca. 18 °C gekühlt werden kann. Durch die indirekte Kühlung des Detektorkühlkörpers über die Wand des Primärsystems (Elektronikvolumen) wird dadurch eine Stabilisierung auf unter 36 °C erreicht.

Ein weiterer wichtiger Aspekt eines Systems zur Überwachung der Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle ist der abgedeckte Messbereich, d.h. der Druck der gasförmigen

Tritiumquelle. Ist dieser zu niedrig, so entstehen zu wenige Elektronen durch β -Zerfall, wodurch die Dauer pro Messung steigt (bis hin zu mehreren Tagen, vgl. Abbildung 3.18). Ist der Druck zu hoch, so können Elektronen an Molekülen im Rezipienten gestreut oder absorbiert werden (Selbstabsorption). Besonders wünschenswert ist ein linearer Zusammenhang der Messgröße „Ereignisse/Sekunde“ mit dem Tritiumpartialdruck im Rezipienten. Dadurch kann anhand der Zählrate direkt auf die Aktivität geschlossen werden.

Zur Untersuchung der Linearität wurde die in Abbildung 3.22 gezeigte Messreihe aufgenommen. Dabei wurde der Rezipient mit ca. 1 mbar Tritiumgas gefüllt und schrittweise evakuiert. Um den statistischen Fehler auf die einzelnen Messwerte klein zu halten wurde pro Messpunkt mindestens 100 Sekunden gemessen, bzw. die Messzeit wurde so angepasst, dass mindestens 10^4 Ereignisse im Detektor registriert wurden. Aufgrund der Zeitauflösung (1 Sekunde) erhält man so einen anteiligen Fehler von $< 1\%$ innerhalb von 100 Sekunden Messzeit bzw. einen anteiligen statistischen Fehler von $< 1\%$ aufgrund der Summe der Ereignisse von $\approx 10^4$.

Damit erhält man innerhalb der Fehlergrenzen von $\leq \pm 1\%$ den linearen Zusammenhang aus Abbildung 3.22. Im Bereich geringer Aktivitäten ist die Messung der Linearität limitiert durch den herrschenden Untergrund (Abbildung 3.20). Oberhalb eines Gesamtdruckes von ca. 10 mbar (T_2 -Partialdruck ca. 1 mbar) weicht das Verhalten von der Geraden aufgrund von Selbstabsorption im Gas ab [Röl13]. Dementsprechend führt eine Erhöhung von 100 mbar Gesamtdruck (99 mbar He mit 1 mbar T_2) auf 200 mbar Gesamtdruck (199 mbar He mit 1 mbar T_2) zu einer Reduktion der Zählrate im Detektor von ca. 250 cps auf 160 cps [Röl13].

Um den Einsatz eines Röntgenmonitors als Aktivitätsüberwachung einer gasförmigen Tritiumquelle zu ermöglichen, muss die Stabilität des Monitors bei konstanter Aktivität im Rezipienten untersucht werden. In Abbildung 3.23 und Abbildung 3.24 sind zwei Messreihen zur Untersuchung dieser Fragestellung dargestellt. Um tatsächliche Fluktuationen der Quellaktivität von kleiner als 10^{-3} nachweisen zu können, muss die Stabilität des eingesetzten Überwachungssystems besser 10^{-3} sein.

Die in Abbildung 3.23 blau eingezeichnete 1σ Standardabweichung vom Mittelwert beträgt $\approx 0,264$ cps. Bei einer mittleren Zählrate von 129,77 cps bedeutet dies eine Abweichung von $2 \cdot 10^{-3}$. Dieses Resultat ist etwa ein Faktor zwei größer als die vorgegebene Anforderung von KATRIN. Jedoch befand sich im für den Detektor sichtbaren Volumen während dieser Messreihe nur eine Aktivität von $(3,53 \pm 0,24) \cdot 10^8$ Bq, also nur ca. 0,4% der Aktivität der KATRIN-Quelle. Erhöht man die Aktivität im Rezipienten um ca. eine Größenordnung auf $(3,11 \pm 0,32) \cdot 10^9$ Bq, so erhält man bei einer mittleren Rate von 1074,37 cps eine 1σ Standardabweichung von 0,453 cps, entsprechend einem relativen Fehler von $4,2 \cdot 10^{-4}$ (Abbildung 3.24). Obwohl die Aktivität der Tritiumquelle bei dieser Messung nur ca. 3% der Aktivität in KATRIN entsprach, ist es bereits hier möglich Fluktuationen in der Quellaktivität auf einem 10^{-3} Niveau innerhalb von 3600 Sekunden pro Messpunkt zu bestimmen.

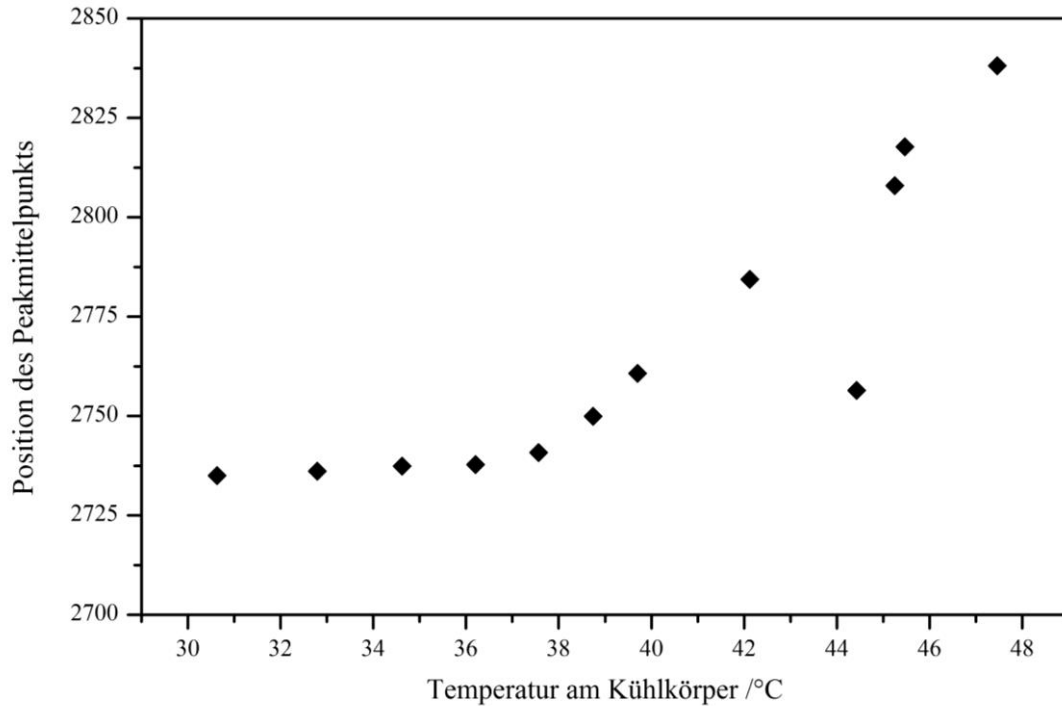


Abbildung 3.21: Temperaturdrift der Position der Fe-K α -Linie.

Dargestellt ist die Drift der Position der Fe-K α -Linie im Impulshöhenspektrum. Die Drift ist bedingt durch die steigende Temperatur des Detektors. Die Werte zu Temperaturen über 44 °C wurden am ersten Tag aufgenommen, nach dem Abkühlen des Systems wurden am zweiten Tag die Werte zu Temperaturen unterhalb von 40 °C aufgenommen. Nähere Informationen dazu finden sich im Text.

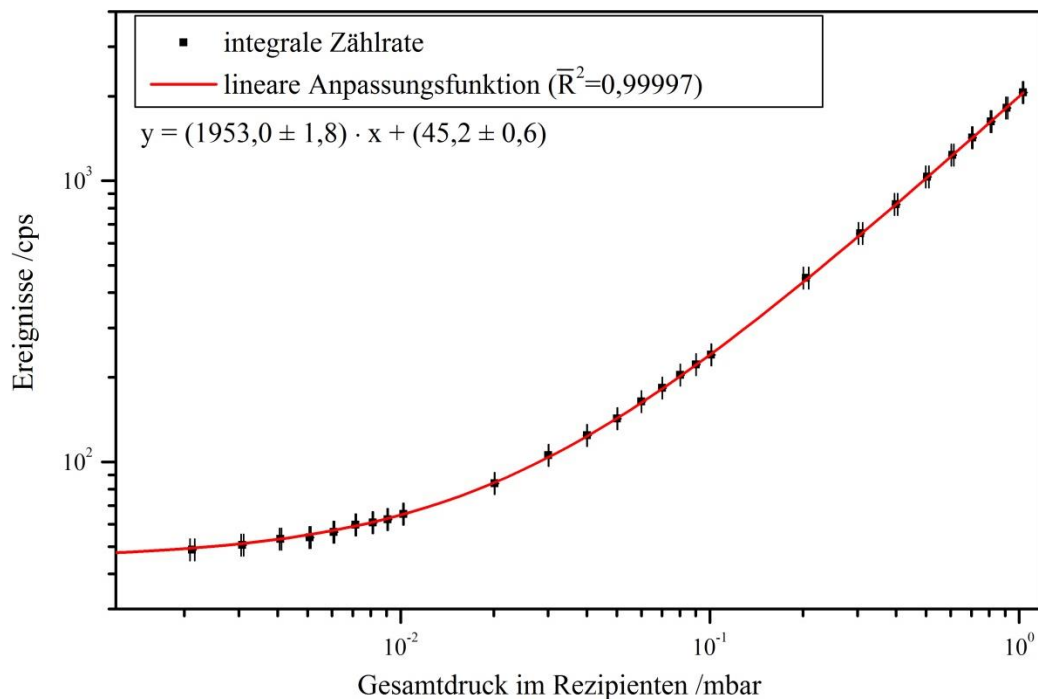


Abbildung 3.22: Funktion der Zählrate in Abhängigkeit des Drucks im Rezipienten.

Zur Bestimmung der Abhängigkeit der Zählrate vom Gesamtdruck im Rezipienten wurde dieser mit $p_{\max} \approx 1$ mbar T_2 beaufschlagt und anschließend schrittweise evakuiert, wobei an jedem Punkt die korrespondierende Zählrate ermittelt wurde. Die Messungen wurden im Rahmen von [Ebh12] durchgeführt.

Bei diesen Messungen ist speziell zu beachten, dass der Fehler auf die Zählrate durch die Zeitauflösung der Datenerfassungshardware der Firma KETEK ($\Delta t_{\text{mess}} = 1 \text{ s}$) dominiert wird. Mit einer verbesserten Zeitauflösung (ms-Bereich) durch die Verwendung eines alternativen DAQ-Systems sollte es möglich sein, den relativen Fehler weiter zu reduzieren.

3.5.5. Nachweis von Schwankungen der Aktivität einer Tritiumquelle

Zur Überprüfung der Sensitivität des Aktivitätsmonitors wurde im Rahmen des TriReX-Umbaus ein zusätzliches Volumen am Rezipienten montiert, welches das Gesamtvolumen auf einem 0,1% Niveau vergrößert (Anhang C). Dieses Zusatzvolumen wird zusammen mit dem Rezipienten evakuiert und mittels Handventil vom Rezipienten getrennt. Nach dem Beaufschlagen des Rezipienten mit Tritium und dem Durchführen einer Messreihe mit dem Volumen V_1 wird das Handventil zum Zusatzvolumen geöffnet und so eine Vergrößerung des Rezipientenvolumens erzielt. Dies führt gleichzeitig zu einer Abnahme der Aktivität im für den Detektor „sichtbaren“ Volumen in einer Relation die umgekehrt proportional zur Volumenzunahme ist.

Abbildung 3.25 zeigt das Ergebnis aus insgesamt 22 Einzelmessungen, welche im Rahmen einer vom Autor betreuten Arbeit [Ebh12] durchgeführt wurden. Das Zusatzvolumen wurde im TLK durch die in [Koe11] beschriebene Methode zu $(5,30 \pm 0,27) \text{ cm}^3$ gemessen. Im Rahmen von [Hoe12] wurde das Volumen des Rezipienten auf $(2183 \pm 81) \text{ cm}^3$ bestimmt. Damit ergibt sich eine Vergrößerung des ursprünglichen Rezipientenvolumens V_1 um $(0,243 \pm 0,053)\%$ und damit eine Abnahme der Aktivität im Rezipienten um ebenfalls ca. 0,2%. Die Änderung der Quellaktivität ist deutlich innerhalb einer Messdauer von 1000 s zu erkennen.

Auch hier besitzt die intrinsische Zeitauflösung von $\pm 1 \text{ s}$ des DAQ wieder den größten Einfluss auf den Fehler der Messungen. Ein weiterer Beitrag stammt aus den Unsicherheiten in der Bestimmung der Volumina von Rezipient und Zusatzvolumen.

Es ist zu erwarten, dass durch eine bessere Zeitauflösung auch deutlich kleinere Schwankungen der Quellaktivität registriert werden können. Damit wäre der Beweis erbracht, dass es möglich ist die Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle mit der BIXS-Methode zu überwachen und Schwankungen im Bereich von 0,1% in kurzen Zeitintervallen zu registrieren.

3.5.6. Permeation von Tritium durch goldbeschichtetes Beryllium

Ein kritischer Parameter beim Design und Aufbau von TriReX war die Dichtigkeit eines Au beschichteten Be-Fensters gegenüber der erwarteten Permeation von Tritium über längere Zeiträume (Jahre). Diese Frage ist nicht nur für TriReX von Interesse sondern auch für KATRIN. Die bei KATRIN zum Einsatz kommenden Be-Schutzfenster der Röntgendetektoren werden über die gesamte Laufzeit des Experiments einer Tritiumatmosphäre von $\approx 10^{-5} \text{ mbar}$ ausgesetzt sein. Sollte eine Permeation stattfinden ist es unter Umständen nicht mehr möglich, die Anforderungen bezüglich der Sensitivität auf Schwankungen in der Aktivität der Quelle zu erfüllen.

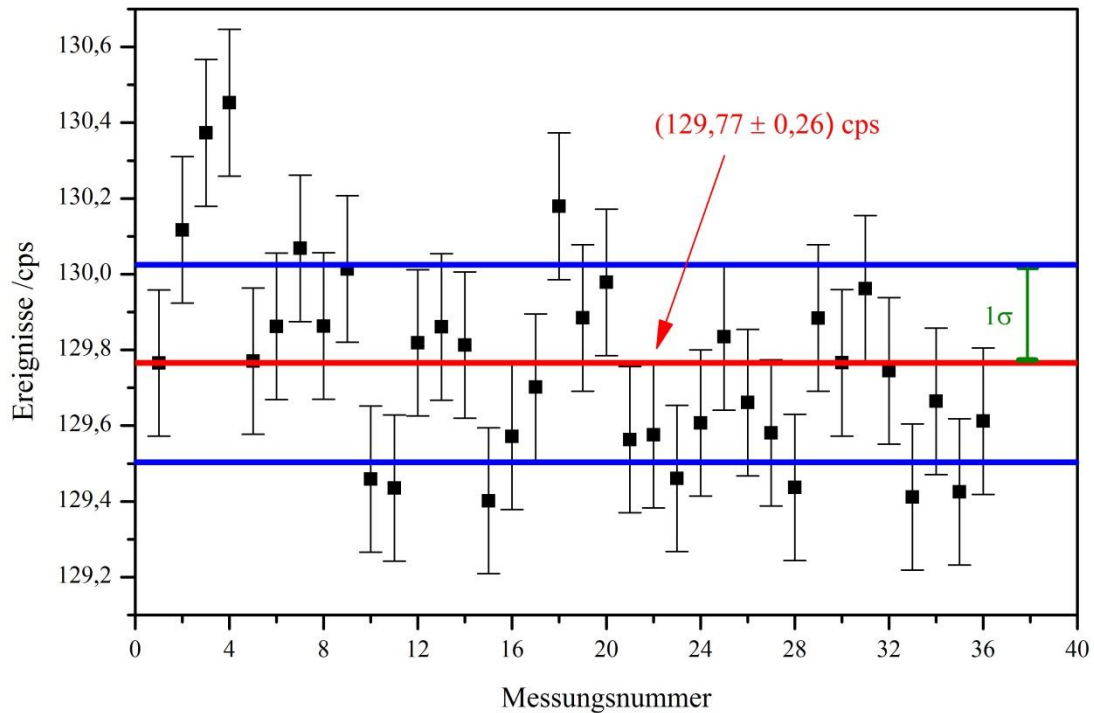


Abbildung 3.23: Schwankungen der Zählrate bei wiederholten Tritiummessungen.

im Rahmen von [Ebh12] wurden wiederholte Messungen bei einer konstanten Aktivität von $(3,53 \pm 0,24) \cdot 10^8$ Bq durchgeführt um die Reproduzierbarkeit und Stabilität des Nachweissystems zu überprüfen. In blau eingezeichnet ist die 1σ Grenze vom Mittelwert (rot). Zur Reduzierung des Einflusses der intrinsischen Zeitunsicherheit der Datenerfassungshardware wurde pro Punkt über ein Intervall von 1 h gemessen.

TriReX wurde im April 2011 zum ersten Mal mit Tritium in Betrieb genommen, d.h. aktuell sind der Rezipient und das goldbeschichtete Berylliumfenster seit ca. zwei Jahren¹¹ einer Tritiumatmosphäre ausgesetzt. Mit der TMP im TriReX-Kreislauf lässt sich der Rezipient auf minimal ca. 10^{-5} mbar evakuieren, was dem Tritiumpartialdruck an der Stelle der Röntgendetektoren in KATRIN entspricht. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass innerhalb der zwei Jahre seit Inbetriebnahme von TriReX nahezu immer ein Tritiumpartialdruck von mindestens 10^{-5} mbar am Be-Fenster herrschte. Zerfällt permeiertes Tritium im Detektorvolumen zwischen Be-Fenster und Detektor, so ergibt sich als Signal im Detektor die Detektorantwort auf ein Tritium- β -Spektrum (Elektronen- β -Spektrum). Dieses wäre dem eigentlichen Signal überlagert. Da im Rezipienten (durch das Be-Fenster getrennt vom Detektor) deutlich mehr Zerfälle stattfinden, macht sich der Einfluss vor allem im niederenergetischen Bereich bemerkbar. Dort besitzt das verwendete Be-Fenster mit einer Dicke von $250 \mu\text{m}$ eine Transmission von $\leq 3\%$ ($E_\gamma \leq 2 \text{ keV}$). Im Energiebereich von $0 \leq E_\gamma \leq 2 \text{ keV}$ würde der Einfluss eines überlagerten Tritium- β -Spektrums somit am deutlichsten sichtbar, da Elektronen aus diesem Energiebereich bei einem Zerfall hinter dem Fenster ohne Abschwächung den Detektor erreichen würden.

In Abbildung 3.26 ist der niederenergetische Teil eines gemessenen Bremsstrahlungspektrums aus zwei Messungen (rot und schwarz) dargestellt. Zusätzlich ist

¹¹ Stand April 2013

eine mit dem Programmcode Penelope [Sal11] simulierte Detektorantwort auf ein β -Spektrum, d.h. auf permeiertes Tritium, in blau eingezeichnet (shake-off-Satelliten nicht berücksichtigt, [Röl13]). Es wurde eine Dicke des Al-Eintrittsfensters des SDD Chips von 100 nm angenommen [Egg05]. Die Höhe der simulierten Detektorantwort wurde so angepasst, dass das Plateau zwischen $0,5 \leq E_\gamma \leq 1,5$ keV mit dem des Plateaus aus der Messung von 2013 zusammenfällt. Zum Vergleich ist außerdem das Ergebnis einer Messung aus 2012 eingetragen, welches zur besseren Vergleichbarkeit auf die Messzeit des rot eingezeichneten Spektrums normiert wurde.

Die Form des simulierten β -Spektrums passt nicht zu den Messwerten (zu starker Abfall der Ereignisrate bei Energien unter 250 eV), was gegen ein Elektronenspektrum (und damit gegen permeiertes Tritium) spricht. Darüber hinaus sollte ein β -Elektronenuntergrund, welcher seinen Ursprung in der Permeation von Tritium durch das Be-Fenster besitzt, mit der Zeit anwachsen. Dies ist im Vergleich zwischen den Messungen aus 2012 und 2013 nicht erkennbar, der Unterschied in der Höhe des Plateaus resultiert aus der Unterschiedlichen Gesamtzählrate \dot{N} .

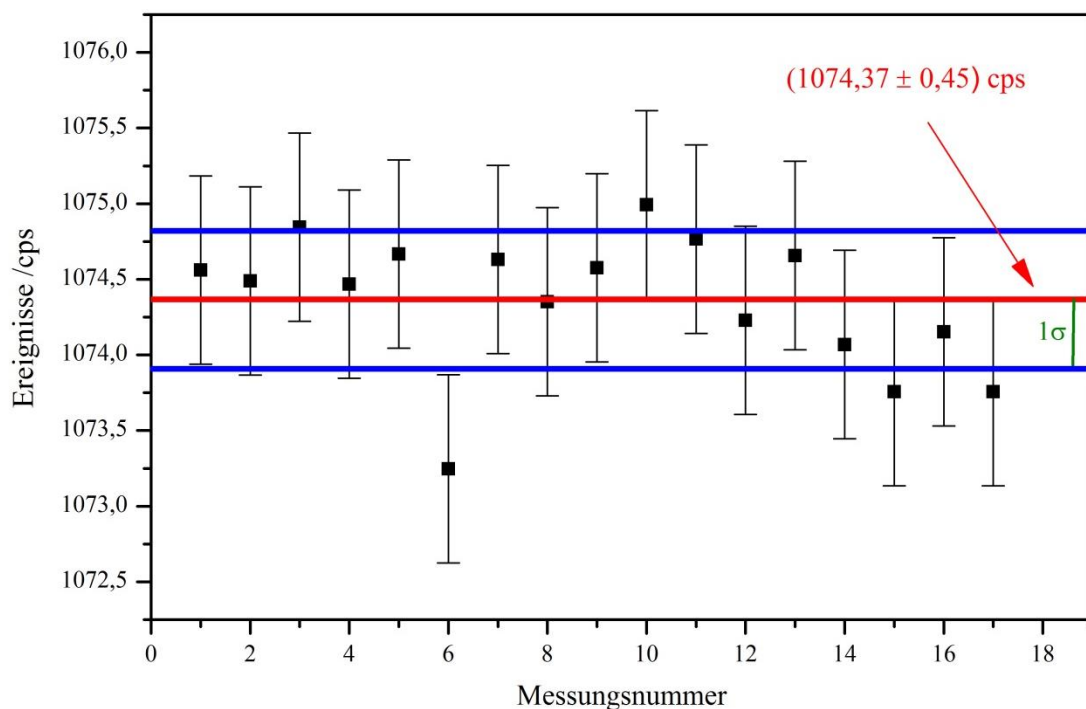


Abbildung 3.24: Schwankungen der Zählrate bei wiederholten Tritiummessungen.

Es wurden im Rahmen von [Ebh12] wiederholte Messungen bei einer konstanten Aktivität von $(3,11 \pm 0,32) \cdot 10^9$ Bq durchgeführt, um die Reproduzierbarkeit und Stabilität des Nachweissystems zu überprüfen. In blau eingezeichnet ist die 1σ Grenze vom Mittelwert (rot). Zur Reduzierung des Einflusses der Zeitunsicherheit der Datenerfassungshardware wurde pro Punkt 1 h gemessen.

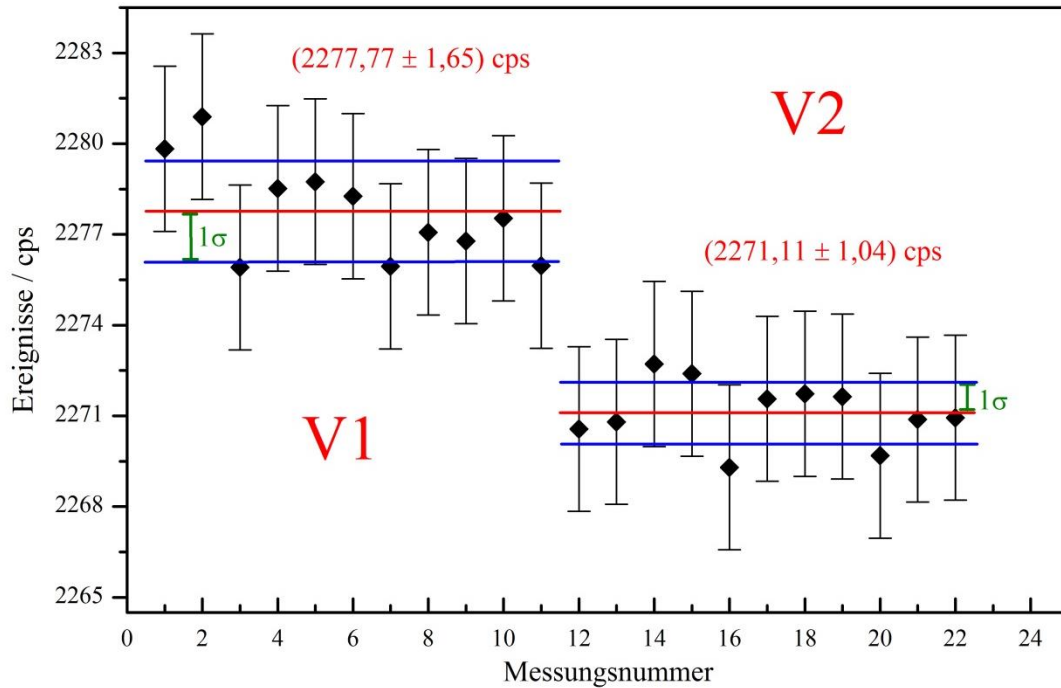


Abbildung 3.25: Nachweis von relativen Schwankungen der Aktivität auf einem 10^{-3} Niveau.
 Dargestellt ist die Abnahme der Zählrate bei Vergrößerung des Rezipientenvolumens um $(4,8 \pm 0,24) \text{ cm}^3$,
 entsprechend einer Volumenzunahme von 0,2%. Gas aus PNZ 6 $(6,87 \pm 0,47) \cdot 10^9 \text{ Bq}$, 1000 s/Messung.

Mit der He-Leckrate aus des Berylliumfensters von $\leq 5 \cdot 10^{-11} \text{ mbarl/s}$ Kapitel 3.4.2 kann man eine Abschätzung der Obergrenze der permeierten Menge an Tritium durchführen. Mit einem Detektorvolumen von ca. 50 ml erhält man eine permeierte Gasmenge vom Rezipienten in das Detektorvolumen von

$$\frac{5 \cdot 10^{-11} \frac{\text{mbar} \cdot \text{l}}{\text{s}} \cdot 2 \text{ Jahre}}{50 \text{ ml}} \approx 0,063 \text{ mbar} \quad (3.14)$$

Leckraten werden für einen Differenzdruck von 1 bar angegeben, daher muss man das Ergebnis aus Gleichung 3.14 noch um einen Faktor 10^3 (Differenzdruck in TriReX maximal 1 mbar) auf ca. $6 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$ korrigieren. Man erhält bei gegebenem Volumen und Druck eine Tritiumaktivität von ca. $3 \cdot 10^5 \text{ Bq}$.

Diese Angaben vernachlässigen jedoch die Tatsache, dass das Detektorvolumen regelmäßig mit einer Scrollpumpe auf ca. $5 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$ evakuiert wurde, sobald der Druck im Detektorvolumen durch Permeation von (praktisch nicht kontaminierten) Gas aus dem Elektronikvolumen in das Detektorvolumen (Abbildung 3.6) auf über 1 mbar angestiegen ist. Durch dieses ständige Evakuieren würde durch das Be-Fenster permeiertes Gas ebenfalls regelmäßig zumindest teilweise abgepumpt. Dies senkt den maximal erreichbaren Tritiumpartialdruck im Detektorvolumen nochmals. Die Angabe von $3 \cdot 10^5 \text{ Bq}$ ist somit als *worst-case* Abschätzung zu sehen.

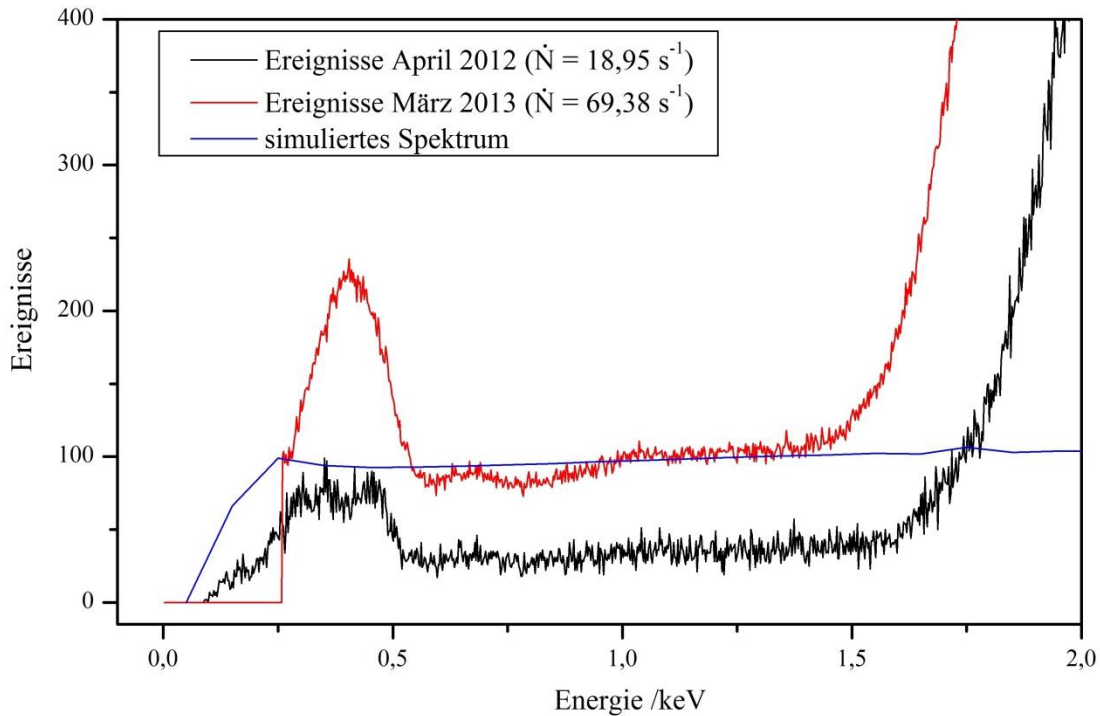


Abbildung 3.26: Niederenergetischer Teil eines Bremsstrahlungsspektrums.

Es sind Messungen vom April 2012 [Ebh12] (schwarz) und März 2013 (rot) dargestellt, beide mit dem geänderten TriReX-Aufbau durchgeführt. Wegen eines Detektorartefakts mussten die Kanäle 0-109 im roten Spektrum entfernt werden. Das Originalspektrum findet sich im Anhang F. In blau überlagert ist ein simuliertes Spektrum, welches Elektronen in einem Siliziumsubstrat von $450 \mu\text{m}$ erzeugen [Röl13]. Würde der niederenergetische Teil des Spektrums durch permeiertes Tritium hervorgerufen, müsste die Form dem eines β -Spektrums im Detektor gleichen. Das schwarze und rote Spektrum wurden in der Messzeit angeglichen, die Simulation wurde dem Plateau des roten Spektrums angeglichen. Weitere Details im Text.

Das schärfste Argument gegen eine permeierte Tritiummenge von 10^5 Bq wurde bereits in Kapitel 3.5.3 gegeben. Wäre eine solche Menge tatsächlich im Detektorvolumen und davon auch nur 10% im Sichtfeld des Detektors, wäre es nicht möglich eine Untergrundrate von unter 10^4 cps zu messen. Tatsächlich liegt die gemessene Rate nach Tabelle 3.2 nie höher als ca. 40 cps.

Diese Argumente lassen den Schluss zu, dass Permeation von Tritium durch das goldbeschichtete Berylliumfenster unter den TriReX-Bedingungen zu vernachlässigen ist.

3.6. Bewertung der Ergebnisse

Basierend auf den in Kapitel 3.1 gegebenen physikalischen Anforderungen und den damit resultierenden Fragestellungen können die im Folgenden diskutierten Ergebnisse aus ca. zwei Jahren TriReX-Betrieb abgeleitet werden.

Eine der wichtigsten Fragestellungen beim Einsatz eines Röntgendetektorsystems als Werkzeug zur Überwachung der KATRIN Quellaktivität ergibt sich im Hinblick auf die

Langzeitstabilität und Reproduzierbarkeit der Ergebnisse. Dazu wurden mehrere Testreihen mit Aktivitäten von bis zu 10^{11} Bq durchgeführt. Diese zeigten eine gute Reproduzierbarkeit der Ergebnisse für Aktivitätsmessungen innerhalb enger Grenzen bei Aktivitäten ab $\approx 10^9$ Bq. Um Fluktuationen in der Aktivität der KATRIN-Quelle WGTS zu simulieren, wurde in TriReX eine Möglichkeit vorgesehen um minimale Schwankungen der Quellaktivität nachbilden zu können. Aus den Anforderungen aus [KAT04] resultiert, dass Schwankungen auf einem 10^{-3} Niveau innerhalb einer Messzeit von unter 1000 s nachgewiesen werden müssen. Dies ist mit dem aktuellen TriReX Aufbau bereits bei Aktivitäten von $\approx 6 \cdot 10^9$ Bq möglich. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass beim Einsatz in KATRIN aufgrund der Quellaktivität von 10^{11} Bq der Nachweis von 10^{-3} Schwankungen ebenfalls in einem Zeitintervall unter 1000 s erbracht werden kann. Das bei TriReX verwendete DAQ-System besitzt eine Auflösung von 1 s. Es zeigte sich, dass eine verbesserte Zeitauflösung (ms-Basis) zur Reduzierung der statistischen Fehler unerlässlich ist. Es ist daher geplant, den vorhandenen Detektor mit anderer, kommerziell erhältlicher Auswertelektronik (DAQ) und -software zu testen (Amptek® DP5). Mit der in TriReX realisierten Geometrie war es möglich, die erforderlichen Zählraten zum erfolgreichen Betrieb innerhalb der KATRIN-Anforderungen zu erzielen. Da in KATRIN ein Röntgendetektorsystem mit einer abweichenden Geometrie zum Einsatz kommen wird (Abbildung 3.27), müssen Simulationen zeigen, inwiefern dies auch dann noch der Fall sein wird. Erste Simulationsergebnisse [Röl13] ergeben unter Verwendung von zwei Röntgendetektorsystemen Zählraten von ca. 10^4 cps. Somit ist auch im momentanen Design des rückwärtigen Systems eine Umsetzung der Aktivitätsüberwachung der KATRIN-Tritiumquelle WGTS auf der Basis eines Röntgendetektorsystems möglich.

Der Einsatz eines goldbeschichteten Berylliumfensters als Bremsstrahlung erzeugendes Element war erfolgreich. Es konnten bisher keine Anzeichen von Permeation von Tritium durch das goldbeschichtete Be-Fenster innerhalb eines Zeitraumes von zwei Jahren festgestellt werden. Innerhalb der bisherigen Betriebsdauer von TriReX befand sich dabei meistens ein höherer als der bei KATRIN erwartete Tritiumpartialdruck von 10^{-5} mbar am Be-Fenster. Dies ist für KATRIN von großem Interesse, da Be-Fenster als Schutz der Röntgendetektoren vor der Atmosphäre des Primärsystems zum Einsatz kommen sollen. Das Ergebnis aus TriReX lässt die Extrapolation zu, dass auch im KATRIN-Betrieb keine signifikante Permeation von Tritium durch das Be-Fenster zu erwarten ist, und dass eine Erhöhung des Untergrundes durch permeiertes Tritium somit weitgehend ausgeschlossen werden kann.

Zur Führung von Zerfallselektronen auf die goldbeschichteten Be-Fenster wurde eine Luftspule mit $B_{\max} \leq 0,12$ T eingesetzt. Wie erwartet blieb der Betrieb und die Eigenschaften des SDD-Systems auch unter Magnetfeldeinfluss unverändert. Es wird nicht davon ausgegangen, dass die bei KATRIN zu erwarteten, deutlich erhöhten magnetischen Streufelder der supraleitenden Spulen einen störenden Einfluss auf die Röntgendetektorsysteme ausüben werden.

Mit Hilfe des TriReX-Aufbaus sollte auch der wichtigen Frage nach der Adsorption von Tritium auf Edelstahl und Gold nachgegangen werden. Aufgrund der derzeitigen Literaturlage ([Nis00], [Nak10]) existieren dazu keine verlässlichen Angaben. Neben dem Beitrag zum Untergrundsignal in einem Röntgendetektoraufbau bewirkt adsorbiertes

Tritium auf der vergoldeten Oberfläche der KATRIN-*Rear Wall* eine Veränderung des Oberflächenpotentials. Da dieses Oberflächenpotential als Referenz zur im Hauptspektrometer angelegten Gegenspannung dient, dürfen Schwankungen im Oberflächenpotential der *Rear Wall* nicht größer als 10 mV sein, um den daraus resultierenden Fehler auf die Messung der Neutrinomasse klein zu halten. Mit dem derzeitigen Aufbau von TriReX ist es trotz Modifikation der Geometrie nicht möglich gewesen die Menge von adsorbiertem Tritium auf Gold zu bestimmen. Der Grund hierfür ist der immer noch starke geometrische Einfluss der Edelstahlflächen des Rezipienten. Diese konnten nicht vollständig aus dem Sichtfeld des Detektors ausgeblendet werden.

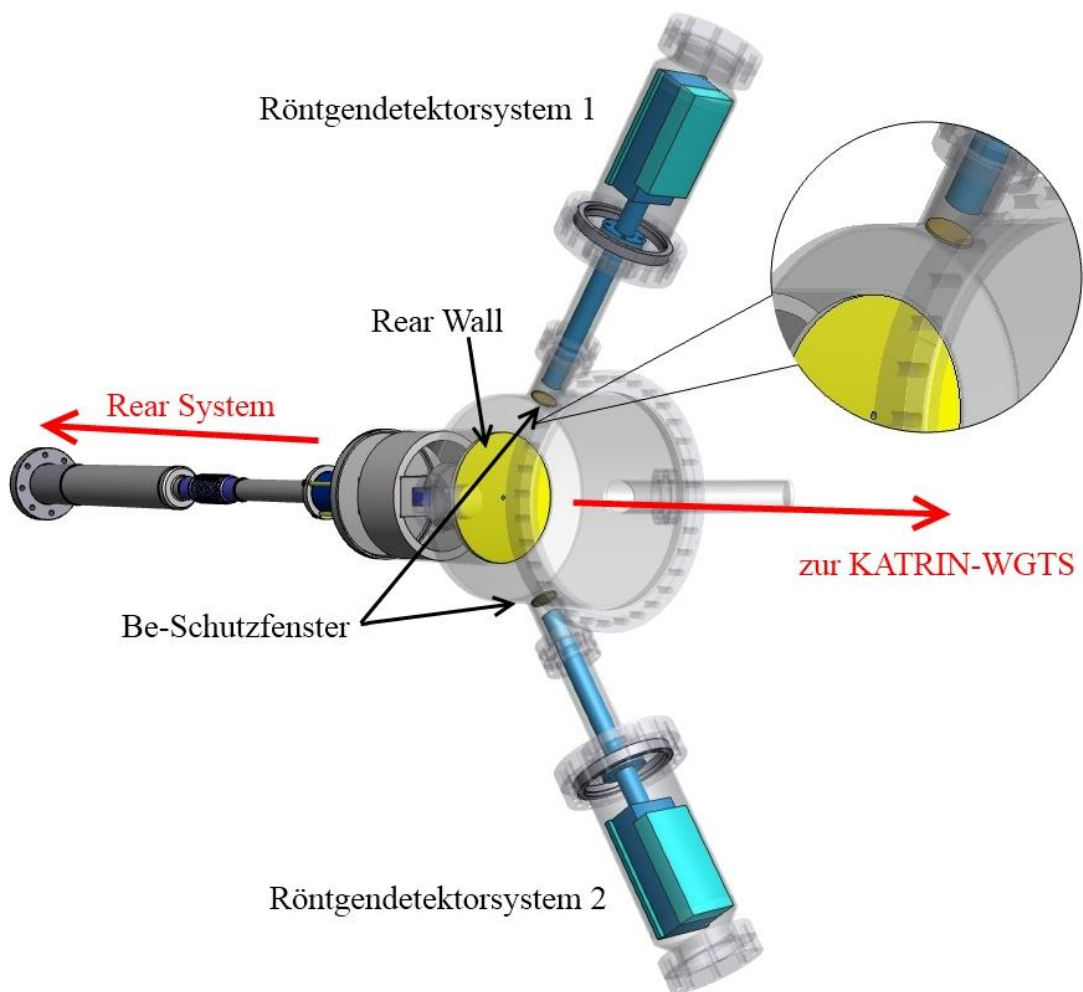


Abbildung 3.27: Vorschlag zur Implementierung von zwei BIXS-Systemen bei KATRIN.

Bei KATRIN ist derzeit vorgesehen, dass zwei Röntgendetektoren mit einer aktiven Fläche von je 100 mm^2 für die Überwachung der Aktivität der KATRIN-WGTS eingesetzt werden. Diese werden die von der Vorderseite der *Rear Wall* kommende Röntgenstrahlung registrieren, welche die Elektronen aus der KATRIN-Quelle (WGTS) auslösen. Vor der Tritiumatmosphäre geschützt werden diese Detektoren durch goldbeschichtete Be-Fenster.

Während eine Abtrennung der Fluoreszenzlinien im Impulshöhenspektrum der Bestandteile von Edelstahl möglich ist, kann der relative Anteil des Bremsstrahlungskontinuums der beiden Substrate nicht abgetrennt werden. Damit ist es nicht möglich, das von vergoldeten Flächen stammende Signal (bedingt durch adsorbiertes Tritium) vom Signal des Edelstahls (durch dort adsorbiertes Tritium) zu trennen.

Um dennoch diese für KATRIN sehr wichtige Frage beantworten zu können, wurde das Experiment Triade (Tritium Adsorption Desorption Experiment) basierend auf den gemachten Erfahrungen beim Aufbau und Betrieb von TriReX entworfen und am TLK aufgebaut [Sch13]. Der nahezu zweijährige Umgang mit dem TriReX-Aufbau und das dadurch gewonnene Wissen um Probleme und Lösungsmöglichkeiten ermöglicht es, durch eine optimierte Geometrie die Adsorption von Tritium auf beliebigen, kreisrunden Substraten zu bestimmen. Neben einer Messung der durch den Zerfall von adsorbiertem Tritium auf Oberflächen ausgelösten Röntgenbremsstrahlung ermöglicht Triade die unabhängige Überprüfung der Werte über ein Massenspektrometer. Daneben kann mit Triade, im Gegensatz zu TriReX, die Adsorption bei unterschiedlichen Temperaturen (-100 – 200 °C) untersucht werden. Zur Reduktion des in TriReX beobachteten Untergrundsignals ist Triade als komplett ausheizbare Vakuumapparatur konzipiert. Durch die Verwendung von kaskadierten Turbomolekularpumpen kann ein Enddruck $< 10^{-9}$ mbar im Rezipienten erreicht werden. Dies ermöglicht in Verbindung mit einem rauscharmen Si-Driftdetektor¹² den Nachweis von Bruchteilen einer Monolage Tritium (erwartete untere Nachweisgrenze: 0,001 – 0,1 Monolagen) auf der Probenoberfläche. Das Triade-Experiment wird voraussichtlich Mitte 2013 erste Daten aus Messungen mit Tritium liefern und TriReX als Referenzexperiment für KATRIN ablösen. Nähere Informationen zu den Tritiummessungen mit Triade finden sich in [Röl14].

¹² Amptek X-123 SDD, 25 mm² sensitive Fläche mit integriertem DP5 DAQ.

4. Das Testexperiment TriToP

In diesem Abschnitt soll das Testexperiment TriToP (*Tritium Test of Pumps*) erläutert werden. TriToP wurde als Teststand zur Untersuchung der Kompatibilität einer magnetisch gelagerten Turbomolekularpumpe mit dem Fördermedium Tritium konzipiert. Eine Verwendung von TriToP zur Untersuchung der Eignung weiterer Komponenten für den Betrieb mit Tritium ist vorgesehen, was den TriToP-Teststand zu einem universellen Instrument machen wird. In Kapitel 4.1 werden zunächst die Anforderungen erläutert, welche das Experiment zum erfolgreichen Betrieb erfüllen muss. Kapitel 4.2 gibt in zusammengefasster Form die grundlegenden Funktionsprinzipien der wichtigsten Komponenten wieder. In Kapitel 4.3 wird der Aufbau des TriToP-Experiments dargestellt und es werden detaillierte Informationen zu den Hauptkomponenten gegeben. Kapitel 4.4 behandelt anschließend die Messungen unter Tritiumatmosphäre, während in Kapitel 4.5 eine komplementäre Methode zur Bestimmung der Gaszusammensetzung und deren Ergebnis beschrieben wird. Kapitel 4.6 fasst die Ergebnisse der Demontage der TMP MAG W2800 und die damit verbundenen Messungen zusammen. Eine abschließende Zusammenfassung der Ergebnisse des TriToP-Experiments findet sich in Kapitel 4.7.

