



JOHANNES GUTENBERG  
UNIVERSITÄT MAINZ

# UCN-Wandspeicherexperiment mit einem neuen Fluorpolymer

D I S S E R T A T I O N

zur Erlangung des Grades

„DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN“

im Promotionsfach „Kernchemie“

am Fachbereich Chemie, Pharmazie und Geowissenschaften

der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

CHRISTIAN DÜSING

geboren in Mainz

Mainz, den 05. Juli 2016



*„Ein glücklicher Mensch ist zu zufrieden mit der Gegenwart, um sich viele Gedanken über die Zukunft zu machen.“*

*Albert Einstein*



## Zusammenfassung

Ein nicht im Atomkern gebundenes Neutron wandelt sich durch spontanen  $\beta$ -Zerfall in ein Proton um. Die korrespondierende Lebensdauer dieses freien Neutrons  $\tau_n$  spielt eine wichtige Rolle bei der Beschreibung von fundamentalen Wechselwirkungen der Physik. Beispielsweise wurde die Bildung der ersten Atomkerne nach dem Urknall, die sog. *Primordiale Nukleosynthese*, stark von der Neutronenlebensdauer beeinflusst.

Der Weltmittelwert der Neutronenlebensdauer wurde 2011 auf Grund von drei neuen Experimenten von 887 s auf 880 s abgesenkt. Infolgedessen musste seine Unsicherheit deutlich angehoben werden. Diese sehr unbefriedigende Situation wird auch als „*Puzzle of Neutron Lifetime*“ bezeichnet und Forscher sind weltweit zu einer Klärung durch neue Experimente animiert. Sehr energiearme Neutronen (sog. *ultrakalte*) Neutronen sind dabei als Untersuchungsgegenstand prädestiniert, da sie in geeigneten Gefäßen über lange Zeiträume gespeichert werden können. Von besonderer Bedeutung für die Genauigkeit der Speichermessungen ist die Güte des Wandmaterials. Hier werden häufig Fluorpolymere auf Grund der geringen Verlustwahrscheinlichkeit beim Wandstoß verwendet.

Im Rahmen dieser Promotionsarbeit wurde ein Experiment zur Untersuchung der Speichereigenschaften eines neuen Fluorpolymers entwickelt. Es sollte außerdem die Grundlage für ein weiteres Lebensdauerexperiment bilden. Das Polymer war ein perfluorierter Polyether mit einem besonders niedrigen Schmelzpunkt von ca.  $-160^\circ\text{C}$ . Bei diesen Temperaturen können Speicherverluste durch unelastische Hochstreuung der Neutronen reduziert werden. Im Rahmen eines Forschungsaufenthalts am Reaktor ILL in Grenoble, Frankreich, wurde das Experiment erstmals vollständig getestet und Speichermessungen mit dem neuen Polymer durchgeführt. Die vorhergesagten Speichereigenschaften konnten dabei zwar noch nicht bestätigt werden. Das gesamte Experiment mit den zahlreichen mechanischen und elektronischen Komponenten, dem Kühlsystem für kryogene Temperaturen und der Datenerfassung funktionierten allerdings einwandfrei.

Das konstruierte Experiment bietet daher die Grundlage für konkretere Untersuchungen an Fluorpolymeren. Nach wenigen Modifikationen wären auch Lebensdauerermessungen möglich, die ein weiteres Puzzleteil liefern könnten.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>v</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>xi</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>xiii</b>
<b>1. Einleitung und Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2. Theoretische Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1. Das Neutron	5
2.1.1. Ultrakalte Neutronen - Eigenschaften und Produktion	6
2.1.2. Fundamentale Wechselwirkungen	9
2.1.3. Wechselwirkung von UCN mit Oberflächen	11
2.1.4. Speicherexperimente mit UCN	15
2.2. Die Neutronenlebensdauer	19
2.2.1. $\beta$ -Zerfall und Standardmodell	19
2.2.2. $\beta$ -Zerfall und Kosmologie	21
2.2.3. Puzzle of Neutron Lifetime	24
2.2.4. Bestimmung der Neutronenlebensdauer	26
2.2.5. Aktuell geplante Experimente	29
<b>3. UCN-Wandspeichermaterial PFMO</b>	<b>33</b>
3.1. Eigenschaften und Synthese von perfluorierten Polyethern	33
3.1.1. Glasübergang und Schmelzpunkt bei Polymeren	34
3.1.2. Synthese, physikalische und chemische Eigenschaften von PFMO	35
3.2. Charakterisierung des verwendeten Polymers	36
3.2.1. Physikalische Eigenschaften	37
3.2.2. Chemische Analysen - NMR und NAA	38
3.2.3. Charakteristik als Neutronenspeichermaterial	41
3.3. Beschichtungs- und Kühlversuche mit PFMO	43
3.3.1. Apparatur für Beschichtungstests	44
3.3.2. Ergebnisse und Erkenntnisse der Beschichtungstests	45
3.3.3. Erkenntnisse zur Temperaturregelung	47
3.3.4. Rückgewinnung des Polymers	47
3.4. Zusammenfassung	48
<b>4. Experimenteller Aufbau</b>	<b>51</b>
4.1. Überblick	51
4.2. Vakuumkammer und -system	53
4.3. Speicherkammer und Verschlussmechanismus	55
4.3.1. Neutronenleiter und Strahlweiche	55

4.3.2.	UCN-Speicherkammer . . . . .	56
4.3.3.	Verschluss der Speicherkammer . . . . .	57
4.4.	Kühlsystem und Temperaturmessung . . . . .	60
4.4.1.	Aufbau des Kühlsystems . . . . .	60
4.4.2.	Temperaturmessung und Entwicklung von Temperatursensoren . . . . .	62
4.4.3.	Elektronik und Steuerung des Kühlsystems . . . . .	65
4.5.	Apparatur und Vorgehensweise zur Beschichtung . . . . .	68
4.5.1.	Anforderung an die Beschichtung und den Prozess . . . . .	68
4.5.2.	Aufbau des Beschichtungssystems . . . . .	69
4.5.3.	Beschichtungsablauf und Konditionierung . . . . .	72
4.5.4.	Beschichtungskontrolle . . . . .	73
4.5.5.	Rückgewinnung . . . . .	76
4.6.	UCN-Detektoren . . . . .	76
4.6.1.	Hauptdetektor . . . . .	77
4.6.2.	Monitordetektoren . . . . .	78
4.6.3.	Detektor-Elektronik und Software . . . . .	82
4.7.	Energievariation . . . . .	82
4.7.1.	Lithium-Stearat-Absorber . . . . .	83
4.7.2.	Bor-Absorber . . . . .	84
4.8.	Elektronik und Software zur Experimentsteuerung . . . . .	85
4.8.1.	Elektronik . . . . .	85
4.8.2.	Software . . . . .	86
4.9.	Zusammenfassung . . . . .	88
<b>5.</b>	<b>Ergebnisse der Strahlzeit am ILL</b>	<b>91</b>
5.1.	Ablauf der Strahlzeit . . . . .	92
5.1.1.	Aufbau . . . . .	92
5.1.2.	Übersicht der Messungen während der Strahlzeit . . . . .	93
5.2.	Messungen ohne Beschichtung in Titan . . . . .	95
5.2.1.	Durchflussmessungen zur Kalibrierung der Speicherdetektoren . . . . .	95
5.2.2.	Speichergüte von Titan . . . . .	96
5.3.	Ergebnisse der Speichermessungen in PFMO . . . . .	97
5.3.1.	Ergebnisse . . . . .	98
5.3.2.	Speicherzeiten . . . . .	99
5.3.3.	Entleerzeiten . . . . .	100
5.3.4.	Temperaturabhängigkeit der Speichergüte . . . . .	102
5.4.	Beschichtung mit PFMO . . . . .	106
5.4.1.	Optische Kontrolle des Beschichtungsvorgangs . . . . .	107
5.4.2.	Konditionierung der Polymerbeschichtung . . . . .	109
5.5.	Analyse der Polymerschicht mit den Speicherdetektoren . . . . .	111
5.5.1.	Probleme beim Einsatz während der Strahlzeit . . . . .	111
5.5.2.	Reinigung und Untergrundkorrektur der Daten . . . . .	112
5.5.3.	Bestimmung der Zählrate während des Einlass' . . . . .	113
5.5.4.	Bestimmung der Zählraten während der Speicherung . . . . .	116
5.6.	Ergebnisse der Speichermessungen mit Absorber . . . . .	120

<b>6. Diskussion</b>	<b>125</b>
6.1. Ergebnisse der Strahlzeit . . . . .	125
6.1.1. Schlechte Reflexionseigenschaften . . . . .	126
6.1.2. Unzureichende Beschichtung der Innenflächen . . . . .	127
6.2. Experimentaufbau . . . . .	129
6.2.1. Beschichtungssystem und -prozess . . . . .	129
6.2.2. Verschluss der Speicherkammer . . . . .	130
6.2.3. Kühlsystem . . . . .	131
6.2.4. Speicherdetektoren . . . . .	133
6.3. Fazit . . . . .	134
<b>7. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>137</b>
<b>A. Literatur</b>	<b>139</b>
<b>B. NMR-Spektren von PFMO</b>	<b>151</b>
<b>C. Speichermessungen</b>	<b>155</b>
C.1. UCN-Summen und Speicherkurven aller Messzyklen . . . . .	155
C.2. Einfluss der Konditionierung auf die UCN-Summen . . . . .	164
C.3. Entleerkurven . . . . .	167
C.4. Zählraten während der Speicherung . . . . .	168
<b>D. Danksagung</b>	<b>169</b>



# Abbildungsverzeichnis

2.1. UCN-Quelle am ILL. . . . .	8
2.2. Feynman-Diagramm des Neutronenzerfalls. . . . .	19
2.3. Kernreaktionen nach dem Urknall. . . . .	22
2.4. Zulässige Helium- und Bayronen-Masseanteile im Vergleich mit der Lebensdauer. . . . .	24
2.5. Zeitliche Darstellung der Ergebnisse der Lebensdauer . . . . .	25
2.6. Extrapolation im Gravitrap-Experiment zur Eliminierung von Wandverlusten. . . . .	29
3.1. Beispiel für einen verzweigten, perfluorierten Polyether. . . . .	34
3.2. Strukturformel von PFMO. . . . .	36
3.3. Thermogramm von PFMO . . . . .	37
3.4. Strukturformeln von PFMO und Lösungsmittel mit Atomnummern. . . . .	39
3.5. <sup>19</sup> F-NMR-Spektrum von PFMO. . . . .	40
3.6. Vakkumkammer für Beschichtungstests. . . . .	43
3.7. Kupferplatten der Testapparatur . . . . .	44
3.8. Beschichtung der vertikalen Platte auf einer unbearbeiteten Oberfläche. . . . .	45
3.9. Beschichtungstests an der vertikalen Platte. . . . .	46
3.10. Beschichtung der horizontalen Platte auf den Rillen. . . . .	47
4.1. Experimenteller Aufbau im Querschnitt . . . . .	52
4.2. Strahlweiche im Querschnitt. . . . .	55
4.3. Verschlussmechanismus im Querschnitt. . . . .	58
4.4. Foto des geschlossenen Verschlusses . . . . .	59
4.5. Regelventile am Stickstoffdewar. . . . .	60
4.6. Komponenten des Kühlsystems . . . . .	62
4.7. Temperatursensoren im Querschnitt und Foto. . . . .	64
4.8. Elektronik des Kühlsystems . . . . .	65
4.9. Software des Kühlsystems . . . . .	66
4.10. Skizze des Beschichtungssystems . . . . .	70
4.11. Komponenten des Beschichtungssystems: Sprühdüse und Glaskolben. . . . .	71
4.12. Kamerabild während der Beschichtung. . . . .	74
4.13. Kühlfalle bei der Strahlzeit 2013. . . . .	76
4.14. MCA-Spektrum PIPS-Detektoren . . . . .	78
4.15. Kühlversuche mit PIPS-Detektoren . . . . .	79
4.16. PIPS-Detektoren bei Tests am ILL . . . . .	80
4.17. Energieabhängigkeit der Detektoreffizienz . . . . .	80
4.18. UCN-Detektoren im Speichervolumen. . . . .	81
4.19. Absorber zur Energievariation bei den Experimenten 2013 und 2015. . . . .	83
4.20. Der Rackwagen enthielt fast die gesamte Steuerelektronik des Experiments. . . . .	85
4.21. Benutzeroberflächen der Experimentsteuersoftware. . . . .	87
5.1. Signal der Speicherdetektoren bei Durchflussmessungen. . . . .	96
5.2. Speicherkurve von Titan . . . . .	97
5.3. Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen . . . . .	98
5.4. Speicherkurven nach der ersten Beschichtung . . . . .	99

5.5. Entleerzeiten aller Speichermessungen. . . . .	101
5.6. UCN-Summen und Temperaturverlauf nach der ersten Beschichtung. . . . .	103
5.7. UCN-Summen- und Temperaturanstieg während der Konditionierung in den Messzyklen 1, 4 und 9. . . . .	104
5.8. UCN-Summen- und Temperaturverlauf nach der Konditionierung in den Zyklen 1 und 8. . . . .	105
5.9. Fotoaufnahmen der Speicherinnenwand vor, während und nach der Beschichtung	108
5.10. Foto der Speicherinnenwand nach der 3. Beschichtung. . . . .	109
5.11. Foto der Speicherinnenwand beim Phasenübergang des PFMO. . . . .	110
5.12. Detektorsignal Speicherkammer . . . . .	112
5.13. Zählraten der Speicherdetektoren - Zyklus 4 - mit gespeicherten UCN . . . . .	114
5.14. Zählraten der Speicherdetektoren - Zyklus 7 - mit UCN und Temperatur . . . . .	115
5.15. Zählraten während der Speicherung - Zyklus 4 . . . . .	117
5.16. Zählraten während der Speicherung - Zyklus 7 . . . . .	118
5.17. Zählraten während der Speicherung von Messung 1927 . . . . .	119
5.18. UCN-Speichersummen und Entleerzeiten bei den vier Positionen des Absorbers	121
5.19. UCN-Summen und Temperaturverlauf bei den Messungen mit Absorber. . . . .	122
5.20. Zählraten der Speicherdetektoren während Einlass und Speicherung. . . . .	123
6.1. Temperaturtrends während des Aufwärmens und bei konstanter Kühlung. . . . .	132
B.1. $^{19}\text{F}$ -NMR-Spektren. . . . .	152
B.2. $^{13}\text{C}$ -NMR-Spektren. . . . .	153
C.1. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 1. . . . .	156
C.2. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 2. . . . .	157
C.3. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 3. . . . .	158
C.4. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 4. . . . .	159
C.5. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 5. . . . .	160
C.6. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 6. . . . .	161
C.7. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 8. . . . .	162
C.8. UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 9. . . . .	163
C.9. Messzyklus 1 . . . . .	164
C.10. Messzyklus 2 . . . . .	164
C.11. Messzyklus 3 . . . . .	164
C.12. Messzyklus 4 . . . . .	164
C.13. Messzyklus 5 . . . . .	165
C.14. Messzyklus 6 . . . . .	165
C.15. Messzyklus 7 . . . . .	165
C.16. Messzyklus 8 . . . . .	165
C.17. Messzyklus 9 . . . . .	166
C.18. Entleerkurve von Messung Nr. 1086. . . . .	167
C.19. Entleerkurve von Messung Nr. 1087. . . . .	167
C.20. Verläufe der Zählraten der Speicherdetektoren während der Speicherung. . . . .	168

## Tabellenverzeichnis

2.1. Bezeichnungen und Einteilung von Neutronen in Abhängigkeit ihrer Energie. . .	6
2.2. Effektives Potential, Absorptionsquerschnitt, Verlustrate typischer Materialien. . .	13
2.3. Ergebnisse von Experimenten zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer. . .	25
3.1. Dichte, Schmelzpunkt und Viskosität des verwendeten Polymers. . . . .	37
3.2. Signale im $^{19}\text{F}$ -NMR von PFMO und dem Lösungsmittel. . . . .	39
3.3. Molare Masse, Streulänge, Querschnitte zur Absorption und Hochstreuung der Elemente in PFMO. . . . .	42
4.1. Maße und Eigenschaften der Speicherkammer. . . . .	56
5.1. Übersicht der Beschichtungs- und Messzyklen während der Strahlzeit 2015. . .	94
5.2. Mittlere Zählraten $\bar{N}$ der Speicherdetektoren ohne Beschichtung. . . . .	95
5.3. Speicherzeiten der neun Messzyklen. . . . .	100
5.4. Parameter bei den neun Beschichtungszyklen. . . . .	106
5.5. Anfangs- und Endtemperaturen des Anstiegs der UCN-Summe während der Konditionierung. . . . .	109
5.6. Zeitkonstanten der Abnahme der Zählrate in den Speicherdetektoren. . . . .	118
5.7. Speicherzeiten und Entleerzeiten der Messungen mit Absorber. . . . .	120



# Kapitel 1.

## Einleitung und Motivation

„*In principio creavit Deus caelum et terram.*“, übersetzte Martin Luther ins Deutsche: „Im Anfang schuf Gott Himmel und Erde.“<sup>1</sup> Über viele Jahrhunderte wurde dieser Satz zur Beantwortung der Fragen „*Woher kommen wir? Was ist der Ursprung aller Dinge?*“ herangezogen. Aber erst viele Generationen später wurde berechtigte Kritik an dieser Darstellung laut. Dabei hatte bereits ARISTOTELES Überzeugung, dass die Erde Kugelform besitzt, Zweifel an dieser These aufkommen lassen (um 350 v. Chr.). Mit der ersten Weltumsegelung konnte FERDINAND MAGELLAN im 16. Jahrhundert die Kugelform überzeugend nachweisen. Wenige Jahre später brachte die Erkenntnis von NIKOLAUS KOPERNIKUS und die Weiterentwicklung von GALILEO GALILEI, dass die Erde nicht den Mittelpunkt des Universums bildet, das bisher geltende geozentrische Weltbild zum Einsturz. Dieser wissenschaftliche Fortschritt brachte Galilei allerdings vor das Inquisitionsgericht der katholischen Kirche und Hausarrest bis ans Lebensende. Nachdem schließlich ISAAC NEWTON die gegenseitigen Wechselwirkungen der Erde und anderer Materiekörper im Universum bewiesen hatte, war die Wissenschaft gefordert, neue Modelle zum Ursprung unserer Welt zu entwickeln. Eine Ironie des Schicksals, dass gerade der katholische Theologe und Astrophysiker GEORGES LEMAÎTRE im Jahr 1927 seine Theorie zur Expansion des Universums postulierte. [Pla]

Den Zeitpunkt vor Beginn dieser Expansion markiert der sogenannte Urknall. Die anschließende, gemeinsame Entstehung von Raum, Zeit und Materie aus einem Zustand der Singularität und unendlicher Energiedichte beschreibt die Urknalltheorie (engl. Big Bang Theory, BBT). Sie ist allerdings nur für den Zeitraum nach dem Urknall gültig, der größer als die Planck-Zeit (ca.  $10^{-43}$  s) und kleiner als 400 000 Jahre ist. Innerhalb dieses Zeitraumes setzte die Bildung der ersten Atomkerne ein. Neben den Isotopen von Wasserstoff (ca. 75 % Massenanteil), Helium (ca. 25 %) und Lithium enthielt diese Ursuppe auch ungebundene Neutronen.

---

<sup>1</sup>Aus dem Griechischen: Altes Testament, Genesis 1,1

Das Ausmaß der weiteren *Primordialen Nukleosynthese* von Atomkernen mit diesen freien Neutronen wurde stark durch ihren spontanen  $\beta$ -Zerfall beeinflusst. Vereinfacht gesagt: Je wahrscheinlicher, also je schneller der Zerfall eintrat, umso neutronenärmer (und protonenreicher) wurden die Atomkerne. Die korrespondierende Neutronenlebensdauer  $\tau_n$  stellt eine wichtige physikalische Konstante zur Beschreibung der Entwicklung unserer Welt dar. Außerdem trägt die genaue Kenntnis dieses Wertes zur Überprüfung des Standardmodells der Teilchenphysik bei. [AOS10]

Seit Jahrzehnten wird die Lebensdauer daher auf verschiedene Weisen bestimmt. Die Ergebnisse von zwei neueren Experimenten führten allerdings zu einer Abweichung des bisherigen Weltmittelwertes der *Particle Data Group* (PDG). Infolgedessen kam es neben der Anpassung des PDG-Wertes auch zu einer Vergrößerung der Ungenauigkeit. Aktuell<sup>2</sup> liegt das Mittel der Neutronenlebensdauer bei  $\tau_n = (880,0 \pm 0,9)$  s. Diese sehr unbefriedigende Situation wird auch als „*Puzzle of Neutron Lifetime*“ bezeichnet und Forscher sind weltweit zu einer baldigen Klärung durch neue Experimente animiert. Diesem Aufruf sind viele Forschergruppen gefolgt. Neben der erneuten Auswertung alter Ergebnisse sind einige neue Experimente geplant. [Sol+09]

Einen Beitrag zur Lösung des Puzzles soll das im Rahmen der vorliegenden Promotionsarbeit<sup>3</sup> entworfene und durchgeführte Experiment liefern. Es wurde für die Verwendung von äußerst energiearmen (sog. Ultrakalten) Neutronen (UCN) entwickelt. Diese erfahren auf Grund ihrer geringen Energie an geeigneten Oberflächen Totalreflexion und können somit in materiellen<sup>4</sup> Behältern gespeichert werden. Während der Speicherung unterliegen sie nur dem  $\beta$ -Zerfall, aber auch andere Verlustkanäle reduzieren kontinuierlich die Neutronenzahl. Das Messprinzip wird daher als „Counting the Survivors“ bezeichnet. Aus den Zählraten der überlebenden Neutronen nach verschiedenen Speicherdauern kann eine charakteristische Speicherzeit bestimmt werden. Zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer müssen die Verluste in der Speicherkammer entweder minimiert oder in sehr guter Näherung bekannt sein.

An dieser Stelle soll kurz auf die wichtigsten Publikationen mit Bezug auf die Bestimmung der Neutronenlebensdauer verwiesen werden. Die Bedeutung des Neutrons für das Standardmodell und die Kosmologie sind detailliert von DUBBERS und SCHMIDT in [DS11] dargestellt. Die ausführlichste Grundlage über die verschiedenen Experimenttypen und Umsetzungen bietet

---

<sup>2</sup>PDG 2015 [Oli14]

<sup>3</sup>Das Projekt wurde von Februar 2012 bis April 2016 am Institut für Kernchemie der Johannes Gutenberg Universität Mainz durchgeführt.

<sup>4</sup>Es ist auch die magnetische Speicherung möglich.

---

*The Neutron Lifetime* [WG11]. Einen kurzen Überblick über geplante Experimente verschafft [Bow+14]. Ebenfalls aus dem Jahr 2014 stammt eine gründliche Zusammenfassung der aktuellen und geplanten Experimente, die auch die zur Zeit verfügbaren UCN-Quellen und die theoretischen Grundlagen kurz diskutiert: [You+14].

In [Kapitel 2](#) dieser Arbeit wird die Bedeutung der Neutronenlebensdauer in der aktuellen Forschung im Detail dargelegt. Es enthält außerdem die zum Verständnis notwendigen physikalischen Grundlagen zu *Ultrakalten Neutronen* im Allgemeinen und zu entsprechenden Lebensdauerexperimenten im Besonderen.

Das Innovative an dem im Folgenden beschriebenen Experiment ist die Verwendung eines neuen Speichermaterials. Es ist ein perfluoriertes Polymer, das auf die inneren Wände der Speicherkammer aufgetragen wird. Die theoretisch vorhergesagten Eigenschaften sind vielversprechend, ein Schwerpunkt der Arbeit war daher auch die Charakterisierung des Polymers. Da im späteren Experiment eine Abkühlung der Speicherkammer auf  $-190\text{ °C}$  notwendig war, fanden entsprechende Untersuchungen zum Temperaturverhalten des Polymers statt. Diese Ergebnisse und die Erkenntnisse zum Umgang mit der Substanz werden in [Kapitel 3](#) präsentiert.

Der komplette Aufbau des bei der Strahlzeit 2015 verwendeten Experiments ist in [Kapitel 4](#) vorgestellt. Besondere Aufmerksamkeit wurde dem Kühlsystem und der Konstruktion handlicher UCN-Detektoren gewidmet. Es werden auch die Erkenntnisse eines vorangegangenen Forschungsaufenthalts im Jahr 2013 diskutiert und die resultierenden Verbesserungen vorgestellt.

In [Kapitel 5](#) werden die Ergebnisse der Strahlzeit präsentiert. Es folgt eine kritische Diskussion, bei der insbesondere die für ein Experiment zur Bestimmung der Lebensdauer wichtigen Rahmenbedingungen betrachtet werden.

Eine Zusammenfassung der Auswertung und die notwendigen Optimierungen zur Durchführung von Lebensdauermessungen werden in [Kapitel 6](#) vorgestellt.



## Kapitel 2.

### Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die physikalischen Eigenschaften und Wechselwirkungen des freien Neutrons, insbesondere der  $\beta$ -Zerfall, betrachtet. Weiterhin wird auf die besonders energiearmen, ultrakalten Neutronen (UCN), ihre Erzeugung und Wechselwirkung mit anderen Materieteilchen eingegangen, da dies zum Verständnis von Neutronenspeicherexperimenten wichtig ist. Im Anschluss wird die Bedeutung der Neutronenlebensdauer für das Standardmodell und die kosmologische Forschung dargelegt. Abschließend wird das sogenannte *Puzzle of Neutron Lifetime* erläutert. Dazu werden auch die Anforderungen an entsprechende Lebensdauerexperimente angegeben und Experimente, die an einer Klärung des Puzzles arbeiten, vorgestellt.

#### 2.1. Das Neutron

Die Geschichte des Neutrons beginnt nach den meisten Beschreibungen im Jahr 1932, nachdem James Chadwick sein Nachweis gelungen war und ihm auch den Namen auf Grund seiner nicht beobachteten Wechselwirkung mit elektrischen Feldern gegeben hatte [Cha32]. Allerdings hatte Chadwicks Lehrer, Ernest Rutherford, bereits 12 Jahre zuvor die Existenz eines solchen Teilchens postuliert. Damals in der Annahme, dass es sich um einen stark gebundenen Elektron-Proton Zustand handle. Durch energetische Berechnungen der neu aufkommenden Quantenmechanik konnte allerdings gezeigt werden, dass nicht ausreichend Energie zur Bindung von Elektronen an das Proton verfügbar ist. Außerdem zeigten Berechnungen von ALVAREZ und BLOCH, dass es sich nicht um ein Elementarteilchen handeln kann. Wegen des anomalen magnetischen Momentes sei es vielmehr ein zusammengesetztes Teilchen. [FM47]

Das Neutron besteht aus zwei *down*-Quarks sowie einem *up*-Quark und besitzt daher einen halbzahligen Spin. Folglich gehört es wie das Proton zur Gruppe der Baryonen, besitzt aber eine um 1,3 MeV größere Ruhemasse von 940 MeV. Im Gegensatz zu freien Neutronen sind die im Atomkern gebundenen stabil.

### 2.1.1. Ultrakalte Neutronen - Eigenschaften und Produktion

Die experimentellen Möglichkeiten zur Erforschung der Eigenschaften des Neutrons stießen bald nach seiner Entdeckung an eine Grenze: Die Neutronen aus den früheren (Experiment von Bloch [BNS48]) und später dann üblichen Quellen (Kernspaltung im Reaktor oder Spallation im Teilchenbeschleuniger) erlaubten auf Grund der hohen kinetischen Energien nur sehr kurze Beobachtungszeiten. Mit diesen *schnellen* Neutronen (MeV-Bereich) wären alle modernen Experimente zur Bestimmung der Ladung<sup>1</sup>, des EDM<sup>2</sup> oder der Lebensdauer nicht möglich. Da der Wechselwirkungsquerschnitt von Neutronen sehr stark mit ihrer Geschwindigkeit korreliert, wird sie zu einer energetischen Einteilung verwendet. Es existieren allerdings keine exakten Grenzen. Einen Überblick, auch über die umgangssprachlichen Bezeichnungen, gibt [Tabelle 2.1](#).

**Tabelle 2.1.:** Übliche Bezeichnungen und Einteilung von Neutronen mit Beispielen für typische Energien und den korrespondierenden Werten für Geschwindigkeit und Temperatur.

Name	Energie $E_{\text{kin}}$	Geschwindigkeit $v$	Temperatur $T$
ultrakalt (UCN)	< 300 neV	8 m/s	3 mK
sehr kalt (VCN)	< 131 meV	50 m/s	101 mK
kalt	< 1 meV	500 m/s	8 K
thermisch	< 25,4 meV	$2,2 \cdot 10^3$ m/s	290 K
epithermisch	< 10 eV	$43 \cdot 10^3$ m/s	77 kK
schnell	< 10 keV	$1,38 \cdot 10^6$ m/s	77 MK
relativistisch	< 20 MeV	$62 \cdot 10^6$ m/s	155 GK

Die Neutronen mit der geringsten Energie werden ultrakalte Neutronen (engl. UCN) genannt. Sie zeigen eine Eigenschaft, welche auch für ihre Definition verwendet wird: Von den meisten Materialien werden sie unter jedem beliebigen Einfallswinkel totalreflektiert. Dieses Verhalten wurde bereits 1936 von FERMI postuliert [FA36]. Es ist also möglich, sie in geeigneten Gefäßen (z.B. aus Edelstahl oder Nickel) zu speichern und bis zu ihrem Zerfall zu untersuchen. Erst

<sup>1</sup>Sollte die elektrische Ladung nicht quantisiert sein, könnten vermeintlich neutrale Teilchen (z.B. Neutronen) eine winzige Ladung tragen. [Sie15]

<sup>2</sup>Permanentes, elektronisches Dipolmoment. [Zen13]

über 30 Jahre später konnten zwei unabhängige Versuche in München und Dubna (Russland) dieses Verhalten nachweisen. Sie begründeten damit auch zwei grundsätzlich verschiedene Experimenttypen mit ultrakalten Neutronen: Strahl- und Speicherexperimente. SHAPIRO ET AL. (Dubna) nutzen einen horizontalen Neutronenleiter zur Speicherung von UCN. STEYERL ET AL. (München) führten die Neutronen über einen vertikalen Leiter aus dem Reaktorkern und zeigten dadurch auch den starken Einfluss der Gravitation auf die Energie der Neutronen. [GRL91]

### Erzeugung von ultrakalten Neutronen

Freie Neutronen entstehen in hoher Zahl entweder durch Kernspaltung zum Beispiel in einem Reaktor oder durch Spallation an einem Target im Teilchenbeschleuniger. Die emittierten Neutronen besitzen sehr große Energien ( $> 2\text{ MeV}$ ) und werden in mehreren Schritten zu ultrakalten Neutronen abgebremst:

1. Die Abkühlung von schnellen Neutronen durch elastische Stöße mit einem Moderator (z.B.  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{D}_2\text{O}$ , Graphit) erzeugt thermische Neutronen. Dabei stellt sich ein thermisches Gleichgewicht zwischen Moderator und Neutronendichte ein. In einem klassischen Kernreaktor ist dies der gleiche Moderator, der auch zum Aufrechterhalten der Kettenreaktion notwendig ist.
2. Durch die Verwendung eines weiteren, tiefkalten Moderators (z.B. flüssiges Deuterium) werden die Neutronen auf einige meV (*kalte Neutronen*) weiter abgekühlt.
3. Die Erzeugung von UCN aus kalten Neutronen kann dann durch die Verschiebung des Neutronenspektrum auf zwei Arten erfolgen [Lau10]:
  - a) Durch Gravitation und elastische, mechanische Stöße an rotierenden Schaufelrädern (Beispiel: ILL [Ste+86]).
  - b) Durch inelastische Streuung der kalten Neutronen an einem Konverter (z.B. festes  $\text{D}_2$  oder superflüssiges He) in einer superthermischen UCN-Quelle (Beispiele: TRI-GA Forschungsreaktor Mainz [Fre+07; Fre+10] oder PSI<sup>3</sup> Protonenbeschleuniger [Lau12]).

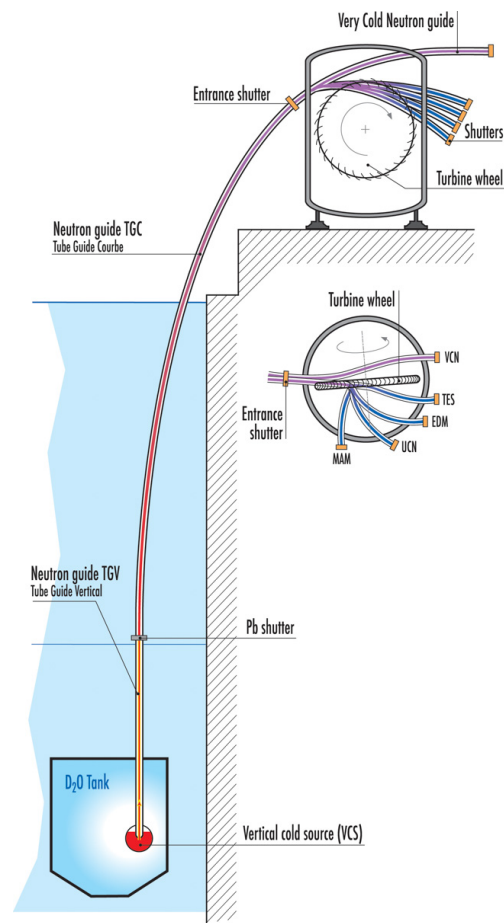
Die Messungen mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Experiment wurden am Instrument PF2<sup>4</sup> des Instituts Laue-Langevin (ILL) in Grenoble (Frankreich) durchgeführt. Daher soll

<sup>3</sup>Paul Scherer Institut, Villingen, Schweiz.

<sup>4</sup>franz.: Physique fondamentale 2

diese UCN-Quelle näher beschrieben werden. Allerdings wurde bei der Konstruktion des Experiments bewusst auch ein möglicher Einsatz am TRIGA Mainz vorgesehen. Die dortige UCN-Quelle wird gepulst eingesetzt und ist somit prädestiniert für Speicherexperimente. Mit einem Puls kann die Speicherkammer vollständig gefüllt werden. [Kar+14]

Am ILL werden in einem Kernreaktor mit 54 MW Leistung schnelle Neutronen erzeugt. Die erste Moderation erfolgt durch das Wasser im Reaktorbecken zu thermischen Neutronen. In der vertikalen *Kalten Quelle* werden sie durch flüssiges Deuterium (25 K) weiter abgekühlt (vgl. [Abbildung 2.1](#)). Dabei stellt sich ein thermisches Gleichgewicht mit einem Neutronenspektrum um diese Temperatur ein. Von der Kalten Quelle werden die Neutronen durch einen nickelbeschichteten Extraktionsleiter aus dem Reaktorbecken nach oben befördert. Zum einen reduziert sich dabei die kinetische Energie auf Grund der Gravitation, zum anderen findet eine Energieselektion durch die Geometrie des Neutronenleiters statt. Wegen des speziellen Krümmungsradius' des Extraktionsleiters (13 m) und der Reflektivität von Nickel bis zu einer senkrechten Neutronengeschwindigkeit von  $v_{\perp} = 8 \text{ m/s}$ , können nur Neutronen mit Geschwindigkeiten bis  $50 \text{ m/s}$  das obere Ende erreichen. Gemäß [Tabelle 2.1](#) entspricht dies dem Spektrum von sehr kalten Neutronen (VCN). Die weitere Abkühlung zu



**Abbildung 2.1.:** UCN-Produktion am ILL: Aus der vertikalen kalten Quelle werden die schnellen Neutronen über den Extraktionsleiter zur UCN-Turbine befördert und dort abgebremst. Quelle: ILL

UCN erfolgt durch mechanische Stöße in der sogenannten STEYERL-Turbine. Das Turbinenrad dreht sich mit 230 U/min und trägt 690 nickelbeschichtete Schaufeln. Diese bewegen sich mit  $25 \text{ m/s}$ , also der halben, longitudinalen Neutronengeschwindigkeit, vom Strahl weg und bremsen die VCN dadurch bis auf transversale Geschwindigkeiten unter  $8 \text{ m/s}$  ab. Die UCN-Quelle am ILL gilt als die leistungsstärkste der Welt, weshalb viele bedeutende UCN-Experimente der letzten Jahrzehnte dort durchgeführt wurden. [Ste+86]

An vier Strahlplätzen des Instruments PF2 werden die UCN den Experimentatoren zur Verfügung gestellt: UCN, MAM und EDM bieten die volle Neutronendichte von  $40 \text{ UCN}/\text{cm}^3$ , allerdings kann der Strahl nur jeweils von einem Experiment gleichzeitig genutzt werden und wird daher regelmäßig umgeschaltet. Am TES-Platz kann dagegen ein kontinuierlicher Strahl verwendet werden, allerdings beträgt dort die Neutronendichte nur etwa 2,5 % im Vergleich zu den drei Hauptstrahlplätzen.

Neben dieser UCN-Quelle PF2 wurde kürzlich eine zweite am ILL gebaut, sie trägt den Namen *SUN 2* und beruht auf einer Abkühlung mit superflüssigem Helium. [ZG15]

### 2.1.2. Fundamentale Wechselwirkungen

Das Neutron unterliegt den vier bekannten, fundamentalen Kräften der Teilchenphysik. Mit Blick auf Lebensdauermessungen in materiellen Speicherbehältern sind drei dieser Wechselwirkungen von besonderem Interesse: Die Schwache, die Starke Wechselwirkung und Gravitation. Erste erklärt den  $\beta$ -Zerfall des freien Neutrons, die zweite beschreibt das Verhalten beim Kontakt mit Materie und die Gravitationswechselwirkung erlaubt Speichermessungen in einem nach oben geöffnetem Behälter. [Abe08]

#### Gravitationswechselwirkung

Die Gravitationswechselwirkung beschreibt die attraktive Kraft zwischen zwei massetragenden Körpern. Im Vergleich zu den üblicherweise hohen Energien von Partikeln in der Teilchenphysik kann ihre Wirkung meistens vernachlässigt werden. Bei Experimenten mit energiearmen UCN hat sie jedoch erheblichen Einfluss auf die Teilchentrajektorie. Im Gravitationsfeld der Erde ( $g \approx 9,81 \frac{\text{m}}{\text{s}^2}$ ) ergibt sich das Potential der Neutronen mit der Masse  $m_N = 1,67 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$  durch

$$\Delta V_g = m_N g \cdot \Delta h \approx 102 \frac{\text{neV}}{\text{m}} \cdot \Delta h \quad (2.1)$$

wobei  $\Delta h$  die Höhendifferenz angibt. Ein Meter Fallhöhe entspricht somit einem Zugewinn an kinetischer Energie von 102 neV. Bei den typischen kinetischen Energien von UCN im Bereich von wenigen 100 neV sind die Steighöhen folglich auf einige Meter begrenzt. Unter anderem diese Eigenschaft wird im vorgestellten Experiment zur Speicherung verwendet: Der Behälter muss oben nicht verschlossen werden, da nur die Neutronen gespeichert werden sollen, deren maximale Steighöhe unterhalb der Kammerhöhe liegt. [GRL91]

### Schwache Wechselwirkung

Die Schwache Wechselwirkung ist für die Instabilität des freien Neutrons verantwortlich. Es zerfällt unter Umwandlung eines  $d$ -Quarks in ein  $u$ -Quark in ein Proton, ein Elektron und ein Elektron-Antineutrino gemäß

$$n \longrightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e + 783 \text{ keV.} \quad (2.2)$$

Der Neutronenzerfall wird im nächsten [Abschnitt 2.2](#) genauer betrachtet. Der von der *Particle Data Group* 2015 veröffentlichte Mittelwert der Neutronenlebensdauer [[Oli14](#)] liegt bei

$$\tau_n = (880,3 \pm 1,1) \text{ s.} \quad (2.3)$$

Der Fehler ist mit über einer Sekunde sehr groß und der großen Diskrepanz zwischen früheren und aktuellen Experimenten geschuldet. Dieses *Puzzle of Neutron Lifetime* wird im [Abschnitt 2.2.3](#) genauer vorgestellt und diskutiert. [[GRL91](#)]

### Starke Wechselwirkung

Die Starke Wechselwirkung beschreibt die attraktive Kraft zwischen den Quarks in Mesonen und Baryonen und auch zwischen den Nukleonen eines Atomkerns. Die Vermittlung erfolgt in beiden Fällen über Gluonen. Ein im Atomkern gebundenes Nukleon befindet sich in einem kastenförmigen Potential mit typisch  $V_0 = -40 \text{ MeV}$ . Eine realistische Beschreibung dieses Potentials bietet das sogenannte Woods-Saxon-Potential, da es „abgerundete“ Ecken des Kastens erlaubt.

Tritt ein freies Neutron mit einem Atomkern in Wechselwirkung, kann es entweder gestreut oder absorbiert werden. Als Folge der Absorption kommt es entweder zur Emission von  $\gamma$ -Strahlung ( $(n,\gamma)$ -Reaktion) oder eines geladenen Teilchens ( $(n,p)$ - oder  $(n,\alpha)$ -Reaktion). Die Kernreaktion unter Emission geladener Partikel wird für Neutronennachweise in Detektoren verwendet.

Vergleicht man die Energie und Reichweite des Kernpotentials ( $-40 \text{ MeV}$  und  $10^{-15} \text{ m}$ ) mit der Energie und der Wellenlänge von UCN ( $100 \text{ neV}$  bzw.  $10^{-8} \text{ m}$ ) zeigen sich Differenzen von mehreren Größenordnungen. FERMI hat daher zur Beschreibung von Streuproblemen ein sogenanntes effektives Potential  $V_{\text{eff}}$  eingeführt. Dies erlaubte eine störungstheoretische Betrachtung der Streuung am Atomkern im Rahmen der Starken Wechselwirkung. [[GRL91](#)]

### Elektromagnetische Wechselwirkung

Das Neutron besitzt mit dem Spin  $\frac{1}{2} \hbar$  ein magnetisches Moment. Mit einem äußeren Magnetfeld  $\vec{B}(\vec{r})$  wechselwirkt dieses magnetische Dipolmoment des Neutrons und erzeugt ein Potential gemäß

$$V_m = -\vec{\mu} \cdot \vec{B}(\vec{r}) = \pm 60 \frac{\text{neV}}{\text{T}} \cdot B(r), \quad (2.4)$$

wobei das Vorzeichen aus der relativen Richtung des Spins zur Feldrichtung folgt. In einem inhomogenen Magnetfeld werden Neutronen auf Grund der Stern-Gerlach-Kraft beschleunigt. Sie erlaubt die Speicherung in magnetischen Behältern, wenn der Spin antiparallel zum Feld gerichtet und die Wechselwirkung damit repulsiv ist. Das entsprechende Potential beträgt  $V_m \pm 60 \text{ neV/T}$ . [Ezh+09]

Darüber hinaus wird in mehreren Experimenten sowohl nach einer Ladung als auch nach einem permanenten elektrischen Dipolmoment (EDM) des Neutrons gesucht.

#### 2.1.3. Wechselwirkung von UCN mit Oberflächen

Wie im vorangegangenen Abschnitt kurz dargestellt, kann die Interaktion von Neutronen und Atomkernen über die Starke Wechselwirkung beschrieben werden. Hauptsächlich kommt es dabei zur Streuung an dem sphärischen Kernpotential eines Nukleons, das eine Tiefe von ca.  $V_0 = 40 \text{ MeV}$  und einen Radius im Bereich  $R \approx 2 \text{ fm}$  besitzt. Die resultierende Wellenfunktion nach der Wechselwirkung ist die Summe aus der einlaufenden, ebenen Welle  $\psi_0(\vec{r})$  und der gestreuten, auslaufenden Kugelwelle  $\psi_s(\vec{r})$

$$\Psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) + \psi_s(\vec{r}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} + f(\theta) \frac{e^{i\vec{k}\vec{r}}}{r}. \quad (2.5)$$

Dabei ist  $\vec{k} = \frac{2\pi}{\lambda}$  der Wellen- und  $\vec{r}$  der Ortsvektor des freien Neutrons,  $\theta$  der Streuwinkel und  $f(\theta)$  die zunächst winkelabhängige Streuamplitude. Für den Drehimpuls  $l$  des am Kern vorbeifliegenden Neutrons gilt:  $l = m_N v \cdot d$ , mit dem Abstand  $d$  zum Streuzentrum. Damit der Drehimpuls auf das Streuzentrum übertragen werden kann, muss dieser mindestens  $l = 1 \hbar$  betragen, somit folgt:

$$l = m_N v \cdot d = p_n \cdot d = \frac{h}{\lambda} \cdot d \geq \hbar \iff \frac{d}{\lambda} \geq \frac{1}{2\pi}. \quad (2.6)$$

Bei der Betrachtung von UCN ist deren de Broglie-Wellenlänge ( $\approx 10 - 100 \text{ nm}$ ) im Vergleich mit der Reichweite der Kernkraft ( $R \approx 2 \text{ fm}$ ) allerdings sehr klein. Die Streuung besitzt

daher  $s$ -Wellencharakter (orbitaler Drehimpuls,  $l = 0$ ) ohne Übertragung eines Drehimpuls' vom Kern auf das Neutron. Da jede Winkelabhängigkeit der Streuamplitude ein von Null verschiedenes Drehmoment zur Folge hätte, gilt

$$f(\theta) = \text{const.} = -a. \quad (2.7)$$

Die Konstante  $a$  wird als Streulänge bezeichnet und beschreibt den Punkt, an dem die Extrapolation der gestreuten Wellenfunktion auf Null absinkt. Aus [Gleichung 2.5](#) folgt

$$\Psi(\vec{r}) \sim 1 - \frac{a}{\vec{r}} \quad (2.8)$$

und mit der Stetigkeitsbedingung des Streuproblems wird die Streulänge bestimmt zu:

$$a = R - \frac{\tan(KR)}{K} = R \left( 1 - \frac{\tan(KR)}{KR} \right). \quad (2.9)$$

Dabei ist  $K$  der Wellenvektor des Neutrons im Kern. Gemäß der von FERMI 1947 eingeführten Vorzeichenkonvention (Gl. 2.7) ist die Streulänge für fast alle Materialien positiv. Nur für wenige Elemente (z.B. Wasserstoff) ist  $KR > \tan(KR)$  und damit die Streulänge negativ. Eine Übersicht über die experimentell bestimmten Werte für diese Materialkonstante liefert [\[DL03\]](#).

## Das Fermi-Potential

Das Potential der Neutron-Nukleon-Wechselwirkung ist um mehrere Größenordnungen größer als die Energie der hier betrachteten Neutronen. Die Wellenfunktion des Neutrons ändert sich daher im Wirkungsbereich des Kernpotentials sehr stark. Eine Lösung des Streuproblems durch die Störungstheorie ist somit nicht möglich. Allerdings ist der Radius dieser Wechselwirkungszone sehr klein. FERMI erkannte aber, dass das starke, begrenzte Kernpotential  $V_0$  durch ein deutlich schwächeres, aber weitreichendes Kastenpotential ersetzt werden kann. Außerhalb des Kerns bewirkt es die gleiche Änderung der Wellenfunktion wie das ursprüngliche Potential  $V_0$ . Er nannte es *effektives Potential*  $V_{\text{eff}}$  [\[FA36\]](#). Für größere Abstände  $r$  des Neutrons vom Kern besitzt es eine vergleichbare Größe mit der Neutronenenergie und kann daher mit Hilfe der Störungstheorie berechnet werden. Es gilt:

$$V(r) = \begin{cases} -V, & r \leq r_0 \\ 0, & r > r_0 \end{cases} \quad (2.10)$$

Die störungstheoretische Berechnung mit einer Born-Näherung beschreibt die Streuung als eine Wechselwirkung zwischen einer  $s$ -Welle und einem äquivalenten  $\delta$ -Kernpotential. Die bisherigen Betrachtungen sind allerdings nur für die Wechselwirkung des Neutrons mit einem einzigen Kernpotential gültig. Das effektive Potential muss daher als Funktion der Summe der Streulängen  $a_i$  aller beteiligten Kerne an den Orten  $r_i$  beschrieben werden. Solange das Material keine Strukturen im Größenbereich der Wellenlänge der UCN besitzt, stellt es sich als eine homogene Oberfläche dar. Für das ortsunabhängige, effektive Wandpotential eines Festkörpers oder einer Flüssigkeit gilt nach der Herleitung aus [GRL91]:

$$V_{\text{eff}} = \frac{2\pi\hbar^2}{m_N} \cdot N a. \quad (2.11)$$

Dabei ist  $N$  die Teilchendichte des Festkörpers und  $a$  die kohärente Streulänge. Für einige Materialien, die im Rahmen dieser Arbeit mit UCN in Wechselwirkung treten, sind die effektiven Potentiale in [Tabelle 2.2](#) dargestellt.

**Tabelle 2.2.:** Effektives Potential, Absorptionsquerschnitt und energieunabhängiger Verlustkoeffizient ([Gleichung 2.15](#)) durch Absorption einiger typischer Materialien für thermische Neutronen, Quellen: [GRL91; Atc+05; Atc+07]. Die Werte von PFMO wurden in [Abschnitt 3.2.3](#) berechnet.

Material	$V_{\text{eff}} / \text{neV}$	$\sigma_{\text{tot}} / \text{barn}$	$\eta / 10^{-5}$
<b>Titan</b>	-48	58	
<b>Cu</b>	168	43,5	15,5
<b>Edelstahl</b>	190		8,5
<b>Al</b>	54	2,8	2,25
<b><math>^{10}\text{B}</math></b>	-3,2	3840	-
<b>Fomblin</b>	106		0,2
<b>PFMO</b>	96		0,04

## Reflexion von UCN

Analog zur Streuung von Licht kann die Reflexion von Neutronen an Materialoberflächen durch einen Brechungsindex  $n$  beschrieben werden. Mit den Wellenvektoren  $k_{in}$  und  $k_{out}$  für den einfallenden bzw. reflektierten Strahl erhält man  $n = \frac{k_{in}}{k_{out}}$ . Mit den entsprechenden Energien für beide folgt

$$n^2 = 1 - \frac{V_{\text{eff}}}{E_{\text{kin}}}. \quad (2.12)$$

Für Materialien mit einem Brechungsindex  $n < 1$  werden Neutronen an der Oberfläche reflektiert. Für die Speicherung von Neutronen sind daher materielle Gefäße interessant, welche die Bedingung

$$E_{\text{kin}} < V_{\text{eff}} \quad (2.13)$$

erfüllen. Neutronen werden dann beim Wandstoß unter allen Einfallswinkeln vollständig reflektiert. Allerdings besitzt die Wellenfunktion des Neutrons auch im Innern des Potentials eine nichtverschwindende Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Es dringt bis einige Hundert Å in das Material ein und kann dort wechselwirken. Zwei Prozesse führen dabei zu Neutronenverlusten:

1. **Absorption:** Neutroneneinfang und anschließende Kernreaktion unter Emission von z.B.  $\gamma$ -Strahlung.
2. **Hochstreuung:** Energieübertrag aus den thermischen Vibrationen der Atome und Moleküle der Oberfläche auf das Neutron. Bei dieser inelastischen Streuung gewinnt das Neutron so viel Energie, dass die Bedingung  $E_{\text{kin}} < V_{\text{eff}}$  nicht mehr erfüllt ist. Es wird daher bei einem weiteren Wandstoß nicht mehr reflektiert. Dieser Verlustkanal korreliert mit der Stärke der Oszillationen der Wandmoleküle und kann daher durch tiefe Temperaturen reduziert werden. Die hohen UCN-Verluste beim Kontakt mit Wasserstoff begründen sich in eben dieser Hochstreuung.