4.1. Motivation und Anforderungen

In der Vergangenheit gab es verschiedene Untersuchungen zur Kompatibilität von Turbomolekularpumpen (TMP) mit radioaktiven Gasen. Diese wurden initiiert durch den möglichen Einsatz von TMPs an zukünftigen Fusionsreaktoren (z.B. [Huc87], [Abe78], [Cof87], [Lan93]). Die Ergebnisse beschränken sich dabei auf theoretische Untersuchungen der Eignung oder auf eine Extrapolation von Daten aus dem Betrieb mit anderen Gasen (z.B. Deuterium). Eine Beschreibung der Ergebnisse eines Langzeittests einer TMP unter Tritiumatmosphäre ist bisher nicht erfolgt. Aus diesem Grund wurde entschieden, dass zur Untersuchung der Eignung der beim KATRIN-Experiment hauptsächlich verwendeten TMPs ein eigenes Testexperiment durchgeführt werden muss. Dabei sollten auch Erfahrungen beim Betrieb einer magnetisch gelagerter TMP mit Tritium als Prozessgas erhalten werden. Bei der Auslegung des Testexperiments TriToP stand demzufolge der erfolgreiche Betrieb einer großen TMP vom Typ Leybold MAG W2800 im Vordergrund. Diese findet, wie in Kapitel 2 beschrieben, Verwendung an der KATRIN-WGTS, sowie in der KATRIN-DPS2-F. Dort werden insgesamt 16 Pumpen dieses Typs das in das WGTS-Quellrohr eingeleitete Tritium abpumpen. Um vorab die Tritiumverträglichkeit dieser TMPs zu überprüfen und mögliche Auswirkungen auf KATRIN abschätzen zu können ist es notwendig, eine TMP unter möglichst realitätsnahen Bedingungen zu betreiben. Daraus resultieren direkt die wesentlichen Anforderungen an TriToP:

- Der Aufbau muss in der Lage sein, die optimalen Betriebsbedingungen für eine Leybold MAG W2800 bereit zu stellen (Vorvakuum, Kühlwasser, Abmessungen).
- Da der Test unter Realbedingungen mit Tritium als Prozessgas durchgeführt wird, muss der Aufbau entsprechend den Vorgaben des Tritiumlabors Karlsruhe gefertigt und aufgebaut werden [TLA13].
- Nimmt man vereinfacht an, dass praktisch die gesamte in das WGTS-Quellrohr eingelassene Gasmenge von den jeweils ersten vier TMPs der DPS1-R/F-Einheiten abgepumpt wird, so erhält man einen Durchsatz von 13 sccm¹/pro TMP. Dies stellt die Mindestmenge an zirkulierendem Gas dar, welche in TriToP prozessiert werden muss.
- Um im experimentellen Betrieb eine gewisse Flexibilität zu erhalten, soll der Gasfluss in einem Bereich von ca. 0 - 100 sccm einstellbar sein.
- Das System ist ganzmetallisch aufzubauen. Die einzigen, nichtmetallischen Oberflächen (Kunststoffe) im Primärsystem von TriToP sollen nur in der zu testenden TMP vorkommen. Damit können Veränderungen in der Gaszusammensetzung eindeutig auf die zu untersuchende TMP zurückgeführt werden.
- Der experimentelle Aufbau soll eine reguläre Bestimmung der Gaszusammensetzung ohne Probenahme ermöglichen. Dies erfordert den Einbau eines Massenspektrometers.
- Nach Möglichkeit soll TriToP so flexibel aufgebaut werden, dass anschließend weitere Pumpen und ggf. andere Komponenten getestet werden können.
- Auf die zusätzliche Simulation der Belastung einer TMP durch externe magnetische Felder soll verzichtet werden. Dieser Aspekt wurde in [Wol11] gesondert betrachtet.

4.2. Grundlagen der Hauptkomponenten

Dieses Kapitel soll die grundlegenden Funktionsprinzipien der wichtigsten in TriToP verwendeten Komponenten zusammenfassen. Es sind dies das Massenspektrometer zur Überwachung der Gaszusammensetzung und die zu untersuchende Turbomolekularpumpe selbst. Auf die Funktionsprinzipien der verwendeten Sensorik soll an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden.

4.2.1. Funktionsweise eines Massenspektrometers

In der Vakuumtechnik existieren unterschiedliche Arten von Massenspektrometriesystemen, z.B. Sektorfeldmassenspektrometer, Time-of-Flight-Massenspektrometer und Quadrupolmassenspektrometer. Allen ist gemeinsam, dass es sich um Partialdruckmessgeräte handelt. Das zu untersuchende Gas wird in die Kammer des Massenspektrometers (MS) eingeleitet und ionisiert. Danach werden die Ionen, im Gegensatz zu Druck-

¹ sccm: *Standard cubic centimeter per minute*. 1 sccm = 0,0169 mbarl/s.

messgeräten (z.B. Heiß- oder Kaltkathode) [Mao87], entsprechend ihrer Masse in einem Filtersystem selektiert, um anschließend mit einem Nachweisgerät erfasst zu werden. Hierbei handelt es sich oft um einen Faraday-Cup und/oder einen Sekundärelektronenvervielfältiger (SEV). Zum Betrieb eines MS sind in der Regel Gesamtdrücke $< 10^{-4}$ mbar erforderlich [Mao87], es existieren jedoch auch Geräte, welche bereits ab 10^{-2} mbar betrieben werden können.

Bei dem in TriToP zum Einsatz kommenden MS handelt es sich um ein Quadrupolmassenspektrometer (QMS) mit Faraday-cup. Daher sollen sich die folgenden Erläuterungen auf die Funktionsweise eines solchen Systems beschränken.

Abbildung 4.1 zeigt schematisch die Hauptkomponenten eines QMS, welche sich innerhalb des Vakuumsystems befinden. Es sind dies

- die Ionisationsquelle,
- das Filtersystem (Quadrupol) und
- das Nachweissystem.

4.2.1.1. Ionisationsquelle

Bevor mit Hilfe eines elektrischen Feldes die Selektion der Atom- und Molekülmassen durchgeführt werden kann, müssen die Gasspezies zuerst ionisiert werden. Dies erfolgt durch Beschuss des neutralen Gases mit Elektronen. Diese werden mit Hilfe einer elektrisch beheizten Kathode (üblicherweise als Filament bezeichnet) erzeugt und hin zu einer Anode im elektrischen Feld beschleunigt. Durch Stoßionisation entstehen so einfach bzw. mehrfach positiv geladene Ionen und Molekülbruchstücke. Den Ionenstrom I_K einer Gaskomponente K erhält man nach [Pfe13] zu

$$I_K = i_- \cdot l_e \cdot s_k \cdot p_k \quad (4.1)$$

mit

i_- :	Emissionsstrom des Filaments in A
l_e :	mittlere Weglänge der Elektronen in cm
s_k :	differenzieller Ionisierungswirkungsquerschnitt in $(\text{cm} \cdot \text{mbar})^{-1}$
p_k :	Partialdruck der Gaskomponente (mbar)

Ab einer Mindestenergie der Elektronen (10 – 30 eV [Pfe13]) setzt die Ionisation von neutralem Gas ein, je nach Gasart wird in einem Intervall zwischen 50 – 150 eV für die Beschleunigungsspannung ein Maximum der Ionisationsrate erreicht. Zur Maximierung der Ionenausbeute wird üblicherweise mit Elektronenergien zwischen 70 – 100 eV gearbeitet (Maximum des Ionisationsquerschnitts).

4.2.1.2. QMS Filtersystem

Das Filtersystem besteht aus vier parallelen, auf den Ecken eines Quadrates angeordneten Stäben. Die sich jeweils gegenüberliegenden Stäbe sind elektrisch miteinander verbunden (Abbildung 4.1, rot bzw. blau).

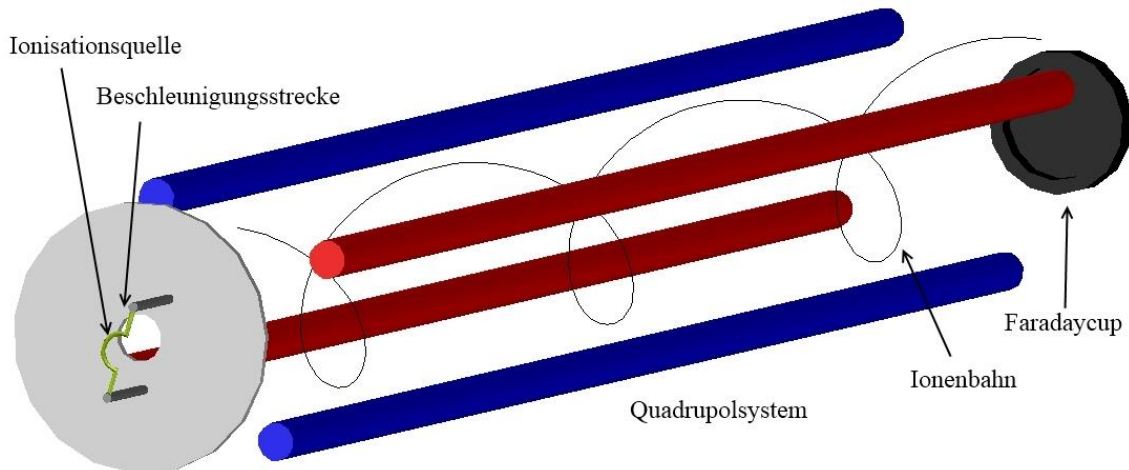


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung eines Quadrupol-MS.

Dargestellt sind die Ionisationsquelle (gelb), Beschleunigungsstrecke und Blende (grau), das Quadrupolstabsystem (blau/rot) und das Nachweissystem (schwarz) sowie eine stabile Ionenbahn.

Zwischen den Paaren ist eine Gleichspannung U_{DC} mit einer zeitlich überlagerten Wechselspannung U_{AC} angelegt. Damit ergibt sich die Ablenkspannung im Filtersystem nach [Pfe13] zu

$$U = U_{DC} + U_{AC} \cdot \cos(\omega t) \quad (4.2)$$

Das Masse-Ladungsverhältnis (m/e) ist proportional zur angelegten Spannung U .

Wird ein Molekül oder Atom an der Ionisationsquelle (Filament, Elektronenstoßionisation) ionisiert, so wird es innerhalb der Beschleunigungsstrecke beschleunigt. Dabei besitzen Ionen verschiedener Massen ungefähr die gleiche Energie. Die Ionen werden dann in das Stabsystem eingeschossen, wobei ein gewisser Einschusswinkel und Einschussbereich eingehalten werden muss [Pfe13]. Das Quadrupolfeld lenkt die Ionen in x - und y -Richtung ab, diese beschreiben im Filter eine Spiralbahn. Die Lösungen der Bewegungsgleichungen mit den beiden Stabilitätsparametern [Pfe13]

$$a = \frac{8 \cdot e \cdot U_{DC}}{m \cdot r_0^2 \cdot \omega^2} \quad (4.3)$$

und

$$b = \frac{4 \cdot e \cdot U_{AC}}{m \cdot r_0^2 \cdot \omega^2} \quad (4.4)$$

führen zu den Mathieu'schen Differentialgleichungen [Gro04], welche im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht näher erläutert werden sollen. Lösungen mit einer Schwingungsamplitude kleiner als dem Feldradius r_0 ergeben den sogenannten stabilen Bereich [Pfe13]. Ionen mit größeren Schwingungsamplituden werden am Stabsystem neutralisiert und erreichen nicht das Nachweissystem.

Bildet man das Verhältnis a/b der beiden Stabilitätsparameter, erhält man die Arbeitsgerade des QMS. Nach [Pfe13] gilt, dass Ionen nur für Spannungsverhältnisse

$$\frac{U_{DC}}{U_{AC}} < 0,1678 \quad (4.5)$$

das Stabsystem passieren und den Detektor erreichen können. Setzt man das Verhältnis von atomarer Masseneinheit zu Elementarladung ein, so ergeben sich die Stabilitätsbedingungen für U_{DC} und U_{AC} zu

$$U_{DC} = 1,2122 \cdot 10^{-8} \frac{\text{kg}}{\text{A} \cdot \text{s}} \cdot M \cdot r_0^2 \cdot f^2 \quad (4.6)$$

und

$$U_{AC} = 7,2226 \cdot 10^{-8} \frac{\text{kg}}{\text{A} \cdot \text{s}} \cdot M \cdot r_0^2 \cdot f^2 \quad (4.7)$$

und damit für $U_{DC} = 0$ stabile Bahnen für Massen [Pfe13]:

$$M > \frac{1,0801 \cdot 10^7 \cdot U_{AC}}{r_0^2 \cdot f^2} \cdot \frac{\text{A} \cdot \text{s}}{\text{kg}} \quad (4.8)$$

Aus Gleichung 4.8 kann abgeleitet werden, dass ein QMS ein Hochpassfilter darstellt. Mit steigendem U_{AC} werden sukzessive die Bahnen schwererer Ionenarten (von leichter her kommend) instabil und erreichen damit nicht mehr das Nachweissystem.

Das Auflösungsvermögen eines QMS ist maßgeblich von den geometrischen Gegebenheiten beeinflusst. Längere Filtersysteme bieten eine bessere Selektion einzelner Ionenmassen. Jedoch sind der Baulänge aus Gründen der mechanischen Stabilität und der Handhabbarkeit Grenzen gesetzt. Weiterhin besitzt der Stabdurchmesser einen Einfluss auf das Auflösungsvermögen [Pfe13].

4.2.1.3. Nachweissystem

Die einfachste Möglichkeit, die geladenen Ionen, welche das Quadrupolsystem passiert haben, nachzuweisen ist ein Faraday-Kollektor (*Faraday-Cup*). Dabei handelt es sich im Prinzip um eine metallische Platte, auf welche die Ionen auftreffen. Diese ist mit einem Elektrometerverstärker verbunden, welcher den auftreffenden Strom in eine dem Ionenstrom proportionale elektrische Spannung wandelt und gegebenenfalls verstärkt. Es können damit Ströme von ca. $10^{-16} - 10^{-14}$ A nachgewiesen werden.

Der Vorteil eines Faraday-cups liegt in seiner einfachen und robusten Bauweise, welche ihn praktisch unempfindlich gegenüber Vakuumeinbrüchen macht. Der Nachteil liegt in der relativ hohen Nachweisgrenze verbunden mit der Notwendigkeit des Auftreffens vieler Ionen (ca. $10^3 - 10^5 \text{ s}^{-1}$). Dies bedeutet, dass im UHV-Bereich ein Faraday-Cup nicht mehr eingesetzt werden kann, da die Mindestanzahl von Ionen nicht mehr zur Verfügung steht.

Sollen kleinere Ionenströme nachgewiesen werden, so benutzt man in der Regel einen Sekundärelektronenvervielfältiger (SEV). Dieser funktioniert analog zu einem Photomultiplier. Auftreffende Ionen erzeugen (Sekundär-) Elektronen, welche über mehrere Dynoden kaskadenartig vervielfacht werden. Damit erzielt man eine Verstärkung des

ursprünglichen Ionenstroms. Der Nachweis des verstärkten Signals erfolgt dann wieder mit Hilfe eines Faraday-Cups.

4.2.2. Funktionsweise einer Turbomolekularpumpe

Eine Turbomolekularpumpe (TMP) ist in ihrem Aufbau einer Turbine ähnlich. In einem Gehäuse mit Statoren rotiert mit hoher Drehzahl (typischerweise $500 - 1500 \text{ s}^{-1}$) ein Rotor mit Schaufeln. Im Gegensatz zur Turbine herrscht in einer TMP jedoch keine laminare sondern eine molekulare Strömung. Daher unterscheidet sich eine TMP im Funktionsprinzip von einer Turbine.

Die Pumpwirkung einer TMP beruht auf dem Übertrag des Rotor-(Dreh)-Impulses auf ein Gasteilchen (Atom oder Molekül) nach dem Prinzip einer kinetischen Pumpe [Huc87]. Abbildung 4.2 stellt das Funktionsprinzip dar. Ein Gasteilchen aus dem zu evakuierenden Rezipienten bewegt sich mit dem Impuls p_p auf die erste Stufe der TMP zu. Dort trifft es auf eine der rotierenden Schaufeln, wird dort adsorbiert und thermalisiert. Dabei verliert es die Information über seinen ursprünglichen Impuls. In 3) desorbiert das Gasteilchen wieder und bekommt den Rotorimpuls p_R zu seinem eigenen überlagert.

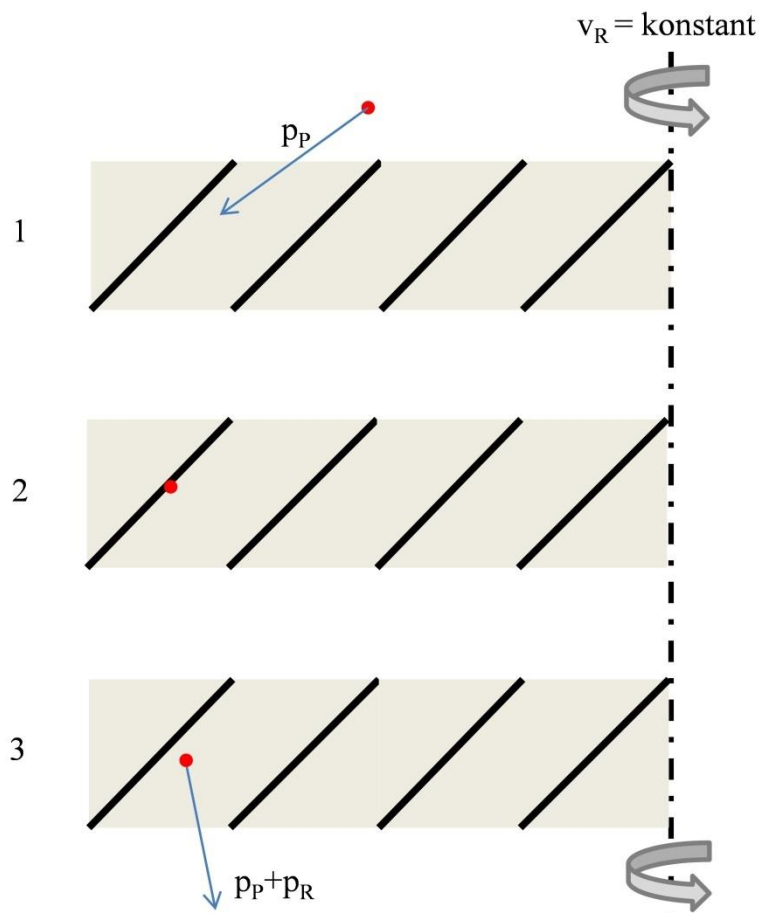


Abbildung 4.2: Funktionsprinzip einer Turbomolekularpumpe.

Bei 1) bewegt sich ein Gasteilchen (rot) auf eine Rotorschaukel (schwarz) zu, welche sich mit v_R dreht. In 2) adsorbiert das Gasteilchen und thermalisiert an der Rotorschaukel. In 3) desorbiert das Gasteilchen wieder und bekommt den Rotorimpuls p_R zu seinem eigenen überlagert.

Anschließend desorbiert das Gasteilchen und bewegt sich mit dem neuen Impuls p_p welchem nun der Impuls des Rotors (bzw. der Schaufel) p_R überlagert ist. Damit erhält das Gasteilchen eine Vorzugsrichtung in Richtung der nächsten Rotor-/Statorstufe bzw. in Richtung Auslass.

Damit die Komponente p_R nicht durch Stöße mit Gasteilchen in der TMP verloren geht, muss in der TMP eine molekulare Strömung² herrschen [Huc87], d.h. typischerweise herrscht ein Druck kleiner 10^{-2} mbar. Bei kinetischen Pumpen stellt sich im Betrieb ein Gegendruck ein, welcher eine Rückströmung von Gas durch die laufende Pumpe entgegen der Förderrichtung verursacht. Das Saugvermögen ohne Gegendruck wird mit S_0 bezeichnet und nimmt mit steigendem Gegendruck ab. Bei einem maximalen Kompressionsverhältnis K_0 wird $S_0 = 0$ [Pfe13]. Nach [Wut09] kann für eine optisch dichte Schaufelgeometrie (keine direkte Sichtlinie durch eine Rotorstufe) das Kompressionsverhältnis zu

$$K_0 = \exp\left(\frac{v}{\bar{c} \cdot g \cdot t \cdot \sin(\alpha)}\right) \quad (4.9)$$

$$\bar{c} = \sqrt{\frac{8 \cdot R \cdot T}{\pi \cdot M}} \quad (4.10)$$

mit	v :	Rotationsgeschwindigkeit des Rotors
	\bar{c} :	mittlere Geschwindigkeit des Gasteilchens
	g :	Konstante im Bereich von 1 – 3 [Wut09]
	t :	Abstand der Rotorschaukeln
	α :	Neigungswinkel der Rotorschaukeln
	R :	Gaskonstante
	T :	Temperatur
	M :	molare Masse des Gasteilchens

angegeben werden. Das Kompressionsverhältnis steigt also nach Gleichung 4.9 exponentiell mit der Rotorgeschwindigkeit v an und wegen Gleichung 4.10 auch exponentiell mit $M^{-1/2}$. Dadurch ergibt sich das höhere Kompressionsverhältnis für schwere Gase wie z.B. Stickstoff im Vergleich zu leichteren Gasen (z.B. Wasserstoff). Da die Kompression und damit die Förderrate gasartabhängig ist, findet auch immer eine Entmischung eines Gasmisches im Hochvakuumbereich einer TMP statt. Das Kompressionsverhältnis für Wasserstoff liegt bei mehrstufigen TMPs mit verschiedenen Schaufelwinkeln α typischerweise bei 10^3 , für Stickstoff bei 10^9 [Pfe13].

Reine Turbomolekularpumpen benötigen einen Vordruck in der Größenordnung von ca. 10^{-2} mbar [Huc87], um im Bereich der molekularen Strömung betrieben werden zu können. Um den Vorvakuumdruck erhöhen zu können, fügt man einer reinen TMP eine sogenannte Holweckstufe (Dragstufe) hinzu [Wut09]. Dadurch können TMPs typischerweise bis zu einem Vordruck von 5 mbar betrieben werden, wodurch man flexibler in der Wahl der Vorpumpe ist. Die Kompression K_0 kann durch die Verwendung von

² Die mittlere freie Weglänge muss größer sein als der Abstand der Schaufeln.

Holweckstufen um einen Faktor $10^2 - 10^3$ hin zu größeren Drücken aufrechterhalten werden [Pfe13]. Zum Abschätzen des erreichbaren Enddrucks ohne Gaslast an der Hochvakuumseite der TMP p_e gilt [Pfe13]:

$$p_e = \frac{p_v}{K_0} \quad (4.11)$$

mit p_e : erreichbarer Enddruck
 p_v : Vorvakuumdruck
 K_0 : Kompressionsverhältnis

Liegt ein Gasfluss vor, so kann man den erreichbaren Enddruck einer TMP mit Hilfe ihres Saugvermögens durch

$$p_e = \frac{Q}{S_{\text{spez}}} \quad (4.12)$$

mit p_e : erreichbarer Enddruck (mbar)
 Q : Gasfluss durch die TMP (mbarl/s)
 S_{spez} : spezifische Saugleistung der TMP für eine Gasart (l/s)

bestimmen.

4.3. Experimenteller Aufbau

Das zweite grundlegende, experimentelle Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, eine TMP vom Typ Leybold MAG W2800 über einen Zeitraum von einem Jahr unter KATRIN-ähnlichen Bedingungen zu betreiben. Es soll dazu ein geschlossener Kreislauf aufgebaut werden, in welchem die TMP integriert ist. Im Aufbau soll dabei die Zusammensetzung des Gasflusses ohne Probennahme bestimmbar sein. Eine Beschreibung des Aufbaus und der Ergebnisse findet sich in [Pri12].

4.3.1. Technische Anforderungen

Da es sich um ein tritiumführendes System handelt, das aufgebaut und über einen längeren Zeitraum betrieben werden soll, müssen die in [TLA13] genannten stringenten Bestimmungen eingehalten werden. So ist das Primärsystem von TriToP ganzmetallisch auszuführen (Edelstahl). Weiterhin sind auch alle Verbindungen metallisch dichtend vorzusehen.

- **Materialien und Leckraten**

Jede Einzelverbindung des Primärsystems (= tritiumführendes System) muss eine He-Leckrate $< 10^{-9}$ mbarl/s und das Gesamtsystem eine He - Leckrate $< 10^{-8}$ mbarl/s aufweisen. Daraus resultiert die Verwendung von UHV- kompatiblen Vakuumbauteilen aus Edelstahl mit metallischen Dichtungen (Conflat[®] oder Swagelok[®] VCR).

- **Aktivität**
Aufgrund der Aktivitätsauslegung von ca. $2 \cdot 10^{12}$ Bq muss das Experiment aus Sicherheitsgründen innerhalb einer zweiten Hülle aufgebaut werden. Dabei handelt es sich um eine Handschuhbox, welche eine Leckrate von $< 0,1$ Vol.%/h aufweist [TLA13]. Für diese Aufgabe wurde eine im TLK existierende Box (ALTEX) ausgewählt.
- **Gasfluss und Druck**
Um den Tritiumfluss im benötigten Bereich von 0 – 100 sccm (D_2) präzise regeln zu können, ist in TriToP ein ganzmetallischer Gasflussregler eingebaut. Dieser basiert auf einer Differenzdruckmessung an einer Blende und besitzt eine Genauigkeit von ca. $\pm 0,2\%$ des Messbereichsendwertes (Fullscale, FS). Es handelt sich dabei um eine Sonderanfertigung eines MKS Typs 1640A-392 für einen Eingangsdruck von ca. 20 mbar und einen Ausgangsdruck $\approx 0,1$ mbar. Zur Druckmessung kommen ganzmetallische, kapazitive Drucksensoren sowie eine Kaltkathode zum Einsatz.
- **Analyse der Gaszusammensetzung**
Zur Überwachung der Gaszusammensetzung kommt ein in-line-Massenspektrometer zum Einsatz. Damit ist eine Messung der Gaszusammensetzung ohne Probenahme direkt im geschlossenen Kreislauf von TriToP möglich. Der Druckbereich, in welchem das System eingesetzt werden soll, stellt besondere apparative Anforderungen (siehe Kapitel 4.3.2.2). Der Einsatz einer zusätzlichen TMP an der Vakuumkammer des Massenspektrometers verbietet sich aufgrund der Forderung nach einer eindeutigen Zuordnung potentieller Veränderungen in der Gaszusammensetzung zur TMP des Typs MAG W2800 (Kapitel 4.1).
- **Tritiumversorgung und -entsorgung**
Die Versorgung mit gasförmigem Tritium wird über Probenahmezylinder (PNZ) erfolgen. Diese werden mit Hilfe von TLK-Infrastruktursystemen mit Tritium befüllt, welches nach der Montage des PNZ an TriToP in den evakuierten Rezipienten expandiert wird. Die Abgabe erfolgt unter Zuhilfenahme der TriToP eigenen Scrollpumpe (siehe Kapitel 4.3.2) an die TLK-Infrastruktursysteme (CAPER, [Dör05]), welche das tritiierte Gas weiter prozessieren.

4.3.2. Aufbau von TriToP

TriToP ist als vollständig geschlossener Kreislauf konzipiert. Das Prinzip ist in Abbildung 4.3 wiedergegeben. Neben der zu testenden TMP besteht der Kreislauf aus den folgenden Komponenten:

- Massenspektrometer zur Untersuchung der Gaszusammensetzung,
- Vorpumpe zur TMP,
- Behälter zur Reduzierung von Druckschwankungen,
- Gasflussregler zum Einstellen eines Gasflusses im Bereich $0 \leq Q \leq 100$ sccm,

- Druck- und Temperatursensorik,
- Handventile.

Von prozesstechnischer Seite zirkuliert Gas von einem Behälter ($V \approx 1,5$ l, DN63 CF T-Stück) über den Gasflussregler (Typ MKS 1640) zur TMP. Zum Betrieb des Gasflussreglers darf der Druck am Ausgang nicht zu gering sein ($p_{\text{aus}} \geq 0,1$ mbar). Um dies zu gewährleisten, ist direkt am Anschluss der TMP eine Lochblende mit einer Öffnung von $500 \mu\text{m}$ verbaut. Dadurch entsteht der Druckabfall hin zum Hochvakuum an einem Ort, der ca. 1 m vom Ausgang des Gasflussreglers entfernt liegt. Auf der Hochvakuumseite ist das Massenspektrometer (MKS HPQ2S) direkt oberhalb der TMP angeschlossen. Der Vordruck zum Betrieb der TMP ($p_{\text{vor}} \leq 3$ mbar [MAG28]) wird durch eine ganzmetallische Scrollpumpe (Normetex Typ 15) aufrechterhalten. Vom Ausgang der Scrollpumpe wird das Gas wieder in den Pufferbehälter zurück geleitet. In Abbildung 4.4 ist der TriToP-Aufbau kurz vor dem Schließen der zweiten Hülle (Altex-Handschuhbox) zu sehen.

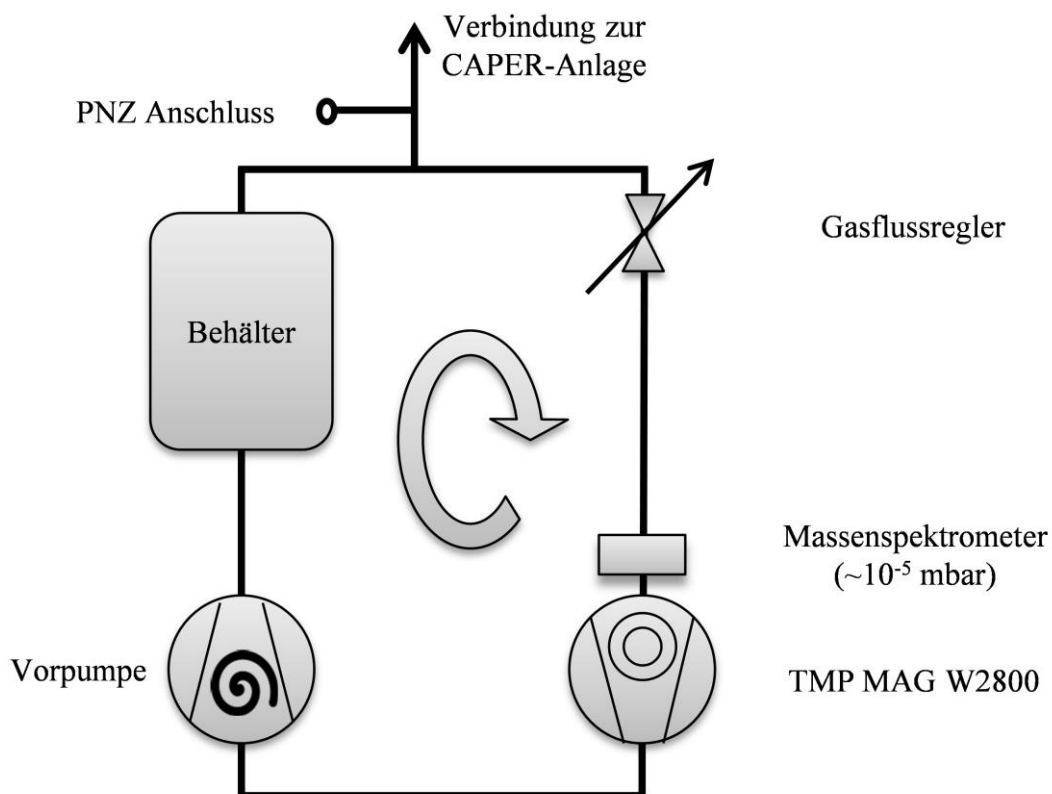


Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau des TriToP-Kreislaufes.

Gas zirkuliert im Uhrzeigersinn vom Behälter über die TMP. Der Gasfluss wird mittels eines Gasflussreglers eingestellt. Zum Füllen wird ein PNZ am PNZ-Anschluss montiert und das Gas in den Behälter expandiert. Handventile sind nicht eingezeichnet.

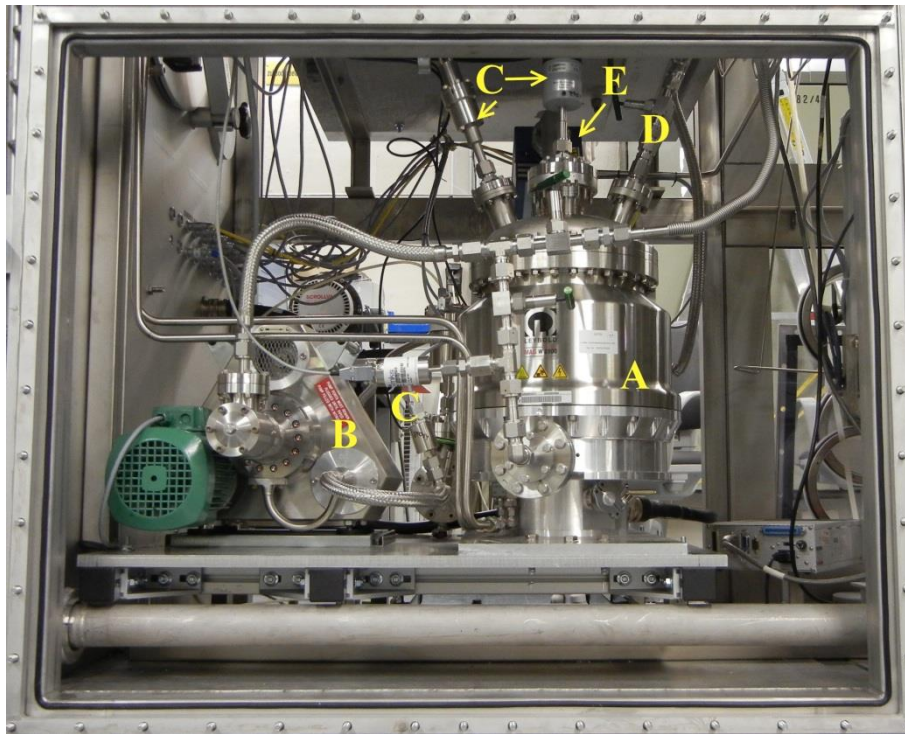


Abbildung 4.4: TriToP Aufbau in der Altex Handschuhbox.

Zu sehen sind die zu testenden TMP (A), die Vorpumpe (B), die Drucksensorik (C), die Gaszuführung zur TMP (D) sowie das Massenspektrometriesystem (E). Der Aufbau misst ca. $1,2\text{ m} \cdot 1\text{ m} \cdot 1\text{ m}$.

4.3.2.1. Details zur TMP Leybold MAG W2800

Bei der Leybold MAG W2800 (Abbildung 4.5) handelt es sich um einen TMP-Typ mit magnetisch gelagertem Rotor, bei dem es keine konventionellen, fettgeschmierten Kugellager im Pumpvolumen gibt. Ein fettfreies keramisches Notlager fängt den Rotor auf, falls die magnetische Lagerung versagen sollte. Dies kann z.B. dann passieren, wenn die Magnetlagerung durch nicht vernachlässigbare äußere Magnetfelder überlagert wird [Wol11]. Im Normalbetrieb wird der Rotor durch elektromagnetische Lager in einer Schwebeposition gehalten. Dabei sorgen Positionssensoren und entsprechende Korrekturspulen dafür, dass der Rotor nicht kippt. Die Regelung erfolgt über die zur TMP gehörende Steuerungseinheit. Zusätzlich zu den Spulen des Magnetlagers befinden sich auch die Antriebsspulen des Elektromotors im Pumpvolumen. Die daraus resultierende Problematik wird weiter unten im Text erläutert.

Der hochvakuumseitige Anschluss ist als metallisch dichtender DN250 CF-Flansch ausgeführt. Auf der Vorvakuumseite bietet die TMP in der werksseitigen Ausführung einen DN40 KF-Flansch. Dieser wurde für den Einsatz bei KATRIN entfernt und durch einen DN63 CF-Flanschadapter ersetzt. Am Pumpengrundkörper ist dieser CF-Flanschadapter jedoch immer noch mit einer Elastomer O-Ringdichtung abgedichtet. Für den Einsatz in TriToP wurde dieser Dichtring gegen eine metallische Indiumdichtung ersetzt. Aufgrund der Befestigungsmöglichkeiten kann der Anschluss für Sperrgas an der Pumpe aber nicht ebenfalls mit einer Indiumdichtung ausgestattet werden.

Die Pumpe besitzt entsprechend ihrer Herstellerspezifikation [MAG28] ein Saugvermögen von 2400 l/s (N_2) ohne installierten Splitterschutz. Das Saugvermögen für Wasserstoff liegt bei etwa 1800 l/s, die Kompression beträgt $1 \cdot 10^9$ für N_2 und $1,6 \cdot 10^3$ für H_2 . Der zum Betrieb erforderliche Vordruck muss bei Verwendung der vorgesehenen Wasserkühlung unter 3 mbar betragen. Der Rotor besitzt einen Durchmesser von 320 mm und dreht mit einer maximalen Frequenz von 480 U/s. Daraus ergeben sich Umlaufgeschwindigkeiten von ca. 482 m/s an den Rotorspitzen. Im Dauerbetrieb sollte die Temperatur einen Wert von 60 °C nicht übersteigen, da es sonst aufgrund der geringen Spaltmaße von Rotor/Stator/Gehäuse zueinander zu einer Berührung der funktionalen Elemente und damit zur Beschädigung der Pumpe kommen kann.

Im Inneren der TMP sind mehrere nichtmetallische Oberflächen zu finden. Dies umfasst die Statorspulen zum Antrieb des Rotors sowie die x, y und z Spulen der Magnetlager sowie die Positionssensoren. Dabei handelt es sich um in Epoxidharz vergossene Spulen (Kapitel 4.6). Weitere nichtmetallische Oberflächen finden sich in Form von Korrosionsschutzlack und einem Kohlefaserschutzmantel der Rotor-Permanentmagnete an der Antriebswelle. Während des Betriebs herrscht an dieser nichtmetallischen Oberfläche ein Druck, welcher dem Vorvakuumdruck entspricht oder niedriger ist (minimal entspricht er dem erreichten Enddruck an der Hochvakuumseite). Wird die Pumpe abgeschaltet und mit Ventilen vom restlichen Vakuumsystem getrennt, so bildet sich innerhalb des Schöpfraumes der Pumpe ein gleichmäßiger Druck aus.



Abbildung 4.5: Leybold MAG W2800.

Die Abbildung zeigt die in TriToP eingesetzte TMP Leybold MAG W2800 nach Beendigung der einjährigen Testphase und ihrem Ausbau aus TriToP in der ALTEX-Handschuhbox. Mit a) gekennzeichnet ist der DN250 CF-Hochvakuumflansch, b) kennzeichnet den Vorvakuumanschluss (1/2“ VCR).

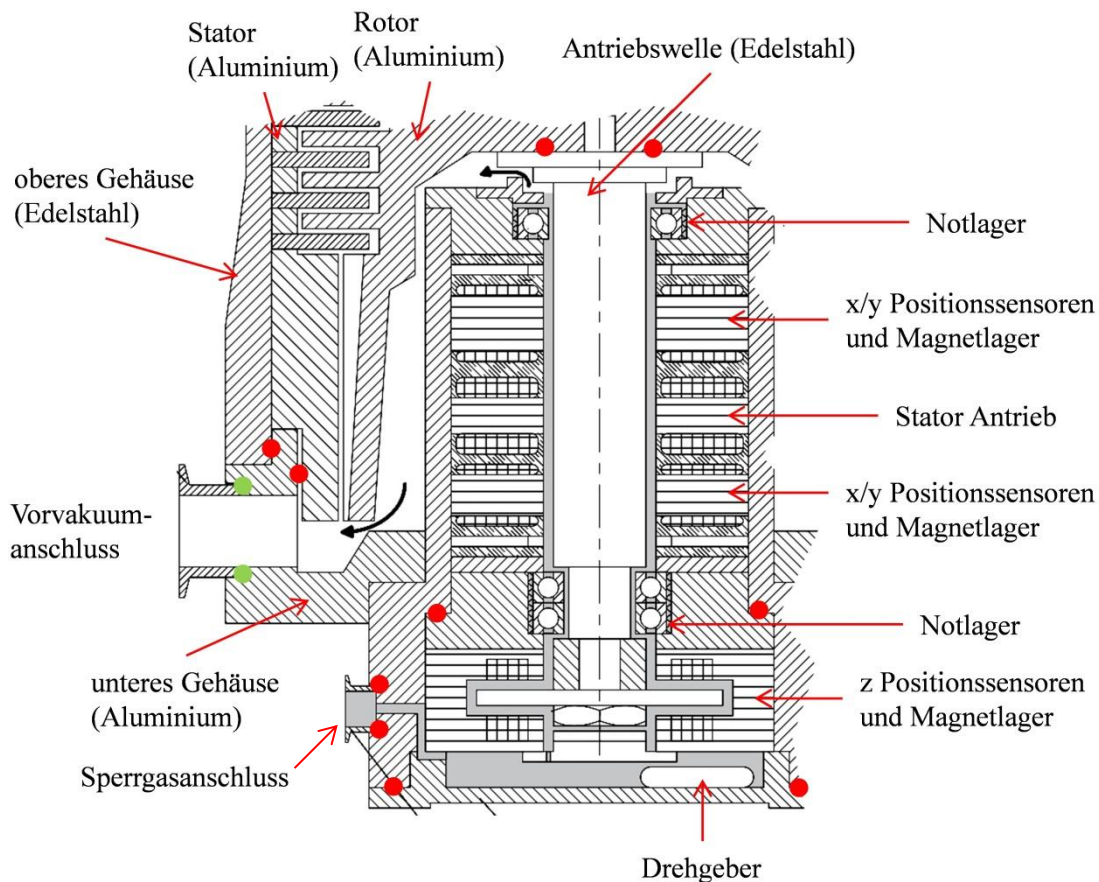


Abbildung 4.6: Querschnitt durch eine magnetisch gelagerte TMP (schematisch).

Die Abbildung (nach [MAG28]) zeigt die Stellen, an welchen nichtmetallischen Oberflächen im Schöpfraum der TMP zu finden sind. Es handelt sich dabei um in Epoxidharz vergossene Spulen und Positionssensoren. Mit roten Punkten markiert sind die Positionen von Elastomer O-Ringdichtungen. Die grünen Punkte markieren die Position der gegen eine Indiumdichtung ausgetauschten Elastomerdichtung am Vorvakuumanschluss. Stator und Rotor sind aus Aluminium gefertigt. Eine Beschichtung der Oberflächen findet sich in den für KATRIN vorgesehenen TMPs nicht.

Durch Ausgasen von zuvor adsorbierten Prozessgasen (u.a. Tritium) stellt sich daher im Stillstand an den nichtmetallischen Oberflächen ein höherer Tritiumpartialdruck ein als im Betrieb.

Zusätzlich zu den nichtmetallischen Oberflächen an Magnetlagern und Antriebsspulen finden sich mehrere Elastomerdichtungen an und in der TMP. Da nur wenige über eine Flächenpressung zwischen zwei parallelen Oberflächen dichten, sondern als Radialdichtung ausgelegt sind, ist ein Umbau auf Metalledichtungen (z.B. Indium- oder Golddraht) nicht möglich. Die jeweilige Position kann Abbildung 4.6 entnommen werden. Diese Elastomerdichtungen, insbesondere diejenige, welche die obere und untere Gehäusehälfte miteinander verbindet (rechts oberhalb des Vorvakuumanschlusses in Abbildung 4.6) sind für die beobachtete Leckrate und Permeation (Kapitel 4.3.3) verantwortlich.

4.3.2.2. Details zum Massenspektrometer MKS HPQ2S

Aufgrund des benötigten Flusses von mindestens 13 sccm wird sich nach Gleichung 4.12 bei einer MAG W2800 (ca. 2000 l/s Saugvermögen für H₂ [MAG28]) ein Enddruck von ca. $1 \cdot 10^{-4}$ mbar einstellen. Dies ist zum Betrieb herkömmlicher, analytischer Massenspektrometer (MS) um einen Faktor 10 – 100 zu hoch, bzw. knapp innerhalb der Spezifikation. Daher kommt in TriToP ein spezielles System zum Einsatz, mit welchem bis zu Gesamtdrücken von $1 \cdot 10^{-2}$ mbar gearbeitet werden kann. Dadurch soll die Notwendigkeit eines häufigen Wechsels der Ionisationsquelle (Wolframfilament) vermieden werden, wenn das Gerät bei 10^{-4} mbar und damit deutlich unterhalb des maximalen Einsatzdruckes betrieben wird (kein „Durchbrennen“ des Filaments). Durch den feinmechanischen Aufbau eines Massenspektrometers (MS) gestaltet sich ein Wechsel des Filaments schwierig, da das MS dem Prozessgas Tritium direkt ausgesetzt ist und nur unter entsprechenden Sicherheitsvorkehrungen gewartet werden kann (innerhalb der zweiten Hülle/Handschuhbox). Daneben bedeutet jedes Öffnen des Vakuumsystems von TriToP eine Unterbrechung des Normalbetriebs und das Risiko einer Leckage nach erneuter Montage.

Beim verwendeten MS handelt es sich um den Typ HPQ2S des Herstellers MKS. Dieses System wurde als Prozessmonitor für die Halbleiter- und Beschichtungsindustrie entworfen, wo es direkt an der Prozesskammer montiert werden kann. Weitere Einsatzgebiete des MS umfassen die He-Lecksuche in Vakuumsystemen sowie die Überwachung der Leistung von Vakuumpumpen (Anhang G). Das eingesetzte QMS-System ist also eher als ein qualitatives Prozessüberwachungswerkzeug zu verstehen als ein quantitatives Analysewerkzeug. Da in TriToP hauptsächlich relative Veränderungen der Gaszusammensetzung beobachtet werden sollen, stellt dies jedoch keine Einschränkung dar.

Die Einheit besteht aus einem kompakten 1 Zoll Quadrupolsystem mit einem Faraday-Cup als Ionendetektor. Die Ionisationsquelle besteht aus zwei Wolframglühdrähten. Die beiden Ionisationsquellen 1 oder 2 können per Software ausgewählt werden. Im Versagensfall einer der beiden Ionisationsquellen kann so die zweite genutzt werden, bevor der Filamentträger ausgetauscht werden muss. Die nachweisbare Massenskala geht von 1 – 80 amu (*atomic mass unit*, entspricht der Massenzahl des Ions für einfache Ionisation) mit einer Auflösung von 1 amu (Anhang G). Im Unterschied zum HPQ2 Spektrometer besitzt das HPQ2S einen zusätzlichen Drucksensor (Kaltkathode) zur Kompensation unterschiedlicher Sensitivitäten bei höheren Drücken (10^{-3} – 10^{-2} mbar). Dies ermöglicht eine softwareseitige Korrektur für Moleküle von H₂O, O₂, N₂, CH₄, He und H₂ in Ar (Anhang G). Die genaue Funktion dieser herstellerseitigen Softwarekorrektur ließ sich nicht feststellen. Bei den erreichbaren Drücken von ca. 10^{-4} mbar kommt diese Korrektur jedoch nicht zum Tragen und wird in den Analysen nicht berücksichtigt.

Mit der mitgelieferten Software „Process Eye 2000“ werden sämtliche Einstellungen des MS-Systems vorgenommen. Dazu zählen u.a.

- Einstellen des Emissionsstroms.
- Einstellen der Beschleunigungsspannung.

- Ausrichtung der Peaks des Spektrums relativ zur amu-Skala (x-Achse) („*low mass alignment, high mass alignment*“). Diese Einstellung wird zur Kalibrierung des Systems benötigt.
- Einstellen der Breite der dargestellten Peaks (*low mass resolution, high mass resolution*).
- Einstellungen zur Genauigkeit und Geschwindigkeit, mit welchen die Spektren aufgezeichnet werden sollen.

Neben diesen die Messung und das Ergebnis unmittelbar beeinflussenden Einstellungen bietet die Software zahlreiche Funktionen zur benutzerdefinierten Anpassung der Oberfläche. Diese sind für die Ergebnisse nicht von Bedeutung und können im Handbuch zur Software nachgelesen werden.

In Abbildung 4.7 kann die Länge des Anschlusses an die Prozesskammer (Hochvakuumseite der TMP) bis zum QMS-System zu 190 mm abgelesen werden. Es handelt sich dabei um ein DN40 CF Rohr ($d_{\text{innen}} = 39 \text{ mm}$). Dieses besitzt im molekularen Strömungsbereich nach [Pfe13] einen Leitwert

$$L_{\text{Rm}} = \frac{\bar{c} \cdot \pi \cdot d^3}{12 \cdot l} \quad (4.13)$$

mit L_{Rm} : Leitwert in l/s
 d : Durchmesser des Rohres in m
 l : Rohrlänge in m
 \bar{c} : mittlere therm. Geschwindigkeit nach Maxwell-Boltzmann in m/s (Gleichung 4.10)

von ca. 144 l/s für molekularen Wasserstoff. Dieser Sachverhalt reduziert das Saugvermögen der TMP am Ort des QMS-Systems demzufolge um einen Faktor 13, verglichen mit dem Saugvermögen für gleiche Moleküle direkt am Hochvakuumflansch der TMP ($\approx 2000 \text{ l/s}$). Die Einbaulage hat zur Folge, dass sich das QMS-System nicht direkt im Prozessgasstrom befindet und so potentiell eine leicht veränderte Gasmischung analysiert als die tatsächlich zirkulierte. Da eine TMP leichte Gase (z.B. H_2) schlechter fördert als schwere (z.B. N_2) (Kapitel 4.2.2), kann davon ausgegangen werden, dass leichte Gase tendenziell besser zum QMS diffundieren und damit im Massenspektrum stärker ausgeprägt erscheinen als sie im Gasstrom tatsächlich vorhanden sind. Für den relativen Vergleich von mehreren Messungen untereinander ist dieser Effekt jedoch unerheblich.

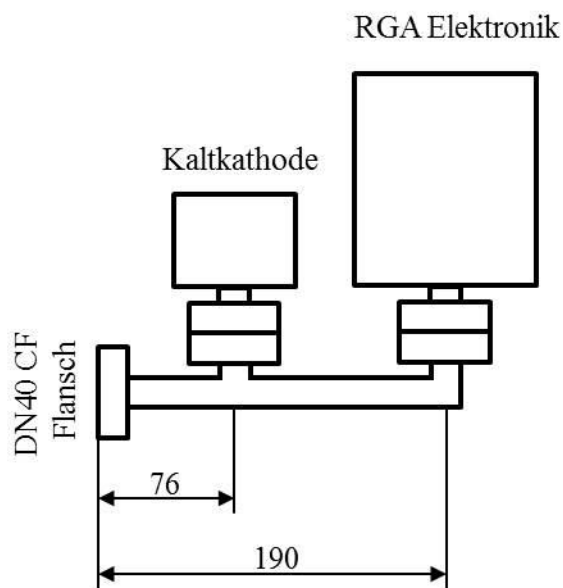


Abbildung 4.7: Abmessungen und Aufbau des Quadrupol-Systems.

Dargestellt ist links eine Schemaskizze (nach Hersteller Datenblatt, Anhang G) zum geometrischen Aufbau des Systems mit Kalkkathode und RGA-Elektronik. Rechts abgebildet ist der Vakuumteil des RGA-Systems, welcher ca. 2,5 cm über den Flansch hinaus ragt. Mit a) gekennzeichnet ist die Position der Ionisationsquelle (Wolframfilament).

4.3.3. Verfahrenstechnische Inbetriebnahme

Nach dem Komplettieren des TriToP-Aufbaus und der Überprüfung der Leckraten von Einzelverbindungen muss nach [TLA13] eine integrale Leckrate $q < 1 \cdot 10^{-8}$ mbarl/s erreicht werden. Um dies zu überprüfen, wird ein He-Leckdetektor³ an den Probenahmeanschluss von TriToP angeschlossen und die zuvor geschlossene zweite Hülle (= Handschuhbox) mit Helium geflutet. Dabei ist darauf zu achten, dass die Anschlussleitung des Leckdetektors mit metallischen Dichtungen aus der zweiten Hülle geführt wird. Erst außerhalb erfolgt dann eine Umsetzung auf den KF-Anschluss (Elastomerdichtring) des Leckdetektors. Dies verhindert ein Fehlsignal aufgrund von Permeation an der KF-Dichtung. Abbildung 4.8 zeigt das komplette R&I Schema (Flussdiagramm) von TriToP. Der Leckdetektor ist am Probenahmeanschluss von HV058 angeschlossen. HV053 und HV054 sind geschlossen, um die Elastomer gedichtete TMP (Elastomerdichtungen am Gehäuse, siehe Kapitel 4.3.2.1) beim integralen Lecktest nicht mit zu berücksichtigen. Aufgrund der dort verwendeten Materialien (Fluorkautschuk) kommt es zur Permeation von He am Dichtungselement. Ebenfalls geschlossen ist HV059, welches die Verbindung zur TLK-Tritiuminfrastruktur (CAPER) darstellt. Abbildung 4.9 zeigt das Ergebnis der Überprüfung der Leckrate. Während der ersten 35 Minuten sind HV053 und HV054 geschlossen und man erreicht eine Leckrate $q \leq 2 \cdot 10^{-10}$ mbarl/s. Nach dem Öffnen von HV053 und HV054 steigt die Leckrate aufgrund von Permeation während den ersten 35 Minuten an der TMP (VA061) auf $6 \cdot 10^{-8}$ mbarl/s an. Nach insgesamt 200 Minuten steigt die Leckrate bis auf $1,8 \cdot 10^{-6}$ mbarl/s. Ein anschließendes

³ Zuvor mit He-Prüfleck, TL8 16557 (Permeationstyp), $q = 2,3 \cdot 10^{-8}$ mbar l/s, Füllung am 12.9.2008, Seriennummer: 90001089879 auf korrekte Anzeige überprüft.

Schließen der Handventile HV053 und HV054 reduziert die Leckrate wieder auf den ursprünglichen Wert. Der Einsatz einer TMP ist durch eine Einzelgenehmigung (Tolerierungsantrag) abgedeckt, da die Vorgabe einer Einzelleckrate mit $q \leq 1 \cdot 10^{-9}$ mbarl/s nach [TLA13] konstruktionsbedingt nicht eingehalten werden kann. Das restliche Primärsystem erfüllt diese Anforderung. Nach erfolgreichem integralen Lecktest werden die Nullpunkte der einzelnen Drucksensoren überprüft. Dies erfolgt durch Evakuieren der Druckmessstelle bis ca. eine Größenordnung unter den Messbereichsendwert, wobei gegebenenfalls die Nullpunkte justiert wurden.

Die korrekte Anzeige aller Messstellen im Prozessleitsystem (PLS) (National Instruments® Compact Field Point) wurde anhand eines simulierten Sensorsignals sichergestellt. Dazu werden Werte (Spannungen, Ströme, Widerstände) eingestellt, welche dem oberen und unteren Messbereichsendwert entsprechen, sowie einem Zwischenwert. Die Anzeige im PLS muss dann den jeweiligen Vorgaben entsprechen.

Zur Überprüfung der Sicherheitsabschaltungen werden entweder gezielt Betriebsbedingungen produziert, welche eine Abschaltung zur Folge haben oder es werden wiederum die entsprechenden Signale simuliert.

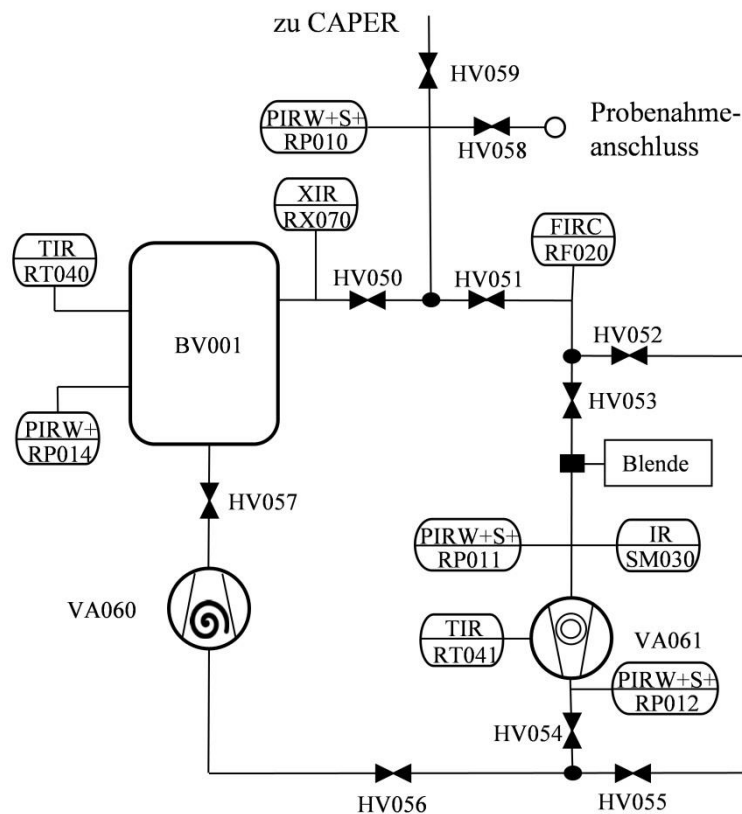


Abbildung 4.8: R&I Schema von TriToP.

Dargestellt ist das Fließbild des TriToP-Experiments. Temperaturmessstellen werden mit T (TIR, *temperature indicating and recording*), Druckmessstellen mit P (PIR, *pressure indicating and recording*) bezeichnet. Bei VA060 handelt es sich um die Vorpumpe der zu testenden TMP MAG W2800 (VA061). Das Massenspektrometer wird abkürzend mit IR (SM030) bezeichnet. Gasflussmesser werden mit F (FIR, *flow indicating and recording*) und Handventile mit HV bezeichnet.

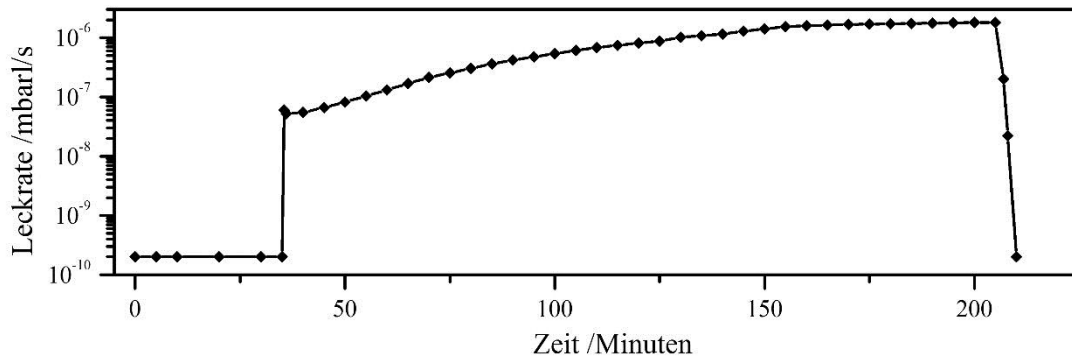


Abbildung 4.9: Ergebnis des integralen Lecktests von TriToP.

Die Bestimmung der Leckrate q beim integralen Lecktest zieht die Permeation mit in Betracht, da später beim Langzeittest ebenfalls Permeation in das Primärsystem hinein stattfindet. Ebenso kann während eines Stillstands Atmosphäre aus dem Primärsystem in das Volumen der zweiten Hülle permeieren. Daher ist ein Stillstand nur bei einer evakuierten TMP zulässig, um einen Druckgradienten ins Primärsystem aufrecht zu erhalten. Zur weiteren Erklärung des Diagramms siehe Text.

4.3.2.3. Kalibrierung des Massenspektrometriesystems

Zur Kalibration des Massenspektrometers wurde ein drei-komponentiges Gasgemisch bestehend aus je ca. einem Drittel Helium, Stickstoff und Argon selbst hergestellt. Das Einstellen der jeweiligen Anteile erfolgte über den Druck im Probenahmezylinder, gemessen mit einem kapazitiven Druckaufnehmer (gasartunabhängig). Der Probenahmezylinder wurde an den Probenahmeanschluss von TriToP angeschlossen (Abbildung 4.8) und Gas in den Behälter des Primärsystems (BV001) expandiert. Anschließend wurde die Vorpumpe (VA060) und TMP (VA061) gestartet und nach Erreichen des Enddrucks das QMS. Das erhaltene Spektrum vor der Kalibrierung ist in Abbildung 4.10 dargestellt. Deutlich zu sehen ist die nicht korrekte Ausrichtung relativ zur Massenskala. Die erwarteten Peakpositionen einschließlich ihrer relativen Intensitäten sind in Tabelle 4.1 gegeben. Aufgrund der Kenntnis der Peakpositionen wurden die Parameter „*low mass alignment*“ und „*high mass alignment*“ über die Anwendersoftware so lange verändert, bis die Maxima mit den erwarteten Positionen übereinstimmten. Anschließend wurde die Breite der Peaks mit den Parametern „*low mass resolution*“ und „*high mass resolution*“ eingestellt, dass diese den Gerätespezifikationen entsprachen und benachbarte Peaks getrennt werden konnten. Zur Kalibrierung der Peakhöhe wurde das System zunächst bis auf ca. $1 \cdot 10^{-7}$ mbar evakuiert (Summe der Partialdrücke). Danach wurde reiner Stickstoff bis auf einen Wert von ca. $2 \cdot 10^{-5}$ mbar eingelassen. Die QMS Anwendersoftware bietet in diesem Hinblick die Möglichkeit einer Vorgabe, dass der gemessene Totaldruck dem Partialdruck nur einer einzelnen Spezies entspricht. Diese muss anhand ihrer Masse (Verhältnis m/e in amu) angegeben werden. Aufgrund des Verhältnisses von Untergrund ($\approx 1 \cdot 10^{-7}$ mbar) zu Stickstoffpartialdruck ($\approx 2 \cdot 10^{-5}$ mbar) entspricht der dadurch entstehende Fehler $< 1\%$. Alle weiteren Messungen beruhen auf dieser Kalibrierung der Peakhöhe. Die Verwendung von Stickstoff als Spezies zur Kalibrierung besitzt den Vorteil, dass sämtliche Tabellen und Nachschlagewerke die relative Ionisationswahrscheinlichkeit für Stickstoff gleich Eins setzen. Ein Umrechnen der anderen Peaks im Spektrum (z.B. Helium, CO_2 , ...) ist somit anhand entsprechender Tabellenwerke (Anhang H) direkt möglich.

Für sämtliche QMS-Messungen wurden folgende Parameter verwendet:

- Emissionsstrom: 0,3 mA
- Elektronenenergie: 70 eV
- Ionenenergie: 7 eV
- Extraktionsspannung: 110 V

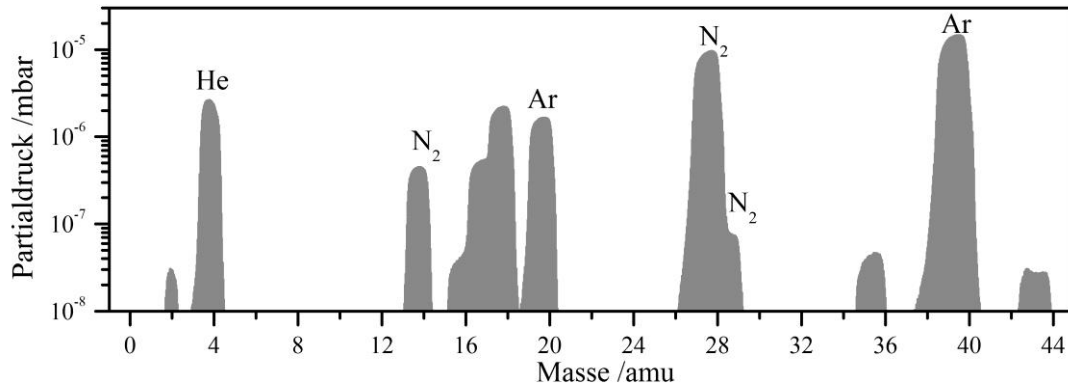


Abbildung 4.10: Massenspektrum vor Kalibrierung des QMS.

Massenspektrum, aufgenommen mit den Einstellungen des Herstellers. Man erkennt neben der Verschiebung der einzelnen Peaks hin zu kleineren Massen die zu große Breite der einzelnen Peaks, wodurch benachbarte ineinander übergehen (z.B. H₂O, 16 - 18 amu, N₂, 28 - 29 amu).

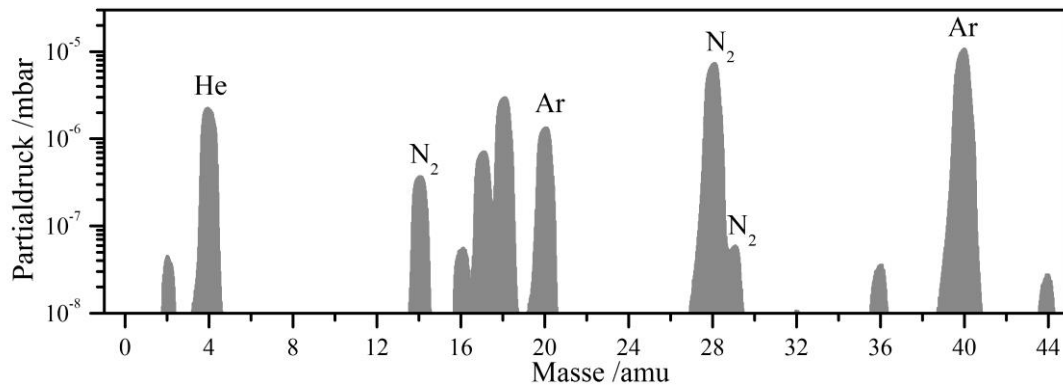


Abbildung 4.11: Massenspektrum nach Kalibrierung des QMS.

Nach der Kalibrierung ist die Ausrichtung der Peaks zur x-Achse korrekt. Die Maxima fallen mit der entsprechenden Massenzahl zusammen. Die Breite der Peaks entspricht den Gerätespezifikationen ($\Delta = 1$ amu). Die Trennung der Peaks von Wasser (16 - 18 amu) und Stickstoff (28 - 29 amu) wurde deutlich verbessert gegenüber Abbildung 4.10.

Tabelle 4.1: Erwartete Peakpositionen und relative Intensitäten.

Erwartete Position der Peaks im Massenspektrum beim verwendeten Kalibriergas. Die Intensitäten sind jeweils relativ zum Hauptpeak einer Spezies angegeben. Die Werte sind der Referenz aus Anhang H entnommen. Es wurde dabei die einfache Ionisation der Moleküle und Atome vorausgesetzt, falls nicht anders gekennzeichnet.

Spezies	Massezahl /amu	relative Höhe /%
He	4	100
N	14	7
N ₂	28	100
¹⁴ N ¹⁵ N	29	1
Ar	20	10
Ar ⁺⁺	40	100

4.4. Tritiummessungen

Die in TriToP eingesetzte TMP aus dem allgemeinen KATRIN-Bestand⁴ wurde nach der Auslieferung an die KATRIN-Kollaboration zur Charakterisierung der Leistungsfähigkeit und Eigenschaften im Januar 2007 in Betrieb genommen (6 Tage laut Laborbuch). Diese Inbetriebnahme erfolgte nur mit inerten Gasen und beinhaltete eine Ausheizphase von etwa 56 Stunden (laut Laborbuch). Danach wurde die TMP eingelagert und im Juni 2010 in den Aufbau von TriToP integriert.

In diesem Abschnitt werden nachfolgend die Ergebnisse aus insgesamt knapp 400 Tagen Messzeit unter Tritiumatmosphäre in TriToP präsentiert. Tabelle 4.2 gibt zunächst einen Überblick über alle durchgeführten Messreihen des TriToP-Experiments. Die Summe des Tritiumdurchsatzes von 1,1 kg in knapp 400 Tagen entspricht etwa dem KATRIN-Äquivalent von einem Jahr (pro TMP). Die Entwicklung der Gaszusammensetzung wurde im laufenden Betrieb ohne Entnahme von Proben durch Massenspektrometrie bestimmt. Die Messreihen 7 und 9 fanden ohne anfängliche Füllung mit Tritiumgas statt, bei allen anderen Messreihen wurde Tritiumgas mit einem Reinheitsgrad zwischen 80 – 95% verwendet. Nähere Informationen zu den Vorgehensweisen und die jeweiligen Ergebnisse geben die Kapitel 4.4.1 und 4.4.2.

⁴ In TriToP verwendet wurde TMP Nr. 17 (Serien-Nr. 30000509966) aus dem KATRIN-Bestand von insgesamt 22 baugleichen Pumpen des Typs Oerlikon Leybold MAG W2800.

Tabelle 4.2: Übersicht aller Messreihen in TriToP.

Die Tabelle gibt die wesentlichen Parameter einer Messreihe an. Diese beinhalten die anfängliche Reinheit des durch die CAPER-Anlage zur Verfügung gestellten Tritiums im Probenahmezylinder, die eingestellte Gasflussrate sowie ein berechneter Gesamtdurchsatz an Tritium und die Dauer eines Runs. Zur Berechnung des Durchsatzes siehe Kapitel 4.4.1.

Messreihe #	T ₂ Reinheit (%)	Flussrate (mbarl/s)	gesamter T ₂ Durchsatz (g)	Dauer (Tage)
1.1	≈ 80 ± 5	0,25	≈ 5	6
1.2	Gas aus 1.1	0,76	≈ 9	20
2	zu wenig Gas	≈ 0,2	-	≈ 5
3	90 ± 5	0,34	≈ 284	77
4	Gas aus Run 3	0,34		
5	95 ± 5	0,34	≈ 227	85
6	95 ± 5	0,34	≈ 186	34
4 Wochen Stillstand des TriToP-Experiments				
7	-	0,34	-	61
8	93 ± 5	0,34	≈ 395	96
9	-	0,34	-	14
			≈ 1106	398

4.4.1. Ergebnisse der Langzeitmessungen unter Tritiumatmosphäre

Es fanden insgesamt sieben Messreihen unter Tritiumatmosphäre statt, wobei Messreihe 2 wegen zu geringer Gasmenge und damit zu geringem Gasfluss vorzeitig beendet wurde. Die Ergebnisse dieser singulären Messreihe werden daher nicht näher diskutiert. Die Ergebnisse der Messreihen 1, 3-6 sowie 8 sollen in diesem Kapitel dargelegt und es soll eine Interpretation der Ergebnisse vorgestellt werden.

Abbildung 4.12 zeigt exemplarisch ein typisches Massenspektrum aus Messreihe 5 nach 85 Tagen Betrieb ohne Wechsel des zirkulierenden Gases. Da in diesem besonders viele Details sichtbar sind, soll anhand dieses Spektrums eine allgemeine Einführung und Interpretation der Beobachtungen gegeben werden. Diese ist gültig für alle in Kapitel 4.4.1 präsentierten Massenspektren. Eine Beschreibung des Verlaufs von Messreihe 5 findet sich weiter unten im Text.

Bei diesen Diskussionen wird die Bildung von Spezies mit Deuterium als wenig wahrscheinlich erachtet. Der Grund hierfür liegt in der Verfügbarkeit von Deuterium im TriToP-Aufbau. Dieses kann nur über die Gasmischung der jeweiligen Messreihe eingebracht werden. Aufgrund der gaschromatografischen Analyse (falls verfügbar, durchgeführt in der CAPER-Anlage [Dör05]) sowie des jeweils unmittelbar nach dem Füllen von TriToP aufgenommenen Massenspektrums kann ein anfänglicher Deuteriumgehalt von weniger als 5% für alle Messreihen angenommen werden.

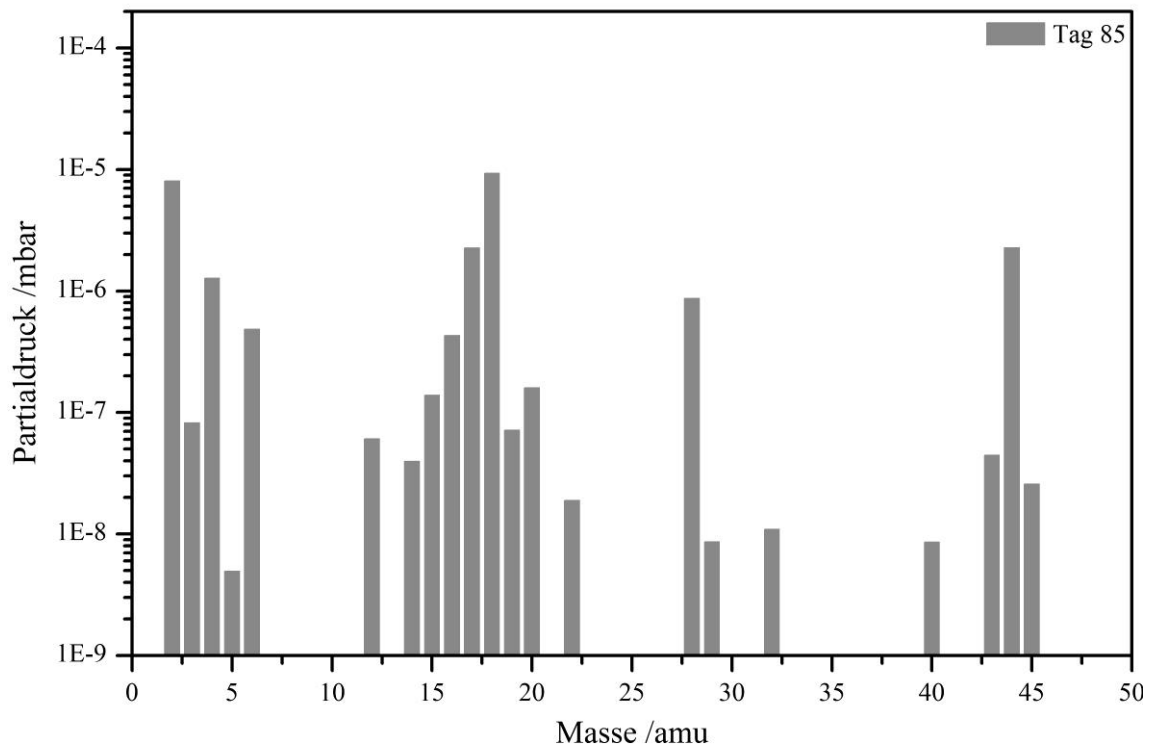


Abbildung 4.12: Exemplarisches Massenspektrum von TriToP.

Dargestellt ist ein Massenspektrum aus Messreihe 5 nach 85 Tagen kontinuierlichem Betrieb. Eine mögliche Interpretation des Spektrums ist in Tabelle 4.3 zu finden.

Der TriToP-Aufbau ist wegen des Fehlens von entsprechenden Heizwicklungen an Leitungen bzw. Behälter nicht ausheizbar. Auf ein Anbringen einer entsprechenden Heizvorrichtung wurde bewusst verzichtet, da die TMP zwar den dominierenden Oberflächenanteil beiträgt, jedoch aufgrund der Verwendung einer Indiumdichtung nicht über 50 °C erhitzt werden sollte. Da bei dieser Maximaltemperatur die Desorption von Wasser von Metalloberflächen nur minimal beschleunigt wird, wurde auf eine entsprechende Heizung im kompletten Experiment verzichtet. Daher finden sich in sämtlichen Massenspektren deutliche Zeichen für Wasserdampf (H_2O , HTO , T_2O und deren Fragmente). Auch bei KATRIN wird nicht der komplette Aufbau (Tritiuminjektionssystem) ausheizbar sein, vor allem im Handschuhboxenteil des *Inner Loop* ([Stu10], [Pri10]).

Das Vorhandensein von Fluor bzw. fluorierten Verbindungen kann anhand der Massenspektren nicht ausgeschlossen werden. Eine mögliche Quelle für Fluor und dessen Verbindungen stellen die in der TMP verwendeten Elastomerdichtungen dar (Kapitel 4.3.2.1). Jedoch konnten durch Untersuchung einer Gasprobe mit der im TLK verfügbaren Laser-Raman-Methode ([Sch11a], [Fis11]) keine Anzeichen für Fluor oder fluorierte Verbindungen gefunden werden (Kapitel 4.5). Das Vorhandensein von molekularem Wasserstoff (H_2) hat zwei Ursachen. Zum einen kann die ursprüngliche Gasfüllung H_2 enthalten. Zum anderen kann während der Dauer einer Messreihe ein beständiges Ansteigen des H_2 -Partialdrucks ($m/e = 2$ amu) beobachtet werden. Letzteres trägt den deutlich dominanten Anteil zum schlussendlich beobachteten H_2 -Partialdruck bei. Die Ursache des Anstiegs liegt im Ausgasen von Wasserstoff aus dem Edelstahl des Primärsystems ([Per73], [Cal67]). Der gleiche Sachverhalt gilt für den beobachtbaren Anstieg bei $m/e = 28$ amu und $m/e = 44$ amu. Diese Massenzahlen korrespondieren zu CO und CO_2 .

Tabelle 4.3: Interpretation eines typischen Massenspektrums von TriToP.

Die Tabelle gibt eine Auflistung von allen unter den in TriToP gegebenen Randbedingungen potentiell entstehenden Spezies sowie deren Ursprung. Deuterium (D) und Moleküle welche Deuterium beinhalten, werden als wenig wahrscheinlich erachtet, Begründung siehe Text.

Masse /amu	mögliche Spezies	Kommentare	
2	H ₂ , D		
3	T, ³ He	Bestandteil der ursprünglichen Füllung, ³ He aus Tritiumzerfall, ⁴ He aus Umgebungsluft. H ₂ durch Ausgasen aus Edelstahl.	
4	HT, D ₂ , ⁴ He		
5	DT		
6	T ₂		
12	C	Fragment von Methan, CO, CO ₂	
14	CH ₂ , CD	Bildung von einfach und mehrfach tritiiertem Wasser durch Restwasser im System. Die Bildung von Methan ist ein bekanntes Phänomen in Edelstahlsystemen in Verbindung mit Tritium [Fis11]. Fragmente von (tritiiertem) Wasser und Methan finden sich im Massenbereich von m/e = 14 - 22 amu und sind nicht unterscheidbar. Fluor bzw. HF und TF stammen aus Elastomerdichtungen.	
15	CT, CH ₃ , CHD		
16	CH ₄ , CHT, O, CD ₂		
17	OH, CH ₂ T, CH ₃ D		
18	H ₂ O, CH ₃ T, CT ₂ , OD		
19	OT, CHT ₂ , F, HDO		
20	HTO, CH ₂ T ₂ , Ar ⁺⁺ , HF, D ₂ O		
22	CHT ₃ , T ₂ O, TF		
28	¹² CO, ¹⁴ N ₂		CO aus Edelstahl, N aus Luft
29	¹³ CO, ¹⁴ N ¹⁵ N		
32	O ₂	Luftsauerstoff	
40	Ar	Ar aus Umgebungsluft	
43	Kr ⁺⁺ , C _n Q _m	Kohlenwasserstoffe aus Reaktionen	
44	¹² CO ₂	Luftsauerstoff in Verbindung mit freiem C, Ausgasen aus Edelstahl	
45	¹³ CO ₂		

Beide Spezies gasen, genau wie H₂, aus den Oberflächen von UHV-Edelstahlsystemen aus ([Per73], [Cal67]).

Im Folgenden sollen die jeweiligen Ergebnisse der einzelnen Messreihen aufgelistet sowie auf gegebenenfalls vorhandene Eigenheiten einer jeweiligen Messreihe eingegangen werden. Die in Tabelle 4.3 präsentierte Zuordnung der jeweiligen Gasspezies zur Massenskala ist universell für alle folgenden Massenspektren gültig. Daher soll auf eine detaillierte Beschriftung der gezeigten Massenspektren im Folgenden weitestgehend verzichtet werden.

Messreihe 1

Mit dem Start von Messreihe 1 (Tabelle 4.2) wurde TriToP erstmalig im Normalbetrieb mit Tritium beaufschlagt. Abbildung 4.13 zeigt die Zusammensetzung der ursprünglichen Gasfüllung von Messreihe 1. Die Summe der Partialdrücke beträgt $2 \cdot 10^{-5}$ mbar. Der mit $1,6 \cdot 10^{-5}$ mbar größte Anteil an der Summe entfällt auf Wasser ($m/e = 16 - 18$ amu). Die Gasfüllung setzt sich aus Spezies mit $m/e = 4$ amu und $m/e = 6$ amu zusammen. Dies korrespondiert bei einfacher Ionisation mit den Massen von He, HT, D₂ und T₂. Vernachlässigt man einen möglichen, aber kleinen Anteil D₂ und He ($m/e = 4$ amu), so erhält man einen anfänglichen Tritiumanteil am gesamten Gasfluss von ca. 16%.

Bereits nach wenigen Tagen erkennt man eine deutliche Zunahme an Wasserstoff, CO und CO₂, welches ein Resultat von Ausgasprozessen ist. Die Spezies CO kann von N₂ mit Hilfe des Massenspektrometers nicht alleine anhand eines Signals bei $m/e = 28$ amu unterschieden werden (Kapitel 4.3.2.2). Würde es sich beim Partialdruck beim Signal von $m/e = 28$ amu nur um N₂ handeln, so müsste bei $m/e = 14$ amu (N) ebenfalls ein Signal mit einer relativen Höhe von 7% zu sehen sein (Anhang H). Da dies nicht der Fall ist, wird eine signifikante Menge Stickstoff ausgeschlossen. CO fragmentiert mit einer relativen Intensität von 10% zu O ($m/e = 16$ amu), was jedoch durch das Fragmentierungsmuster von Wasser überlagert wird. Zusätzlich erschwert wird eine Analyse durch die Überlagerung von CO₂, welches zu 11% in CO und zu 19% in O fragmentiert (Anhang H). Damit wird sowohl der Hauptpeak von CO (oder N₂) überlagert als auch das Fragmentierungsmuster von CO selbst. Dies zeigt eines der Hauptprobleme bei der Analyse der Massenspektren. Die Zuordnung von Molekülen oder Atomen zu einer Masse ist meistens nicht eindeutig. Durch die mehrfache Überlagerung einer Vielzahl von Fragmentierungsmöglichkeiten verschiedener Moleküle wird eine Analyse erschwert und wie Kapitel 4.4.2 zeigt teilweise praktisch unmöglich.

Die Abnahme der relativen Intensität der Signale bei $m/e = 4$ (HT) und $m/e = 6$ (T₂) wird einem Isotopenaustausch zugeschrieben (T₂ löst sich in Edelstahl ebenso wie H₂), wobei die Oberflächen und oberflächennahen Schichten als praktisch unbegrenzter Speicher von H₂ oder T₂ dienen. Zusätzlich begünstigt sind der Isotopenaustausch und damit eine Abnahme von T₂ im zirkulierenden Gas durch einen Wasserfilm an sämtlichen Oberflächen im Primärsystem, in welchem Tritium in Form von HTO gebunden wird [Eic09]. Den berechneten Tritiumdurchsatz pro Tag während der Dauer von Messreihe 1 zeigt Abbildung 4.14 (zur Berechnung siehe Anhang I).

Abbildung 4.15 zeigt die aufgezeichneten Prozessparameter von Druck im Pufferbehälter (RP015) sowie der Probenahmestelle (RP010) und der Temperatur von Pufferbehälter einschließlich der TMP. Der Unterschied zwischen den aufgezeichneten Drücken von RP010 und RP015 liegt im Nullpunkt von RP010, welcher bei ca. -9 mbar liegt. Zum Gesamtdruck trägt maßgeblich der Sättigungsdampfdruck von Wasser (ca. 31,7 mbar bei 25 °C [Sti69]) sowie das Startinventar bei. Der Druckanstieg durch Leckage und Permeation (Kapitel 4.3.3) kann mit $\Delta p_{\text{Leckage}} \leq 0,5$ mbar praktisch vernachlässigt werden. Nach ca. 20 Tagen stieg die Temperatur von BV001 (RT041) durch das Einschalten eines benachbarten Experiments in der gleichen Handschuhbox an, was ebenfalls deutlich an einem Druckanstieg zu erkennen ist.

Die Temperatur der TMP (RT040) wird aufgrund der aktiven Kühlung durch das im Labor verfügbare Prozesskühlwasser (PKW) kaum beeinflusst. Die auftretenden Schwankungen der TMP-Temperatur sind maßgeblich durch Temperaturschwankungen im PKW aufgrund von Tag/Nacht Zyklen oder erhöhter Last bestimmt.

Wie aus Tabelle 4.2 zu entnehmen ist, setzt sich die Messreihe 1 aus den beiden einzelnen Messreihen 1.1 und 1.2 zusammen. Diese unterscheiden sich nicht im Hinblick auf das zirkulierende Gas (keine neue Füllung zwischen 1.1 und 1.2), sondern hinsichtlich der eingestellten Gasflussrate. Aufgrund des geringen anfänglichen Tritiumanteils im Gas wurde die Flussrate von 15 sccm⁵ auf 45 sccm erhöht.

Aus diesem Grund wurde TriToP bei den folgenden Messreihen im Vorfeld länger evakuiert, um den Untergrund durch Wasserdampf anfänglich zu reduzieren (siehe Beschreibung der folgenden Messreihen). Zusätzlich wurde der Pufferbehälter mit einer größeren Gasmenge beaufschlagt, so dass der Effekt der Verdünnung erst später zum Tragen kam, als dies noch bei Messreihe 1 der Fall war.

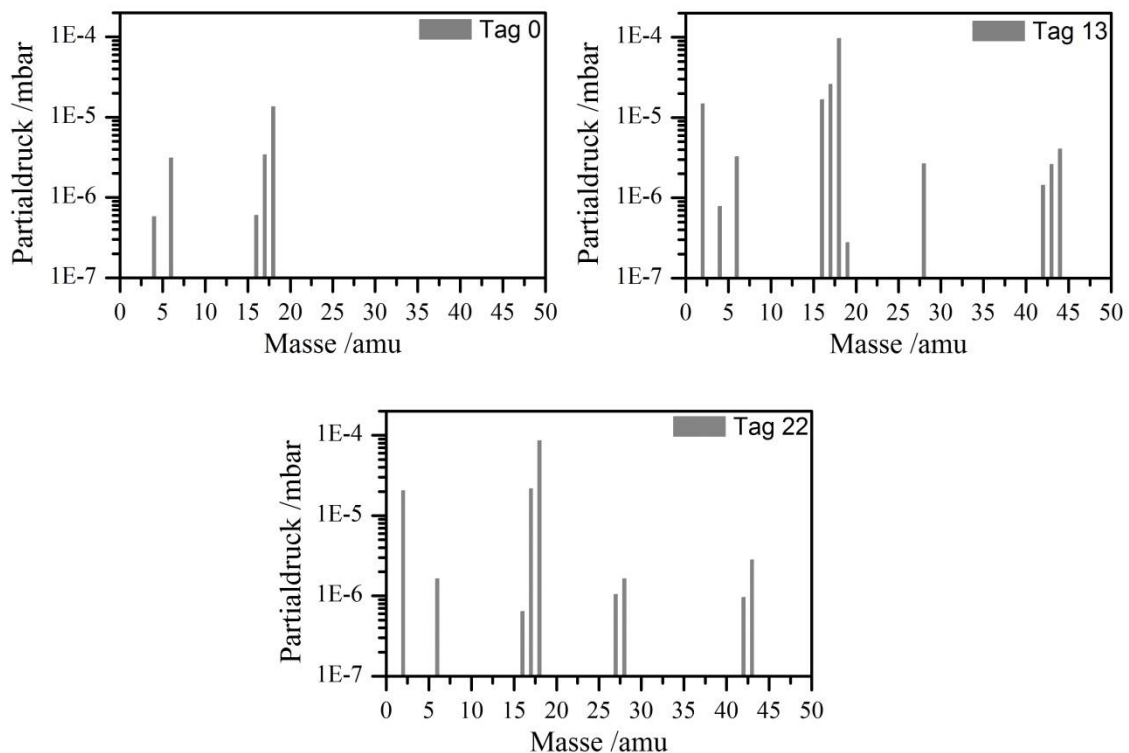


Abbildung 4.13: Ausgewählte Massenspektren der 1. Messreihe.

Dargestellt ist eine Auswahl an Massenspektren zu Beginn (Tag 0), in der Mitte (Tag 13) und am Ende (Tag 26) der Messreihe 1. Deutlich erkennbar ist der Anstieg von H₂ und H₂O einschließlich seiner Fragmente, bedingt durch Ausgasen und Desorption.

⁵ sccm: *Standard cubic centimeter per minute* ist eine oft verwendete Einheit bei Massenflussmessern und -reglern. 1 sccm = 0,0169 mbarl/s.

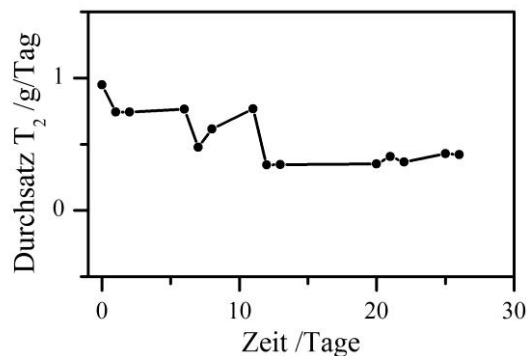


Abbildung 4.14: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 1.

Das Diagramm zeigt den berechneten T₂-Durchsatz pro Tag. Dieser fällt nach ca. der Hälfte der Messzeit bis auf 50% des Startwertes, um dann nahezu konstant zu bleiben. Aufgrund der Erhöhung des Durchsatzes nach dem fünften Tag der Messreihe wird ein in den folgenden Messreihen beobachteter, typischer Abfall des Durchsatzes abgeschwächt.

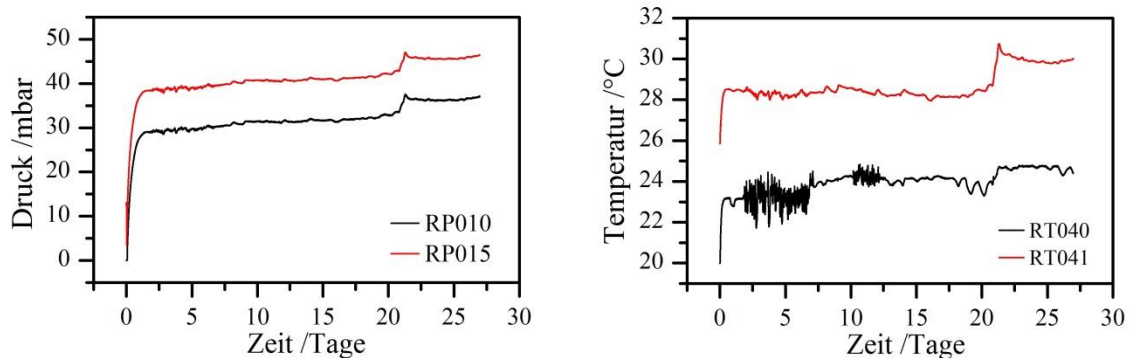


Abbildung 4.15: Verlauf von Druck und Temperatur während Messreihe 1.

Dargestellt ist links der Druck im Pufferbehälter (rot) sowie der Probenahmestelle (schwarz). Rechts sind die Temperaturen von Pufferbehälter (rot) und TMP (schwarz) abgebildet. Zu erkennen ist die Korrelation von Druck- und Temperaturanstieg nach ca. 22 Tagen. Zuordnung siehe Abbildung 4.8

Messreihe 3 und 4

Die Messreihen 3 und 4 (Tabelle 4.2) unterscheiden sich nicht im zirkulierenden Gas. Beide Messreihen sind getrennt durch eine ca. 1 Stunde andauernde Abschaltung von TriToP wegen einer Softwaremodifikation des Prozessleitsystems. Die Messreihe 3 wurde am 27.07.2011 gestartet. Aufgrund eines mehrwöchigen Ausfalls der Datennahme durch das PLS stehen für dieses Zeitintervall keine kontinuierlichen Druck- und Temperaturdaten zur Verfügung. BV001 wurde mit Gas aus dem Probenahmezylinder (PNZ) auf 10 mbar Absolutdruck beaufschlagt. Das Gas zum Füllen von BV001 besaß laut einer Analyse des CAPER GC-Systems eine Reinheit von $(90 \pm 5) \%$ (im PNZ). Aus Abbildung 4.16 (Tag 0) kann die Summe der Partialdrücke zu $2,59 \cdot 10^{-4}$ mbar bestimmt werden. Unter der Annahme, dass

- $m/e = 3$ amu nur T,
- $m/e = 4$ amu nur HT und

- $m/e = 5$ amu nur DT

entspricht, berechnet sich die Tritiumreinheit beim Start von Messreihe 3 in BV001 zu $\epsilon_T \leq 81\%$.