Die Verluste können durch ein imaginäres, effektives Kernpotential

$$W = \frac{\hbar}{2} \cdot N \cdot \sigma_l \cdot v \quad (2.14)$$

mit der Teilchenzahldichte  $N$ , dem Verlustquerschnitt  $\sigma_l = \sigma_{\text{abs}} + \sigma_{\text{upscat}}$  für Absorption und Hochstreuung und der Neutronengeschwindigkeit  $v$  beschrieben werden. Wegen  $\sigma_l \sim \frac{1}{v}$  ist das Potential geschwindigkeitsunabhängig. Mit den Gleichungen 2.11 und 2.14 erhält man daher die energieunabhängige Verlustrate pro Wandstoß

$$\eta = \frac{W}{V_{\text{eff}}} = \frac{\sigma_l v m_N}{4 \pi \hbar a} = \frac{\sigma_l}{2 \lambda a} \quad (2.15)$$

als eine charakteristische, materialabhängige Größe für Speichermaterialien. Ihre Größenordnung liegt im Bereich von  $10^{-6}$  bis  $10^{-5}$ . Unter der Bedingung  $W \ll V$  kann eine energie-

•

und winkelabhängige Verlustwahrscheinlichkeit  $\mu$  berechnet werden. Mit dem Winkel zur Oberflächennormalen  $\theta$  gilt

$$\mu(E, \theta) = 2\eta \left( \frac{E \cos^2 \theta}{V - E \cos^2 \theta} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.16)$$

Nach [Ign90] können UCN als ideales Gas betrachtet werden, wenn u.a. ihr Impuls isotrop verteilt ist. Bei den Wandraugkeiten in Speicherexperimenten ist diese Bedingung durch diffuse Reflexion nach kurzer Zeit erfüllt. Daher kann Gleichung 2.16 über den Einfallswinkel gemittelt werden:  $\cos \theta \, d\Omega = 2\pi \cos \theta \sin \theta \, d\theta = -2\pi \cos \theta \, d(\cos \theta)$ . Man erhält die gemittelte Verlustwahrscheinlichkeit pro Wandstoß, die nur noch von der Energie der UCN abhängig ist

$$\bar{\mu}(E) = 2 \int_0^1 \mu(E, \theta) \cos \theta \, d(\cos \theta) \quad (2.17)$$

$$\bar{\mu}(E) = 2 \eta \left[ \frac{V}{E} \cdot \arcsin \left( \frac{E}{V} \right)^{\frac{1}{2}} - \left( \frac{V}{E} - 1 \right)^{\frac{1}{2}} \right]. \quad (2.18)$$

Bei bekannter Energie kann also aus einer experimentell bestimmten Verlustwahrscheinlichkeit pro Wandstoß  $\bar{\mu}$  die mittlere, energieunabhängige Verlustrate  $\eta$  berechnet werden. [GRL91]

#### 2.1.4. Speicherexperimente mit UCN

Ultrakalte Neutronen können in geeigneten materiellen oder magnetischen Behältern gespeichert werden. Die beiden entsprechenden Methoden weisen dabei charakteristische Vor- und Nachteile auf. Beim Einschluss in einer magnetischen Kammer können nur Neutronen mit polarisiertem Spin gespeichert werden. Neben einer geeigneten Spule oder einem Permanentmagneten zur Erzeugung des Speicherfeldes, ist daher auch noch ein Polarisationsfilter notwendig. Dieser sehr hohe konstruktive Aufwand bringt allerdings den Vorteil von geringen Neutronenverlusten während der Speicherung mit sich. Außerdem können die Zerfallsprodukte des Neutrons durch das magnetische Feld eingefangen und detektiert werden [You+14]. Wandspeicherexperimente gestalten sich im Allgemeinen leichter im Aufbau, dafür müssen mehr Verlustkanäle in Kauf genommen werden. Die Totalreflexion von UCN unter jedem Winkel erlaubt grundsätzlich die Speicherung in materiellen Behältern. In Speicherexperimenten wird direkt die Anzahl der überlebenden Neutronen  $N(t)$  als Funktion der Speicherzeit  $t$  gemessen. Für diese Messungen ist die Kenntnis sowohl der Neutronendichte zu Beginn der Messung  $N_0$  als auch der Detektoreffizienz nicht relevant. Wäre der  $\beta$ -Zerfall des Neutrons

der einzige Verlustprozess während der Speicherung, würde für die zeitliche Abnahme der Neutronen gelten:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau_n}} = N_0 \cdot e^{-\lambda t}. \quad (2.19)$$

Allerdings wird im Experiment eine geringere, effektive Speicherzeit  $\tau_{\text{eff}}$  beobachtet. Die Speicherzeit ist also nicht nur durch die Lebensdauer des freien Neutrons  $\tau_n$  begrenzt. Folgende Verlustkanäle reduzieren die Neutronen während der Speicherung und können mit entsprechenden Verlustraten  $\tau_i$  berücksichtigt werden:

- $\tau_n$  Lebensdauer des freien Neutrons.
- $\tau_{\text{gas}}$  Absorption und Hochstreuung an restlichen Gasmolekülen.
- $\tau_{\text{abs}}$  Absorption am Wandmaterial oder Verunreinigungen auf der Oberfläche.
- $\tau_{\text{ups}}$  Hochstreuung am Wandmaterial oder Verunreinigungen auf der Oberfläche.
- $\tau_{\text{gav}}$  Überschreiten der gravimetrischen Barriere, also der Speicherwand.
- $\tau_{\text{sl}}$  Einfang von Neutronen in Schlitzen.

Für die effektive Speicherzeit gilt dann nach folgender Gleichung [Ign90]

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau_n} + \frac{1}{\tau_{\text{gas}}} + \frac{1}{\tau_{\text{abs}}} + \frac{1}{\tau_{\text{ups}}} + \frac{1}{\tau_{\text{gav}}} + \frac{1}{\tau_{\text{sl}}}. \quad (2.20)$$

Damit eine Bestimmung der Neutronenlebensdauer aus der effektiven Speicherzeit möglich ist, müssen die übrigen Verluste minimiert werden oder sehr genau bekannt sein.

Für viele Jahre konnten die theoretischen Speicherzeiten von Wandmaterialien nicht im Experiment bestätigt werden. Deutlich höhere Verluste, deren Ursache nicht geklärt werden konnte, waren zu beobachten. Ebenfalls unerwartet war die anfänglich nicht nachweisbare Temperaturabhängigkeit der Speicherzeit. Inelastische Streuung an Wasserstoffatomen wurde als Grund für die großen Verluste angesehen. Erst Experimente von BURNETT und MAMPE konnten dies auch beweisen. Vor der Speicherung führten sie eine *in-situ* Reinigung der Oberflächen mittels Gasentladung (engl. Discharge Cleaning) durch, was zu höheren Speicherzeiten führte [MAG81]. Die anfangs nicht beobachtete Abhängigkeit von der Temperatur konnte ebenfalls erklärt werden: Bei höheren Temperaturen nimmt zwar der Energieübertrag der Vibrationen der Wandmoleküle auf die UCN zu, die Gesamtzahl der Verunreinigungen reduziert sich aber durch das Heizen. Beide Effekte kompensierten sich. Bei Speicherexperimenten mit UCN sind

daher sorgfältige Maßnahmen zu treffen, die die Menge an Wasserstoff in der Speicherkammer minimieren.

Neben Verunreinigungen auf Wandflächen kann auch das Restgas Wasserstoffatome (z.B. durch Luftfeuchtigkeit) enthalten. Die theoretische Vorhersage der Neutronenverluste durch verschiedene Restgase ist allerdings nicht trivial. Dies liegt vor allem auch an der unbekanntem Zusammensetzung im Experiment. Beispielsweise durch eine empirische Bestimmung kann aber der Einfluss beschrieben werden [Ezh+14]. EZHOV ET AL. ermittelten eine Druckabhängigkeit der Zeitkonstanten von

$$\frac{1}{\tau_{\text{gas}}} = \lambda_{\text{gas}} = (0,20 \pm 0,05) \frac{1}{\text{mbar s}}. \quad (2.21)$$

Beim Experiment MAMBO II waren bei einem Druck zwischen 5 und  $8 \cdot 10^{-6}$  mbar Korrekturen der Lebensdauer von  $\Delta\tau_n = (1,4 \pm 0,4)$  s nötig.

STRELKOV ET AL. haben in mehreren Experimenten neue Verlustkanäle von UCN während der Speicherung aufgezeigt. Sie stellten fest, dass selbst nach sorgfältigem Reinigen des Spektrums die gespeicherten UCN einen geringen Energieübertrag durch Oberflächenwechselwirkungen erfuhren. Dieser war deutlich niedriger als die normale Hochstreuung zu thermischen Energien, reichte aber aus, um die Potentiale der untersuchten Materialien (Aluminium und Beryllium) zu penetrieren. Eine physikalische Erklärung für dieses Phänomen konnte allerdings noch nicht geliefert werden. [Str+00]

### Entleerzeit und freie Weglänge

Verluste durch Schlitze  $\tau_{\text{sl}}$  werden im vorliegenden Experiment durch die Verwendung des flüssigen Wandmaterials zuverlässig vermieden. Die Berechnung der entsprechenden Zeitkonstante soll hier allerdings dargestellt werden, da sie auch zur Bestimmung der Entleerzeit eines Behälters gilt. Unter der Annahme, dass der Impuls im UCN-Gas isotrop verteilt ist, können die Gesetze der kinetischen Gastheorie angewandt werden. Für die charakteristische Entleerzeit eines Speichervolumens  $V_{\text{stor}}$  durch eine Öffnung mit Querschnitt  $A_{\text{port}}$  gilt mit der mittleren Neutronengeschwindigkeit  $\bar{v}$

$$\tau_{\text{emp}} = \frac{4 \cdot V_{\text{stor}}}{A_{\text{port}} \cdot \bar{v}}. \quad (2.22)$$

Nach der kinetischen Gastheorie lässt sich darüberhinaus die mittlere freie Weglänge

$$\lambda = \frac{4 \cdot V_{\text{stor}}}{A_{\text{stor}}} \quad (2.23)$$

mit der inneren Oberfläche des Speicherbehälters  $A_{\text{stor}}$  definieren. Setzt man dies in [Gleichung 2.22](#) ein, folgt für die Entleerzeit

$$\tau_{\text{emp}} = \frac{\lambda \cdot A_{\text{stor}}}{A_{\text{port}} \cdot \bar{v}}. \quad (2.24)$$

Wird in diese Gleichung an Stelle der bewussten Entleeröffnung  $A_{\text{stor}}$  die Summe aller Schlitzflächen  $A_{\text{sl}}$  eingesetzt, kann analog die Zeitkonstante für diese Verluste  $\tau_{\text{sl}}$  bestimmt werden. Bei dem vorliegenden Experiment sind alle Schlitze neutronendicht ausgeführt. Wenn alle anderen Verluste vernachlässigbar klein oder bekannt sind, kann aus der effektiven Speicherzeit umgekehrt auch der Teil der Oberfläche  $A_{\text{uncoated}}$  berechnet werden, welcher nicht beschichtet ist und von dem Neutronen daher absorbiert werden.<sup>5</sup> Nach [Gleichung 2.20](#) gilt:

$$\frac{1}{\tau_{\text{loss}}} = \frac{1}{\tau_{\text{eff}}} - \frac{1}{\tau_n} - \frac{1}{\tau_{\text{gas}}} \quad \text{wobei} \quad \frac{1}{\tau_{\text{gas}}} \approx 0 \quad (2.25)$$

$$A_{\text{uncoated}} = \frac{4 \cdot V_{\text{stor}}}{\tau_{\text{loss}} \cdot \bar{v}} = \frac{4 \cdot V_{\text{stor}}}{\left(\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} - \frac{1}{\tau_n}\right) \cdot \bar{v}} \quad (2.26)$$

### Ablauf einer Speichermessung

Eine typische Speichermessung mit UCN gliedert sich in fünf Stufen:

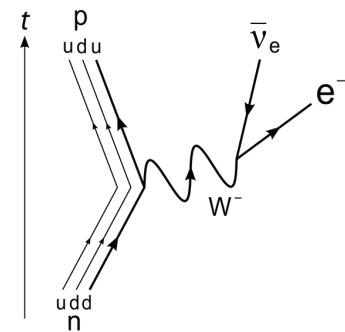
1. Einlass der UCN, bis im Speichervolumen die maximale Neutronendichte erreicht ist.
2. Reinigung des Spektrums: Während dieser Wartezeit werden die Neutronen aus der Kammer entfernt, deren Energie das Wandpotential übersteigt.
3. Speicherung über eine festgelegte Dauer.
4. Entleeren des Speichervolumens zum Detektor.
5. Untergrundmessung.

---

<sup>5</sup>Dazu muss die Oberfläche einen sehr hohen Absorptionsquerschnitt für Neutronen besitzen. Im hier vorliegenden Experiment wurde dies durch eine Beschichtung mit Titan umgesetzt.

## 2.2. Die Neutronenlebensdauer

Das freie Neutron ist instabil, es wandelt sich beim  $\beta$ -Zerfall (siehe Gleichung 2.2 auf Seite 10) in ein Proton um. Auf Ebene der Nukleonen erfolgt dies durch die Transformation eines *down*-Quark in ein *up*-Quark, wie im Feynman-Diagramm in Abbildung 2.2 dargestellt. Die Vermittlung erfolgt über ein  $W^-$ -Boson. Sowohl in der Kosmologie, wo die *primordiale Nukleosynthese* nach dem Urknall vom Verhältnis Protonen zu Neutronen abhing, als auch bei der Erklärung des Standardmodells, spielt die Neutronenlebensdauer  $\tau_n$  eine große Rolle.



**Abbildung 2.2.:**

Das Feynman-Diagramm des  $\beta$ -Zerfalls des freien Neutrons zeigt die Umwandlung eines *down*-Quarks in ein *up*-Quark unter Emission eines Elektrons und eines Elektron-Antineutrinos unter Vermittlung eines  $W^-$ -Bosons. Quelle: [Hol07]

### 2.2.1. $\beta$ -Zerfall und Standardmodell

Im Standardmodell der Teilchenphysik dient die unitäre  $3 \times 3$  Cabibbo-Kobayashi-Maskawa (CKM) Matrix zur Beschreibung der Quark-Mischungen. Die Matrix  $V_{\text{CKM}}$  stellt einen Zusammenhang zwischen dem System der Eigenzustände der Schwachen Wechselwirkung ( $d', s', b'$ ) und dem System von Quarkmasse-Eigenzuständen ( $d, s, b$ ) her,

$$(d', s', b') = V_{\text{CKM}}(d, s, b) \quad \text{mit} \quad (2.27)$$

$$V_{\text{CKM}} = \begin{pmatrix} V_{ud} & V_{us} & V_{ub} \\ V_{cd} & V_{cs} & V_{cb} \\ V_{td} & V_{ts} & V_{tb} \end{pmatrix}. \quad (2.28)$$

So beschreibt das Element  $V_{ud}$  den Übergang eines *u*-Typ-Quarks unter Emission eines  $W^+$ -Bosons in ein *d*-Typ-Quark. Dabei ist  $|V_{ij}|^2$  die normierte Übergangswahrscheinlichkeit eines  $u_i$ - in ein  $d_j$ -Quark. Gleiches gilt für den umgekehrten Übergang unter Emission eines  $W^-$ -Bosons. Grundlage für die Matrix ist die Annahme, dass einige unabhängige Verknüpfungen tatsächlich Teile einer einzigen Kraft sind. Außerdem ist im Rahmen der von Cabibbo, Kobayashi und Maskawa aufgestellten Theorie die Matrix als unitär definiert,  $VV^\dagger = 1$ . Da

nach dem Standardmodell nur drei Quarkfamilien existieren, kann die Unitarität über die erste Reihe der Matrix überprüft werden

$$|V_{ud}|^2 + |V_{us}|^2 + |V_{ub}|^2 = 1 - \Delta \quad (2.29)$$

wobei  $\Delta \stackrel{!}{=} 0$ . Ein von Null verschiedenes  $\Delta$ , also eine Abweichung der Unitarität, könnte auf Erweiterungen des Standardmodells (z.B. Supersymmetrie) hinweisen. [Abe08]

Die Werte der einzelnen Matrixelemente werden über die Schwache Wechselwirkungen der jeweils beteiligten Quarks bestimmt. Den größten Beitrag zu Gleichung 2.29 liefert das Element  $|V_{ud}|^2$  und wird von der PDG aktuell<sup>6</sup> mit  $0,974\,25 \pm 0,000\,22$  angegeben. Das zweite Element wird mit  $|V_{us}|^2 = 0,2253 \pm 0,0008$  angegeben. Mit einem Wert von  $|V_{ub}|^2 \approx 10^{-5}$  kann das dritte Element vernachlässigt werden. Somit folgt für die Überprüfung der Unitarität der ersten Reihe der Matrix

$$|V_{ud}|^2 + |V_{us}|^2 + |V_{ub}|^2 = 0,9999 \pm 0,0006. \quad (2.30)$$

Dieses Ergebnis erfüllt die Unitaritätsbedingung. Auf Grund ständig neuer Experimente und Ergebnisse, die zur Berechnung von  $|V_{ud}|^2$  und  $|V_{ub}|^2$  herangezogen werden, unterliegt dieser Wert allerdings ständiger Veränderung. Vor einigen Jahren noch lag die Abweichung bei  $2,7\sigma$ . Insbesondere Ergebnisse aus dem Neutronenzerfall (Messungen der Lebensdauer-  $\tau_n$  und  $\beta$ -Asymmetrie<sup>7</sup>  $A_0$ ) führten zu Irritationen.

Die Berechnung von  $|V_{ud}|^2$  und  $A_0$  kann über Messung von  $\tau_n$  erfolgen

$$|V_{ud}|^2 = \frac{(4908,7 \pm 1,9) \text{ s}}{\tau_n (1 + 3\lambda^2)}, \quad (2.31)$$

$$A_0 = 2 \frac{\lambda(\lambda + 1)}{1 + 3\lambda^2}. \quad (2.32)$$

Dabei ist  $\lambda = \frac{g_A}{g_V}$  bei der Schwachen Wechselwirkung das Verhältnis zwischen den Kopplungskonstanten des Axialvektor- und des Vektorübergangs. Gegenüber einer Betrachtung des  $\beta$ -Zerfalls von Atomen, brauchen beim Neutronenzerfall Effekte auf Grund der Kernstruktur nicht berücksichtigt zu werden. Allerdings ist eine relative Messgenauigkeit von  $10^{-3}$  für die Neutronenlebensdauer und von  $2 \cdot 10^{-2}$  für  $A_0$  notwendig. Aktuell ist der Wert von  $\tau_n$

---

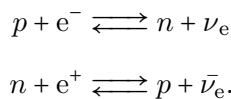
<sup>6</sup>Alle hier genannten Werte wurden der PDG-Publikation [CLS14] vom Februar 2014 entnommen.

<sup>7</sup>Die  $\beta$ -Asymmetrie beschreibt den Winkelkorrelationskoeffizienten zwischen Neutronenspin und Elektronimpuls beim Neutronenzerfall.

mit einer sehr großen Unsicherheit von über 1 s behaftet. Die Ursache sind die großen Abweichungen zwischen einzelnen Ergebnissen von früheren und aktuellen Bestimmungen. Die Problematik wird in [Abschnitt 2.2.3](#) im Detail diskutiert. [Ser07]

### 2.2.2. $\beta$ -Zerfall und Kosmologie

Neben der Bedeutung in der Teilchenphysik zur Bestätigung des Standardmodells, ist die Neutronenlebensdauer auch in der Kosmologie eine wichtige Größe. Während der sogenannten *primordialen Nukleosynthese* in den ersten wenigen Minuten nach dem Urknall wurden die ersten, leichten Atomkerne gebildet. Zu Beginn, Bruchteile von Sekunden nach dem Urknall, befanden sich die beiden Prozesse



und daher auch die Anzahl der freien Neutronen  $n$  und Protonen  $p$  in einem thermischen Gleichgewicht. Ungefähr eine Sekunde nach dem Urknall war aber mit der weiteren Ausdehnung und Abkühlung (unter  $T < 1$  MeV) das Universum für Neutrinos transparent geworden. Die Distanzen waren jetzt so groß, dass sich Neutrinos und Nukleonen nicht mehr finden konnten und damit die Neutrinos aus dem thermischen Gleichgewicht ausschieden. Das Verhältnis der beiden Nukleonen bei dieser Temperatur wird mit dem Boltzmann-Gesetz

$$\frac{N_n}{N_p} = \exp\left(-\frac{\Delta m}{T_f}\right) \quad (2.33)$$

beschrieben. Dabei stellt  $\Delta m$  die Massendifferenz zwischen Proton und Neutron dar.  $T_f$  ist die Temperatur, bei der die beiden oben aufgeführten Reaktionen der Schwachen Wechselwirkung stoppten. Das Verhältnis lag für  $T_f = 0,7$  MeV bei  $\frac{N_n}{N_p} = \frac{1}{6}$ . Der anhaltende  $\beta$ -Zerfall



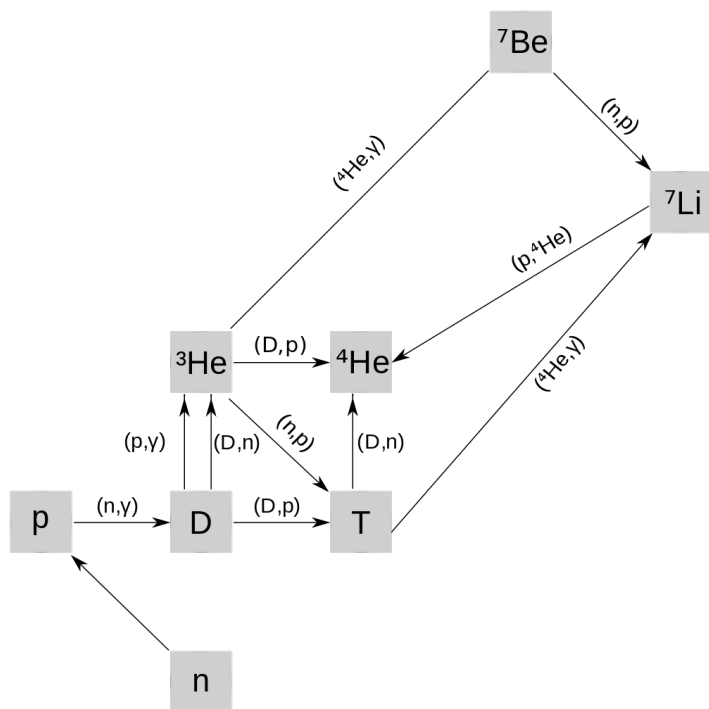
veränderte aber das ursprüngliche Verhältnis  $\frac{N_n}{N_p}$  zugunsten der Protonen zu  $\frac{N'_n}{N'_p}$ . Dabei blieb die Gesamtzahl der Nukleonen konstant:  $N_n + N_p = N'_n + N'_p$ . [DS11]

Ohne eine weitere Reaktion würde das Universum ausschließlich aus Wasserstoff bestehen. Da der Wirkungsquerschnitt der Starken Wechselwirkung aber deutlich größer als der der schwachen Wechselwirkung ist, konnten sich immer noch Nukleonen finden und vereinen. Etwa drei Minuten nach dem Urknall (bei  $T < 0,1$  MeV) war durch die weitere Abkühlung auch

die Schwelle für Photodissoziation des Deuteriumkerns (D) unterschritten. Vorher befand sich durch diese hochenergetische  $\gamma$ -Strahlung die Reaktion



im Gleichgewicht und verzögerte die effektive Nukleosynthese. Erst mit der Verschiebung des Gleichgewichts nach rechts war eine Anreicherung von Deuterium möglich. [Ser07; Pau09]



**Abbildung 2.3.:** Ungefähr ab 3 Minuten nach dem Urknall konnte effektiv Deuterium durch den Neutroneneinfang eines Protons gebildet werden. Die weiteren Einfangreaktionen führten zu den ersten, leichten Atomkernen im Universum. Diese Reaktionen stoppten erst, nachdem sämtliche freie Neutronen gebunden waren. Quelle: [Pam14]

Weitere Einfang- und Kernreaktionen waren ab jetzt möglich, wie in [Abbildung 2.3](#) dargestellt. Neben den Wasserstoff- und Deuteriumisotopen wurden auch die schwereren Atomkerne Lithium und Beryllium gebildet. Diese Kernfusionen stoppten erst, nachdem sämtliche freie Neutronen gebunden waren.

Die Nukleon-Synthese wird durch zwei Faktoren von der Neutronenlebensdauer beeinflusst: In der ersten Phase, mit den Prozessen der Schwachen Wechselwirkung, würde eine geringere Lebensdauer zu schnelleren Reaktionen und Entfernung der Neutrinos aus dem thermischen Gleichgewicht führen. In der anschließenden Kernsynthese ständen durch eine kürzere Lebensdauer weniger Neutronen zur Verfügung. Ein geringerer Heliumanteil wäre die Folge.

In der Urknalltheorie ist der Masseanteil von  $^4\text{He}$  im Universum  $Y_p$  ein wichtiger Faktor zur Beschreibung der *Primordialen Nukleosynthese*, da er zur Bestimmung des ursprünglichen<sup>8</sup> Neutron-zu-Proton-Verhältnis' gemäß [Gleichung 2.33](#) benötigt wird. Da fast alle Neutronen

<sup>8</sup>Vor Absenkung der Temperatur unter  $T_f = 0,7\text{MeV}$ .

in  ${}^4\text{He}$  gebunden sind und in diesem Isotop die Hälfte der Masse ausmachen, ist der Helium-Masseanteil das Doppelte des Neutronenanteils

$$Y_p = \frac{M_{{}^4\text{He}}}{\sum M_i} \approx \frac{2 N'_n}{N'_n + N'_p} = \frac{2}{1 + \frac{N'_p}{N'_n}} \quad (2.36)$$

Mit [Gleichung 2.33](#) und der Näherung  $N'_n \approx N_n \exp(-t_d/\tau_n)$  folgt

$$Y_p = \frac{2 \exp(-t_d / \tau_n)}{1 + \exp(\Delta m / kT_f)} \quad (2.37)$$

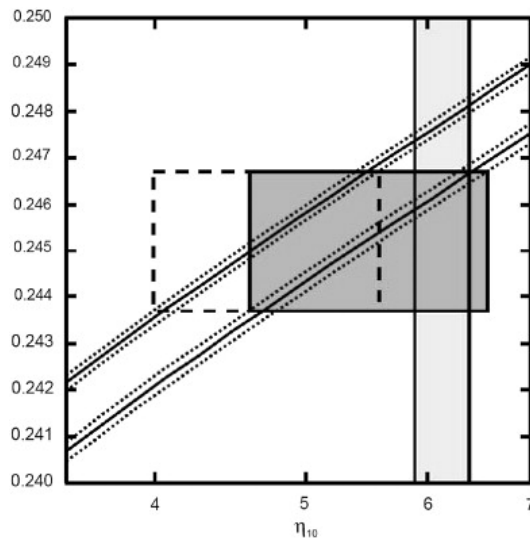
Der Wert  $t_d = 150$  s beschreibt dabei den Zeitpunkt nach dem Urknall, zu dem die Temperatur auf  $T_f = 0,7$  MeV abgefallen war und die Neutrino-Reaktionen stoppten. Durch astronomische Beobachtungen in Regionen des Universums mit wenigen Elementen schwerer als  ${}^4\text{He}$ , konnte der Masseanteil  $Y_p \approx 25\%$  bestimmt werden.

Neben der Lebensdauer dient ein weiterer, wichtiger Parameter zur Beschreibung der Bedingungen unter denen die Primordiale Nukleosynthese ablief: Das Verhältnis von Baryonen zu Photonen  $\eta_{10} = N_b/N_\gamma$  korreliert mit der Temperatur und der Baryondichte im frühen Universum. Je kleiner dieses Verhältnis, umso geringer die Gleichgewichtsverschiebung gemäß [Gleichung 2.35](#) nach rechts. Es kann durch eine sehr präzise Analyse des Energiespektrums der kosmischen Hintergrundmikrowellenstrahlung ermittelt werden. [\[Spe+07\]](#)

Aus den oben dargestellten Betrachtungen folgen die drei Größen  $\tau_n$ ,  $Y_p$  und  $\eta_{10}$ , welche einzeln bestimmt werden können. Der Parameterraum ist damit überbestimmt und die Nukleosynthese kann überprüft werden. Den Einfluss der Genauigkeit der Neutronenlebensdauer zeigt eine einfache Rechnung: Bei konstantem Wert für  $\eta_{10}$  führt eine Variation in  $\tau_n$  von 1 % zu einer Änderung von 0,75 % im Anteil der Heliummasse. Die tatsächliche Ungenauigkeit bei der Bestimmung dieses Wertes liegt bei  $\pm 0,61\%$  [\[MKS04\]](#). Die gleiche Änderung in der Lebensdauer von 1 % ändert das Baryon-Photon-Verhältnis um 17 %, tatsächlich wird es aber mit einem Fehler von  $\pm 3,3\%$  [\[MKS04\]](#) gemessen.

In [Abbildung 2.4](#) ist die Abhängigkeit des ursprünglichen Heliumanteils  $Y_p$  von der Baryonen-Asymmetrie  $\eta_{10}$  dargestellt. Durch den überbestimmten Parameterraum kann die Neutronenlebensdauer zur Überprüfung herangezogen werden. In der Abbildung sind für zwei Lebensdauern die zulässigen Bereiche von  $\eta_{10}$  markiert. Nur die kleinere Lebensdauer aus dem Experiment von SEREBROV ET AL. bestätigt die anderen beiden Messwerte [\[SF11\]](#). Zwar wird die Neutronenlebensdauer im einzelnen Experiment mit deutlich größerer Genauigkeit bestimmt als die beiden kosmologischen Werte. Allerdings führt die Verschiebung des neuen

Weltmittelwerts (siehe nächster Abschnitt) mit seiner großen Ungenauigkeit zu einer erschwer-  
ten Überprüfung der Nukleosynthese nach dem Urknall. Eine präzisere Bestimmung von  $\tau_n$   
ist also notwendig. [DS11; Ser07]



**Abbildung 2.4.:**

Der Helium-Masseanteil  $Y_p$  des frühen Universums ist gegen den Baryonenanteil  $\eta_{10}$  aufgetragen. Die beiden Kurven geben zwei Ergebnisse der Neutronenlebensdauer wieder: Oben: PDG-Wert 2006 [Yao+06]. Unten: Experiment [SF11]. Der vertikale Balken ist das Ergebnis der Messung von  $\eta_{10}$  [MKS04].

Die beiden Rechtecke zeigen den zulässigen Bereich des Baryonen-Anteils auf Grundlage der Messungen von  $\tau_n$  und  $Y_p$ . Nur für die kleinere Lebensdauer sind die drei Bereiche deckungsgleich und können das kosmologische Modell bestätigen. Quelle: [Pau09]

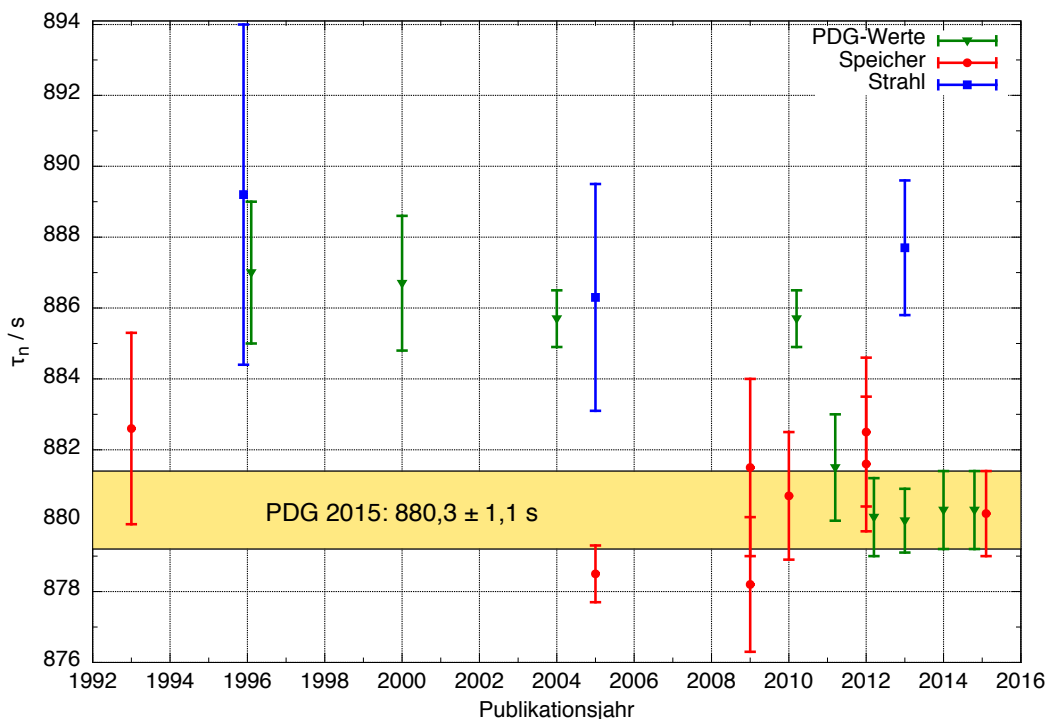
### 2.2.3. Puzzle of Neutron Lifetime

Im **Jahr 2010** lag der PDG-Weltmittelwert der Neutronenlebensdauer bei  $(885,7 \pm 0,8)$  s. Dabei war das Experiment von SEREBROV ET AL. im Jahr 2005 [Ser+05] nicht berücksichtigt worden, da es als einziges mit  $(878,5 \pm 0,8)$  s deutlich von diesem Wert abwich. In der Forschergemeinschaft hatte diese Abweichung bereits zu vielen Diskussionen und Irritationen geführt; sie wird als „Puzzle of Neutron Lifetime“ bezeichnet. Die Ergebnisse des neuen MAMBO II - Experiments [Pic+10] zeigten dann ebenfalls eine deutliche Abweichung unterhalb des bisherigen Mittelwertes. Daraufhin wurden beide Werte von der PDG berücksichtigt und der Mittelwert im **Jahr 2011** auf  $(881,5 \pm 1,5)$  s abgesenkt. Gleichzeitig wurde allerdings die Unsicherheit um den Faktor 2.7 vergrößert. Es folgte der Hinweis, dass dieser Wert bis zur Klärung durch weitere Experimente eventuell korrekturbedürftig ist. Dadurch angeregt, wurden die Messdaten der zwei alten Experimente MAMPE 1989 [Mam+89] und ARZUMANOV ET AL. 2000 [Arz+00] erneut analysiert. In beiden Fällen führte dies zu einer Absenkung der bestimmten Neutronenlebensdauern und damit auch zu einer erneuten Korrektur des PDG-Wertes auf  $(880,1 \pm 1,1)$  s im **Jahr 2012** [Ber+12].

Die Forschergemeinschaft hat sich daher zu Beginn des neuen Jahrzehnts das Ziel gesetzt, durch neue, verschiedenartige Experimente die Lebensdauer des Neutrons zu bestimmen. Wie

**Tabelle 2.3.:** Experimentelle Ergebnisse der Lebensdauerexperimente bis ins Jahr 2015. Die für den PDG-Mittelwert berücksichtigten Experimente sind in der ersten Spalte markiert. Der Stern markiert die beiden Publikationen, die alte Experimente erneut ausgewertet haben.

PDG	$\tau_n / s$	Experimentator	Jahr	Referenz	Typ
	$880,2 \pm 1,2$	Arzumanov et al.	2015	[Arz+15]	Speicher
$\Rightarrow$	<b><math>880,3 \pm 1,1</math></b>	<b>PDG</b>	<b>2015</b>	[Oli14]	Mittelwert
✓	$887,7 \pm 1,9$	Yue et al.	2013	[Yue+13]	Strahl
✓	$881,6 \pm 1,9$	Arzumanov et al.	2012	[Arz+12]	Speicher*
✓	$882,5 \pm 2,1$	Steyerl	2012	[Ste+12]	Speicher*
✓	$880,7 \pm 1,8$	Pichlmaier	2010	[Pic+10]	Speicher
	$878,2 \pm 1,9$	Ezhov et al.	2009	[Ezh+09]	Magnet. Falle
	$881,5 \pm 2,5$	Arzumanov et al.	2009	[Arz+09]	Speicher
✓	$878,5 \pm 0,8$	Serebrov	2005	[Ser+05]	Speicher
	$886,3 \pm 3,2$	Nico et al.	2005	[Nic+05]	Strahl
✓	$889,2 \pm 4,8$	Byrne et al.	1996	[Byr+96]	Strahl
✓	$882,6 \pm 2,7$	Mampe	1993	[Mam+93]	Speicher



**Abbildung 2.5.:** Die Anzahl der Lebensdauerexperimente hat in den letzten Jahren stark zugenommen, um das *Puzzle of Neutron Lifetime* zu klären. Deutlich ist auch die Diskrepanz zwischen Neutronenstrahl- und Speicherexperimenten zu erkennen. Die jeweiligen Mittelwerte weichen um über 8 Sekunden von einander ab. Der PDG-Wert wurde 2011 erstmals deutlich abgesenkt und seitdem jährlich angepasst.

auf den vorangegangenen Seiten dargelegt, sind insbesondere präzise Messungen zu einer Reduktion der Ungenauigkeit unter eine Sekunde notwendig. Seitdem sind daher sowohl Strahl- als auch magnetische und materielle Speicherexperimente im Aufbau. Einige der Experimente werden in [Abschnitt 2.2.5](#) genauer vorgestellt. Der aktuell veröffentlichte PDG-Wert aus dem **Jahr 2015** schließt ein neues Strahlexperiment von 2013 ein und wurde leicht angepasst:  $(880,3 \pm 1,1) \text{ s}$  [[Oli14](#)]. Es konnte nicht geklärt werden, warum das EZHOV-Experiment von 2005 nicht berücksichtigt wurde.

Eine aktuelle Übersicht der wichtigsten Ergebnisse von Lebensdauerexperimenten ist in [Abbildung 2.5](#) grafisch und in [Tabelle 2.3](#) tabellarisch dargestellt. Es ist deutlich eine Diskrepanz zwischen Neutronenstrahl- und -speicherexperimenten zu erkennen. Die Mittelwerte liegen bei  $(888,0 \pm 2,1) \text{ s}$  bzw.  $(879,6 \pm 0,8) \text{ s}$ . Die Ursache konnte noch nicht geklärt werden und gibt der Forschergemeinschaft Rätsel auf. Im folgenden Abschnitt werden die Anforderungen an Lebensdauerexperimente anhand von Experimenten der letzten Jahre kurz diskutiert. Im Anschluss werden die aktuell geplanten Projekte vorgestellt.

#### 2.2.4. Bestimmung der Neutronenlebensdauer

Die Bestimmung der Neutronenlebensdauer kann nach zwei verschiedenen Messmethoden erfolgen, beide haben charakteristische Vor- und Nachteile. Bei **Strahlexperimenten** wird ein kollimierter Strahl von kalten Neutronen in ein definiertes Volumen geführt, um dort die Zerfallsprodukte zu messen. Aus der Zerfallsrate und dem Neutronenfluss wird direkt die Lebensdauer bestimmt. Aktuell sind nur zwei der sieben Lebensdauern, die zur Mittelwertberechnung verwendet wurden, bei Strahlexperimenten bestimmt worden. Einige technische Herausforderungen und Probleme führen zu den größeren systematischen Unsicherheiten dieser Messmethode:

- Das Zerfallsvolumen ist auf Grund der verfügbaren Größe des Strahls ( $100 \text{ cm}^2$ ) und des Flusses begrenzt. Die typische Zerfallsrate liegt daher nur bei ungefähr  $1 \text{ cts/s cm}^3$ .
- Die aktuelle Anzahl der Neutronen im Zerfallsvolumen muss exakt bekannt sein. Dies erfolgt mit einem Neutronenfluss-Detektor am Ende des Zerfallsvolumens.
- Die Zerfallsprodukte müssen vollständig im  $4\pi$ -Bereich um das gesamte Volumen mit einer Effizienz von 100% registriert werden oder es müssen zumindest die Detektoreffizienz und der erfasste Raumwinkel absolut bekannt sein.

- Störungen durch den Untergrund müssen durch Koinzidenzmessungen von Protonen und Elektronen eliminiert werden.

Im Allgemeinen liegt die Unsicherheit des Ergebnisses bei Strahlexperimenten deutlich über der von Speicherexperimenten (siehe Grafik) [Pic08]. Die zur Zeit geplanten Strahlexperimenten werden daher auf kleinere systematische Korrekturen und insgesamt größere Präzision optimiert.

Die Herausforderung bei **Speicherexperimenten** liegt hauptsächlich in der Reduktion von Verlusten, die nicht auf den Neutronenzerfall zurückgeführt werden können. Bei einem konstanten UCN-Fluss zur Füllung des Speichervolumens kann dagegen eine Detektoreffizienz  $< 100\%$  akzeptiert werden. Die grundlegenden Anforderungen wurden bereits in [Abschnitt 2.1.4](#) erörtert und werden hier um die spezifischen Bedingungen zur Verbesserung der Präzision von Lebensdauermessungen ergänzt. Da die vorliegende Arbeit ein Wandspeicherexperiment vorstellt, werden nur die Effekte für materielle Wände betrachtet. Für eine gründliche Diskussion der drei Experimenttypen sei auf [You+14] verwiesen.

Alle Experimente verwenden UCN und machen sich die sehr hohe Nachweiseffizienz und geringe Untergrundstörung bei der Detektion zu nutze. Die Genauigkeit von Speichermessungen korreliert sehr stark mit den Neutronenverlusten während der Speicherung. Insbesondere die Verlustrate durch Wechselwirkungen mit den Speicherwänden  $\tau_{\text{wall}}$  stellt die größte Ursache dafür dar und muss intensiv betrachtet werden. Daher werden aus [Gleichung 2.20](#)

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau_n} + \frac{1}{\tau_{\text{gas}}} + \frac{1}{\tau_{\text{gav}}} + \frac{1}{\tau_{\text{wall}}}. \quad (2.20)$$

die entsprechenden Verlustkanäle betrachtet:

$$\frac{1}{\tau_{\text{wall}}} = \frac{1}{\tau_{\text{abs}}} + \frac{1}{\tau_{\text{ups}}} + \frac{1}{\tau_{\text{sl}}}. \quad (2.38)$$

Damit Korrekturen der Lebensdauer möglich sind, müssen diese Wandverluste entweder (1) bestimmt (Beispiel: Experiment von ARZUMANOV ET AL. [Arz+00]) oder (2) durch Variation der Reflektionswahrscheinlichkeit vollständig auf Null extrapoliert werden. Gemäß der Theorie wäre auch eine reine Temperaturvariation möglich, da diese die thermischen Vibrationen als Ursache der Hochstreuung stark beeinflusst. Aus den o.g. Gründen wird dies durch experimentelle Bedingungen verhindert.

ARZUMANOV verwendete zwei konzentrische Speichergefäße, die beide mit flüssigem *Fomblin* ausgekleidet waren, um Schlitzverluste  $\tau_{\text{sl}}$  vernachlässigen zu können. Beide Speicherkammern

waren von 24 Detektoren für thermische Neutronen umgeben, da die Hochstreuung als größter Verlustkanal angenommen wurde. Es konnte entweder nur das innere Gefäß oder beide mit UCN befüllt werden. Anhand des Vergleichs der Raten thermischer Neutronen bei beiden Konfigurationen, konnten die Wandverluste sehr genau abgeschätzt und das Ergebnis  $\tau_{\text{eff}}$  korrigiert werden.

Die zweite Möglichkeit zur Korrektur der effektiven Speicherzeit ergibt sich aus der kinetischen Gastheorie. Bei monoenergetischen Neutronen mit isotroper Trajektorie gilt für die Verlustrate

$$\frac{1}{\tau_{\text{wall}}} = \frac{\mu v}{\lambda} \quad (2.39)$$

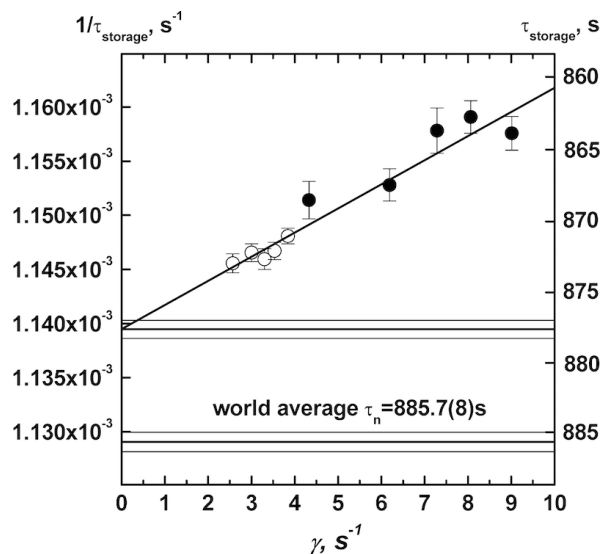
mit der Verlustwahrscheinlichkeit pro Wandstoß  $\mu$ , der Neutronengeschwindigkeit  $v$  und der freien Weglänge  $\lambda = \frac{4V_{\text{stor}}}{A_{\text{stor}}}$  (vgl. [Gleichung 2.23](#)). Zwei charakteristische Größen des Experiments bieten hier die Möglichkeit einer Extrapolation gegen Null: Die Energie der UCN und die freie Weglänge über das Verhältnis des Speichervolumens zu seiner Innenfläche.

$$\left. \begin{array}{l} v \rightarrow 0 \\ \lambda \rightarrow \infty \end{array} \right\} \frac{1}{\tau_{\text{wall}}} \rightarrow 0. \quad (2.40)$$

Sowohl die beiden MAMBO-Experimente als auch das Gravitrap-Experiment nutzten diese Messmethoden. Bei MAMBO II [[Pic+10](#)] nutzte PICHLMAIER eine quaderförmige Speicherkammer mit einer flexiblen Wand. Von außen konnten durch Verschieben dieser Wand Volumen und Fläche reduziert werden. Gleichzeitig wurde in einer umgebenden, äußeren Speicherkammer das UCN-Spektrum vorher gereinigt, sodass die UCN eine definierte und wohl bekannte Energieverteilung besaßen. Im Gravitrap-Experiment [[Ser+08](#)] dienten zwei verschieden große, gravimetrische Speicherbehälter zur Variation der freien Weglänge. Eine Energievariation ist hier zusätzlich über ein stufenweises Entleeren der Speichergefäße möglich. Beispielhaft für die Extrapolation sind diese Ergebnisse in [Abbildung 2.6](#) dargestellt. [[You+14](#)]

Dank der Erkenntnisse aus Speicherexperimenten in den letzten Jahrzehnten, sind die Faktoren für ein optimiertes Leistungsvermögen inzwischen sehr gut bekannt: [[You+14](#)]

- Große Speichervolumina erlauben eine größere Statistik und geringere Kollisionsraten führen zu weniger Verlusten.



**Abbildung 2.6.:**

Dargestellt sind die Ergebnisse des Gravitrapp-Experiments von SEREBROV und die daraus resultierende Extrapolation. Zwei verschieden große Speichervolumina wurden verwendet: gefüllte Kreise: Zylinder (klein); leere Kreise: quasi-sphärischer Behälter. Der angegebene Weltmittelwert galt 2005. Quelle: [Ser+08]

- Kurze Reinigungszeiten des Spektrums nach dem Einlassen reduzieren statistische und systematische Unsicherheiten. Allerdings müssen die Neutronen, deren Energie oberhalb des Wandpotentials liegt, durch den Reinigungsprozess wirksam entfernt werden. Andernfalls können sie als *quasi-gespeicherte* Neutronen einige Zeit im Speichervolumen überleben und verfälschen das Messergebnis.
- Verschiedene Messungen mit den gefangenen UCN (z.B. Monitordetektoren im Speichervolumen) erlauben ein Eingrenzen der Unsicherheiten. Außerdem können Informationen zum Spektrum in der Speicherkammer Auskünfte über die Kollisionsrate als Funktion der Speicherdauer liefern.
- Erfassung von Neutronenverlusten während der Speicherung.

Die Erfahrungen der letzten Jahre haben außerdem gezeigt, dass insbesondere durch ein definiertes UCN-Spektrum die systematischen Unsicherheiten reduziert werden können. Darüber hinaus konnte im Gravitrapp-Experiment gezeigt werden, dass die Abkühlung der *Fomblin*-Wandbeschichtung die Wandverluste auf Grund von Hochstreuung um eine Größenordnung senkt. Für das in dieser Arbeit vorgestellte Experiment verwendete Polymer hatte POKOTILOVSKI bei der Abkühlung auf  $-120^\circ\text{C}$  eine Abnahme der Verluste durch Hochstreuung auf ein Fünftel berechnet [Pok99].

### 2.2.5. Aktuell geplante Experimente

Auf der ganzen Welt sind zur Zeit Forscher bemüht, das *Puzzle of Neutron Lifetime* zu lösen. Das Ziel der aktuellen Experimente ist nicht nur die Bestimmung der Lebensdauer selbst, sondern dabei auch die systematischen und statistischen Unsicherheiten unter einer Sekunde

zu halten. Die Zusammenfassung der Experimente hier basiert auf Publikationen aus dem Jahr 2014 [You+14; Bow+14], welche mit aktuellen Informationen ergänzt wurde.

### Wandspeicherung

Das **Gravitrapp II**-Experiment der PNPI-Forschergruppe<sup>9</sup> um SEREBROV ist aktuell das einzige Wandspeichereperiment, welches bereits Lebensdauermessungen unternimmt. Es ist eine komplette Neuentwicklung des bisherigen Experiments von SEREBROV (welches oben bereits vorgestellt wurde) und beruht auf dem gleichen Prinzip. Zwei verschieden große, konzentrische Zylinderhalbschalen dienen als Speicherkammer. Beide sind vollständig mit *Fomblin*-Paste bestrichen und können mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden. Die oben beschriebene, notwendige Korrektur durch Wandstoßverluste kann durch eine Vergrößerung der Wandoberfläche mit Hilfe der inneren Halbschale bestimmt werden. Es wird eine statistische Genauigkeit von 0,1 s angestrebt. [Ser+16]

### Magnetische Speicherung

Das bisherige **Ezhov**-Experiment am ILL wurde erneuert und das Volumen um den Faktor 15 vergrößert. Die Speicherung erfolgt über Permanentmagnete und Gravitation. Die doppelt so große Geschwindigkeit in der Speicherkammer führt zu einer Verbesserung der Statistik um den Faktor 8. Die UCN-Detektion beschränkt sich allerdings auf die Erfassung der überlebenden Neutronen nach der Speicherung. Die angestrebte Genauigkeit liegt bei 0,3 s. [Ezh+14]

In den USA wird das vollkommen neue **UCN- $\tau$** -Experiment am NIST<sup>10</sup> von der Gruppe um DEWEY aufgebaut. Die Speicherung erfolgt magneto-gravimetrisch in einer asymmetrischen Halbschale aus einem Hallbach-Array<sup>11</sup>. Sowohl zur Reinigung des Spektrums (mittels PE-Platte) als auch zur *in-situ*-Detektion der UCN in der Falle (Vanadium-Folie) sind verschiedene Einbauten vorgesehen. Zerfallsprodukte können mit <sup>3</sup>He-Driftröhren erfasst werden. Die angestrebte Genauigkeit liegt bei < 1 s und eine Veröffentlichung von konkreten Messergebnissen steht kurz bevor. [Sal+14]

Am FRM-II in München wird das **PENeLOPE**-Experiment<sup>12</sup> von der Gruppe um PAUL aufgebaut. Es ist eine vertikale Falle mit 28 supraleitenden Magneten, die mit einer Feldstärke

---

<sup>9</sup>PNPI: Petersburg Nuclear Physics Institut, Gatchina, Russland

<sup>10</sup>NIST: National Institute of Standards and Technology, Maryland, USA.

<sup>11</sup>Als Hallbach-Array wird eine spezielle Anordnung von mehreren Permanentmagneten bezeichnet, bei der die Magnetisierungsrichtung jeweils um 90° gekippt ist. Dadurch wird der magnetische Fluss auf einer Seite verstärkt auf der anderen fast eliminiert.

<sup>12</sup>PENeLOPE: Precision Experiment on the Neutron Lifetime Operating with Proton Extraction

von 1,8 T und einem Meter Höhe die Speicherung von Neutronen bis 115 neV erlaubt. Ein Protonendetektor kann von oben in die Speicherkammer zur Erfassung der Zerfallsprodukte eingebracht werden. Auf Grund der geringen systematischen Fehler wird davon ausgegangen, dass keine Extrapolation notwendig ist. Aktuell finden Messungen statt, die angestrebte Genauigkeit liegt bei 0,1 s. [Pic08]

Das **HOPE**-Experiment am ILL verwendet die neue, von ZIMMER konstruierte UCN-Quelle. Ein Oktupol-Hallbach-Array bildet ein zylindrisches Speichervolumen von 2 L mit einer maximalen UCN-Energie von 50 neV. Verschiedene Detektionssysteme erlauben die Erfassung von depolarisierten Neutronen, Zerfallsprodukten und den überlebenden UCN. Bei 50 Messtagen wird eine statistische Genauigkeit von 0,5 s angestrebt. [ZG15]

Am Reaktor TRIGA Mainz befindet sich  $\tau$ -**SPECT** in der Gruppe von HEIL im Aufbau, welches auf dem Magnetsystem des *aSPECT*-Experiments basiert. Das 8 L-Speichervolumen wird ebenfalls durch ein Hallbach-Array gebildet und kann Neutronen bis 150 neV speichern. Die angestrebte Genauigkeit beträgt anfangs 1 s, soll aber auf 0,2 s verbessert werden.

### Strahlexperimente

Ebenfalls am NIST wird ein Neutronenstrahlexperiment aufgebaut, welches als Grundlage die quasi-Penning-Falle des **Sussex-ILL-NIST**-Experiments von 1990 besitzt. Aktuell wurden Verbesserungen bezüglich des Neutronenflusses umgesetzt und die Messungen sollen Ergebnisse mit einer Genauigkeit von 1 s liefern. In einer weiteren Ausbaustufe ist ein kompletter Neuaufbau des Experiments geplant, der insbesondere auf eine optimierte Erfassung der Protonen ausgerichtet ist. Außerdem soll durch ein größeres Zerfallsvolumen die Statistik verbessert werden. [Yue+13]

Ein weiteres Strahlexperiment wird erstmals in Japan am **J-PARC**<sup>13</sup> aufgebaut. Die experimentelle Methode wurde bereits 1989 für Lebensdauerermessungen verwendet und basiert auf der Erfassung von Zerfallselektronen in einer flugzeitaufgelösten Kammer TPC (engl. Time-Projection Chamber). Die Neutronenquelle stellt dazu monochromatische Bündel von Neutronen zur Verfügung. Innerhalb von 150 Tagen Messzeit wird eine statistische Unsicherheit von 1 s angestrebt. [Ari+12]

---

<sup>13</sup>J-PARC: Japan Proton Accelerator Research Complex.



## Kapitel 3.

### UCN-Wandspeichermaterial PFMO

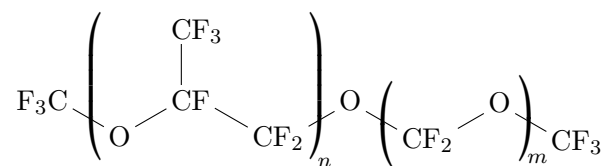
In [Abschnitt 2.1.4](#) wurden bereits die grundlegenden Anforderungen an ein Wandmaterial für UCN-Speicherexperimente vorgestellt. Das bisher sehr häufig und erfolgreich eingesetzte perfluorierte Polymer mit dem Handelsnamen *Fomblin*<sup>®</sup> der Firma *Solvay* kann nur in einem eingeschränkten Tieftemperaturbereich eingesetzt werden. Bei Temperaturen unter  $-160^{\circ}\text{C}$  wurde ein Aufbrechen der festen Oberfläche beobachtet, was zu großen UCN-Verlusten während der Speicherung führte [[Ser+05](#)]. POKOTILOVSKI schlug daher die Verwendung von neuen Perfluorpolymeren vor [[Pok99](#)], die auf Grund einer anderen Kettenstruktur einen niedrigeren Stockpunkt<sup>1</sup> besitzen. Bei Experimenten mit verschiedenen Fluorpolymeren wurde die Erfahrung gemacht, dass sie bis ca.  $50^{\circ}\text{C}$  unter den Stockpunkt abgekühlt werden können bevor sie brechen. Es wird daher vermutet, dass bei den vorgeschlagenen Polymeren dieser Effekt ebenfalls zu tieferen Temperaturen verschoben ist [[Pok05](#)].

#### 3.1. Eigenschaften und Synthese von perfluorierten Polyethern

Als perfluorierte Polymere (auch Fluorcarbone genannt) werden chemische Kohlenstoffverbindungen bezeichnet, bei welchen der Wasserstoff an den Kohlenstoffatomen vollständig durch Fluor ausgetauscht wurde. Dabei können ebenso Seitenketten an den Polymeren oder funktionalisierte Kettenenden auftreten. Eine spezielle Untergruppe sind perfluorierte Polyether (PFPE), welche ausschließlich aus Kohlenstoff-, Fluor- und Sauerstoffatomen aufgebaut sind und als lineares oder verzweigtes Polymer verwendet werden. In [Abbildung 3.1](#) ist eine Kette mit verzweigtem und linearem Anteil dargestellt. Modifikationen in der Kettenlänge und bei Verzweigungen wirken sich dabei hauptsächlich auf die intermolekularen

---

<sup>1</sup>Begriffsdefinitionen siehe [Abschnitt 3.1.1](#)



**Abbildung 3.1.:** Beispiel für einen verzweigten, perfluorierten Polyether.

Wechselwirkungen und somit auf Schmelzpunkt, Siedepunkt und Viskosität aus. Die herausragende Eigenschaft perfluorierter Polyether ist die große Stabilität gegenüber chemischen und physikalischen Einflüssen. So sind sie beispielsweise nicht entzündlich und erlauben den Einsatz in großen Temperaturbereichen bis einige Hundert Grad Celsius. Auf Grund der geringen Temperaturabhängigkeit ihrer Viskosität werden sie häufig als Schmieröle in Pumpen und im Vakuumbereich eingesetzt. Hier wird ebenfalls die hohe Dichte und niedrige Oberflächenspannung ausgenutzt, PFPE können somit auch in kleinste Spalten gelangen. [Sta90]

Das chemischen Verhalten von PFPE wird durch die starke Bindung zwischen dem kleinen Fluoratom mit hoher Elektronegativität und dem Kohlenstoffatom geprägt. Sie sind sehr inert gegenüber anorganischen oder organischen Säuren und Laugen sowie gegenüber Oxidations- und Reduktionsmitteln. Die Löslichkeit beschränkt sich auf Fluorkohlenwasserstoffe (FCKW), in anderen organischen Lösungsmitteln sind sie nicht löslich. [Sta90; SL95]

In [Tabelle 3.3](#) sind die Absorptionsquerschnitte  $\sigma$  und Streulängen  $a$  der Elemente angegeben, aus denen alle Polymere für UCN-Experimente zusammengesetzt sind. Alle drei sind sehr niedrig und aus dieser Sicht gut als Wandmaterial für UCN-Speicherung geeignet. Die Berechnung des Potentials und der energieunabhängigen Verlustrate erfolgt in [Abschnitt 3.2.3](#).

### 3.1.1. Glasübergang und Schmelzpunkt bei Polymeren

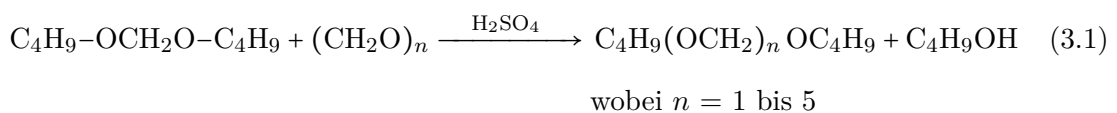
Niedermolekulare Stoffe (z.B. Wasser) liegen bei der Abkühlung aus der Schmelze unterhalb eines charakteristischen Schmelz- oder Erstarrungspunktes in einem kristallinen Zustand vor. In solch einem Kristall sind alle Moleküle in einer definierten Ordnung erstarrt. Damit Polymere diesen Zustand erreichen könnten, müssten also die verknäulten Polymerketten während der Kristallisation geordnet werden. Da dies quasi nicht möglich ist, können die meisten Polymere nicht kristallisieren und Erstarren unter Beibehaltung der ungeordneten Molekülstrukturen. Dieser amorphe (griech. gestaltlos) Zustand entspricht beispielsweise dem von Fensterglas. Der thermische Übergang aus der Schmelze zum festen Polymer wird daher auch als Glasübergang bezeichnet. Im Gegensatz zu kristallinen Feststoffen tritt beim thermischen

Übergang aber kein sprunghafter Phasenwechsel auf, es findet daher auch keine plötzliche Volumen- oder Eigenschaftsänderung statt. Die zum Übergang korrespondierende, charakteristische Temperatur wird als Glasübergangstemperatur bezeichnet. Das etablierte Verfahren für diese Untersuchungen ist die Dynamische Differenzkalorimetrie (DSC für engl. *Differential Scanning Calorimetry*). Da einige Polymere teilkristallin erstarren können, ist bei diesen Substanzen zusätzlich ein Phasenübergang 1. Ordnung im Thermogramm zu beobachten, es ist also tatsächlich ein Schmelzpunkt messbar. [KMN14; Wra14]

Bei der Charakterisierung von Polymeren für die industrielle Nutzung werden oft die Temperaturen am sogenannten *Pour Point* und am *Stockpunkt* angegeben. Sie beschreiben den Zustand, in dem das Polymer gerade noch bzw. gerade nicht mehr fließen kann. In der vorliegenden Arbeit soll der geläufige Begriff „Schmelzpunkt“ die Temperatur am Glasübergang des verwendeten Polymers, also die Änderung vom festen, amorphen in den flüssigen Zustand beschreiben.

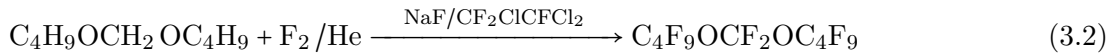
### 3.1.2. Synthese, physikalische und chemische Eigenschaften von PFMO

Das von POKOTILOVSKI für UCN-Wandspeicherexperimente vorgeschlagene Polymer wurde erstmals von SUNG und LAGOW synthetisiert und untersucht [SL95; SL96]. Sie hatten das Ziel, stabile, perfluorierte Polyether mit möglichst hohem Sauerstoffgehalt zu erzeugen und konzentrierten sich daher auf Polymethylenoxide. Eine direkte Fluorierung von Paraformaldehyd würde allerdings ein Gemisch von Polymethylenoxiden mit verschiedenen Molekulargewichten (also Kettenstrukturen) erzeugen. Die Autoren brachten daher Paraformaldehyde mit Dibutoxymethan zur Reaktion (siehe Reaktionsgleichung 3.1) und reinigten die Produkte durch Destillation bei reduziertem Druck [Imp49]. Somit waren die Polyformaldehyde zur Fluorierung mit unreaktiven *n*-Butylgruppen an den Kettenenden geschützt:

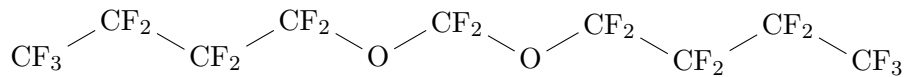


Durch direkte Flüssigphasen-Fluorierung mit elementarem Fluor [Bie+94] wurden bereits viele Perfluorether in großer Ausbeute und hoher Reinheit erzeugt, weshalb die Autoren ebenfalls diese Methode wählten. Mit fünf verschieden langen Polyformaldehyden wurde die Fluorierung durchgeführt, die Kettenlänge  $n$  variierte dabei von 1 bis 5. Bei den Polymeren mit  $n > 1$  entstanden Gemische der fluorierten Polyether, welche durch Destillation und Gaschromatographie einfach getrennt werden konnten. In Reaktionsgleichung 3.2 ist die Fluorierung für

das bei der UCN-Speicherung verwendete Polymer (mit  $n = 1$ ) dargestellt. Als Lösungsmittel wurde der FCKW Trichlortrifluorethan verwendet, die Ausbeute bei SUNG und LAGOW betrug 75%.



Gemäß der internationalen IUPAC-Nomenklatur<sup>2</sup> trägt diese Substanz den Namen Bis(perfluorobutoxy)difluormethan, die CAS-Nummer lautet: 163889-86-9. Als handliche Bezeichnung wird in dieser Arbeit aber die Abkürzung **PFMO** für **PerFluoriertes MethylenOxid** verwendet. Die Molmasse beträgt  $M_{\text{PFMO}} = 520 \text{ g/mol}$ , die Strukturformel ist in [Abbildung 3.2](#) dargestellt.



**Abbildung 3.2.:** Strukturformel des verwendeten perfluorierten Methylenoxids (PFMO).

Nach [SL95] wurde für dieses Polymer ein Schmelzpunkt von  $T_m = -152 \text{ °C}$  und ein Siedepunkt von  $T_b = 125 \text{ °C}$  bestimmt. Zum Vergleich lagen die Werte für das Produkt mit der Kettenlänge  $n = 5$  bei  $T_m = -145 \text{ °C}$  und  $T_b = 200 \text{ °C}$ . PACANSKY et al. haben die Struktur perfluorierter Ether mit *ab-initio*-Methoden untersucht: Im Gegensatz zu den homologen Kohlenwasserstoff-Verbindungen treten hier auch bei sehr niedrigen Temperaturen freie Rotationen um die Etherbindung auf, was die sehr niedrigen Schmelzpunkte in dieser Gruppe von Verbindungen ermöglicht. [Pac+91]

Die Zersetzung der synthetisierten Polymere mit Hilfe der DSC-Untersuchung konnte von SUNG und LAGOW bis  $300 \text{ °C}$  nicht beobachtet werden. [SL95]

### 3.2. Charakterisierung des verwendeten Polymers

Das im vorgestellten Experiment verwendete Polymer wurde von der Firma *ABCR GmbH & Co. KG*, Karlsruhe, durch direkte Fluorierung synthetisiert. Nach Herstellerangaben hat es eine Reinheit von 96,9% und enthält noch 4,1 ppm restlichen, organischen Wasserstoff. Entscheidend für die Eignung als UCN-Wandspeichermaterial sind die Verunreinigungen mit hohem Neutroneneinfangquerschnitt, allen voran Wasserstoff. Außerdem könnten in der Substanz

<sup>2</sup>Die *International Union of Pure and Applied Chemistry* gibt international vereinbarte Richtlinien zur Benennung von chemischen Verbindungen heraus.

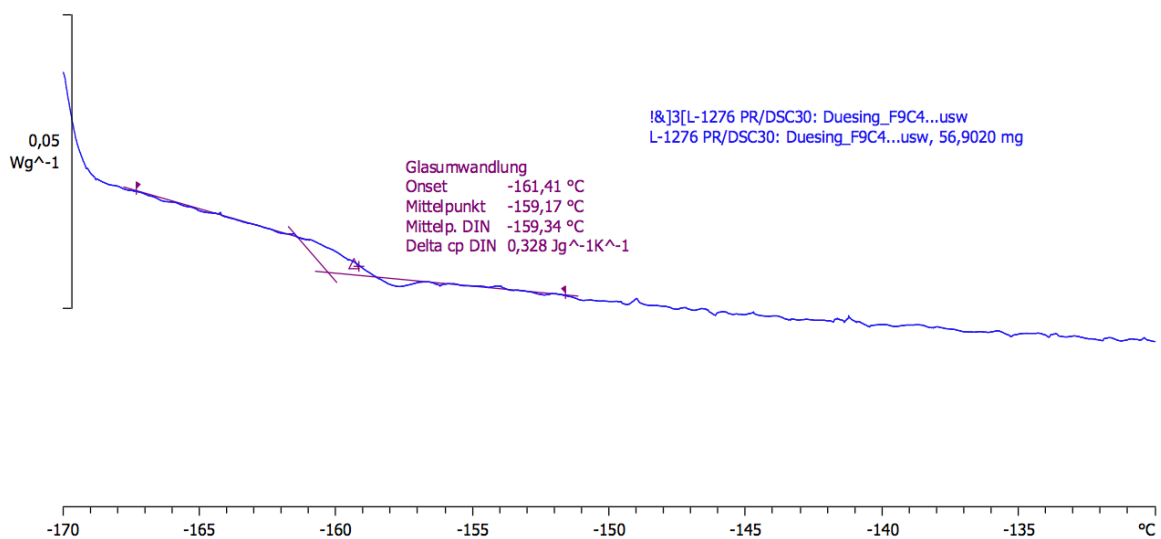
aus dem Herstellungsprozess zurückgebliebene Chloratome vorhanden sein. Insbesondere für eine spätere Bestimmung der Neutronenlebensdauer müssen alle Verlustkanäle während der Speicherung möglichst exakt bekannt sein. Aus diesem Grund wurde das gelieferte Polymer einer Reihe von Analysen unterzogen.

### 3.2.1. Physikalische Eigenschaften

- Dichte** Die Dichte  $\rho$  wurde mit Hilfe eines Pyknometers bestimmt.
- Viskosität** Die Messung erfolgte am MPI-P<sup>3</sup> mit einem Kapillarviskosimeter und lieferte die kinematische und dynamische Viskosität ( $\nu$  bzw.  $\eta$ ).
- Schmelzpunkt** Die Messung erfolgte ebenfalls am MPI-P durch dynamische Differenzkalorimetrie, das Thermogramm ist in [Abbildung 3.3](#) dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass kein typischer Kristallisationspunkt, stattdessen aber eine Änderung der Basislinie auftritt. In diesem Bereich findet der in [Abschnitt 3.1.1](#) beschriebene Glasübergang statt.

**Tabelle 3.1.:** Ergebnisse der Messungen von Dichte, Schmelzpunkt und Viskosität des verwendeten Polymers.

$\rho$ in kg/L	$T_m$ in °C	$\eta$ in kg/m s	$\nu$ in mm <sup>2</sup> /s
1,73 ± 0,01	-159,34 ± 0,01	1,439 ± 0,001	0,8319 ± 0,0001



**Abbildung 3.3.:** Thermogramm von PFMO durch dynamische Differenzkalorimetrie zur Bestimmung des Glasübergangspunktes des Polymers.

<sup>3</sup>Max-Planck-Institut für Polymerforschung, Mainz

In der Festkörperphysik ist die Röntgenreflektometrie (XRR) eine übliche Methode zur Analyse von Oberflächeneigenschaften, Kristall- und Schichtstrukturen. BROSE wählte daher diese Methode zur Untersuchung von *Fomblin*, welches nicht nur als Speichermaterial, sondern auch als UCN-Reflektor in einem Ladungsexperiment eingesetzt wurde. Die Ergebnisse zur Rauigkeit, Welligkeit und Verhalten beim Abkühlen der Polymerschicht unter den Schmelzpunkt lieferten wichtige Erkenntnisse über die Eignung als Reflektor. [Bro14]

Leider konnten analoge Messungen mit PFMO nicht durchgeführt werden. Um die Probe unter den Schmelzpunkt abkühlen zu können, sind Temperaturen von  $T_m \leq -160^\circ\text{C}$  notwendig. Bei diesen Temperaturen muss allerdings ein Kondensieren von Luftfeuchtigkeit an der Probe durch eine Schutzgasumgebung (z.B.  $\text{N}_2$ ) oder Vakuum unterbunden werden. Für eine XRR-Messung wäre also der gleiche Ablauf wie beim Beschichten der Speicherkammer (siehe Abschnitt 4.5.3) notwendig gewesen. Das Einbringen des Polymers nach dem Abkühlen des Probenträgers konnte an dem verfügbaren Gerät leider nicht realisiert werden. Darüber hinaus hätte nicht garantiert werden können, dass die im Gerät ausgefrorene PFMO-Schicht die gleiche Schichtdicke und Oberflächenstruktur wie die in der Speicherkammer gehabt hätte.

### 3.2.2. Chemische Analysen - NMR und NAA

Zur Bestimmung der Reinheit und von Verunreinigungen sollten  $^{19}\text{F}$ -NMR-,  $^1\text{H}$ -NMR-,  $^{13}\text{C}$ -NMR-, NAA<sup>4</sup> und PGAA<sup>5</sup>-Messungen durchgeführt werden. Eine Überprüfung der Struktur durch Massenspektrometrie war leider nicht möglich, da die Substanz zu flüchtig war.

Die NMR-Untersuchungen wurden mit einem BRUKER *Avance II 400* Gerät im Institut für Organische Chemie durchgeführt. Auf Grund der schlechten Löslichkeit in den meisten organischen Lösungsmitteln konnte hier nur  $\text{CCl}_4$  verwendet werden. In 0,7 mL dieses Lösungsmittels wurden 25 mg PFMO eingewogen. Als Standard für das NMR diente DMSO in einer Kapillare. Die Ergebnisse der drei Analysen:

**$^1\text{H}$ -NMR** Das klassische Wasserstoff-NMR-Spektrum lieferte keine aussagekräftigen Ergebnisse. Fast alle Signale liegen im tiefen Feld, hier treten normalerweise  $-\text{CH}_3$  und  $-\text{CH}_2-$  Protonen auf. Ein Vergleich mit dem NMR des analogen, unfluorierten Polymers  $\text{CH}_2(\text{OC}_4\text{H}_9)_2$  zeigte keine Übereinstimmung der Peaks. Die Herkunft der Signale konnte nicht geklärt werden.

---

<sup>4</sup>Neutronenaktivierungsanalyse

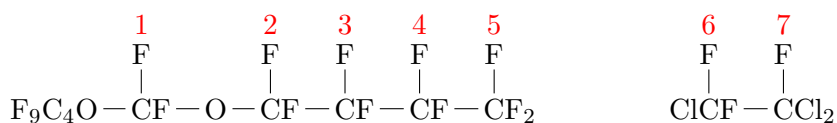
<sup>5</sup>Prompt-Gamma-Aktivierungsanalyse

**<sup>19</sup>F-NMR** Das gesamte Spektrum ist in [Abbildung 3.5](#) dargestellt und zeigt zusätzlich noch einen Ausschnitt der sehr kleinen Signale um  $\delta = 74$  ppm. Die chemischen Verschiebungen der Peaks  $\delta$  und die integralen Verhältnisse sind in [Tabelle 3.2](#) angegeben. Die Fluoratome wurden ausgehend vom zentralen C-Atom nach außen ([Abb. 3.4](#)) nummeriert. Die Ergebnisse entsprechen in guter Näherung den theoretischen Werten für die jeweilige chemische Verschiebung und auch die integralen Verhältnisse der verschiedenen Fluoratome sind kongruent. Im Anhang auf [Abbildung B.1b](#) ist das erwartete <sup>19</sup>F-NMR dargestellt. Die zwei Signale im vergrößert dargestellten Bereich entsprechend dem Lösungsmittel der Synthese (CCl<sub>2</sub>F–CClF<sub>2</sub>). Betrachtet man die integralen Verhältnisse der Fluoratome des PFMO und des Lösungsmittels, erhält man mit den molaren Massen der beiden Verbindungen einen Massenanteil von 0,26 % = 2549 ppm des Lösungsmittels und somit 1447 ppm Chlor.

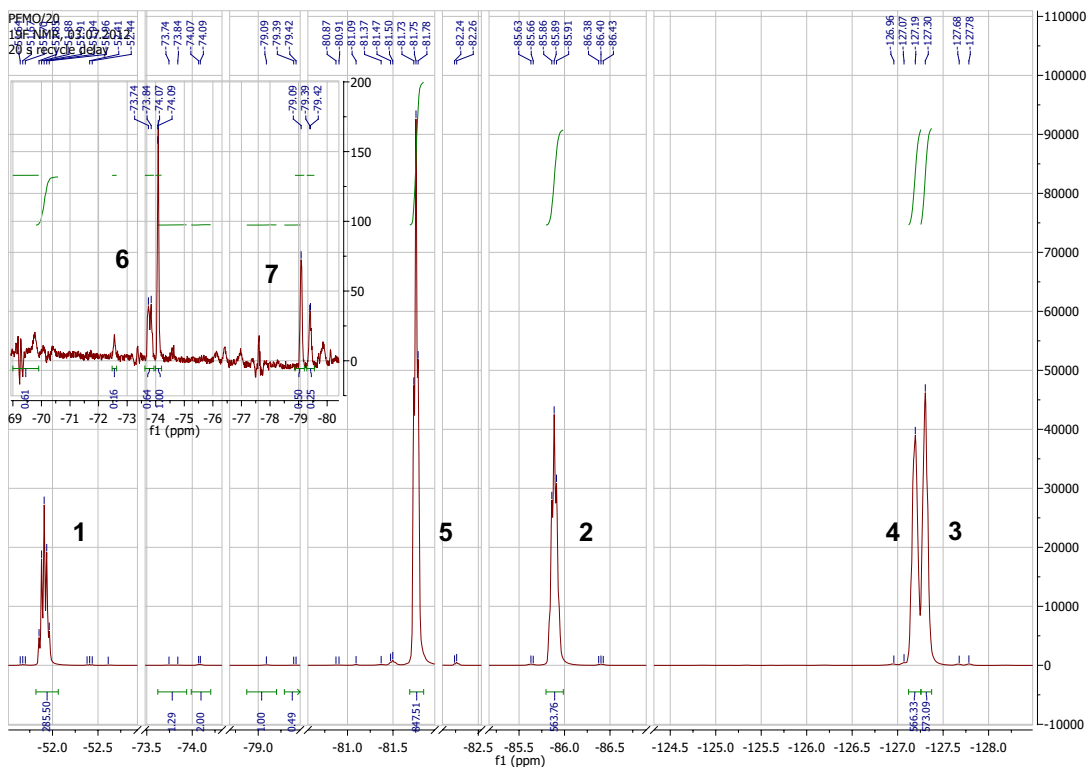
**<sup>13</sup>C-NMR** Das Spektrum lies leider keine Auswertung zu, im erwarteten Bereich von PFMO ( $\delta = 105 - 122$  ppm) waren nur sehr kleine Peaks erkennbar (siehe Abbildungen im Anhang auf [Abbildung B.2](#)). Neben dem großen Peak des NMR-Lösungsmittels (DMSO) enthielt das Spektrum außerdem einen bei  $\delta = 96$  ppm. In diesem Bereich liegen –CH–F und –CCl<sub>3</sub> Kohlenstoffatome. [SB62]

**Tabelle 3.2.:** Signale im <sup>19</sup>F-NMR von PFMO und dem Lösungsmittel bei der Synthese.

$\delta$ / ppm	$\delta_{\text{theo}}$ / ppm	Integrale Verhältnisse		F-Atomnr.
-51,9	-54,2	286	2	1
-81,2	-81,5	848	6	5
-85,9	-83,4	564	4	2
-127,2	-126,3	566	4	4
-127,3	-126,6	573	4	3
-74,1	-68,0	2,0	-	6
-79,1	-72,5	1,0	-	7



**Abbildung 3.4.:** Strukturformeln von PFMO (links) und dem Lösungsmittel (rechts) mit Atomnummern bezüglich des <sup>19</sup>F-NMR-Spektrums.



**Abbildung 3.5.:**  $^{19}\text{F}$ -NMR-Spektrum des verwendeten PFMO. Die nummerierten Peaks 1-5 korrespondieren mit den Fluoratomen in PFMO, ausgehend vom zentralen Kohlenstoffatom. Die Peaks 6 und 7 gehören zum Lösungsmittel bei der Synthese.

### Neutronenaktivierungsanalyse

Mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA [GBD11; ET07] und PGAA [Mol04]) sollte außerdem der Gehalt an Rückständen von Chlor und Wasserstoff bestimmt werden, da beides einen hohen UCN-Absorptionsquerschnitt besitzt. Die NAA-Messungen wurden von Christian Stieghorst am *Forschungsreaktor TRIGA Mainz* durchgeführt. Als Standard zur Bestimmung des Neutronenflusses diente Zinn [Kar12], außerdem wurden ein Chlorstandard zur Kalibrierung verwendet. Es wurden 0,77 g PFMO eingewogen und für 1 Minute in der Rohrpost-Anlage im Kernreaktor bestrahlt. Neben Chlor konnte nur Brom als einziges NAA-sensitives Element noch in der Probe nachgewiesen werden. Die PGAA-Messungen wurden von Petra Kudejova am FRM II in München<sup>6</sup> durchgeführt. Hiermit war auch die Bestimmung von Wasserstoff möglich. Allerdings konnte die Probe nicht im Vakuum vermessen werden, weshalb im Probenbehälter Atmosphärendruck vorlag. Trotz Korrekturen ist somit nicht auszuschließen, dass auch Wasserstoff aus der Luftfeuchtigkeit erfasst wurde. Der Wert für Wasserstoff ist daher als maximale Grenze anzusehen.

<sup>6</sup>Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz an der TU München.

Die Ergebnisse in Masseanteilen (ppmw):

	Wasserstoff	Chlor	Brom
NAA		$113 \pm 10$	$(3,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-3}$
PGAA	$11,1 \pm 0,4$	$170 \pm 27$	

Mit den Molmassen von Chlor und dem Lösungsmittel<sup>7</sup> ergibt sich eine Konzentration des Trichlortrifluorethan von  $(300 \pm 47)$  ppm. Dieser Wert ist nur ein Bruchteil des per NMR bestimmten Lösungsmittel- und Chlorgehalts. Die große Diskrepanz zwischen den beiden Untersuchungsmethoden lässt sich nicht eindeutig klären. Auf Grund der großen Zuverlässigkeit der NAA / PGAA in der Spurenanalytik und den unsaubereren, schwer auszuwertenden NMR-Spektren ist davon auszugehen, dass der tatsächliche Chlorgehalt im Bereich von  $(170 \pm 27)$  ppm liegt.

Berücksichtigt man die vom Hersteller angegebene Reinheit von 96,9%, so sind neben den per NMR bestimmten Lösungsmittelresten noch weitere, unbekannte Stoffe enthalten. Es wird davon ausgegangen, dass nur organische Verunreinigungen in der Probe vorliegen, leider konnte das <sup>13</sup>C-NMR keine Aussagen über die Art dieser liefern. Der mittels PGAA bestimmte Wasserstoffgehalt liegt über der vom Hersteller angegebenen Verunreinigung mit organischem Wasserstoff von 4,1 ppm, stellt aber nur die obere Grenze dar. Auf Grund der Erfahrungen von SUNG und LAGOW bei der Synthese ist aber davon auszugehen, dass größtenteils nur perfluorierte Polymerfragmente als Verunreinigungen vorliegen.

### 3.2.3. Charakteristik als Neutronenspeichermaterial

Die Eignung einer Substanz als UCN-Wandspeichermaterial wird durch den Wandreflexionskoeffizienten quantisiert. Er kann aus den Absorptionsquerschnitten und den Streulängen der einzelnen Elemente der Substanz berechnet werden. Bei PFMO sind dies Kohlenstoff, Fluor und Sauerstoff. Entsprechend der obigen Ergebnisse zur tatsächlichen Zusammensetzung des verwendeten PFMO werden zusätzlich noch Wasserstoff und Chlor berücksichtigt. In [Tabelle 3.3](#) sind die Streulängen und Verlustquerschnitte der Elemente dargestellt.

Mit den Gleichungen (2.11) und (2.14) kann das reelle bzw. imaginäre Potential des reinen PFMO mit seiner Summenformel  $C_9F_{20}O_2$  berechnet werden. In den Gleichungen wurde für die Teilchendichte  $N = \frac{N_A \rho}{M_{PFMO}}$  und die Geschwindigkeit thermischer Neutronen  $v = 2200$  m/s

<sup>7</sup> $M_{Cl} = 35,45$  g/mol und  $M_{CCl_2F-CClF_2} = 187,34$  g/mol

**Tabelle 3.3.:** Molare Masse, Streulänge, Querschnitte zur Absorption und Hochstreuung der in PFMO enthaltenen Elemente. Quelle: [DL03]

Element	Anteil	$M / \text{kg/mol}$	$a / \text{fm}$	$\sigma_{\text{abs}} / 10^{-24} \text{cm}^2$	$\sigma_{\text{inc}} / 10^{-24} \text{cm}^2$	$\sigma / 10^{-24} \text{cm}^2$
<b>Kohlenstoff</b>	73,0 %	12	6,65	0,0035	0,001	0,0045
<b>Fluor</b>	20,8 %	19	5,65	0,0096	0,0008	0,0104
<b>Sauerstoff</b>	6,2 %	16	5,81	0,00019	0	0,00019
<b>Wasserstoff</b>	11 ppm	1	-3,74	0,3326	80,26	80,6
<b>Chlor</b>	170 ppm	35	9,58	33,5	5,3	38,8

angenommen. Die Streulänge und der Verlustquerschnitt werden jeweils aus den atomzahlgewichteten Einzelbeträgen gebildet.

$$V_{\text{eff}} = \frac{2\pi \hbar^2}{m_{\text{N}}} \cdot N a = \frac{2\pi \hbar^2}{m_{\text{N}}} \cdot \frac{N_A \rho}{M_{\text{PFMO}}} \cdot (9 a_{\text{C}} + 20 a_{\text{F}} + 2 a_{\text{O}})$$

$$V_{\text{eff}} = (95,4 \pm 0,6) \text{ neV} \quad (3.3)$$

$$W = \frac{\hbar v}{2} \cdot N \cdot \sigma_l \cdot v = \frac{\hbar v}{2} \cdot \frac{N_A \rho}{M_{\text{PFMO}}} \cdot (9 \sigma_{\text{C}} + 20 \sigma_{\text{F}} + 2 \sigma_{\text{O}})$$

$$W = (3,6 \pm 0,6) \cdot 10^{-5} \text{ neV} \quad (3.4)$$

Für die Verlustrate pro Wandstoß erhält man gemäß [Gleichung 2.15](#)

$$\eta_{\text{PFMO, rein}} = \frac{W}{V_{\text{eff}}} = (3,77 \pm 0,02) \cdot 10^{-7}. \quad (3.5)$$

Wie im vorherigen Abschnitt gezeigt, ist das Polymer mit 11 ppm Wasserstoff und 170 ppm Chlor verunreinigt. Es gilt die Summenformel  $\text{C}_9\text{F}_{20-x-y}\text{O}_2\text{H}_x\text{Cl}_y$ . Da sowohl  $x$  als auch  $y \ll 1$ , braucht die Veränderung des Fluoranteils und das effektive Potential  $V_{\text{eff}}$  nicht berücksichtigt zu werden. Somit folgt für das imaginäre Potential

$$W = \frac{\hbar v}{2} \cdot \frac{N_A \rho}{M_{\text{PFMO}}} \cdot (9 \sigma_{\text{C}} + 20 \sigma_{\text{F}} + 2 \sigma_{\text{O}} + x \sigma_{\text{H}} + y \sigma_{\text{Cl}})$$

$$= (1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-4} \text{ neV},$$

und die Verlustrate

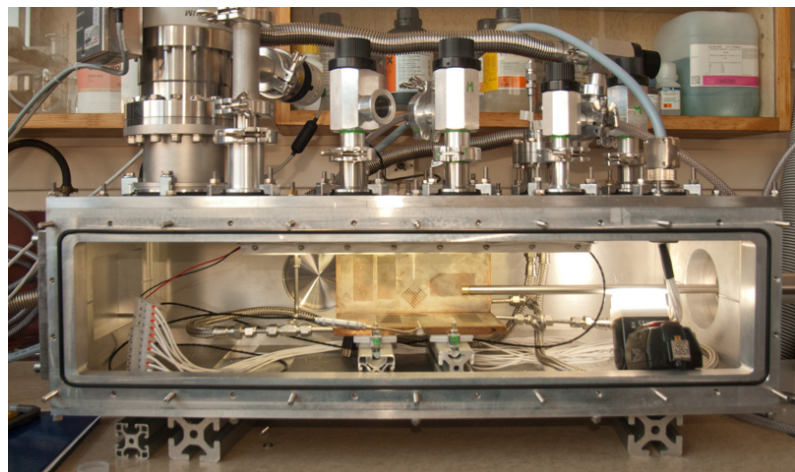
$$\eta_{\text{PFMO}} = (1,23 \pm 0,03) \cdot 10^{-6}. \quad (3.6)$$

Der Einfluss der beiden Verunreinigungen führt also für eine Erhöhung der Verlustrate um eine Größenordnung. Beide Elemente tragen dabei ungefähr gleichwertig dazu bei. Der Vergleich mit *Fomblin* (Tabelle 2.2) zeigt, dass die Verlustrate von PFMO mit Verunreinigungen die gleiche Größenordnung besitzt.

Die maximale Energie der speicherbaren Neutronen hängt nach Abschnitt 2.1.3 vom Wandpotential ab. Bei  $(95,4 \pm 0,6)$  neV beträgt die maximale Geschwindigkeit  $v_{\max} = 4,3 \text{ m/s}$  und somit liegt die Mitte des Spektrums bei  $\bar{v} = 3,2 \text{ m/s}$ . Die minimale Schichtdicke von PFMO sollte dem Äquivalent von 10 UCN-Wellenlängen<sup>8</sup> entsprechen, also ca.  $1 \mu\text{m}$  [Pok16].

### 3.3. Beschichtungs- und Kühlversuche mit PFMO

Wie in Abschnitt 2.2.5 dargestellt, wurden bereits Fluorpolymere als Wandbeschichtung für UCN-Speicherexperimente eingesetzt (z.B. [Mam+93]). Limitierender Faktor bei der Eignung eines Polymers für diese Messungen ist weniger der konkrete Schmelzpunkt, sondern vielmehr das grundsätzliche Verhalten des Polymers bei niedrigen Temperaturen. Im Gegensatz zu den bisher verwendeten *Fomblin*-Polymeren (flüssig oder als Paste) war die Temperaturcharakteristik von PFMO noch nicht bekannt und musste daher vor der Verwendung untersucht werden. Auf Grund des niedrigen Siedepunktes und hoher Flüchtigkeit musste auch der Applikationsprozess im Vergleich zu den *Fomblin*-Experimenten angepasst werden. Eine spezielle Apparatur für diese Beschichtungstests wurde entwickelt (siehe Abbildung 3.6). Eine weitere Funktion dieses Aufbaus sollten Untersuchungen zum Regelverhalten des Kühlsystems (vorgestellt in Abschnitt 4.4) sein. [Zim13]



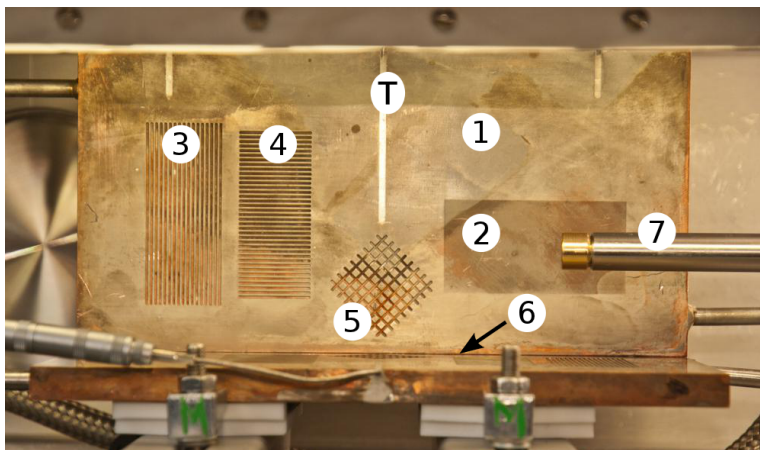
**Abbildung 3.6.:**

Vakkumkammer (geöffnet) für Beschichtungstests. Im Zentrum befinden sich die Kupferplatten, von rechts wird über eine Linearführung und das Edelstahlrohr das Polymer durch einen Heliumgasstrom auf die Oberfläche geleitet.

<sup>8</sup>Berechnung der de-Broglie-Wellenlänge:  $\lambda(v = v_{\max}) = h \sqrt{1 - \left(\frac{v_{\max}}{c}\right)^2} (m_N v_{\max})^{-1} \approx 92 \text{ nm}$

### 3.3.1. Apparatur für Beschichtungstests

Der Testaufbau bestand aus zwei Kupferplatten, die im rechten Winkel verschraubt waren und jeweils eine Oberfläche der Größe 10 x 20cm waagrecht und senkrecht angeordnet war (siehe [Abbildung 3.7](#)). Die Kühlung erfolgte über ausgefräste Kanäle auf den Rückseiten der Platten, welche an das Regelsystem des Stickstoffdewars' angeschlossen waren. Auf Grund der großen Plattenwandstärke (10 mm) und durch die große Wärmekapazität von Kupfer konnte eine ausreichend homogene Temperaturverteilung ermöglicht werden. Daher wurde auch nur mit je einem PT100-Sensor (T) die Temperatur in jeder Platte gemessen. Jeweils beide Oberflächen waren mit fünf verschiedenen Strukturen versehen, um unterschiedliches Verhalten des Polymers auf diesen beobachten zu können (Nr. vgl. Abbildung): (1) poliert, (2) angeraut durch Sandstrahlen, (3) vertikale Rillen, (4) horizontale Rillen, (5) 45° verkipptes Gitter. Außerdem sollte der Schlitz zwischen den beiden Kupferplatten (6) für Untersuchungen genutzt werden.



**Abbildung 3.7.:**

Waagerechte und senkrechte Kupferplatte der Testapparatur mit Oberflächenstrukturen: (1) poliert, (2) angeraut, (3) vertikale und (4) horizontale Rillen, (5) Gitter. Der Schlitz (6) sollte ebenfalls beschichtet werden. Beiden Platten wurde mit flüssigem Stickstoff durchspült und jeweils ein PT100-Sensor (T) diente der Temperaturmessung. Nr. 7 ist das Edelstahlrohr mit der Sprühdüse.

Zur Beobachtung der Oberflächen wurden zwei Mikroskopkameras der Firma *Supereyes* eingesetzt, ein regelbarer LED-Strahler sorgte für eine homogene Ausleuchtung. Außerdem konnte durch ein Vakuumfenster die vertikale Platte beobachtet und fotografiert werden. Da sich auf den Kupferoberflächen sehr schnell eine schwarze Oxidschicht bildete, sollte diesem Prozess durch chemisches Verzinnen in einem Tauchbad entgegen gewirkt werden. Leider hielt die Beschichtung nicht an allen Stellen gleichermaßen.

Im späteren Experiment sollte die Beschichtung über einen Sprühkopf erfolgen, welcher am Ende eines Rohres montiert ist, die im UCN-Speichervolumen bewegt werden kann. Um dieses Prinzip auf Funktion überprüfen zu können, erfolgte auch an der Testapparatur die Beschichtung über dieses Rohr (Nr. 7 in der Abbildung). Verschiedene Formen der Sprühdüse wurden

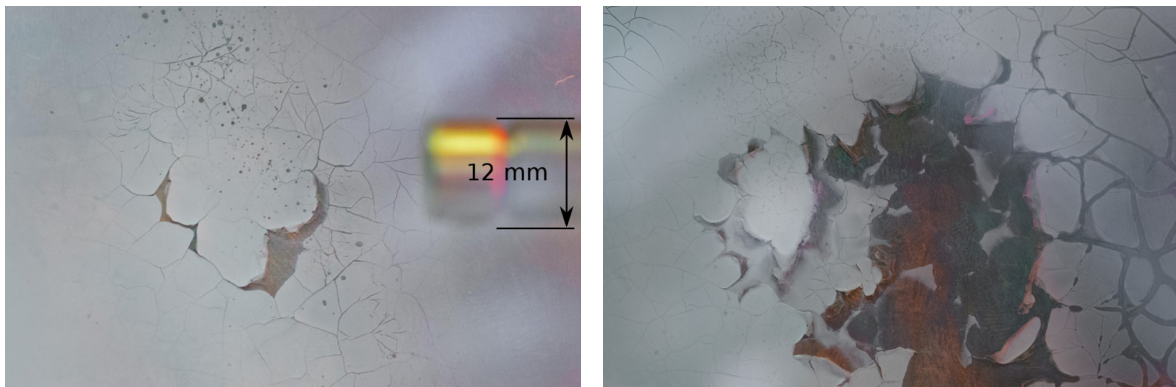
getestet. Der Helium-Gasjet zum Einbringen des Polymers ist in [Abschnitt 4.5](#) beschrieben, ebenso die Möglichkeit der Rückgewinnung des Polymers, welche auch an der Testapparatur durchgeführt wurde. Für die Beschichtung konnte die Kammer mit Helium geflutet und über ein analoges Manometer der Druck kontrolliert werden. Während des Auftrags lag dieser bei mehreren Hundert Millibar, die Kupferplatten waren auf das Minimum (ca.  $-195\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) gekühlt. Beim anschließenden Konditionieren der Polymeroberfläche lag das Vakuum in der Kammer im Bereich von  $10^{-4}$  mbar.

### 3.3.2. Ergebnisse und Erkenntnisse der Beschichtungstests

Die Experimente und Untersuchungen am Teststand lieferten die folgenden Ergebnisse:

- Der PFMO Dampf sublimierte auf der kalten Kupferoberfläche und bildete eine amorphe, farblose Schicht. Auf der noch unbearbeiteten Oberfläche und im polierten Bereich platzte bei fortgesetztem Auftragen die Schicht ab (siehe [Abbildung 3.8a](#)). Auf der angerauten Oberfläche wurde dies nicht beobachtet. Beim Erwärmen auf über  $-160\text{ }^{\circ}\text{C}$  schmolz das feste Polymer und bildet eine homogene, klare Schicht (siehe [Abbildung 3.8b](#)). Auf der vertikalen Platte, neben den Rillen, konnte das Gleiche beobachtet werden (siehe [Abbildungen 3.9a](#) und [b](#)).

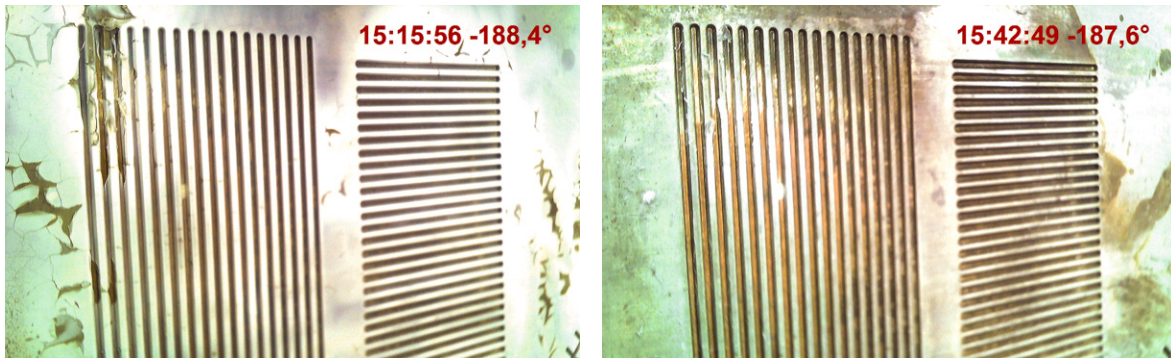
Im späteren Experiment muss das Aufreißen und Abplatzen unbedingt vermieden werden. Durch eine dauerhafte Titanbeschichtung des Speicherrohrs konnte eine ausreichend raue Oberfläche erzeugt werden. Der hier bei den Tests beobachtete Effekt konnte später kein einziges Mal beobachtet werden.



**(a)** Amorphe PFMO-Schicht, teilweise reißt diese ein und platzt ab.

**(b)** Auftauen des PMFO bei Erwärmung, die flüssige Schicht ist klar.

**Abbildung 3.8.:** Beschichtung der vertikalen Platte auf einer unbearbeiteten Oberfläche.



(a) Amorphe PFMO-Schicht, teilweise reißt diese ein und platzt ab.

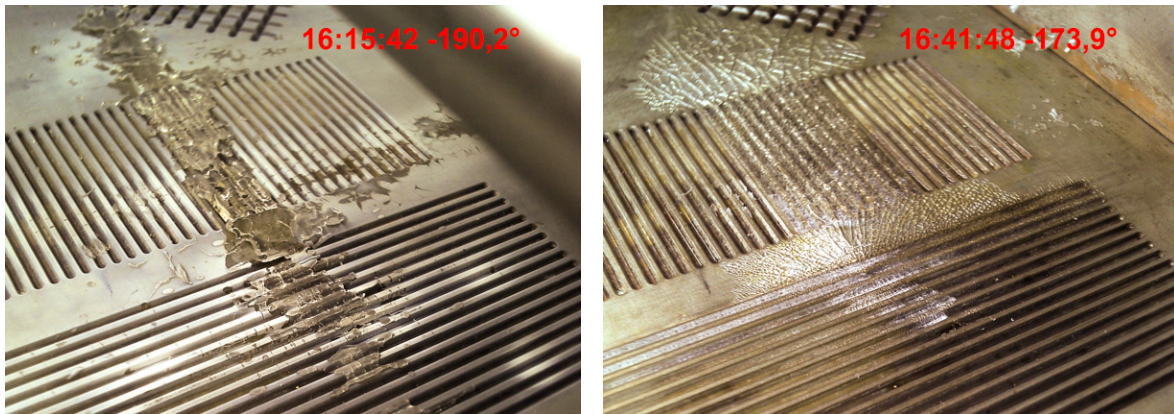
(b) Nach dem Auftauen und wieder Abkühlen des PMFO ist die temperierte Schicht homogen klar.

**Abbildung 3.9.:** Beschichtung der vertikalen Platte auf den Rillen. Wie man am Temperaturstempel auf dem Foto erkennt, waren nach dem ersten Temperieren fast sämtliche Inhomogenitäten verschwunden.

- Die Öffnungen der **Sprühdüse** dürften nicht so klein sein, dass der Gasstrom gestaut wird. Es konnte beobachtet werden, dass bei nur wenigen Austrittslöchern das Polymer bereits im Rohr kondensierte und aus den Löchern zu Boden tropfte. Im späteren Experiment wurde daher ein Sprühkopf mit einem umlaufenden Schlitz auf der Mantelfläche verwendet. Alternativ wäre eine Heizung im Rohr möglich gewesen, welche ein Kondensieren verhindert hätte.
- Die durch Tropfen stammenden, großen Mengen PFMO auf der horizontalen Platte zeigten das bekannte Verhalten anderer perfluorierter Polymere: Wie in den Abbildungen 3.10 dargestellt, war die gefrorene Schicht ca 1 mm dick (anhand der Rillengröße abschätzbar). Beim Erwärmen verlief das flüssige Polymer und verteilte sich in den Rillen, was auf den Fotos deutlich zu erkennen war. Beim erneuten Ausfrieren trat aber bereits bei Temperaturen unter  $-170^{\circ}\text{C}$  das Aufbrechen ein. Bei den dünneren Schichten an beiden Oberflächen konnte dies dagegen teilweise auch beim Temperaturminimum nicht beobachtet werden.

Die Faustregel, dass ein Polymer unabhängig(!) von der Schichtdicke um ca.  $50^{\circ}\text{C}$  unter den Schmelzpunkt abgekühlt werden kann bevor es bricht, hat sich beim PFMO nicht so pauschal bestätigen können.

- Der Schlitz zwischen beiden Kupferplatten wurde beim Erwärmen durch herabfließendes PFMO verschlossen. Allerdings muss vorher auf den senkrechten Oberflächen eine ausreichende Menge PFMO aufgetragen werden.



(a) Makroskopische Mengen des Polymers waren von von der Düse getropft und erstarrt,

(b) Beim Erwärmen verteilte es sich, brach aber beim erneuten Abkühlen auf.

**Abbildung 3.10.:** Beschichtung der horizontalen Platte auf den Rippen.

### 3.3.3. Erkenntnisse zur Temperaturregelung

Es konnten weitere, wichtige Erkenntnisse zur Kühlung gesammelt werden. So kam es teilweise zu einem Temperaturunterschied von  $15\text{ }^{\circ}\text{C}$  zwischen den beiden Platten, weil sich der flüssige Stickstoff zuerst in der waagerechten Platte sammelte. Durch impulsweises Einlassen von Stickstoff konnte dieses Problem reduziert werden. Bei der Konstruktion des späteren Experiments musste aber darauf geachtet werden, dass die  $LN_2$ -Versorgung möglichst symmetrisch erfolgt. Außerdem konnte beobachtet werden, dass die Temperatur beim Spülen des Kupfers, also bis zum Austritt von  $LN_2$  am Auslass, höher war als beim pulsierten Einlass. Dieser Effekt wird darauf zurückgeführt, dass kleine Mengen  $LN_2$  durch das Verdampfen in den Kühlkanälen auf Grund der notwendigen Verdampfungsenthalpie die Umgebung zusätzlich kühlen können. Durch ein Schaltventil am Kühlsystem konnte das intervallmäßige Einlassen einfach in die automatische Steuerung integriert werden.

### 3.3.4. Rückgewinnung des Polymers

Im Gegensatz zu den bisher eingesetzten Fluorpolymeren war das hier eingesetzte deutlich teurer. Dies lag hauptsächlich an der fehlenden kommerziellen Nutzung, sodass die Synthese gezielt beauftragt werden musste. Es sollte daher überprüft werden, ob eine Rückgewinnung des eingesetzten PFMO nach den Beschichtungen möglich und effizient ist. Die apparative Beschreibung erfolgt in [Abschnitt 4.5.5](#), sie wurde aber auch schon bei den Beschichtungstests eingesetzt. Dort konnte 90% des vorgelegten PFMO in der Kühlfalle zurückgewonnen werden. Allerdings ist davon auszugehen, dass dieses vor einer erneuten Verwendung gereinigt werden muss. Als Verfahren würde sich dafür Destillation eignen.