Bereits nach einem Tag (Abbildung 4.16, Tag 1) ist in dieser Messkampagne das Signal von $m/e = 6$ amu (T_2) von $\approx 1,8 \cdot 10^{-4}$ mbar auf $\approx 3,5 \cdot 10^{-5}$ mbar abgefallen, was einem Rückgang um $\approx 80\%$ entspricht. Ein ähnlich starker Abfall kann für $m/e = 5$ (DT) amu beobachtet werden. Der sich im Gasvolumen befindliche Anteil an Wasserdampf hingegen hat sich innerhalb des ersten Tages nahezu verdoppelt (von $3,4 \cdot 10^{-6}$ mbar auf $6,9 \cdot 10^{-6}$ mbar), was durch Desorption von Oberflächenwasser im Vakuumsystem erklärt werden kann. Ebenfalls zu diesem frühen Stadium wird ein Molekül mit $m/e = 20$ amu gebildet, welches entweder CH_2T_2 oder HTO sein kann. Aufgrund des Fehlens eines Fragmentierungsmusters von Methan wird für $m/e = 20$ amu HTO als Molekül angenommen. Dies ist eine mögliche Erklärung für den Rückgang des T_2 - und des DT-Partialdrucks. Eine weitere Erklärung beruht auf der Adsorption an Oberflächenwasser sowie auf der Diffusion und dem Isotopenaustausch in Edelstahloberflächen.

Nach einem längerem Betrieb (Abbildung 4.16, Tag 33 und Tag 77) erkennt man zusätzlich Partialdrücke bei $m/e = 28$ und 29 amu (CO , N_2) sowie bei $m/e = 44$ und 45 amu (CO_2). Daneben dominiert der Wasserstoffpartialdruck ($m/e = 2$ amu) nach ca. 30 Tagen Betrieb. Der H_2 -Partialdruck trägt dabei am Ende von Messreihe 4 zu $\approx 70\%$ zur Summe der Partialdrücke bei. Zusätzlich kann wiederum die Entstehung von Methan beobachtet werden ($m/e = 15 - 20$ amu).

Der Anteil an Tritiumgas (T_2) im zirkulierenden Gasvolumen reduzierte sich während der Laufzeit von Messreihe 3 und 4 auf letztlich nur noch $\approx 1\%$ des anfänglichen Wertes (von $1,83 \cdot 10^{-4}$ mbar auf $2,37 \cdot 10^{-6}$ mbar). Die beiden Ursachen liegen in der Entstehung von tritiierten Molekülen (T in Methan und Wasser) sowie dem Isotopenaustausch mit Edelstahloberflächen. Das „Umlagern“ von molekularem Tritium in tritiierte Verbindungen reduziert zwar die Menge an zirkulierendem Reintritium (T_2), die Gesamtbelastung der TMP und besonders der darin verbauten nichtmetallischen Komponenten durch Tritium wird dadurch jedoch nicht verändert.

Abbildung 4.17 stellt den Verlauf des berechneten (Berechnungsbeispiel siehe Anhang I) Tritiumdurchsatzes in g/Tag dar. Auch in dieser Messreihe kann, wie schon zuvor in Messreihe 1, ein deutlicher Abfall beobachtet werden, was sich mit den Aussagen und der Interpretation der Massenspektren deckt.

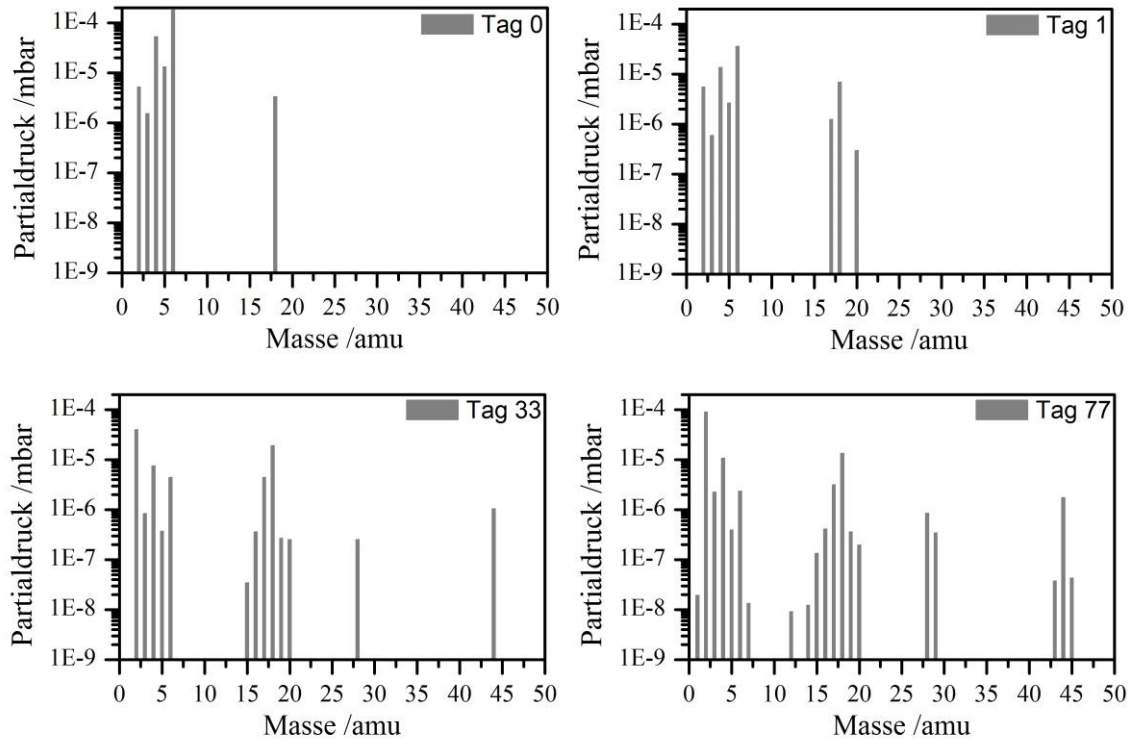


Abbildung 4.16: Ausgewählte Massenspektren der 3. und 4. Messreihe.

Dargestellt sind vier Beispiele der insgesamt 77 Tage dauernden Messreihe 3 und 4. Durch längeres Evakuieren mittels der TriToP eigenen Scrollpumpe sowie durch die CAPER-Anlage wurde der Untergrund zu Beginn der Messung reduziert. Bereits nach einem Tag kann man die Bildung einer Spezies mit $m/e = 20$ amu erkennen. Es handelt sich dabei wahrscheinlich um HTO . Beim Partialdruck von T_2 ($m/e = 6$ amu) verzeichnet man nach nur einem Tag bereits einen Rückgang auf 20%. Anzeichen für CO , CO_2 sowie Methane (CQ_4) sind zur Mitte der Messzeit (Tag 33) hin im Massenspektrum vertreten.

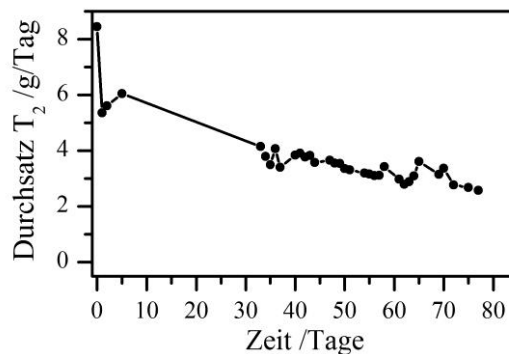


Abbildung 4.17: Täglicher Tritiumdurchsatz bei Messreihe 3 und 4.

Es kann, wie in Abbildung 4.14 ebenfalls zu sehen, auch hier ein Rückgang des T_2 -Durchsatzes pro Tag vom ersten bis zum letzten Messtag um 50% verzeichnet werden.

Messreihe 5

Die an Messreihe 4 anschließende Messreihe 5 (Tabelle 4.2) wurde am 26.10.2011 gestartet, nachdem BV001 mit ≈ 17 mbar einer neuen, an der CAPER-Anlage hergestellten Gasmischung beaufschlagt wurde. Das Gas im PNZ hatte laut CAPER-GC Analyse eine Reinheit von (95 ± 5) %. Das erste Massenspektrum von Messreihe 5 (Abbildung 4.18, Tag 0) zeigt gegenüber der ersten Messung aus Messreihe 4 (Abbildung 4.16, Tag 0) keine Bestandteile mit $m/e = 2$ amu und 3 amu. Zur Reduzierung des Partialdrucks von Wasser ($m/e = 18$ amu) wurde, wie zuvor schon bei Messreihe 3, auch im Vorfeld von Messreihe 5 das TriToP-System über mehrere Stunden mit Hilfe der eigenen Scrollpumpe (VA060) und der CAPER-Anlage evakuiert. Die anfängliche Tritiumreinheit ϵ_T berechnet sich damit zu $\approx 92\%$, laut CAPER GC Analyse betrug das ϵ_T des Gases im PNZ (95 ± 5) %.

Der durch die Massenspektren gezeichnete Verlauf folgt im Wesentlichen der Argumentation der früheren Messreihen 3 und 4. Zusätzlich kann das Auftauchen eines Signals bei $m/e = 22$ amu beobachtet werden. In Verbindung mit der Anhäufung von Spezies im Bereich von $m/e = 12 - 22$ amu liegt die Vermutung nahe, dass es sich dabei um eine weitere, tritiierte Methanspezies (CHT_3) handelt. Tabelle 4.4 gibt einen Überblick über die Vielzahl von möglichen Methanspezies und deren jeweilige Fragmentierungsmuster. Die ebenfalls in Messreihe 5 zum ersten Mal beobachteten Signale bei $m/e = 32$ amu und $m/e = 40$ amu zum Ende der Messreihe hin können mit O_2 und Ar erklärt werden. Dabei permeierte O_2 und Ar im Laufe der Messreihe durch die Elastomerdichtung der TMP (Kapitel 4.3.2.1). Innerhalb der Messgenauigkeit passen die relativen Massenverhältnisse von O_2 und Ar in Luft (O_2 (23,135%) und Ar (1,288%) [Moe03]) zum gefundenen Verhältnis in Abbildung 4.18.

Aufgrund eines Temperaturanstiegs in der zweiten Hülle (Abbildung 4.19, rechts) nach ca. 10 Tagen musste die Kalibrierung des Massenspektrometers nachgeführt werden, da eine Verschiebung der Peakpositionen relativ zur Massenskala beobachtet wurde. Es wurden die Werte für *low mass alignment* von 46307 nach 40900 und für *high mass alignment* von 39300 nach 38000 verändert. Ein Justieren der Parameter *low mass resolution* und *high mass resolution* war nicht erforderlich.

Im letzten Viertel der Messung (ab ca. 60 Tage) mussten diese Parameter erneut aufgrund einer Temperaturänderung angepasst werden (*low mass alignment* von 40900 auf 44500, *high mass alignment* von 38000 auf 39100).

Auch bei Messreihe 5 ist eine kontinuierliche Abnahme des Tritiumdurchsatzes pro Tag festzustellen (Abbildung 4.20). Im Gegensatz zu den vorherigen Messreihen ist hier nach kurzer Zeit (2-3 Tage) nur noch die Hälfte des anfänglichen Flusses zu verzeichnen, danach kann bis zum Ende der Messreihe nur noch ein verhältnismäßig geringer Abfall beobachtet werden (von 4 g/Tag auf $\approx 2,5$ g/Tag). Eine mögliche Erklärung dazu ist die zügige (innerhalb der ersten Woche) Bildung von tritiierten Methanen und Wasser, wie es der Anstieg der entsprechenden Peaks in den Massenspektren nahe legt.

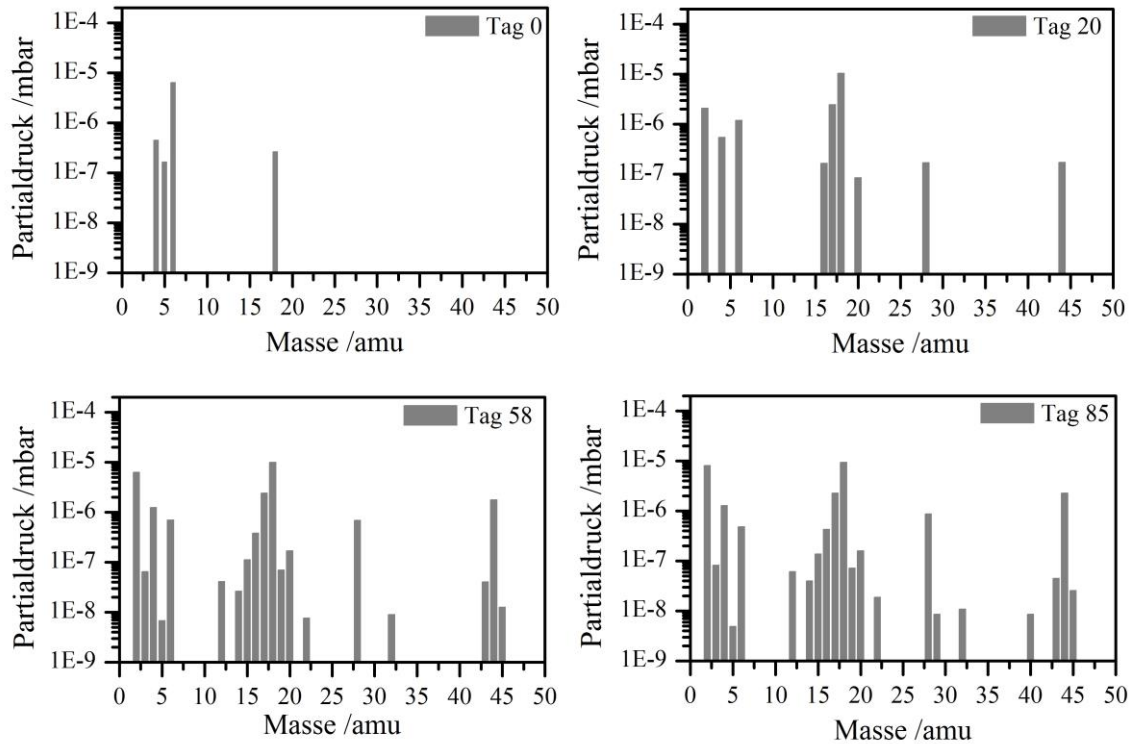


Abbildung 4.18: Ausgewählte Massenspektren der 5. Messreihe.

Dargestellt sind Beispiele der Entwicklung der Gaszusammensetzung während der Messreihe 5. Gegen Ende der Messreihe (Tag 85) sind messbare Partialdrücke von O_2 und Ar zu erkennen, welche durch Permeation an den Elastomerdichtungen der TMP aus der Atmosphäre ins Primärsystem gelangen.

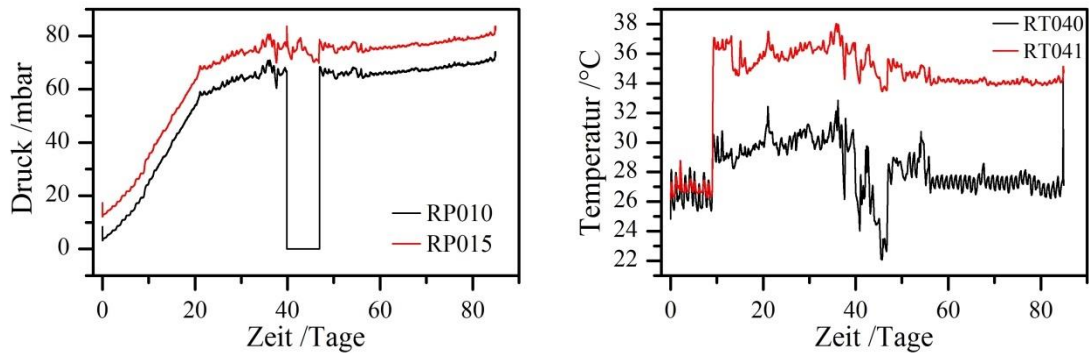


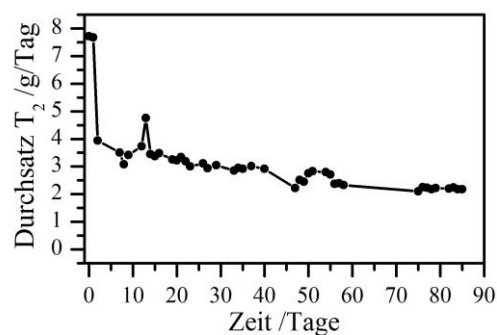
Abbildung 4.19: Verlauf von Druck und Temperatur während Messreihe 5.

Ab einem Zeitpunkt von ca. 40 Tagen nach dem Start musste die Zirkulation wegen Wartungsarbeiten im Labor für 7 Tage unterbrochen und das Gas im Pufferbehälter (BV001) gesammelt werden. Die Anzeige von RP010 ist in diesem Zeitraum auf 0 mbar zurückgegangen. Pumpen waren in diesem Zeitraum abgeschaltet und alle Handventile geschlossen. Ab Tag 47 wurde der Messbetrieb wieder aufgenommen. Dargestellt ist links der Druck im Pufferbehälter (rot) sowie an der Probenahmestelle (schwarz). Rechts sind die Temperaturen von Pufferbehälter (rot) und TMP (schwarz) abgebildet, Zuordnung siehe Abbildung 4.8.

Tabelle 4.4: Beiträge von tritiiertem und untritiiertem Methan zum Massenspektrum.

Die Tabelle fasst die Fragmentierungsmöglichkeiten von allen sich potentiell bildenden Methanspezies zusammen. Dabei wurden keine Methane berücksichtigt, welche zusätzlich durch den Einbau von Deuterium entstehen können. Die insgesamt fünf verschiedenen Methane Fragmentieren in insgesamt 15 unterschiedliche „Kanäle“ (m/e-Verhältnisse) mit unterschiedlichen Wahrscheinlichkeiten. Die Fragmentierungsmuster überlagern sich dabei stark, was eine Auftrennung und Identifikation im Massenspektrum erschwert.

m/e (amu)	CH ₄	CH ₃ T	CH ₂ T ₂	CHT ₃	CT ₄
1	•	•	•	•	
3		•	•	•	•
12	•	•	•	•	•
13	•	•	•	•	
14	•	•	•		
15	•	•	•	•	•
16	•	•	•	•	
17		•	•		
18		•	•	•	•
19			•	•	
20			•		
21				•	•
22				•	
23					
24					•

**Abbildung 4.20: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 5.**

Der bereits in den vorangegangenen Messreihen beobachtete Abfall des Tritiumdurchsatzes ist auch in Messreihe 5 wieder zu erkennen, jedoch fällt dieser innerhalb der ersten Tage schnell ab, um sich dann nur noch langsam bis zum Ende hin zu reduzieren.

Messreihe 6

Die Messreihe 6 (Tabelle 4.2) wurde am 20.01.2012 gestartet. Laut CAPER GC Analyse betrug die Tritiumreinheit im PNZ auch bei dieser Messreihe (95 ± 5) %. Aus dem in Abbildung 4.21 (Tag 0) gezeigten Massenspektrum kann eine Tritiumreinheit im Pufferbehälter BV001 von $\approx 94\%$ berechnet werden. TriToP wurde aus den bei den vorherigen Messreihen genannten Gründen über mehrere Stunden mit Hilfe der TriToP-eigenen Scrollpumpe sowie der CAPER-Anlage evakuiert. Anschließend wurde BV001 mit 13,13 mbar Tritiumgas aus dem PNZ beaufschlagt und die Zirkulation gestartet.

Abbildung 4.22 zeigt den Temperaturverlauf während Messreihe 6. Die Temperatur des Pufferbehälters RT040 wie auch die Temperatur der an den Kühlwasserkreislauf angeschlossenen TMP (RT041) sind auch bei dieser Messreihe beständig hoch. Sowohl die Massenspektrometerelektronik als auch ein sich in der gleichen Handschuhbox befindliches Experiment (TriReX) benötigen zum zuverlässigen Betrieb niedrigere ($\approx 20^\circ\text{C}$) und gleichzeitig stabile Temperaturen. Temperaturschwankungen machen es speziell beim TriToP-Massenspektrometer immer wieder notwendig, die Kalibrierung neu durchzuführen (Anpassen der Werte für *low und high mass alignment*). Um dies in Zukunft zu vermeiden, wurde eine Klimatisierung der Handschuhbox nach Messreihe 6 installiert. Für die Installation eines Luftwärmetauschers war ein Öffnen der zweiten Hülle notwendig, so dass Messreihe 6 nach nur 34 Tagen Laufzeit beendet und das Gas aus Sicherheitsgründen an die CAPER-Anlage abgegeben wurde.

Die Massenspektren zeigen keine neuen Spezies, die nicht bereits in den vorangegangenen Messreihen beobachtet wurden. Daher soll auf eine erneute Beschreibung verzichtet werden. Beim Tritiumdurchsatz pro Tag (Abbildung 4.23) fällt bei Messreihe 6 ein weniger starker Abfall auf als bei den vorangegangenen Messreihen. Mögliche Erklärungen sind eine Sättigung der Oberflächen des Primärsystems mit Tritium oder eine verstärkte Desorption aufgrund der beständig hohen Temperatur der Atmosphäre der zweiten Hülle. Ein Indiz dafür könnte der immer noch steigende Druck nach 34 Tagen Messzeit sein. Bei den vorhergehenden Messreihen befand sich der Druck in BV001 nach dieser Zeit bereits im oder nahe des Gleichgewichtes bzw. der Sättigung.

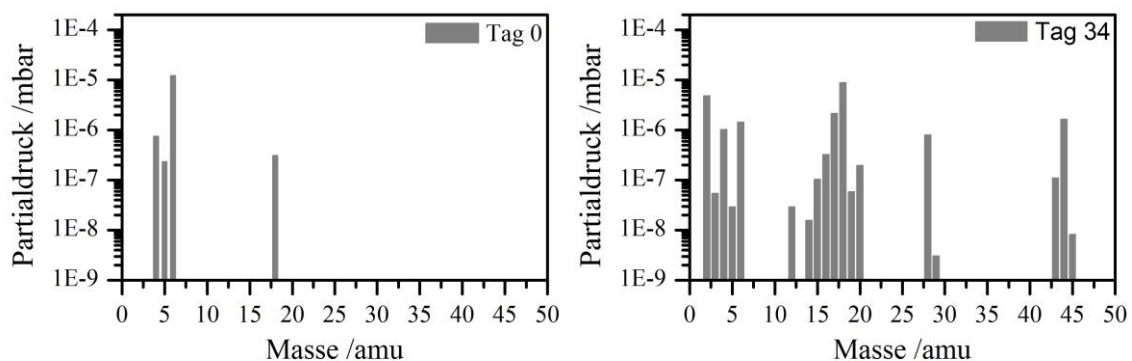


Abbildung 4.21: Massenspektren von Anfang und Ende der 6. Messreihe.

Dargestellt sind je ein Massenspektrum vom Beginn (Tag 0) und Ende (Tag 34) der Messreihe. Gegenüber den vorangegangenen Messreihen sind keine Besonderheiten zu erkennen.

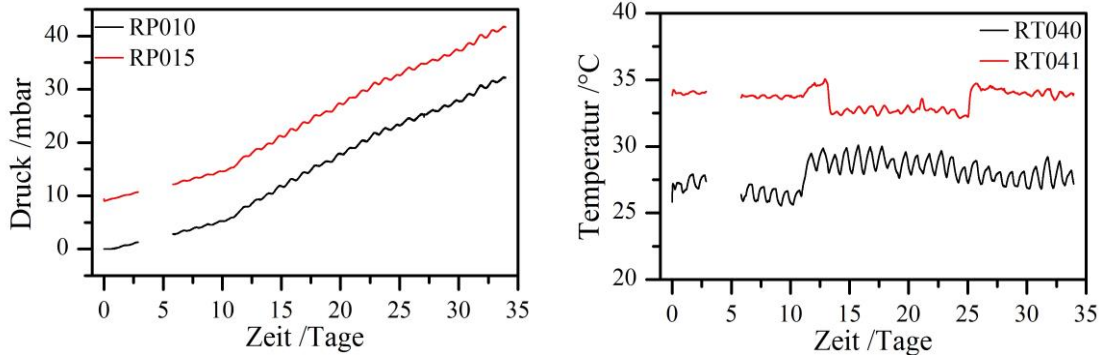


Abbildung 4.22: Verlauf von Druck und Temperatur während Messreihe 6.

Dargestellt sind links der Druck im Pufferbehälter (rot) sowie an der Probenahmestelle (schwarz), Zuordnung siehe Abbildung 4.8. Rechts sind die Temperaturen von Pufferbehälter (rot) und TMP (schwarz) abgebildet. Die während der Messreihe beständig hohen Temperaturen machten die Installation einer Boxenklimateuerung notwendig. Aufgrund eines erneuten Ausfalls der Datenaufnahme durch das PLS wurden keine Prozessparameter für die Zeit zwischen ca. 3 und 5,5 Tagen aufgenommen (zu sehen als Unterbrechung in den Diagrammen). Der nach 34 Tagen immer noch kontinuierlich steigende Druck in BV001 (RP015, rot) deutet auf Grund erhöhter Temperaturen auf eine verstärkte Desorption von Wasser von Oberflächen bzw. auf ein Ausgasen von Tritium aus dem Edelstahl des Primärsystems hin. Zuordnung siehe Abbildung 4.8, S.93.

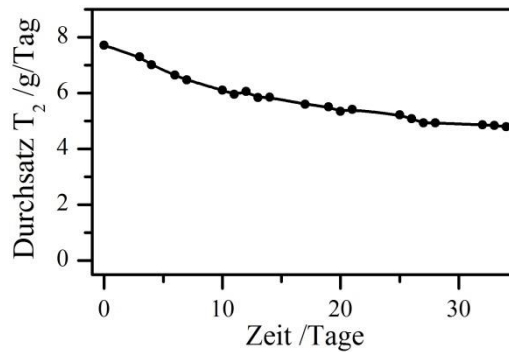


Abbildung 4.23: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 6.

Auch in Messreihe 6 kann ein Abfall des Tritiumdurchsatzes pro Tag beobachtet werden. Dieser fällt jedoch weniger stark aus als in den vorangegangenen Messreihen innerhalb des gleichen Zeitraums. Eine mögliche Erklärung dieses abweichenden Verhaltens ist die Desorption und Permeation von Tritium aus Edelstahloberflächen in das Gasvolumen aufgrund der konstant hohen Temperaturen.

Messreihe 8

Die letzte mit Tritium durchgeführte Messreihe 8 (Tabelle 4.2) wurde am 22.05.2012 gestartet. Laut CAPER GC Analyse betrug die Tritiumreinheit des Gases im PNZ bei dieser Messreihe (93 ± 5 %). Aus dem in Abbildung 4.24 gezeigten Massenspektrum kann eine Tritiumreinheit im Pufferbehälter BV001 von $\approx 92\%$ berechnet werden. TriToP wurde im Vorfeld von Messreihe 8 wiederum über mehrere Stunden mit Hilfe der TriToP-eigenen Scrollpumpe sowie der CAPER-Anlage evakuiert, um Restgase der vorangegangenen Messreihe zu entfernen. Anschließend wurde BV001 mit 12,9 mbar Tritiumgas aus dem PNZ beaufschlagt und die Zirkulation gestartet.

Die abschließende Messreihe 8 stellt mit einer Messzeit von insgesamt 93 Tagen die längste Einzelmessreihe dar. Die Ergebnisse sind mit denen der vorangegangenen Messreihen vergleichbar, besonders mit Messreihe 5 (85 Tage Messzeit). Im Gegensatz zur Messreihe 5 fällt bei Messreihe 8 das Fehlen eines Peaks bei $m/e = 40$ amu auf (Argon). Auch das Signal für O_2 ($m/e = 32$ amu) kann erst ab Tag 90 im Spektrum nachgewiesen werden. Eine mögliche Erklärung sind die gegenüber Messreihe 5 veränderten Temperaturen der Atmosphäre der zweiten Hülle. Diese ist durch den Einsatz einer Klimatisierung auf $\approx 18^\circ\text{C}$ stabilisiert (Abbildung 4.26). Die auch nach dem Einsatz der Boxenklimateisierung noch an das PKW angeschlossene TMP besitzt eine gegenüber der Boxenatmosphäre leicht erhöhte Temperatur von $\approx 23^\circ\text{C}$. Dies stellt eine Verminderung der Temperatur um ≈ 5 K dar. Dadurch ändert sich die Ausdehnung der Bauteile (besonders des Edelstahl- und Aluminiumgehäuseteils) zueinander. Die verwendete O-Ringdichtung, welche die obere und untere Gehäusehälfte miteinander verbindet (Abbildung 4.6) wird dadurch stärker gepresst und dichtet entsprechend besser. Infolgedessen reduziert sich die Leckrate der TMP und damit auch die Höhe der Signale im Massenspektrum. Es handelt sich hierbei jedoch nur um einen kleinen Effekt. Der geringe Anteil an O_2 und Ar sowohl bei Messreihe 5 als auch bei Messreihe 6 beeinflusst den Verlauf der jeweiligen Messung nicht.

Typische Ergebnisse vorangegangener Messreihen wie

- die Entstehung von (tritierten) Methanen (Tabelle 4.4),
- das Ausgasen von CO ($m/e = 28$ amu) sowie CO_2 ($m/e = 40$ amu),
- das Desorbieren von (tritiertem-) Wasser sowie
- der Isotopenaustausch von H_2 und T_2 in den Oberflächen des Primärsystems

können auch in Messreihe 8 beobachtet werden (Abbildung 4.24, Tabelle 4.3). Im Gegensatz zum Verlauf bei Messreihe 6 und in Übereinstimmung mit allen anderen Messreihen kann auch bei Messreihe 8 wieder ein zügiger Abfall ($\approx \frac{1}{3}$ der Laufzeit) des Tritiumdurchsatzes pro Tag auf ca. 50% des anfänglichen Durchsatzes beobachtet werden (Abbildung 4.25). In den letzten $\approx \frac{2}{3}$ von Messreihe 8 blieb der Durchsatz dagegen relativ stabil zwischen 3 – 4 g/Tag. Dies deutet auf einen Sättigungseffekt hin. Der Isotopenaustausch von Tritium mit Wasser auf Oberflächen im Vakuumsystem scheint bis dahin in eine Sättigung gekommen zu sein.

Im Laufe von Messreihe 8 wurde eine leichte Verschiebung der Peaks im Massenspektrum beobachtet ($\approx 0,1$ amu hin zu höheren Massenzahlen), woraufhin der Wert für *low mass alignment* auf 38000 für *high mass alignment* auf 33700 angepasst wurde.

Die hier diskutierte Messreihe 8 stellt die letzte Messkampagne dar, welche mit einem anfänglichen Tritiuminventar gestartet wurde. Die in der Aufzählung in diesem Kapitel und nach Tabelle 4.2 noch fehlenden Messreihen 7 und 9 wurden ohne ein anfängliches Füllen von TriToP mit Tritiumgas gestartet. Sie dienten der Simulation eines Stillstandes der TMPs bei KATRIN. Die dabei gewonnenen Ergebnisse werden im folgenden Kapitel präsentiert.

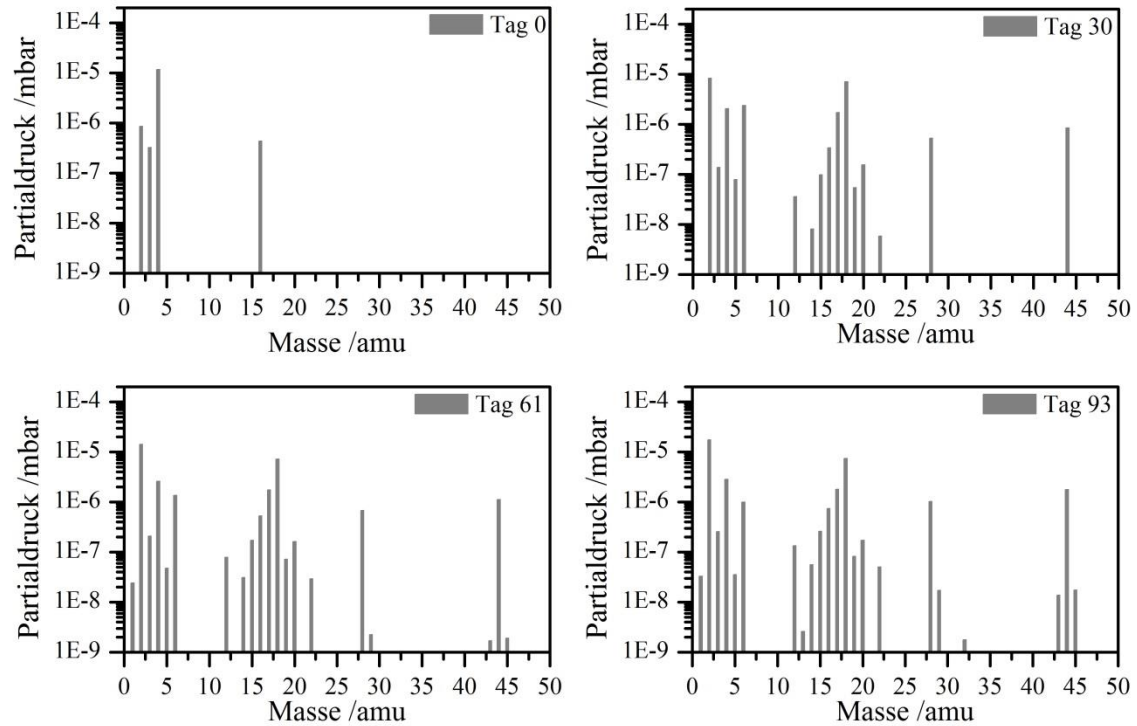


Abbildung 4.24: Ausgewählte Massenspektren von Messreihe 8.

Dargestellt sind Massenspektren vom Beginn und Ende der Messreihe sowie nach $\frac{1}{3}$ und $\frac{2}{3}$ der Messzeit. Auch bei dieser Messreihe, welche die längste Einzelmessreihe darstellt, sind keine Auffälligkeiten in den Massenspektren zu beobachten.

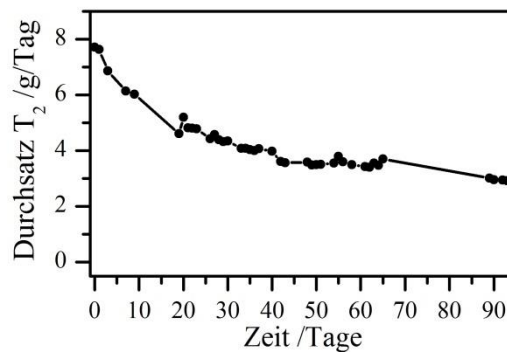


Abbildung 4.25: Tritiumdurchsatz pro Tag bei Messreihe 8.

Der Tritiumdurchsatz pro Tag zeigt auch bei Messreihe 8 wieder den schon zuvor beobachteten Abfall auf ca. die Hälfte des anfänglichen Durchsatzes. Nach etwa $\frac{1}{3}$ der Messzeit (30 Tage) stabilisiert sich der Wert jedoch bereits, um in den verbleibenden $\frac{2}{3}$ der Messzeit nur noch langsam abzunehmen. Ein Grund hierfür könnte ein möglicher Sättigungseffekt der Oberflächen sein.

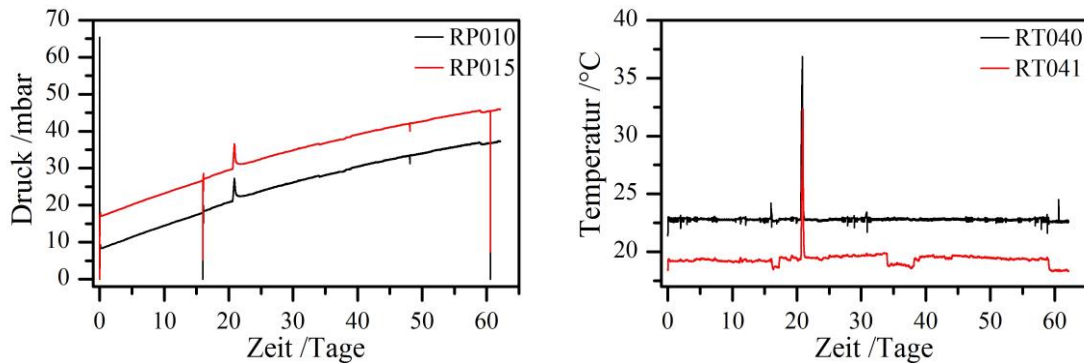


Abbildung 4.26: Druck und Temperatur bei Messreihe 8.

Dargestellt sind links der Druck im Pufferbehälter (rot) sowie der Probenahmestelle (schwarz). Rechts sind die Temperaturen von Pufferbehälter (rot) und TMP (schwarz) abgebildet. Ein Sprung in der Temperatur bei ≈ 20 Tagen entstand durch das Abschalten des PKW und damit der Boxenkühlung. Zuordnung siehe Abbildung 4.8.

4.4.2. Ergebnisse der Messungen ohne Tritium

Im Gegensatz zu den in Abschnitt 4.4.1 präsentierten Messreihen, bei welchen der Aufbau von TriToP vor Beginn jeder Messreihe mit Tritiumgas aus einem PNZ beaufschlagt wurde, handelt es sich bei den Messreihen 7 und 9 um Messungen, welche ohne anfängliches, gezielt eingebrachtes Tritiuminventar abliefen. Vor Messreihe 7 wurde das Experiment TriToP für ca. vier Wochen außer Betrieb genommen (Abbildung 4.27). Dies bedeutet, dass in dieser Zeit keine der TriToP-Pumpen lief, keine Druck- und Temperaturüberwachung stattfand und auch keine Massenspektren aufgenommen werden konnten. In dieser Zeit konnte sich innerhalb der TMP ein gleichmäßiger Druck ausbilden, welcher anfänglich dem erreichten Enddruck der Scrollpumpe von $\approx 10^{-2}$ mbar entsprach. Während des Stillstands konnten Reste von tritiierten Gasen innerhalb der TMP auch an Stellen permeieren und sich dort ansammeln, welche ansonsten durch den kontinuierlichen Betrieb der Vorpumpe stetig evakuiert werden. Dies betrifft vor allem die Magnetlagerkartusche der TMP, in welchem sich viele nichtmetallische Oberflächen finden wie

- teilweise mit Schutzlack versehene und mit Kohlefaser ummantelte Antriebswelle,
- mit Kunstharz (Epoxidharz) verklebte Permanentmagnete auf der Antriebswelle,
- in Kunstharz vergossene Spulen des elektrischen Antriebs,
- in Kunstharz vergossene Spulen des magnetischen Lagers,
- durch Teflon isolierte Zuleitungen zum Antrieb und den magnetischen Lagern,
- zur Montage benötigte Vakuumschmierfette und Klebstoffe.

An all diesen nichtmetallischen Oberflächen können während des Stillstandes vermehrt radiochemische Reaktionen ablaufen. Die Resultate werden in diesem Kapitel erörtert.

Den größten Anteil an nichtmetallischen Oberflächen bilden die Vergussmassen (Kunstharze) der Magnetlager sowie der Statorwicklung des Antriebs. Dort kommen Kunstharze der Firma 3MTM zum Einsatz (Xr5230 und Scotchcast 281). Daneben kommen zusätzlich Klebstoffe (Cyanoacrylate) wie Loctite[®] 648 und CynopaneTM LAB-ORG[®] zum Einsatz. Eine weitere nichtmetallische Oberfläche ist in Form einer Schutzummantelung aus Kohlefaserverbundwerkstoff (ebenfalls mit Kunstharz) mit ca. 100 cm² Oberfläche vorhanden.

Eine genaue Kenntnis der chemischen Zusammensetzung dieser Kunstharze und Klebstoffe wäre notwendig, um die in Verbindung mit Tritium entstehenden Fragmentierungsmuster abschätzen zu können. Da es sich bei der chemischen Zusammensetzung der einzelnen Stoffe jedoch um Betriebsgeheimnisse der jeweiligen Hersteller handelt, sind diese nicht genau bekannt. Jedoch besitzen viele Kunstharze einen ähnlichen Grundaufbau und unterscheiden sich im Wesentlichen nur durch unterschiedliche Zusätze und Härter (oft Triethylenetetramine, TETA), welche die gewünschten Eigenschaften einstellen. Die Grundstruktur vieler gebräuchlicher Kunstharze basiert auf dem Molekül „Bisphenol A“ ([Bra91], [Sei07]). Eine Möglichkeit nachzuprüfen, ob das beobachtete Massenspektrum durch chemische Reaktionen mit Kunstharzen hervorgerufen wurde, besteht demzufolge in der Suche nach dem Fragmentierungsmuster der bekannten Bestandteile. In [Trv91] wurde ein Kunstharz (Epikote 828[®]) diesbezüglich untersucht. Bei einem Vergleich möglicher, verwendeter Lösungsmittel von Kunstharzen [Mic12] fand sich 1-Butanol als Kandidat ([Pet99], Anhang J). Zieht man in Betracht, dass sich die dort gezeigten Massenspektren durch den Einbau von Tritium anstelle von Wasserstoff um 2 amu hin zu höheren Massen verschieben, so kann eine gewisse Analogie zu dem in Abbildung 4.28 gezeigten Massenspektrum hergestellt werden. Sämtliche Massenspektren dieser chemischen Verbindungen besitzen jedoch ein Fragmentierungsmuster, welches bei $m/e > 50$ amu beginnt und bis zu $m/e \approx 900$ amu gehen kann ([Pla88], Anhang J). Ein Nachweis ist mit dem in TriToP eingesetzten QMS nicht eindeutig möglich.

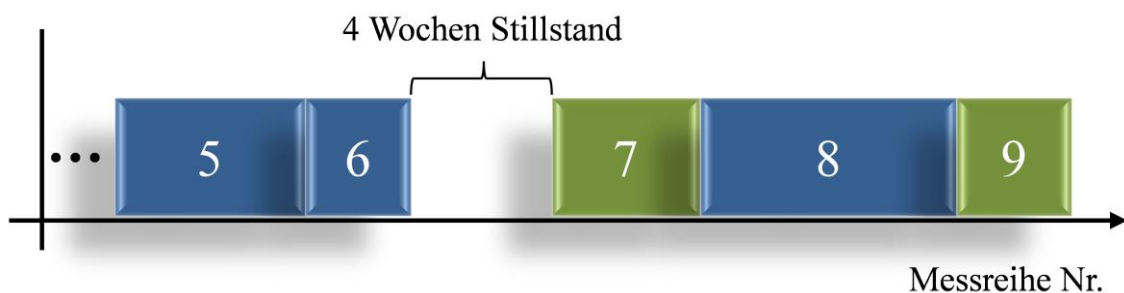


Abbildung 4.27: Darstellung der Abfolge der Messreihen.

Schematisch dargestellt ist die Abfolge der Messreihen. Bei blau markierten Intervallen handelt es sich um Messreihen mit Tritium. Grün markiert sind Messreihen, bei welchen anfänglich TriToP nicht mit Gas aus einem PNZ beaufschlagt, sondern „leer“ (mit Restgas der vorangegangenen Messreihe bzw. Gas aus Desorptionsprozessen) gestartet wurde.

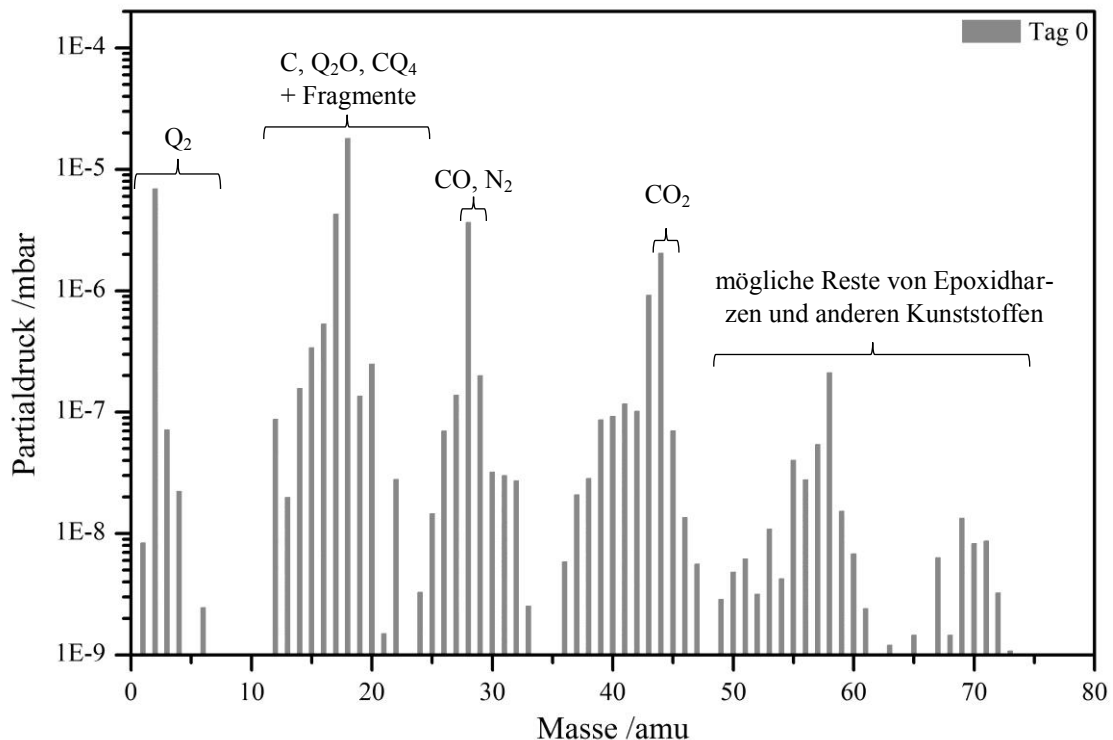


Abbildung 4.28: Beobachtetes Massenspektrum beim Start von Messreihe 7.