### 3.4. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden Fluorpolymere im Allgemeinen und das verwendete Polymer im Speziellen betrachtet. Die herausragenden Eigenschaften von Fluorpolymeren sind große Stabilität gegenüber chemischen und physikalischen Einflüssen sowie eine große Temperaturtoleranz. Für Neutronenspeicherexperimente sind sie wegen der geringen Verlustquerschnitte ihrer Elemente (Kohlenstoff, Fluor und Sauerstoff) von Interesse. Außerdem sind sie hervorragend für Vakuumanwendungen geeignet. Die charakteristischen Eigenschaften hängen sehr stark von der Kettenstruktur und Verzweigungen ab. Im Gegensatz zu niedermolekularen Stoffen, erstarren Polymere nicht in einem kristallinen Zustand, sondern behalten ihre ungeordnete Struktur bei. Der Übergang vom festen in den flüssigen Zustand ist daher kein Phasenwechsel, der mit einer Eigenschaftsänderung einhergeht. Aus diesem Grund wird statt eines Schmelzpunktes ein Fließ- und ein Stockpunkt angegeben, an dem das Polymer gerade noch bzw. gerade nicht mehr fließt.

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Polymer wurde von POKOTILOVSKI auf Grund seines niedrigen Schmelzpunktes vorgeschlagen. Die Synthese erfolgte von der ABCR GmbH & Co KG durch direkte flüssigphasen Fluorierung und anschließender Aufreinigung. Es ist ein lineares Polymer mit der Formel  $(C_4F_9O)_2 - CF_2$ . Nach der Auslieferung wurden die Dichte, Viskosität und der Erstarrungspunkt bestimmt. Im Folgenden wird der geläufige Begriff „Schmelzpunkt“ verwendet, er liegt für das synthetisierte Polymer bei  $T_m = 159^\circ C$ .

Mit Hilfe der chemischen Analysen NMR, NAA und PGAA wurde die Verbindung auf Verunreinigungen untersucht. Dabei konnte mit Hilfe des  $^{19}F$ -NMR der Anteil des Lösungsmittels auf ca. 0,26 % eingegrenzt werden. Die wesentlich exakteren Messmethoden NAA und PGAA lieferten genauere Werte für den Chlorgehalt (170 ppmw) und die maximal vorhandenen Wasserstoffreste (11 ppmw). Aus der elementaren Zusammensetzung und den Streulängen konnte das effektive Wandpotential von PFMO berechnet werden. Es liegt bei  $V_{\text{eff}} = 95 \text{ neV}$ . Mit den Verlustquerschnitten der einzelnen Elemente wurde außerdem das imaginäre Potential und daraus sowohl die Verlustrate des reinen PFMO als auch die des mit Chlor und Wasserstoff verunreinigten Polymers berechnet. Sie steigt durch die Kontamination um eine Größenordnung von  $\eta = (3,77 \pm 0,02) \cdot 10^{-7}$  auf  $\eta = (1,23 \pm 0,03) \cdot 10^{-6}$  an. Damit besitzt sie zwar nur die gleiche Größenordnung wie *Fomblin*, der geringere Schmelzpunkt könnte das Polymer dennoch interessant für Neutronenlebensdauerexperimente machen.

Im letzten Teil des Kapitels wurden die Beschichtungs- und Kühlversuche mit PFMO beschrieben. An einer Testapparatur waren auf einer horizontalen und einer vertikalen Kupferplatte verschiedene Strukturen (Rillen, glatte und raue Oberfläche) aufgebracht. Die regelbare Kühlung erfolgte unter Temperaturkontrolle mit flüssigem Stickstoff, die Beschichtung wie im späteren Experiment über einen Helium-Gasjet. Die Versuche lieferten wichtige Erkenntnisse zum Temperaturverhalten des PFMO: Es legt sich amorph auf einer tiefkalten Oberfläche ab und kann im flüssigen Zustand Schlitze verschließen. Außerdem wurde das Aufplatzen einer festen Polymerschicht beobachtet, wenn diese zu dick war. Dies musste im späteren Experiment verhindert werden, um keine zusätzlichen Neutronenverluste zu erlauben. An diesem Aufbau konnten außerdem das Kühlsystem und das Beschichtungssystem ausgiebig getestet werden. Die Erfahrungen fanden direkte Umsetzung im experimentellen Aufbau, der im folgenden Kapitel beschrieben wird.



## Kapitel 4.

### Experimenteller Aufbau

Zu Beginn des Jahres 2012 begannen die konkreten Planungen für ein Experiment zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer unter Verwendung des in [Kapitel 3](#) beschriebenen Polymers. Bereits in [Abschnitt 2.2.4](#) wurden die möglichen Typen eines Lebensdauerexperiments dargestellt und der Entscheidungsprozess für das schließlich verwendete beschrieben.

Im Jahr 2013 wurde der bereits entwickelte Teil des Experiments bei einem Forschungsaufenthalt am ILL<sup>1</sup> getestet und die Erkenntnisse in den darauffolgenden Jahren berücksichtigt. In diesem Kapitel werden die einzelnen Komponenten des experimentellen Aufbaus beschrieben, welcher bei der Strahlzeit am ILL im Herbst 2015 verwendet wurde. Ansätze zur Optimierung des Experiments werden ausführlich im [Abschnitt 6.2](#) diskutiert.

#### 4.1. Überblick

Der finale Aufbau des Experiments ist in [Abbildung 4.1](#) auf [Seite 52](#) von außen und im Querschnitt dargestellt. Die Farben sind zur besseren Darstellung teilweise abweichend von der Realität gewählt. Der gezeigte Aufbau hatte eine Höhe von 5 m und beanspruchte eine Grundfläche von etwa 2 m<sup>2</sup>, für die Elektronik und das Kühlsystem war weiterer Platz notwendig. Das vertikale Rohr in der Mitte ist die Vakuumkammer, welche die meisten Komponenten des Experiments enthielt. Im Zentrum befand sich die zylinderförmige Speicherkammer (5) aus Kupfer mit 1 m Länge und 23 cm Durchmesser. An den Neutronenleiter unterhalb der großen Vakuumkammer war die Neutronenweiche (2) montiert, welche entweder das Einlassen von der UCN-Quelle (1) oder das Auslassen zum Detektor (nicht dargestellt) ermöglicht. Außerdem befindet sich der Antrieb (3) des Verschlussmechanismus (4) unter der Kammer. Am oberen Ende der Vakuumkammer befindet sich ein großes Vakuumventil (7), das die

---

<sup>1</sup>Forschungsreaktor des Institut Laue-Langevin, Grenoble, Frankreich

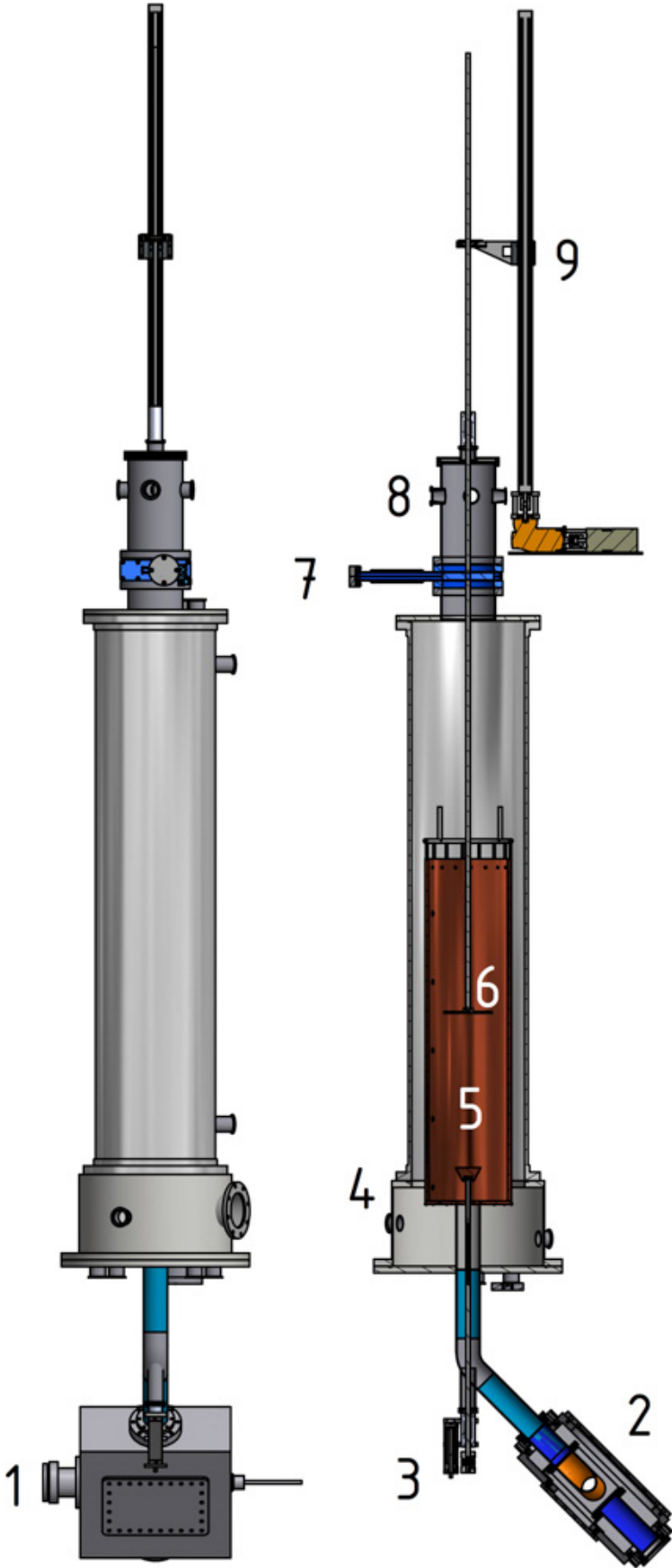


Abbildung 4.1.: Experimenteller Aufbau von der Seite und im Querschnitt.

Schleusenkammer (8) abtrennt. Von oben ist ein 2,4 m langes Edelstahlrohr in das Vakuum eingeführt und wird von einem elektrischen Linearantrieb (9) softwaregesteuert bewegt.

In der Abbildung führt der Neutronenleiter von der UCN-Quelle<sup>2</sup> des ILL von links bzw. hinten in die Apparatur. Der Detektor unterhalb der Strahlweiche ist nicht dargestellt. Ebenfalls nicht dargestellt sind die Kühlleitungen innerhalb und außerhalb des Vakuums, die Vakuumbauteile, die Detektoren in der Speicherkammer und sämtliche Komponenten des Gerüsts. Im zuführenden UCN-Leiter befanden sich ca. 1,5 m vor der Strahlweiche der Monitor-detektor und ein VAT-Plattenventil, um den Neutronenuntergrund während der Messungen zu reduzieren. Um Störungen durch elektronisches Rauschen zu reduzieren, wurden bei der Auswahl der Komponenten nach Möglichkeit pneumatische Antriebe bevorzugt.

## 4.2. Vakuumkammer und -system

### Komponenten

Die Vakuumkammer bestand aus der Bodenplatte ( $\varnothing_{\text{Innen}} = 440 \text{ mm}$ ), einem kurzen Rohr mit gleichem Durchmesser und einem langen Rohr mit einem geringeren Innendurchmesser (330 mm). Auf dem Deckelflansch wurde ein VAT Plattenventil mit einer Öffnung von 160 mm montiert, um das kleine Vakuumrohr am oberen Ende als Schleuse verwenden zu können. Benötigt wurde diese für den Wechsel zwischen Absorber und dem Beschichtungssystem (siehe [Abschnitt 4.7.2](#)). Am oberen ISO160-Flansch befand sich eine Lineardurchführung, durch die das Edelstahlrohr mit Absorber / Sprühdüse in der Speicherkammer bewegt werden konnte.

Das gesamte Vakuumsystem erstreckte sich über den Neutronenleiter bis zu einem Separationsfenster am Anschlussflansch der Turbine. Außerdem war die UCN-Strahlweiche (siehe [Abschnitt 4.3.1](#)) ebenfalls in das System integriert. Für ein möglichst gutes Vakuum wurden daher an vier Stellen Turbopumpen eingesetzt: Am zuführenden Neutronenleiter, an der Strahlweiche, am Bodenflansch der Vakuumkammer und an der Schleusen-kammer. Drei Drucksensoren am Neutronenleiter, der Vakuumkammer und der Schleuse dienten zur Kontrolle des Vakuums. Die beiden letzten konnten über einen Druckmonitor vom Typ *XGS-600* der Firma AGILENT an den PC der Experimentsteuerung angeschlossen werden. Als Dichtungsmaterial bei den KF-, CF- und Rohrflanschen wurde NPT verwendet. Der Druck lag während der Speichermessungen Bereich von 1 bis  $5 \cdot 10^{-6}$  mbar.

---

<sup>2</sup>In der STEYERL-Turbine rotieren Neutronenspiegel an denen sehr kalte Neutronen durch Reflexionen zu ultrakalten Neutronen abgebremst werden. Die Erzeugung von UCN ist in [Abschnitt 2.1.1](#) dargelegt.

### Probleme mit Leckagen

Vor allem bei der Strahlzeit 2013 konnten wichtige Erkenntnisse zur Stabilität des Vakuums gewonnen werden. Insbesondere die Verrohrung der Flüssigstickstoffleitungen im Vakuum warf einige Probleme auf. Es wurden zwar sehr zuverlässige *Swagelok*-Rohrverschraubungen verwendet. Durch die starren Kupferrohre (später gegen Edelstahl ausgetauscht) gab es aber hier problematische Hebelkräfte. Da sich Kunststoffschläuche (auch PTFE) auf Grund der tiefen Temperaturen bei Versuchen als ungeeignet erwiesen haben, wurden bei der Strahlzeit 2015 an kritischen Stellen Edelstahlwellschläuche zur Leitung des flüssigen Stickstoffs eingesetzt. An den verlöteten Kühleinheiten (siehe [Abschnitt 4.4](#)) traten ebenfalls Leckagen auf, welche kurzfristig durch Epoxidharzkleber geschlossen werden konnten. Vorsorglich wurden aber auch alle anderen Kupferlötstellen auf diese Weise versiegelt. Ein gutes und stabiles Vakuum ist bei Speichermessungen und insbesondere Neutronenlebensdauer messungen sehr wichtig (siehe [Abschnitt 2.2.4](#)). Die Erfahrung der beiden Strahlzeiten hat gezeigt, dass daher bei den benötigten Kühlleitungen kostenintensivere, bewährte Verrohrungen den günstigeren Eigenbaulösungen vorzuziehen sind.

An den drei Lineardurchführungen traten während der Bewegung kurzzeitig (im Bereich weniger Sekunden) ebenfalls Schwankungen des Vakuums auf. Mögliche Folgen durch den damit verbundenen Eintritt von Wasser werden später diskutiert (siehe [Abschnitt 6.1](#)).

### Einfluss des Ausheizens

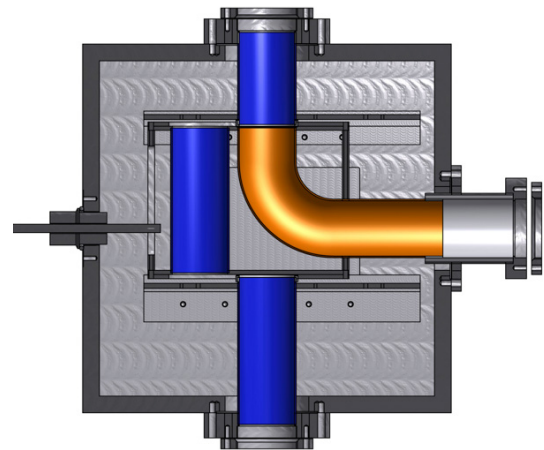
Eine sehr große Verbesserung des Vakuums konnte selbst durch mildes Ausheizen der gesamten Apparatur erreicht werden. Auf der inneren Oberfläche der Vakuumkammer und sämtlichen eingebauten Komponenten befanden sich trotz gründlicher Reinigung vor dem Einbau gas- oder dampfförmige Absorptionsschichten. Insbesondere Wasser und der zum Reinigen verwendete Alkohol lagern sich ab. Die Desorption kann durch möglichst hohe Entgasungstemperaturen beschleunigt werden, empfohlen werden 400 - 450 °C. Bei dieser hohen thermischen Belastung dürfen allerdings nur Metalledichtungen verwendet werden, außerdem müssen alle Komponenten gegenüber dieser Temperatur stabil sein [[Wut+00](#)]. Allein auf Grund der Gummidichtungen im vorliegenden Experiment waren daher maximale Temperaturen von 140 °C möglich. Ein deutlicher Effekt konnte dennoch beobachtet werden: Der Druck in der Vakuumkammer stieg beim Ausheizen um mehr als eine Größenordnung an.

Mit vier Heizbändern und einer gesamten Heizleistung von 3000 W waren die Vakuumkan-  
 mer, Schleuse, Strahlweiche und die Neutronenleiter umwickelt. Über ein automatisches Steue-  
 rungssystem der Firma *Vacom* wurden jeweils zwei Temperatursensoren auf den Edelstahl-  
 komponenten den Heizbändern zugeordnet und auf die eingestellte Temperatur geregelt. Zu-  
 sätzlich konnten die Temperatursensoren der Speicherkammer zur Überwachung im Inneren  
 verwendet werden. Das Einpacken der kompletten Vakuumkanmer mit Aluminiumfolie re-  
 duzierte die Abstrahlung in die Umgebung und erhöhte somit die Maximaltemperatur der  
 Kammerwand um über 40 °C. Auf Grund der großen Wärmekapazität der Kupferspeicherkam-  
 mer<sup>3</sup> dauerte das Ausheizen über 12 Stunden, obwohl durch vorübergehendes Einlassen von  
 Helium der Wärmetransfer auf die Speicherkammer stark erhöht wurde. Sobald der Druck  
 trotz weiterer Temperaturerhöhung an der Vakuum- und Speicherkammer abfiel, wurde das  
 Ausheizen beendet.

### 4.3. Speicherkammer und Verschlussmechanismus

#### 4.3.1. Neutronenleiter und Strahlweiche

Das Experiment wurde mit 70 mm-Neutronenlei-  
 tern aus Edelstahl an die UCN-Turbine ange-  
 schlossen. Zur Reduktion des Untergrundes wäh-  
 rend der Messungen war ein Plattenventil der  
 Firma VAT hinter dem Anschluss an die UCN-  
 Quelle in den Leiter eingebaut. Automatisch ge-  
 steuert wurde es nur für die Einlassdauer der Neu-  
 tronen geöffnet. Direkt vor dem Ventil war über  
 einen KF-Stutzen ein Monitordetektor (siehe [Ab-  
 schnitt 4.6.2](#)) zur kontinuierlichen Erfassung des  
 Neutronenflusses angebracht. Über den gleichen



**Abbildung 4.2.:** Strahlweiche: UCN-Einlass von rechts, Experiment oben, Detektor unten, pneu-  
 um. Antrieb links (nicht dargestellt).

Anschluss wurde das Leitersystem auch gepumpt. Die Strahlweiche war bereits für andere  
 UCN-Speicherexperimente entwickelt worden [[Düs10](#)] und ist in [Abbildung 4.2](#) dargestellt.  
 Beim Einlass (von rechts) wurden die Neutronen um 90° abgelenkt, wodurch zu energiereiche  
 Neutronen aus dem Spektrum entfernt wurden. Der Auslass (von oben nach unten) in den

<sup>3</sup> $c = 0,382 \text{ kJ/kgK}$ ; Masse der Speicherkammer: 75 kg  $\implies$  Wärmekapazität: 28,7 kJ/K.

Detektor verlief ohne Krümmung. Der Antrieb erfolgte pneumatisch mit einem Druckluftzylinder der Firma FESTO außerhalb des Vakuums durch eine Lineardurchführung über die Stange links im Bild.

### 4.3.2. UCN-Speicherkammer

Das Herzstück des Experiments war das Speichervolumen, weshalb im Vorfeld gründliche Überlegungen zur optimalen Form angestellt worden waren. Bereits POKOTILOVSKI hatte für verschiedene Speichergeometrien die Neutronenverlustwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der Neutronenenergie berechnet [Pok10]. Die von ihm vorgeschlagenen konischen Metallrohre waren allerdings in dieser Größenordnung nicht erhältlich. Folgende physikalische und praktische Anforderungen an die Speicherkammer führten zur Auswahl der hier verwendeten Form:

- Speicherung durch Gravitation.
- Hoher Absorptionsquerschnitt der Wände.
- Rotationssymmetrisch zur Minimierung von Beschichtungsdifferenzen an Kanten.
- Reinigung des UCN-Spektrums und ausreichende Energievariation im Speichervolumen.
- Kühlung von Wänden und Boden auf Flüssigstickstofftemperaturen.
- Große Wärmekapazität und -leitfähigkeit zur Reduktion von Temperaturinhomogenitäten und -gradienten.
- Geringe Zahl von Einzelteilen, um Anzahl und Länge der Schlitzflächen zu reduzieren.
- Kommerziell erhältlich.
- Mechanisch zu bearbeiten.

Die Speicherkammer wurde aus einem geraden Rohr und einer ebenen Bodenplatte, beides aus Kupfer, zusammengesetzt. Nach oben war der Behälter offen. Die Maße sind in der [Tabelle 4.1](#) angegeben. Die maximale Energie der speicherbaren Neutronen wird durch das PFMO-Wandpotential von  $V_{\text{eff}} = 95 \text{ neV}$  limitiert (siehe [Abschnitt 3.2.3](#)). Die Höhe der Kammer

**Tabelle 4.1.:** Maße und Eigenschaften der Speicherkammer.

Höhe (innen)	1050 mm
Durchmesser (Innen)	230 mm
Wandstärke	10 mm
Fläche (Boden)	0,042 m <sup>2</sup>
Fläche (Rohr)	0,723 m <sup>2</sup>
Gesamtfläche	0,764 m <sup>2</sup>
Volumen	0,0415 m <sup>3</sup>
Masse	75 kg
Wandpotential	95 neV

würde mit einem gravimetrischen Potential von 105 neV minimal größere Energien zulassen. Die mittlere UCN-Geschwindigkeit im Speichervolumen liegt bei  $\bar{v} \approx 3,2 \text{ m/s}$ .<sup>4</sup>

Durch die große Wandstärke, die große Wärmekapazität<sup>3</sup> und die gute Leitfähigkeit von Kupfer werden Temperaturinhomogenitäten schnell ausgeglichen. Zur Reduktion von Schlitzverlusten zwischen Rohr und Boden wurden die Stirnflächen des Rohres abgedreht und die Bodenplatte angeschraubt. Ein hoher Absorptionsquerschnitt der Speicherwände ist notwendig, damit energiereiche Neutronen, welche die spätere Polymerbeschichtung durchdringen können, absorbiert und nicht reflektiert werden. Daher wurden die Innenwände des Rohres erst mit Siliziumcarbid geläppt ( $R_a = 0,1 \mu\text{m}$ ) und anschließend mit einem 200 nm dicken Titanüberzug von der Firma *S-DH GmbH Heidelberg* beschichtet.

Zur Kühlung von Bodenplatte und Rohr wurden Kanäle gefräst und Gewinde für die Temperatursensoren gebohrt (s. Abs. 4.4.1). In das Speicherohr wurden außerdem fünf Löcher und Halterungen für die Monitordetektoren gebohrt, damit eine Qualitätskontrolle der Polymerbeschichtung möglich ist (s. Abs. 4.5.4). Die Befestigung der Speicherkammer im Experiment erfolgte durch die lose Aufhängung mit vier Stahlseilen an einem ITEM-Gerüst, das auf dem Boden der Vakuumkammer verschraubt war. Die Aufhängung an Drahtseilen sollten zum einen den Übertrag von Vibrationen der Vakuumkammer (durch Pumpen, Kranbewegungen, etc.) reduzieren und zum anderen eine vertikale Ausrichtung des Rohres durch Spannschlösser vereinfachen. Gleichzeitig musste sichergestellt werden, dass die gesamte Apparatur auf Grund des hohen Schwerpunktes (Masse der Speicherkammer: 75 kg) nicht umkippen konnte. Die Aufhängung wurde so justiert, dass der zuführende Neutronenleiter unter der Bodenplatte gerade nicht mehr die Last der Speicherkammer tragen musste.

#### 4.3.3. Verschluss der Speicherkammer

Eine Herausforderung stellte von Beginn an der Verschluss des Speichervolumens dar, da hier unvermeidbare Schlitzlöcher in der Speicherkammer auftreten. Außerdem können große Verluste durch Absorption oder Hochstreuung bei Verwendung verschiedener Materialien entstehen. Die wichtigsten Anforderungen waren daher:

- Geringe und reproduzierbare Schlitzflächen.
- Polymerbeschichtung gleicht den übrigen Oberflächen.
- Keine Zerstörung der Beschichtung beim Öffnen und Schließen.

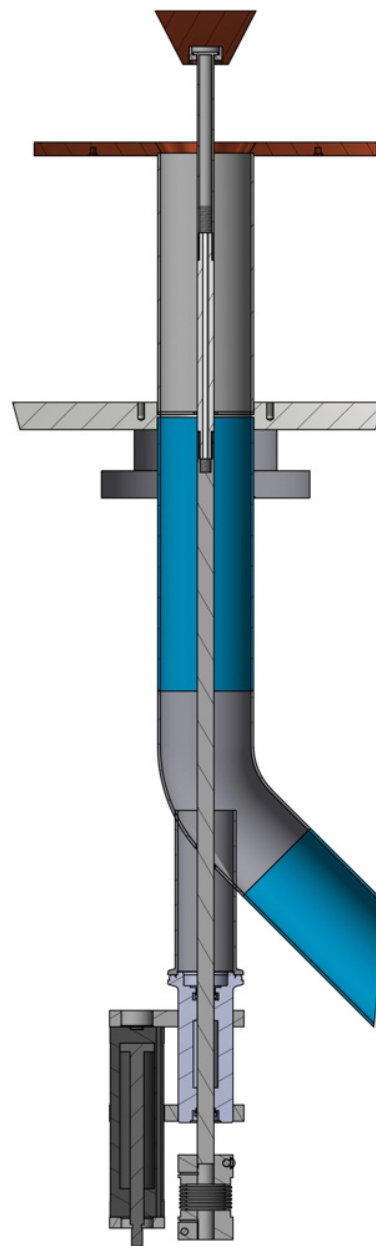
---

<sup>4</sup>Unter der Annahme eines Maxwell-Boltzmann verteilten Geschwindigkeitsspektrums.

- Keine Temperaturunterschiede zum Rest der Speicherkammer.

Die erste Version des Verschlusses bestand aus einer Kupferwanne, welche mit dem Polymer gefüllt und im geschlossenen Zustand von unten an die Bodenplatte gedrückt wurde [Zim13]. Damit sollte sichergestellt werden, dass die Schlitze komplett vom Polymer bedeckt sind. Außerdem war so eine Kühlung dieser Verschlusswanne durch zusätzliche Kühlschläuche möglich. Zum Öffnen wurde die Platte abgesenkt und durch einen Neutronenleiter ausgetauscht. Allerdings gestaltete sich dieser zweistufige Mechanismus sehr fehleranfällig, außerdem waren zusätzliche Kanten im Speicherbehälter notwendig. Die Ergebnisse der Beschichtungstests mit PFMO zeigten weiterhin, dass makroskopische Mengen des Polymers nicht ohne ein Aufbrechen ausgefroren werden konnten.

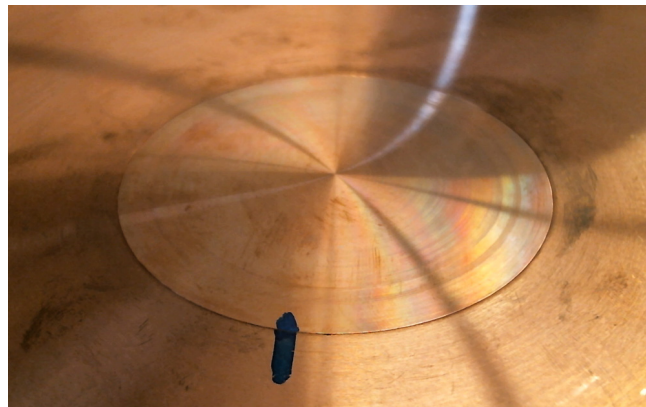
Für die Strahlzeit 2015 wurde daher ein deutlich einfacherer und zuverlässigerer Verschlussmechanismus entwickelt. Die [Abbildung 4.3](#) zeigt den geöffneten Verschluss im Querschnitt. Hauptbestandteil ist ein Kupferkonus, welcher von oben in die Bodenplatte eingelassen wird. Im geschlossenen Zustand (siehe [Abbildung 4.4](#)) bildet der Boden des Speichervolumens eine ebene Fläche mit einem einzigen Schlitz von 235 mm Länge (Durchmesser der Öffnung: 74 mm). Die Erkenntnisse der Beschichtungstests (siehe [Abschnitt 3.3](#)) haben gezeigt, dass dieser Schlitz vom Polymer zuverlässig bedeckt werden kann und die Neutronen in einem perfekt zylinderförmigen Volumen gespeichert werden. Zum Öffnen wird der Konus über eine Stange von unten um 100 mm aus der Bodenplatte gehoben. Der größte Nachteil dieses Verschlusssystems war die aufwendigere Konstruktion der zuführenden Neutronenleiter und die Positionierung der Strahlweiche. Da der Antrieb direkt senkrecht unter dem Verschluss positioniert sein musste, war die Entwicklung eines 45°-Bogens mit Flansch für den Antrieb notwendig. Durch Laserschweißungen am *Fraunhofer ICT-IMM* in Mainz konnte dieser aus Einzelteilen zusammengesetzt werden. Gleichzeitig



**Abbildung 4.3.:** Verschlussmechanismus im Querschnitt, geöffnet. Oben: Boden der Speicherkammer mit Verschlusskonus aus Kupfer. Im Zentrum der Neutronenleiter mit 45°-Bogen zur Strahlweiche. Unten: Lineardurchführung und pneumatischer Antrieb.

blieb die hohe Oberflächengüte der Neutronenleiter erhalten. Die Transmission wurde am ILL zu 77 % bestimmt, ein akzeptabler Wert. Wie in der Abbildung zu erkennen, enthielt die Antriebsstange im oberen Drittel ein PTFE-Stück, um zum einen den Wärmeeintrag auf den Kupferkonus zu minimieren und zum anderen eine Bewegungstoleranz zu erlauben. Durch die flexible Befestigung der Stange im Konus wurde sichergestellt, dass dieser bei ausreichender Zugkraft an der Stange immer vollständig im Boden versenkt wird. Der Antrieb der Stange erfolgte über einen Pneumatikzylinder der Firma FESTO mit 100 mm Hub. Wie auch bei der Strahlweiche wurden die Pneumatikventile der Zylinder über die Relais-Ausgänge der DAQ-Box *USB-6525* von NATIONAL INSTRUMENTS gesteuert. Die Stellungsrückmeldung der Zylinder erfolgte über die digitalen Eingänge.

Bei dem 2013 verwendeten Verschlussmechanismus führte Verschleiß zu einem vorzeitigem Funktionsausfall. Daher wurde bei dem neuen Mechanismus durch Langzeittests sichergestellt, dass das Schließ- und Öffnungsverhalten auch nach 10 000 Zyklen fehlerfrei funktionstüchtig war. Ebenfalls konnte keine Abnutzung festgestellt werden.



**Abbildung 4.4.:** Foto des Neutronenein- und auslass' der Speicherkammer im geschlossenen Zustand. Die Farbmarkierung auf der Oberfläche diente während den Langzeittests des Mechanismus zur Positionskontrolle.

Die Kühlung des Verschlusskonus' erfolgte über den Kontakt zur Bodenplatte. In vorangegangenen Kühltests konnte gezeigt werden, dass im geschlossenen Zustand die Temperatur des Konus mit einer Verzögerung von 15 bis 30 Minuten der Bodenplatte folgt. Bei konstanter Temperatur des Speichervolumens führte das Öffnen des Verschlusses für den wenigen Minuten dauernden Neutronenein- und -auslass zu keinen messbaren Temperaturdifferenzen zwischen Konus und Boden. Die Kühlung durch Kontakt mit der Bodenplatte ist also ausreichend, außerdem ist eine Temperaturmessung am Verschluss während des Experiments nicht nötig.

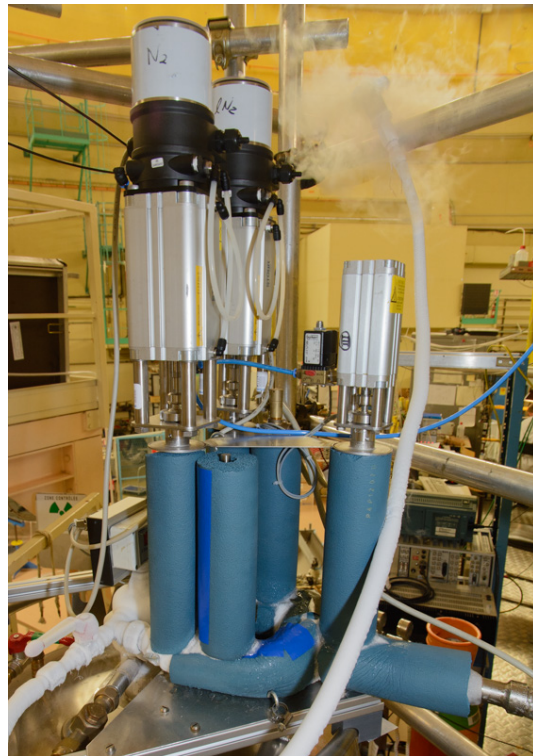
## 4.4. Kühlsystem und Temperaturmessung

Wie in [Abschnitt 2.2.4](#) beschrieben, wurden bisherige UCN-Speicherexperimente mit Perfluorpolymeren auf Temperaturen bis  $-150\text{ °C}$  abgekühlt. Im vorliegenden Experiment sollte allerdings eine Minimaltemperatur von ca.  $-190\text{ °C}$  erreicht werden. Dadurch bot sich flüssiger Stickstoff ( $LN_2$ ) mit einem Siedepunkt von  $T_b = -195,80\text{ °C}$  als geeignetes Kryogen an. Zu den Vorteilen zählt, dass es relativ leicht verfügbar und günstig ist. Für die Konditionierung der Polymeroberfläche (sog. Tempern) und spätere temperaturabhängige Speichermessungen sollte die Temperatur im Bereich bis zum Schmelzpunkt des PFMO regelbar sein. Außerdem sollte wegen der langen Messzeiten die Steuerung auch im automatischen Betrieb beispielsweise über Nacht zuverlässig funktionieren.

### 4.4.1. Aufbau des Kühlsystems

Zu den Komponenten des Kühlsystems zählten:

- Dewar mit 200 L flüssigem Stickstoffvorrat, Druckerhöhung auf 3 bar und elektronischer Füllstandsmessung. Außerdem je ein pneumatisches Regelventil der Firma *BÜR-KERT* für flüssigen und gasförmigen Stickstoff sowie ein Absperrventil.
- Verrohrung in der Vakuumkammer mit *Swagelok* Edelstahlverschraubungen und Kühleinheiten aus Kupferrohren.
- LABVIEW-Steuerungssoftware und DAQ-Einheiten für digitale und analoge Signale.
- Sensoren zur Temperaturmessung an 16 Positionen der Speicherammer und Softwareerfassung.
- Heizung zum Erwärmen der Stickstoffabgase.



**Abbildung 4.5.:** Elektropneumatische Regelventile am Dewar (links) und Absperrventil (rechts), die Rohrleitungen sind isoliert.

Durch das große Vorratsvolumen im Dewar konnte bei dem Stickstoffverbrauch von  $5\text{ L/h}$  der Betrieb über 1 - 2 Tage sichergestellt werden, ohne dass ein Nachfüllen notwendig war. Die

Erhöhung des Drucks in der Gasphase auf 3 bar war notwendig, um dem Widerstand durch den kleinen Querschnitt der Kühlleitungen entgegen zu wirken. Hinter den beiden Regelventilen des Flüssig- und Gasabgangs des Dewars' wurden die Leitungen zusammengeführt und durch ein elektro-pneumatisches Absperrventil geleitet. In [Abbildung 4.5](#) ist das System dargestellt. Durch einen vakuumisolierten Schlauch und eine 12 mm-KF40-Durchführung wurde der Stickstoff in die Vakuumkammer geführt.

Zur Kühlung der beiden Bestandteile der Speicherkammer (Bodenplatte und Rohr) wurden zwei unterschiedliche Möglichkeiten verwendet: Beim Testaufbau für die Polymerbeschichtungen (s. Abs. 3.3) hatten sich Kanäle in den Kupferplatten bewährt. Daher wurde ein kreisförmiger Kanal mit einem quadratischen Querschnitt mit 4 mm Kantenlänge und 80 mm Radius von unten in die Bodenplatte gefräst und mit einer Kupferplatte wieder verschlossen. Der Anschluss für das Kühlmittel erfolgte über zwei seitlich in den Kühlkanal eingelötete Edelstahlrohre. Beim Speicherrohr konnte diese Kühlung nicht umgesetzt werden, da bei der großen Wärmekapazität und -leitfähigkeit des Kupfers das Verlöten von Kanälen technisch nicht möglich gewesen wäre. Die Kühlung des Speicherrohres erfolgte daher über 16 einzelne Kupferrohre ( $\varnothing_{\text{Innen}} = 4 \text{ mm}$ ), von denen jeweils vier zu einer Einheit zusammengefasst wurden. Diese wurden in entsprechenden Vertiefungen auf der äußeren Oberfläche des Speicherbehälters befestigt. In [Abbildung 4.6a](#) sind diese bereits am Rohr montiert dargestellt. Für beide Komponenten wurden im Vorfeld Simulationen mit der Software AUTODESK SIMULATIONS durchgeführt, um die Temperaturgradienten zwischen den einzelnen Kühlleitungen zu bestimmen. Das Ergebnis führte zu den gewählten Abständen der Kühlleitungen, wobei der theoretische Fall betrachtet worden war, dass über die gesamte Länge die gleiche Kälteleistung wirkt. Tatsächlich wird diese einen Gradienten zwischen dem Einlass des Stickstoffs unten an der Speicherkammer und dem Auslass am oberen Ende einnehmen. Die Wärmeeinstrahlung konnte durch eine zweilagige Isolation mit Aluminiumfolie um die gesamte Speicherkammer und Verrohrung deutlich reduziert werden.

Die Verrohrung im Vakuum ist in [Abbildung 4.6b](#) dargestellt. Wegen der starren Verbindungen waren genaue Anpassungen der Rohrleitungen und Verschraubungselemente erforderlich. Die Verwendung von dünnen Edelstahlwellschläuchen (Im Bild vorne zu sehen) wurde wegen der hohen Bruchgefahr bei zu starker mechanischer Beanspruchung reduziert. Das erwärmte Stickstoffabgas wurde oberhalb der Speicherkammer wieder zusammengeführt und durch eine



(a) Kühlleitungen am Speicherrohr.

(b) Untere Verrohrung der Kühleinheiten.

**Abbildung 4.6.:** Komponenten des Kühlsystems

weitere Durchführung aus dem Vakuumsystem geleitet. Da das noch tiefkalte Gas zur Kondensation von Luftfeuchtigkeit führte, wurde es direkt am Ausgang durch eine Kupferspirale mit Heizlüfter erwärmt.

Bei Kühlversuchen trat die Problematik auf, dass der flüssige Stickstoff auf Grund der tieferen Lage der Bodenplatte nur diese durchspülte und direkt wieder flüssig am Auslass austrat, ohne die Wände der Speicherkammer gekühlt zu haben. Das Problem konnte einfach gelöst werden, indem an einer Stelle die Versorgungsleitung der Bodenplatte auf einen Durchmesser von 1 mm verengt wurde. Weitere Probleme durch Undichtigkeiten an den Lötstellen der vier Kühleinheiten konnten durch Versiegeln mit temperatur- und vakuumtauglichen Epoxidharz-Kleber vollständig eliminiert werden. Die Verwendung von Wärmeleitpaste zwischen den Kühlleitungen und der Speicherkammer führte bei der Strahlzeit 2013 zu großen Problemen: Nach Beendigung des Experiments wurden Verunreinigungen durch die Wärmeleitpaste in der gesamten Vakuumkammer, auch im Inneren der Speicherkammer, gefunden. Ein positiver Effekt konnte auch nicht festgestellt werden. Daher wurde im Weiteren auf Wärmeleitpaste verzichtet.

#### 4.4.2. Temperaturmessung und Entwicklung von Temperatursensoren

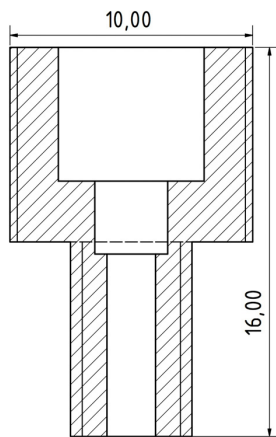
Zur kryogenen Temperaturmessung stehen kommerziell verschiedene Sensoren zur Auswahl, die sich hauptsächlich in ihrem physikalischen Messprinzip unterscheiden. Neben den Thermoelementen, welche auf Grund der aufwendigeren Verkabelung direkt ausschieden, gibt es für den benötigten Temperaturbereich Halbleiter oder Widerstandsthermosensoren (RTD). Insbesondere die RTD mit einem negativen Temperaturkoeffizienten werden für Messungen im

Bereich weniger Kelvin und Millikelvin eingesetzt. Mit steigender Genauigkeit und tieferem Messbereich steigt allerdings auch der Preis der Sensoren. [Has71]

Ein bewährter industrieller Standard in der Temperaturmessung für Flüssigstickstofftemperaturen und darüber sind Platinwiderstandssensoren. Diese bestehen aus einem gewickelten Platindraht mit einem temperaturabhängigen Widerstand. Bei 0 °C besitzen sie je nach Bautyp einen Nennwiderstand von 100, 500 oder 1000 Ω. Vorteile der größeren Widerstände sind dabei die geringere Stromstärke (also auch Eigenerwärmung) und der geringere Einfluss von Leitungswiderständen. Aus der bekannten Kennlinie für Platin kann die korrespondierende Temperatur für jeden Widerstandswert ermittelt werden, sie sind frei von Hysterese. Bei der Toleranzklasse A, welche hier verwendet wurde, liegt die Genauigkeit zwischen  $\Delta T(-200\text{ °C}) = 0,55\text{ °C}$  und  $\Delta T(-100\text{ °C}) = 0,35\text{ °C}$ . Auf Grund der großen Verbreitung dieser Sensoren sind zahlreiche Bauformen kommerziell erhältlich. Eingesetzt wurden M5-Schrauben, welche im Innern mit einem PT100-Element versehen waren, und sowohl gute mechanische Stabilität als auch einen ausreichenden Wärmeübertrag bieten sollten. Es wurde die Vierleiterschaltung zur Verbindung mit der Messelektronik gewählt, da somit Leitungswiderstände komplett kompensiert werden können. [Nau07]

Für Betrieb und Erfassung der Temperatursensoren wurden zwei Geräte vom Typ *Temperature Monitor 218E* der Firma LAKESHORE verwendet, welche speziell auf kryogene Anwendungen ausgerichtet sind. Sie können mit fast allen Halbleiter- und Widerstandssensoren betrieben werden und unterstützen die 4-Leitertechnik. Jedes Gerät besitzt acht Eingangskanäle, es konnten somit gleichzeitig 16 Temperatursensoren (Kanalnummern 1.1 bis 2.8) mit jeweils 2 Hz ausgelesen werden. Für Platin-RTD ist bereits die Kalibrationskurve gespeichert. So konnten direkte Temperaturwerte in K oder °C ausgegeben werden. Die Kommunikation mit dem PC erfolgte über die serielle Schnittstelle, die Auswertung, grafische Darstellung und Speicherung durch eine LABVIEW-Software (siehe unten).

Die für die Strahlzeit 2013 erworbenen Sensoren der Firma ELECTRONIC SENSOR wurden, entgegen den Vorgaben, leider nicht den Bedingungen (Vakuum, Tieftemperatur) gerecht. Außerdem wurde in Versuchen festgestellt, dass die schlechte Leitfähigkeit von Edelstahl die Reaktionszeit der Temperaturmessung verlängerte. Im Anschluss wurden daher eigene Schrauben aus Kupfer entwickelt, welche in den Abbildungen 4.7 dargestellt sind. In die untere, enge Bohrung wurde ein zylindrischer PT100-Sensor mit Keramikmantel vom Typ *PK 1.1508* (Toleranzklasse A) der Firma JUMO mit kryogenem Epoxidharzkleber (STYCAST 2850 FT) befestigt. Ein großes Problem der kommerziellen Sensoren war die fehlende Zugentlastung der



(a) Querschnitt der M5-Schraube für den PT100-Sensor.



(b) Foto von zwei eingebauten Temperatursensoren in der Bodenplatte. Die vierpolige Anschlussleitung ist eingeklebt.

**Abbildung 4.7.:** Temperatursensoren im Querschnitt und Foto.

Anschlussleitung, sodass die Last des Kabels von den dünnen Anschlussdrähten des Sensors getragen werden musste. Die Folge waren Kabelbrüche bei der Handhabung (zum Beispiel Einschrauben) der Schrauben. Die neuen, selbstentwickelten Schrauben hatten daher einen dickeren Kopf, in den auch das PFA-Kabel ( $4 \times 0,22 \text{ mm}^2$ ) mit Epoxidharz eingeklebt werden konnte (siehe [Abbildung 4.7b](#)). Durch das Abfräsen des Schraubengewindes von einer Seite wurde zudem auch das Problem virtueller Leckagen in den Gewindesacklöchern verhindert.

Mit den neuen Sensoren wurden Funktionstests durchgeführt: Beim Eintauchen des Gewindes (nicht der ganzen Schraube) in flüssigen Stickstoff maßen alle einen Wert von  $(-194 \pm 1) ^\circ\text{C}$ . Für Vergleichsmessungen bei Temperaturen von ca.  $-185 ^\circ\text{C}$  wurden die Sensoren in eine mit  $\text{LN}_2$  gekühlte Kupferplatte geschraubt. Hier liegen die Abweichungen zwischen den einzelnen Sensoren bei maximal  $2 ^\circ\text{C}$  und sind konstant. Diese Genauigkeiten sind für die Anwendung im vorliegenden Experiment vollkommen ausreichend.

An der Bodenplatte konnten insgesamt neun (je drei im Abstand von 30 mm und  $120^\circ$ ) Sensoren eingeschraubt werden. Bei Kühlversuchen wurde im Vorfeld überprüft, ob zwischen den einzelnen Positionen Temperaturgradienten vorliegen. Im Rahmen der Regelgenauigkeit von ca.  $2 ^\circ\text{C}$  konnten diese nicht beobachtet werden. Am Speicherrohr wurde nur ein Gradient entlang der Rohrachse festgestellt, welcher aber lediglich beim Abkühlen des Rohres von Raumtemperatur auftrat. Am Minimum lagen die Abweichungen bei den oben angegebenen Temperaturen.

Die maximale Anzahl an 16 Temperaturkanälen verteilte sich auf 13 an der Speicherkammer und drei an der Bodenplatte. Dabei wurden die Positionen der Sensoren möglichst gleichmäßig

verteilt, damit lokale Wärmeeinwirkungen / Kälteverluste entdeckt werden konnten. Am oberen und unteren Rand wurden je vier Sensoren angebracht, die restlichen verteilten sich auf zwei Ebenen dazwischen. Nach den Erfahrungen der Strahlzeit 2013 und den Kühlversuchen wurde auf Wärmeleitpaste verzichtet, da damals kein signifikanter Effekt nachgewiesen wurde. Auf Grund der 4-Leitertechnik waren insgesamt 64 Signaldurchführungen nötig, wofür eine dreifach SubD25-Vakuumdurchführung verwendet wurde.

#### 4.4.3. Elektronik und Steuerung des Kühlsystems

Die Steuerung und Stellungsrückmeldung der beiden elektro-pneumatischen Regelventile erfolgte über ein 4 - 20 mA Einheitssignal. Die elektronische Füllstandsmessung im  $LN_2$ -Dewar lieferte ebenfalls ein 4 - 20 mA Signal. Es wurden jeweils Messumformer konstruiert, mit denen das Signal von bzw. in ein 0 - 5 V Signal umgewandelt wurde, da dieses die USB-Datenerfassungsgeräte des PC benötigten. Die analogen Ein- und Ausgänge wurden von einer USB-6259 DAQ-Box der Firma NATIONAL INSTRUMENTS bereitgestellt. Die Steuerung des Absperrventils erfolgte über ein digitales 24V-Signal. Die Geräte sind in [Abbildung 4.8](#) dargestellt.

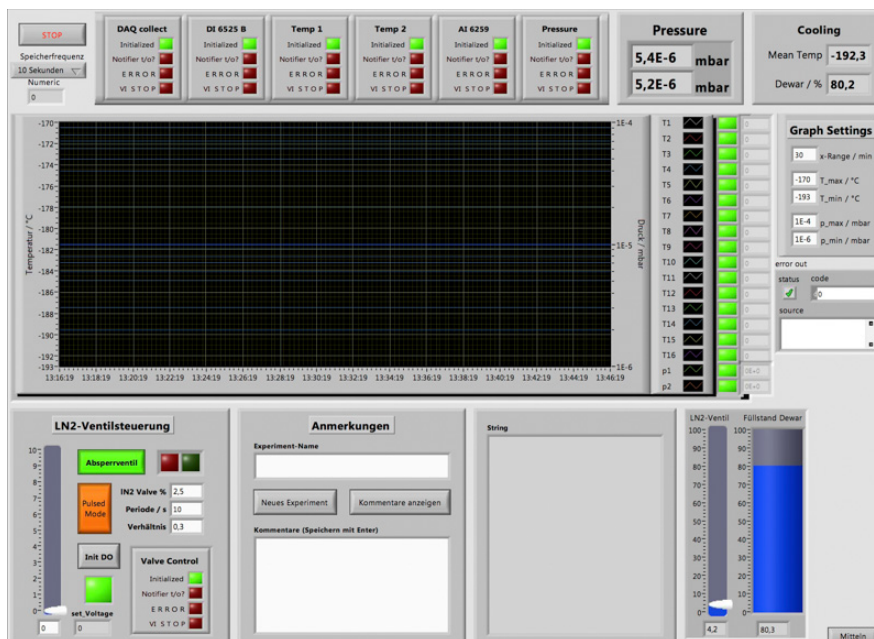


**Abbildung 4.8.:** Elektroneinheiten zur Steuerung des Kühlsystems: Rechts: USB-6259, Mitte: Messumformer für Einheitssignal, Links: zwei USB-6259 mit entsprechender Spannungsversorgung aller Kanäle.

Wie das gesamte Experiment, wurde auch das Kühlsystem von einem LABVIEW-Programm über den PC gesteuert. Es war dabei so programmiert worden, dass es auch unabhängig der übrigen Steuerungssoftware verwendet werden kann, wenn beispielsweise nur isoliert Kühlversuche mit den Temperatursensoren durchgeführt werden sollten.

In [Abbildung 4.9](#) ist die grafische Oberfläche der Kühlsystemsteuerung am PC dargestellt. Das schwarze Display zeigt den zeitlichen Verlauf der Temperaturen in jeweils einstellbaren

Bereichen, rechts unten befinden sich die grafischen Anzeigen des Dewarfüllstands und Ventilstellungsrückmeldung. Da dieses Programm eines der beiden Hauptbildschirmfenster der gesamten Experimentsteuerung darstellte, sind auch weitere Anzeigen für Datenerfassungsprogramme und Messwerte integriert. Details zur Softwaresteuerung des Experiments werden in [Abschnitt 4.8.2](#) beschrieben.



**Abbildung 4.9.:** Screenshot der Benutzeroberfläche der Software zur Kühltystemsteuerung. Im Zentrum befindet sich der zeitliche Verlauf der 16 Temperatursensoren.

### Regelung durch gepulsten Stickstoffstrom

Für die Steuerung standen drei Regelgrößen zur Verfügung: Jeweils der Öffnungsquerschnitt der beiden Regelventile und die Öffnungsdauer des Absperrventils. Außerdem ist die Kühlleistung grundsätzlich vom Druck im Dewar abhängig, dieser konnte aber nur konstant auf 3 bar eingestellt werden. Bei zahlreichen Kühlversuchen hat sich gezeigt, dass selbst bei der minimal möglichen Öffnung des Flüssigstickstoffventils die Kühlung zu stark ist und nach einiger Zeit flüssiger Stickstoff am Ende der Kühlleitungen austritt. Allerdings wurde selbst dabei nicht die theoretisch minimale Temperatur von  $-196\text{ °C}$  erreicht. Allein mit gasförmigen Stickstoff war eine Kühlung in dem angestrebten Bereich nicht möglich, da das Gas in den Rohrleitungen bis zur Speicherkammer zu stark erwärmt wurde. In zahlreichen Kühlversuchen konnte daher eine optimierte Vorgehensweise durch Verwendung des Absperrventils entwickelt werden: Sobald die Temperatur auf das Minimum abgefallen war, wurde der Stickstoffstrom gepulst. Durch zwei Parameter, die Zykluslänge und das zeitliche Verhältnis zwischen offen und geschlossen, konnte eine wohl dosierte Regelung erfolgen. Außerdem konnten dadurch

die Temperaturen deutlich, bis zum Temperaturminimum von ca.  $-195^{\circ}\text{C}$ , gesenkt werden: Durch die phasenweise Abschaltung des Flüssigkeitsstroms konnte der flüssige Stickstoff in den Leitungen verdampfen und somit auf Grund der notwendigen Verdampfungsenthalpie zusätzliche Wärme der Umgebung entziehen. Unterhalb einer Temperatur von ca.  $-120^{\circ}\text{C}$  wurde auch beim Abkühlprozess das Pulsen angewendet. Typische Parameter waren dabei eine Öffnung zwischen 2 und 5%, ein Öffnungsverhältnis von 0,05 bis 0,08 bei einer Zyklusdauer von 15 bis 60 Sekunden. Der Stickstoffverbrauch konnte damit deutlich auf  $5\text{ L/h}$  begrenzt werden, beim Konstanthalten der Temperatur teilweise auch niedriger.

Da der große Dewar während des Experiments nicht mehr bewegt werden konnte, musste er auf der Plattform wiederbefüllt werden. Mit Hilfe von kleineren Dewars und einer isolierten Schlauchleitung wurde der Stickstoff bis auf die Plattform in über 3 m Höhe transportiert. Dies war nur durch den Überdruck in den unteren Dewars möglich, daher musste im großen Dewar der Überdruck von 3 bar komplett abgelassen werden. Während des Füllens konnte also keine Kühlung erfolgen. Wegen der großen Wärmekapazität des Kupfers konnte dies aber ohne signifikantes Erwärmen erfolgen.

#### **Probleme bei automatischer Regelung**

Es wurde bei den beiden Strahlzeiten am ILL festgestellt, dass kleine äußere Wärmeeinwirkungen auf die Speicherkammer zu einer direkten Auswirkung auf die Temperaturen führten. Auch bei einem Abfallen des Dewar-Drucks mussten die Parameter wieder angepasst werden. Da sich teilweise nach Stunden konstanter Kühlung bei unveränderten Parametern plötzlich das System erwärmte, konnte eine vollkommen automatische Steuerung noch nicht umgesetzt werden. Als Referenztemperatur hätte der Sensor an einer bestimmten Position oder der Mittelwert aller herangezogen werden können. Trotz softwareunterstützter Ermittlung der einzelnen Glieder eines PID-Reglers war es auf Grund der großen Trägheit und Komplexität des Systems vorerst nicht möglich, diese Parameter zu bestimmen. Beispielsweise hingen die Parameter auch von der Umgebung ab: Bei Tests in der Reaktorhalle des TRIGA Mainz waren andere nötig als am ILL. Zur vollkommen automatischen Steuerung müssen daher zukünftig die Regelparameter individuell für den Standort des Experiments ermittelt werden. Mit Ausnahme der Anomalien konnte aber die Temperatur über viele Stunden konstant gehalten werden.

## 4.5. Apparatur und Vorgehensweise zur Beschichtung

### 4.5.1. Anforderung an die Beschichtung und den Prozess

Eine weitere, wichtige Herausforderung des Experiments war die Vorgehensweise zur Beschichtung der Speicherkammer mit PFMO. Entsprechend den oben diskutierten Anforderungen an Wandspeichermaterialien, musste die Beschichtung folgende Bedingungen erfüllen.

- **Vollständige und gleichmäßige Bedeckung.**

Die gesamte Innenfläche des Speichervolumens muss bedeckt sein. Problematisch kann dabei die Kante zwischen Rohr und Bodenplatte sein.

- **Homogene Oberfläche.**

Nach den Darstellungen in [Abschnitt 2.1.4](#) muss die Oberfläche nach der Beschichtung homogen sein, um die Neutronenverluste beim Stoß zu reduzieren. Es ist daher eine Konditionierung notwendig. Außerdem darf die Schichtdicke nicht zu groß sein, da es sonst zu dem im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Aufbrechen („Cracken“) des Polymers kommt.

- **Verschlossene Schlitze.**

Die Schlitze in der Speicherkammer müssen zuverlässig und vollständig von der Beschichtung überdeckt werden können, da sich hier Neutronen fangen und auf Grund der vielen Stöße mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit absorbiert werden.

- **Reproduzierbarkeit und Langzeitstabilität.**

Damit die Ergebnisse mit einer ausreichenden Statistik bestimmt werden können, muss der Beschichtungsprozess bei einer Wiederholung vergleichbare Eigenschaften der Oberfläche liefern. Zum Vergleich aufeinander folgender Speichermessungen darf die Qualität der Oberfläche keiner zeitlichen Veränderung unterliegen.

Bei den meisten Vorgängerexperimenten mit einer Wandbeschichtung aus Perfluorpolymeren wurden solche eingesetzt, die einen deutlich höheren Siedepunkt besitzen. Beispielsweise kam dabei *Fomblin* sowohl in flüssiger Form als auch als Paste ([Abschnitt 2.2.5](#)) zum Einsatz. In beiden Fällen konnte das Polymer direkt, also vor dem endgültigen Zusammenbau des Experiments, auf die Speicherwände aufgetragen werden. Beim anschließenden Evakuieren und Ausheizen der Vakuumkammer ging es auf Grund des deutlich niedrigeren Dampfdruckes nicht verloren. Diese Vorgehensweise konnte bei PFMO nicht angewandt werden, es wäre noch vor dem Evakuieren verdunstet. Zwar würde eine Kühlung den Übergang in die Gasphase

deutlich verlangsamen, bevor aber nicht Vakuum oder Schutzgas in der Apparatur vorläge, würde sich Luftfeuchtigkeit auf den gekühlten Oberflächen ablagern.

Das Polymer kann also erst eingebracht werden, wenn das endgültige Vakuum erreicht und die Speicherkammer gekühlt ist. Grundsätzlich kommen zwei Alternativen zur nachträglichen Beschichtung in Frage:

#### **A: Verdampfen innerhalb der Vakuumkammer**

Nach dem Herstellen des Vakuums wird das Polymer in flüssiger Form in die Speicherkammer eingebracht und dort verdampft. POKOTILOVSKI ET AL. [Pok15] führten dies bereits durch: Mit einem Heizdraht wurde die flüssige Vorlage erhitzt, woraufhin der Dampf auf den kalten Wänden des Speichervolumens kondensierte.

#### **B: Verdampfen außerhalb der Vakuumkammer**

Das Polymer wird außerhalb in einem Gefäß verdampft und durch einen Gasstrom in die gekühlte Speicherkammer geleitet. Über eine Sprühdüse wird der Dampf dann gezielt auf die Innenwände aufgebracht.

### **4.5.2. Aufbau des Beschichtungssystems**

Konstruktiv wäre die Variante A einfacher umzusetzen gewesen. Allerdings wurde für das vorliegende Experiment die Variante B ausgewählt, da sie folgende Vorteile besitzt:

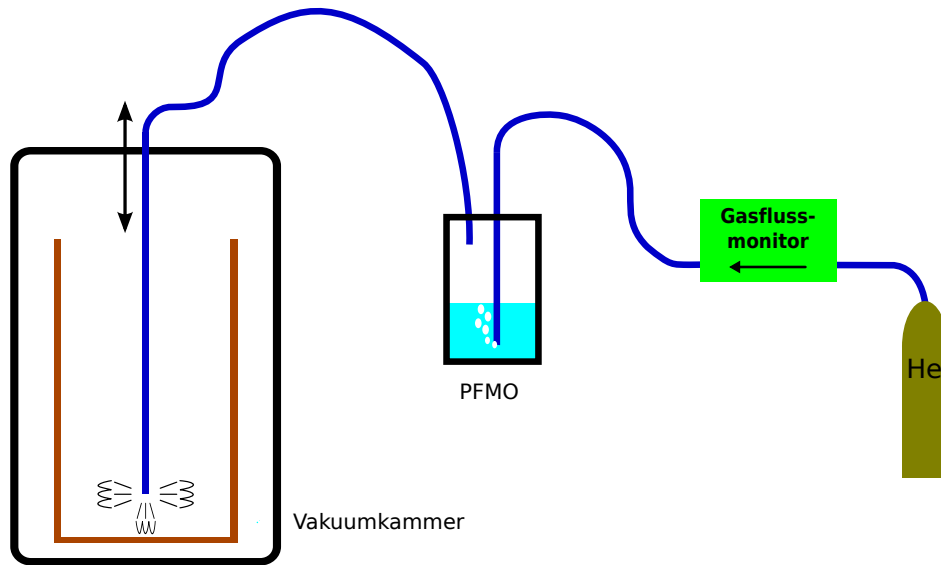
- Das eingesetzte Polymervolumen kann genauer vorgegeben werden, da kaum Verluste z.B. beim Abpumpen entstehen können.
- Der Verlauf der Beschichtung ist über die Volumenänderung ersichtlich.
- Die zeitliche Kontrolle ist durch die Regulation des Gasstroms möglich.
- Ein nachträgliches Erhöhen der Polymermenge ist möglich, auch könnte die Beschichtung durch Abstellen des Gasstroms vorzeitig gestoppt werden.

In [Abbildung 4.10](#) ist der Aufbau des Beschichtungssystems (schematisch und nicht maßstabsgetreu) skizziert. Einige weniger bedeutende Komponenten, z.B. Ventile sind nicht dargestellt.

Das hochreine Helium 6.0<sup>5</sup> wurde mit 1 bar Druck durch einen Gasflussregler und -monitor

---

<sup>5</sup>Reinheit von 99,999 90%; die erste Ziffer gibt die Anzahl der Stellen mit 9 an, die zweite Ziffer den darauf folgenden Wert der Dezimalstelle.

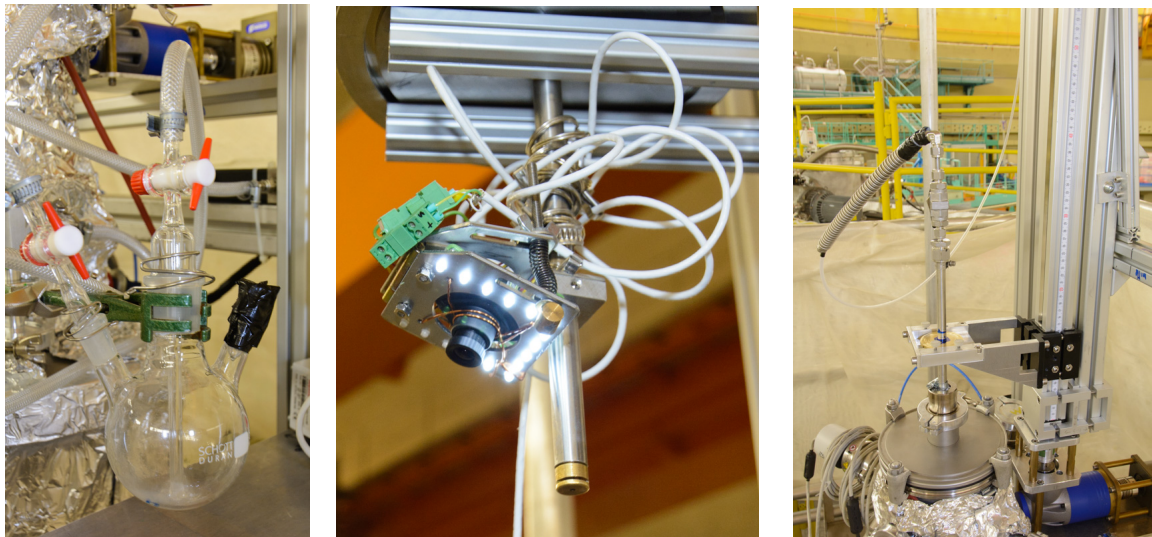


**Abbildung 4.10.:** Schematische und nicht maßstabgetreue Darstellung des Beschichtungssystems: Von der Heliumversorgung rechts wird das Gas durch einen Gasflussregler und -monitor in das PFMO-Gefäß geleitet. Dort reichert es sich mit PFMO-Dampf an und strömt über eine Sprühdüse am unteren Ende des Rohres in die Speicherkammer. Durch die vertikale Bewegung von außen kann die ganze Oberfläche benetzt werden.

vom Typ 1179A der Firma MKS kontrolliert in einen 250 mL-Dreihalskolben aus Glas (siehe [Abbildung 4.11a](#)) geleitet. Dort befand sich bereits das flüssige Polymer. Beim Durchströmen der flüssigen Phase reicherte sich das Gas mit PFMO-Dampf an. Da die Anreicherung in der Gasphase von der Temperatur der Flüssigkeit abhängt, konnte der Glaskolben von außen mit einem Heißluftfön erhitzt werden. Bei der Strahlzeit 2013 war an dessen Stelle ein Wasserbad mit Heizplatte vorgesehen. Zwar konnte die Temperatur dadurch sehr genau geregelt werden, allerdings war nur eine sehr verzögerte Temperaturänderung möglich.

Vom Glaskolben wurde das Gasgemisch in ein 2,4 m langes Edelstahlrohr (12 x 1,5 mm) geführt. Das Schlauchmaterial war PTFE, da sich aus diesem keine Inhaltsstoffe lösen und das Gas verunreinigen könnten. Am unteren Ende des Rohres ist zur Beschichtung die Sprühdüse montiert (siehe [Abbildung 4.11b](#)). Die Öffnungen sind dabei auf die innere Oberfläche der Speicherkammer gerichtet. Im Rahmen der Beschichtungstests (siehe [Abschnitt 3.3](#) auf [Seite 43](#)) wurden verschiedene Sprühdüsen getestet. Die besten Ergebnisse wurden mit einem umlaufenden horizontalen Schlitz erzielt. Damit auch die Bodenplatte benetzt wurde, war die Unterseite mit einer Bohrung versehen. Ebenfalls am Rohr befand sich eine Kamera mit regelbarer LED-Beleuchtung (siehe nächster Abschnitt), um den Beschichtungsvorgang zu überwachen (s. Abb. [4.11b](#)). Das ebenfalls im Bild erkennbare vierpolige PTFE-Kabel diente der Spannungsversorgung und Signalleitung der beiden Applikationen, der Kamera inkl. Beleuchtung und dem PIPS-Detektor im Absorber (siehe [Abschnitt 4.7.2](#)). Es war mit

Schlüsselringen in Schlaufen entlang des Rohres befestigt, da es beim Entfernen dieses aus dem Speicherkammer komplett in der Schleuse zusammengelegt sein musste. Sollte bei einer Wiederholung des Experiments die Variante A zur Beschichtung in Frage kommen, kann der Verdampfer anstelle der Sprühdüse montiert und die Heizung mit der vorhandenen elektrischen Verbindung gesteuert werden.



(a) Verdampfen des PFMO im Dreihalskolben. (b) Sprühdüse, Kamera und Beleuchtung am Ende des Rohrs. (c) Linearantrieb mit Beschichtungsrohr und Halterung.

**Abbildung 4.11.:** Komponenten des Beschichtungssystems: Glaskolben, Sprühdüse, Kamera zur Überwachung des Beschichtungsprozesses und Linearantrieb.

Die in [Abschnitt 4.2](#) beschriebene Schleuse auf der Vakuumkammer diente nicht nur dem Wechsel zum Absorber, sondern auch zur getrennten Evakuierung und Spülung des Beschichtungssystems mit Helium. Die vertikale Bewegung des Rohres erfolgte durch einen Linearantrieb der Firma ROSE + KRIEGER, welcher von einem servoelektrischen Motor vom Typ *PDU 070* der Firma SCHUNK angetrieben wurde. Ein Winkelgetriebe erhöhte die maximale Drehzahl von  $470 \text{ }^\circ/\text{s}$  auf  $6,5 \text{ }^1/\text{s}$ , sodass der Linearantrieb bei einer Spindelsteigung von  $4 \text{ mm}/360^\circ$  mit einer Geschwindigkeit von  $26 \text{ mm}/\text{s}$  bewegt wurde. Bei maximaler Drehzahl des Schunk-Motors konnte die gesamte Höhe der Speicherkammer somit in 40s abgefahren werden. Das Beschichtungsrohr musste so montiert werden, dass eine von der Achse der Lineardurchführung abweichende Ausrichtung des Linearantriebs ausgeglichen wird. Es wurde dazu lose mit einer Messing-Halbschale gelagert, welche nicht nur einen horizontalen, sondern auch einen Winkelversatz kompensieren konnte (siehe [Abbildung 4.11c](#)).

Die Steuerung des Linearantriebs erfolgte mit einer LABVIEW-Software über die serielle Schnittstelle, es konnten sowohl die Geschwindigkeit als auch die maximal Beschleunigung und Verzögerung angegeben werden. Zudem war es möglich, dass die gesamte Höhendistanz

der Speicherkammer in einer vorgegebenen Zeit abgefahren wird. Die Rückmeldung des Motors zeigte sämtliche Parameter zur Fahrt kontinuierlich an. Details zur Steuerung können dem letzten [Abschnitt 4.8.2](#) entnommen werden. Bei einer Weiterentwicklung des Experiments könnten zur Positionsmeldung des Servomotors zusätzlich Näherungssensoren direkt am Linearantrieb die tatsächliche Position des Rohres übermitteln. Damit wäre eine Sicherheitsschaltung möglich, dass beispielsweise das Schleusenventil zur Vakuumkammer nicht geschlossen werden kann, wenn das Rohr nicht vollständig hochgezogen ist.

### 4.5.3. Ablauf einer Beschichtung und Konditionierung der Schicht

Das Protokoll zur Beschichtung sah eine auf das Minimum gekühlte Speicherkammer und Vakuum als Ausgangslage vor. Im Idealfall wurden Speicher- und Vakuumkammer vorher ausgeheizt, um mögliche Verunreinigungen zu entfernen. Das Beschichtungsrohr war mit Sprühdüse und Kamera versehen und befand sich in der geschlossenen Schleusenkammer. Folgende Schritte wurden durchgeführt:

0. Ausgangslage: Turbopumpen der Vakuumkammer, Strahlweiche und Schleuse sind ausgeschaltet und heruntergefahren.
1. Schleusenkammer, Kolben und Schläuche mehrfach evakuieren und mit Helium spülen.
2. Polymer mit Spritze im Helium-Gegenstrom in Glaskolben einfüllen und verschließen.
3. Kolben evakuieren und mit Helium spülen.
4. Schleuse evakuieren und warten bis der Druck gegenüber dem in der Vakuumkammer vergleichbar ist (ca.  $10^{-3}$  mbar).
5. Plattenventil öffnen und Rohr einlassen, Linearantrieb an Ausgangsposition fahren.
6. Heliumstrom auf gewünschten Wert einstellen.
7. **START**zeitpunkt der Beschichtung ist das Öffnen des Heliumventils, starke Blasenbildung im Kolben wird beobachtet.
8. Eingestellten Zyklus mit vorgegebenen Fahr- und Wartezeiten an den Umkehrpunkten abfahren.
9. Parameter zur Kühlung den veränderten Bedingungen anpassen; es muss stärker gekühlt werden, da der Wärmeeintrag wegen des deutlich höheren Drucks zunimmt.
10. Verlauf des Beschichtungsprozesses in der Kammer über die Kamera beobachten und ggf. Position der Sprühdüse anpassen.

11. ggf. Heliumstrom anpassen und ggf. Glaskolben heizen.
12. **ENDE** der Beschichtung sobald Polymer im Kolben vollständig verdampft.
13. Heliumstrom und -ventile schließen, Linearantrieb und Rohr vollständig hochziehen, Schleuse verschließen, Turbopumpen einschalten, Vakuumkammer evakuieren.

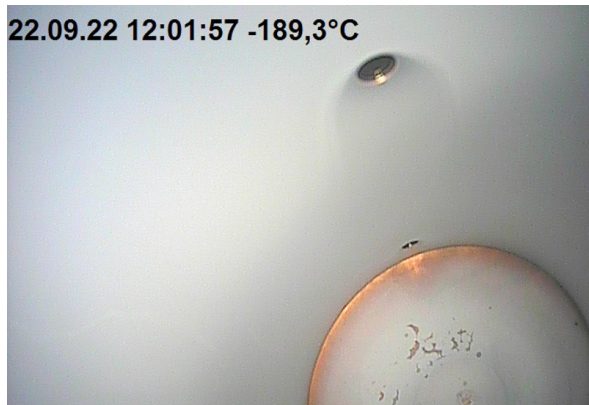
Während des ganzen Vorgangs wurde die Vakuumkammer leicht abgepumpt, damit der Druck nicht zu groß wurde. Mit zunehmendem Heliumdruck wurde die Kühlung der Speicherkammer deutlich schwieriger. Der Heliumstrom wurde mit einem Einkanalcontroller vom Typ *PR 4000B-S* der Firma MKS manuell auf Werte zwischen 100 und 500 sccm eingestellt. Das Gerät zeigte gleichzeitig den tatsächlichen Heliumstrom an. Bei den neun durchgeführten Beschichtungen konnte allerdings auch festgestellt werden, dass die Dauer bis zum vollständigen Verdampfen in guter Näherung mit dem eingestellten Heliumstrom korreliert. Das vorgelegte Volumen an PFMO wurde empirisch ausgewählt. Bei einer Schichtdicke von beispielsweise 10  $\mu\text{m}$  werden 7,6 mL benötigt. Allerdings können Polymerverluste (z.B. durch Kondensation an den Außenwänden der Speicherkammer) nur schwer quantisiert werden.

Bei der Strahlzeit 2013 wurde versucht, den Beschichtungsprozess mittels Gewichtsabnahme des Kolbens auf einer Waage zu verfolgen. Auf Grund der relativ kleinen Änderung im Bereich weniger Gramm und der großen Masse des Kolbens und der angeschlossenen Leitungen war dies nicht zuverlässig möglich.

Sobald das Vakuum nach dem Beschichten sein Minimum erreicht hatte, begann das Konditionieren der Polymerschicht. Dazu wurde die Kühlung komplett abgeschaltet. Das Aufwärmen der Speicherkammer über den Schmelzpunkt von PFMO dauerte gewöhnlich 6-8 Stunden. Durch kontinuierliche UCN-Speichermessungen über 5 Sekunden Dauer wurden die Effekte der Konditionierung verfolgt. Sobald ein Maximum an gespeicherter Neutronenzahl erreicht war (vgl. [Abschnitt 5.3.1](#)), wurde die Kühlung wieder eingeschaltet. Dies war bei Temperaturen von ca.  $-145^\circ\text{C}$  der Fall. In diesem Zustand kann das flüssige Polymer die Wände herabfließen und die Schlitze verschließen. Messungen haben allerdings gezeigt, dass Temperaturen oberhalb des Schmelzpunktes über längere Zeit für einen Verlust des Polymers sorgen. Entweder war es evaporiert oder die Wände herabgelaufen.

#### 4.5.4. Kontrolle per Kamera und PIPS-Detektoren

Im Gegensatz zu den bisherigen Experimenten mit perfluorierten Polymeren, kann bei diesem Experiment die Schichtdicke nicht im Vorfeld vorgegeben werden (z.B. wie bei *Fomblin*-Paste)



**Abbildung 4.12.:**

Kamerabild der Zylinderwand und Bodenplatte während der Beschichtung: Man erkennt deutlich die raureifartige Oberfläche und die noch nicht ausreichende Beschichtung am äußeren Rand der Bodenplatte (Kreis rechts unten). Die dunkle Fläche am oberen Rand ist einer der Detektoren zur Bestimmung der Schichtqualität.

oder einfach ausreichend dick gemacht werden (flüssiges *Fomblin*). Als praktische, aber rein qualitative Kontrollmöglichkeit wurde daher die optische Überwachung mittels Kamerabild umgesetzt. Auf Grund der unterschiedlichen Reflexion von Licht kann der Übergang zwischen der trüben, amorphen Schicht vor dem ersten Schmelzen und der homogenen, reflektierenden Oberfläche deutlich erkannt werden. Allerdings ist damit weder eine vollständige Kontrolle der gesamten Oberfläche möglich, noch kann eine Aussage über die Schichtdicke getroffen werden. Grundsätzlich ist die Information über die absolute Schichtdicke nicht notwendig, sofern sie ausreichend groß ist und die maximale Reflexionsfähigkeit der Schicht erreicht wird.

### Platinenkamera

Die in [Abbildung 4.11b](#) auf [Seite 71](#) dargestellte Platinenkamera besitzt einen 1/3" CCD Farbchip mit einer Auflösung von 976 x 582 Pixeln. Es wurde eine 2,8 mm-Linse verwendet, um einen möglichst großen horizontalen Bildwinkel von 98° zu erreichen. Die Beleuchtung im Inneren wurde mit 18 weißen LED umgesetzt. Sie war von außen stufenlos über die Spannung regelbar und musste der Reflexion der jeweiligen Oberfläche angepasst werden. Die Halterung der Kamera erlaubte eine stufenlose Ausrichtung zwischen dem Boden und der Seitenwand. Der Bildausschnitt wurde so gewählt, dass sowohl die Bodenplatte als auch die Wand abgebildet wurden. Die Erfassung und Verarbeitung des Videosignals erfolgte mit einer in LABVIEW entwickelten Software, es konnten Standbilder oder Filmsequenzen gespeichert werden. Damit bei der späteren Auswertung die Aufnahmen den einzelnen Messungen leichter zugeordnet werden konnten, wurde jedes Bild mit einem Zeitstempel versehen. Hier konnte außerdem direkt die aktuelle, mittlere Temperatur angezeigt werden. Entgegen den Befürchtungen wurde die Kameralinse nicht vom PFMO bedeckt. Vermutlich verhinderte die geringe Erwärmung durch die LEDs und Kameraelektronik das Kondensieren.

Ein Beispielbild ist in [Abbildung 4.12](#) gezeigt. Die optischen Aufnahmen aus der Speicherkammer hatten einen großen Informationsgehalt für die Analyse und Bewertung der Beschichtungen. Zum einen konnten noch unbeschichtete Bereiche (wie im Foto zu sehen) entdeckt werden, zum anderen war die zu starke Beschichtung durch makroskopische Mengen PFMO am Boden so deutlich erkennbar. Außerdem war das Schmelzen des Polymers gut zu beobachten.

### **Rohrdetektoren**

Um eine zumindest relativ quantitative Aussage über die Schichtdicke treffen zu können, sollten kleine UCN-Detektoren in die Wand des Speichergefäßes eingelassen werden und ebenso wie die übrige Oberfläche der Kammer beschichtet werden. Bei einer idealen Beschichtung sollten nur noch solche Neutronen den Detektor erreichen, deren Energie über dem Potential von PFMO liegt. Eine Korrelation zwischen dem Detektorsignal und dem eingesetzten Volumen des Polymers wurde daher erwartet. Bei einer minimalen Zählrate muss also die Beschichtung ausreichend dick sein. Die genaue Beschreibung der Detektoren erfolgt im [Abschnitt 4.6.2](#). Die Auswertung der kontinuierlich aufgezeichneten Detektorsignale in [Abschnitt 5.5.4](#) zeigte einen eindeutigen Einfluss der verschieden guten Beschichtungen.

### **Alternative Kontrollmöglichkeiten**

Neben den beiden verwendeten Möglichkeiten zur Überwachung des Beschichtungsvorgangs und des Polymers im Experiment, bieten sich weitere Untersuchungsmethoden an. Zum einen könnte mittels Photometrie die Transmission von PFMO im Vorfeld bestimmt werden. Sollten im Spektrum charakteristische Absorptionsbanden auftreten, könnte dies im Experiment genutzt werden: Mit einem Laserstrahl der Wellenlänge bei höchster Absorption könnte durch zwei kleine, gegenüberliegende Bohrungen ( $\approx 0,5$  mm) die Absorption der beiden Schichten gemessen werden. Dabei könnte zwar nur die Schichtdicke nach dem Konditionieren bestimmt werden (vorher ist die Streuung auf Grund der amorphen Oberfläche zu groß). Allerdings könnte so auch überprüft werden, ab welcher Temperatur das Polymer an der Innenwand entlangfließt, da sich dann die Schichtdicke ändert. Die Bohrung muss dabei so klein sein, dass keine Unterschiede in der Beschichtung entstehen. Nach vorherigen Absorptionsmessungen verschieden dicker Polymerschichten zur Kalibrierung wären sogar im Experiment realistische Angaben der aktuellen Schichtdicke möglich.

Eine weitere Möglichkeit zur sehr exakten Darstellung verschieden ausgeprägter PFMO-Schichten könnte die Verwendung einer Quarz-Mikrowaage bieten. Diese Sensoren basieren auf einem Schwingquarz, dessen Resonanzfrequenz von der Masse des auf der Oberfläche befindlichen Materials abhängig ist [Sau59]. Die Nutzung dieses Effekts ist seit Jahrzehnten in der Analytik zur Bestimmung kleinster Massen, Feuchtigkeit von Gasen und Filmdicken verbreitet. In der Speicherkammer könnten diese Quarze zusammen mit der Wand beschichtet werden. Auch vor dem Konditionieren sollte hier eine Änderung der Resonanzfrequenz erkennbar sein. Ohne vorherige Versuche zur Kalibration bietet diese Methode zwar keine absolute Bestimmung der Schichtdicke. Aber das Signal könnte als Referenz für reproduzierbare Beschichtungen dienen.

#### 4.5.5. Rückgewinnung

Die Synthese des eingesetzten Polymers war auf Grund der direkten Fluorierung technisch sehr aufwendig und kostenintensiv. Bei der Strahlzeit 2013 sollte daher eine einfache Möglichkeit der Rückgewinnung des eingesetzten PFMO umgesetzt werden. Dazu wurde eine Kühlfalle in einem Dewar (siehe [Abbildung 4.13](#)) über ein Nadelventil an einen Flansch der Vakuumkammer angeschlossen. Mit einer kleinen Vakuumpumpe konnte dann die Vakuumkammer langsam nur durch die Kühlfalle evakuiert werden. Vor jeder neuen Beschichtung wurde die Kammer mit Helium gefüllt und nach dem Erwärmen über die Kühlfalle wieder abgepumpt. Allerdings hatte die erhaltene Flüssigkeit nicht nur mengenmäßig zugelegt, auch waren deutliche Verunreinigungen zu erkennen. Vor einer Wiederverwendung hätte somit eine aufwendige Reinigung und Analyse erfolgen müssen. Auf Grund des geringen Verbrauchs an PFMO (maximal 10 mL pro Beschichtungsvorgang) wurde bei der Strahlzeit 2015 auf die Möglichkeit der Rückgewinnung verzichtet.



**Abbildung 4.13.:** Kühlfalle im Styropor-Dewar.

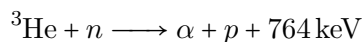
## 4.6. UCN-Detektoren

Im Experiment wurden zwei unterschiedliche Detektortypen verwendet. Zum einen kam für die Erfassung der überlebenden Neutronen nach der Speicherung ein üblicher  $^3\text{He}$ -Detektor

zum Einsatz. Darüber hinaus wurde bei den Planungen die Notwendigkeit weiterer UCN-Detektoren deutlich, welche aber wesentlich flexibler und vor allem konstruktiv einfacher verwendbar sein mussten als die großen gasgefüllten oder vergleichbaren CASCADE-Detektoren. Auf Grundlage neuer Untersuchungen über die Eignung von borbeschichteten Halbleiterdetektoren [Gie14] wurden sogenannte PIPS-Detektoren<sup>6</sup> für drei Anwendungen im Experiment verbaut, bei denen ein kontinuierliches Signal von Interesse war: Am UCN-Eingangsleiter, im Absorber zur Analyse des Spektrums und in der Speicherkammer zur Bewertung der PFMO-Schichtqualität. Der im Absorber vorgesehene Detektor zur Messung des Spektrums konnte leider auf Grund elektronischer Probleme mit dem Vorverstärker bei der Strahlzeit 2015 nicht verwendet werden.

#### 4.6.1. Hauptdetektor

Der Hauptdetektor des Experiments war ein Proportionalzählrohr, welches mit  $^3\text{He}$ -Gas gefüllt war und sehr häufig als Neutronendetektor eingesetzt wird. Helium stellt hier sowohl den Neutronenkonverter als auch das Zählgas dar, es findet die Kernreaktion



mit einem Einfangquerschnitt für thermische Neutronen von  $\sigma = 5330 \text{ b}$  statt. Die drei Vorteile dieses Detektortyps

- sehr gute Nachweiseffizienz von über 90 %,
- geringe Gamma-Empfindlichkeit auf Grund der geringen Kernladungszahl von  $^3\text{He}$  und
- einfache Handhabung durch bewährte Elektronik

überwiegen bei diesem Experiment die Nachteile. Bei Speichermessungen ist keine besonders hohe Zeitaufösung notwendig, außerdem halten sich die Zählraten in Grenzen (100 - 1000 cts/s) und liegen im möglichen Auflösungsbereich des Detektors. [Hin05]

Der Detektor wurde an den unteren Ausgang der Strahlweiche über einen kurzen Neutronenleiter angeschlossen. Auf Grund des Aluminiumfensters am Detektoreinlass ( $V_{\text{eff}} = 54 \text{ neV}$ ) mussten zur Transmission alle Neutronen eine größere Energie als das Potential besitzen. Über einen ausreichend großen Abstand zwischen Boden der Speicherkammer und der Detektorfolie wurde dies erreicht. Zur Abschirmung gegen thermische Neutronen und  $\gamma$ -Strahlung wurde der Detektor mit Cadmiumblech und Borcarbid-Platten vollständig ummantelt.

<sup>6</sup>Passivated Implanted Planar Silicon Detectors.

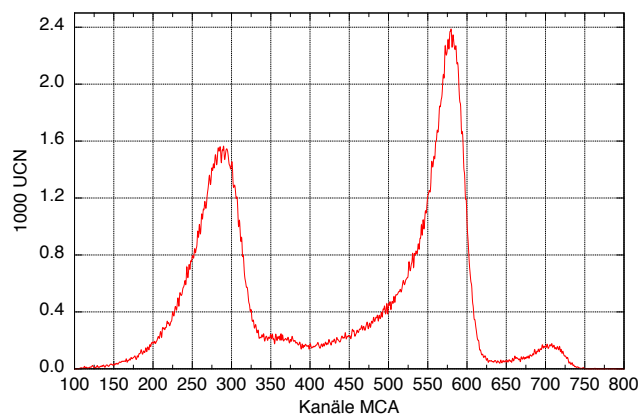
### 4.6.2. Monitordetektoren

Die Suche nach einer geeigneten Möglichkeit, die Polymerbeschichtung in der Speicherkammer zu überwachen, führte zu PiN-Halbleiterdioden, welche bereits zur Erfassung von Protonen verwendet worden waren [Plo05]. Halbleiter-Neutronendetektoren sind in den letzten Jahren verstärkt zur Anwendung im Bereich der UCN-Physik gekommen. Die Vorteile gegenüber gasgefüllten oder Szintillator-Detektoren sind ihre kompakte Bauweise und einfachere Elektronik. Die Effizienz reicht zwar nicht an die fast 100% der gasgefüllten Detektoren heran, ist aber für ihre Verwendung als Monitordetektor vollkommen ausreichend. [Kle00]

Die ursprünglichen Detektoren waren vom Typ *TW PD-100-13-100 AM* der Firma CANBERRA und hatten eine aktive, runde Fläche von  $100\text{mm}^2$ . Allerdings war diese nur für positiv geladene Partikel, z.B. Protonen und  $\alpha$ -Teilchen, sensitiv. Es war somit ein Neutronenkonverter notwendig, wobei sich eine Beschichtung mit elementarem Bor, angereichert auf 97% des  $^{10}\text{B}$ -Isotopes, anbot. Beim Neutroneneinfang mit  $\sigma = 3838\text{ b}$  gemäß den Kernreaktionen



wird dann jeweils ein Heliumkern emittiert, welcher in der  $100\text{ }\mu\text{m}$  dicken intrinsischen Schicht unter Energieabgabe ein Ladungs-Loch-Paar erzeugt. Auch der Lithiumkern hinterlässt im Halbleiter eine Ladungsspur. Wegen der Impulserhaltung sind die Teilchenbahnen nach der Kernreaktion entgegengesetzt. Es ist somit ausgeschlossen, dass sowohl der Helium- als auch der Lithiumkern von einem Zerfallsprozess detektiert werden. Ein MCA-Spektrum<sup>7</sup> der verwendeten Detektoren ist in [Abbildung 4.14](#) dargestellt.



**Abbildung 4.14.:** Gemessenes Spektrum der PIPS-Detektoren im MCA. Der linke Peak entsteht durch die Lithiumkerne, der rechte durch die Heliumkerne. Auf Grund der größeren Energiedifferenz beim Lithium zwischen den beiden Kernreaktion, ist dessen Peak breiter.

<sup>7</sup>Multi Channel Analyzer

Nach Berechnungen von JENKE ET AL. wird das Effizienzmaximum der Borschicht bei einer Dicke von 220 nm für eine Neutronengeschwindigkeit von  $6,5 \text{ m/s}$  erreicht. Bei höheren UCN-Energien verschiebt sich das Maximum zu größeren Schichtdicken (280 nm bei  $9,1 \text{ m/s}$ ) [Jen+13]. Auf Grund der erwarteten, geringeren UCN-Geschwindigkeiten wurden die vorhandenen PIPS-Detektoren mit einer 200 nm dicken Schicht von  $^{10}\text{B}$  auf der aktiven Fläche besputtert<sup>8</sup>.

Laut Hersteller waren die bereits vorhandenen PIPS-Detektoren nicht für den Einsatz bei kryogenen Temperaturen geeignet. Da diese aber zumindest im Speicherrohr bis maximal  $-196 \text{ °C}$  abgekühlt werden sollten, musste die Funktionsfähigkeit im Vorfeld überprüft werden. Zum Vergleich wurde ein PIPS-Detektor in der Kryo-Variante erworben. Da zu diesem Zeitpunkt noch keine Beschichtung mit Bor erfolgt war, wurde direkt ein  $^{241}\text{Am}$ -Präparat als  $\alpha$ -Quelle verwendet. In [Abbildung 4.15](#) ist der Aufbau dargestellt, die PiN-Dioden wurden in dem Kühkörper aus Kupfer befestigt. Mit dem oben beschriebenen Kühlsystem erfolgte dann die Einstellung der Temperatur. Als Ergebnis konnte festgestellt werden, dass die Zählraten der vorhandenen Dioden unabhängig von der Temperatur und mit der Kryo-Version vergleichbar waren. Auch konnten keine Beschädigungen des Detektors durch die tiefen Temperaturen festgestellt werden. Sie sind also für den Einsatz im Experiment geeignet.

**Abbildung 4.15.:**

Experimenteller Aufbau zur Überprüfung der Funktionsfähigkeit der PIPS-Detektoren bei kryogenen Temperaturen. In die Kupferscheibe war der Detektor von oben eingelassen, unterhalb befand sich ein  $^{241}\text{Am}$ -Präparat als  $\alpha$ -Quelle. Über die Anschlussleitungen des Kühlsystems (links und rechts) konnte die Temperatur des Detektors in einem weiten Bereich variiert werden. Direkt am Detektor diente ein PT100-Element der Temperaturkontrolle.

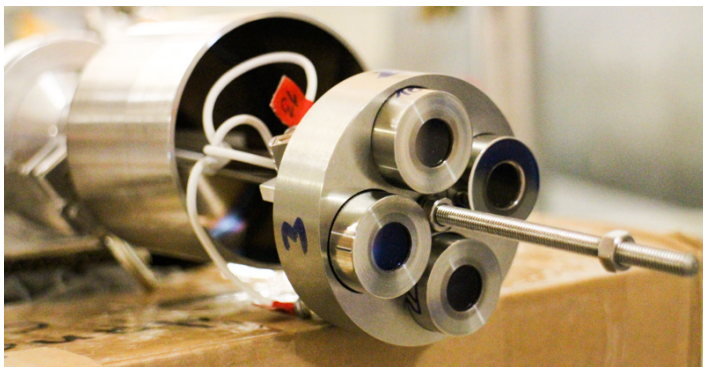


### Vergleichsmessungen mit verschiedenen $^{10}\text{B}$ -Beschichtungen

Im Herbst 2014 wurden im Rahmen eines kurzen Experimentaufenthalts am TES-Strahlplatz des ILL (siehe [Abschnitt 2.1.1](#)) die bereits vorhandenen, beschichteten PIPS-Detektoren ( $^{10}\text{B}$ -Schichtdicken von 50, 100 und 150 nm) und die dazugehörige Elektronik aus Vorverstärkern

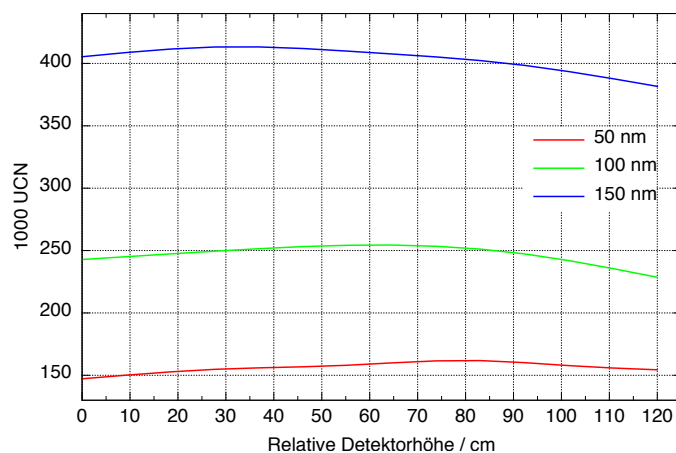
<sup>8</sup>Ebenfalls von der Firma *SD-H* in Heidelberg.

und Signalerfassung auf uneingeschränkte Funktionsfähigkeit getestet. Dabei sollte die Zählrate in Abhängigkeit der Schichtdicke und durch Variation der Detektorhöhe über der UCN-Quelle auch in Abhängigkeit von der Energie gemessen werden. Dazu wurden die Detektoren am Ende des 1,2 m langen Schenkels eines 90°-Neutronenleiters montiert. Durch unterschiedliche Winkel konnte das Energiespektrum der UCN variiert werden. Auf Grund der geringen Größe der PiN-Dioden (Durchmesser: 24 mm) konnten jeweils vier in einer quadratischer Anordnung (siehe [Abbildung 4.16](#)) gleichzeitig in den 70 mm-Neutronenleiter eingesetzt und parallel gemessen werden.



**Abbildung 4.16.:**

Bei den Detektortests am ILL konnten vier PIPS-Detektoren gleichzeitig in den Neutronenleiter eingesetzt und verglichen werden.



**Abbildung 4.17.:**

UCN-Zählraten aufgetragen gegen die Höhe des Detektors für drei Schichtdicken des Neutronenkonverters Bor. Das Maximum verschiebt sich mit zunehmender Schichtdicke zu höheren Energien (geringere Detektorhöhe).

Jede Messung hatte eine Dauer von 15 Minuten. Neben der Höhe und den verschiedenen Detektoren wurden aber auch die Vorverstärker durchgetestet. Als Ergebnis ist festzuhalten, dass die Abweichung der Zählrate bei allen getesteten Vorverstärker mit gleichem Detektor unter 2% liegt. Die Zählraten des Höhen- / Energievergleichs wurden gemittelt und sind in [Abbildung 4.17](#) dargestellt, sie bestätigen das in [\[Jen+13\]](#) beschriebene Ergebnis: Mit zunehmender Schichtdicke verschiebt sich das Effizienzmaximum zu höheren Geschwindigkeiten. Die Ursache ist die unterschiedliche Eindringtiefe in das Konvertermaterial. Bei großer

Schichtdicke und geringer Energie können die entstandenen Partikel ( ${}^7\text{Li}$  und  $\alpha$ ) die intrinsische Schicht der Diode nicht mehr erreichen. Für die im Experiment eingesetzten Dioden mit 200 nm Bor ist das Maximum weiter nach links verschoben. Die tatsächliche Effizienzabnahme bei kleineren Energien ist allerdings vernachlässigbar gering.

### Verwendung im Speicherrohr

In [Abbildung 4.18](#) ist die Speicherkammer mit den vier unteren der insgesamt fünf PIPS-Detektoren dargestellt. Sie sind in einer vertikalen Linie im Abstand von jeweils 200 mm auf den Höhen 40, 240, 440, 640 und 840 mm über der Bodenplatte montiert. Gemäß der Näherung in [Gleichung 2.1](#) beträgt der energetische Abstand zwischen den Detektoren 20,4 neV. Der Hauptzweck dieser Anordnung war, die Charakteristiken unterschiedlicher Beschichtungen mit einer Messgröße vergleichen zu können. Außerdem kann ein Vergleich der Zählraten bei einer Beschichtung auch Aussagen über das Spektrum der gespeicherten UCN liefern. Die Bohrungen in der Wand des Kupferrohrs wurden gerade so groß gewählt, dass nur für die aktive Fläche mit einem Durchmesser von 11,3 mm die Oberfläche geöffnet ist. Der unvermeidbare Schlitz wurde durch die Polymerbeschichtung geschlossen. Die Befestigung erfolgte mit Halterungen von der äußeren Wandseite. Da die Gehäuse der Detektoren ebenfalls aus Metall waren, kann von einer schnellen Anpassung der Temperatur ausgegangen werden.



**Abbildung 4.18.:** UCN-Detektoren und Vorverstärker am Speicherrohr.

Am unteren Bildrand ist der Achtkanal-Vorverstärker zu erkennen, welcher ebenfalls aus dem Experiment von PLONKA [Plo05] übernommen worden war. Zur Signalleitung kamen möglichst kurze, niederkapazitive PTFE-Kabel zum Einsatz. Um die Einstreuung von Störsignalen zu reduzieren, wurde die Vorverstärkereinheit möglichst nah an die Detektoren montiert und die Signale erst dann über koaxiale Vakuumdurchführungen zu den diskriminierenden Hauptverstärkern geleitet.

### Verwendung als Monitordetektor im UCN-Leiter

Da gerade Speicherexperimente empfindlich von der Stärke des Neutronenflusses abhängen, sind bei diesen Experimenten Monitordetektoren unverzichtbar. Einer der neuen Halbleiterdetektoren sollte daher auch hier zum Einsatz kommen. Im Eingangsneutronenleiter, direkt hinter dem Plattenventil, wurde dazu ein UCN-Leiter mit KF16-Flansch eingebaut. Durch eine 10 mm-Öffnung wurde somit ein fester Anteil der Neutronen auf den Detektor geleitet. Zur einfacheren Handhabung und Wiederverwendung zum Monitoring wurden der Detektor, die Vakuumdurchführung und der Vorverstärker in einer kompakten Einheit zusammengesetzt, welche zukünftig an jeden KF16-Flansch angeschlossen werden kann.

#### 4.6.3. Detektor-Elektronik und Software

Die Elektronik des Hauptdetektors beschränkte sich auf eine Hochspannungsquelle (1 kV) und den diskriminierenden Hauptverstärker. Der Vorverstärker war bereits in den Detektor integriert. Die Signalverarbeitung der PIPS-Detektoren erfolgte über die speziell entworfenen achtfach-Vorverstärker und die Hauptverstärker vom Typ CANBERRA 2015A. Da das Signal der Vorverstärker selbst bei geringster Verstärkung die Hauptverstärker übersteuerte, wurden 50  $\Omega$ -Terminatoren parallel an die Signalleitung angeschlossen. Als BIAS waren bei den PIPS-Detektoren 36 V, also vier parallel geschaltete 9 V Blockbatterien, ausreichend.

Die TTL-Signale der *Single Channel Analyzer* (SCA) wurden an die Counter-Eingänge der DAQ-Boxen (USB-6259, USB-6525, USB-9001) von NATIONAL INSTRUMENTS weitergeleitet. Mehrere LABVIEW-Programme dienten der Anzeige und Speicherung der Zählraten (Details siehe [Abschnitt 4.8.2](#)). Bei den Signalen der Speichermessungen wurde eine zeitliche Auflösung von 200 ms verwendet. Auf Grund der großen Datenmengen der sechs kontinuierlich messenden Monitordetektoren wurde hier eine geringere zeitliche Auflösung von 1 s gewählt.

## 4.7. Energievariation

Wie in [Abschnitt 2.2.4](#) dargestellt, muss bei Speicherexperimenten zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer die freie Weglänge des Neutrons entweder über die Variation des Speichervolumens oder der Energie erfolgen. Bei dem vorliegenden Experiment soll die notwendige Extrapolation hauptsächlich über die Geschwindigkeit ermöglicht werden. Die grundsätzlichen Möglichkeiten der Energievariation wurden bereits im o.g. Abschnitt vorgestellt. Bei

der Strahlzeit 2013 sollte ein Absorber aus Lithium-Stearat verwendet werden. Da sich dieser leider als ungeeignet erwies, wurde 2015 ein Bor-Absorber eingesetzt. Der Beschnitt des UCN Spektrums erfolgte erst in der Speicherkammer. Daher kommt es zwangsläufig zu einer parallelen Verkleinerung des Speichervolumens. Bei der Auswertung der Ergebnisse kann dies aber berücksichtigt werden.

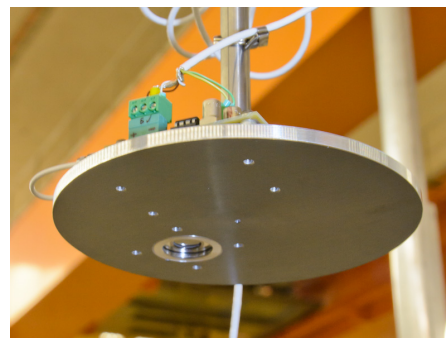
#### 4.7.1. Lithium-Stearat-Absorber

BROSE ET AL. untersuchten mehrere Neutronenabsorber auf ihre Eignung in UCN-Speicherexperimenten. Lithium-Stearat (LiSt), eine bisher wenig beachtete Substanz, zeigte dabei sehr gute Absorptionseigenschaften. Die Synthese erfolgte über die Reaktion von Lithiumhydroxid mit Stearinsäure, es entsteht ein weißer Feststoff. Zwei Effekte führen zu den hohen Neutronenverlusten bei der Wechselwirkung mit LiSt: Absorption durch Lithium und Hochstreuung an den zahlreichen Wasserstoffatomen. Auch Berechnungen von BROSE hatten bereits hohe Absorptionseffizienzen ergeben. [Bro+12]

Für das vorliegende Experiment wurde eine Al-Platte mit bereits vorhandenen, runden Plättchen aus LiSt beklebt (siehe [Abbildung 4.19a](#)). Bei Tests in der gekühlten Speicherkammer kam es allerdings zu Rissen in den LiSt-Plättchen und vereinzelt Abbrechen dieser von der Platte. Auf Grund der möglichen Verunreinigung der Speicherkammer durch diese Reste konnte der Absorber nicht mehr eingesetzt werden. Es ist davon auszugehen, dass der schnelle und starke Temperaturabfall beim Einbringen in die Vakuumkammer zu unterschiedlich starken Kontraktionen von Lithiumstearat und der Trägerplatte aus Aluminium geführt hatte. Bei zukünftigen Versuchen könnte LiSt in alternativen Formen als Absorber eingesetzt werden.



(a) Der 2013 eingesetzte Absorber aus Lithiumstearat.



(b) Absorber mit Bor-Beschichtung und PIPS-Detektor.