Neben den auch in Messreihen mit Tritium beobachteten Spezies im Massenspektrum (teilweise beschriftet) taucht nach einem Stillstand von ca. vier Wochen (Abbildung 4.27) eine Vielzahl weiterer Spezies im Massenspektrum auf. Eine mögliche Erklärung sind Fragmentierungsprodukte von Kunstharz und von anderen in der TMP verwendeten Kunststoffen und Klebern. Molekulares Tritium (T_2 , $m/e = 6$ amu) besitzt einen zu vernachlässigenden Anteil von $\approx 2 \cdot 10^{-9}$ mbar. HT ($m/e = 4$ amu) trägt mit einem Partialdruck von $< 2 \cdot 10^{-8}$ mbar zum Gesamtdruck von $\approx 2 \cdot 10^{-5}$ mbar bei und kann ebenfalls vernachlässigt werden.

Generell finden sich keine Massenspektren in der Literatur, in welchen gezielt Kunstharze einer Tritiumatmosphäre ausgesetzt und anschließend massenspektrometrisch untersucht wurden. Das Auftauchen von Massenspektren analog zu den in Abbildung 4.28 und Abbildung 4.29 gezeigten legt in Verbindung mit der Kenntnis des inneren Aufbaus der TMP jedoch die Vermutung nahe, dass es an den erwähnten Stellen zu radiochemischen Reaktionen kommt, infolge derer die beobachteten Massenspektren entstehen.

Zusätzlich zu den Fragmentierungsmustern der verwendeten Kunstharze und sonstigen, nichtmetallischen Komponenten besteht die Möglichkeit der Entstehung von höherwertigen Kohlenwasserstoffen während des Zeitraums der stillstehenden TMP. Im Betrieb stellt die Ionisationsquelle des Massenspektrometers zusätzlich eine Möglichkeit dar, über die Fragmente zu neuen Molekülen rekombinieren und somit im Massenspektrum nach und nach auftauchen können.

In den Beschreibungen der Messreihen 7 und 9 soll auf diese generelle Problematik der Interpretation der Massenspektren nicht weiter eingegangen werden. Es werden die Parameter der jeweiligen Messreihe diskutiert sowie notwendige Anpassungen.

Messreihe 7

Direkt im Anschluss an Messreihe 6 wurde das Gas an die CAPER-Anlage abgegeben. Der erreichte Enddruck im TriToP-Pufferbehälter BV001 betrug $\approx 0,6$ mbar, in der TMP (VA061) $\approx 10^{-2}$ mbar. Nach vier Wochen Stillstand wurde dann die Messreihe 7 am 21.03.2012 mit dem Restgas bzw. einem zusätzlichen Gasvolumen, bedingt durch Ausgasen von Oberflächen des Primärsystems von Messreihe 6, gestartet (Abbildung 4.27). Das anfängliche Massenspektrum ist in Abbildung 4.28 dargestellt, darauf folgende Spektren sind in Abbildung 4.29 gezeigt.

Während der Messreihe 7 (Tabelle 4.2, S. 97) wurde die zuvor installierte Boxenluftklimatisierung in Betrieb genommen. Dies senkte die Temperatur der Atmosphäre der zweiten Hülle um ca. 15 °C und verhinderte zuverlässig Schwankungen (Abbildung 4.30). Die Temperatur der TMP MAG W2800 lag ca. 5 °C über der der Boxenatmosphäre, da die TMP am Prozesskühlwasser angeschlossen war, welches eine entsprechend höhere Vorlauftemperatur besaß. Zudem sorgte der Betrieb der TMP für eine Erwärmung. Deutlich erkennt man in Abbildung 4.30 daraus resultierende Langzeitvariationen der Temperatur der TMP (RT040). Durch die Temperaturänderung wurde eine erneute Rekalibrierung der Parameter *low mass alignment* von 44500 auf 39500 und *high mass alignment* von 39100 auf 34000 notwendig, um eine korrekte Zuordnung der Peaks zur Massenskala zu erhalten.

Um zu klären, ob es sich bei den in Abbildung 4.28 und Abbildung 4.29 gezeigten Massenspektren um eine Fehlfunktion des Massenspektrometriesystems oder um ein reales Signal handelt, wurde nach ca. sechs Tagen das gesamte Gas abgepumpt und an die CAPER-Anlage abgegeben. Zu erkennen ist dies am Druckabfall von RP010 und RP015 in Abbildung 4.30. Es konnte ein anschließender, rapider Anstieg des Drucks auf den ursprünglichen Wert innerhalb von etwa 2 Tagen beobachtet werden, welcher sich über die restliche Laufzeit von Messreihe 7 nur noch leicht erhöhte. Eine Veränderung in den erhaltenen Massenspektren konnte nicht beobachtet werden (Anzahl und Position der Linien), woraus geschlossen werden kann, dass es sich in der Tat um ein echtes Signal handelt.

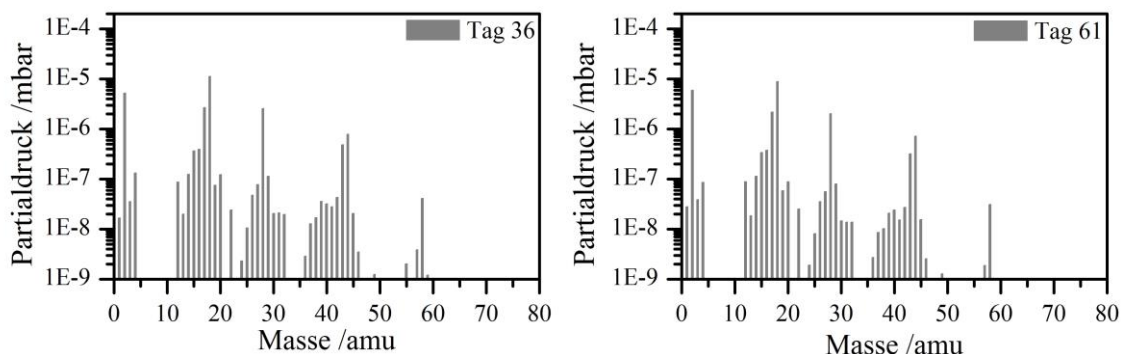


Abbildung 4.29: Massenspektren aus Messreihe 7 nach Inbetriebnahme der Boxenklimatechnik. Die im Vorfeld der Messreihe installierte Boxenklimatechnik wurde nach ca. einer Woche Messzeit in Messreihe 7 in Betrieb genommen (Abbildung 4.30). Dies verursachte ein Verschwinden der zuvor noch beobachteten, höheren Massenzahlen ($m/e > 60$ amu).

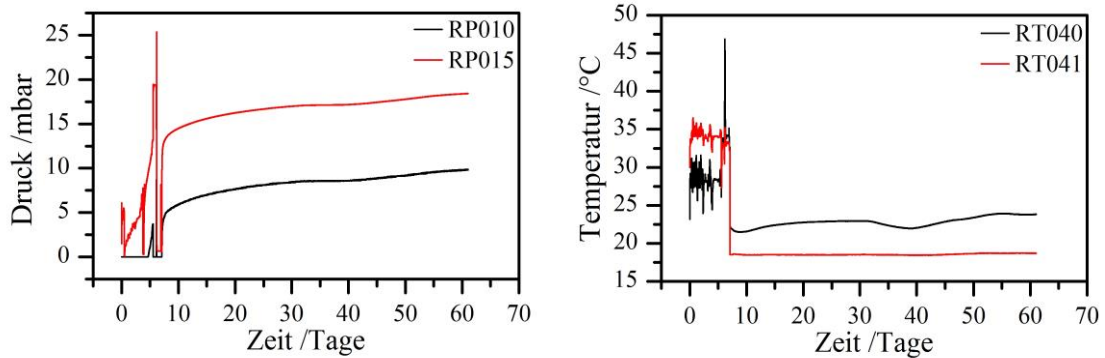


Abbildung 4.30: Druck und Temperatur bei Messreihe 7.

Das Gas aus Messreihe 7 wurde nach ca. 6 Tagen Laufzeit an die CAPER-Anlage abgegeben. Zu erkennen ist das im linken Bild am Abfall des Drucks im Pufferbehälter (RP015, rot) und der Probenahmestelle (RP010, schwarz). Der Unterschied zwischen RP010 und RP015 rührt von einem unterschiedlichen Nullpunkt der Drucksensoren her (eine Anzeige von ca. -8,8 mbar bei RP010 entspricht 0 mbar). Der positive Einfluss der Boxenklimateuerung auf sowohl die absolute Temperatur als auch auf relative Schwankungen der Temperatur durch die Boxenluftklimateuerung kann der rechten Abbildung entnommen werden. Nach dem Einschalten stabilisiert sich die Temperatur der Atmosphäre der zweiten Hülle nach ca. 7 Tagen bei ca. 18 °C. Zuordnung siehe Abbildung 4.8.

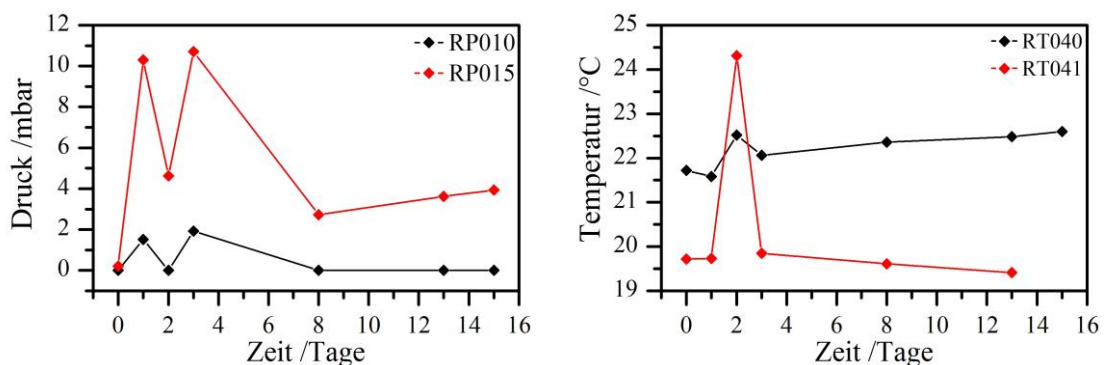


Abbildung 4.31: Druck und Temperatur bei Messreihe 9.

Aufgrund eines Ausfalls in der Datenaufnahme sind über die Laufzeit von Messreihe 9 nur wenige Datenpunkte für Druck und Temperatur vorhanden, welche lediglich einen Anhaltspunkt über die jeweiligen Verhältnisse geben können. Zuordnung siehe Abbildung 4.8.

Messreihe 9

Die Messreihe 9 (Tabelle 4.2) stellt die letzte Messreihe dar, welche mit der TMP MAG W2800 durchgeführt wurde. Es handelt sich dabei, wie bei Messreihe 7 auch, um eine Messung ohne anfängliche Tritiumgasfüllung. Im Gegensatz zu Messreihe 7 wurde das System im Vorfeld jedoch nicht abgeschaltet oder für einen längeren Zeitraum nicht betrieben. Messreihe 9 wurde am 28.08.2012 gestartet und schließt damit direkt an Messreihe 8 an (Abbildung 4.27). Dazwischen wurde TriToP für ca. 30 Minuten durch die TriToP-eigene Scrollpumpe und die CAPER-Anlage abgepumpt und auf einen Druck im Pufferbehälter BV001 von ca. 0,1 mbar gebracht.

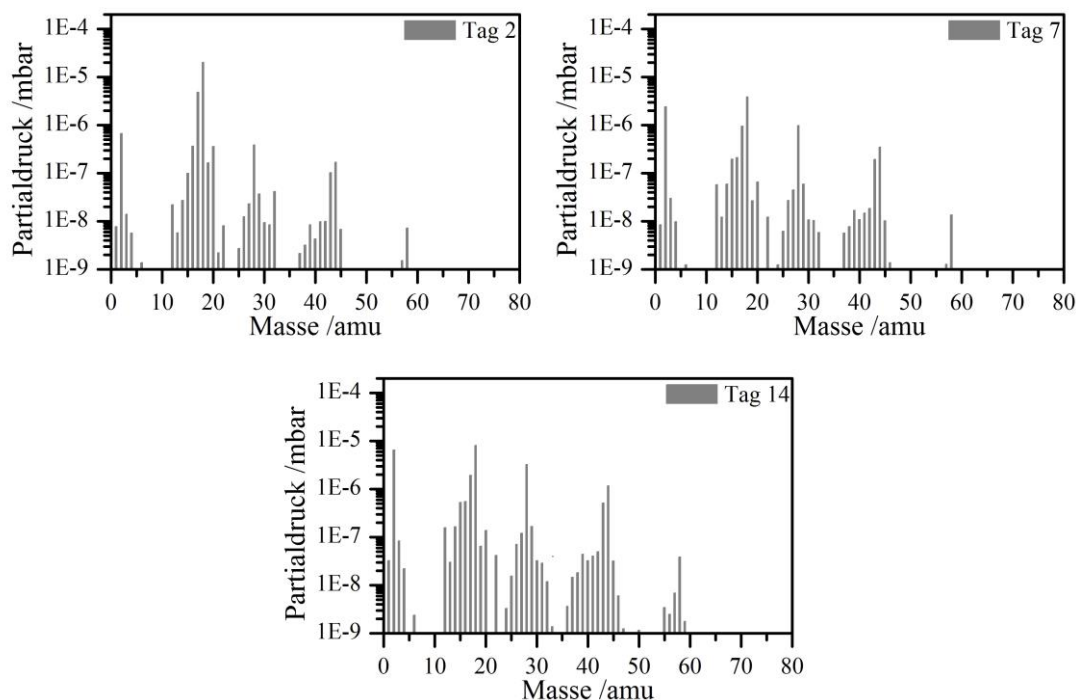


Abbildung 4.32: Ausgewählte Massenspektren aus Messreihe 9.

Auch ohne eine vorherige, längere Stillstandphase erhält man bei Messreihe 9 ohne eine vorherige Befüllung von TriToP mit Tritiumgas bereits nach zwei Tagen vergleichbare Massenspektren wie in Messreihe 7. Dies korrespondiert mit der benötigten Zeit zum Anstieg nach dem Abpumpen in Messreihe 7 (Abbildung 4.30). Es kann eine leichte Zunahme der Peakhöhe über die 14 Tage Laufzeit beobachtet werden.

Auch ohne einen vorherigen Stillstand über mehrere Tage oder Wochen zeigt sich das bereits aus Messreihe 7 bekannte Massenspektrum. Dies deutet auf ein zügiges (wenige Tage) Ausgasen von höherwertigen Kohlenwasserstoffen aus nichtmetallischen Oberflächen hin.

Während der Messreihe 9 stand die Datenaufnahme des Prozessleitsystems (PLS) nicht zur Verfügung. Daher liegen nur wenige, manuell erfasste Werte für Druck und Temperatur vor (Abbildung 4.31). Messreihe 9 verlief ohne weitere Besonderheiten oder Vorkommnisse und wurde nach einer insgesamt 14-tägigen Laufzeit beendet.

Dekontamination mit H₂

Das Primärsystem von TriToP wurde nach Messreihe 9 durch die CAPER-Anlage evakuiert. Vor dem Ausbau der TMP aus der TriToP-Anlage wurde das Primärsystem 16 Tage lang mit Wasserstoff (H₂) gespült. Dazu wurde Wasserstoff aus einer Gaskartusche über den Probenahmeanschluss in das Primärsystem von TriToP geleitet und über die TMP zirkuliert (Abbildung 4.8). Das erste Wasserstoffinventar wurde nach 6 Tagen von der CAPER-Anlage abgepumpt und TriToP anschließend mit neuem Wasserstoff befüllt. Diese zweite Füllung zirkulierte erneut 10 Tage und wurde anschließend wieder an die CAPER-Anlage abgeben. Die während den beiden Dekontaminationsreihen (D01 und D02) aufgenommenen Massenspektren sind in Abbildung 4.33 abgebildet. Vom qualita-

tiven Verlauf erinnern diese Massenspektren an die Resultate der Messreihen 7 und 9. Dies legt die Vermutung nahe, dass durch die hohen Konzentrationsunterschiede (der Partialdruck von H_2 ist in dieser Messreihe einen Faktor 50-100 höher als der anderer Bestandteile im Gasstrom) schnell tritierte Verunreinigungen innerhalb der TMP gelöst und im Gasstrom transportiert werden.

Die jeweils ersten Massenspektren der Dekontaminierungsmessreihen weisen einen hohen Untergrund auf. Dieser tritt besonders bei Massen $m/e > 40$ amu auf. Es handelt sich dabei wahrscheinlich um ein Artefakt in der Messung, bedingt durch den hohen Anteil Wasserstoff [Mic13]. Der Untergrund ist jedoch einen Faktor $5 \cdot 10^{-4}$ kleiner als der größte Peak im jeweiligen Spektrum und beeinflusst die Messung nicht wesentlich.

Im Anschluss an die Dekontaminierung wurde die TriToP-Anlage stillgelegt. Die TMP MAG W2800 wurde vom TriToP-Kreislauf getrennt und mit Blindflanschen an Hoch- und Vorvakuumstutzen verschlossen, um die Pumpe im Anschluss in eine andere Handschuhbox (RBX) im TLK zu transportieren. Dort fand die in Kapitel 4.6 beschriebene Demontage statt.

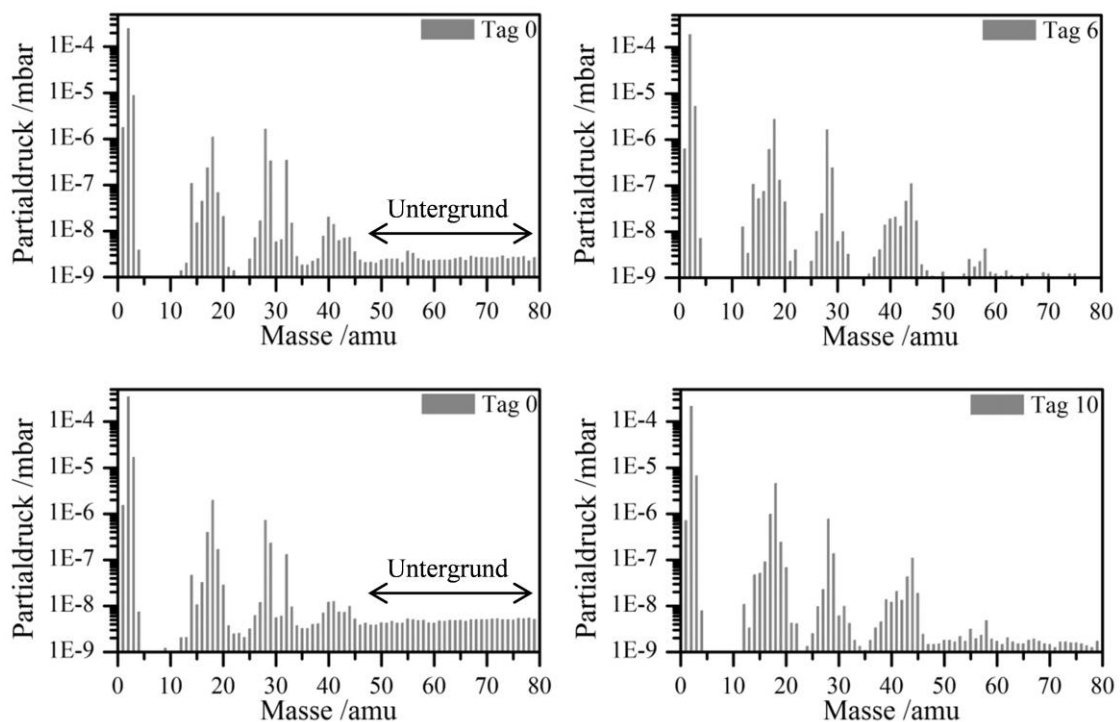


Abbildung 4.33: Massenspektren der Dekontamination mit H_2 .

Bei Dekontaminationsreihe 1 (oben) wurde insgesamt 6 Tage lang kontinuierlich gespült, bei Dekontaminationsreihe 2 (unten) über 10 Tage. Zu Beginn ist ein praktisch kontinuierlicher Untergrund bei beiden Messreihen zu sehen. Auch gegen Ende einer jeweiligen Dekontaminationsreihe lassen die Massenspektren deutlich mehr Details (Peaks) erkennen als dies bei den Tritiummessreihen der Fall war und erinnern eher an die Ergebnisse aus den Messreihen 7 und 9.

4.5. Bestimmung der Gaszusammensetzung mit Laser-Raman-Spektroskopie

Aufgrund der Auflösung des in TriToP verwendeten Massenspektrometers von $\Delta m = 1$ amu (Anhang G) ist es in der Analyse der aufgezeichneten Massenspektren nicht immer möglich, sämtliche Gasspezies zu unterscheiden. Beispiele hierfür sind

- T, HD und ^3He welche alle bei $m/e = 3$ amu,
- CH_4 und O, welche bei $m/e = 16$ amu,
- HF, CT_2D und HTO, welche bei $m/e = 20$ amu und
- TF, CT_3H und T_2O , welche bei $m/e = 22$ amu

ein Signal liefern.

Während es für die qualitative Entwicklung der Gaszusammensetzung von untergeordnetem Interesse ist, die genaue Gaszusammensetzung zu analysieren, ist es im Falle eines möglichen Entstehens fluorierter Verbindungen wichtig, dies zu wissen. Fluor und fluorierte Gase können das Edelstahlvakuumsystem (Rohrleitungen, Behälter) sowie Pumpen und Sensoren beschädigen. Neben dem Ausfall von Komponenten kann somit auch die Dichtheit des tritiumführenden Primärsystems beeinträchtigt werden. Um eine Analyse mit einem anderen System (Laser-Raman, LARA) durchzuführen, wurde eine Laser-Raman-Analysezelle mit Gas vom Ende der Messreihe 8 befüllt. Die Zelle wurde dazu am Probenahmeanschluss von TriToP montiert und mit Hilfe der TriToP-eigenen Scrollpumpe (VA060, Abbildung 4.8) Gas in die Zelle transferiert. Die Zelle wurde nach dem Demontieren aus der ALTEX-Handschuhbox ausgeschleust und zum LARA System gebracht, wo die Analyse erfolgte. Der Aufbau und die Funktionsweise eines LARA-Systems können unter anderem in [Sch11a], [Sch13] und [Fis11] nachgelesen werden und sollen an dieser Stelle nicht näher diskutiert werden. Zum Zeitpunkt der Messung war der verwendete LARA-Aufbau noch nicht mit der in [Rup13] beschriebenen Methode kalibriert. Eine quantitative Auswertung des in Abbildung 4.34 gezeigten Ramanspektrums ist daher nur unter Einschränkungen möglich, weshalb an dieser Stelle komplett darauf verzichtet werden soll.

Eine qualitative Auswertung des Ramanspektrums hingegen zeigt die gleichen Gasspezies, wie diese auch schon in den Messreihen 1 bis 8 in den mit dem Massenspektrometer aufgezeichneten Massenspektren gefunden wurden. Auch bei den LARA-Messungen zeigen sich die beiden Bestandteile Wasserstoff (H_2) und Wasser (H_2O) als dominierende Spezies im zirkulierenden Gasstrom, gefolgt von Kohlenstoffdioxid (CO_2). Auch deutlich nachweisbare Mengen von Methan (CH_4 , ... , CH_3T) wurden gefunden. Wie es bereits die Analyse der Massenspektren ergab, ist der Anteil von Deuterium (D_2) und deuterierten Verbindungen (z.B. DT, CH_3D) vernachlässigbar. Im Gegensatz zu der Analyse der Massenspektren findet sich im Ramanspektrum nur ein kleiner Anteil an Kohlenstoffmonoxid (CO) und Stickstoff (N_2). Diese beiden Spezies finden sich im Massenspektrum bei einem Wert $m/e = 28$ amu und liegen dort in ihrer Intensität im Bereich der Intensität von CO_2 ($m/e = 44$ amu).

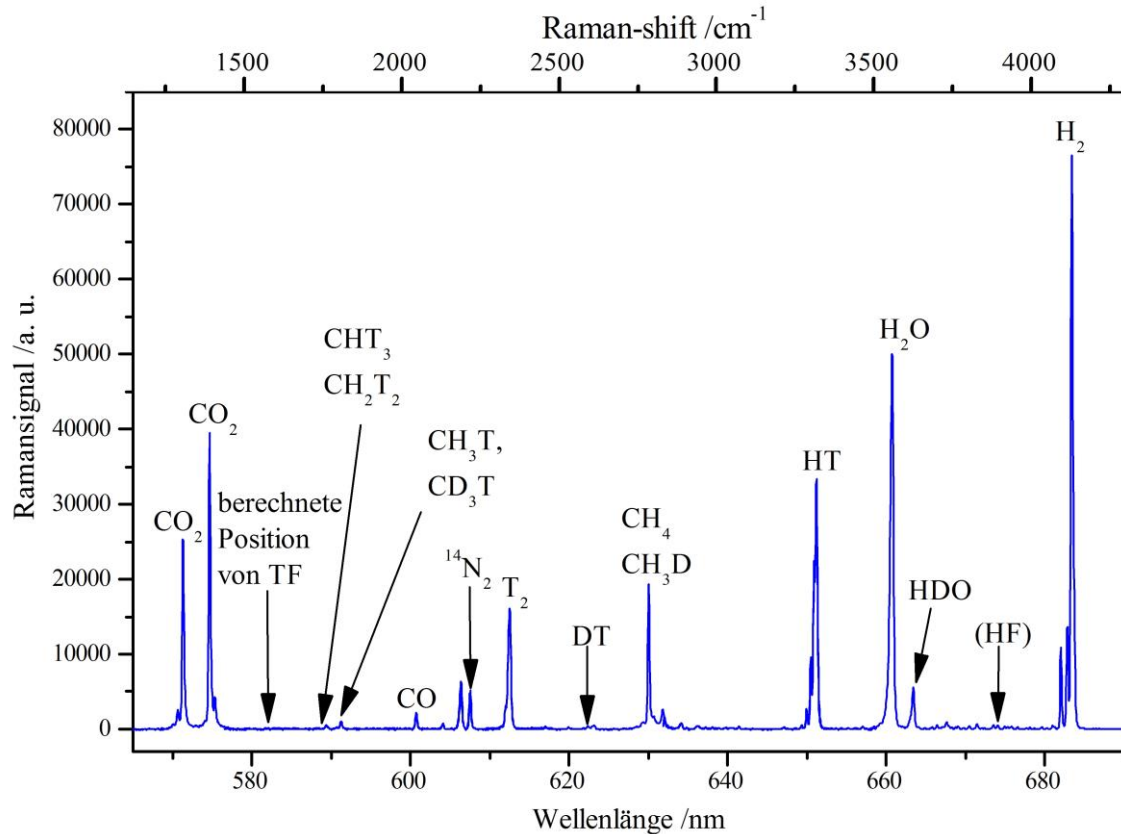


Abbildung 4.34: Ramanspektrum mit Gas aus Messreihe 8.

Die Analyse wurde mit einem im Tritiumlabor Karlsruhe verfügbaren Laser-Raman-Aufbau durchgeführt. Das abgebildete Spektrum setzt sich aus mehreren einzelnen, hochauflösenden Spektren zusammen. Zur Anregung wurde ein Laser mit 532 nm Wellenlänge verwendet. Die Messung wurde im Rahmen von [Fis13] durchgeführt und analysiert.

Die wichtigste Schlussfolgerung für den KATRIN-Betrieb aus dem Ramanspektrum von Abbildung 4.34 ist jedoch, dass keine signifikanten Anzeichen für das Vorhandensein von Fluor oder fluorierten Verbindungen (HF, TF) gegeben sind. Die Position von TF wurde im Rahmen von [Fis13] aus anderen Literaturwerten extrapoliert, da entsprechende Angaben für TF nicht direkt verfügbar sind.

4.6. Demontage der Turbomolekularpumpe MAG W2800

Die nach der Dekontamination mit Wasserstoff (Kapitel 4.4.2) mit Blindflanschen an ihrem Vor- und Hochvakuumflansch versehene TMP wurde zur Inspektion und Demontage aus der ALTEX-Handschuhbox ausgebaut und zur benachbarten RBX-Handschuhbox transportiert. Diese Handschuhbox steht im Tritiumlabor für die Wartung kontaminierter Teile zur Verfügung.

Die Herkunft der in den Massenspektren nachgewiesenen Kohlenwasserstoffverbindungen aus Reaktionen an den nichtmetallischen Oberflächen mit Tritium (Kapitel 4.4.2) sollte nach Beendigung der Tritiummessreihen näher untersucht werden. Dazu musste die TMP komplett demontiert werden, um eine visuelle Inspektion der Teile zu ermöglichen.

chen. Daneben sollte mit Hilfe von Wischtests die Oberflächenkontamination von dem Prozessgas ausgesetzten Oberflächen bestimmt werden (Kapitel 4.6.1.1). Durch kalorimetrische Methoden (Kapitel 4.6.1.2) erfolgte anschließend die Bestimmung des Gesamtinventars verschiedener Probenstücke der TMP. Die Demontage wurde zusammen mit Herrn Odendahl und Herrn Gaebler (beide Mitarbeiter von Oerlikon Leybold) durchgeführt. So konnte sichergestellt werden, dass die TMP nicht durch unsachgemäße Demontearbeiten beschädigt und diese Beschädigungen anschließend fehlinterpretiert werden.

Es wurde im TLK früher bereits eine TMP des Typs „Edwards Seiko Seiki STP-H600C“ (ebenfalls magnetisch gelagert) demontiert, welche nach mehreren Jahren Betrieb in der CAPER-Anlage ausfiel [Cal08]. Dabei wurden signifikante Mengen an Tritium sowohl in metallischen als auch nichtmetallischen Komponenten nachgewiesen.

In diesem Kapitel werden zunächst die Schritte zur Demontage der TMP „Leybold MAG W2800“ erläutert. In den Kapiteln 4.6.1.1 und 4.6.1.2 werden die Ergebnisse erläutert, welche im Rahmen von Messungen der Aktivität einzelner TMP-Teile ermittelt wurden. Anhand dieser Ergebnisse soll eine Abschätzung der Gesamtaktivität aufgestellt werden. Aufgrund der geringen Anzahl an Proben kann es sich dabei nur um eine relativ grobe Abschätzung handeln. Diese ist jedoch zur Einschätzung des Gefahrenpotentials notwendig, welches bei KATRIN entsteht, wenn Pumpen im STS-Bereich ausgetauscht werden müssen. Auch für einen späteren Rückbau von KATRIN ist es notwendig, das Inventar der jeweiligen Komponente zu kennen.



Abbildung 4.35: Blick in den Vorvakuumbereich der TMP.

Dieses Bild zeigt den Vorvakuumbereich der TMP nach dem Entfernen des Flansches zum Anschluss an die Vorpumpe. Deutlich zu erkennen sind Reste der verwendeten Indiumdichtung. Es können keine Verschmutzungen innerhalb des Vorvakuumbereiches erkannt werden.

Sämtliche Teile der TMP wurden zusammen mit den Mitarbeitern der Firma Oerlikon-Leybold einer genauen visuellen Inspektion unterzogen, um mögliche Ablagerungen (gelöste Bestandteile von Kunststoffen und Vakuumfetten) sowie Veränderungen der Materialeigenschaften identifizieren zu können.

Abbildung 4.35 zeigt den Vorvakuumbereich der TMP nach dem Entfernen des Adapters, welcher zum Anschluss der Vorpumpe notwendig ist. Dabei sind Reste der Indiumdichtung sichtbar. Diese wurde anstelle der serienmäßigen Elastomerdichtung verwendet (Kapitel 4.3.2.1). Im Vorvakuumbereich der TMP herrscht während des Betriebs der höchste Druck innerhalb der TMP. Es ist damit der Bereich mit der höchsten Menge an Verunreinigungen in der TMP. Erwartet man Ablagerungen zu finden, besteht im Vorvakuumbereich somit die höchste Wahrscheinlichkeit dafür. Es konnten jedoch keine Anzeichen für Ablagerungen gefunden werden.

Der nächste Schritt bei der Demontage bestand im Entfernen der oberen Gehäusehälfte (Edelstahlteil mit Hochvakuumflansch), wodurch die Statorschaufeln sowie der äußere Gehäusedichtring freigelegt wurden. Abbildung 4.36 zeigt einen Teilausschnitt nach dem Entfernen der oberen Gehäusehälfte. Deutlich zu erkennen sind Reste von Hochvakuumfett, welches bei der Montage der TMP eingesetzt wird. Es handelt sich dabei um Dow Corning[®], ein Fett auf Silikonbasis [Ode12]. Während des Stillstands der TMP kann an diese Dichtung das eigentliche Prozessgas gelangen und im Fall von Tritium mit den Bestandteilen des Fettes und der Dichtung selbst reagieren. Die O-Ringdichtung wurde entnommen und zur Bestimmung des Inventars mit Hilfe des Kalorimeters verpackt (Tabelle 4.6, „O-Ring 1“). Der Dichtring zeigte keine offensichtlichen Alterungserscheinungen wie Versprödung. Die Elastizität entsprach laut Oerlikon-Leybold Mitarbeitern etwa der eines neuwertigen O-Rings.

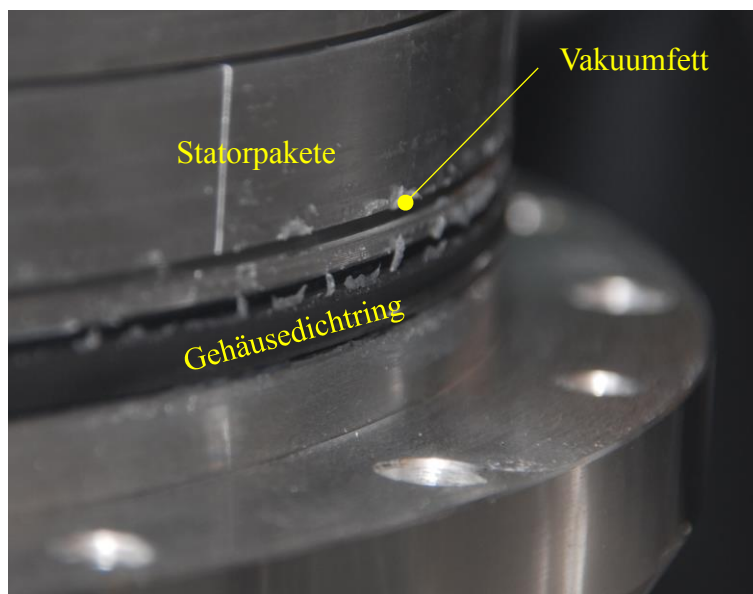


Abbildung 4.36: Detail der äußeren Dichtung.

Nach dem Entfernen der oberen Gehäusehälfte sind die Statorpakete sowie der Gehäusedichtring zu sehen. Daneben sind Reste von Hochvakuumfett deutlich erkennbar.

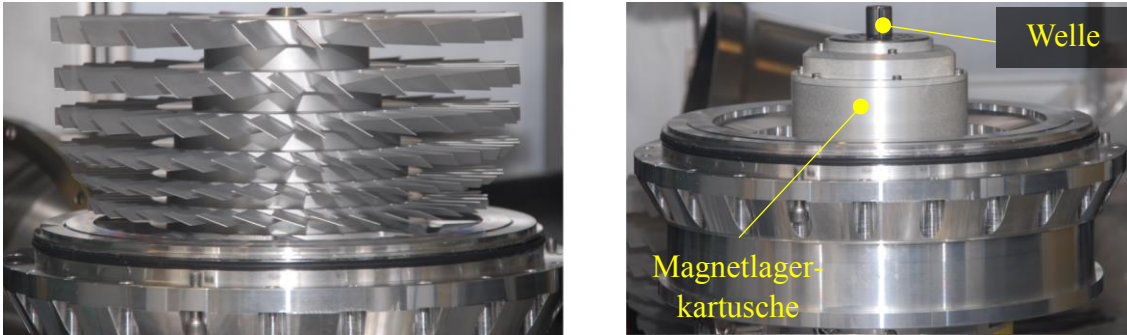


Abbildung 4.37: Pumpenrotor und Magnetlagerkartusche.

Das linke Bild zeigt den Rotor der TMP nach dem Entfernen der Statorpakete. Gut zu erkennen sind die sechs einzelnen Rotorstufen mit ihren unterschiedlichen Anstellwinkeln der Rotorscheufeln. Rechts zu sehen ist (nach dem Entfernen des Rotors) das Gehäuse der Magnetlagerkartusche sowie das obere Ende der Welle, an welcher der Rotor befestigt ist.

Durch das Entfernen der Statorpakete (aus Aluminium, gefräst) wird der aus einem Stück aus Aluminium gefertigte Rotor samt Rotorscheufeln sichtbar (Abbildung 4.37). Dieser besitzt insgesamt sechs Rotorstufen. Diese unterscheiden sich im Anstellwinkel der Rotorflügel und der Fläche der Rotoren. Beide Größen sind auf den an der jeweiligen Stelle herrschenden Druck optimiert. Nach der Demontage des Rotors (Abbildung 4.38) wird die Magnetlagerkartusche sowie der obere Teil der Welle sichtbar.

Nach dem Entfernen des Rotors sowie der Kartusche des Magnetlagers kann der Stator der in den Rotor integrierten Dragstufe (Abbildung 4.38) demontiert werden. Die sich dort im Bereich des Vorvakuums der Pumpe befindliche O-Ringdichtung wurde ebenfalls entnommen und als Probe zur Untersuchung im Kalorimeter vorbereitet (Tabelle 4.6, „O-Ring 2“). Auch bei diesem O-Ring konnten keine Alterungserscheinungen festgestellt werden.

Danach folgte die Demontage der bereits entnommenen Magnetlagerkartusche (Abbildung 4.39). Als erstes musste dazu die untere Abdeckung der Magnetlagerkartusche entfernt werden. Dies bietet einen Zugang zu den Steckverbindungen zwischen dem elektrischen Hauptanschluss sowie den Anschlüssen sämtlicher sich in der TMP befindlicher Spulen und Sensoren (Abbildung 4.39, rechts). Um die Magnetlagerkartusche weiter demontieren zu können, müssen zuerst der Drehgeber (Drehzahlüberwachung des Rotors Abbildung 4.39, rechts) und danach das z-Achsen-Magnetlager (Abbildung 4.40) entfernt werden. Das z-Achsen-Magnetlager stellt die erste, größere nichtmetallische Oberfläche innerhalb der TMP dar, welche bei der Demontage zu sehen ist. Ein Vergleich mit einem nicht kontaminierten Neuteil zeigt keinerlei Verfärbungen der Vergussmasse, Versprödung oder Veränderung der Oberfläche. Während des Öffnens der Magnetlagerkartusche kann jedoch ein deutlicher Anstieg der Aktivitätskonzentration der Boxenluft beobachtet werden (Abbildung 4.44). Diese steigt von zuvor ca. 150 MBq/m^3 auf ca. 400 MBq/m^3 . Dies spricht dafür, dass auf nichtmetallischen Oberflächen bzw. in der Epoxidharz-Vergussmasse größere Mengen Tritium gespeichert werden, welche bei direktem Kontakt mit Luft freigesetzt werden.

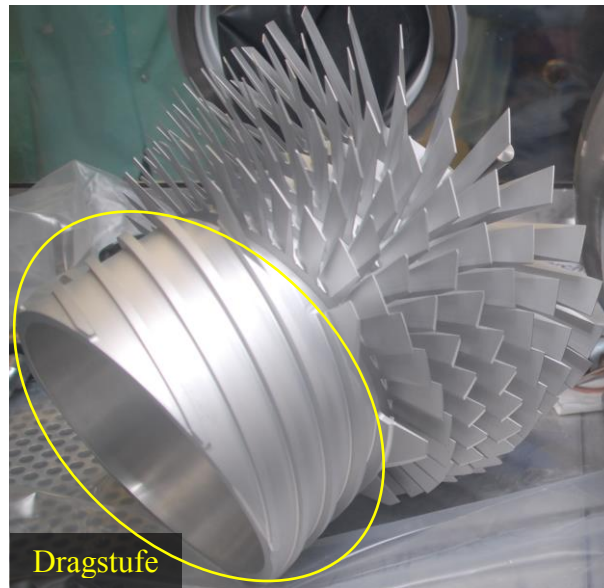


Abbildung 4.38: Einteiliger Aluminiumrotor mit Dragstufe.

Die Abbildung zeigt den einteiligen Aluminiumrotor mit der Hochvakuumstufe und dem Gewinderotor (Dragstufe) des Vorvakuum.

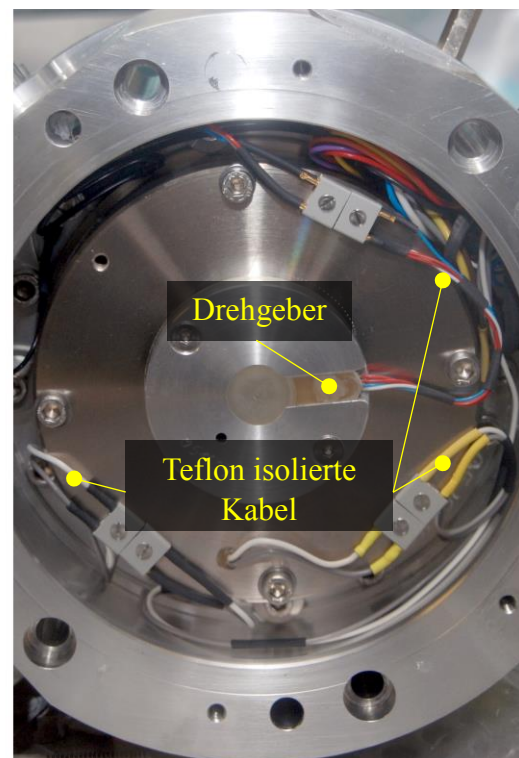


Abbildung 4.39: Ausgebaute Magnetlagerkartusche und Verkabelung.

Links zu sehen ist die ausgebaute Magnetlagerkartusche. Sämtliche Sensoren, sowie die Spulen des Antriebs und das Magnetlager selbst sind darin eingebaut. Daneben ist auch die integrierte Wasserkühlung der TMP Teil der Magnetlagerkartusche. Rechts sieht man nach Entfernen der Bodenplatte des Magnetlagers verschiedene Steckverbindungen sowie den Drehgeber (Drehzahlsensor) der TMP.

Der sich zwischen z-Achsen-Magnetlager und Magnetlagerkartusche befindliche O-Ring wurde zur späteren Bestimmung der Aktivität im Kalorimeter (Tabelle 4.6, „O-Ring 3“) verpackt und aufbewahrt.

Nach dem Entfernen des z-Achsen-Magnetlagers kann die Welle entnommen werden. Dabei konnte ein weiterer Anstieg der Aktivitätskonzentration der Boxenluft beobachtet werden (Abbildung 4.44), diese stieg auf Werte von bis zu 720 MBq/m^3 . Die Ursache für diese erneute Zunahme liegt wahrscheinlich in den an der Welle verwendeten Materialien. Es ist dort neben dem Grundkörper aus Edelstahl

- Korrosionsschutzlack,
- Kohlefaserverbundwerkstoff,
- mit Epoxidharz verklebte Dauermagnete (FeNdB) sowie
- Klebstoff

zu finden (Abbildung 4.42). Diese nichtmetallischen Materialien binden Tritium in deutlich höherem Maße als Teile, welche lediglich aus Edelstahl oder Aluminium gefertigt sind. Am Korrosionsschutzlack sind deutlich Stellen zu erkennen, an welchen dieser abgeplatzt ist. Ein Vergleich beim Oerlikon-Leybold Service mit Pumpen, welche nur mit Inertgas betrieben wurden, zeigt das gleiche Erscheinungsbild. Die Beschädigung des Schutzlacks kann also nicht eindeutig auf den Betrieb mit Tritium zurückgeführt werden, sondern entsteht wahrscheinlich durch die dort wirkenden hohen Fliehkräfte. Durch das Herausziehen der Welle aus der Magnetlagerkartusche werden neben den nichtmetallischen Oberflächen an der Welle selbst auch größere nichtmetallische Oberflächen in der Magnetlagerkartusche selbst freigelegt. Dabei handelt es sich um Epoxidharz, in welchem die Statorspulen von Antrieb und x/y-Magnetlager vergossen sind (Abbildung 4.41). Zusätzlich wurde dort Korrosionsschutzlack (rot-orange und gelb) an freiliegenden Statorblechen verwendet. Nachdem die Welle aus der Magnetlagerkartusche entfernt ist kann man auch die keramischen, fettfreien Notlager (Abbildung 4.41, rechts) erkennen. Diese Notlager wurden im Betrieb nicht benötigt (kein „Fallen“ des Rotors bei voller Drehzahl aufgrund eines nicht funktionierenden Magnetlagers), auch hier können keine Beschädigungen ausgemacht werden.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass sich die eingesetzte Pumpe in einem für die Betriebsdauer normalen bis sehr guten Zustand befindet. Es können weder Verunreinigungen aufgrund von Reaktionen von Tritium mit verwendeten Vakuumfetten oder nichtmetallischen Bestandteilen (Epoxidharze, Elastomere, Teflon-Kabelisolierung) noch sonstige mechanische Verschleißerscheinungen gefunden werden. Anhand von Abbildung 4.43 kann gezeigt werden, dass besonders nichtmetallische Oberflächen, wie sie innerhalb der Magnetlagerkartusche gefunden werden können, große Mengen an Tritium binden und diese bei Kontakt mit Luft wieder freisetzen. Dies erfordert bei einer späteren Demontage einer TMP bei KATRIN erhöhte Sicherheitsvorkehrungen, um eine Gefährdung von Personal zu vermeiden.