**Abbildung 4.19.:** Absorber zur Energievariation bei den Experimenten 2013 und 2015.

### 4.7.2. Bor-Absorber

Entsprechend der Untersuchungen von BROSE stellte sich eine Platte mit einer Beschichtung aus angereichertem  $^{10}\text{B}$  als fast gleichwertiger Absorber heraus. Der Neutroneneinfang führt zur gleichen Kernreaktion wie bei den borbeschichteten PIPS-Detektoren (siehe [Gleichung 4.1](#) auf [Seite 78](#)). Für das Speicherexperiment wurde daher eine Aluminiumplatte mit einem Durchmesser von 140 mm mit 200 nm Bor beschichtet und zusätzlich mit einer Bohrung für den PIPS-Detektor versehen. Aus zwei Gründen wurde in der Absorberplatte ein zusätzlicher Detektor vorgesehen:

- Nach dem Einlass der Neutronen und vor Beginn der eigentlichen Speicherdauer muss eine Reinigung des gespeicherten Neutronenspektrums erfolgen. Diese Reinigung ist abgeschlossen, sobald alle Neutronen aus der Kammer entfernt sind, die nicht vom Wandmaterial reflektiert werden können oder durch den Absorber entfernt werden sollen. Sobald das Signal im Absorberdetektor ein Minimum erreicht hätte, wäre dieser Zustand erreicht gewesen.
- Gleichzeitig hätte der Detektor durch Messung auf verschiedenen Höhen in der Speicherkammer Informationen über das Spektrum der UCN geliefert.

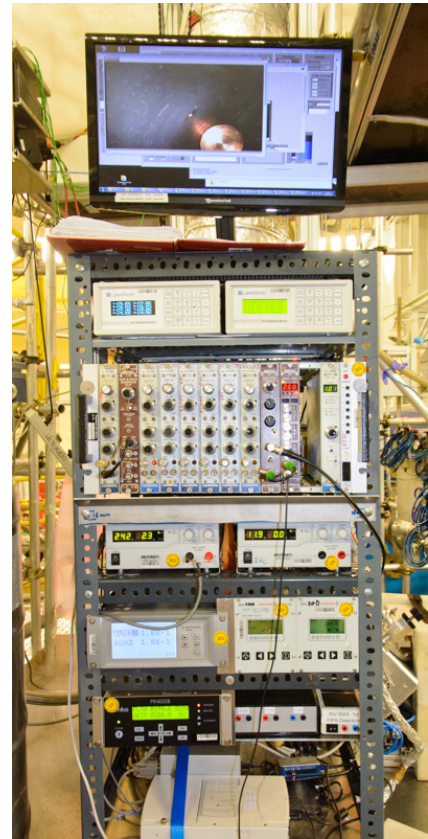
Grundsätzlich ist die Messung der Neutronenlebensdauer aber auch ohne den zusätzlichen Detektor möglich. Diese Platte wurde nach der Beschichtung in der Schleusenkammer gegen die Sprühdüse und Kammer ausgetauscht. Die Einstellung der Höhe in der Speicherkammer und einhergehend damit der Energie der Neutronen erfolgte dann durch den Linearantrieb. In [Abbildung 4.19b](#) ist der Absorber im Experiment dargestellt.

### Möglicher Bereich der Energievariation

Ausgehend von der maximalen Höhe der Speicherkammer von einem Meter kann der Absorber bis auf eine sinnvolle Höhe von 300 mm abgesenkt werden. Von den Anfangs 41,5 L stehen dann noch 12 L als Speichervolumen zur Verfügung. Die maximale relative Energieänderung der Neutronen beträgt 71,4 neV, was einem Geschwindigkeitsbeschnitt von 3,6 m entspricht. Unter der Annahme, dass sich UCN wie ein ideales Gas verhalten, stellt sich nach dem Beschnitt des Spektrums wieder eine Gauss-Verteilung als Geschwindigkeitsprofil ein. Das Maximum liegt durch die maximale Steighöhe der UCN bei 31 neV.

## 4.8. Elektronik und Software zur Experimentsteuerung

Die Elektronik unterteilte sich grob in Geräte zur Datenerfassung (DAQ) und Steuerung von Komponenten. Die vielen verschiedenen Geräte des Experiments und die Notwendigkeit eines automatischen Betriebes führten zu einer komplexen Softwarestruktur, die bis zur finalen Strahlzeit im Herbst 2015 entwickelt werden musste. Da die Software explizit eine übersichtliche und intuitive Benutzeroberfläche benötigte und weil einige Datenerfassungsgeräte der Firma NATIONAL INSTRUMENTS (NI) verwendet wurden, kam die ebenfalls von NI angebotene Programmierumgebung LABVIEW zum Einsatz. Auch Anwendungen wie die Verarbeitung von Videosignalen waren damit möglich. Als graphische Programmiersprache verbraucht LABVIEW zwar deutlich mehr Ressourcen als textbasierte Sprachen wie C++, allerdings ist auf Grund der graphischen Darstellung des Programmcodes auch die Zusammenarbeit mit anderen, ggf. nicht programmiererfahrenen Personen, an einem Projekt einfacher.



**Abbildung 4.20.:** Rackwagen mit Steuerelektronik.

### 4.8.1. Elektronik

In [Abbildung 4.20](#) ist der Rackwagen dargestellt, in dem fast sämtliche Steuerungsgeräte verbaut waren. Die Erfahrungen vorangegangener Strahlzeiten führten zu dieser optimierten Vorbereitung der elektronischen Geräte. Insbesondere die feste Verkabelung innerhalb des Rackwagens und einheitliche Anschlüsse ersparten beim Aufbau des Experiments Zeit und Ressourcen. Ebenfalls wurden an der Rückseite Steckbuchsen für fast alle Signal- und Spannungsverbindungen zum Experiment vorgesehen. Die Geräte kommunizierten per serieller Schnittstelle oder USB mit der Steuersoftware auf dem Rechner. Folgende Komponenten waren in den Rackwagen integriert:

- PC mit Monitor,
- zwei Temperatur-Monitore, Typ: LAKESHORE 218E,
- NIM-Rahmen mit: 8 Verstärkern, HV-Quelle und SCA,

- Druck-Monitor und Turbopumpen-Controller,
- Steuergerät für Helium-FlowController,
- sämtliche Spannungsversorgungen und
- sämtliche DAQ-Geräte

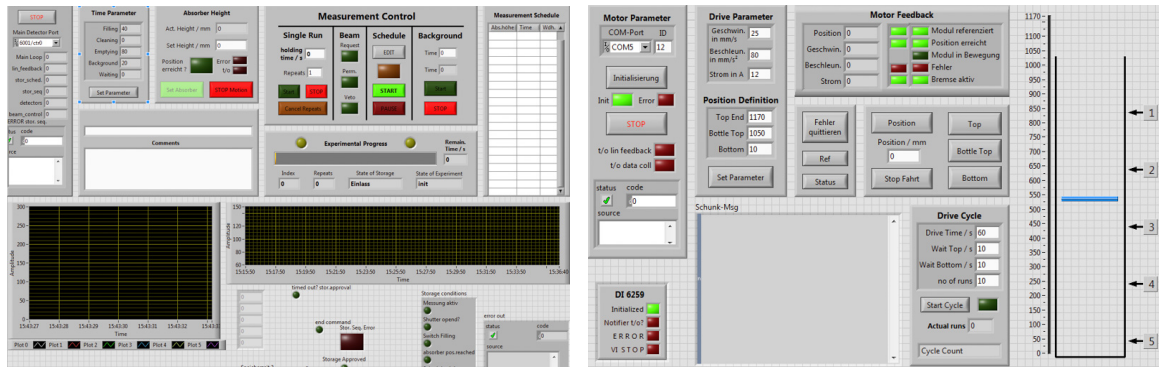
Der Rackwagen wurde direkt neben dem experimentellen Aufbau platziert. Da in diesem Bereich während der Messungen, also mit geöffnetem Neutronenstrahlventil, die Ortsdosisleistung deutlich erhöht ist, sollte ein Aufenthalt am Experiment minimiert werden. Ein zweiter Steuerstand mit zwei Monitoren wurde daher unterhalb der Plattform eingerichtet.

#### 4.8.2. Software

Die Benutzeroberfläche der Experimentsteuerung bestand hauptsächlich aus zwei Einheiten: Steuerung des Kühlsystems mit Temperaturüberwachung (siehe [Abbildung 4.9](#) auf [Seite 66](#)) und Experimentsteuerung mit Parametereingaben zu den einzelnen Speichermessungen (siehe [Abbildung 4.21a](#)). Bei der Beschichtung der Speicherkammer wurden zusätzlich die Softwaremodule zur Steuerung des Linearantriebs (siehe [Abbildung 4.21b](#)) und zur Videobild-Darstellung verwendet. Sämtliche Gerätesteuerungen wurden so programmiert, dass sie grundsätzlich eigenständig arbeiten können. Das System der *Queued State Machine* diente zur Befehlsübertragung zwischen den einzelnen Unterprogrammen. Die Datenerfassung, insbesondere der kontinuierlichen Messwerte wie Temperatur, Druck oder Dewarfüllstand, erfolgte über ein zentrales Unterprogramm. Alle weiteren Programme konnten von diesem dann je nach individueller Lesefrequenz die Werte abrufen. Außerdem erfolgte hier eine Speicherung der kontinuierlichen Messwerte. Die Experimentsteuersoftware enthielt auch ein System zum Fehlermanagement, Unregelmäßigkeiten wurden dokumentiert und dem Benutzer angezeigt. Ein einzelnes Unterprogramm übernahm die Kommunikation mit der UCN-Turbine, da der Neutronenstrahl nur nach vorheriger Anforderung (*Request*) und Freigabe (*Permisson*) durch die anderen Experimente verwendet werden konnte. Solange ein Experiment den UCN-Strahl benötigte, hier also während der Einlassdauer, wurde dieser mit dem *Veto*-Status fixiert.

Damit die Software ohne Benutzereingaben beispielsweise über Nacht laufen konnte, wurde eine Liste mit Parametern (Speicherdauer, Absorberhöhe, Anzahl der Wiederholungen) für einzelne Messungen eingegeben, welche dann sukzessive abgearbeitet wurde. Jeder Messung wurde automatisch eine eindeutige und einmalige ID-Nummer zugeordnet. Der Ablauf eines einzelnen Speicherexperiments gliederte sich in folgende Schritte:

-



(a) Experimentsteuerung mit Verlaufsdiagrammen (b) Steuerung des Linearantriebs mit graphischer Positionsanzeige (rechts).

Abbildung 4.21.: Benutzeroberflächen der Experimentsteuersoftware.

1. Überprüfen der Freigabe. Dazu müssen Druck und Temperatur innerhalb vorgegebener Parametern liegen, es darf keine andere Messung noch aktiv sein und die Strahlweiche muss auf „Einlass“ stehen.
2. Ggf. Absorber an neue Position fahren und warten bis Position erreicht ist.
3. *Request* des UCN-Strahls und Warten auf *Permission* → *Veto* setzen.
4. Öffnen des UCN-Ventils und des Verschluss’.
5. Einlassdauer  $t_{\text{fill}}$  abwarten.
6. Verschluss und UCN-Ventil schließen und Umschalten der Strahlweiche auf Auslass.
7. Speicherdauer  $t_{\text{hold}}$  abwarten.
8. Hauptdetektormessung starten und Verschluss öffnen.
9. Auslassdauer  $t_{\text{emp}}$  abwarten.
10. Detektormessung beenden und Verschluss schließen.
11. Untergrundmessung mit Hauptdetektor für Dauer  $t_{\text{bg}}$ .
12. Zählraten und Parameter der Messung speichern.

Zusätzlich zu den Parametern der Messung konnten Bezeichnungen und Kommentare gespeichert werden. Diese Funktion wurde bei plötzlichen Ereignissen und Unregelmäßigkeiten vom Experimentator genutzt. Anfangs erfolgte auch während der UCN-Speicherung eine Erfassung der Zählrate im Hauptdetektor, da so eventuelle Leckagen des Verschluss’ hätten nachgewiesen werden können. Da diese Untersuchungen keine UCN über dem Untergrund feststellen konnten, wurde im Weiteren darauf verzichtet. Direkt im Anschluss an das Entleeren des

Speichervolumens erfolgte jeweils eine Untergrundmessung (anfangs über 60 s, mit optimierter Detektorabschirmung waren 20 s ausreichend, da Fluktuationen geringer waren) und die unmittelbare Korrektur der Speichermessung.

## 4.9. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden der experimentelle Aufbau mit den einzelnen Komponenten und die Abläufe zur Beschichtung und Messung beschrieben. Das Experiment wurde von Beginn an mit dem Ziel konstruiert, die Bestimmung der Neutronenlebensdauer durch materielle Wandspeicherung von UCN zu ermöglichen. Es kann dabei sowohl an kontinuierlichen (z.B. ILL PF2) als auch an gepulsten (z.B. TRIGA Mainz) Neutronenquellen betrieben werden. Für die Messungen im Rahmen dieser Arbeit war es am ILL aufgebaut worden.

Das **Gesamtexperiment** hatte inklusive des Linearantriebes zur Beschichtung oberhalb und der Neutronenstrahlweiche unterhalb eine Höhe von ca. 5 m und beanspruchte eine Grundfläche von 2 m<sup>2</sup>. Die Vakuumkammer bestand hauptsächlich aus einem vertikalen Rohr ( $\varnothing = 400$  mm), in welchem die Speicherkammer mit Kühlung und Verschluss montiert waren. Die erste Strahlzeit 2013 lieferte wichtige Erkenntnisse zur Optimierung des Vakuumsystems, z.B. die Notwendigkeit von Edelstahlrohren und -schläuchen für  $lN_2$  als Kühlmittel. Durch Ausheizen bis 100 °C konnte schließlich ein konstanter Druck im Bereich von  $2 \cdot 10^{-6}$  mbar erreicht werden.

Die **Speicherkammer** bestand aus Kupfer und war aus einem vertikal montiertem Rohr ( $\varnothing_{\text{innen}} = 230$  mm,  $l = 1$  m) und einer Bodenplatte zusammengesetzt. Zur Neutronenspeicherung wurde in vertikaler Richtung die Gravitationswechselwirkung genutzt. Die große Wärmekapazität von Kupfer und die Wandstärke (jeweils 10 mm) sollten Temperaturgradienten bei der Kühlung reduzieren. Der Ein- und Auslass der UCN erfolgte über eine 70 mm-Öffnung in der Bodenplatte, unterhalb war daher eine Strahlweiche montiert. Im von der Quelle zuführenden Neutronenleiter war außerdem ein Plattenventil zur Reduktion des Untergrunds während der Messungen installiert. Der Verschluss der Speicherkammer war ein Kupferkonus, welcher von innen in der Öffnung versenkt wurde und somit im geschlossenen Zustand eine ebene Bodenfläche erlaubte. Der Antrieb erfolgte durch eine Lineardurchführung von außen. Die Strahlzeit 2013 hatte gezeigt, dass aufwendigere Konstruktionen im Langzeitbetrieb sehr anfällig für Verschleiß sind. Die Kühlung erfolgte mit flüssigem Stickstoff durch Kühlleitungen auf den Wänden und -kanäle in der Bodenplatte. Diese waren, soweit möglich, symmetrisch

angeordnet, um Gradienten zu reduzieren. An 16 Positionen der Speicherkammer (davon 3 am Boden) wurde während des Experiments kontinuierlich die Temperatur gemessen.

Das **Kühlsystem** verwendete  $LN_2$  aus einem 200 L-Dewar. Durch Regel- und Absperrventile konnte der Strom dosiert werden, die Steuerung erfolgte automatisiert über eine LABVIEW-Software. Dafür wurden mit zwei LAKESHORE Temperaturmonitoren die 16 Temperatursensoren ausgelesen. Diese waren auf Grund der speziellen Anforderungen entwickelt worden und basierten auf PT100-Elementen. Hier wurde der bewährte technische Standard und die günstige Beschaffung ausgenutzt. Die Genauigkeit war mit  $0,6^\circ\text{C}$  ausreichend hoch. Die PT100-Elemente waren in Kupferschrauben eingeklebt, die flexibel und mit guter Wärmeleitung in den Außenwänden der Speicherkammer befestigt werden konnten. Die Kühlung konnte am besten durch einen gepulsten Stickstoffstrom geregelt werden. Dazu wurde bei fester Öffnung des Regelventils (2 - 5 %) das Absperrventil für wenige Sekunden geöffnet und dann wieder für 15 bis 60 s geschlossen. Das Verdampfen des flüssigen Stickstoffs in den Leitungen führte zu geringeren Temperaturen als beim Durchfluss. Der Stickstoffverbrauch lag bei 2 bis 5 L/h.

Auf Grund des hohen Dampfdrucks von PFMO musste ein **Beschichtungssystem** entwickelt werden, das ein Auftragen in der Speicherkammer nach dem Zusammenbau des Experiments erlaubte. Das Ziel war eine reproduzierbare und gleichmäßige Bedeckung der Oberfläche. Das Polymer wurde außerhalb der Apparatur verdampft und mit einem Helium-Gasjet in die Speicherkammer transportiert. Über den Gasstrom war eine Regulation möglich. Mit Hilfe einer Sprühdüse am Ende eines vertikal beweglichen Rohrs konnte die gesamte innere Oberfläche mit dem Polymer benetzt werden. Die Bewegung erfolgte softwaregesteuert über einen Linearantrieb. Das gasförmige Polymer sublimierte an den zum Minimum abgekühlten Wänden zu einer amorphen Schicht. An den Beschichtungsvorgang schloss sich daher die sog. Konditionierung an: Während des Aufwärmens der Kammer schmolz das PFMO, bildete eine homogene Oberfläche und wurde dann wieder unterhalb des Schmelzpunktes abgekühlt. In der flüssigen Phase konnten so Schlitze verschlossen werden. Bei bisherigen Wandspeicherexperimenten mit Fluorpolymeren wurden diese in makroskopischen Mengen vor dem Zusammenbau auf die Wände aufgetragen. Da dies beim vorliegenden Experiment nicht möglich war, musste die Schichtqualität später beurteilt werden können. Eine am vertikalen Rohr installierte Kamera erlaubte dazu die Beobachtung der Oberflächen während der Beschichtung und Konditionierung.

Mit Hilfe von **PIPS-Detektoren** in der Speicherwand war eine weitere Kontrollmöglichkeit der Beschichtungsqualität gegeben. Diese wurden gleichmäßig mit der Umgebung beschichtet.

Das Signal sollte somit sowohl mit der Dicke als auch Qualität der Schicht korrelieren. Eingesetzt wurden kleine  $\alpha$ -Sensoren, welche mit einer 200 nm starken  $^{10}\text{B}$ -Schicht für UCN sensitiv waren. Ein baugleicher Detektor wurde im Eingangsneutronenleiter als Monitorsignal verwendet. Im Vorfeld der Strahlzeit erfolgten Tests zur Vergleichbarkeit und Temperaturstabilität der Sensoren. Als Hauptdetektor der Speichermessungen wurde ein üblicher  $^3\text{He}$ -Detektor verwendet.

Zur notwendigen Variation der freien Weglänge bei Neutronenlebensdauerexperimenten konnte  $^{10}\text{B}$ -**Absorber** von oben in die Speicherkammer abgesenkt werden. Die vertikale Bewegung erfolgte mit dem Rohr des Beschichtungssystems über den Linearantrieb. Es war eine Energievariation zwischen 31 und 96 neV möglich. Ein Lithiumstearat-Absorber wurde ebenfalls getestet, war aber in der verwendeten Form nicht tieftemperaturtauglich.

Sämtliche Geräte und Elektronik zur **Experimentsteuerung** waren in einem Rackwagen verbaut und bereits im Vorfeld der Strahlzeit komplett verkabelt worden. Dadurch waren der Aufbau und die Inbetriebnahme des Experiments am Strahlplatz sehr viel einfacher und weniger fehleranfällig. Alle Antriebe, Sensoren und Detektoren des Experiments wurden von einer LABVIEW-Software gesteuert bzw. verarbeitet. Dabei waren die Benutzerinteraktionen auf ein Minimum reduziert, die meisten Prozesse konnten automatisch im Hintergrund ablaufen. Die Software übernahm auch die Kommunikation mit der UCN-Quelle zur Anforderung des Neutronenstrahls.

## Kapitel 5.

### Ergebnisse der Strahlzeit am ILL

Im Sommer 2013 erfolgten die ersten Messungen mit dem vorgestellten Experiment am Instrument PF2-TES des Hochflussreaktors ILL in Grenoble, Frankreich (siehe [Abschnitt 2.1.1](#)). An diesem Strahlplatz ist zwar der Neutronenfluss geringer als an den drei Hauptstrahlplätzen, allerdings wird hier ein kontinuierlicher Neutronenstrahl bereitgestellt. Dieser ist daher ideal für kleine Testaufbauten, bei denen das Messprogramm unabhängig von anderen Experimentatoren durchgeführt werden kann. Das hauptsächliche Ziel war damals die Überprüfung der bisher fertiggestellten mechanischen und elektronischen Komponenten sowie deren Zusammenspiel. Außerdem sollten Faktoren ermittelt werden, welche großen Einfluss auf die Qualität der Beschichtung und somit die Neutronenspeichergüte besitzen. Auf die wichtigsten Erkenntnisse und Ergebnisse dieser ersten Strahlzeit wird an den entsprechenden Stellen in der vorliegenden Arbeit verwiesen. Details können [[Zim13](#)] entnommen werden.

Nach zwei weiteren Jahren der Vorbereitung und Tests der einzelnen Komponenten, wurde schließlich im Herbst 2015 das komplette Experiment am Strahlplatz PF2-UCN des ILL aufgebaut. Auf Grund technischer Einschränkungen des Reaktors standen anstatt der beantragten 30 nur 16 Tage an reiner Messzeit im 176. Reaktorzyklus zur Verfügung. Um keine wertvollen Tage während des Reaktorbetriebes zu verlieren, wurde bereits 2 Wochen vorher mit dem Aufbau des Experiments begonnen. Dadurch konnten auch unvorhersehbare Verzögerungen kompensiert werden.

Im folgenden Kapitel wird zuerst kurz auf das Aufbauen und die Inbetriebnahme des Experiments eingegangen. Nach einer Übersicht über alle durchgeführten Beschichtungen und Messungen schließt sich der Abschnitt mit den grundlegenden Ergebnissen, den Speicherzeiten  $\tau_{\text{eff}}$ , an. Anschließend werden die Unterschiede zwischen den einzelnen Beschichtungen und Messungen vorgestellt sowie die Auswirkungen auf die Speicherzeiten diskutiert. Die im

Experiment ermittelte Speicherzeit lag mit  $\tau_n = (289,0 \pm 0,2)$ s deutlich unter den Erwartungen. Die später folgende Analyse der Ergebnisse verfolgt daher das Ziel, Einflüsse auf die PFMO-Schicht zu finden, welche zu hohen Verlusten führen. Die Auswertung der Speicherdetektoren, Entleerkurven und Absorbermessungen soll dazu beitragen. Auf Grund des großen Datenvolumens war die vollständige Auswertung jeglicher Korrelationen im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich. Die Diskussion der Ergebnisse und generelle Eignung des experimentellen Aufbaus für Lebensdauermessungen erfolgt im nächsten Kapitel.

## 5.1. Ablauf der Strahlzeit

### 5.1.1. Aufbau

Die Strahlzeit begann am 25. August 2015 mit dem Entpacken und Transport der Komponenten auf Niveau D des Reaktorgebäudes. In den darauffolgenden zwei Wochen erfolgte die Montage des Experiments. Da einige Teile aufeinander aufbauten, wurden zwischendurch mehrfach Funktionstests in der verschlossenen Vakuumkammer durchgeführt. Bis der Neutronenstrahl ab dem 08. September 2015 zur Verfügung stand, vollzog sich der Aufbau in folgenden Schritten:

1. Aufbau Gerüst und Boden der Vakuumkammer auf der Strahlplatzplattform.
2. Zusammensetzen der Vakuumkammer und -komponenten. Vakuumtests mit Ausheizen.
3. Montage der Strahlweiche und aller UCN-Leiter, inkl. Hauptdetektor, Vakuumtests.
4. Montage der Kühlleitungen und Temperatursensoren an das Rohr der Speicherkammer.
5. Zusammensetzen der Speicherkammer und vollständige Verrohrung der Kühlung.
6. Tests zur Kühlung, Temperaturerfassung und Wiederbefüllen des  $LN_2$ -Dewars.
7. Montage der Detektoren an die Speicherkammer und Aufbau der Verstärkerelektronik.
8. Aufbau und Tests der Elektronik zur Steuerung der pneumatischen Antriebe und Anforderung des Neutronenstrahls.
9. Detektortests und -einstellungen mit externer Neutronenquelle.
10. Aufbau des Linearantriebes, Montage auf der Vakuumkammer und Funktionstests.
11. Aufbau des Helium-Gas-Jets zur Verdampfung von PFMO.
12. Software-Langzeittests zur Kühlung, Messwerterfassung und Experimentsteuerung.

Fast alle Komponenten funktionierten nach dem Aufbau einwandfrei. Einzig der Detektor in der Absorberplatte konnte nicht eingesetzt werden, da Störungen in der Vorverstärkerelektronik auftraten. Kleinere Probleme, welche beim Aufbauen auftraten und gelöst werden konnten, wurden bereits im [Kapitel 4](#) bei der Beschreibung der entsprechenden Experimentkomponente erläutert.

### 5.1.2. Übersicht der Messungen während der Strahlzeit

Nach dem Hochfahren des Reaktors und den ersten UCN an den Speicherdetektoren und dem Hauptdetektor konnten Funktionstests und die Analyse des Spektrums mit einem *Multi-Channel-Analyzer* (MCA) erfolgen. Es folgten Untersuchungen zum optimalen Timing der pneumatischen Antriebe (Strahlweiche und Kammerverschluss) und Beginn der Detektormessung. Es wurde festgestellt, dass Messungen mit Speicherdauern von  $t_{\text{hold}} < 5$  s mit diesem Experimentaufbau nicht möglich sind: Die vom Einlass im Neutronenleiter verbliebenen UCN verfälschten das Signal im Hauptdetektor. Allerdings sind diese sehr kurzen Speicherdauern für eine Messung von  $\eta_{\text{PFMO}}$  oder der Lebensdauer  $\tau_n$  nicht relevant.

Vor der ersten Beschichtung wurde durch Speichermessungen mit konstanter Speicherdauer ( $t_{\text{hold}} = 5$  s) die optimale Einlassdauer ermittelt. Diese lag bei  $t_{\text{fill}} = 40$  s, eine längere Zeit führte nicht zu höheren Neutronendichten im Speichervolumen. Ebenfalls wurde die notwendige Entleerdauer zu  $t_{\text{emp}} = 60$  s bestimmt. Im Programmablauf (siehe [Abschnitt 4.8.2](#)) wurde außerdem für die Untergrundmessung nach jeder Speicherung eine Zeit von anfangs  $t_{\text{bg}} = 60$  s vorgesehen. Durch eine verbesserte Abschirmung des Hauptdetektors konnten sowohl das Signal als auch Fluktuationen reduziert und somit die Messdauer auf 20 s verkürzt werden. Die anschließende Wartezeit bis zur nächsten Messung hing von den Experimenten an den anderen beiden anderen PF2-Strahlplätzen (MAM und EDM) ab.

In den 16 Tagen der Strahlzeit wurden insgesamt neun Beschichtungen mit PFMO und 2588 einzelne Speichermessungen durchgeführt. Nach den Beschichtungen 3, 5 und 9 wurde die Speicherkammer komplett ausgeheizt, um sämtliche Reste des Polymers zu entfernen. Es erfolgten außerdem systematische Detektortests (der Monitor- und Speicherrohrdetektoren) und Speichermessungen in der unbeschichteten Titankammer. Das Vakuum musste während der Strahlzeit nur einmal unterbrochen werden. Dies erfolgte nach Beschichtung 3, da Reparaturen am UCN-Guide-Shutter notwendig waren. Die folgende [Tabelle 5.1](#) gibt einen Überblick über die Beschichtungs- und Messzyklen der gesamten Strahlzeit. Eine Übersicht der bei den verschiedenen Beschichtungen verwendeten Parameter bietet [Tabelle 5.4](#) auf [Seite 106](#).

**Tabelle 5.1.:** Übersicht der Beschichtungs- und Messzyklen während der 16-tägigen Strahlzeit am ILL im Herbst 2015. Die angegebenen Messungen erfolgten jeweils direkt nach der Beschichtung.

Datum / Zeit	Beschichtung Nummer	Indices der Messungen	Bemerkungen
08.09. 17:00		1 bis 46	Optimierung der Einlassdauer
09.09. 08:00		47 bis 139	Detektortests
10.09. 18:15	<b>1</b>	140 bis 563	
12.03. 15:30	<b>2</b>	564 bis 782	
13.09. 15:15	<b>3</b>	793 bis 977	Fotoaufnahmen
15.09.	Belüftung der Kammer, Reparatur am UCN-Guide-Shutter		
15.09.	Ausheizen und Entfernen der alten Beschichtungen		
15.09. 19:30	<b>4</b>	978 bis 1179	Fotoaufnahmen
16.09. 18:10	<b>5</b>	1180 bis 1391	Fotoaufnahmen
17.09.	Ausheizen und Entfernen der alten Beschichtungen		
18.09.	Monitor- und Rohr-Detektortests		
18.09. 13:30		1392 bis 1426	Speichermessungen in Titan
18.09. 14:50	<b>6</b>	1427 bis 1737	
19.09. 11:30	<b>7</b>	1739 bis 2034	Fotoaufnahmen
20.09. 12:20	<b>8</b>	2035 bis 2292	
21.09. 10:46		2293 bis 2367	Messungen mit Absorber
21.09. 18:00	Ausheizen und Entfernen der alten Beschichtungen		
22.09. 10:50	<b>9</b>	2368 bis 2588	Fotoaufnahmen

Das Vakuum konnte während den Speichermessungen in einem Bereich zwischen  $1 \cdot 10^{-6}$  und  $5 \cdot 10^{-6}$  mbar konstant gehalten werden. Die Kühlung funktionierte sehr zuverlässig, wobei die Parameter zur Steuerung empirisch ermittelt werden mussten, um die Temperatur konstant halten zu können. Der Verbrauch an flüssigem Stickstoff war sehr niedrig und lag zwischen 2,5 und 5 l/h. Maximal einmal pro Tag musste der  $lN_2$ -Dewar auf der Experimentierplattform neu befüllt werden.

Die Auswertung der Zählratenverläufe des Monitordetektors im zuführenden Neutronenleiter ergab, dass die Schwankungen im Neutronenfluss weit kleiner waren als die folgenden Messfehler. Auch die Reaktorleistung schwankte nicht signifikant. Bei größeren Abweichungen könnten beide Größen zur Korrektur dienen, es war hier aber nicht notwendig.

## 5.2. Messungen ohne Beschichtung in Titan

Zum Testen und Kalibrieren der Speicherdetektoren in der Speicherkammer wurden Durchflussmessungen durchgeführt. Auf Grund der geringen Lebensdauer von UCN in Titan konnten diese Messungen nur mit dem Neutronenspektrum durchgeführt werden, das die Speicherkammer direkt aus der Quelle erreichte. Einen großen Anteil der Detektorsignale stellten also schnelle Neutronen dar. Anschließend wurde mit Speichermessungen die Speichergüte von Titan überprüft.

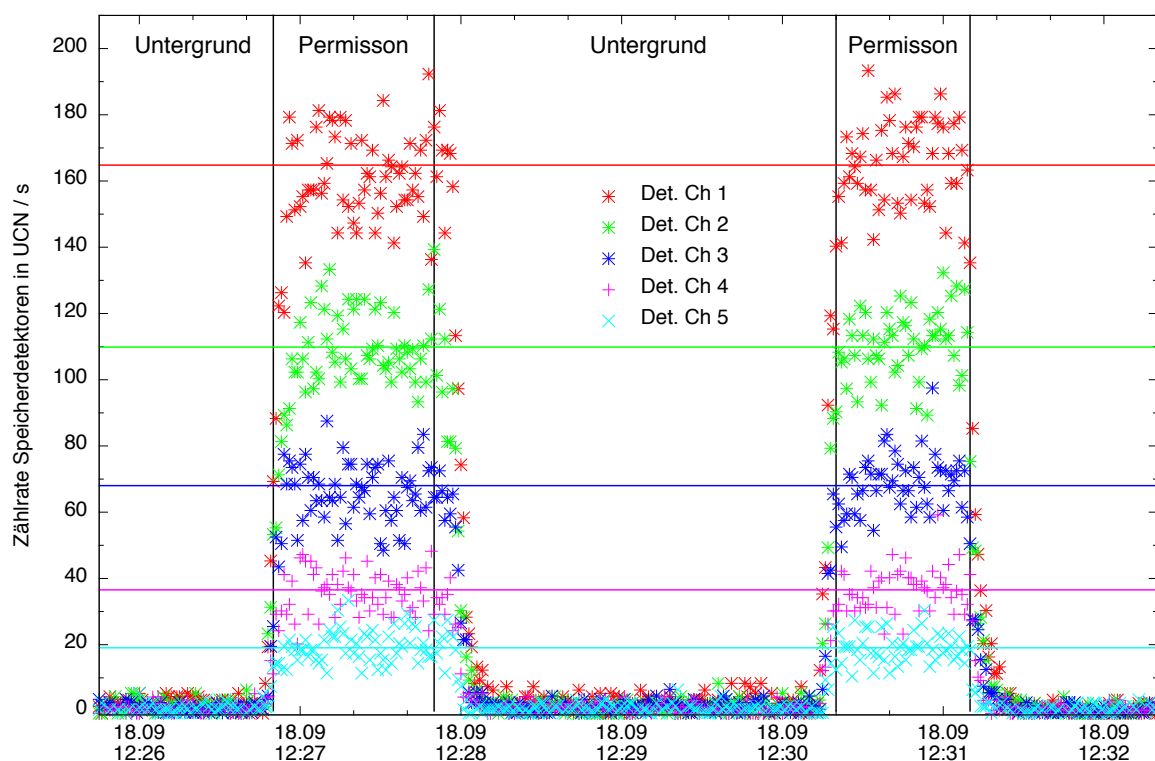
### 5.2.1. Durchflussmessungen zur Kalibrierung der Speicherdetektoren

Für eine Dauer von zweimal 60s wurde *Permission* angefordert und beide Shutter (UCN-Guide und Verschluss der Kammer) geöffnet, sodass sich eine konstante Zählrate an den Detektoren einstellte (siehe [Abbildung 5.1](#)). Im Gegensatz zu den anderen Daten der Speicherdetektoren (siehe [Abschnitt 5.5.2](#)) waren die Messungen in Titan quasi frei von Rauschen und sonstigen Störsignalen. Nicht in der Abbildung dargestellt ist der Bereich über 10 Minuten, in dem die konstante Untergrundzählrate gemessen und das Mittel bestimmt wurde. Durch einen linearen Fit für jeden Kanal wurde die mittlere Zählrate  $\bar{N}$  bestimmt und mit dem Untergrund  $\Delta\bar{N}$  korrigiert. Die Ergebnisse sind für jede Detektorposition in [Tabelle 5.2](#) angegeben.

**Tabelle 5.2.:** Mittlere Zählraten  $\bar{N}$  der fünf Speicherdetektoren in der Wand der Speicherkammer ohne Beschichtung. Zusätzlich ist die Mindestenergie der UCN angegeben, die notwendig ist, um die Höhe des Detektors im Speichervolumen zu erreichen.

Detektor	Höhe	$E_{\min}$ / neV	$\bar{N}$ / cts/s	$\Delta\bar{N}$ / cts/s	Faktor
1	40 mm	4	162,9	1,8	8,4
2	240 mm	25	110,2	1,5	5,7
3	440 mm	45	67,0	1,2	3,5
4	640 mm	65	36,3	0,8	1,9
5	840 mm	89	19,3	0,6	1

Entsprechend der Erwartungen nimmt die Zählrate in den Detektoren mit ansteigender Höhe ab. Der unterste Detektor (Ch 1) zeigte eine mehr als achtfach höhere Zählrate als der oberste (Ch 5). Zum einfacheren Vergleich der Einflüsse der verschiedenen Beschichtungen auf die Zählraten werden die in der [Tabelle 5.2](#) angegebenen Faktoren in der folgenden Auswertung zur Normierung verwendet.



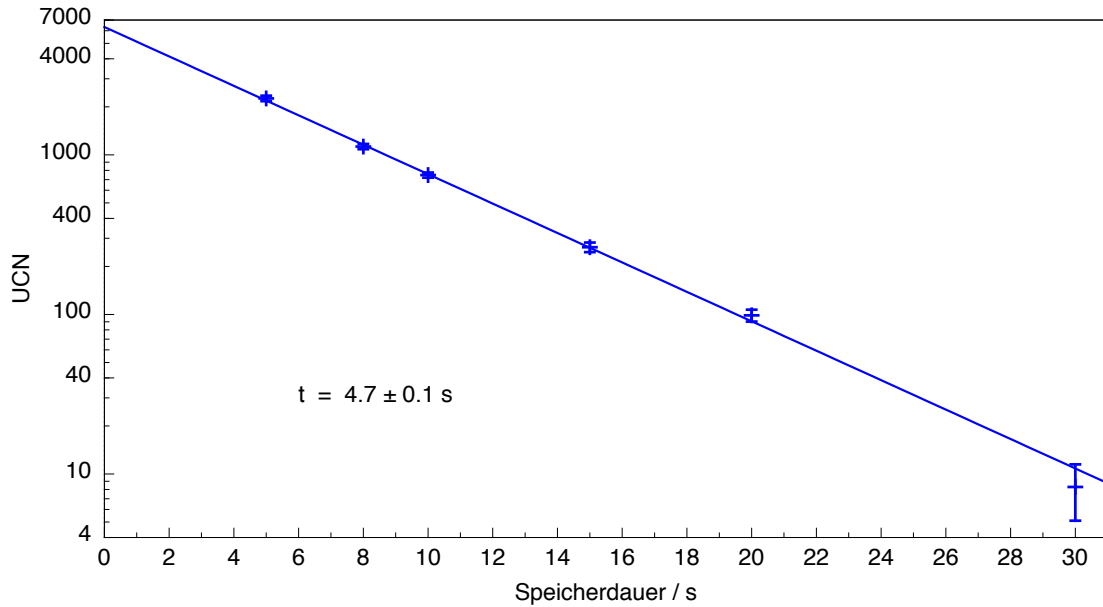
**Abbildung 5.1.:** Zählraten der fünf Speicherdetektoren während zwei 60-sekündiger Durchflussmessungen in der unbeschichteten Speicherkammer. Horizontale Linien: Mittlere Zählrate des jeweiligen Detektors. Entsprechend des Gradienten der UCN-Energie in der Speicherkammer nimmt die Zählrate von unten nach oben ab.

### 5.2.2. Speichergüte von Titan

Die systematischen Messungen in der unbeschichteten Speicherkammer erfolgten bei Temperaturen von ca.  $-180^\circ\text{C}$  direkt vor dem Beschichtungszyklus 6. Die Ergebnisse der 34 einzelnen Messungen mit Speicherdauern von  $t_{\text{hold}} = 5$  bis 30 s sind in [Abbildung 5.2](#) dargestellt. Mit Hilfe eines exponentiellen Fits wurden die Parameter der Speichercurve bestimmt, die Speicherzeit liegt bei  $\tau_{\text{Ti}} = (4,7 \pm 0,1)$  s. Im Vergleich dazu wurde bei der Strahlzeit 2013 eine Speicherzeit in Titan von  $\tau_{\text{Ti}} = (4,0 \pm 0,1)$  s gemessen. Die Erhöhung von knapp 20% muss auf eine Reduktion von Verlusten im Bereich des Verschluss' zurückgeführt werden. Obwohl für den Einbau der Speicherdetektoren die Speicherkammer beschädigt wurde und neue Schlitze entstanden sind, kann der verbesserte Verschlussmechanismus diese Verluste kompensieren.

Die dennoch sehr niedrige Speicherzeit zeigt, dass diese Wandbeschichtung einen effektiven Absorber für Neutronen darstellt. Wie geplant können daher energiereiche Neutronen, welche die aufgebrauchte Polymerbeschichtung durchdringen, aus dem Speichervolumen entfernt werden. PLONKA hatte Monte-Carlo-Simulationen mit den Randbedingungen des Experiments

2013 am TES-Strahl durchgeführt. Er berechnete eine Speicherzeit der UCN in der unbeschichteten Titan-Kammer von  $\tau_{\text{Ti}} = (3,9 \pm 0,1) \text{ s}$  [Plo13]. Die geringere Differenz ist auf die Unterschiede im Geschwindigkeitsspektrum zurückzuführen.



**Abbildung 5.2.:** Speicherkurve in der unbeschichteten Titankammer.

### 5.3. Ergebnisse der Speichermessungen in PFMO

Ein wichtiges Ziel der Strahlzeit war die Bestimmung der Speichereigenschaften von PFMO als Wandbeschichtung. Wie [Abschnitt 2.1.3](#) zu entnehmen ist, stellt die energieunabhängige Verlustwahrscheinlichkeit pro Wandstoß  $\eta$  ein Maß zur Charakterisierung der Speichergüte dar. Zur Überprüfung der Berechnung kann experimentell die Speicherzeit  $\tau_{\text{eff}}$  in dem betrachteten Medium bestimmt und mit bekannten Neutronenverlusten korrigiert werden.

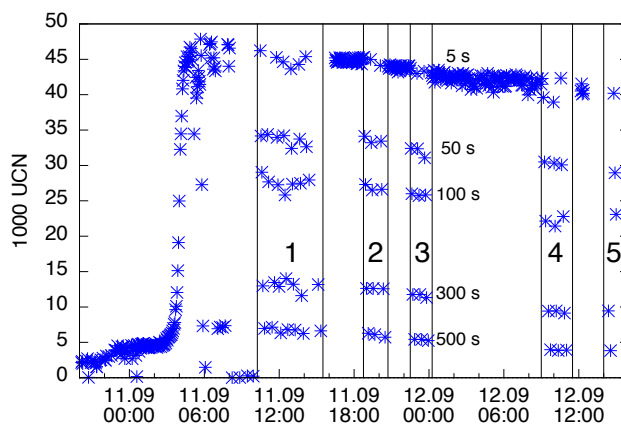
#### Vorbereitung der Daten

Während der Auslassdauer ( $t_{\text{emp}} = 60 \text{ s}$ ) der Neutronen zum Hauptdetektor wurde die Zählrate mit einer Auflösung von 200 ms erfasst. Anschließend erfolgte jeweils über  $t_{\text{bg}} = 60 \text{ s}$  (später reduziert auf 20 s) die Messung des Untergrundsignals im Hauptdetektor und die Berechnung der Untergrundrate. Diese lag anfangs bei  $N_{\text{bg}} = 1,2 \text{ UCN/s}$  und konnte durch eine optimierte Detektorabschirmung mit Cadmium auf eine akzeptable Rate von  $0,2 \text{ UCN/s}$  gesenkt werden. Die summierten Zählraten nach der Speicherung wurden um diesen Wert korrigiert.

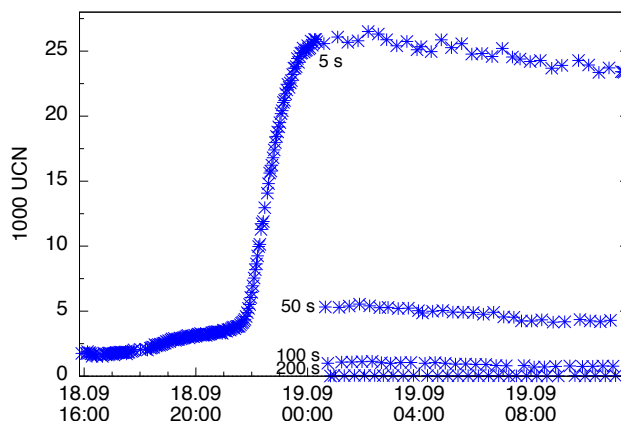
### 5.3.1. Ergebnisse

In den Abbildungen 5.3a und 5.3b sind beispielhaft für die Messzyklen 1 und 6 die zeitlichen Verläufe der UCN-Summen nach der Speicherung dargestellt. Im Anhang (ab Seite 155) befinden sich die entsprechenden Abbildungen aller Zyklen. Die einzelnen Niveaus der UCN-Summen korrespondieren mit den angegebenen Speicherdauern  $t_{\text{hold}}$ . Der zeitliche Verlauf beginnt mit dem Ende der Beschichtung und der anschließenden Erwärmung der Speicherkammer. Währenddessen erfolgten nur Messungen mit 5 s Speicherdauer. Alle Messreihen zeigten ein ähnliches Verhalten:

Nach einem mäßigen Anstieg der UCN-Zahl kam es zu einem deutlichen Sprung auf das 2 bis 33-fache (Zyklus 5 bzw. 9) der ursprünglichen Summe. Wie erwartet, zeigte diese Erhöhung der Neutronenzahl eindeutig die eingetretene Konditionierung des Polymers. Im weiteren Verlauf nahm die UCN-Zahl entweder wieder ab oder konnte auf konstantem Niveau gehalten werden. Wie in den beiden Abbildungen zu erkennen, ließ die absolute UCN-Summe direkt nach der Beschichtung (hier ca. 2200 UCN) noch keine Aussage über die Qualität der Beschichtung (also auch der Höhe der Speicherzeit) zu. Auch die relative Höhe des Anstiegs korrelierte nicht damit. Eine differenziertere Betrachtung erfolgt im nächsten Abschnitt. Der Zeitpunkt der Steigung war temperaturabhängig, die entsprechende Auswertung befindet sich in Abschnitt 5.3.4. Dort wird ebenfalls das unterschiedliche Verhalten der UCN-Summen nach der Konditionierung diskutiert.

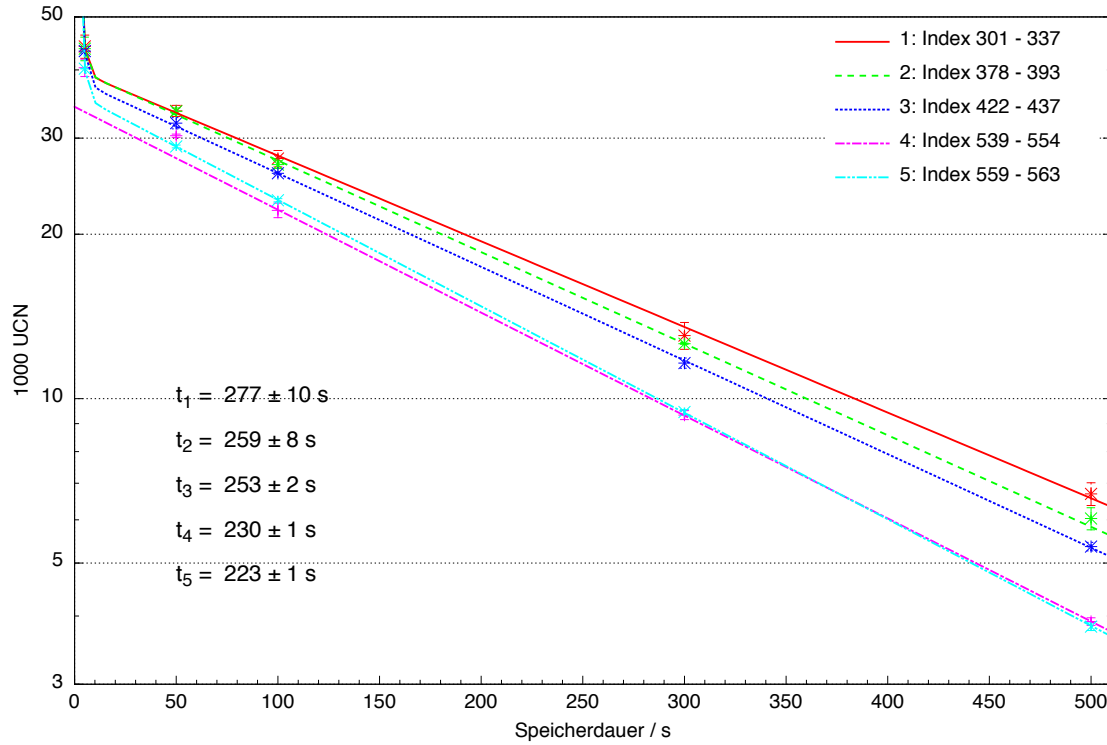


(a) Zyklus 1.



(b) Zyklus 6.

**Abbildung 5.3.:** Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen für zwei Zyklen mit unterschiedlich guter Beschichtungsqualität. In den nummerierten Bereichen wurde jeweils mit den angegebenen Speicherdauern die Speicherzeit bestimmt.



**Abbildung 5.4.:** Speicherkurven nach der ersten Beschichtung. Sie korrespondieren mit den nummerierten Bereichen in [Abbildung 5.3a](#).

### 5.3.2. Speicherzeiten

Zur Bestimmung der Speicherzeiten  $\tau_{\text{eff}}$  wurde für gleiche Speicherdauern das Mittel der untergrundkorrigierten UCN-Summen gegen die Speicherdauer aufgetragen. Auf Grund der unerwartet schlechten Speichergüte von PFMO wurde bei den Messungen keine Reinigungsdauer abgewartet. Somit befanden sich beim Auslass noch solche Neutronen im Behälter, deren Energie oberhalb des Wandpotentials lag. Nach nur 5 Sekunden Speicherdauer werden auch diese im Detektor nachgewiesen und verfälschen das Ergebnis. Der Verlauf kann daher nicht gemäß [Abschnitt 2.1.4](#) durch eine einfache Exponentialfunktion angefitet werden. Es muss eine Exponentialfunktion zweiter Ordnung mit einem Anteil für schnelle ( $\tau_{\text{fast}}$ ) und langsame ( $\tau_{\text{slow}}$ ) Neutronen definiert werden:

$$N(t) = A_1 \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{fast}}}\right) + A_2 \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{slow}}}\right). \quad (5.1)$$

Zur Untersuchung von Fluktuationen auf Grund einer Temperatur- oder Zeitabhängigkeit wurden die Datensätze in einzelne Bereiche geteilt und getrennt auf ihren exponentiellen Verlauf untersucht. In [Abbildung 5.4](#) sind die Speicherkurven für die in [Abbildung 5.3a](#) eingezeichneten Bereiche dargestellt. Die Speicherkurven der anderen Messzyklen befinden sich im

Anhang ab [Seite 155](#). Bei allen Exponentialfunktionen lag die erste Zeitkonstante zwischen  $\tau_{\text{fast}} = 1$  und 2,5 s, wobei der Fehler auf Grund des einzelnen Datenpunktes oft ein Vielfaches größer war. Für die Bewertung der Beschichtungsqualität und letztendliche Berechnung von  $\eta_{\text{PFMO}}$  spielt aber nur  $\tau_{\text{slow}}$  eine Rolle, somit ist  $\tau_{\text{eff}} = \tau_{\text{slow}}$ .

**Tabelle 5.3.:** Zweiter Zeitparameter  $\tau_{\text{slow}}$  der Exponentialfunktion (in Sekunden) der Speicherkurven für alle neun Beschichtungszyklen mit jeweils bis zu 5 Bereichen, in denen die Speicherzeit bestimmt wurde ( $\tau_1$  bis  $\tau_5$ ). Die drei Ergebnisse mit den größten Speicherzeiten sind markiert.

Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9
$\tau_1$	277 ± 9	176 ± 4	156 ± 2	266 ± 0	25 ± 1	32 ± 1	91 ± 2	168 ± 3	157 ± 5
$\tau_2$	259 ± 8	150 ± 1	154 ± 12	289 ± 0	62 ± 1	31 ± 1	109 ± 0	170 ± 7	153 ± 7
$\tau_3$	253 ± 2	146 ± 8		274 ± 5	270 ± 12	31 ± 1	82 ± 1	163 ± 10	147 ± 3
$\tau_4$	230 ± 1			270 ± 0	42 ± 12	29 ± 1		160 ± 13	146 ± 5
$\tau_5$	223 ± 1			278 ± 0		28 ± 1		165 ± 3	

In [Tabelle 5.3](#) sind für alle Messzyklen die Speicherzeiten der einzelnen Bereiche  $\tau_i$  angegeben: Die höchste Speicherzeit  $\tau = (289,2 \pm 0,1)$  s konnte nach der vierten Beschichtung erreicht werden. Ein annähernd gleicher Wert war bereits nach der ersten Beschichtung erzielt worden, im Rahmen des Fehlers sind beide Werte vergleichbar. Beide Ergebnisse reichen allerdings nicht annähernd an die im Bereich der Neutronenlebensdauer erwartete Speicherzeit heran. Während der Speicherung treten somit unerwartet hohe UCN-Verluste auf. Vor einer Diskussion sollen weitere Daten ausgewertet und Einflüsse betrachtet werden, die Hinweise auf die möglichen Ursachen liefern könnten.