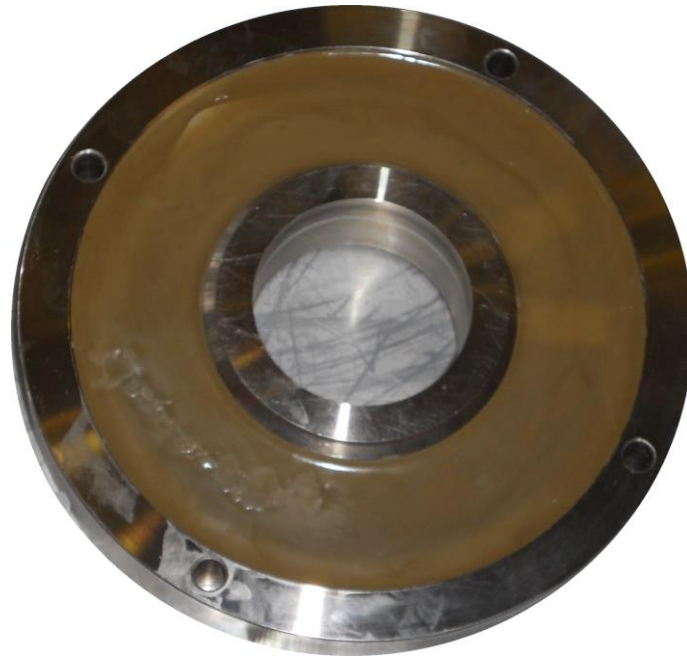


Abbildung 4.40: z-Achsen-Magnetlager.

In der Epoxidharzvergussmasse (braun) befinden sich die Spulen zum Anheben des Rotors (z-Achse). Dabei ist die Vergussmasse dem Prozessgas ausgesetzt, besonders während eines Stillstands.

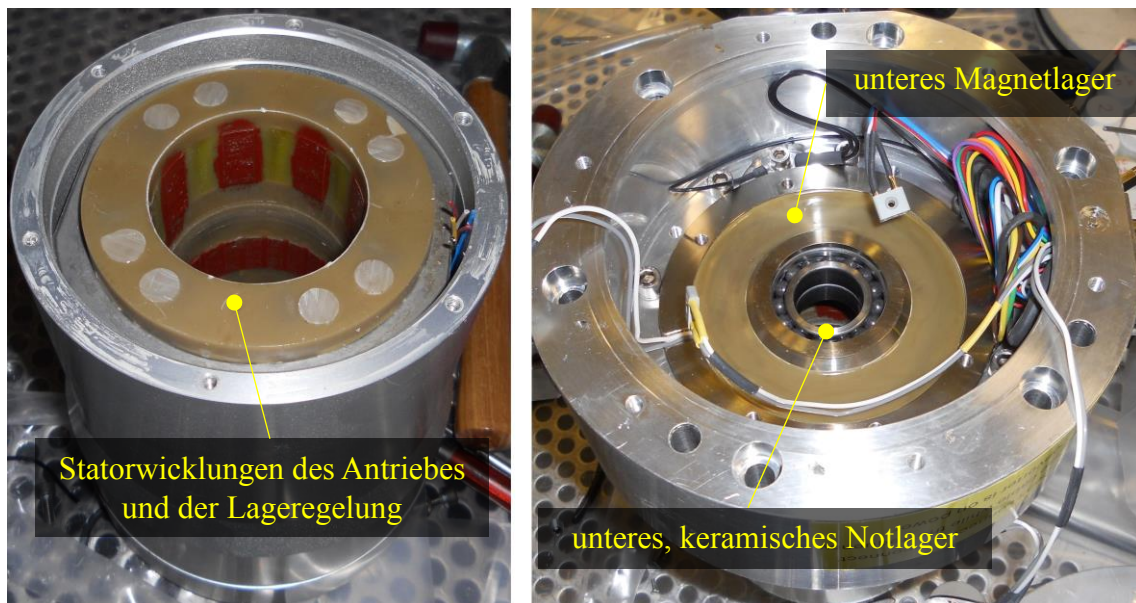


Abbildung 4.41: Demontierte Magnetlagerkartusche.

Links zu sehen sind die vergossenen Statorwicklungen des Antriebes, rechts die Positionssensoren und die x/y-Magnetlager sowie eines der keramischen Notlager.

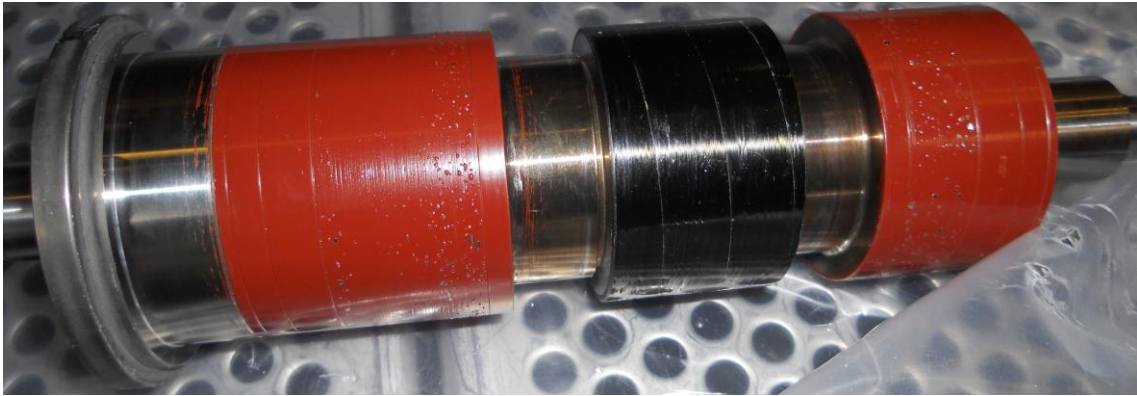


Abbildung 4.42: Antriebswelle mit CFK-Schutzmantel und Schutzlack.

Das Bild zeigt den Edelstahlgrundkörper der Antriebswelle. Mit Epoxidharz darauf verklebt und unter einem Kohlefasermantel (schwarz) fixiert befinden sich die Permanentmagnete des Antriebs. Am rotbraunen Korrosionsschutzlack sind aufgrund der Fliehkräfte abgeplatzte Stellen kleinskaliger Natur zu erkennen.

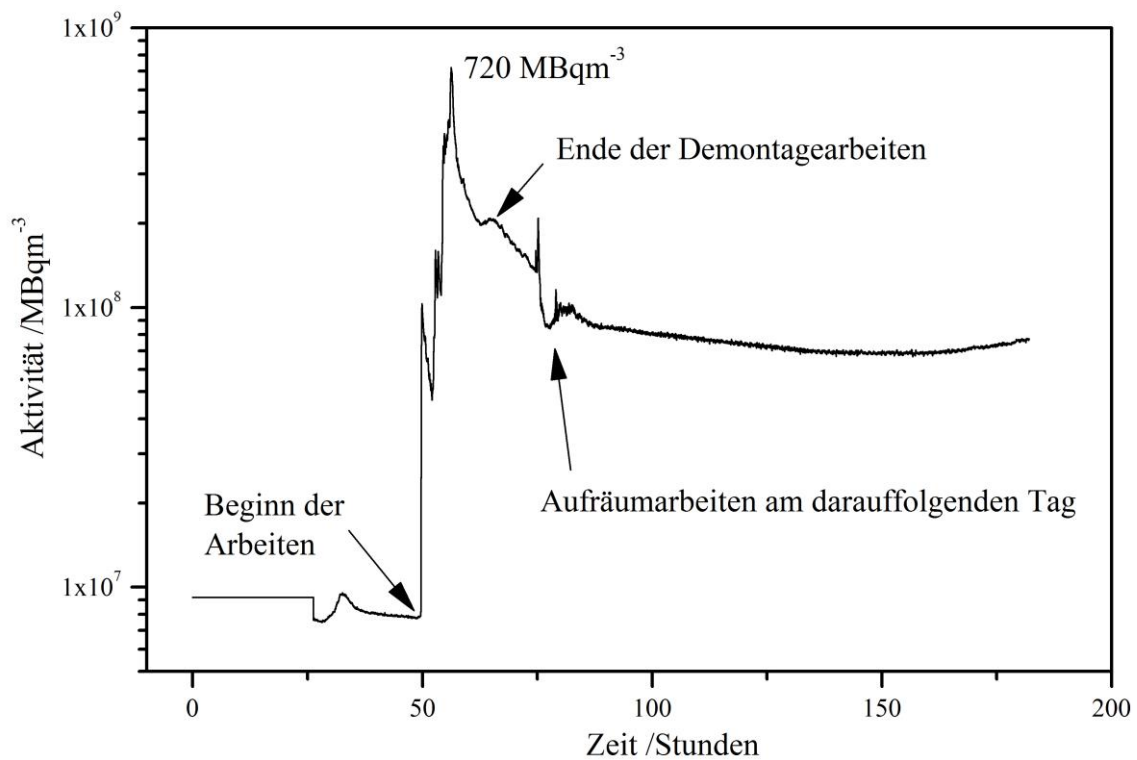


Abbildung 4.43: Verlauf der Boxenluftaktivität vor, während und nach der Demontage.

Das Diagramm zeigt den Verlauf der Aktivitätskonzentration der Boxenatmosphäre der RBX-Box. Details der Demontage sind in Abbildung 4.44 dargestellt. Nach den Demontearbeiten bleibt die Aktivitätskonzentration der Boxenatmosphäre konstant über 100 MBq/m^3 . Dies ist auf ein Ausgasen hochkontaminierter Teile in der Handschuhbox zurückzuführen.

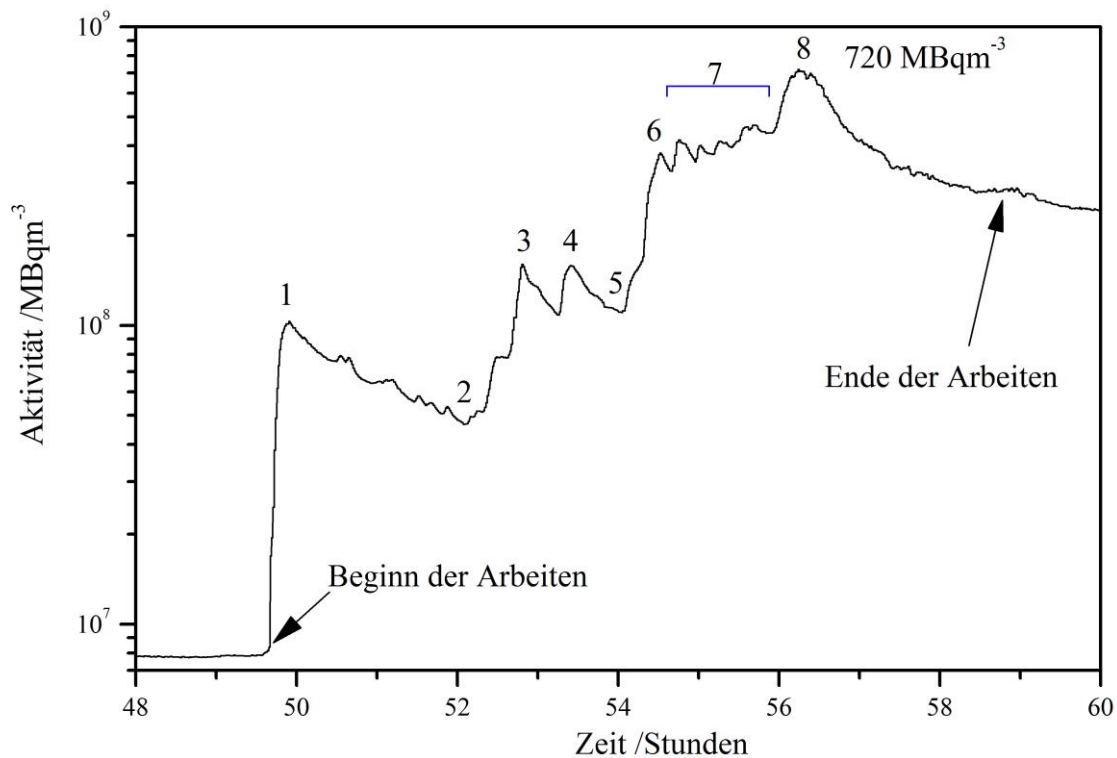


Abbildung 4.44: Verlauf der Boxenluftaktivität während der Demontage der TMP.

1: Öffnen des Blindflansches auf der Hochvakuumseite, 2: Demontage des Vorvakuumstutzens und des Edelstahlgehäuseteils, 3+4: Entfernen von Stator der HV-Stufe und Rotor, von 5 nach 6: Ausbau der Magnetkartusche und des Gewindestators, 7: Öffnen und Zerlegen der Magnetlagerkartusche, 8: Entfernen der Welle aus der Magnetlagerkartusche.

Die Demontearbeiten wurden am 21.11.2012 begonnen und am gleichen Tag abgeschlossen. Die Teile lagerten bis März 2013 verpackt in Kunststofffolien und im Falle von Magnetlagerkartusche und Welle in Metallbehältern mit O-Ringdichtung in der RBX-Box. Während dieses Zeitraums befand sich die Aktivitätskonzentration der Boxenatmosphäre stets über 100 MBq/m^3 . Die Aktivitätskonzentration konnte trotz aktiver Tritiumrückhaltesysteme nicht reduziert werden. Erst ein Ausschleusen der hochkontaminierten Teile aus der RBX-Box⁶ konnte die Aktivitätskonzentration senken.

4.6.1. Aktivitätsbestimmungen im Zusammenhang mit der Demontage

Wie im vorangegangenen Kapitel bereits mehrfach erwähnt, wurden während der Demontage der TMP an verschiedenen Stellen Materialproben entnommen, um die sich darin befindliche Tritiummenge mit Hilfe eines Kalorimeters zu bestimmen. Daneben wurden an unterschiedlichen Stellen Wischtestproben genommen, um die Oberflächenkontamination innerhalb der TMP bestimmen zu können. Die Ergebnisse werden in den folgenden Kapiteln 4.6.1.1 und 4.6.1.2 diskutiert.

⁶ Zum Abtransport in speziellen Behältern in das Zwischenlager für radioaktiv kontaminierten Abfall auf dem Gelände des KIT Campus Nord.

4.6.1.1. Bestimmung der Oberflächenkontamination mittels Wischtest

Bei einem Wischtest wird mittels eines kleinen Styroporplättchens durch Reiben an einer Oberfläche ein Teil der Aktivität von der Oberfläche auf das Plättchen übertragen. Als Berechnungsgrundlage dient dabei eine Effizienz von 10% und eine gewischte Fläche von 300 cm^2 . Bei abweichenden Flächen werden Korrekturfaktoren angebracht. Das Styroporplättchen wird anschließend mit einer definierten Menge an Flüssigszintillator vermischt, in welchem sich das Styropor auflöst. Beim Zerfall von Tritium regen die β -Elektronen sichtbare (blau/grün) Szintillationen im Flüssigszintillator an, welche dann mit Hilfe eines Szintillationszählers nachgewiesen werden können. Die Nachweisgrenze dieses Verfahrens liegt dabei unter 1 Bq/cm^2 (bei Normbedingungen).

Insgesamt wurden fünf Wischtestproben während der Demontage angefertigt. Die erste Probe wurde verteilt an allen Statorscheiben der Hochvakuumstufe genommen und repräsentiert somit einen Mittelwert der Oberflächenkontamination auf nicht bewegten Teilen im Hochvakuumbereich der TMP. Die Wischtestprobe 2 stammt vom Gewindestator, d.h. vom Stator der Dragstufe. Da es sich dabei um den Vorvakuumbereich handelt, in welchem ein höherer Druck im Betrieb als im Hochvakuumbereich herrscht, wurde in diesem Teil eine um ca. 50% erhöhte Oberflächenkontamination nachgewiesen. Die ermittelten Werte der Oberflächenkontaminationen der jeweiligen Statoren wurden auch für die entsprechenden Stufen des Rotors verwendet, da kein Grund zu der Annahme besteht, dass durch die schnelle Rotation der Wert der Oberflächenkontamination beeinflusst wird.

Tabelle 4.5: Oberflächen und Aktivitäten innerhalb der TMP MAG W2800.

Die Tabelle fasst die Ergebnisse der Wischtests zusammen, welche im Rahmen der Demontage gemacht wurden. Die Angaben der Oberflächen stammen aus CAD-Daten des Herstellers [Ode12]. HV bezeichnet den Hochvakuumbereich, VV den Vorvakuumbereich (Dragstufe) des Rotors.

Teil	Oberfläche (cm^2)	Wischtestergebnis (Bq/cm^2)	Oberflächenaktivität gesamt (MBq)
Statorscheibe 1			
Statorscheibe 2			
Statorscheibe 3			
Statorscheibe 4	12188	12000	146
Statorscheibe 5			
Statorscheibe 6			
Statorring Stufe 2			
Statorring Stufe 3			
Gewindestator	1988	19000	38
Compoundrotor	HV: 6849	12000	102
	VV: 1611	19000	31
Edelstahlgehäuse innen	17485	32000	560
Welle (Schutzlack)	230	22000	5,1
Welle (CFK Mantel)	100	4500	0,5

Die dritte Probe stammt von der inneren Oberfläche des Edelstahlgehäuses. Erwartungsgemäß ist die Kontamination dort deutlich erhöht (\approx Faktor 2) gegenüber anderen Werten für Aluminium. Dies liegt in der typischerweise mehr als eine Größenordnung höheren Permeation („Aufnahmefähigkeit“) von Wasserstoff in Stahl gegenüber Aluminiumlegierungen. Die beiden letzten Wischtestproben wurden an der Welle genommen, eine an dem Korrosionsschutzlack und eine am Kohlefasermantel (CFK) der Dauermagnete. Während der Lack einen erwartungsgemäß hohen Wert aufwies, blieb der ermittelte Wert der Oberflächenkontamination des CFK-Teils deutlich hinter den Erwartungen zurück.

Summiert man die ermittelten Oberflächenkontaminationen auf, so erhält man einen Wert von ≈ 900 MBq für die gesamte TMP. Aufgrund der im folgenden Kapitel besprochenen Kalorimetermessungen kann davon ausgegangen werden, dass sich tatsächlich sehr viel mehr Tritium im Material befindet als messbar direkt an der Oberfläche. Dennoch zeigen die Werte, abgesehen vom CFK-Teil der Welle, die erwartete Tendenz:

- Je niedriger der Tritiumpartialdruck, desto geringer die Oberflächenkontamination.
- Edelstahl zeigt eine höhere Kontamination als Aluminium.
- Farben und Lacke binden Tritium effizient (hohe Oberflächenkontamination).

4.6.1.2. Bestimmung des Inventars von Pumpenteilen mittels Kalorimeter

Mit Hilfe eines Kalorimeters kann die Menge an Tritium bestimmt werden, welche entweder gasförmig (eingeschlossen in einem metallischen Probenahmezylinder) oder als Kontamination eines Teils vorliegt. Dazu wird die durch den Zerfall entstehende Wärmemenge bestimmt, welche dann als Maß für die Menge an Tritium dient.

Nach der Demontage der TMP wurden insgesamt fünf verschiedene Proben genommen. Ihr Inventar sollte mit Hilfe eines im TLK verfügbaren Kalorimeters bestimmt werden. Aufgrund von geometrischen Beschränkungen durch das Kalorimeter konnten nur Probenstücke mit einer maximalen Höhe von ca. 10 cm und einem Durchmesser von ca. 5 cm untersucht werden. Dazu eignen sich besonders die in der TMP benutzten Elastomer-O-Ringdichtungen, sowie Kabelproben aus dem Inneren der TMP. Zusätzlich wurden am Rotor mehrere Rotorflügel abgetrennt und untersucht. Teile des Gehäuses, der Welle oder des Magnetlagers konnten aufgrund deren Abmessungen nicht kalorimetrisch untersucht werden. Ein Abtrennen kleinerer Teile ist aufgrund der Beschränkungen beim Hantieren in einer Handschuhbox nicht möglich, da die Produktion kleinerer Partikel vermieden werden soll.

In Tabelle 4.6 sind die Ergebnisse der fünf untersuchten Proben zusammengefasst. Die Zuordnung über den jeweiligen Ursprung der Proben in der TMP gibt Abbildung 4.45.

Wie erwartet finden sich in den nichtmetallischen Proben (Elastomer-O-Ringe, Kabelisolation) deutlich höhere Aktivitätskonzentrationen als in der metallischen Probe (Rotor besteht aus Aluminium). Dies liegt begründet in der hohen Löslichkeit von Wasserstoff und Wasserstoffisotopen in Polymeren und Elastomeren.

Vergleicht man die Resultate der Messungen mit dem Kalorimeter mit den entsprechenden Wischtestproben, so erkennt man, dass per Wischtest nur ein kleiner Bruchteil der sich tatsächlich im zu untersuchenden Teil befindlichen Aktivität nachweisen lässt. So wird per Wischtest eine Oberflächenkontamination der gesamten inneren Oberflächen von ≈ 900 MBq bestimmt. Hingegen ist der niedrigste, per Kalorimeter bestimmte Wert für ein Einzelteil (Flügel) bereits fast eine Größenordnung höher, obwohl es sich dabei nur um einen Bruchteil des gesamten Materials handelt.

Obwohl die Bestimmung der Aktivitätskonzentration in Materialien mit Hilfe des Kalorimeters sehr viel eher die tatsächlichen Verhältnisse widerspiegelt, ist es nicht möglich alle Teile oder evtl. eine komplette Pumpe im Kalorimeter zu untersuchen. Dies liegt an den Beschränkungen der Abmessungen der zur Verfügung stehenden Kalorimeter.

Die ermittelten Werte spiegeln die Erfahrungen aus nahezu zwei Jahrzehnten Betrieb im Tritiumlabor wider. Metalle neigen zu einer deutlich geringeren Aufnahme von Tritium als Kunststoffe. So variieren die Werte der nichtmetallischen Proben maximal um einen Faktor ≈ 2 , wohingegen die metallische Probe des Aluminiumrotors eine Aktivitätskonzentration von etwa einem Faktor 10 weniger aufweist.

Während der Messungen fiel außerdem auf, dass nichtmetallische Proben in deutlich größerem Umfang zuvor absorbiertes Tritium wieder frei geben. Dies äußert sich in einem nicht stabilen Untergrund sowie in einer messbaren Kontamination des Kalorimeterbehälters, welcher nach jeder Messung wieder dekontaminiert werden musste.

Tabelle 4.6: Ergebnisse der Inventarbestimmung mittels Kalorimeter.

Die Tabelle fasst die Resultate der Kalorimetermessungen zusammen. Die Zuordnung der Proben zu einem Ort in der TMP gibt Abbildung 4.45. Aufgrund der geringen zeitlichen Abstände der Messungen wird auf eine Korrektur wegen des Zerfalls des Tritiums verzichtet. Die Probengewichte wurden mit Hilfe einer Waage des Herstellers Satorius, Typ „M-power“ (max. 3100 g, d = 0,01 g) bestimmt.

Probe	Probengewicht (g)	Aktivität (GBq)	Tritiummenge (μg)	MBq/g	Datum Inventarbestimmung
O-Ring 1	43,24	15,50	43,26	359	03.12.2012
O-Ring 2	39,25	7,77	22,26	198	14.01.2013
O-Ring 3	22,78	9,25	26,12	406	25.01.2013
Kabel	33,84	11,50	32,63	339	20.01.2013
Flügel	247,46	5,92	16,1	24	14.12.2012

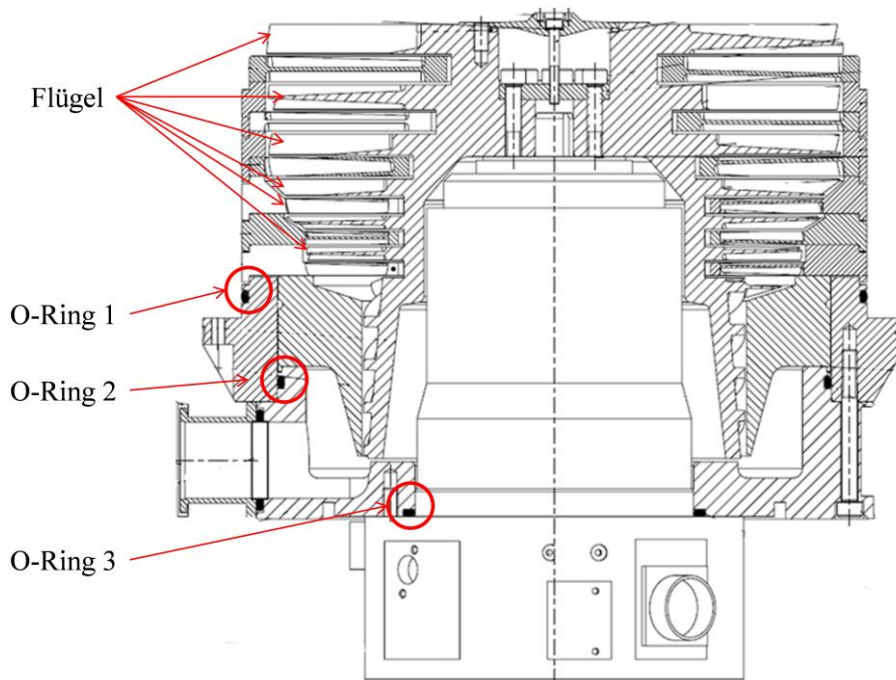


Abbildung 4.45: Zuordnung der kalorimetrisch untersuchten Proben zur Position in der TMP.

Die Grafik zeigt in einem Schnitt durch eine MAG W2800 [Ode12] die Lage der verwendeten Proben in der zusammengebauten TMP. Die Kabelproben wurden dem Inneren der Magnetlagerkartusche entnommen. Die Proben der Rotorflügel setzen sich aus Stelen zusammen, welche verteilt über den ganzen Rotor genommen wurden (erste bis sechste Stufe des Rotors).

4.7. Bewertung der Ergebnisse

Basierend auf den in Kapitel 4.1 genannten Anforderungen wurde das in Kapitel 4.3 vorgestellte Testexperiment TriToP entwickelt, aufgebaut und betrieben. Das Verhalten der Turbomolekularpumpe unter KATRIN-relevanten Betriebsparametern mit Tritiumatmosphäre wurde während einer 400-tägigen Laufzeit bei einem integralen Tritiumdurchsatz von insgesamt ca. 1,1 kg untersucht. Basierend auf diesen Erfahrungen können die im Folgenden dargelegten Aussagen gemacht und Schlussfolgerungen gezogen werden.

Es wurden systematische Veränderungen in der Zusammensetzung des zirkulierenden Gasinventars beobachtet. So konnte unter anderem die Entstehung von (tritiertem) Methan, CO und CO₂ beobachtet werden. Diese Spezies entstehen durch Reaktionen an Edelstahloberflächen des Primärsystems. Die Bildung von tritiertem Wasser konnte ebenfalls beobachtet werden. Dieses resultiert aus Austauschreaktionen von gasförmigem Tritium mit der Restfeuchtigkeit im Primärsystem. Diese Art von Veränderungen der Gaszusammensetzung konnten ebenfalls in [Fis11] mit einer unabhängigen Methode (Laser-Raman) bei der Zirkulation von Tritium in einem anderen Aufbau („Loopino“) gemessen werden. Über diese Verunreinigungen hinaus wurden, in Abhängigkeit von der vorangegangenen Verfahrensweise beim Betrieb des TriToP-Experiments, weitere Spezies im Massenspektrum ausgemacht. So konnten nach Stillstandsphasen eindeutige Hinweise darauf gefunden werden, dass Tritium mit nichtmetallischen Oberflächen

(Epoxidharz, Elastomerdichtungen, Kabelisolation u.a.) in der TMP reagiert und dass dabei eine signifikante Menge an nicht näher bestimmbar Kohlenwasserstoffen entsteht.

Bei TriToP entfällt eine Reinigung des Gases bei jedem Umlauf durch einen Permeator (Silber-Palladium-Membranfilter). Dadurch werden Verunreinigungen nicht abgetrennt und können sich über die Laufzeit einer Messreihe im Gasvolumen anreichern. Bei KATRIN wird hingegen ein Permeator bei jedem Umlauf das zirkulierende Gas reinigen. Somit werden nichtwasserstoffartige Verunreinigungen (alle Spezies außer H_2 , D_2 , T_2 , HD, HT, DT) aus dem Gasstrom entfernt und als Abgas abgeführt. TriToP-artige Verunreinigungen des Gasstromes stellen damit für KATRIN kein direktes Problem dar. Es muss jedoch beachtet werden, dass durch die Menge der anfallenden Verunreinigungen die Belastung der TLK-Infrastruktur (CAPER und ISS) gegenüber vorherigen Annahmen [KAT04] stark zunehmen wird. Wird 1 % des im *Inner Loop* zirkulierenden Gases zur Aufrechterhaltung einer hohen Tritiumreinheit von $\epsilon_T > 95$ % kontinuierlich abgeführt, so führt das zu einem maximalen Leerungsintervall des ersten Abgasbehälters (TBN83100, Anhang L) im *Inner Loop* von ≈ 30 Stunden in den zweiten Abgasbehälter (TBN83200, Anhang L). TBN83200 muss, unter der Annahme dass es keine weiteren Beiträge zum Gesamtdruck außer dem Gasstrom aus dem *Inner Loop* gibt, spätestens nach ≈ 14 Tagen geleert werden. Leeren bedeutet, dass das im Abgasbehälter gesammelte Gas (maximal $22,51 \approx 1$ mol) an die CAPER-Anlage abgegeben wird. CAPER prozessiert diese Gasmenge innerhalb von etwa 1,5 Arbeitstage. Das durch die CAPER-Anlage gereinigte Gas wird dann an die Isotopentrennung (ISS) abgegeben, welche den Q_2 -Abgasstrom aus CAPER in die Isotope H_2 , D_2 und T_2 trennt und wieder für Experimente zur Verfügung stellt. Zum Trennen der Isotope werden für eine Gasmenge von ≈ 20 l (bei Normalbedingungen) etwa zwei Tage benötigt (inklusive Vor- und Nacharbeiten). Da die beiden Prozesse nacheinander folgen, ergeben sich so pro Reinigungsvorgang zwei Arbeitstage für die Reinigung. Die TriToP-Resultate legen nahe, dass zur Aufrechterhaltung von $\epsilon_T > 95$ % mehr als 1 % des zirkulierenden Gasstromes im *Inner Loop* abgeführt werden muss. Der genaue Wert hängt stark von der Entwicklung der Gaszusammensetzung im KATRIN *Inner Loop* ab. Als realistisch werden, basierend auf den TriToP-Ergebnissen, 2 – 3 % erachtet. Dies führt dazu, dass die CAPER-Anlage ungefähr 8-mal pro Monat für das KATRIN-Experiment Gase trennen muss. Gleiches gilt für die Isotopenseparation. Diese Betrachtung beinhaltet noch nicht die Gasmenge, welche zusätzlich im *Outer Loop* von KATRIN entsteht und ebenfalls in der CAPER-Anlage sowie der ISS prozessiert werden muss. Zu beachten ist, dass durch den regulären Betrieb⁷ sowie Wartung und Instandhaltung der CAPER- und ISS Anlagen diese nicht uneingeschränkt für KATRIN zur Verfügung stehen werden.

Neben der Verunreinigung des Tritiums durch Wasserdampf, CO, CO₂, Methan und anderen Kohlenwasserstoffen trug ein über die Laufzeit einer Messreihe beobachteter, stetig wachsender Anteil von Wasserstoff (H_2) zu einer weiteren Verunreinigung des Gases bei. H_2 hat seinen Ursprung hauptsächlich in Edelstahl, aus welchem er diffundieren kann. Dabei findet eine Austauschreaktion statt, bei welcher Tritium in den Edelstahl diffundiert und dort Wasserstoff ersetzt. Dieser geht aufgrund von Konzentrationsunterschieden in das Gasvolumen des Primärsystems über und „verdünnt“ damit den

⁷ Die CAPER-Anlage prozessiert sämtliche, im Labor anfallenden titiierten Abgase (z.B. analytische Systeme).

Tritiumgehalt. Dies führt zu einem beständigen Abfall des Tritiumdurchsatzes pro Tag in TriToP über die gesamte Dauer einer jeweiligen Messreihe.

Die Verunreinigung des Gasstromes durch Wasserstoff kann nicht durch einen Permeator in KATRIN entfernt werden, da dieser für Wasserstoff (H) ebenso durchlässig ist wie für Tritium (T). Dadurch kommt es zu einem steten Abfall der Tritiumreinheit. Dies kann nur dadurch kompensiert werden, dass neben den eigentlichen Verunreinigungen ein weiterer Teil des Gasstroms entnommen und durch Tritiumgas mit möglichst hoher Reinheit ersetzt wird.

Als wichtigstes Fazit aus dem Betrieb von TriToP kann festgehalten werden, dass sich eine Einschränkung in der Funktion der TMP nicht beobachten ließ. Ein Betrieb war uneingeschränkt und ohne Fehlermeldung während der gesamten Betriebszeit von TriToP möglich. Um dennoch eventuelle Alterungserscheinungen bereits vor dem Versagen der TMP zu entdecken, wurde diese im Tritiumlabor in einer gesonderten Handschuhbox zusammen mit Spezialisten des Herstellers demontiert und visuell untersucht. Dabei konnten keine Anzeichen für einen bald bevorstehenden Ausfall der TMP gefunden werden. Es wurde beispielsweise die Kabelisolation auf Versprödung und einen damit eventuell bevorstehenden Kurzschluss hin untersucht sowie die Vergussmasse der Lager und Antriebsspulen auf eventuelle farbliche Veränderungen und Versprödungen. Basierend auf Erfahrungen aus über 15 Jahren Tritiumbetrieb am TLK kann aufgrund des für die Betriebsdauer normalen Zustandes der TMP davon ausgegangen werden, dass ein Erreichen der üblichen Lebensdauer problemlos möglich sein wird.

Im Rahmen der Demontage wurden schließlich von verschiedenen Stellen der TMP kleinere Probenstücke entnommen, welche anschließend kalorimetrisch untersucht wurden. Die dabei ermittelten Werte unterstützen die Erfahrungswerte im Tritiumlabor, dass Polymere in besonderem Maße Tritium absorbieren. Die Neigung zur Absorption von Tritium in Metallen liegt nach den gefundenen Ergebnissen um einen Faktor ≈ 10 unter den Werten für Polymere. Führt man eine Extrapolation der Aktivität aufgrund der wenigen, kalorimetrisch ermittelten Werte auf die gesamte Pumpe durch, so erhält man ein Gesamtinventar pro Pumpe des Typs Leybold MAG W2800 von $\approx 1 - 30 \text{ Ci}$ ($\approx 4 \cdot 10^{10} - 10^{12} \text{ Bq}$) nach einem Jahr KATRIN-Betrieb. Dies stellt für eine Entsorgung der Pumpe am Ende deren Lebensdauer oder bei einem zukünftigen Rückbau von KATRIN erhöhte Anforderungen an die Sicherheitsvorkehrungen während der Demontage. Diese sollte unbedingt bei einer geschlossenen zweiten Hülle (Handschuhbox) geschehen. Es sollte zusätzlich schon in der Aufbauphase vorgesehen werden, die TMP noch vor dem Öffnen der zweiten Hülle in einen separaten Container zu verbringen, um so das durch Tritium bestehende Gefahrenpotential deutlich zu reduzieren.

Daneben sollten die TMPs vor absehbaren Stillstandsphasen mit einem Inertgas gespült und anschließend geflutet werden (Argon, Stickstoff). Dies verhindert möglicherweise das Entstehen der nach TriToP-Stillstandsphasen beobachteten Kohlenwasserstoffe an nichtmetallischen Oberflächen in der TMP. Das Abtrennen der Schutzatmosphäre der TMPs ist mit Hilfe des *Inner Loop* Permeators anschließend problemlos möglich. Auf ein Spülen mit Wasserstoff (H_2) sollte verzichtet werden, da dies ein eingestelltes Isotopengleichgewicht (Permeation von Tritium in metallische Teile der TMP und Wasserstoff aus Edelstahloberflächen heraus) in der Pumpe stören würde.

5. Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen des **Karlsruhe Tritium Neutrino Experiments** (KATRIN). Das Ziel von KATRIN ist die Bestimmung der Masse des Anti-Elektronneutrinos $\bar{\nu}_e$ mit einer Sensitivität von $0,2 \text{ eV}/c^2$ (nach drei Jahren Messzeit, 90 % C.L.). KATRIN untersucht dazu spektroskopisch das Elektronenspektrum des Tritium- β -Zerfalls nahe am kinematischen Endpunkt von 18,6 keV. KATRIN benutzt hierzu eine fensterlose, gasförmige Tritiumquelle hoher Aktivität ($1,1 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$) und ein hochauflösendes elektro-statisches Filter mit einer Energieauflösung von $\Delta E = 0,93 \text{ eV}$ bei $E = 18,6 \text{ keV}$ [Bab12].

Zum erfolgreichen Betrieb und der Messung der Masse des $\bar{\nu}_e$ benötigt das KATRIN-Experiment zu jeder Zeit eine präzise Kenntnis über die momentane Aktivität der gasförmigen Tritiumquelle WGTS. Die Überwachung der β -Zerfalls-Aktivität soll mit Hilfe von Röntgendetektoren erfolgen. Aus dem Tritium- β -Zerfall stammende Elektronen treffen dabei an der dem Spektrometer abgewandten Seite der WGTS auf eine massive Platte („*Rear Wall*“) und lösen dort Röntgenbremsstrahlung aus. Die Intensität der Röntgenstrahlung ist ein direktes Maß für die Aktivität der gasförmigen Quelle.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Testexperiment (TriReX – **Tritium Rear Wall Experiment**) entwickelt, aufgebaut und betrieben, mit welchem in einem ersten Schritt die Machbarkeit der Messung der Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle mit Hilfe der BIXS-Methode (**beta induced X-ray spectroscopy**) demonstriert wurde. Zum ersten Mal kam hierzu ein hochauflösender Si-Driftdetektor zum Nachweis der Röntgenbremsstrahlung zum Einsatz. Bei der Verwendung eines BIXS-Systems bei KATRIN kommt es darauf an, dass auch kleine Änderungen in der Quellaktivität (10^{-3} -Niveau) innerhalb eines Zeitraumes $t_{\text{mess}} < 100$ Sekunden nachgewiesen werden können. Aus diesem Grund wurde der TriReX-Aufbau dahingehend optimiert, um definiert und reproduzierbar Aktivitätsänderungen auf einem 10^{-3} Niveau erzeugen zu können. Es wurden erfolgreich Messreihen durchgeführt, in welchen die Eignung der BIXS-Methode zum Nachweis von Aktivitätsschwankungen einer gasförmigen Tritiumquelle auf dem 10^{-3} -Niveau demonstriert wurde. Eine Limitierung der Zeitauflösung Δt durch die herstellerseitige Datenerfassungshardware des Detektors auf $\Delta t \approx 1 \text{ s}$ verhindert momentan noch den Nachweis von 10^{-3} Schwankungen in $t_{\text{mess}} < 100 \text{ s}$. Für den Einsatz eines Röntgendetektorsystems bei KATRIN wird eine alternative Elektronik zum Einsatz kommen, deren Eignung derzeit im Rahmen von [Röl14] untersucht wird.

Neben der Überwachung der Quellaktivität und –stabilität wurde mit Hilfe von TriReX das Permeationsverhalten von Tritium durch ein goldbeschichtetes Be-Fenster untersucht. Dieses dient später bei KATRIN als Schutzfenster für die Röntgendetektoren. Es konnten in einem Zeitraum von zwei Jahren im Rahmen der experimentellen Genauigkeiten keine Anzeichen für eine Permeation festgestellt werden.

Eine dritte Fragestellung an den TriReX-Aufbau betrifft die Adsorption von Tritium auf Gold. Die Adsorption konnte mit Hilfe des TriReX-Aufbaus nicht gemessen werden, da es aufgrund von geometrischen Beschränkungen (Abbildung 3.14) nicht möglich war, alleine auf die Menge an adsorbiertem Tritium auf Gold zu messen. Im Sichtbereich des Detektors befand sich immer auch ein signifikanter Anteil von Edelstahloberflächen. Deren Betrag zum Signal ließ sich nicht rechnerisch korrigieren. Basierend auf den mit dem TriReX-Aufbau gemachten Erfahrungen wurde ein optimierter Aufbau zur Messung der Tritiumadsorption auf Oberflächen (Triade, *Tritium Adsorption Desorption Experiment*) vom Autor dieser Arbeit mit konzipiert und mit aufgebaut. Nähere Informationen dazu finden sich in [Sch13] und [Röl14].

Zusammenfassend kann, basierend auf den Erfahrungen aus etwa zwei Jahren Betrieb des TriReX-Aufbaus, der Schluss gezogen werden, dass eine Überwachung der Aktivität einer gasförmigen Tritiumquelle mittels BIXS-Methode unter KATRIN-relevanten Bedingungen machbar ist. Von experimenteller Seite kann, auf der Basis von begleitenden Simulationen [Röl13], die β -Aktivität im späteren Betrieb bei KATRIN in $t_{\text{mess}} < 100$ Sekunden nachgewiesen werden.

Um das kontinuierlich in die WGTS eingelassene, gasförmige Tritium abzupumpen, kommen bei KATRIN magnetisch gelagerte Turbomolekularpumpen (TMP) vom Typ „Oerlikon Leybold MAG W2800“ zum Einsatz. Im Quellbereich sind insgesamt 16 Einheiten dieses Typs entlang des Strahlrohres montiert. Ein Ausfall von einer oder mehrerer dieser TMPs hätte eine signifikante Verzögerung der KATRIN-Messungen zur Folge. Daneben müssen für die Wartung und den von Austausch hochkontaminierten TMPs besondere Sicherheitsvorkehrungen getroffen werden. Um daher die Tauglichkeit dieser TMPs für den Einsatz mit Tritium als Prozessgas vorab zu untersuchen und möglicherweise entstehende Effekte auf die Zusammensetzung des Prozessgases abschätzen zu können, wurde das Testexperiment TriToP (**T**ritium **T**est of **P**umps) im Rahmen dieser Arbeit entwickelt, aufgebaut und betrieben.

In TriToP wurde eine TMP des Typs „Oerlikon Leybold MAG W2800“ im Dauerbetrieb unter KATRIN-ähnlichen Bedingungen betrieben. Die Zusammensetzung des im geschlossenen TriToP-Kreislauf zirkulierenden Tritiumgases wurde dabei in-line mittels Massenspektrometrie ermittelt. Es wurden in jeder Tritiummessreihe deutliche Verunreinigungen durch (tritiierte) Methane, (tritiierten) Wasserdampf, CO und CO₂ festgestellt. Daneben stellt der Isotopenaustausch von Wasserstoff (H, H₂) und Tritium an Edelstahloberflächen einen signifikanten Einflussfaktor auf die Gaszusammensetzung dar. Betrachtet man die nachgewiesene Menge an Verunreinigungen und den damit einhergehenden schnellen Abfall in der Tritiumreinheit, so kann es im KATRIN-Betrieb notwendig werden, mehr Gas als bisher angenommen abzuführen (momentan ≈ 1 % des Gesamtgastromes von 100 sccm). Dies resultiert in einer erhöhten Belastung der TLK-Infrastruktursysteme (CAPER, ISS). So kann es notwendig werden, dass die Gewerke CAPER und ISS mehrmals pro Woche (2 – 3 mal) hochtritiierte Abgase von KATRIN prozessieren müssen.

Zur abschließenden Begutachtung des Zustandes der in TriToP eingesetzten TMP wurde diese im Rahmen der vorliegenden Arbeit im Tritiumlabor Karlsruhe komplett demonstriert und einer eingehenden visuellen Inspektion unterzogen. Es konnten dabei keine

Unregelmäßigkeiten im Zustand der TMP gefunden werden, die TMP befand sich in einem einwandfreien Gesamtzustand. Durch die Bestimmung der Oberflächenkontamination an Teilen des Schöpfraumes der TMP und durch eine kalorimetrische Untersuchung verschiedener TMP-Teile konnte das Gesamtinventar der eingesetzten TMP auf einen Wert zwischen etwa 1 - 30 Ci eingegrenzt werden. Dieser Wertebereich kann auch als Richtgröße für das Inventar einer baugleichen TMP beim späteren Einsatz in KATRIN angesehen werden.

Aus den Ergebnissen von TriToP kann, basierend auf den Erfahrungen des Tritiumlabors Karlsruhe, der Schluss gezogen werden, dass die vorgesehenen TMPs der KATRIN Quell- und Transportsektion die vorgesehene Einsatzdauer ohne eine weitere Einschränkung der vom Hersteller spezifizierten mittleren Lebensdauer (MTBF) durch den Betrieb mit Tritium überstehen werden. Die entstehenden Verunreinigungen des gasförmigen Inventars, welche in den einzelnen TriToP-Messreihen beobachtet wurden, sowie die Verdünnung des im *Inner Loop* zirkulierenden Tritiums durch Wasserstoff aus Edelstahloberflächen stellt für KATRIN direkt kein Problem dar. Durch das kontinuierliche Abführen eines Teils des Inventars ($\approx 1 - 3\%$ des Gasstromes) und Auffüllen durch reines Tritium kann die benötigte Tritiumreinheit $\epsilon_T > 95\%$ aufrechterhalten werden. Für die Infrastruktursysteme des Tritiumlabors (CAPER, ISS) stellt dies jedoch eine deutlich erhöhte Belastung dar.

Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass im Rahmen dieser experimentell fokussierten Arbeit zwei wesentliche tritiumtechnologische Aspekte für den KATRIN-Betrieb erfolgreich gelöst worden sind. Durch die Qualifikation von TMPs des Typs „Oerlikon Leybold MAG W2800“ für eine Tritiumzirkulation von ≈ 1 kg/Jahr sowie durch den Nachweis der Eignung der BIXS-Methode als hochpräzises Instrument zur Messung der β -Aktivität von Tritiumgasgemischen sind grundlegende Fragestellungen für den Betrieb der fensterlosen Quelle WGTS geklärt. Dies wird es dem KATRIN-Experiment ermöglichen, die Neutrinomassenskala durch die Spektroskopie des Tritium- β -Zerfalls mit bisher unerreichter Präzision zu messen und so einen wichtigen Beitrag zur Astroteilchenphysik zu leisten.