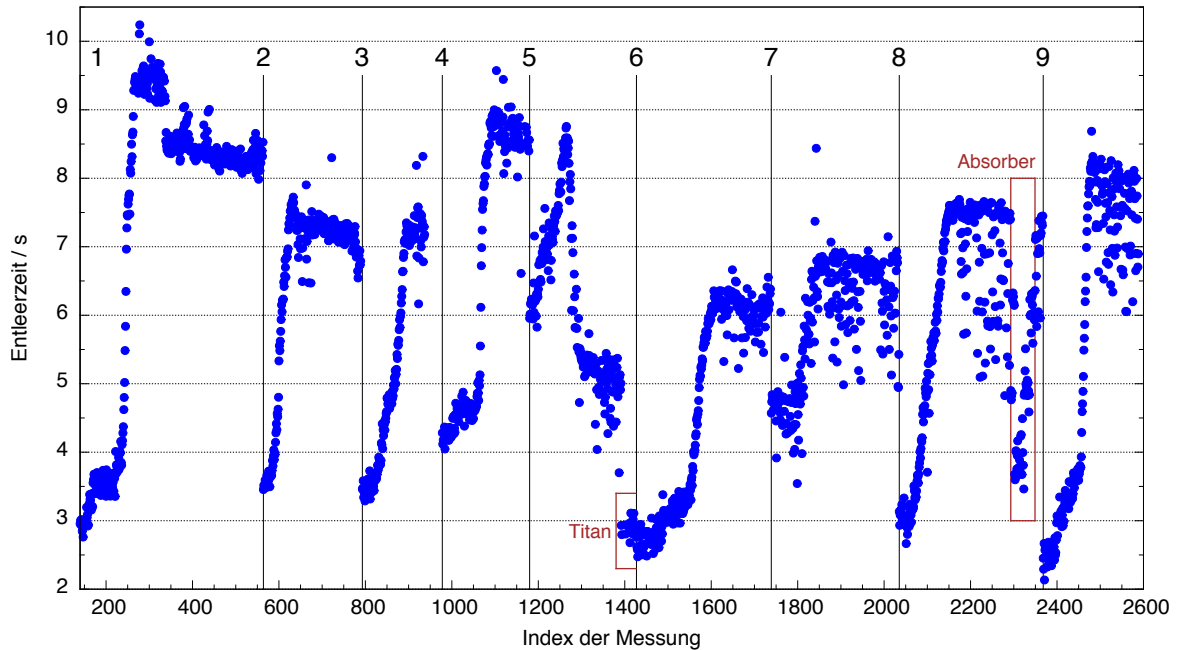
### 5.3.3. Entleerzeiten

Die Entleerzeit  $\tau_{\text{emp}}$  beschreibt die exponentiell abnehmende Zählrate der UCN im Hauptdetektor beim Auslass nach dem Öffnen des Speichervolumens gemäß

$$N(t) = N_0 \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{emp}}}\right). \quad (5.2)$$

Bei allen Speichermessungen konnte die jeweilige Entleerkurve sehr gut durch die Funktion beschrieben werden. Zwei Beispiele für direkt aufeinanderfolgende Messungen mit einer kurzen (Idx 1086; 5 s) und langen Speicherdauer (Idx 1087; 500 s) sind im Anhang auf [Seite 167](#) dargestellt. Bei beiden beträgt die Entleerzeit  $(8,50 \pm 0,01)$  s. Da sich während der Speicherung über lange Zeiträume das Spektrum zu geringeren Energien / Geschwindigkeiten verschiebt,

müsste dies mit einer Änderung der Entleerzeit einhergehen. Die Fit-Ergebnisse aller Entleerkurven sind in [Abbildung 5.5](#) grafisch dargestellt.



**Abbildung 5.5.:** Entleerzeiten nach den Speichermessungen. Es ist eine deutliche Abhängigkeit vom Zustand der Beschichtung zu erkennen. Während der Erwärmung zur Konditionierung steigt  $\tau_{\text{emp}}$  deutlich an.

Es ist zu beobachten:

- Während der Erwärmung der Speicherkammer zur Konditionierung des Polymers steigt die Entleerzeit kontinuierlich an. Vorher lag sie zwischen 3 und 4 s, nach der Konditionierung zwischen 6 und 9 s.
- Das Maximum der Entleerzeit wird gleichzeitig mit der maximalen UCN-Summe (nach 5 s Speicherdauer) erreicht.
- Die Entleerzeit fällt im zeitlichen Verlauf leicht ab und ist offensichtlich charakteristisch für die Qualität der Beschichtung. Je besser die Speichergüte des Polymers umso größer ist die bestimmte Entleerzeit.
- Nach dem Erwärmen über den Schmelzpunkt wurde die Speicherkammer wieder auf unter 190 °C abgekühlt. Der Verlauf von  $\tau_{\text{emp}}$  zeigt keine Temperaturabhängigkeit.
- Die Messungen ab Beschichtung 6 zeigen eine deutlich größere Streuung, wenn das Maximum erreicht ist. Diese Beobachtung könnte auf systematische Probleme am Verschlussmechanismus oder dem Neutronenleiter zum Detektor hinweisen.

Gemäß [Gleichung 2.22](#) gilt nach der Theorie für die Entleerzeit im idealisierten Fall

$$\tau_{\text{emp}} = \frac{4 \cdot V_{\text{stor}}}{A_{\text{port}} \cdot \bar{v}}. \quad (5.3)$$

Auf Grund der geringen Energie der Neutronen ist das Volumen  $V_{\text{stor}}$  allerdings durch deren maximale Steighöhe  $h_{\text{max}} = \frac{v^2}{2g}$  limitiert. Somit folgt mit dem Radius der Speicherkammer  $R$ , dem der Auslassöffnung  $r$  und der Erdbeschleunigung  $g$  für die Entleerzeit

$$\tau_{\text{emp}} = 2 \left( \frac{R}{r} \right)^2 \frac{\bar{v}}{g}. \quad (5.4)$$

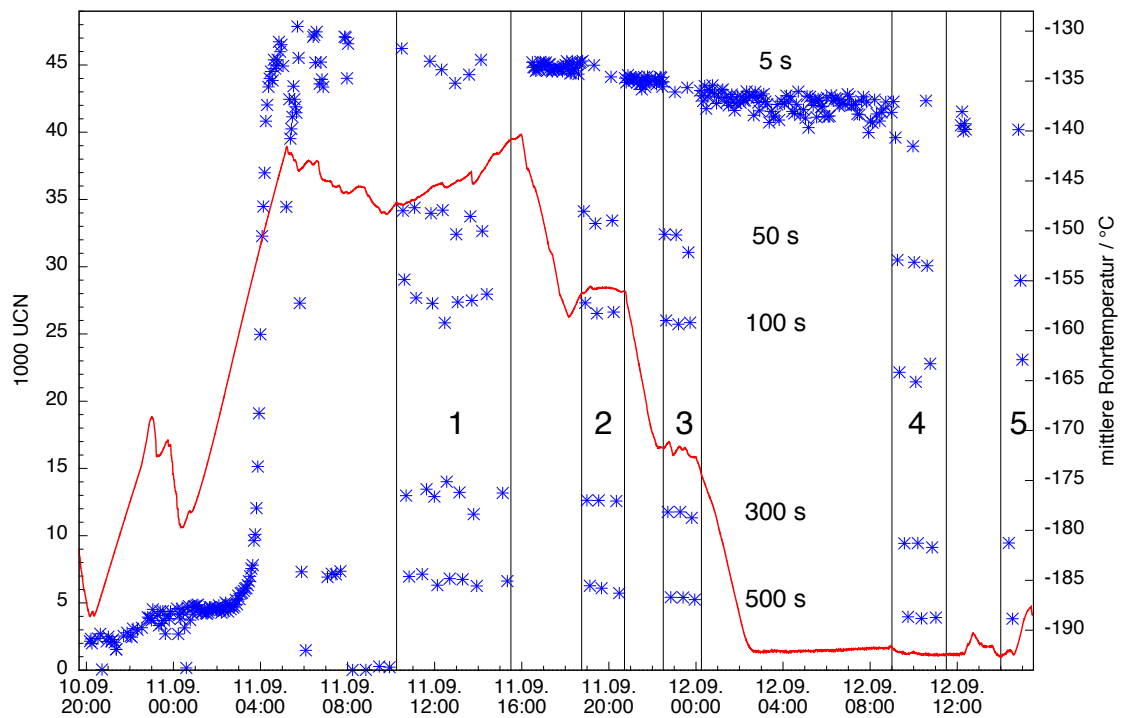
Mit der mittleren Geschwindigkeit auf Grund des Wandpotentials von PFMO ( $\bar{v} = 3,2 \text{ m/s}$ ) und den Maßen der Speicherkammer ergibt sich eine theoretische Entleerzeit von

$$\tau_{\text{emp}} = 7,9 \text{ s}. \quad (5.5)$$

Dieser Wert liegt im Bereich der bestimmten Entleerzeiten. Nach [Gleichung 5.4](#) könnte der Anstieg bei der Konditionierung auf eine höhere Geschwindigkeit der Neutronen zurückgeführt werden. Allerdings müsste auch die Abnahme der Neutronendichte im Speichervolumen mit steigender Höhe berücksichtigt werden. Weiterhin behindert der geöffnete Verschlusskonus den Entleerprozess und wird in den obigen, idealisierten Gleichungen nicht berücksichtigt. Eine einfache Berechnung der UCN-Geschwindigkeit beim Entleeren ist daher nicht möglich.

### 5.3.4. Temperaturabhängigkeit der Speichergüte

PFMO wurde wegen seines sehr niedrigen Schmelzpunktes als Speichermedium ausgewählt. Die Verluste durch unelastische Hochstreuung von UCN sind auf Grund der Temperaturabhängigkeit der Gitterschwingungen des Wandmaterials ebenfalls temperaturabhängig. Folglich sollte die Abnahme der Temperatur einen positiven Einfluss auf die Speichergüte haben. Bei sehr tiefen Temperaturen könnte allerdings durch ein Aufbrechen der Polymerschicht ein zusätzlicher Verlustkanal entstehen. Genaue Untersuchungen zur Temperaturabhängigkeit der Speicherzeit sind also bei diesem Speicherexperiment unverzichtbar. Die großen UCN-Verluste, die zu der schlechten Speicherzeit führen, können allerdings weder auf Hochstreuung noch auf Cracks zurückgeführt werden. Für erstes ist der Effekt um Größenordnungen zu stark, zweitens lässt er sich durch die Kamerabeobachtungen ausschließen. Eine deutliche Abhängigkeit von der Temperatur zeigt sich allerdings bei der Phasenumwandlung der amorphen Polymerschicht während der Konditionierung.

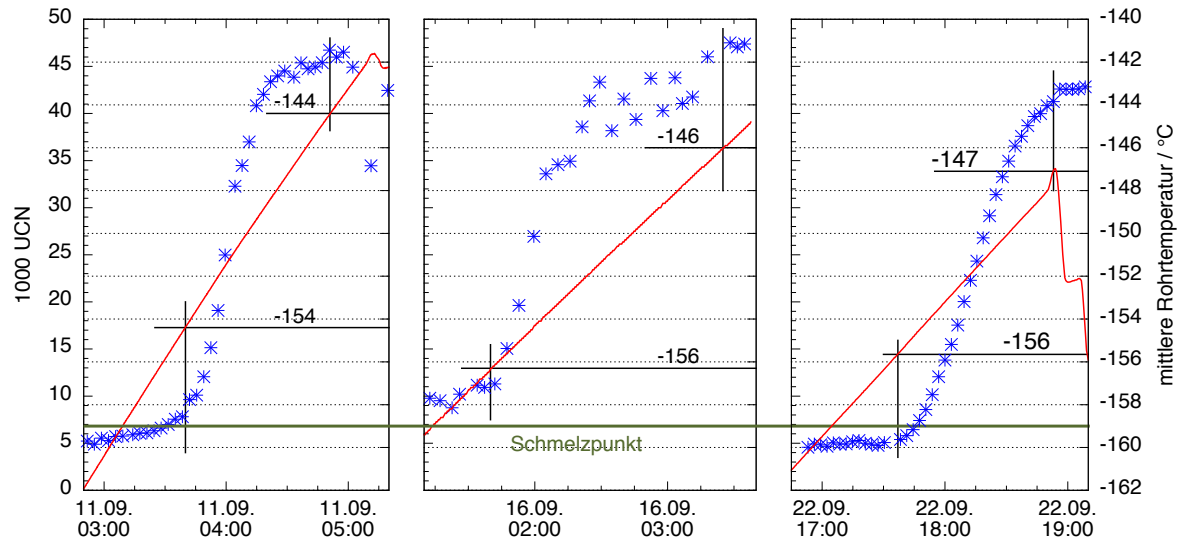


**Abbildung 5.6.:** Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen (Punkte) und Temperatur (Linie) nach der ersten Beschichtung. Bei der Konditionierung wirkte sich ein erneuter Temperaturabfall deutlich aus: Die Neutronenzahlen bei den 5s-Messungen blieben kurzzeitig konstant.

Die beiden Verläufe für die UCN-Summen und die Temperatur sind für die Messungen nach der ersten Beschichtung in [Abbildung 5.6](#) dargestellt. Die Neutronenzahlen der aufeinanderfolgenden 5s-Messungen dienten als Referenz. Zwar sind nach dieser kurzen Speicherdauer noch viele Neutronen mit einer Energie oberhalb des Wandpotentials in der Kammer. Eine verbesserte Beschichtung und somit höhere Speicherqualität wirkte sich allerdings auch auf diese Neutronen aus. In der Abbildung ist deutlich der Anstieg der UCN-Summe während der Erwärmung der Speicherkammer zu erkennen. Ein kurzzeitiges Absenken der Temperatur zeigte sich direkt in einer konstant bleibenden Zählrate. Nach Erreichen des Maximums wurde die Kühlung wieder aktiviert.

Während einer ersten Messreihe zur Bestimmung der Speicherzeit wurde die Temperatur für mehrere Messungen (Bereich 1) konstant gehalten. Anschließend wurde sie weiter abgesenkt und in den Bereichen 2, 3 und 4 bei jeweils konstanter Temperatur erneut die Speicherzeit bestimmt. Wie in [Tabelle 5.3](#) präsentiert, nimmt die Speicherdauer von der 1. bis zur 5. Messreihe ab. Es wird allerdings davon ausgegangen, dass diese Abnahme keine Folge der Temperaturveränderung ist. Zum einen ist in der oben dargestellten Messreihe die Temperatur bei der 4. und 5. Messreihe konstant, zum anderen ist deutlich die Abnahme der 5s-Zählrate

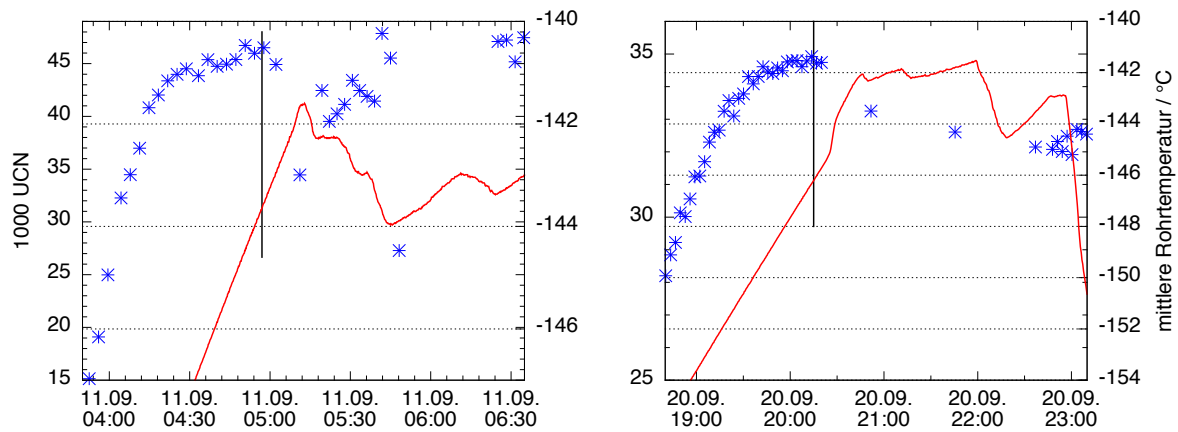
bei minimaler Temperatur erkennbar. Zieht man die weiteren Messzyklen und Temperaturverläufe zum Vergleich heran (dargestellt im Anhang ab Seite 155), zeigt sich deutlich, dass die Verschlechterung der Beschichtung temperaturunabhängig ist.



**Abbildung 5.7.:** Anstieg der UCN-Summen (Punkte) und Temperatur (Linie) im zeitlichen Verlauf während der Konditionierung in den Messzyklen 1, 4 und 9 (von links nach rechts). Für den jeweiligen Anfang und Ende des starken Anstiegs sind die korrespondierenden Temperaturen ermittelt. Sie liegen deutlich über dem bestimmten Schmelzpunkt von PFMO (horizontale Linie).

In [Abbildung 5.7](#) sind exemplarisch für die Messzyklen 1, 4 und 9 die UCN-Summen- und Temperaturverläufe<sup>1</sup> während der Konditionierung angegeben. Zu Beginn war die UCN-Summe mit ca. 5000 UCN nur etwa doppelt so groß wie die in der unbeschichteten Titankammer. Vor der Konditionierung werden die Neutronen in der amorphen Polymerschicht eingefangen und auf Grund der großen Stoßfrequenz innerhalb dieser Schicht schnell absorbiert. In den beiden besten Messzyklen (1 und 4) stieg die Summe durch die Konditionierung innerhalb etwa einer Stunde um das 8 bzw. 5-fache an. Erstaunlicherweise zeigte sich auch bei der Beschichtung 9 ein vergleichbar starker Anstieg, die Speicherzeit direkt nach der Konditionierung war hier allerdings 150 s geringer. Die Verluste in Zyklus 9 wirkten also erst bei längerer Speicherung und daher besonders auf die energiearmen Neutronen. Die Diskussion um die temperaturabhängigen Veränderungen des Polymers während der Konditionierung erfolgt im nächsten Abschnitt.

<sup>1</sup>Die im Folgenden angegebenen Temperaturen sind der Mittelwert der 13 Sensoren des Speicherrohrs. Die Standardabweichung betrug im normalen Betrieb unter 1 °C. Während starker Erwärmung oder Abkühlung kam es allerdings zu größeren Gradienten in der Speicherkammer, außerdem reagierte die Bodenplatte schneller auf eine Temperaturänderung. Details werden in der Analyse des Kühlsystems in [Abschnitt 6.2.3](#) diskutiert.



**Abbildung 5.8.:** Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen (Punkte) und Temperatur (Linie) nach der Konditionierung in den Zyklen 1 (links) und 8 (rechts). Deutlich ist der Abfall der Neutronenzahl direkt nach dem Maximum (rechts der vertikalen Linie) zu erkennen. In beiden Fällen stieg die mittlere Temperatur weiter an.

Ein weiterer Einfluss der Temperatur auf die Neutronenanzahl zeigt sich beispielsweise in den Messzyklen 1 und 8, wie in [Abbildung 5.8](#) dargestellt. In beiden Fällen kommt es nach dem Erreichen des UCN-Maximums bei weiterem Temperaturanstieg zu einem Abfall der UCN-Summe. Im Zyklus 1 steigt die Temperatur von ca.  $-144$  auf  $-142$  °C, im Zyklus 8 von  $-146$  auf  $-142$  °C an. Erst mit einer erneuten Abkühlung kann die UCN-Summe wieder konstant gehalten werden. Beide Ausschnitte erlauben einen weiteren Vergleich: Im ersten Zyklus wird direkt nach dem Temperaturanstieg auf über  $-142$  °C wieder abgekühlt, wodurch die Neutronenzahl wieder ansteigt. Die Temperatur lag für über 30 Minuten oberhalb von  $-142$  °C. Im 8. Zyklus wurde erst nach über zwei Stunden wieder deutlich abgekühlt, die UCN-Summe konnte hier nicht mehr das vorherige Maximum erreichen.

Zu welchen Effekten kann eine fortgesetzte Temperaturerhöhung nach der Phasenumwandlung des Polymers führen und diese Beobachtungen auslösen?

1. Abfließen
2. Verdampfen

Die schnelle Verdunstung von PFMO an der Atmosphäre bei Raumtemperatur weist zwar auf einen sehr hohen Dampfdruck hin. Allerdings sollte dieser knapp über dem Schmelzpunkt noch keine relevanten Auswirkungen haben. Es wurde zwar davon ausgegangen, dass sich die Viskosität des Polymers bereits wenige Grad Celsius oberhalb des Schmelzens reduziert und somit in Schlitze fließen kann. Damit dies zu den beobachteten Verlusten führt, müsste es allerdings rückstandsfrei von der Oberfläche abgelaufen sein. Zur Bestätigung wären weitere Untersuchungen dazu notwendig.

## 5.4. Beschichtung mit PFMO

Von Beginn des Projekts an stellte der Beschichtungsprozess eine der schwierigsten Herausforderungen des Experiments dar. Bei möglichst niedrigem Druck musste das Polymer mit einem Heliumgasstrom auf die zum Minimum abgekühlte Oberfläche möglichst gleichmäßig aufgetragen werden. Auf den Verlauf der Beschichtung konnte mit den Parametern

- eingesetzte Menge an PFMO (in ml),
- Gasstrom des Heliums (in sccm) und
- ggf. Erhitzen des PFMO in der Vorlage

Einfluss genommen werden. Die einzelnen Beschichtungen mit PFMO erfolgten nach dem in [Abschnitt 4.5.3](#) vorgestellten Protokoll. In [Tabelle 5.4](#) sind die wichtigsten Parameter der jeweiligen Beschichtung angegeben. Da mit den 10 mL der ersten Beschichtung und dem weiteren Auftragen im 2. und 3. Zyklus keine Verbesserung der Speicherzeit erreicht werden konnte, wurde davon ausgegangen, dass die Menge von Beginn an zu groß war. Tatsächlich zeigte sich in Zyklus 4, dass mit nur 2 mL eine leicht höhere Speicherzeit erzielt werden konnte. Eine weitere Reduktion auf 1 mL brachte keine weitere Steigerung, was allerdings auch an möglichen Verunreinigungen gelegen haben könnte (siehe nächster Abschnitt). Für Beschichtung 8 wurden daher genau die gleichen Parameter wie für Zyklus 4 gewählt, dennoch konnte die Speicherzeit nicht reproduziert werden. Auch eine erneute Reinigung der Speicherkammer durch Ausheizen und die Beschichtung mit 6 mL führten zu keiner besseren Speicherzeit. Eine Aussage zur optimalen Menge an PFMO ist auf Grundlage dieser Ergebnisse nicht möglich.

**Tabelle 5.4.:** Parameter der neun Beschichtungszyklen. Die beiden Beschichtungen mit den besten Speicherzeiten sind markiert. Im zweiten Zyklus ging vermutlich eine große Menge an PFMO durch einen undichten Stopfen verloren.

Nr.	Dauer / Min.	Menge / ml	He-Flow / sccm	Temp. / °C	Druck / mbar	geheizt?	$\tau_{\text{eff}}$ / s
<b>1</b>	105	10	50 → 800	-180	$1 \cdot 10^{-2}$	ja	$277 \pm 9$
<b>2</b>	52	(10)	300	-175	$3 \cdot 10^{-2}$	leicht	$176 \pm 4$
<b>3</b>	55	10	200 → 600	-191	$2 \cdot 10^{-3}$	leicht	$156 \pm 2$
<b>4</b>	24	2	500	-189	$4 \cdot 10^{-3}$	nein	$289 \pm 1$
<b>5</b>	20	0.5	200	-190	$1 \cdot 10^{-2}$	nein	$270 \pm 12$
<b>6</b>	49	1	250	-187	$1 \cdot 10^{-2}$	nein	$31 \pm 1$
<b>7</b>	47	1	200	-185	$5 \cdot 10^{-2}$	nein	$109 \pm 1$
<b>8</b>	17	2	500	-185	$4 \cdot 10^{-2}$	nein	$170 \pm 7$
<b>9</b>	63	6	500	-186	$1 \cdot 10^{-2}$	nein	$157 \pm 5$

Da sowohl das Vakuum in der Kammer, als auch äußere Faktoren wie die Reaktorleistung, über alle Messungen vergleichbar waren, müssen die unterschiedlichen Speicherzeiten auf verschieden gute Beschichtungen zurückgeführt werden. Für die Qualität der Beschichtung waren zusätzlich zu den einstellbaren Parametern weitere Faktoren entscheidend:

- Temperatur der Speicherkammer,
- Bewegungsmuster der Sprühdüse,
- Homogenität des Auftragens.

Allerdings gab es Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Parametern. So führte ein höherer Gasstrom zu einem Anstieg des Drucks, was wiederum einen deutlichen Temperaturanstieg zur Folge hatte. Mit maximaler Kühlleistung konnte dem entgegengewirkt werden. Das Erhitzen des Vorlagekolbens führte zwar zu einem erhöhten Polymergehalt im Gasstrom, wurde aber nach den ersten drei Beschichtungen eingestellt. Auf Grund der höheren Verdampfungsrate stieg die Geschwindigkeit auch deutlich an und erschwerte die Kontrolle des Beschichtungsprozesses.

#### 5.4.1. Optische Kontrolle des Beschichtungsvorgangs

Über die an der Sprühdüse montierte Kamera (siehe [Abschnitt 4.5.4](#)) konnte der Prozess des Auftragens direkt verfolgt werden. Auf Grund anfänglicher Probleme mit der Elektronik stand sie erst ab dem 14.09. zur Verfügung. Die Aufnahmen [5.9a](#) und [b](#) zeigen zwei Ausschnitte der unbeschichteten Oberfläche: Allgemein erschienen die Wände sehr dunkel, die Bodenplatte allerdings reflektierte das Licht stark, da sie nicht mit Titan überzogen war. Bis nach der 5. Beschichtung erschien die gesamte, innere Oberfläche wie auf dem Foto [5.9a](#). In der zweiten Hälfte der Strahlzeit wurden dann aber im oberen Drittel des Rohres helle, unregelmäßige Strukturen entdeckt (Foto [5.9b](#)). Unterhalb von 600 mm über der Bodenplatte war die Titanoberfläche weiterhin homogen. Es muss davon ausgegangen werden, dass es sich hierbei um Verunreinigungen handelte. Da die Vakuumkammer zuletzt vor der 4. Beschichtung belüftet worden war, müssen diese Partikel entweder mit dem Heliumgasjet eingebracht worden sein oder aus der Kammer selbst stammen. Beim Abbau des Experiments konnten allerdings keine Verunreinigungen mehr auf der Oberfläche identifiziert werden. Die Herkunft ist also unbekannt.

Während der Beschichtung legte sich eine trübe Schicht auf der Wand ab (Abb. [5.9c](#)), die das Licht stark streute. Bei jedem Beschichtungszyklus war die Oberfläche der Wände so



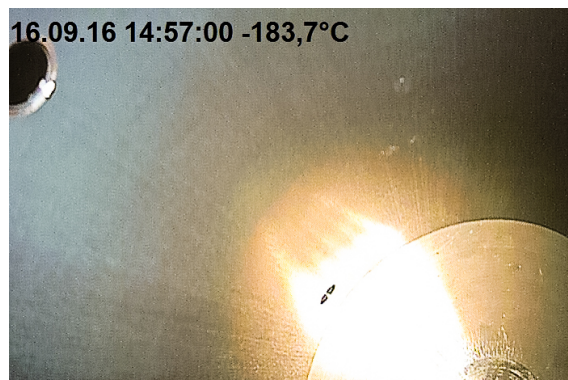
(a) Unbeschichtet, unteres Drittel und Bodenplatte, homogene Oberfläche.



(b) Unbeschichtet, oberes Drittel, unregelmäßige Strukturen sichtbar (möglicherw. Verschmutzung).



(c) Während der Beschichtung 9, PFMO bildet einen amorphen Überzug.



(d) Beschichtet, nach dem Temperieren; Oberfläche reflektiert.

**Abbildung 5.9.:** Fotoaufnahmen der Speicherinnenwand vor (a, b), während (c) und nach der Beschichtung (d).

homogen bedeckt, wie in dem Bild zu erkennen ist. Hier fällt allerdings auf, dass ein äußerer Rand auf der Bodenplatte noch nicht ausreichend beschichtet war. Ursache dafür war die Geometrie des Sprühkopfes (siehe [Abbildung 4.11b](#) auf [Seite 71](#)): Der seitliche Schlitz und die Bohrung am Boden führten vermutlich zu geringen Austrittswinkeln des Gasjets, die sich nur minimal überschneiden. Genau in diesem Bereich lag der äußere Bereich der Bodenplatte. Möglicherweise führte diese unvollständige Beschichtung zu den großen Neutronenverlusten und der schlechten Speicherzeit im hier diskutierten 9. Messzyklus.

Nach dem Erwärmen der Speicherkammer über den Schmelzpunkt und erneuter Abkühlung zeigte sich wieder eine homogene Oberfläche. Die starke Reflexion des Lichtes ([Abb. 5.9d](#)) konnte weder bei der Titanoberfläche noch beim amorphen Polymer beobachtet werden. Die Existenz der klaren und farblosen PFMO-Schicht konnte damit überprüft werden. In der [Abbildung 5.10](#) ist die Speicherinnenwand nach der dritten Beschichtung dargestellt. Die großen Mengen an verwendetem PFMO in den ersten drei Zyklen führten zu Schlieren auf der



**Abbildung 5.10.:**

Speicherinnenwand nach der 3. Beschichtung. Die große Menge an aufgetragenem Polymer führte zu Schlieren an den Wänden. Deutliche Reflexion des Verschlusskonus an der gefrorenen PFMO-Schicht.

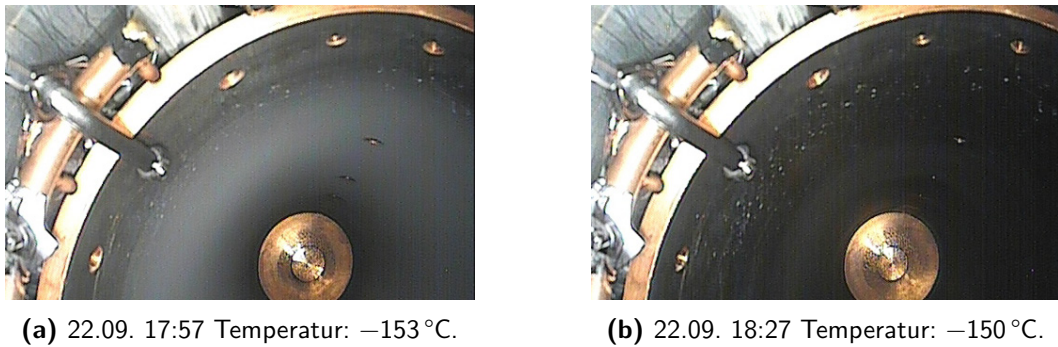
Oberfläche, die möglicherweise für die großen Neutronenverluste und schlechte Speicherzeit ( $\tau_{\text{eff}} = 156 \text{ s}$ ) verantwortlich waren. Außerdem erkennt man die sehr scharfe Reflexion des leicht geöffneten Verschlusskonus im unteren Bereich der Speicherkammer. Das gefrorene PFMO wirkte wie ein Spiegel.

**Tabelle 5.5.:** Anfangs- und Endtemperaturen des UCN-Summenanstiegs sowie Steigrade der Temperatur während der Polymer-Konditionierung. Die Beschichtungen einer ausgeheizten Speicherkammer (Nr. 1, 4, 6, 9) zeigen ein ähnliches Verhalten. Wurde die Oberfläche nicht auf diese Weise gereinigt, sind die Umwandlungsbereiche verschoben und teilweise größer.

Zyklus	Beginn / °C	Ende / °C	Differenz / °C	Steigrade / °C/h
1	-155	-144	10	8,7
2	-175	-149	26	6,6
3	-165	-155	10	6,8
4	-156	-146	10	6,2
5	-186	-154	32	6,5
6	-156	-144	12	6,0
7	-179	-154	25	6,3
8	-183	-149	34	6,5
9	-156	-147	9	6,4

#### 5.4.2. Konditionierung der Polymerbeschichtung

Die Konditionierung der Polymeroberfläche durch Erwärmen und erneutes Abkühlen konnte mit Hilfe der UCN-Summen nach jeweils 5 s Speicherung verfolgt werden. In [Abbildung 5.7](#) wurde bereits der Verlauf der UCN-Summen diskutiert. In der [Tabelle 5.5](#) sind jeweils die beiden Temperaturen zu Beginn und Ende des starken Anstiegs angegeben (Graphen im Anhang ab [Seite 164](#)). In diesem Bereich erfolgte eine Phasenänderung des Polymers, wodurch sich die Speichergüte stark erhöhte. Auffällig ist dabei, dass diese Bereiche stark schwankten.



**Abbildung 5.11.:** Fotoaufnahmen der Speicherinnenwand während des Phasenübergangs des PFMO. Zwischen  $-153^{\circ}\text{C}$  und  $-150^{\circ}\text{C}$  schmilzt die amorphe Beschichtung.

Die Beschichtungen 1, 4, 6 und 9 erfolgten jeweils nach Ausheizen der Speicherkammer. Bei den anderen Zyklen befanden sich noch Reste alter Beschichtungen auf der Oberfläche. Sowohl die Breite des Umwandlungsbereichs mit  $\approx 10^{\circ}\text{C}$  als auch die Lage bei den vier „frischen“ Beschichtungen war kongruent: Zwischen  $-156^{\circ}\text{C}$  und  $-145^{\circ}\text{C}$  wurde der Anstieg der UCN-Summe beobachtet. Mit Hilfe der Kamerabilder kann der Bereich der Phasenumwandlung genauer eingegrenzt werden. Das Foto in [Abbildung 5.11a](#) zeigt bei  $-153^{\circ}\text{C}$  Rohrtemperatur noch den trüben Überzug auf der Innenwand. Eine halbe Stunde später ( $-150^{\circ}\text{C}$ ) ist das PFMO bereits geschmolzen und nicht mehr sichtbar ([Abb. 5.11b](#)). Das Polymer auf der Bodenplatte ist in beiden Fotos bereits farblos, da es schon 1,5 Stunden vorher geschmolzen war. Wie man dem Verlauf der UCN-Summe in [Abbildung 5.7](#) (rechts) entnehmen kann, hatte das allein aber noch keine Auswirkungen auf die Anzahl der speicherbaren Neutronen.

Der Temperaturbereich der Phasenumwandlung und der Verbesserung der Speichergüte liegt deutlich oberhalb des gemessenen Schmelzpunktes von PFMO ( $-159^{\circ}\text{C}$ ). Wie bereits in [Abschnitt 3.1.1](#) diskutiert, ist die Angabe solch eines scharfen Phasenübergangs bei Polymeren auf Grund fehlender molekularer Änderungen schwierig. Die Ergebnisse hier zeigen, dass der tatsächliche Stockpunkt / Fließpunkt oberhalb des mittels DSC bestimmten „Schmelzpunktes“ liegt.

Bei den anderen fünf Zyklen begann deutlich früher der Anstieg der UCN-Summe. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass hier bereits eine Polymerschicht mit besserer Reflexionseigenschaft unter der amorphen Neubeschichtung vorlag. Sobald diese neue Schicht an Transparenz für Neutronen gewann, konnten sie besser gespeichert werden. Je größer dabei die zusätzlich aufgetragene Menge, umso später setzte die Verbesserung der Speichergüte ein (vgl. [Tabelle 5.4](#)).

## 5.5. Analyse der Polymerschicht mit den Speicherdetektoren

Eine absolute Messung der Schichtdicke im Speichervolumen konnte bisher nicht umgesetzt werden, die Gründe sind in [Abschnitt 4.5.4](#) dargestellt. Als Alternative sollte stattdessen die Durchlässigkeit der Polymerbeschichtung für UCN gemessen werden und eine qualitative Bewertung der einzelnen Beschichtungen erlauben. Im Speichervolumen waren fünf kleine  $\alpha$ -Detektoren vertikal verbaut, welche durch eine Beschichtung mit 200 nm Bor für UCN sensitiv waren. Die technischen Details und die Verarbeitung der Signale wurden in [Abschnitt 4.6.2](#) dargestellt.

Für den Vergleich der Beschichtungen wurden der 4., 7. und 8. Zyklus ausgewählt, da hier die gespeicherten UCN-Summen über einen längeren Zeitraum konstant verlaufen und somit ein Vergleich verschiedener Messungen möglich ist.

### 5.5.1. Probleme beim Einsatz während der Strahlzeit

#### Messfrequenz

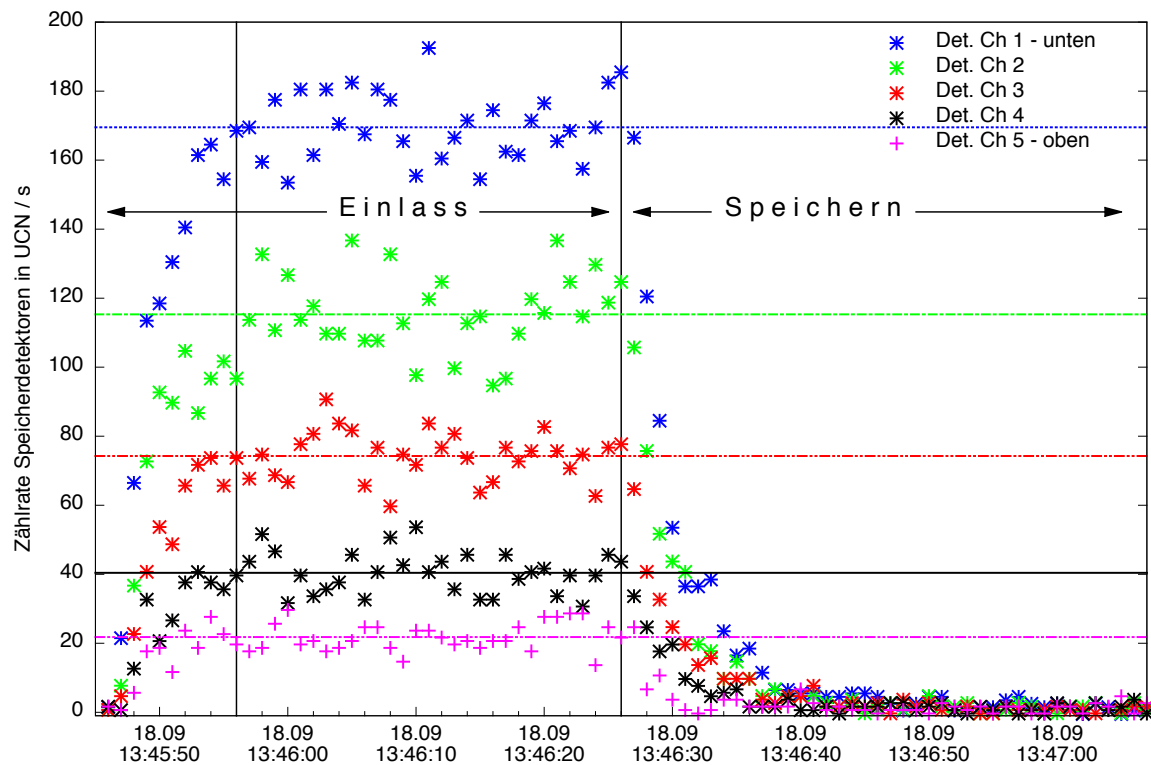
Geplant war, dass diese Monitordetektoren während aller Messungen der gesamten Strahlzeit eingesetzt werden und kontinuierlich mit einer Auflösung von 5 Hz die Signale erfassen. Für einen Messzyklus von typischerweise 24 Stunden bedeutete das einen sehr großen Datensatz mit 500.000 Zeiteinträgen für jeweils 5 Kanäle. Nach den ersten Messungen zeigte sich, dass die tatsächlich gemessene Zählrate häufig bei 1 cts/s lag und eine größere zeitliche Auflösung nicht notwendig war. Daher wurde die Erfassungsrate für die zukünftigen Messzyklen auf diese Frequenz gesenkt.

#### Störsignale / Rauschen

Das größte Problem mit diesen Detektoren waren Störsignale, welche meistens willkürlich über Zeiträume von wenigen Sekunden bis einige Stunden eine Datenaufnahme verhinderten. Diese Zählraten waren teilweise deutlich größer als 1000 cts/s und sowohl alle fünf Kanäle als auch nur einzelne konnten betroffen sein. Zum Beispiel wurden im 4. Messzyklus bei der Auswertung ein Störsignal entdeckt, welches über Stunden jede Minute für eine Dauer von 7 s auftrat. Eine Ursache konnte nicht gefunden werden. Eigene Geräte (z.B. Turbopumpen) konnten durch entsprechende Tests ausgeschlossen werden. Auch war keine offensichtliche Korrelation, beispielsweise mit der Kranbewegung in der Reaktorhalle, nachweisbar. Möglicherweise waren Spannungsquellen oder sonstige Geräte benachbarter Experimente die Quelle dieser Signale.

### 5.5.2. Reinigung und Untergrundkorrektur der Daten

Die erfassten Daten zeigten folgendes Muster: Ohne UCN liegt der Untergrund bei 1-2  $\text{cts/s}$ , befindet sich das Experiment im Füllen-Modus, steigt das Signal für die gesamte Einlassdauer (meistens  $t_{\text{fill}} = 40\text{s}$ ) auf eine konstante Zählrate zwischen ca. 50 bis 170  $\text{cts/s}$  (für Messungen ohne Polymerbeschichtung) an. In den daran anschließenden Sekunden ist der Einfluss der UCN-Speicherung erkennbar bis die Speicherkammer wieder entleert wurde. In [Abbildung 5.12](#) ist beispielhaft dieser Verlauf für eine Messung in der unbeschichteten Titan-speicherkammer dargestellt.



**Abbildung 5.12.:** Typisches Signal der fünf Speicherdetektoren während den Phasen „Einlass“ und „Speicherung“, hier von Messung 1398 in der unbeschichteten Speicherkammer. Der Bereich zwischen den vertikalen Balken wurde zur Bestimmung der mittleren Zählrate (horizontale Linien) während des Einlass' verwendet.

Die nach Datum gespeicherten Datensätze wurden entsprechend der neun Beschichtungszyklen in einzelne Dateien aufgeteilt. Für die Zyklen 1 bis 5 mussten die mit 5 Hz erfassten Signale sekundenweise zusammengefasst werden. Die einzelnen Datensätze wurde auf eindeutige Störsignale untersucht und diese in Abhängigkeit von der Höhe der UCN-Zählrate bis knapp über diesen Wert gelöscht. Teilweise mussten über große Zeiträume die Daten der betroffenen Kanäle komplett gelöscht werden.

Zur Untergrundkorrektur mussten aus den Datensätzen die höheren Zählraten beim Füllen der Kammer und anschließender Speicherung entfernt werden. Bei Messungen mit einer Speicherzeit  $\leq 55$  s war dieser entfernte Bereich 100 s breit, bei größeren Speicherzeiten 220 s. Anschließend wurden nochmals die deutlich über dem Untergrund liegenden Störsignale entfernt. Durch einem linearen Fit mit Steigung  $m = 0$  für jeden Kanal über den gesamten Datensatz eines Messzyklus' konnte der Untergrund bestimmt werden. Dieser betrug zwischen 1,3 und 2,0 cts/s, wobei der Fehler kleiner als 0,01 cts/s war.

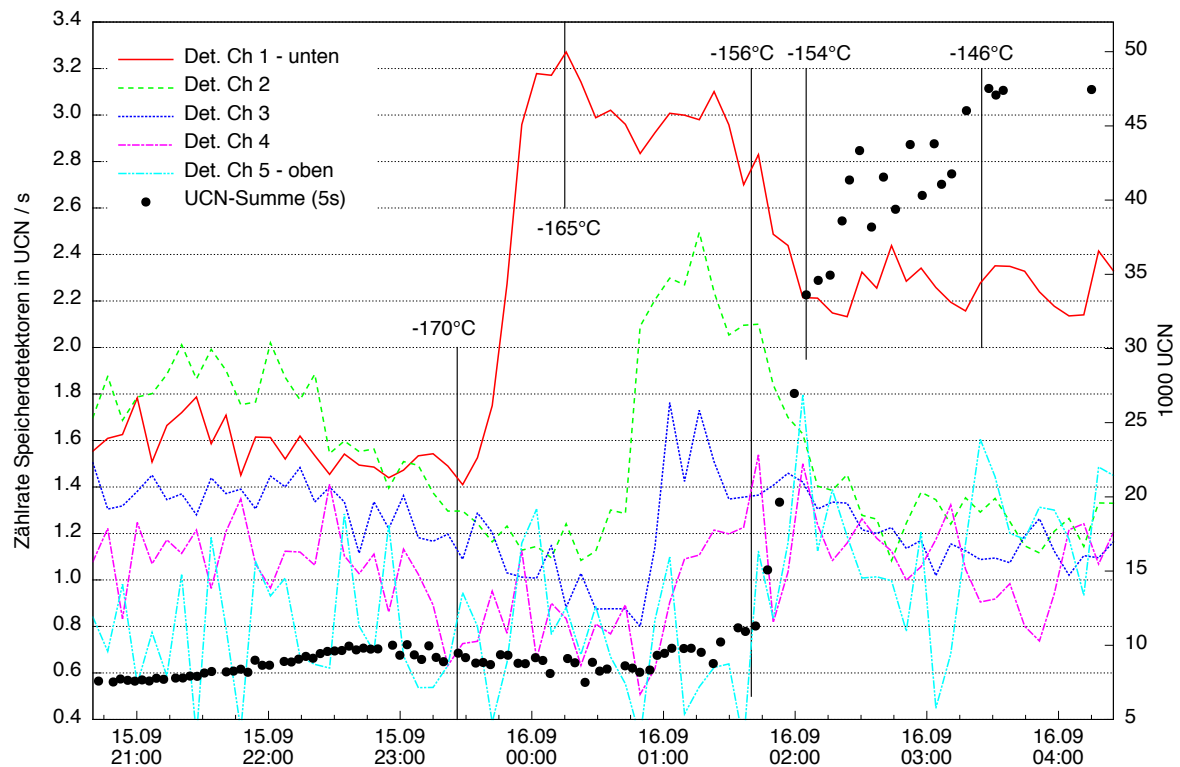
### 5.5.3. Bestimmung der Zählrate während des Einlass'

Wie in [Abbildung 5.12](#) zu erkennen, erreichte die Zählrate während des Einlass' nach ca. 5 s ein konstantes Niveau. Die Counts in einem Bereich von 10 bis 40 s nach dem Öffnen der Speicherkammer (Zeitstempel) wurden daher gemittelt und untergrundkorrigiert. Die Mittelwertbildung wurde einer Summation vorgezogen, da diese wegen bereits entfernter Störsignale zu falschen Werten geführt hätte. Als Ergebnis wurde eine Zählrate in  $\text{UCN}/\text{s}$  für jede einzelne Speichermessung und jeden Kanal erhalten, die mit den Ergebnissen der Messung in der unbeschichteten Speicherkammer (siehe [Abschnitt 5.2.1](#) und [Tabelle 5.2](#)) normiert wurde. Detektorspezifische Effekte sind somit eliminiert und Differenzen zwischen den Detektoren können also ausschließlich als Ursache verschiedener Beschichtungsqualitäten interpretiert werden (unter der Annahme eines konstanten Neutronenenergiespektrums während aller Messungen). Die während des Einlass' erfassten Neutronen stammten allerdings nicht nur aus dem zu speichernden Spektrum der UCN, da auch energiereichere das Speichervolumen erreichten, dann aber innerhalb weniger Sekunden von den Wänden absorbiert wurden oder die Kammer nach oben verließen. Die folgenden Daten können aber dennoch für eine kritische Bewertung der Beschichtungsqualität verwendet werden, da natürlich energiereichere UCN, die in den PiN-Dioden detektiert wurden, viel deutlicher eine durchlässige und somit schlechtere Wandbeschichtung aufzeigen.

### Vergleich verschiedener Beschichtungen

In [Abbildung 5.13](#) sind die Zählraten der fünf Kanäle während des Einlass' und die Neutronensummen nach der Speicherung (siehe [Abschnitt 5.3.1](#)) für die Messungen nach dem 4. Beschichtungszyklus (höchste erzielte Speicherzeit bei der gesamten Strahlzeit) dargestellt. Der besseren Übersichtlichkeit wegen wurde auf eine zusätzliche Darstellung der Temperaturkurve verzichtet. Die Temperaturen, bei denen signifikante Änderungen in den UCN-Zählraten

und Summen beobachtet werden konnten, sind angegeben. Unter der Annahme, dass die feste PFMO-Schicht keiner zeitabhängigen Modifikation unterliegt, ist in diesem Aggregatzustand nur die Temperatur für Veränderungen verantwortlich.

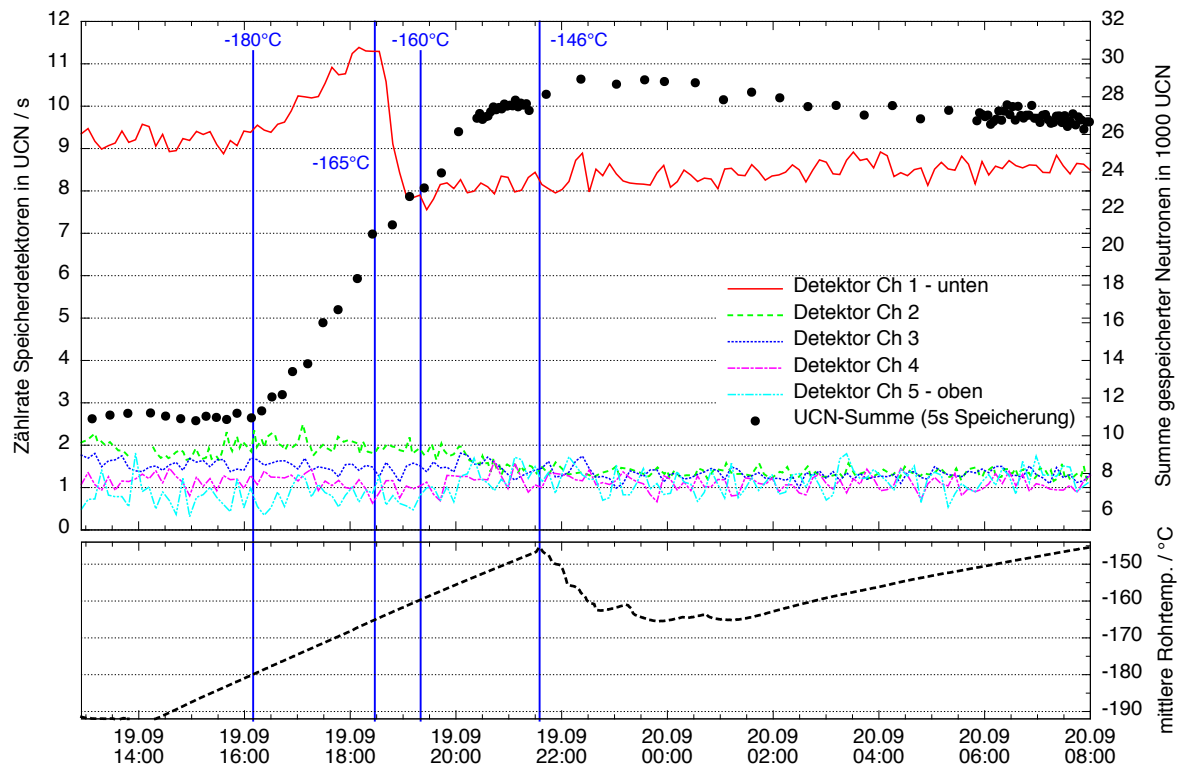


**Abbildung 5.13.:** Verlauf der Zählraten der fünf Speicherdetektoren und der nach 5 s Speicherung gezählten Neutronen während des 4. Zyklus. Die Temperaturen der markanten Punkte sind angegeben.