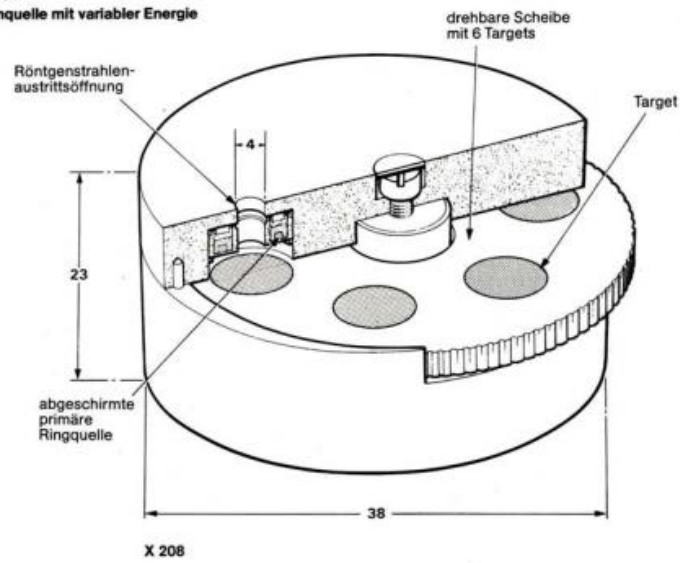
Anhang

A. Beschreibung des Kalibrierpräparates

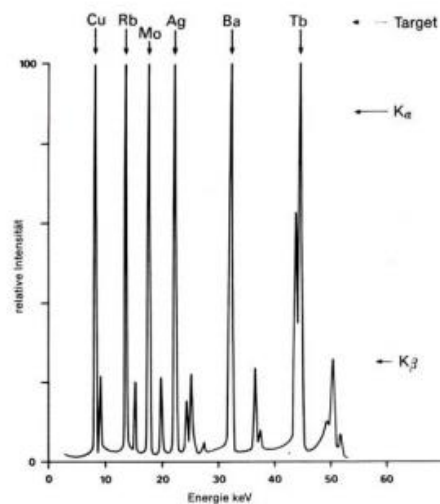
Röntgenstrahlenquelle

Americium-241

Röntgenstrahlenquelle mit variabler Energie



Energiespektrum der verschiedenen Targets einer Americium-241-Quelle



Die K_{α} -Röntgenstrahlen-Peakhöhen sind hier auf die gleiche relative Intensität normiert.

Abmessungen in mm

**Sekundärquellen,
durch γ - und Röntgenstrahlen angeregt**
Americium-241
Röntgenstrahlenquelle mit variabler Energie

Die variable Röntgenstrahlenquelle eignet sich zur Kalibrierung von Röntgen- und Gammastrahlenspektrometern. Außerdem kann sie zur Demonstration des Röntgenfluoreszenzeffektes verwendet werden; Versuchsbeschreibungen liegen jeder Quelle bei.

Die Quellen/Target-Einheit besteht aus einer ^{241}Am -Primärquelle und 6 inaktiven Röntgenfluoreszenz-Targets in einem scheibenförmigen Edelstahlhalter.

Die Primärquelle (10 mCi; Toleranz $-0, +25\%$) enthält ^{241}Am -Keramik, die nach hinten mit Wolfram abgeschirmt und in eine verschweißte Edelstahlfassung dicht eingeschlossen ist. Diese Quelle umschließt ringförmig die Röntgenstrahlenaustrittsöffnung. Die Targets sind auf einer drehbaren Scheibe angeordnet und können wahlweise vor die Quelle geschaltet werden, so daß die für das gewählte Target charakteristische Röntgenstrahlung aus der Öffnung ($\varnothing 4\text{ mm}$) austritt.

Jede Quelle wird in eine Holzkassette verpackt geliefert.

Röntgenstrahlenquellen
Röntgenstrahlenemission:

Target	Energie (keV)*		Ausbeute** Photonen/s pro Steradian
	K_{α}	K_{β}	
Cu	8,04	8,91	$2,5 \times 10^3$
Rb	13,37	14,97	$8,8 \times 10^3$
Mo	17,44	19,63	$2,43 \times 10^4$
Ag	22,10	24,99	$3,85 \times 10^4$
Ba	32,06	36,55	$4,65 \times 10^4$
Tb	44,23	50,65	$7,6 \times 10^4$

* Energien (gewogenes Mittel)

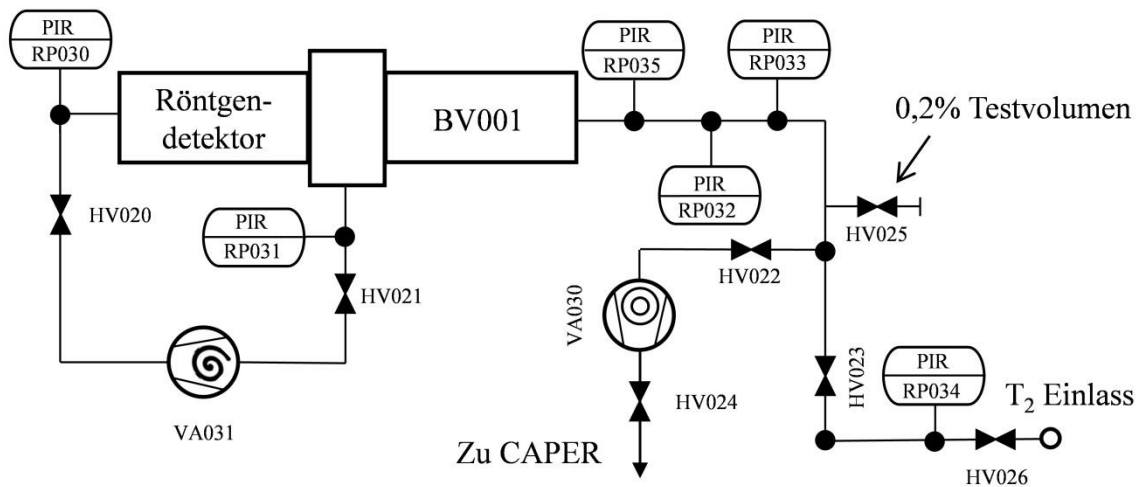
** Die Photonenemission ist stark kollimiert, so daß sie auf ca. 0,5 Steradian begrenzt ist.


B. Verwendete Fluoreszenzen zur Kalibrierung

Tabelle der gemessenen Fluoreszenzlinien für die Energiekalibrierung nach [Röl11], mit Energien nach [XDB09].

Material	Spektrum	Linie	Zentrum (Kanal)	FWHM (Kanal)	Energie (eV)
Rb	1	K_{α}	$5718,87 \pm 0,418$	$108,29 \pm 0,86$	13374,9
Rb	1	$K_{\beta_{1,3}}$	$6397,2 \pm 1,64$	$107,85 \pm 2,58$	14958,1
Rb	1	K_{β_2}	$6495 \pm 19,9$	$127,98 \pm 28,37$	15185
Zr	1	K_{α}	$6729,56 \pm 0,778$	$119,74 \pm 1,71$	15746,3
Zr	2	K_{α}	$6730,3 \pm 1,23$	$126,45 \pm 2,76$	15746,3
Mo	2	K_{α}	$7456,32 \pm 0,203$	$134,19 \pm 0,41$	17443,4
Fe	2	K_{α}	$2738,9 \pm 1,33$	$112,44 \pm 3,43$	6399,5

C. R&I Schema TriReX nach Update



- PIR : *pressure indicating and recording*. Anzeige und Aufzeichnung der Druckwerte (Funktionsbeschreibung der Messstelle)
- RP : Drucksensor
- VA : Vakuomaggregat (Vakuumpumpe)
- BV : Behälter, Vakuum (Behälter/Rezipient ohne Überdruck)
- HV : Handventil

D. Messstellenliste TriReX

Bezeichnung	Messbereich	Beschreibung	Typ
RP030	$1,33 \cdot 10^{-1} - 1330$ mbar	Druckmessung Probenahmestelle	MKS 902
RP031	$1,33 \cdot 10^{-1} - 1330$ mbar	Druckmessung Zwischenflansch	MKS 902
RP032	$1,33 \cdot 10^{-1} - 1330$ mbar	Druckmessung BV001	MKS 902
RP033	$10^{-5} - 0,1$ mbar	Druckmessung BV001	MKS 626B
RP034	$1,33 \cdot 10^{-1} - 1330$ mbar	Druckmessung Probenahmestelle	MKS 902
RP035	$10^{-3} - 20$ mbar	Druckmessung BV001	MKS 627D
-	-	X-Ray Detektor	KETEK

E. Auszug Werkstoffzertifikat des TriReX-Rezipienten

2009- 203499

066042

COGNÉ ACCIAI SPECIALI S.p.A.
11100 AOSTA, VIA PARAVERA 16
TEL. 011 86.300.100 FAX 011 86.3296
C.A.B. 011 86.300.100 E.M.A. 011 86.343
VAT: IT02671030076 C.F. 02467490067
REG. IMP. A0093 - 7254 REA 5074

COGNÉ EDLSTAHL GmbH
OGA: DE01 4900010465
AOSTA, VIA PARAVERA 16 - ITALIA
QUALITÄTSTEILE
AUSSTELLER : 4002679 /10 (A04) ZEICHEN DES HERSTELLERWERKES : COGNÉ

COGNÉ
11100 AOSTA, VIA PARAVERA 16
TEL. 011 86.300.100 FAX 011 86.3296
C.A.B. 011 86.300.100 E.M.A. 011 86.343
VAT: IT02671030076 C.F. 02467490067
REG. IMP. A0093 - 7254 REA 5074

IGQ
INTEGRATED GROUP QUALITY
CERTIFIED

ISO 9001:2008
ISO 14001:2004
ISO 13127:2007

Eingangslieferschein: 756336

2009- 203499

066042

(A06) BESTELLER :
(A07) KUNDENBESTELLN:
(A01) HERSTELLERWERK :
(A01) HERSTELLERWERK :
(A03) AUSSTELLER :
(A08) WERKAUFTRAGNR : 4002679 /10 (A04) ZEICHEN DES HERSTELLERWERKES : COGNÉ

NORMBEZEICHNUNG : ANFORDERUNGEN : AD 2000
(B01) ERZEUGNIS : RUND 150K11
(B04) LIEFERZUSTAND : RS LOESUNGSSTUECK
(B11) MASSE (MM) : (B12) LANGE (MM) : 06000 /06200
(B02) STRIKSORTE : WN.1.4401/4404 IMCO316L MARKENBEZEICHNUNG : F316L 1.4404
(B08) SCHWELZE-NR. : 872590 (B07) LOS-NR. : 559510
(B06) KENNZEICHNUNG : IMCO 316/316L KURZZEICH. F. SCHWELZE-NR 951

GEMAESS NACE NR 01-75 (05) ISO 15156/NACE MR 01.03
GEMAESS EN 10272 -2000/ DIN 17440 ADW2
CHEMISCHE ZUSAMMENSETZUNG NACH ASTM A182/A182M-05, ASME SA479/SA479M-05
GEMAESS RICHTLINIEN PED 97/23/CE
GEMAESS SPECIFICATION NF A35-574/90, NUANCE 23 CND 17-11-C2
QUALITAETSSCHWELZE GEMAESS EN10088-3 (05)
GEMAESS EN10272/00
GEMAESS EN 10222/5 2000

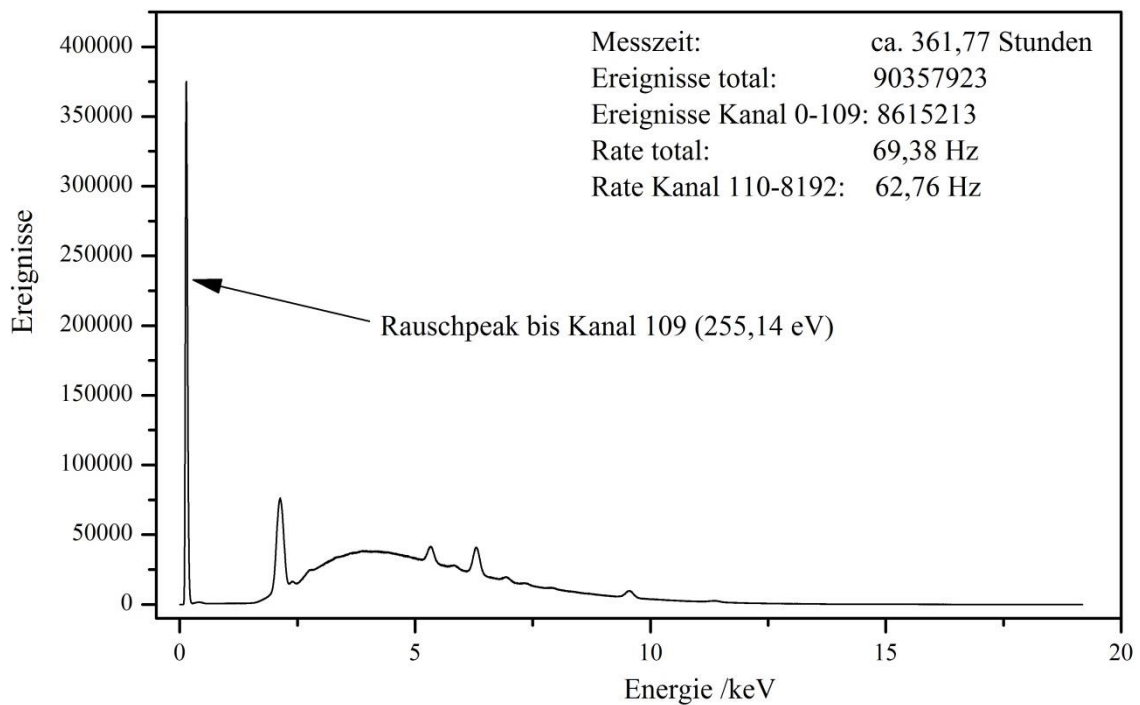
(C71) CHEMISCHE ZUSAMMENSETZUNG - SCHWELZE ANALYSE NACH ASTM E1019-E1086-E415
Ref. 020000304015 83.000,000
ELEMENTE C Si Mn P S N Cu
ERREICHT 0.017 0.330 1.750 0.034 0.030 0.051 16.900 10.250 0.330
ELEMENTE Co
ERREICHT 0.080

HARTEPRUFUNG IM LIEFERZUSTAND
Ref. 020000304399
VORSCHRIFT 194.0 HARTEPRUFUNG HB
ERREICHT

VERSCHASZAEHIGKEIT IM LIEFERZUSTAND
Ref. 020000304399
VORSCHRIFT 5.164,000 (C02) PROBERICHTUNG: L
ERREICHT EN 10045
KV 20,0000
(C40) PROBERFORM
(C03) PROFILTEMPERATUR °C 285,00 285,00 286,00 286,00 288,00 288,00 287,00 284,00 283,00 284,00
MASSEINHEIT 285,00 280,00 285,00 286,00 286,00 288,00 287,00 284,00 283,00 284,00
ERREICHT 281,00 287,00

2009- 201513 Stahl 14404-50 002 872590

F. Untergrundspektrum TriReX März 2013



Die Abbildung zeigt das in Kapitel 3, Abbildung 3.25 dargestellte BIXS-Spektrum inklusive dem (dort entfernten) Rauschpeak bis Kanal 109.

Aufgrund der hohen Ereignisrate im Peak sowie dessen geringer Breite (im Vergleich zu Fluoreszenzpeaks im Spektrum) kann davon ausgegangen werden, dass es sich tatsächlich um einen Teil der Rauschkante handelt. Normalerweise wird diese im Spektrum aufgrund der Einstellung des Thresholds nicht sichtbar. Eventuelle Drifts oder eine Alterung der Elektronik des Röntgendetektors können nicht ausgeschlossen werden, wodurch sich diese Parameter leicht verändern und damit die Rauschkante wieder teilweise sichtbar wird. Die Messung wird durch das Erscheinen eines Rauschpeaks jedoch nicht signifikant beeinflusst oder verändert.

G. Datenblatt TriToP-QMS-System



Gas

Analysis

WWW.MKSINST.COM

HPQ2/HPQ2S

HIGH PRESSURE COMPACT QUADRUPOLE PROCESS MONITORS WITHOUT DIFFERENTIAL PUMPING

The HPQ2 and HPQ2S represent the latest in high pressure, pump free, process RGA technology, with performance consistent with traditional RGA instrumentation. Although designed to meet the rigorous requirements of semiconductor processing, the HPQ2 and HPQ2S are ideal for other process monitoring applications because they do not require a support pumping package. The resulting system is less complex, with reduced installation requirements, offering a higher level of reliability at a substantially lower cost. In addition, the HPQ2S uses special gas-specific algorithms to compensate for sensitivity variations resulting from ion-molecule interactions that occur at higher pressures. These algorithms address the specific characteristics of species including water, oxygen, nitrogen, methane, helium, and hydrogen in argon.

Features & Benefits

- Compact quadrupole process monitors offer high pressure operation without the need for differential pumping
- Ideal for a range of vacuum process monitoring applications including the detection of contaminants and outgassing
- Stable, rugged, reliable design
- Optimized for very high intrinsic sensitivity
- Includes Process Eye 2000 software for
 - Recipe based operation
 - Advanced tracking of various process phases
 - User configurable, intelligent alarms
 - Advanced data presentation (i.e. simultaneous bar chart/trend screen displays)
 - High level tool integration

Applications

- With their ability to operate at the pressures encountered in the degas, pre-clean, buffer, transfer, and PVD chambers on semiconductor process tools, HPQ2 and HPQ2S are able to gather vital information throughout a process which can be used to speed-up PM recovery and improve yield. For other types of process tools, the HPQ2 and HPQ2S monitor vacuum quality, highlighting issues from outgassing to contamination. The HPQ2 and HPQ2S help optimize vacuum quality with
- Helium leak hunting
 - Pump performance monitoring (e.g., hydrogen levels from cryopumps)
 - Residual gas monitoring, including air and water
 - Contaminants monitoring, including hydrocarbons
 - Process gas purity



The analyzer is extremely compact with an insertion length of less than 1.0" into the process chamber, and the RGA electronics are housed in a compact control module, which mounts directly onto the analyzer. This configuration is particularly attractive in applications where space is at a premium, such as clean room areas in semiconductor fabs.

The maintenance-conscious design of the HPQ2 and HPQ2S incorporates twin filaments, where the second "back-up" filament enables continued operation in the event of a filament failure. The user-serviceable HPQ2 and HPQ2S analyzer designs allow the ion source to be removed and dismantled for cleaning.

Process Eye 2000 Control Platform

The HPQ2 and HPQ2S analyzers use Process Eye 2000, a highly flexible, 32-bit modular application operating under Microsoft® Windows NT® 4.0, 95, 98, Millennium or 2000. Designed with a client/server structure, Process Eye 2000 incorporates TCP/IP protocol for full network compatibility.

Process Eye 2000 uses recipes to specify the way in which the instrument scans, displays data, and responds to the data acquired. Recipes are user configurable using the Recipe Wizard and are ideal for monitoring repetitive processes and analyses. In addition, Process Eye 2000 provides Live History for quick on-line review of data trend events. Associated bar chart spectra and recently captured spectra are stored in a data buffer for easy review. The recipes can be linked together to address different monitoring conditions or to facilitate automatic calibration (using pre-defined calibration recipes). The single button push (or external signal) initiation of a Process Eye 2000 recipe eliminates the need for highly skilled, full time operators. The flexibility of Process Eye 2000 allows recipes to be configured that will:

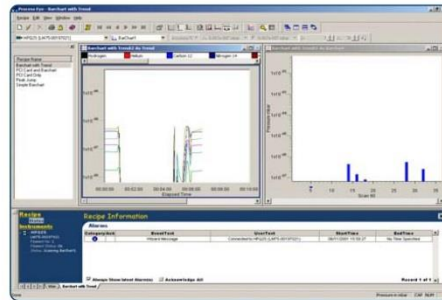
- Define data acquisition and data display parameters, along with any on-line data processing required to convert data into relevant units and information
- Display data in multiple, simultaneous "bar chart" and "data trend" formats, allowing the comprehensive and clear investigation of significant trend events
- Incorporate custom warnings and alarms, triggered or terminated when data highlights the fact that process conditions have deviated from normal conditions, or when specific events occur (e.g. valves opening/closing)
- Monitor and display other parameters as trends in relevant units (temperature, gas flow rate, power, pressure, etc.) which are linked into the HPQ2 and HPQ2S analyzers through their flexible analog and digital I/O



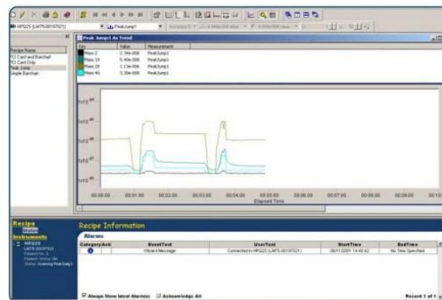
In addition, the Process Eye 2000 software platform allows the HPQ2 and HPQ2S analyzers to

- Monitor gas composition trends as well as other critical parameters (temperature, flow rate, etc.)
- Alert the operator to deviations from normal conditions using custom messages

The MKS, Spectra Products HPQ2 and HPQ2S can meet your high pressure process monitoring needs without the need for differential pumping systems.

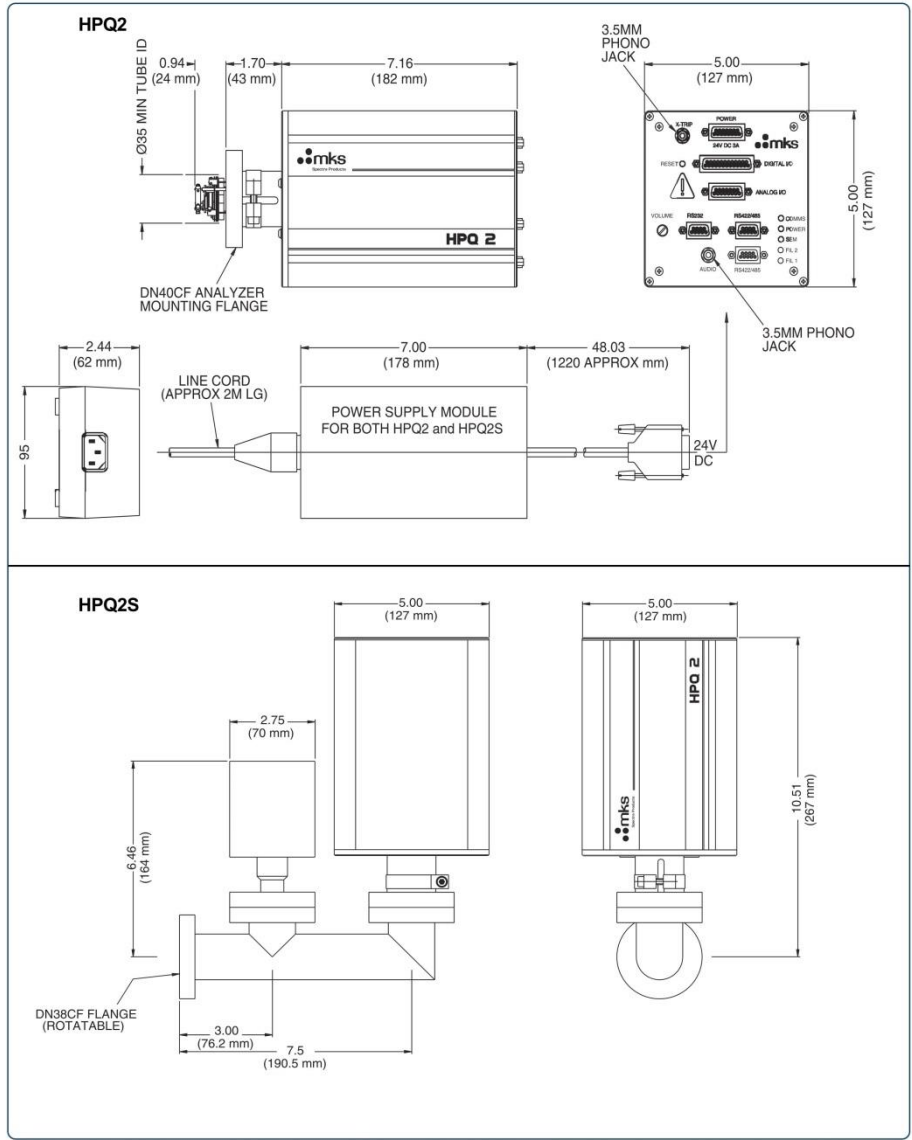


Simultaneous log bar chart/trend analysis display illustrating wide dynamic range scanning



Peak jump mode with associated trend display, highlighting variations in gas composition versus time

Dimensional Drawings



Note: Unless otherwise specified, dimensions are nominal values in inches (mm referenced).



Specifications and Ordering Information

Performance	
Mass Range	2-80 amu
Detector	Faraday cup
Maximum Recommended Operating Pressure	1 mTorr (1.3×10^{-3} mbar); up to 8 mTorr* (1.0×10^{-2} mbar) for HPQ2S - *Application dependent. Please consult the factory for details.
Maximum Permissible Operating Pressure	15 mTorr (will withstand 40 mTorr transient pressure bursts)
Minimum Detectable Partial Pressure	8×10^{-11} Torr (1.0×10^{-10} mbar)
Minimum Detectable Concentration	5ppm at 1.0×10^{-3} Torr (1.3×10^{-3} mbar)
Mass Alignment Stability	Better than +/- 0.1 amu over 8 hours under constant conditions
Resolution	1 amu at 10% peak height
Analyzer & Housing	
Bakeout Temperature	250°C, electronics removed
Mounting Flange	DN38CF (70 mm/2.75 inch OD) Conflat® flange
Insertion Length	1.0 inch (25mm)
Ion Source Sensitivity	5×10^{-5} A/Torr
Electron Energy	Set through Process Eye 2000 recipe
Emission Current	Set through Process Eye 2000 recipe
Filaments	Twin tungsten (optional ThO ₂ /Ir or Y ₂ O ₃ /Ir)
Housing	Application specific. Options include 2.75" CFF elbow, with custom side lengths or 2.75" CFF to KF-40 elbow, with custom lengths
Control Unit	
Electronics Module Weight	2.3 Kg
Power	24 VDC, 3A external supply (included)
Maximum Ambient Operating Temperature	35°C, 80% RH (non condensing)
LED Status Indication	Filament 1, filament 2, power & communications
I/O Capability	4 analog inputs (0-10 volt, 16 bit), 1 analog output (0-10 volt, 16 bit), 16 digital TTL I/O, 1 opto-isolated filament control input
I/O Capability (optional PC based)	Generic I/O card support for ISA slots, DTS300 I/O card support for PCI slots Modbus/GEM SECS support for some product configurations
Other Facilities	Leak check headset socket with audio adjustment, external filament trip socket, instrument reset
Software	Process Eye 2000 fully network compatible control platform operating under Microsoft® Windows® NT® 4.0, 98, Me, 2000* or XP* (*recommended)
Communication between PC and Analyzer	RS232C, 56K baud, 50ft [15m] maximum. RS422, 115000 baud, 1.2 Km (4000ft) maximum
Minimum PC Requirements	Pentium III 233 MHz, 64MB RAM, 6 GB disk drive. Multi-sensor installations may require higher specifications
Total Shipping Weight	20 lbs (9.0 Kg)

Please contact your local MKS office for price and availability information.



Global Headquarters

2 Tech Drive, Suite 201
Andover, MA 01810
Tel: 978.645.5500
Tel: 800.227.8766 (in U.S.A.)
Web: www.mksinst.com

MKS Spectra Products

70 Rio Robles
San Jose, CA 95134
Tel: (408) 750.0300

MKS Spectra Products

Cowley Way, Crewe, Cheshire
CW1 6AG, England
Tel: 44.127.025.0150

HPQ/HPQ2S - 1/08
© 2004 MKS Instruments, Inc.
All rights reserved.

Specifications are subject to change without notice.
Spectra™ and Process Eye 2000™ are registered trademarks of MKS Instruments, Inc., Andover, MA. Microsoft®, Windows®, and Windows NT® are registered trademarks of Microsoft Corporation, Seattle, WA. Conflat® is a registered trademark of Varian Vacuum Technologies.

H. Tabelle der Fragmentierungsmuster



RG APPLICATION
BULLETIN #208

SPECTRA REFERENCE

SPECTRAL DATA

SUBSTANCE	MASS NUMBER/PERCENTAGE OF MAJOR PEAK				
	1	2	3	4	5
Hydrogen	2/100	1/5			
Helium	4/100				
Methane	16/100	15/85	14/16	13/8	1/4
Ammonia	17/100	16/80	15/8	14/2	
Water	18/100	17/25	1/6	16/2	2/2
Neon	20/100	22/9			
Acetylene	26/100	25/20	13/5	54/5	27/3
Diborane	26/100	27/96	24/95	25/57	11/40
Vinyl Chloride	27/100	62/88	28/36	26/33	64/27
Nitrogen	28/100	14/7	29/1		
Carbon monoxide	28/100	16/10	12/5	29/1	
Ethylene	28/100	26/61	27/59	25/12	14/8
Ethane	28/100	27/33	30/26	26/23	29/21
Air	28/100	32/27	14/6	16/3	40/1
Propane	29/100	28/59	27/38	44/26	43/22
Acetaldehyde	29/100	44/45	43/27	42/9	26/9
Formic Acid	29/100	46/61	45/47	17/17	28/17
Nitric Acid	30/100	14/7	15/2	16/1	
Silane	30/100	31/80	29/31	28/28	32/8
Nitrogen Dioxide	30/100	46/37	16/22	14/9	
Methanol	31/100	32/66	29/64	28/6	18/2
Ethylene Glycol	31/100	33/28	15/18	29/17	43/7
Ethanol	31/100	45/34	27/24	29/23	46/17
Oxygen	32/100	16/11			
Hydrogen Sulfide	34/100	32/44	33/42	36/34	35/2
Argon	40/100	20/10			
Propene	41/100	39/73	42/69	27/38	40/29
Acetone	43/100	15/67	28/17	14/15	58/15
Butane	43/100	29/44	27/37	28/32	41/27
Methyl Ethyl Ketone	43/100	29/25	72/16	27/16	57/6
MP Oil	43/100	41/91	57/73	55/64	71/20
Acetic Acid	43/100	45/93	60/57	29/15	42/1
Turbopump Oil	43/100	57/88	41/76	55/73	71/52
Carbon Dioxide	44/100	28/11	16/19	12/6	45/1
Nitrous Oxide	44/100	30/31	14/13	28/11	16/5
Isopropyl Alcohol	45/100	43/16	27/16	29/10	41/17
Boron Trifluoride	49/100	48/28	68/5	11/5	19/3
DP Oil PPE	50/100	77/89	63/29	62/27	64/21
Nitrogen Trifluoride	52/100	33/40	71/31	14/9	19/8
Disilane	60/100	58/82	57/48	62/42	61/40
Diphosphine	62/100	64/70	63/59	65/26	66/2
Sulfur Dioxide	64/100	48/49	32/10	66/5	16/5
Fomblin	69/100	20/28	16/16	31/9	97/8
Trifluoromethane	69/100	51/91	31/49	50/42	12/4
Tetrafluoromethane	69/100	50/12	19/7	31/5	
Freon 13	69/100	85/15	50/14	31/9	35/7
Carbon Disulphide	76/100	32/21	44/17	78/9	38/6
Arsine	76/100	78/60	77/21	75/4	
Benzene	78/100	77/22	51/18	50/17	52/15
DP Oil DC705	78/100	76/83	39/73	43/59	91/32
Krypton	84/100	86/31	83/20	82/20	80/4
Freon 12	85/100	87/32	50/16	35/12	
Silicon Tetrafluoride	85/100	87/12	28/12	33/10	86/5
Toluene	91/100	92/69	65/16	51/10	63/9
Trichloroethylene	95/100	60/65	97/64	35/40	47/26

Freon11	101/100	103/60	35/16	66/15	47/12
Xenon	132/100	129/98	131/79	134/39	136/33

SUBSTANCE	RELATIVE IONIZATION	
	GAUGE SENSITIVITY Signal/Signal Nitrogen	
Acetone		3.6
Air		1.0
Ammonia		1.3
Argon		1.2
Benzene		5.9
Benzoic acid		5.5
Bromine		3.8
Butane		4.9
Carbon dioxide		1.4
Carbon disulfide		4.8
Carbon monoxide		1.05
Chlorobenzene		7.0
Chloroethone		4.0
Chloromethane		3.1
Cyclohexylene		6.4
Deuterium		0.35
Dichlorofloromethane		2.7
Dichloromethane		3.7
Dinitrobenzene		7.8
Ethane		2.6
Ethanol		3.6
Ethylene Oxide		2.5
Helium		0.14
Hexane		6.6
Hydrogen		0.44
Hydrogen chloride		1.6
Hydrogen fluoride		1.4
Hydrogen iodide		3.1
Hydrogen sulfide		2.2
Krypton		1.7
Lithium		1.9
Methane		1.6
Methanol		1.8
Neon		0.23
Nitrogen		1.0
Nitric oxide		1.2
Nitrous oxide		1.7
Oxygen		1.0
n-Pentone		6.0
Phenol		6.2
Phosphine		2.6
Propane		3.7
Silver perchlorate		3.6
Stannic iodide		6.7
Sulfur dioxide		2.1
Sulfur hexafluoride		2.3
Tetrachloromethone		6.0
Toluene		6.8
Trichloromethane		4.8
Trinitrobenzene		9.0
Water		1.0
Xenon		3.0
Xylene	7.8	

Die Tabelle gibt die Fragmentierungsmuster relativ zum Hauptpeak einer Gasspezies an. Die Interpretation der Massenspektren (Kapitel 4, Tabelle 4.1) beruht auf diesen Angaben. Die zweite Tabelle gibt die relativen Ionisationswahrscheinlichkeiten in Bezug auf Stickstoff an. Zur quantitativen Auswertung müssen diese gasartabhängigen Faktoren berücksichtigt werden.

I. Berechnung des Tritiumdurchsatzes in TriToP

Die in Kapitel 4.4 gezeigten Werte und Diagramme des Tritiumdurchsatzes pro Tag wurden wie folgt berechnet:

Direkt nach dem Befüllen von TriToP mit Tritium aus einem Probenahmezylinder wurde zur Bestimmung der anfänglichen Tritiumreinheit im TriToP-Pufferbehälter (BV001) ein Massenspektrum aufgenommen. Die jeweiligen Massenspektren sind in Kapitel 4.4 abgebildet („Tag 0“). Die Menge an Tritium wurde unter folgenden Annahmen berechnet:

- Peak bei $m/e = 3$ amu entspricht T
- Peak bei $m/e = 4$ amu entspricht HT
- Peak bei $m/e = 5$ amu entspricht DT
- Peak bei $m/e = 6$ amu entspricht T_2

Andere im Massenspektrum sichtbare Spezies (z.B. $m/e = 18$ amu) werden als nicht tritiiert betrachtet und fließen somit nicht in die Berechnung der anfänglichen Tritiummenge mit ein. Aus dem Verhältnis der Summe der Partialdrücke tritiierteter Spezies (voller Wert bei T und T_2 , halber Partialdruck bei HT und DT) zum Gesamtdruck (Summe über alle Partialdrücke) bestimmt sich der Anteil Tritium im Gasvolumen.

Als Berechnungsbeispiel soll der Anteil Tritium bei Start von Messreihe 5 berechnet werden. Die folgende Tabelle beinhaltet alle beim Start von Messreihe 5 nachgewiesenen Partialdrücke bzw. Spezies.

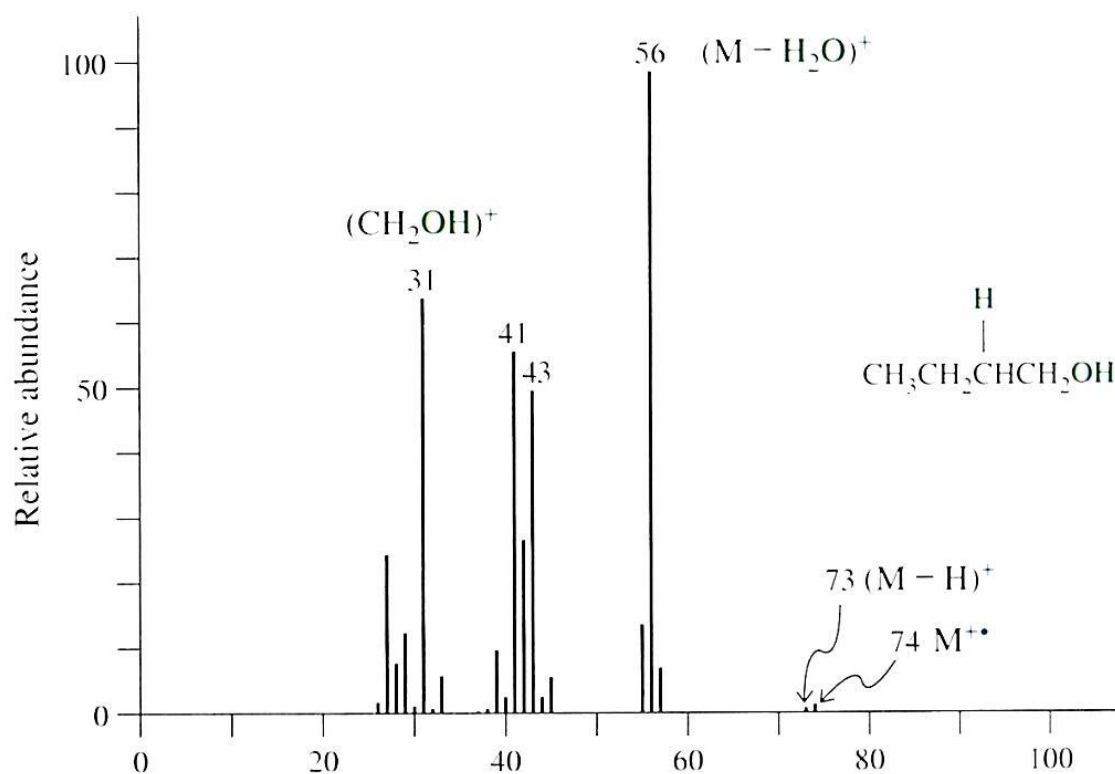
Spezies bzw. Masse (amu)	Partialdruck (10^{-6} mbar)	Tritiumpartialdruck (10^{-6} mbar)
HT, 4 amu	0,451	0,226
DT, 5 amu	0,166	0,083
T_2 , 6 amu	6,39	6,39
H_2O , 18 amu	0,263	0
	<u>Summe: 7,27</u>	<u>Summe: 6,699</u>

Aus dem Verhältnis der beiden Summen ergibt sich eine anfängliche Tritiumreinheit von ≈ 92 %.

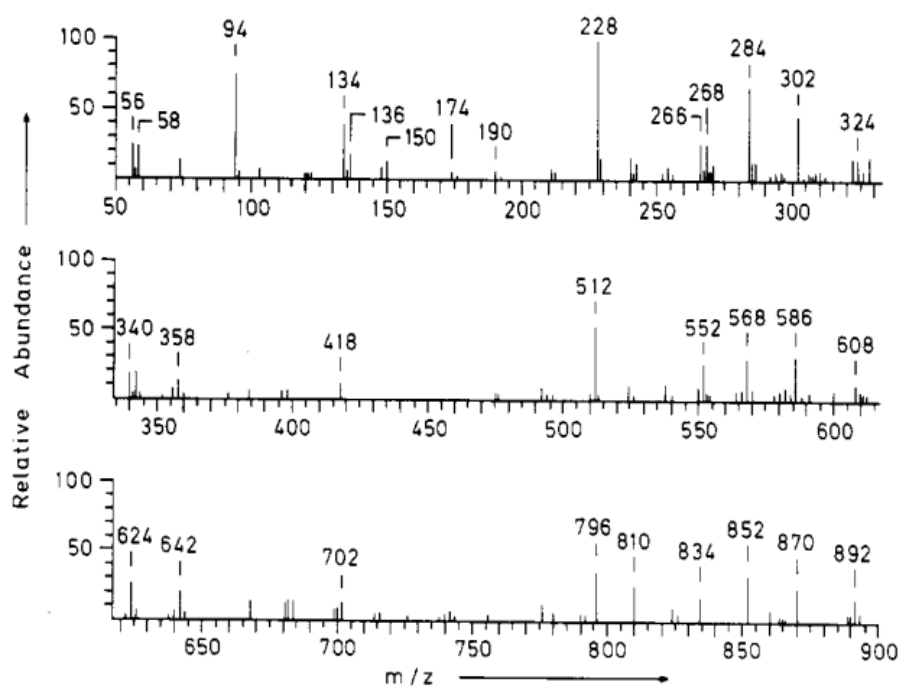
Um die Tritiumreinheit im weiteren Verlauf zu berechnen, wurde vereinfacht angenommen, dass die anfängliche Tritiumreinheit 100 % beträgt. Aus dem dann zu jeder Messung zu berechnenden Verhältnis aus anfänglichem Druck (im Beispiel $7,27 \cdot 10^{-6}$ mbar) zur Summe der Partialdrücke der Einzelmessung kann dann der Tritiumanteil berechnet werden. Da die Summe der Partialdrücke durch Desorption von Wasser und dem Ausgasen von Wasserstoff während einer Messreihe steigt, fällt der anteilige Tritiumfluss im Verlauf einer Messreihe ab.

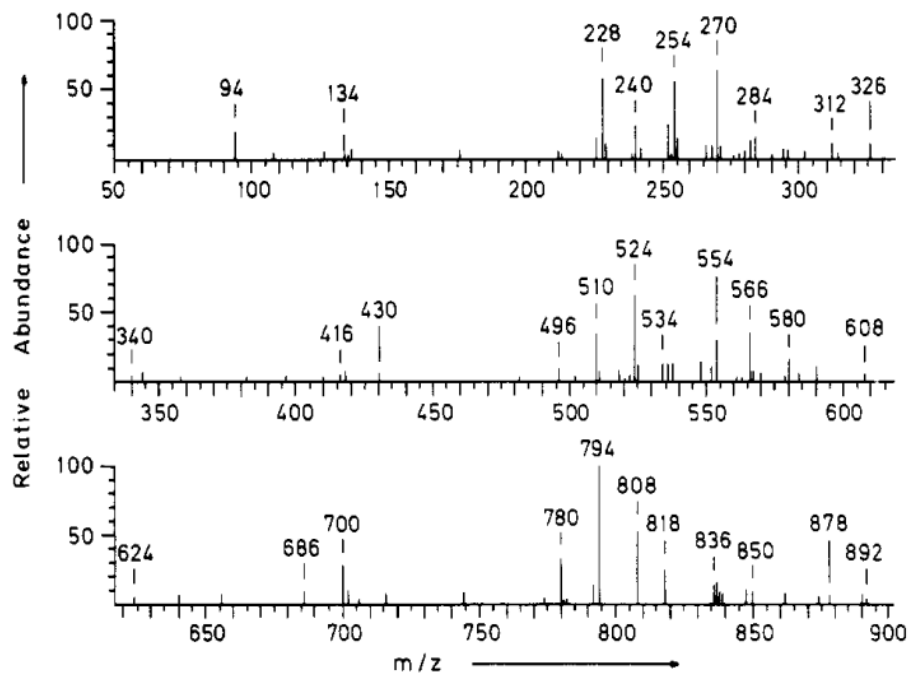
Der Fehler durch die Annahme entsteht, dass der anfängliche Tritiumgehalt 100 % beträgt und liegt im Bereich von ≈ 10 % und damit in der Größenordnung des Messfehlers des Massenspektrometers auf die Partialdrücke selbst.

J. Vergleichs-Fragmentierungsmuster



Fragmentierungsmuster von 1-butanol aus [Pet09].





Die beiden Abbildungen (oben Probe A, unten Probe B) zeigen die Fragmentierungsmuster (Massenspektren) der Zerfallsprodukte von Epoxidharzen [Pla88]. Wenn überhaupt, so können mit dem in TriToP benutzten QMS nur die Massen $m/e = 56$ amu und $m/e = 58$ amu nachgewiesen werden.

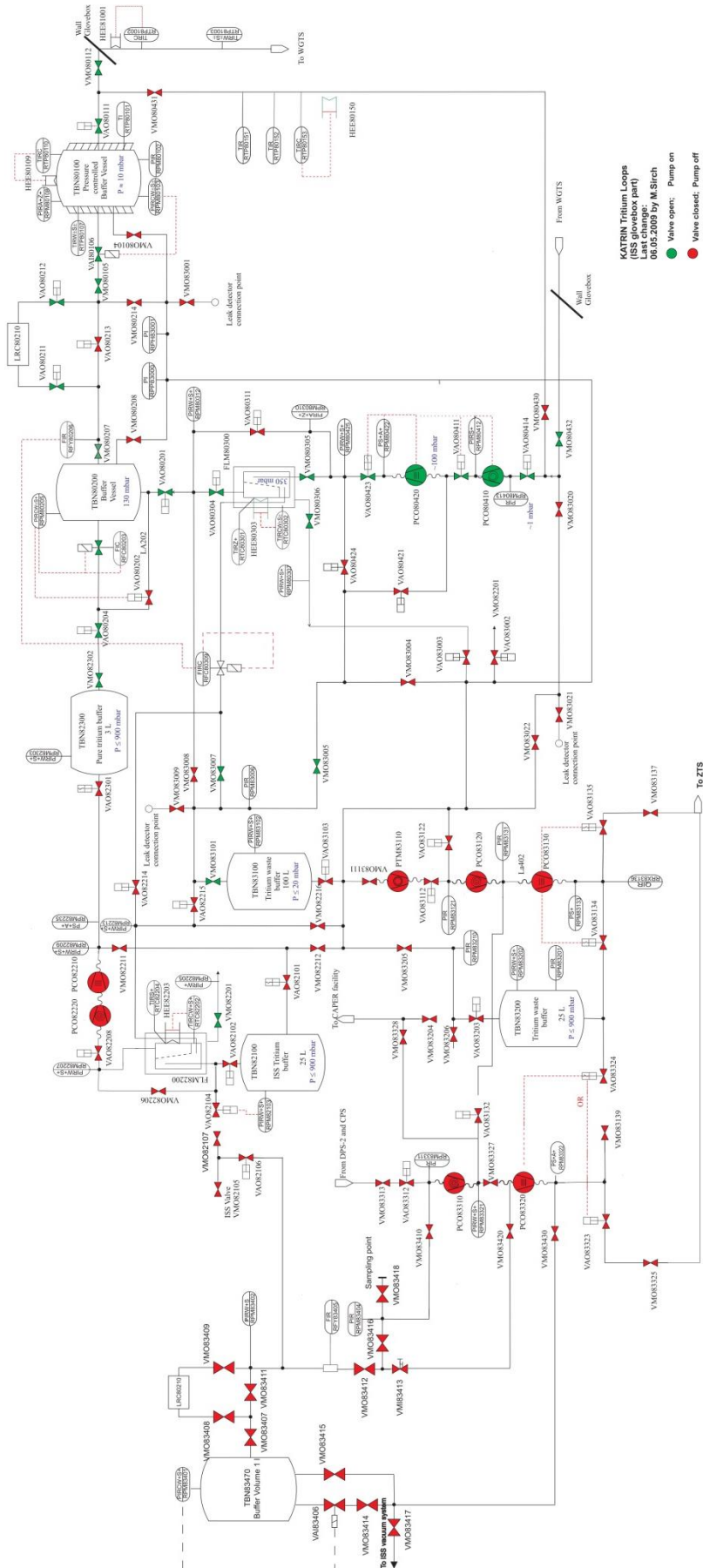
K. Messstellenliste TriToP

Bezeichnung	Messbereich	Beschreibung	Typ
RP010	$1 \cdot 10^{-1} - 1000$ mbar	Druckmessung Probenahmestelle	MKS 722B
RP011	$1 \cdot 10^{-5} - 0,1$ mbar	Druckmessung QMS	MKS 626B
RP012	$1,3 \cdot 10^{-10} - 1,3 \cdot 10^{-2}$ mbar	Druckmessung QMS	MKS 421 MKS 943
RP013	$1 \cdot 10^{-3} - 10$ mbar	Druckmessung TMP	MKS 722B
RP015	$1 \cdot 10^{-2} - 100$ mbar	Druckmessung in BV001	MKS 627
RF020	0 – 100 sccm	Durchflussmessung	MKS 1640A
RT041	0 – 100 °C	Temperaturmessung BV001	Pt100
RT041	0 – 100 °C	Temperaturmessung VA061	Pt100

In der Tabelle zusammengefasst sind alle Druck-, Temperatur- und Flussmessstellen in TriTop, welche über das Prozessleitsystem erfasst und aufgezeichnet werden. Die Kaltkathode (RP012) wurde nach Messreihe 3 aufgrund einer Fehlfunktion stillgelegt.

Nicht aufgeführt ist die zum Massenspektrometer gehörige Druckmessstelle, da diese nur über die Auslesesoftware des Massenspektrometers zugänglich ist und somit nicht kontinuierlich zur Verfügung steht.

L. R&I Diagramm KATRIN-Inner Loop Handschuhboxenteil



KATRIN Tritium Loops
(ISS glovebox part)
Last change: 08.05.2009 by M.Sirch

● Valve open; Pump on
● Valve closed; Pump off

Standard Mode

M. Technische Daten der in TriToP verwendeten Pumpen



MODEL 15 m³/h (9 cfm)



OVERVIEW :

Our model 15 m³/h (9 cfm) is a scroll vacuum pump which is, like our other models, perfectly clean. Because of the simplicity of the design, low rotational speed, elimination of rubbing contact in the pump mechanism, and construction with corrosion-resistant materials, this pump is very reliable (30,000 hours of maintenance-free operation is typical in even the most severe applications). It is usually connected to a metal or elastomer diaphragm backing pump and then form a monobloc set which is easily transportable.

OPERATING PRINCIPAL :

The pumping device is made up of 2 overlaped scrolls ; one of them is moving and the other one is fixed. The movement is provided by 3 cranks-hafts (one is driving) with the same eccentricity. This movement causes the formation of chambers between the two spiral vanes. Once these chambers are formed, they remain closed, and as a result of the movement of one vane are progressively, continuously reduced in size and displaced towards a central exhaust port.

APPLICATIONS :

Our vacuum pumps are used all over the world to extract or circulate all kind of gases which can be aggressive, inert, toxic or radioactive (the only materials exposed to the vacuum environment are 316L and 420 stainless steel). Our model 15 m³/h is an ideal, dry, totally contamination-free roughing pump for applications such as evaporation, sputtering, scanning electron microscopes, tube evacuation and backfill stations. The pump has an ultimate vacuum capability of 5.10⁻³ mbar (with diaphragm backing pump) and, therefore, can serve as a roughing pump for systems using cryo, ion or turbomolecular pumps.

BENEFITS :

- Completely clean, dry and fluid tight vacuum pump
- Safety, reliability
- Low running and maintenance cost (no liquid nitrogen, no oil, long working life)
- Low noise and vibration level
- Air cooling (built-in fan)

ACCESSORIES :

- Fine inlet and outlet metal filter
- Transport trolley

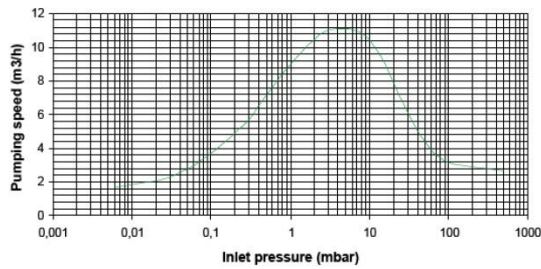
TECHNICAL DATA :

Displacement :	
¥ 50 Hz operation	15 m ³ /h (8.8 ft ³ .min ⁻¹)
¥ 60 Hz operation	18 m ³ /h (10.6 ft ³ .min ⁻¹)
Peak pumping speed (50 Hz operation) :	12 m ³ /h (7.1 ft ³ .min ⁻¹)
Ultimate vacuum (with backing pump) :	5.10 ⁻³ mbar
Connections :	Meeting your need
Motor power	0.37 kW
Enclosure rating	IP 55
Motor voltage :	
¥ 3-phase 50 Hz	230-400 V
¥ 3-phase 60 Hz	240-480 V
Other voltage	On application
Weight	67 kg (148 lb)
Noise	51,5 dB(A)
Leak tightness (helium)	< 10 ⁻⁸ mbar.l.s ⁻¹

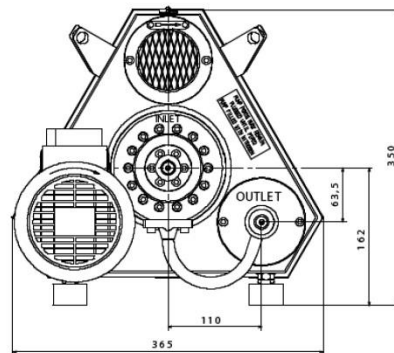
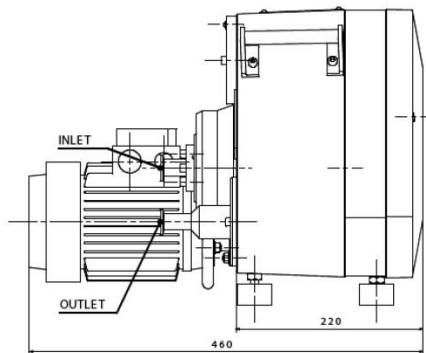
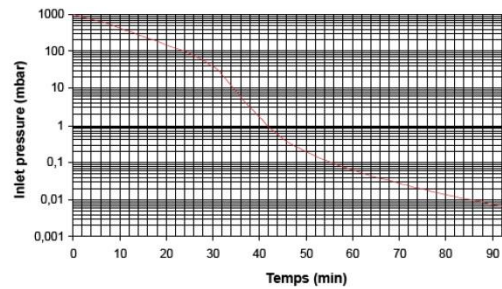
PERFORMANCES :

For the tests, the pump was connected to an elastomer diaphragm backing pump (Pumping rated speed : 22 NI/min - 0.78 ft³.min⁻¹ - and ultimate vacuum : 2 mbar abs)

Pumping speed characteristic for the model 15 m3/h with diaphragm pump (air)



Pressure decrease in a 500 litres air vessel



Authorized US Distributor:

Covenant Distributors, Inc
 1227 Augusta West Pkwy
 Augusta, Georgia 30909
 1-706-854-8444
 World Wide Web: <http://www.eCovenant.net>

Beschreibung

Technische Daten (Fortsetzung)

MAG		W 830	W 1300	W 2200	W 2800
Hochvakuumflansch	DN	160 CF	200 CF	250 CF	250 CF
Saugvermögen für N ₂ gemessen ohne Splitterschutz (PNEUROP)	l·s ⁻¹	900	1170	1800	2400
Kompression für N ₂		1,5 · 10 ⁸	1,5 · 10 ⁸	3,5 · 10 ⁵	1 · 10 ⁹
Kompression für H ₂		7,5 · 10 ²	7,5 · 10 ²	1 · 10 ⁴	1,6 · 10 ³
Enddruck nach DIN 28 400	mbar	< 1·10 ⁻¹⁰			
Max. Vorvakuumdruck mit N ₂					
wassergekühlt	mbar	2	2	1	3
luftgekühlt	mbar	0,2	0,2	0,1	0,3
Drehzahl	min ⁻¹	36 000	36 000	29 400	28 800
Hochlaufzeit	min	< 8	< 8	< 10	< 1
Gewicht	kg	30	30	60	75
Max. Temperatur des Hochvakuumflansches					
kurzzeitig	°C			85	
im Dauerbetrieb	°C			60	
beim Ausheizen	°C			120	
Vorvakuumflansch	DN			40 KF	
Zulässige Umgebungstemperatur	°C			5 bis 40	
Lagertemperatur	°C			-10 bis +60	
Max. rel. Luftfeuchtigkeit				95% (nicht kondensierend)	
Schutzart (EN 60529)	IP			20	

Technische Daten (Fortsetzung)

Sperrgas

siehe Abschnitt 2.6

MAG.DRIVE^{digital}

Spannungsbereich	200 - 240 V +10% -15%
Netzfrequenz	50 / 60 Hz
Leistungsaufnahme	
Leerlauf	ca. 100 W
Maximum geheizte Pumpen	1800 W
Maximum nicht-geheizte Pumpen	1100 W
Max. Motorspannung	60 V
Max. Pumpenstrom	15 A rms
Interne Hauptsicherung	16 A
Bemessungs-Ausschaltvermögen	200 kA
Anlagen-seitige Vorsicherung	L- oder G-Charakteristik
Max. Frequenz	600 Hz
Belastbarkeit Relaisausgänge	42 V, 1 A
Temperatur bei Betrieb	0-45° C
Temperatur bei Lagerung	- 10° C bis + 60° C
Relative Luftfeuchte	95% (nicht kondensierend)
Überspannungs-Kategorie	II
Verschmutzungsgrad gemäß EN 61010	2
Gewicht	10 kg
Schutzart (EN 60529)	IP20

Beschreibung

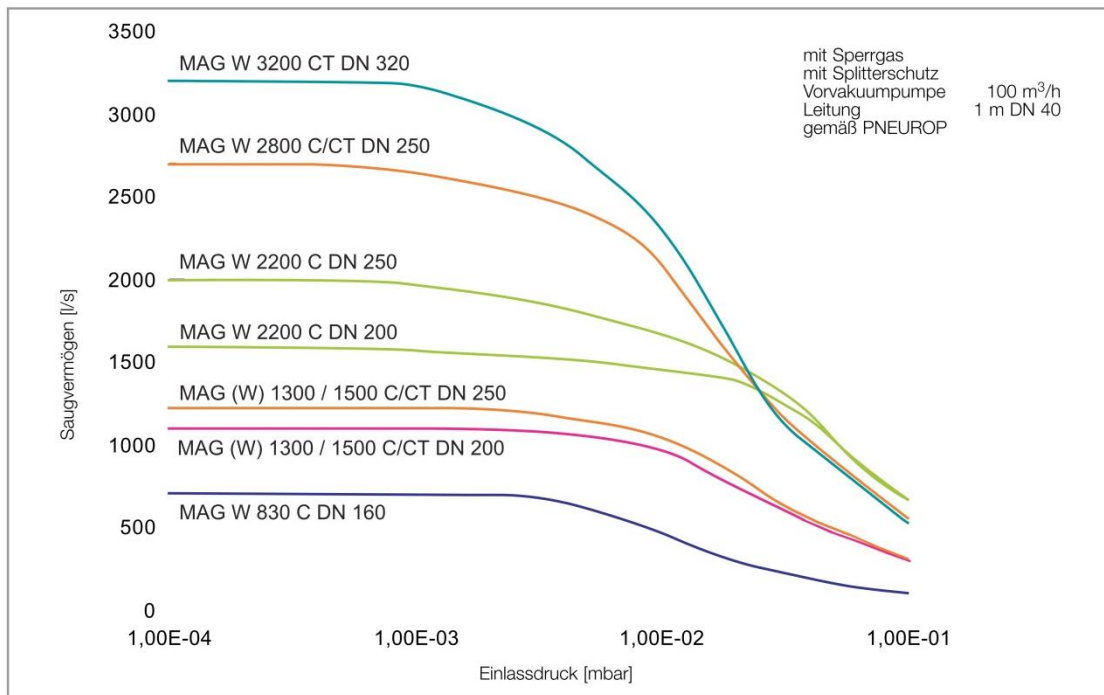
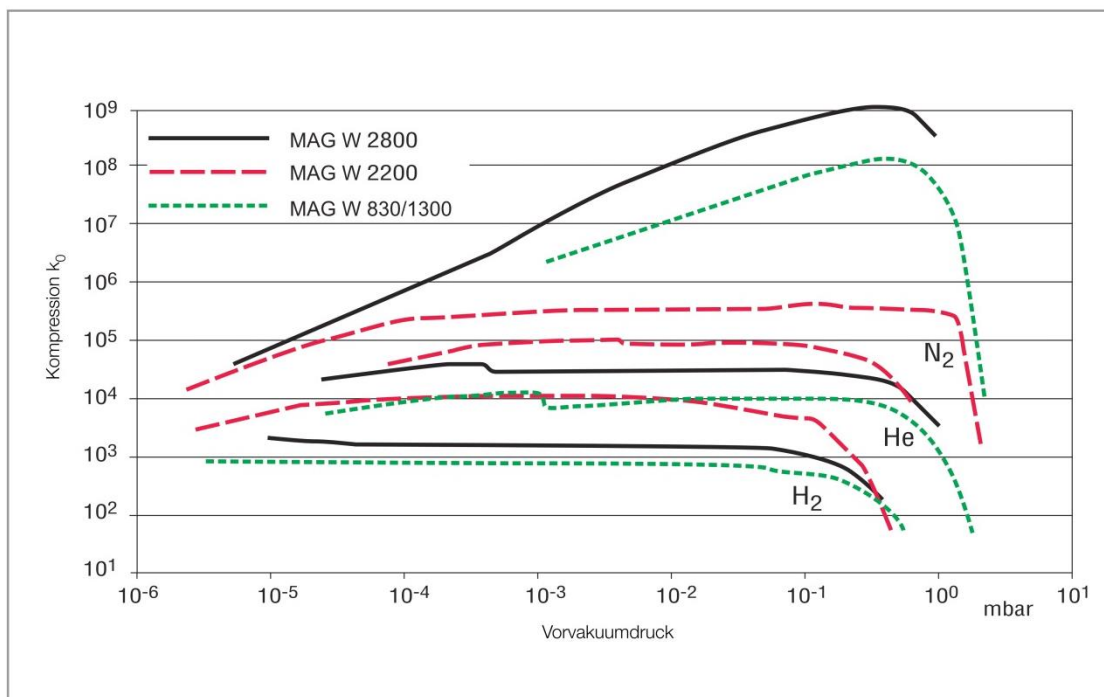


Abb. 6 Saugvermögenskurven für Stickstoff

Abb. 7 k_0 -Kurven

GA05141_0701 - 09/2004

Auszüge aus den Datenblättern der in TriToP eingesetzten Scrollpumpe und Turbomolekularpumpe inklusive Steuerungselektronik.

Literaturverzeichnis

- [Abe78] B. D. Abel, *TFTR vacuum system*, J. Vac. Sci. Technol. March/April 1978; 15(2):726-733
- [Ade13] P.A.R. Ade, *Planck 2013 results. XVI. Cosmological parameters*, arXiv:1303.5076v1 [astro-ph.CO] 20 Mar 2013
- [Age11] M. Ageron et al., *ANTARES - the first undersea neutrino telescope*, arXiv:1104.1607v1 [astro-ph.IM] 8 Apr 2011
- [Ahr04] J. Ahrens et al. (IceCube collaboration), *Sensitivity of the IceCube detector to astrophysical sources of high energy muon neutrinos*, Astropart. Phys. (20), pp. 507-532, 2004
- [Ale87] E. N. Alekseev et al., *Possible Detection of a Neutrino Signal on 23 February 1987 at the Baksan Underground Scintillation Telescope of the Institute of Nuclear Research*, JETP Lett., 45:589–592, 1987
- [Alt03] C. Weinheimer, *Laboratory Limits on Neutrino Masses*, in G. Altarelli and K. Winter, *Neutrino Mass*, Springer 2003 (Eds.)
- [Ard05] R. Ardito. (CUORE), *A Cryogenic Underground Observatory for Rare Events*. arXiv:hep-ex/0501010, January 2005
- [Ark01] N. Arkani-Hamed et al., *Neutrino masses from large extra dimensions*. Phys. Rev. D, 65:024032, Dec 2001
- [Arn03] C. Arnaboldi et al., *Bolometric bounds on the antineutrino mass*, Phys. Rev. Lett., 91:161802, Oct 2003
- [Arn89] W. D. Arnett et al. *Supernova 1987A*, Annu. Rev. Astron. Astrophys. (27), pp. 629-700, 1989
- [ATL12] The ATLAS Collaboration, *Observation of a new particle in the search for the Standard Model Higgs boson with the ATLAS detector at the LHC*, Physics Letters B, Vol 716, Issue 1, 17 September 2012, Pages 1–29
- [Bab12] M. Babutzka et al., *Monitoring of the operating parameters of the KATRIN Windowless Gaseous Tritium Source*, New Journal of Physics 14 (2012), DOI 10.1088/1367-2630/14/10/103046
- [Bah73] J. Bahcall, *The Solar Neutrino Problem*, Nuclear Instruments and Methods 110, pp. 381-384 (1973)
- [Ber06] L. Bergström et al., *Cosmology and Particle Astrophysics*. Springer, 2006

- [Bor00] B. Bornschein, *Untersuchung systematischer Effekte und erste Tritiummessungen mit dem verbesserten Mainzer Neutrinomassenexperiment*, Dissertation (2000), Universität Mainz
- [Bor05] B. Bornschein et. al., *Successful experimental verification of the tokamak exhaust processing concept of ITER with the CAPER facility*, Fusion Science and Technology 2005; 48:11-16.
- [Bra91] P. Bradna et al., *The use of pyrolysis-gas chromatography/mass spectroscopy in the analysis of cured polyfunctional epoxy resins*, Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, 21 (1991) 207-220
- [Bri07] S. Brisken, *Die Messung von Neutrinos aus Supernova-Explosionen bei Double Chooz*, Diplomarbeit, RWTH Aachen, Mai 2007
- [Bur08] A. Burck et al., *Microstructured magnetic calorimeter with meander-shaped pickup coil*. J. Low Temp. Phys., 151:337–344, 2008
- [Cal08] C. J. Caldwell et al., *Post Service Examination of a Tritium Permeator and a Turbomolecular Pump from the Caper Facility at the Tritium Laboratory Karlsruhe*, Fusion Science and Technology, Vol. 54 (2008)
- [Cal67] R. Calder et al., *Reduction of stainless-steel outgassing in ultra-high vacuum*, Br. J. Appl. Phys. 18 1459, 1967
- [Cha14] J. Chadwick, *Intensitätsverteilung im magnetischen Spektrum von β -Strahlen von Radium B+C*, Verh. d. Deutsch. Phys. Ges., vol. 15, p. 383, 1914
- [Cle95] B. Cleveland et al., *Update on the measurement of the solar neutrino flux with the homestake chlorine detector*, Nuclear Physics B - Proceedings Supplements, vol. 38, No. 1-3, pp. 47–53, 1995. Neutrino 94.
- [CMS12] The CMS Collaboration, *Observation of a new boson at a mass of 125 GeV with the CMS experiment at the LHC*, arXiv:1207.7235v2 [hep-ex] 28 Jan 2013
- [Cof87] D. O. Coffin, *A tritium compatible high vacuum pumping system*, J. Vac. Sci. Technol. 1982; 20:4:1126-1131
- [Cow56] C.L. Cowan et al., *Detection of the free neutrino: a confirmation*, Science, vol. 124, no. 3212, pp. 103–104, 1956.
- [Dav94] R. Davis, *A review of the homestake solar neutrino experiment*, Progress in Particle and Nuclear Physics, vol. 32, pp. 13–32, 1994
- [DAY12] Daya Bay-Collaboration, *Observation of electron-antineutrino disappearance at daya bay*, Phys. Rev. Lett., 108:171803, Apr 2012
- [Dem05] W. Demtröder, *Experimentalphysik 4: Kern- Teilchen- und Astrophysik*, Springer-Verlag, Berlin, 2. Auflage (2005), ISBN 3-540-21451-8
- [Dem09] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*, Springer-Verlag, Berlin, 4. Auflage (2010), ISBN 978-3-642-03910-2

- [Dör05] *The closed tritium cycle of the Tritium Laboratory Karlsruhe*, Fusion Science and Technology, Vol. 48, July/Aug. 2005
- [Dos06] N. Doss et al., *Molecular effects in investigations of tritium molecule β decay endpoint experiments*, Phys. Rev. C, Vol 73, Issue 2, 025502 (2006), DOI 10.1103/PhysRevC.73.025502
- [DOU12] Double Chooz-Collaboration, *Reactor ν_e disappearance in the double chooz experiment*, Phys. Rev. D, 86:052008, Sep 2012
- [Dre12] G. Drexlin, *Astroteilchenphysik 1*, Vorlesung im WS 2012/2013, KIT 10
- [Dre13] G. Drexlin et al., *Current Direct Neutrino Mass Experiments*, Advances in High Energy Physics, Volume 2013 (2013), <http://dx.doi.org/10.1155/2013/293986>
- [Ebh12] S. Ebenhöch, *Systematische Untersuchungen eines Röntgendetektorsystems zur Überwachung der KATRIN-Tritiumquelle*, Bachelorarbeit, KIT (2012)62
- [EDE12] EDELWEISS Collaboration, *Search for low-mass wimps with edelweiss-ii heat and ionization detectors*, Phys. Rev. D, 86:051701, Sep 2012
- [Egg05] T. Eggert, *THE X-RAY RESPONSE OF SILICON DRIFT DETECTORS*, International Centre for Diffraction Data 2005, Advances in X-ray Analysis, Volume 48
- [Eic08] F. Eichelhard et al., *First Tritium Results of the KATRIN Test Experiment Trap*, Fusion Science and Technology, Vol. 54, No. 2, August 2008
- [Eic09] F. Eichelhardt, *Measurement of the Tritium Pumping Properties of a 4.2 K Argon Condensate for the Cryogenic Pumping Section of KATRIN*, Dissertation, KIT (2009)
- [Elg02] Ø. Elgarøy et al., *New Upper Limit on the Total Neutrino Mass from the 2 Degree Field Galaxy Redshift Survey*, Phys.Rev.Lett., 89, 061301, arXiv arXiv:astro-ph/0204152v3
- [Ell02] S.R. Elliott et al., *Double beta decay*, Annu. Rev. Nucl. Part. S., 52(1):115–151, 2002
- [Fer34] E. Fermi, *Versuch einer Theorie der β -Strahlen*, Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei, vol. 88, pp. 161–177, 1934. 10.1007/BF01351864
- [Fir99] R.B. Firestone, et al., *Table of Isotopes*, 8th Edition, Wiley-VCH, 1999
- [Fir99] Table of isotopes, vol. 1: A1 - 150, Wiley, New York, 8. ed., paper ed. edn. (1999).
- [Fis11] S. Fischer et al., *Monitoring of Tritium Purity During Long-Term Circulation in the Katrin Test Experiment Loopino Using Laser Raman Spectroscopy*, Fusion Sci. Technol. 60 3, 925-930 (2011)
- [Fis13] S. Fischer, Doktorarbeit in Vorbereitung, KIT

- [Fuk03] M. Fukugita, *Physics of neutrinos and application to astrophysics*, Springer 2003
- [Gai62] J.-M. Gaillard et al., *Observation of high-energy neutrino reactions and the existence of two kinds of neutrinos*, Phys. Rev. Lett., vol. 9, pp. 36–44, 1962
- [Gal12] M. Galeazzi et al., *The Electron Capture Decay of ^{163}Ho to Measure the Electron Neutrino Mass with sub-eV Accuracy (and Beyond)*, arXiv:1202.4763 v2 (to be published in Phys. Lett.)
- [GAL99] GALLEX-Collaboration. *Gallex solar neutrino observations: results for gallex iv*, Phys. Lett. B, 447(1-2):127 – 133, 1999
- [Gan12] A. Gando for the KamLAND-Zen-Collaboration, *First results from KamLAND-Zen: Double beta decay with ^{136}Xe* . ArXiv e-prints, hep-ex/1205.6130, May 2012
- [Gei03] A. Geiser, *Experimental results on neutrino oscillations*, in K. Winter and G. Altarelli (editors), Neutrino Mass, volume 190 of Springer Tracts in Modern Physics, Springer Berlin, 2003
- [GER04] I. Abt et al., *A new ^{76}Ge double beta decay experiment at LNGS*, Letter of Intent, 3 2004
- [Gri69] V. Gribov et al., *Neutrino astronomy and lepton charge*, Physics Letters B, 28(7):493 – 496, 1969
- [Gro04] J. H. Gross, *Mass spectrometry*, Springer Verlag Berlin (2004), ISBN 3540407391
- [Gro09] S. Grohmann, *Stability analyses of the beam tube cooling system in the KATRIN source cryostat*, Cryogenics 49 (2009) 413–420, DOI: 10.1016/j.cryogenics.2009.06.001
- [Gro11] S. Grohmann et al., *Precise temperature measurement at 30 K in the KATRIN source cryostat*, Cryogenics 51 (2011) 438–445, DOI: 10.1016/j.cryogenics.2011.05.001
- [Han10] S. Hannestad, *Neutrino physics from precision cosmology*, Prog. Part. Nucl. Phys. (65),pp. 185-208, 2010
- [Hei84] W. Heitler, *The Quantum Theory of Radiation*, 3. Auflage, Dover, Oxford (1984)
- [Hes12] V.F. Hess, *Über Beobachtungen der durchdringenden Strahlung bei sieben Freiballonfahrten*, Z. Phys., 13:1084, 1912
- [Hig64] P.W. Higgs, *Broken symmetries and the masses of gauge bosons*, Phys. Rev. Lett., 13:508–509, Oct 1964
- [Hir84] T. Hirabayashi et al., *Sorption of gaseous tritium on the surface of type 316 stainless steel*, Journal of Nuclear Materials 120, 2-3 (1984) 309-315

- [Höv12] K. Höveler, *Untersuchungen zur Systemstabilität eines Röntgendetektorsystems unter Tritiumatmosphäre*, Bachelorarbeit, KIT (2012)
- [Huc87] D. J. Hucknall, D. G. Goetz, *Turbomolecular Pumps*, Vacuum, Vol. 37, No 8/9 (1987)
- [HXF06] A. Longoni, C. Fiorini, *Handbook of Practical X-ray fluorescence Analysis*, Springer-Verlag (2006), ISBN 3-540-28603-9
- [IMB87] IMB-Collaboration, *Observation of a neutrino burst in coincidence with supernova 1987a in the large magellanic cloud*, Phys. Rev. Lett., 58:1494–1496, Apr 1987
- [K2K06] K2K-Collaboration, *Measurement of neutrino oscillation by the k2k experiment*, Phys. Rev. D, 74:072003, Oct 2006
- [Kam87] Kamiokanda-II Collaboration, *Observation of a neutrino burst from the supernova SN1987a*. Phys. Rev. Lett., 58:1490–1493, Apr 1987
- [KAM96] Kamiokande-Collaboration, *Solar neutrino data covering solar cycle 22*, Phys. Rev. Lett., 77:1683–1686, Aug 1996
- [KAT04] KATRIN Design Report 2004. KATRIN Collaboration. FZKA report 7090, <http://bibliothek.fzk.de/zb/berichte/FZKA7090.pdf>
- [Ket13] Website Ketek GmbH, <http://www.ketek.net>, Stand Februar 2013
- [Kib67] T.W.B. Kibble, *Symmetry breaking in non-abelian gauge theories*, Phys. Rev., 155:1554–1561, Mar 1967
- [KKk04] K. Klapdor-Kleingrothaus, I. Krivosheina, A. Dietz, O. Chkvorets, *Search for neutrinoless double beta decay with enriched ^{76}Ge in Gran Sasso 1990-2003*, Physics Letters B, 586 3-4, 198-212 (2004)
- [Kla09] H.V. Klapdor-Kleingrothaus et al., *The evidence for the observation of $0\nu\beta\beta$ decay: The identification of $0\nu\beta\beta$ events from the full spectra*, Modern Physics Letters A, 21(20):1547–1566, 2006
- [Kod02] K Kodama et al., *Detection and analysis of tau–neutrino interactions in DONUT emulsion target*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A:, Volume 493, Issues 1–2, 1 November 2002, Pages 45-66, [http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)01555-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002(02)01555-3)
- [Koe11] Z. Köllö et al., *A new method to measure small volumes in tritium handling facilities, using p-V measurements*, Fus. Sci. Technol., 60 (2011) 972-975.
- [Kot85] T. Kotani et al., *Double beta decay and majorana neutrino*, Progress of Theoretical Physics Supplement, 83:1–175, 1985
- [Kra05] Ch. Kraus et al., *Final results from phase II of the Mainz Neutrino Mass Search in Tritium beta Decay*, Eur. Phys. J. C 40 (2005) 447-468

- [Kra23] H.A. Kramers, *On the theory of X-ray absorption and of the continuous X-ray spectrum*, Philosophical Magazine Series 6 (1923).
- [Kri07] H. Krieger, *Wechselwirkung geladener Teilchen mit Materie*, Teubner (2007).
- [Kru83] P. Kruit et al., *Magnetic field paralleliser for 2 # electron spectrometer and electron-image magnifier*, J. Phys. E: Sci. Instrum., Vol. 16. 1983
- [Lan93] R. Langley, P. LaMarche, *Vacuum pumping requirement considerations for future fusion devices*, J Nuc Mat 1993; 200:326- 331)
- [Laz81] G. Lazarides et al. *Proton lifetime and fermion masses in an so(10) model*, Nucl. Phys. B, 181(2):287 – 300, 1981
- [Les12] J. Lesgourgues et al., *Neutrino mass from cosmology*, Advances in High Energy Physics, 2012(2):608515, 2012
- [Lor02] T. J. Loredo, et al., *Bayesian analysis of neutrinos observed from supernova SN 1987A*, Phys. Rev. D (65), 063002, 2002
- [MAG28] Handbuch zu Leybold MAG W2800
- [Mao87] F. M. Mao, J. H. Leck, *The quadrupole mass spectrometer in practical operation*, Vacuum, Vol. 37, No. 8/9 (1987)
- [MAR12] MARE-Collaboration, *Mare-1 in milan: Status and perspectives*. J. Low Temp. Phys., 167:1035–1040, 2012
- [Mat85] M. Matsuyama et al., *Contamination of ionization chamber due to tritium exposure*, The International Journal of Applied Radiation and Isotopes 36, 7 (1985) 595.
- [Mau09] D. Maurel, *Designstudien zur Messung der Aktivität der Tritiumquelle im KATRIN-Experiment mit Röntgenstrahlung*, Diplomarbeit (2009), KIT
- [Mic12] R. Michling, interne Kommunikation, (2012)
- [Mic13] R. Michling, interne Kommunikation, (2013)
- [MIN11] P. Adamson et al., *Measurement of the neutrino mass splitting and flavor mixing by MINOS*, Fermilab-Pub-11-040-PPD, Phys. Rev. Lett. 106.181801(2011), Vol. 106, No.18, (2011); arXiv:1103.0340
- [MIN12] P. Adamson, *An improved measurement of muon antineutrino disappearance in MINOS*, <http://arxiv.org/abs/1202.2772v1>
- [Moe03] Detlev Möller, *Luft: Chemie, Physik, Biologie, Reinhaltung, Recht*. Walter de Gruyter, (2003), ISBN 9783110164312
- [Moh07] R.N. Mohapatra et al., *Theory of neutrinos: a white paper*, Reports on Progress in Physics, 70(11):1757, 2007

- [Nak10] H. Nakamura et al., *Evaluation of deuterium permeation reduction factor of various coatings deposited on ferritic/martensitic steels for development of tritium permeation barrier*, Fusion Engineering and Design 85 (2010) 1531-1536
- [Nas06] S. Nasri et al., *Grand unification of symmetry*, Phys. Lett. B, 636(2):114 – 118, 2006
- [Nis00] M. Nishikawa et al., *Tritium trapping capacity on metal surface*, Journal of Nuclear Materials 277 (2000) 99–105
- [NIS04] S. Seltzer, *NIST Standard Reference Database 126* (2004)
- [Nuc08] A. Nucciotti, *The mare project*, J. Low Temp. Phys., 151:597–602, 2008
- [Ode12] Informationen von Oerlikon-Leybold durch H. Odendahl
- [OPE09] R. Acquafredda et al., *The OPERA experiment in the CERN to Gran Sasso neutrino beam*, Journal of Instrumentation, Vol 4, April 2009, doi:10.1088/1748-0221/4/04/P040187
- [Pas05] S. Pascoli et al. *The Absolute Neutrino Mass Scale, Neutrino Mass Spectrum, Majorana CP-Violation and Neutrinoless Double-Beta Decay*, arXiv:hep-ph/0505226 v2
- [Pau30] W. Pauli, *Brief an die Physikalische Gesellschaft in Tübingen vom 4. Dezember 1930*, nachzulesen in L.M. Brown, Phys. Today 31 (1978), 23
- [PDG12] J. Beringer et al., and Particle Data Group, *2012 review of particle physics*, Phys. Rev. D, 86:010001, 2012
- [Pen65] A.A. Penzias et al., *A Measurement of Excess Antenna Temperature at 4080 Mc/s*. Astrophys. J., 142:419–421, July 1965
- [Per06] D. Pergolesi et al., *MANU-2: A second generation experiment for calorimetric neutrino mass determination with superconducting Re*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Vol 559, Issue 2, 15 April 2006,
- [Per73] W. G. Perkins, *Permeation and Outgassing of Vacuum Materials*, J. Vac. Sci. Technol. 10, 543 (1973); doi: 10.1116/1.1318061
- [Pet99] K. Peter et al., *Organic Chemistry*, 3rd Edition
- [Pfe13] Pfeiffer Vacuum, *Vacuum Technology Know How*, (2013)
- [Phi12] D. G. Phillips II et al., *The majorana experiment: an ultra-low background search for neutrinoless double-beta decay*, Journal of Physics: Conference Series, 381(1):012044, 2012
- [Pla88] B. Plage et al., *Pyrolysis→Field Ionization Mass Spectrometry of Epoxy Resins*, Macromolekules, Vol. 21, No. 7, 1988
- [Pri10] F. Priester, *Systematische Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten des KATRIN Tritiumloop*, Diplomarbeit (2010), KIT

- [Pri12] F. Priester et al., *TriToP – A compatibility experiment with turbomolecular pumps under tritium atmosphere*, Vacuum (2012), <http://dx.doi.org/10.1016/j.vacuum.2012.09.006>,
- [PyM45] V.A. Solé, E. Papillon, M. Cotte, Ph. Walter, J. Susini, A multiplatform code for the analysis of energy-dispersive X-ray fluorescence spectra, Spectrochim. Acta Part B 62 (2007) 63-68.
- [Raf12] G.G. Raffelt, *Neutrinos and the stars*, Proceedings of the International School of Physics
- [Ran12] P.C.-O. Ranitzsch et al., *Development of metallic magnetic calorimeters for high precision measurements of calorimetric ^{187}Re and ^{163}Ho spectra*, J. Low Temp. Phys., 167:1004–1014, 2012
- [Rei53] F. Reines et al., *Detection of the free Neutrino*, Phys. Rev. 92 (1953) 830-831
- [Rei60] F. Reines et al., *Detection of the free antineutrino*, Phys. Rev., vol. 117, pp. 159–173, Jan 1960.
- [REN12] RENO-Collaboration, *Observation of reactor electron antineutrinos disappearance in the RENO experiment*, Phys. Rev. Lett., 108:191802, May 2012
- [Röl11] M. Röllig, *Studien zu einem Röntgendetektorsystem zur Bestimmung der Aktivität in der KATRIN Tritiumquelle*, Diplomarbeit, KIT, (2011)
- [Röl13] M. Röllig, interne Kommunikation
- [Röl14] M. Röllig, *Doktorarbeit in Vorbereitung*, KIT (2014).
- [Ruj82] A. de Rújula et al., *Calorimetric measurements of $^{163}\text{Holmium}$ decay as Tools to determine the electron neutrino mass*, Phys. Lett. (118B), pp. 429-432, 1982
- [SAG02] SAGE-Collaboration, *Solar neutrino flux measurements by the soviet-american gallium experiment (sage) for half the 22-year solar cycle*, J. Experimental and Theoretical Physics, 95:181–193, 2002
- [Sal11] F. Salvat et al., *PENELOPE-2011: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*, Workshop Proceedings, Barcelona, Spain, 4-7 July 2011
- [San12] A.G. Sánchez, et al., *The clustering of galaxies in the sdss-iii baryon oscillation spectroscopic survey: cosmological implications of the large-scale two-point correlation function*, Monthly Notices of the Royal Astronomical Society, 425(1):415–437, 2012
- [Sch11] M. Schlösser et al., *Accuracy of the Laser Raman system for KATRIN*, Proc. Int. School of Physics ‘E Fermi’, Neutrino Physics and Astrophysics (Varenna 2011) arXiv:1203.4099 [physics.ins-det]

- [Sch11a] M. Schlösser et al., *Design implications for Laser Raman measurement systems for tritium sample analysis, accountancy and process-control applications*, Fusion Sci. Technol. 60 3, 976-981 (2011)
- [Sch13] F. Schneck, *Design and setup of the Tritium Adsorption Desorption Experiment (TRIADe)*, Diplomarbeit, KIT (2013).
- [Sch13a] M. Schlösser, *Accurate calibration of the Raman system for the Karlsruhe Tritium Neutrino Experiment*, Dissertation, KIT (2013)
- [Sei07] S. Seibold, *Halogenfrei flammgeschützte Epoxidharzsysteme auf der Basis von Präformulierungen.*, Dissertation (2007), Heidelberg
- [Sig12] B. Kayser, *High energy neutrinos and cosmic rays*, Proceedings of the International School of Physics
- [Sis04] M. Sisti et al., *New limits from the Milano neutrino mass experiment with thermal microcalorimeters*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. A520 (2004) 125
- [SNO01] *SNO Collaboration. Measurement of the rate of $\nu_e + d \rightarrow p + p + e^-$ interactions produced by ^8B solar neutrinos at the sudbury neutrino observatory*, Phys. Rev. Lett., 87:071301, Jul 2001
- [SNO08] SNO-Collaboration, *Independent measurement of the total active ^8B solar neutrino flux using an array of ^3He proportional counters at the sudbury neutrino observatory*, Phys. Rev. Lett., 101:111301, Sep 2008
- [Spr06] V. Springel et al., *The large-scale structure of the Universe*, Nature Vol. 440, 27 April 2006, doi: 10.1038/nature04805
- [Sti69] H. F. Stimson, *Some precise measurements of the vapor pressure of water in the range from 25 to 100 °C*, J. Res. Natl. Bur. Stand. 73A, 483 (1969)
- [Stu07] M. Sturm, *Bestimmung der Tritiumflussreduktion einer Tritium-Argon-Frostpumpe für das Neutrinomassenexperiment KATRIN*, Diplomarbeit, KIT (2007)
- [Stu10] M. Sturm, *Aufbau und Test des Inner-Loop-Systems der Tritiumquelle von KATRIN*, Dissertation (2010), KIT
- [Sup05] SuperKamiokande-Collaboration, *Measurement of atmospheric neutrino oscillation parameters by superkamiokande*, Phys. Rev. D, 71:112005, Jun 2005
- [Sup98] SuperKamiokande-Collaboration, *Evidence for oscillation of atmospheric neutrinos*, Phys. Rev. Lett., 81:1562–1567, Aug 1998
- [T2K11] K. Abe et al., *The T2K Experiment*, Nucl. Instrum. Meth. A 659 (2011) 106–135, <http://arxiv.org/abs/1106.1238>
- [Thu09] T. Thümmel, *Precision high voltage divider for the KATRIN experiment*, New Journal of Physics 11 (2009) 103007

- [Thu11] T. Thümmler et al., *Energy calibration and monitoring of the KATRIN experiment*, Nuclear Physics B (Proc. Suppl.) 221 (2011) 405, DOI 10.1016/j.nuclphysbps.2011.10.052
- [Trv91] J. A. Treverton et al., *The application of static secondary ion mass spectrometry to the study of epoxy adhesive constients*, Int.J.Adhesion and Adhesives Vol. 11 No. 3 July 1991
- [Wei13] C. Weinheimer, *Direct neutrino mass measurements*, Hyperfine Interactions, pages 1–9, 2013
- [Wol11] J. Wolf et al., *Investigation of turbo-molecular pumps in strong magnetic fields*, Vacuum Vol. 86 (2011) Seite 361-369
- [Wut09] K. Jousten(Hrsg.), *Wutz Handbuch Vakuumtechnik*, Vieweg+Teubner Verlag (2009), ISBN 3834806951
- [XDB09] *X-ray data booklet*, Tech. Rep., Berkeley, Calif. (2009)
- [Zub11] K. Zuber. *Neutrino Physics*, Second Edition, Series in High Energy Physics, Cosmology and Gravitation, Taylor & Francis, 2011

Danksagung

Abschließend möchte ich bei allen Personen bedanken, welche zum Gelingen der vorliegenden Arbeit beigetragen haben:

- Professor Dr. Guido Drexlin für die Möglichkeit, diese Arbeit im Rahmen des KATRIN-Experiments durchführen zu können.
- Professor Dr.-Ing. Matthias Noe für die Übernahme der Zweitkorrektur.
- Dr. Beate Bornschein, nicht nur für die fachliche Betreuung am Tritiumlabor und die unermüdliche Korrektur dieser Arbeit, sondern vor allem dafür, dass ihre Tür immer offen stand, ganz egal um was es ging. Ebenso für die Möglichkeit eigene Ideen für neue Experimente umsetzen zu können und für Einblicke in Dinge abseits des Laboralltages, vor allem in der Lehre und Ausbildung.
- Meinem Kollegen Marco Röllig, für die sehr produktive und reibungslose Zusammenarbeit welche manches Ergebnis überhaupt erst ermöglicht hat sowie für die vielen angenehmen Unterhaltungen abseits des wissenschaftlichen Alltags.
- Der CAPER-Crew, namentlich Dr. David Demange, Than Long Le, Karl-Heinz Simon und Eleonore Fanghänel, welche für nunmehr über zwei Jahre tritiierte Gasmischungen für TriToP und TriReX Herstellen sowie für das unermüdliche Evakuieren und Analysieren beider Experimente.
- Dieter Adami, für das zeigen von so manchem „versteckten“ Lagerplatz von Vakuumbauteilen und damit dem Vermeiden von Verzögerungen beim Aufbau. Und natürlich für die jederzeit schnelle Hilfe bei allen mechanischen Problemen.
- Der MAT-Gruppe am Tritiumlabor, bestehend aus Peter Schäfer, Christin Melzer, Adalbert Braun, Helmut Dittrich und Frank Rehlinghaus für den Aufbau der TriToP Elektrik, der Programmierung der Datenerfassung und die andauernde und schnelle Unterstützung bei Problemen.
- Robert Michling für viele Diskussionen über Massenspektrometrie, Massenspektren und deren Interpretation.
- Beate Kloppe, für die Messungen der TriToP TMP Proben im Kalorimeter.
- Meinen Bürokollegen Marco Röllig, Martin Babutzka und Kerstin Schönung für die jederzeit angenehme Arbeitsatmosphäre, zahllose Diskussionen und die überdurchschnittlich gute Versorgung mit Keksen.
- Meinen mit-Doktoranden und Physikstudenten Magnus Schlösser, Sebastian Fischer, Robin Grössle, Fabian Schneck, Sylvia Ebenhöch und Manuel Klein

für viele Diskussionen, Einblicke, Ideen und eine angenehme Zeit bei und neben der Arbeit.

- Eva Porter und Sylvia Krieger für das Erledigen vieler administrativer Angelegenheiten und manch langer Bestellung.
- Allen hier nicht genannten Kollegen am Tritiumlabor, denn innerhalb meiner Zeit dort hat jeder etwas zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.
- Meinen Studienkollegen und Freunden Wiebke Janssen, Marina Pfaff und Oliver Lösch ohne deren Zusammenarbeit mit mir im Studium es sehr viel schwerer gewesen wäre an diesen Punkt zu gelangen.
- Und natürlich meiner Frau und meiner Familie, welche es in unterschiedlicher Weise es überhaupt erst ermöglicht haben, dass diese Arbeit begonnen und erfolgreich beendet werden konnte.