Direkt nach dem Beschichten lagen die Zählraten zwischen 0,6 und 1,6 cts/s, anschließend zeigte sich bei allen fünf Kanälen ein ähnlicher Verlauf: Während des Aufwärmens nahm die Zählrate langsam ab, die Durchlässigkeit der Polymerschicht wurde also geringer. Beim hier betrachteten Zyklus kam es bei 170 °C zu einem plötzlichen, starker Anstieg in Kanal 1 und mit zeitlicher Verzögerung auch in den übrigen Kanälen. Die fast doppelt so große Zählrate wies also auf eine deutliche Zunahme der Durchlässigkeit hin. Würde dieser Effekt durch eine geringere Reflektivität der PFMO-Schicht verursacht werden, müsste er mit der Abnahme der UCN-Summen (schwarze Punkte) einhergehen. In diesem Zeitraum war dies aber nicht zu beobachten. Wie im [Abschnitt 4.5.4](#) bereits diskutiert, setzte die Phasenumwandlung des Polymers auf der Bodenplatte bereits 1,5 Stunden vor dem auf den Rohrwänden ein. Diese Zunahme in allen Detektorkanälen kann daher durch eine ansteigende Neutronenreflektivität beim Stoß mit der Bodenplatte erklärt werden. Die Gesamtzahl der speicherbaren Neutronen ändert sich dadurch nicht: Statt am Boden werden sie jetzt an der noch amorphen Wand

absorbiert. Die zeitlichen Differenzen des Anstiegs bei den einzelnen Kanälen sind nicht auf einen Temperaturgradienten im Rohr während des Aufwärmens zurückzuführen. Mit Hilfe der Kamerabilder konnte beobachtet werden, dass dieses noch vollständig amorph bedeckt ist. Der Versatz lässt sich aber auf die unterschiedliche Sensitivität der Detektoren für das Energiespektrum zurückführen: Die Reflektivität der Bodenplatte muss wesentlich besser sein, damit höherenergetische Neutronen den oberen Detektor erreichen können.

Beim weiteren Erwärmen kann zeitgleich ab ca.  $-156\text{ °C}$  eine Abnahme der Zählrate in den Speicherdetektoren und eine Zunahme der Reflektivität (UCN-Summe) beobachtet werden. Die Verläufe der Signale hier erklären auch die zeitliche Breite des Reflektivitätsanstieges: Erst, wenn auch bei den oberen Detektoren die Zählrate wieder abgefallen ist, bleibt die UCN-Summe konstant. Wie in [Abschnitt 5.3.4](#) beschrieben, führt eine Abkühlung nach Erreichen des Neutronenmaximums nicht zu einer signifikanten Verbesserung der Speichereigenschaften. Dies wird durch die Speicherdetektoren bestätigt, die Zählrate bleibt im weiteren Verlauf konstant.



**Abbildung 5.14.:** Verlauf der Zählraten der fünf Speicherdetektoren und der nach 5 s Speicherung gezählten Neutronen während des 7. Zyklus. Unten: Temperaturverlauf während der Messreihe.

Zum Vergleich mit Zyklus 4 soll eine „schlechtere“ Beschichtung betrachtet werden, um zu prüfen, ob die größeren Neutronenverluste durch Unterschiede in den Zählraten erklärt werden

können. In [Abbildung 5.14](#) sind die analogen Zählraten und UCN-Summen für die Messungen nach Beschichtung 7 dargestellt. Außerdem ist die Temperaturkurve parallel gezeichnet. Die ermittelte Speicherzeit lag im 7. Messzyklus bei nur  $\tau_{\text{eff}} = 107\text{ s}$ . Die schlechtere Speichergüte des Polymers zeigt sich in der Abbildung deutlich in den höheren Zählraten der Speicherdetektoren. Während sie im 4. Zyklus zwischen  $0,6$  und  $2,4\text{ cts/s}$  lag, betrug sie hier im untersten Detektor (1) um die  $8\text{ cts/s}$ . Die Zählrate in diesem Detektor hatte wie in Zyklus 4 ein Maximum (hier bei  $11\text{ cts/s}$ ) mit einem starken Abfall im Anschluss auf  $8\text{ cts/s}$ . Bei diesem Messzyklus traten die Veränderungen in den Speicherdetektoren allerdings deutlich später, erst beim Anstieg der UCN-Summe auf. Die Ursache werden die Beschichtungsreste aus Zyklus 6 gewesen sein. Wie man im rechten Teil der Abbildung sieht, nahm die UCN-Summe stetig ab. Gleichzeitig war ein leichter Anstieg in der Zählrate des untersten Detektors zu beobachten, die Zählraten der andere Detektoren waren konstant. Betrachtet man den Temperaturverlauf, so zeigten sich auch hier Abweichungen vom Zyklus 4.

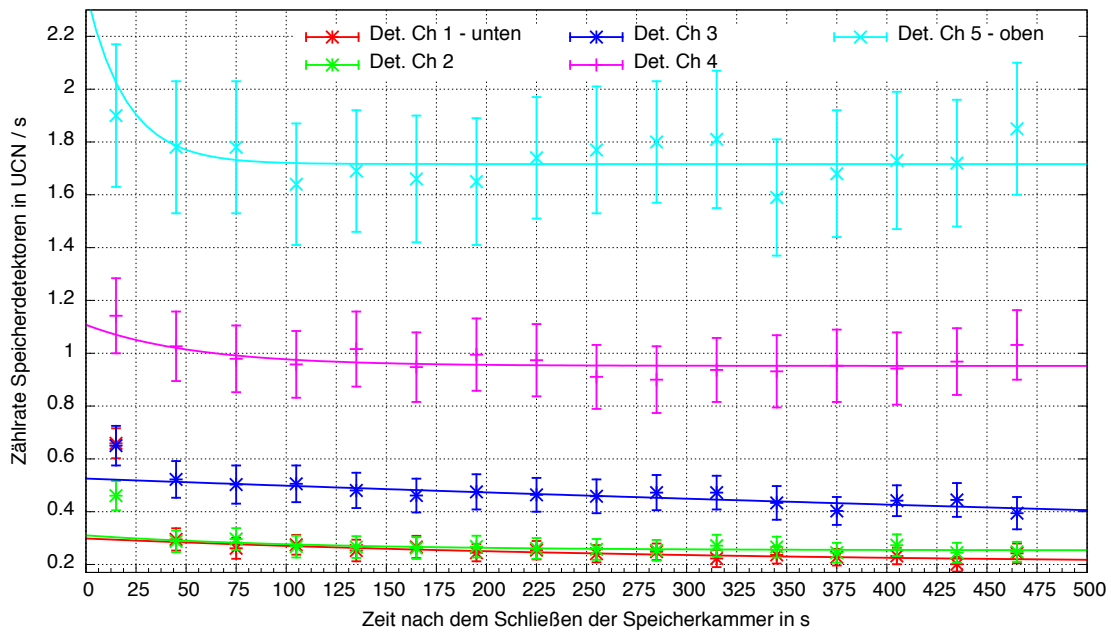
Eine interessante Temperaturabhängigkeit der Zählrate war in den Detektoren 2 bis 5 zu erkennen. Bis ca.  $-165\text{ °C}$  verlaufen sie auf konstantem Niveau zwischen  $0,8\text{ cts/s}$  (Detektor 5) und  $2\text{ cts/s}$  (Detektor 2). Bei weiterer Erwärmung nahmen in den zwei oberen Detektoren (4,5) die Zählraten zu und gleichzeitig in den Detektoren 1, 2 und 3 ab. Mit wieder einsetzen der Kühlung ab  $-146\text{ °C}$  wurde dieser Prozess gestoppt und die Zählraten verliefen wieder konstant. Die Ursache dieser Beobachtungen kann nur mit einem Abfließen des Polymers von den oberen Detektoren auf die unteren begründet werden.

Obwohl die Ergebnisse dieser Vergleiche beim Einlass des Speichervolumens nur für ein sehr breites Energiespektrum von Neutronen gelten, lässt sich eindeutig feststellen: Die anhand der Zählraten der Speicherdetektoren bewertete Durchlässigkeit der Polymerschicht unterschied sich bei den betrachteten Zyklen im Detektor 1 auf  $40\text{ mm}$  Höhe stark. In den anderen Detektoren lag sie bei beiden Zyklen nach der Konditionierung bei ca.  $1\text{ cts/s}$ .

#### 5.5.4. Bestimmung der Zählraten während der Speicherung

Der hauptsächliche Verwendungszweck der fünf Detektoren im Speicherrohr war die Kontrolle und der Vergleich verschiedener Beschichtungen. Bei einer ausreichend dicken Beschichtung, die keine UCN mehr durchlässt, sollte das Signal in den Detektoren auf ein konstantes Minimum entsprechend des Untergrundes abfallen.

Die Auswertung des Signals der Speicherung gestaltete sich auf Grund der deutlich geringeren Zählrate schwieriger als während des Einlass'. Die Zählraten wurden ab dem Verschließen der



**Abbildung 5.15.:** Gemittelte Zählraten der Speicherdetektoren während der Speicherung in Messzyklus 4. In den Kanälen 2, 4 und 5 wird während der Speicherung ein konstantes Niveau auf Höhe des Untergrunds erreicht. In den anderen beiden Kanälen ist auch nach 500s noch eine deutliche Abnahme der Zählraten zu erkennen. Einzige Ursache dafür kann eine erhöhte Durchlässigkeit der Polymerschicht sein. Die unterschiedlich großen Fehler resultieren aus der Normierung.

Speicherkammer für den Bereich entsprechend der Speicherdauer aus den kontinuierlichen Daten extrahiert. Für alle Indices mit Speicherdauern von  $t_{\text{hold}} \geq 100$  s wurde dann für jedes Zeitintervall (1 s, von 0 bis 100 s) der Mittelwert gebildet. Gleiches erfolgte für alle Messungen mit  $t_{\text{hold}} = 300$  s und 500 s. Die drei Datensätze wurden anschließend zusammengefügt und in Zeiteinheiten von 30 s zusammengefasst. Es erfolgte keine Untergrundkorrektur, da diese zu Werten unter 0 führte und somit eine exponentielle Anpassung verhinderte. Die Aussagekraft der Verläufe in den Abbildungen wird dadurch nicht reduziert. Zur Beschreibung reichte hier ein exponentieller Fit erster Ordnung, da dieser erst ab dem zweiten „Bin“ (31 bis 59 s) angelegt wurde und die schnellen Neutronen somit ausgeschlossen wurden.

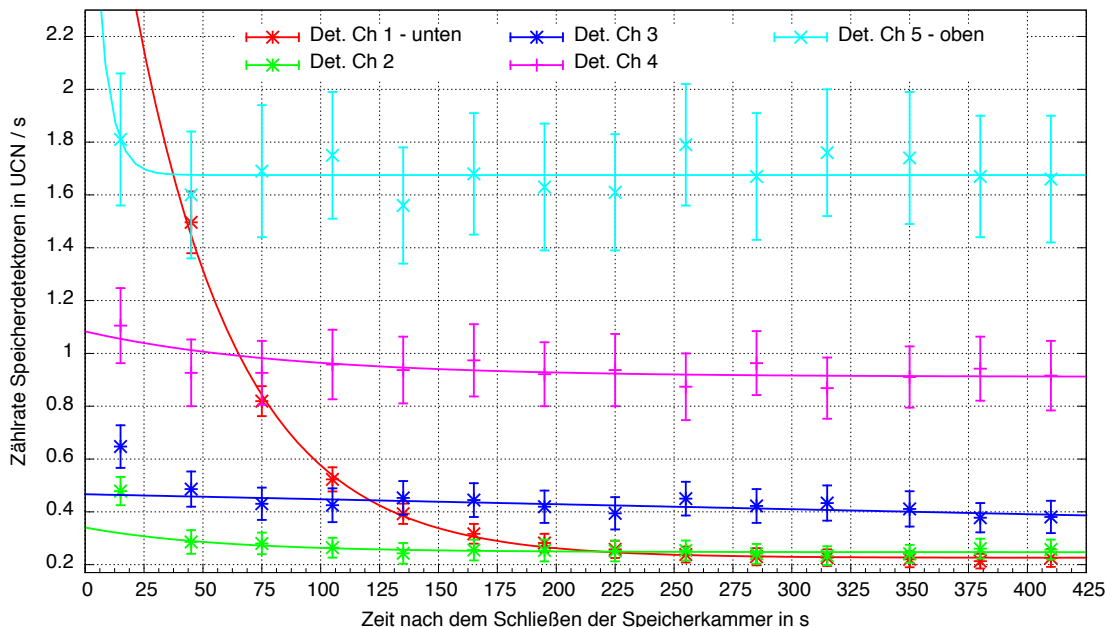
In [Abbildung 5.15](#) sind die gemäß [Abschnitt 5.2](#) normierten Verläufe der fünf Zählraten dargestellt. Die ermittelten Parameter für Zeitkonstante  $t_i$  und den Untergrund  $B_i$  sind in [Tabelle 5.6](#) angegeben. Bei den Messungen ohne Beschichtung (vgl. [Abbildung 5.12](#)) fielen die Zählraten sehr schnell auf den Untergrund ab. In Messzyklus 4 war dies auch in den Verläufen der Kanäle 2, 4 und 5 zu beobachten. Alle drei Kanäle erreichten (nach 320 s, 250 s bzw. 180 s) im betrachteten Zeitraum von 500 s Speicherdauer den Untergrund  $B_i$ . Dies bedeutet, dass beispielsweise auf Höhe des obersten Detektors (Kanal 5) nach 180 s keine Neutronen mehr eine ausreichend hohe Energie besaßen, um die Polymerwand transmittieren zu können.

Bei den tieferen Detektoren 4 und 2 ist dies erst später der Fall. In den Kanälen 1 und 3 war auch nach 500s immer noch eine abnehmende Zählrate über dem Untergrund messbar. Auf diesen beiden Detektorflächen war die PFMO-Schicht somit durchlässiger für UCN als bei den anderen drei, entweder auf Grund einer zu geringen Schichtdicke oder auf Grund höherer Energie der Neutronen. Da aber bereits in Detektor 2 auf 240 mm Höhe ein konstantes Niveau erreicht war und die mittlere Energie der UCN nach oben abnimmt, ist davon auszugehen, dass die Schicht auf Detektor 3 dünner war.

**Tabelle 5.6.:** Parameter der exponentiellen Fits der Speicherdetektoren in Messzyklus 4.

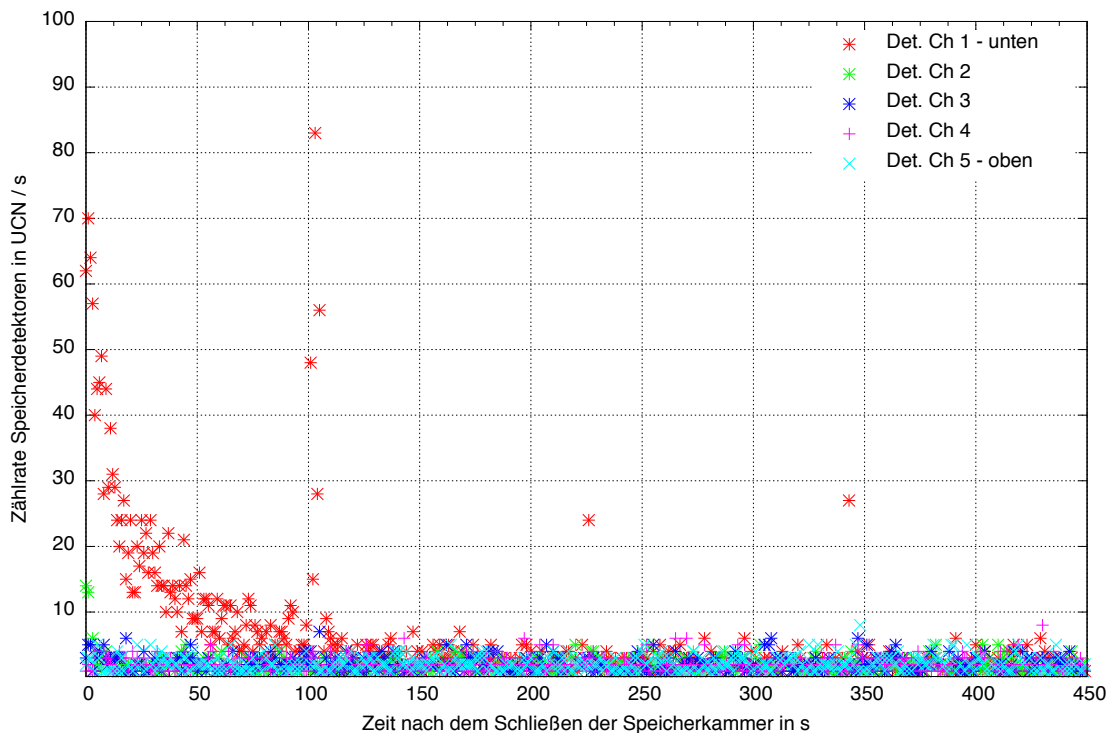
Det.	$t_i / s$	$B_i / \text{cts/s}$
1	$302,6 \pm 16,9$	$0,20 \pm 0,04$
2	$112,6 \pm 0,2$	$0,25 \pm 0,02$
3	$294,1 \pm 0,3$	$0,40 \pm 0,02$
4	$50,6 \pm 0,7$	$0,95 \pm 0,02$
5	$20,1 \pm 1,4$	$1,72 \pm 0,02$

Die Bestimmung der Faktoren zur Normierung erfolgte in der unbeschichteten Titankammer bei einer Durchflussmessung, wobei auch UCN mit deutlich zu hoher Energie erfasst wurde. Die absolute Lage der fünf Zählraten ist daher nur bedingt für einen Vergleich geeignet. Die viel bedeutsamere Aussage ist daher, dass in den Detektoren 2, 4 und 5 nach den o.g. Zeiten keine Neutronen oberhalb des Untergrundes gezählt werden konnten.



**Abbildung 5.16.:** Gemittelte Zählraten der Speicherdetektoren während der Speicherung in Messzyklus 7. Im Gegensatz zum Zyklus 4 sind die Zählraten in Kanal 1 zu Beginn der Speicherung deutlich größer. Unter der Annahme eines konstanten Neutronenspektrums zeigt der Verlauf, dass die Beschichtung auf Detektor 1 deutlich schlechter war. Alle anderen vier Kanäle zeigen einen zu Zyklus 4 ähnlichen Verlauf.

Zum Vergleich mit Messzyklus 4 wurde hier ebenfalls Zyklus 7 genauer betrachtet. In [Abbildung 5.16](#) ist der entsprechende Verlauf der Zählraten dargestellt. Auf Grund der deutlich höheren Neutronenverluste wurde hier maximal 450s gespeichert. Für einen direkten Vergleich sind beide Abbildungen im Anhang auf [Seite 168](#) nebeneinander dargestellt. Bei der schlechteren Beschichtung zeigte sich als einziger großer Unterschied eine deutlich höhere Zählrate zu Beginn der Speichermessungen in Detektor 1 am Boden der Speicherkammer. Innerhalb von 300s fiel diese dann auf ein ähnliches Niveau wie bei Zyklus 4 ab. In den Detektoren 2, 4 und 5 wurden konstante, mit Zyklus 4 identische Level erreicht. Detektor 3 zeigte ein ähnliches Verhalten, hier wurde im betrachteten Zeitintervall bis 450s kein konstantes Niveau erreicht. Die minimalen Unterschiede zwischen den einzelnen Detektoren lagen im Rahmen der Toleranz der großen Fehler und erlauben daher keinen quantitativen Vergleich.



**Abbildung 5.17.:** Zählratenverlauf der fünf Speicherdetektoren von Messung 1927. Bei 100s ist deutlich ein Peak zu erkennen, der auf UCN-Transmission durch die Polymerschicht auf dem Detektor hinweist.

Eine weitere Beobachtung in Messung 1927 im Zyklus 7 ist in [Abbildung 5.17](#) dargestellt. Bei mehreren Messungen konnten in Kanal 1 deutliche Signalpeaks bei langen Speicherdauern beobachtet werden, wie hier im Bereich von 100s. Sie sind untypisch für die bereits diskutierten, elektronischen Störsignale. Daher kann davon ausgegangen werden, dass hier tatsächlich Neutronen erfasst wurden. Die Polymerschicht auf dem Detektor muss für wenige Sekunden durchlässiger für Neutronen gewesen sein und somit einer zeitlichen Modifikation unterlegen

haben. Zu diesem Zeitpunkt lag die Rohrtemperatur auf Höhe des betroffenen Detektors bei  $-158\text{ }^\circ\text{C}$  und stieg weiter an. Wie in [Abschnitt 5.3.4](#) diskutiert, liegt hier die Grenze des Umwandlungsbereiches des Polymers. Es kann also durch minimale Bewegung des geschmolzenen PFMO zu der beobachteten Änderung der Zählrate gekommen sein.

Die Ergebnisse der zwei betrachteten Messzyklen zeigen eindeutig, dass die Detektoren für Unterschiede in den Beschichtungen sensitiv sind. Das Erreichen einer konstanten Zählrate auf Höhe des Untergrunds kann aber auch darauf hinweisen, dass keine Neutronenverluste durch die Polymerschicht (an der Stelle des Detektors) erfolgt sind und somit eine andere Ursache haben. Der Nutzen der Speicherdetektoren wird im folgenden Kapitel [6.2.4](#) diskutiert.

## 5.6. Ergebnisse der Speichermessungen mit Absorber

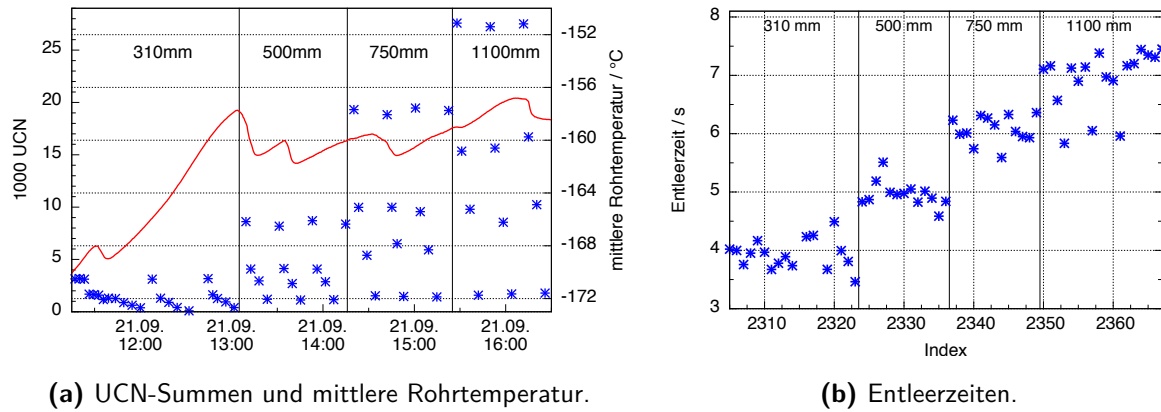
Im Messzyklus 8 wurde der  $^{10}\text{B}$ -Absorber eingesetzt und die Speichereigenschaften in Abhängigkeit der Neutronenenergie überprüft. Es konnten die größten Speicherzeiten aus den Zyklen 1 und 4 nicht mehr erreicht werden. Die Messungen direkt nach Beschichtung 8 ergaben nur  $\tau_{\text{eff}} = (165 \pm 4)\text{ s}$ . Der Einfluss des Absorbers kann aber trotzdem gezeigt werden.

**Tabelle 5.7.:** Speicherzeiten  $\tau$  und Entleerzeiten  $\tau_{\text{emp}}$  der Messungen mit dem  $^{10}\text{B}$ -Absorber in verschiedenen Höhen.

Höhe / mm	Energie / neV	Volumen / L	$\tau_{\text{eff}} / \text{s}$	$\bar{\tau}_{\text{emp}} / \text{s}$	Index
ohne	96	41,5	$165 \pm 3$	$6,8 \pm 0,8$	2264 - 2277
310	32	12,9	$177 \pm 9$	$3,9 \pm 0,3$	2305 - 2323
500	51	31,2	$168 \pm 1$	$5,0 \pm 0,2$	2324 - 2336
750	72	20,8	$146 \pm 2$	$6,1 \pm 0,2$	2337 - 2349
1100	96	41,5	$116 \pm 6$	$6,9 \pm 0,5$	2350 - 2367

Für die Messungen wurde die Absorberplatte auf drei Höhen (310, 500 und 750 mm) über dem Boden in das Speichervolumen abgesenkt und dort auch während der Speichermessungen belassen. Dadurch wurde nicht nur das Energiespektrum beschnitten, sondern auch das Volumen der Speicherkammer verkleinert. Die korrelierenden Energien und Volumina sind in [Tabelle 5.7](#) angegeben. Für jede Höhe wurde mehrfach bei verschiedenen Speicherdauern (5 bis 500 s) gemessen, der zeitliche Verlauf ist in [Abbildung 5.18a](#) dargestellt. Die Temperatur wurde dabei auf ca.  $-160\text{ }^\circ\text{C}$  angehoben und in diesem Bereich konstant gehalten. Analog zur

bisherigen Auswertung wurden die UCN-Summen für jede Absorberhöhe mit einem exponentiellen Fit zweiter Ordnung angepasst, um den Einfluss der quasi-gespeicherten Neutronen zu eliminieren. Die Speichercurven und Fit-Ergebnisse finden sich in [Abbildung 5.19](#) bzw. ebenfalls in der Tabelle. Zum Vergleich sind dort außerdem die Parameter und Speicherkurve der letzten Speichermessungen vor dem Einbau des Absorbers angegeben.

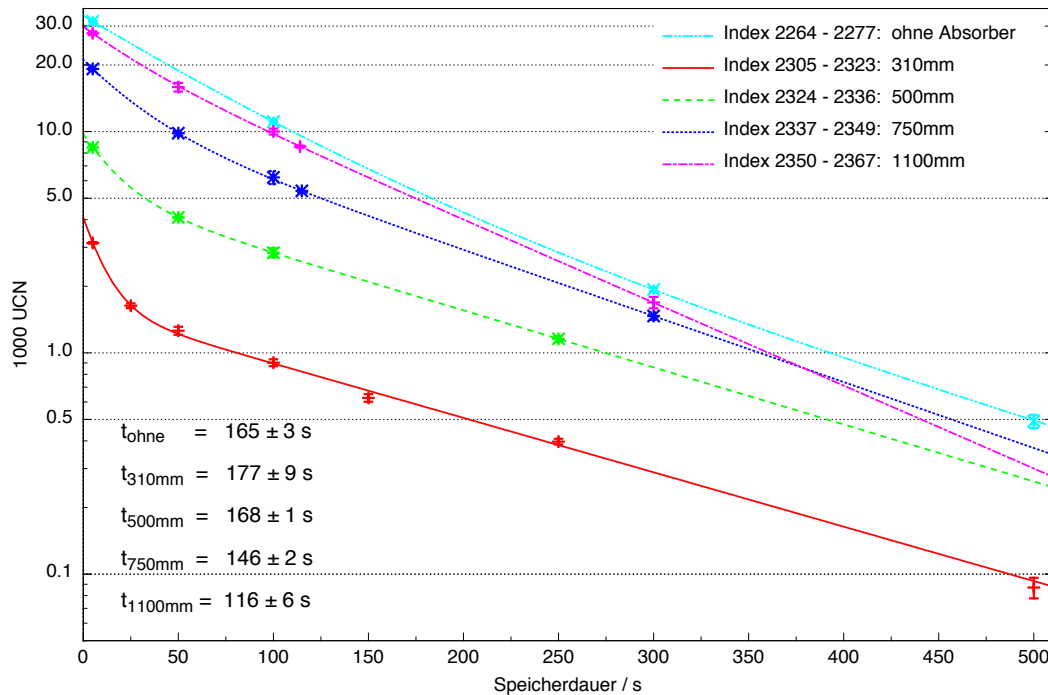


**Abbildung 5.18.:** UCN-Speichersummen und Entleerzeiten bei den vier Positionen des Absorbers

### Speicherzeiten

Wie erwartet, führt der Beschnitt des UCN-Spektrums insgesamt zu einer kleineren Zahl an speicherbaren Neutronen. Wie man in [Abbildung 5.19](#) erkennen kann, zeigt die Speicherkurve für 310 mm einen sehr starken Abfall innerhalb der ersten Minute. Da mit zunehmender Absorberhöhe der relative Anteil an Neutronen oberhalb des Energielimits abnimmt, wird die Kurve flacher. Die Speicherzeit bei der geringsten Energie liegt mit  $\tau_{\text{eff}} = (177 \pm 9) \text{ s}$  deutlich über dem Mittelwert der vorher bestimmten Speicherzeit nach Beschichtung 8 ohne den eingebauten Absorber. Mit zunehmender Neutronenenergie nimmt die Speicherzeit wieder ab. Die anschließende Messung mit dem vollständig entfernten Absorber ( $\rightarrow$  1100 mm Höhe) ergibt sogar nur eine Speicherzeit von  $\tau_{\text{eff}} = (116 \pm 6) \text{ s}$ , und somit ca. 40 s kleiner als vor der Absorber-Messreihe. Da das effektive Potential des PFMO mit  $V_{\text{eff}} = 96 \text{ neV}$  kleiner als das gravimetrische Potential der Speicherkammer ist, sollte es für die Messungen keinen Unterschied machen, ob sich der Absorber auf 1100 mm über dem Boden befindet oder gar nicht installiert ist. Grundsätzlich muss die kurzzeitige Temperaturzunahme auf Werte oberhalb des Schmelzpunktes von PFMO (vgl. [Abbildung 5.18a](#)) als Ursache diskutiert werden. Allerdings konnte bei den in [Abschnitt 5.3.4](#) betrachteten Beispielen eine Abnahme der Neutronenzahlen erst bei noch höheren Temperaturen beobachtet werden. Es wird daher davon

ausgegangen, dass die hier beobachtete Reduktion die gleiche und oben diskutierte Ursache hat, wie in den vorangegangenen Messungen.



**Abbildung 5.19.:** Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen (Punkte) und Temperatur (Linie) im 8. Messzyklus bei verschiedenen Absorberhöhen. Die Messung ohne Absorber wurde vor dieser Messreihe aufgenommen und dient zum Vergleich.

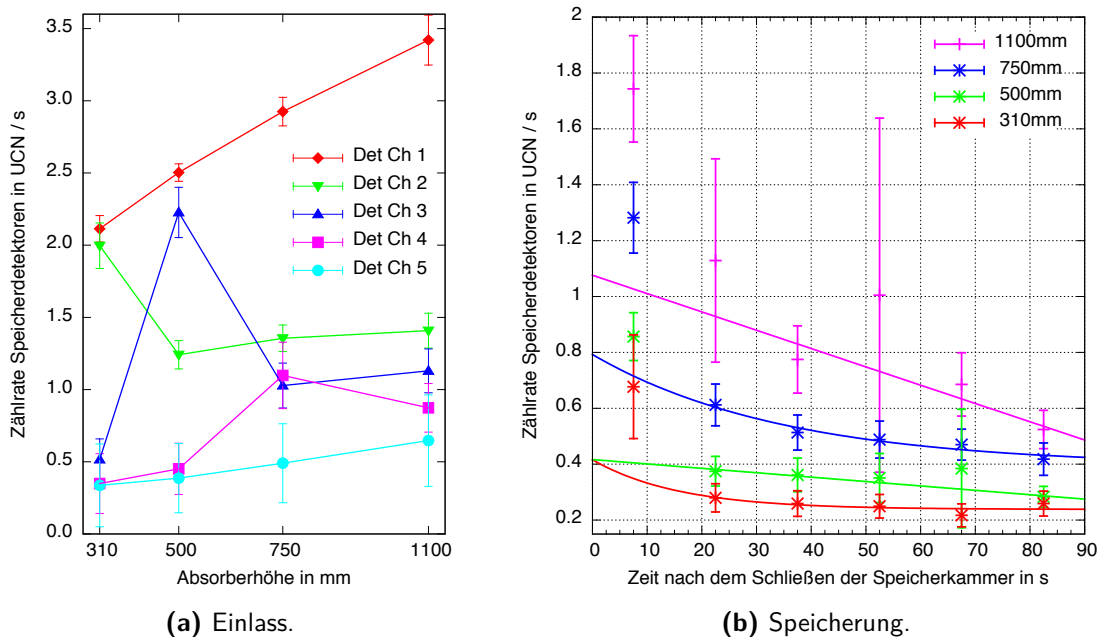
### Entleerzeiten

Analog zu den Speichermessungen ohne Energievariation wurden auch hier die Entleerzeiten bestimmt. In [Abbildung 5.18b](#) ist der Verlauf dargestellt, die Mittelwerte jeder Absorberhöhe sind in der Tabelle angegeben. Mit zunehmender Neutronengeschwindigkeit ist auch eine Zunahme der Entleerzeit von  $\tau_{\text{emp},310} = (3,9 \pm 0,3) \text{ s}$  auf  $\tau_{\text{emp},1100} = (6,9 \pm 0,5) \text{ s}$  zu beobachten. Gemäß [Gleichung 5.4](#) wäre eine direkte Proportionalität zwischen der Energie / Geschwindigkeit der Neutronen und der Entleerzeit erwartet worden. Während die Energie allerdings auf das Dreifache ansteigt, nimmt die Entleerzeit nur um das 1,5-fache zu. Auch hier zeigt sich also, dass eine direkte Korrelation zwischen den beiden Größen nicht gegeben ist und theoretische Erklärungen nicht trivial sind.

### Speicherdetektoren

Analog zu [Abschnitt 5.5.3](#) wurden die normierten und untergrundkorrigierten Zählraten in den Speicherdetektoren während des Einlass' betrachtet. Die gemittelten Zählraten für jede

Absorberhöhe sind in [Abbildung 5.20a](#) dargestellt. Zur besseren Erkennbarkeit der Trends wurden die Punkte mit Linien verbunden. Im Vergleich zu den Zählraten in Messzyklus 4 fällt auf, dass diese ohne Absorber in Kanal 1 höher und in den anderen vier Kanälen niedriger ist. Mit zunehmender Absorberhöhe wäre eine stetige Zunahme der Neutronenzahlen erwartet worden, wie auch in den Kanälen 1 und 5 erkennbar. Auffällig sind aber die erhöhten Zählraten in den Kanälen 2 (bei 310 mm), 3 (500 mm) und 4 (750 mm). In allen drei Fällen befindet sich die Absorberplatte zwischen 60 und 110 mm über dem jeweiligen Detektor. Tritt bei flachen Eintrittswinkeln anstatt der Absorption Reflexion auf, würde dies zu der beobachteten Zählratenerhöhung führen. Die Zählraten in den Monitor-detektoren sind in [Abbildung 5.20b](#)



**Abbildung 5.20.:** Zählraten in den Speicherdetektoren während des Einlass' und der Speicherung. Rechts sind die Signale für den untersten Detektor (Ch 1) bei den vier Höhen dargestellt. Wie in [Abschnitt 5.5.4](#) wurden diese nicht untergrundkorrigiert.

für den unteren Detektor bei allen vier Absorberhöhen dargestellt. Auf Grund der schlechten Statistik<sup>2</sup> können die Daten nur qualitativ ausgewertet werden. Bei den anderen Detektoren sind die Zählraten im Rahmen ihrer Fehler sehr ähnlich. In der Abbildung zeigt sich die obige Erkenntnis, dass mit zunehmender Absorberhöhe / Neutronenenergie die Einstellung einer konstanten Zählrate verzögert eintritt. Bei 310 mm sind bereits nach 50 s alle Neutronen oberhalb des Wandpotentials entfernt. Bei den anderen Höhen ist dies erst außerhalb des hier betrachteten Zeitraumes der Fall.

<sup>2</sup>Auf Grund der geringen Anzahl an Messungen und dem niedrigen Signal in der Nähe des Untergrundes.



## Kapitel 6.

### Diskussion

Im Folgenden sollen das Experiment und die im vorangegangenen Kapitel vorgestellten Erkenntnisse der Strahlzeit kritisch betrachtet werden. Das Augenmerk liegt dabei auf einer Klärung der großen Neutronenverluste, die zu der geringen Speicherzeit führten. Im ersten Teil des Kapitels werden dazu die Ergebnisse der Analysen von Speicherzeit und Speicherdetektoren zusammengeführt und diskutiert. Im zweiten Teil erfolgt eine Analyse der bedeutenden Komponenten des Experiments, welches speziell für diese Messungen entworfen worden war. Für eine mögliche Wiederholung werden außerdem Möglichkeiten der Optimierung vorgestellt.

#### 6.1. Ergebnisse der Strahlzeit

Der 2015 von der PDG veröffentlichte Mittelwert der Neutronenlebensdauer liegt bei  $(880,3 \pm 1,1)$  s [Oli14]. Im Fall von idealer Speicherung, also ohne Neutronenverluste und vollständiger Erfassung aller Neutronen, sollte genau dieser Wert als Speicherzeit  $\tau_{\text{eff}}$  bestimmt werden können. Die im vorgestellten Experiment bestimmte Speicherzeit von  $(289,2 \pm 0,1)$  s beträgt also nur ein Drittel des theoretisch erreichbaren Wertes. Selbst bei ausgereiften Speicherexperimenten zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer müssen einige Korrekturen am experimentellen Ergebnis vorgenommen werden. Berücksichtigt werden dabei z.B. Einflüsse durch Restgas, Hochstreuung und (bei magnetischer Speicherung) Spinflip. Die Größenordnung dieser Anpassungen liegt allerdings deutlich unterhalb der hier vorliegenden Einflüsse auf das Ergebnis. Gegenüber der ersten Strahlzeit 2013 konnte das Ergebnis aber deutlich um den Faktor 3,5 verbessert werden. Damals betrug die maximale Speicherzeit 85 s, verursacht durch Verunreinigungen und eine unzureichende Beschichtung im Bereich des Verschlusses.

Die Speicherung der UCN sollte in einer vollständig und homogen ausgekleideten Kammer aus PFMO erfolgen. Die hier aufgetretenen Verluste konnten daher nur durch eine ungenügende Reflektivität des Wandmaterials verursacht worden sein. Genauer betrachtet kommen dafür zwei Möglichkeiten in Frage:

1. Unerwartet schlechte Reflexionseigenschaften von PFMO.
2. Unzureichende Beschichtung von Oberflächen.

### 6.1.1. Schlechte Reflexionseigenschaften

Wie in [Abschnitt 2.1.3](#) dargelegt, hängen die Reflexionseigenschaften von der atomaren Zusammensetzung des Wandmaterials ab. Das Fluorpolymer *Fomblin* wurde bisher erfolgreich zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer eingesetzt, es erlaubte Speicherzeiten im Bereich der Lebensdauer. *Fomblin* und PFMO sind aus den gleichen Elementen zusammengesetzt: Kohlenstoff, Fluor und Sauerstoff. Wie in [Abschnitt 3.2.3](#) dargestellt, sind alle drei Elemente auf Grund ihres geringen Wechselwirkungsquerschnitts sehr gut als Neutronenreflektor geeignet. Darüber hinaus hängen das FERMI-Potential und die Verlustrate beim Wandstoß von der Dichte und der molaren Masse des Wandmaterials ab. Bei dem verwendeten PFMO konnte eine Verunreinigung mit ca. 170 ppm Chlor und ein maximaler Gehalt von 11 ppm Wasserstoff mittels Prompt-Gamma-Aktivierungsanalyse bestimmt werden. Beide besitzen um mehrere Größenordnungen höhere Absorptionsquerschnitte als Kohlenstoff, Fluor und Sauerstoff. Die berechnete Verlustrate pro Wandstoß musste somit von  $\eta_{\text{PFMO, rein}} = (3,77 \pm 0,02) \cdot 10^{-7}$  auf  $\eta_{\text{PFMO}} = (1,23 \pm 0,03) \cdot 10^{-6}$  angehoben werden. Trotz der Verunreinigungen liegt sie allerdings immer noch in der Größenordnung von *Fomblin*.

Die Reinheit des Polymers wurde mit 96,9% angegeben. Mit Hilfe von NMR-Messungen wurde außerdem versucht, organische Verunreinigungen zu ermitteln. Würden die Verunreinigungen von 3,1% ausschließlich aus Lösungsmittelresten bestehen, wäre dieser große Anteil im  $^{19}\text{F}$ -NMR eindeutig identifizierbar. Verunreinigungen konnten mittels NMR aber nicht in einem signifikanten Maßstab nachgewiesen werden. Mögliche Reste des Lösungsmittels wurden durch den PGAA-bestimmten Chlor-Gehalt aber berücksichtigt.

Eine häufige Quelle für Neutronenverluste bei UCN-Experimenten stellt Wasserstoff dar, da er mit einem hohen Wechselwirkungsquerschnitt für Hochstreuung sehr viel thermische Energie auf die Neutronen überträgt. Durch Luftfeuchtigkeit überall präsent, ist quasi jede Oberfläche

kontaminiert. MARCHE ET AL. zeigten daher Möglichkeiten, wie diese vom Wasserstoff befreit werden können [MLG81]. Im vorliegenden Experiment sollten die Wasserstoffreste wie in den anderen Speicherexperimenten nicht entfernt, sondern mit einem Polymer überdeckt und somit eliminiert werden. Dennoch muss eine mögliche Existenz von Wasserstoff im Speichervolumen kritisch betrachtet werden: Auf Grund der tiefkalten Oberflächen können auf der Polymerschicht Wassermoleküle ausfrieren und sich während der Messungen anreichern. Die einzigen, kontinuierlichen Eintrittsmöglichkeiten für Wassermoleküle bestanden an den beiden Lineardurchführungen zur Bewegung der Verschlussstange und des Beschichtungsrohres. Es kann aber davon ausgegangen werden, dass Luftfeuchtigkeit, die von der Verschlussseite in das Vakuumsystem eingedrungen war, bereits vor Erreichen der Speicherkammer an den kalten Wänden des Neutronenleiters kondensierte. Der Linearantrieb zur Beschichtung wurde während der Speichermessungen nicht verwendet (Ausnahme: Absorbereinsatz in Zyklus 8). Wenn dadurch überhaupt Wasser in die Vakuumkammer eingedrungen sein könnte, wäre es bereits an den Kühlleitungen oberhalb der Speicherkammer ausgefroren. Folglich ist wahrscheinlich, dass Wasserstoff nicht für die großen Neutronenverluste verantwortlich ist. Bei einer Wiederholung des Experiments könnte aber durch den Austausch mit magnetisch gekoppelten Lineardurchführungen das Vakuum insgesamt verbessert werden. Es ist anzunehmen, dass Verunreinigungen im Restgas bereits beim Abkühlen der Speicherkammer vor allem auf den Außenwänden ausgefroren wurden. Dies zeigte eine deutliche Druckabnahme beim Abkühlen.

Als Fazit dieser Betrachtungen ist also festzuhalten, dass relevante Verunreinigungen auf der Speicheroberfläche entweder berücksichtigt werden konnten oder keinen signifikanten Einfluss besitzen. Außerdem konnte kein Nachweis gefunden werden, die theoretisch vorhergesagten, sehr guten Speichereigenschaften von PFMO anzuzweifeln.

### 6.1.2. Unzureichende Beschichtung der Innenflächen

Bereits eine kleine unzureichend beschichtete Fläche in der Speicherkammer würde ausreichen, um einen großen Verlustkanal für UCN darzustellen. Mit Hilfe von Monte-Carlo-Simulationen und den bekannten Randbedingungen könnte solch eine hypothetische Fläche berechnet werden. Für das aktuelle Experiment liegen leider zur Zeit noch keine vor. PLONKA hatte aber für das Ergebnis der Strahlzeit 2013 MC-Simulationen durchgeführt [Zim13]. Als Resultat wurde eine Fläche von  $10\text{ cm}^2$  ermittelt, die ausreicht um eine Verringerung der Speicherzeit auf

85 s zu bewirken. Auf Grund der Beobachtungen mit der Kamera während der Beschichtungen kann ausgeschlossen werden, dass an einer beliebigen Stelle die Beschichtung schlechter war als an einer anderen. Im Kamerabild war deutlich das amorphe, weiße Polymer zu erkennen. Drei Bereiche in der Speicherkammer bergen aber ein Risiko für eine mangelhafte Beschichtung: Die Schlitze zwischen Bodenplatte und Rohr, am Verschluss und an den fünf Speicherdetektoren.

Nimmt man ausgehend von den MC-Simulationen einen ringförmig unbeschichteten Streifen auf der inneren Rohrwand an (z.B. an der Kontaktstelle zwischen Rohr und Boden, Radius  $R = 115$  mm), müsste dieser Schlitz nur 1,4 mm breit sein, um eine Speicherzeit von 85 s (Strahlzeit 2013) zu provozieren. Bei einem Schlitz am Verschluss (Radius  $R = 35$  mm) wäre er 4,5 mm breit. Mit deutlich besseren Speicherzeiten reduzieren sich aber auch deutlich die potentiellen Schlitzgrößen. Außerdem muss berücksichtigt werden, dass sowohl die Speicherdetektoren als auch der Übergang zwischen Bodenplatte und Rohr vom flüssigen PFMO verschlossen werden können. Untersuchungen an der Testapparatur mit horizontaler und vertikaler Oberfläche (siehe [Abschnitt 3.3](#)) konnten dies eindeutig zeigen. Am Verschluss der Speicherkammer stellte sich die Situation komplizierter dar. Der Schlitz wurde beim Schmelzen des PFMO zwar zuverlässig verschlossen. Beim ersten Öffnungsvorgang brach die Polymerschicht dann aber wieder auf. Der Riss an dieser Stelle konnte nicht wieder versiegelt werden und stellte somit einen konstanten Verlustkanal dar. Zur Bestimmung der Dimensionen dieses Schlitzes sind gezielte Untersuchungen notwendig.

Die Ergebnisse der Speicherdetektoren zeigen allerdings, dass Schlitze nicht den einzigen Verlustkanal darstellen können. In [Abbildung 5.15](#) war beispielsweise im mittleren Detektor 3 nach 500 s Speicherung immer noch eine Zählrate über dem Untergrund erkennbar. Neutronen konnten also weiterhin die Polymerschicht transmittieren. An den anderen vier Positionen war die Schichtdicke dagegen so stark, dass keine UCN mehr den Detektor erreichen konnten. Dieses unterschiedliche Verhalten kann auf verschiedene Beschichtungsqualitäten hinweisen. Eine quantitative Auswertung mit Berechnungen der tatsächlichen Anzahl zu den Detektoren transmittierter Neutronen war auf Grund der fehlenden Kalibrierung noch nicht möglich. Die qualitativ messbaren Verluste müssen allerdings berücksichtigt werden.

Ein weiteres Problem in Zusammenhang mit der Polymerbeschichtung zeigte sich im zeitlichen Verlauf jeder Messreihe: Teilweise nahm die Summe der gespeicherten Neutronen kontinuierlich und gleichzeitig mit der Speicherzeit ab (z.B. [Abbildung 5.6](#)). Dagegen konnten die Werte für UCN-Summe und Speicherzeit beim vierten Zyklus quasi konstant gehalten werden.

Einerseits könnten diese Verläufe sehr einfach durch Abfließen oder Aufbrechen des Polymers erklärt werden. Andererseits konnte eine signifikante und obligatorische Temperaturabhängigkeit nicht beobachtet werden. Zwei andere Ursachen wären aber möglich: Die Anreicherung von Verunreinigungen auf der festen PFMO-Schicht und ein immer größeres Aufbrechen des Risses im Polymer am Rand des Verschluss'. Eine Klärung war im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich. Durch genauere Messungen in Abhängigkeit der Temperatur könnte aber hier ein Zusammenhang bestätigt oder widerlegt werden.

Zusammenfassend können Neutronenverluste durch Schlitze (am Verschluss) und unzureichende Schichtdicken die große Abweichung der Speicherzeiten von den Erwartungen verursacht haben. Eine differenziertere Bestimmung des quantitativen Einfluss' ist ohne weitere Untersuchungen nicht möglich. Daher sollte vor einer Wiederholung des Experiments mit PFMO ein Fluorpolymer (z.B. *Fomblin* als Paste) als Wandmaterial verwendet werden, dessen Speichereigenschaften sehr gut bekannt sind.

## 6.2. Experimentaufbau

Die Eignung des entworfenen Experiments zur Bestimmung der Speichereigenschaften von flüssigen Polymeren konnte mit der Strahlzeit 2015 sehr deutlich gezeigt werden. Insbesondere die Langzeit-Funktionsfähigkeit und die automatische Durchführung der Messungen über große Zeiträume sind wichtige Voraussetzungen für ein späteres Lebensdauerexperiment, um die Ergebnisse mit ausreichend großer Statistik bestimmen zu können. Fast alle Komponenten des Experiments wurden ohne bisherige Vorbilder neu geplant und konstruiert. Im Rahmen dieses Kapitels können zwar nicht alle Teile bewertet werden. Aber für die wichtigsten Komponenten sollen im Folgenden die Funktionstüchtigkeit bei der Experimentdurchführung und bekannte Probleme diskutiert werden. Außerdem werden direkt Ansätze zur Optimierung der jeweiligen Komponente vorgestellt.

### 6.2.1. Beschichtungssystem und -prozess

Eine kritische Beurteilung des verwendeten Systems zur Beschichtung gestaltet sich durch die unklare Ursache für die großen Neutronenverluste schwierig. Wie bereits diskutiert, könnte eine unzureichende Beschichtung, beispielsweise am äußeren Rand der Bodenplatte einen Beitrag dazu geleistet haben. Außerdem konnten die in den Zyklen 1 und 4 erreichten Speicherzeiten nicht mehr reproduziert werden. Allerdings wird hier davon ausgegangen, dass weniger

eine mangelhafte Beschichtung sondern die Verunreinigungen (möglicherweise Schmiermittel der Lineardurchführung oder erstarrtes Wasser wie in [Abschnitt 6.1.1](#) diskutiert) im oberen Drittel dafür verantwortlich waren.

Das Vorgehen zum Auftragen erfolgte gemäß des vorgestellten Protokolls bei allen Messungen ohne Probleme. Einzig bei Beschichtungszyklus 2 verursachte ein unzureichend gesicherter Stopfen einen Verlust an PFMO. Es hatte sich herausgestellt, dass die Erwärmung des Vorlagekolbens nicht notwendig war und durch die Wahl eines geeigneten Gasstroms der Druck in der Vakuumkammer in einem akzeptablen Bereich gehalten werden konnte. Die gleichmäßige Bewegung mit dem Linearantrieb funktionierte zuverlässig. Soweit es die Kontrolle mit der Kamera erlaubte, war die Oberfläche mit einer homogenen Schicht an gefrorenem Polymer überzogen. Die Aufnahmen nach der ersten Beschichtung zeigten außerdem, dass das Polymer an der Wand entlang fließen konnte (anstatt zu verdunsten) und somit den Schlitz zur Bodenplatte effektiv verschloss. Ebenfalls bei diesem Zyklus zeigten sich aber makroskopische Mengen an PFMO, welche möglicherweise beim Abkühlen aufgebrochen waren. Da aber auch im geschmolzenen Zustand die Speicherzeiten nicht deutlich besser wurden, stellt dies aktuell einen vernachlässigbaren Verlustkanal dar.

Genauere optische Untersuchungen des Auftragens in Abhängigkeit des Gasstroms, der vorgelegten Polymermenge und der Temperatur können wichtige Erkenntnisse über das Verhalten beim Konditionieren liefern. Optimierungspotential beim Beschichtungssystem bietet außerdem der Verdampfungsprozess. POKOTILOVSKI hatte in eigenen Versuchen eine Apparatur verwendet, bei der das Polymer direkt in der Speicherkammer verdampft wurde. Dazu war das Polymer in flüssiger Form in die Speicherkammer eingebracht und dort mit einer Heizwendel erhitzt worden. Der Helium-Gas-Jet war obsolet und die Gefahr des Eintrags von Verunreinigungen geringer. Allerdings kann hier weder der Beschichtungsverlauf verfolgt noch die Geschwindigkeit kontrolliert werden. Ob ein flüssiges Einbringen von PFMO auf Grund des hohen Dampfdrucks überhaupt möglich ist, müsste auch vorher überprüft werden.

### **6.2.2. Verschluss der Speicherkammer**

Der für die Strahlzeit 2015 neu entworfene Verschluss funktionierte sehr zuverlässig. Kühlversuche hatten im Vorfeld ergeben, dass die passive Kühlung durch Kontakt mit der Bodenplatte ausreichte und sich zügig ein Temperaturgleichgewicht einstellte. Auch nach mehr als inzwischen 20 000 Öffnungszyklen konnte keine Abnutzung festgestellt werden. Der Kupferkonus bildete mit der Bodenplatte eine ebene Oberfläche. Mit Hilfe von Simulationen könnte

überprüft werden, ob das Öffnen des Verschlusses einen so starken Impuls auf die Neutronen überträgt, dass ihre Energie anschließend das gravimetrische und Wandpotential übersteigt. Sollte dies der Fall sein, könnte die Öffnungsgeschwindigkeit stufenlos reduziert werden.

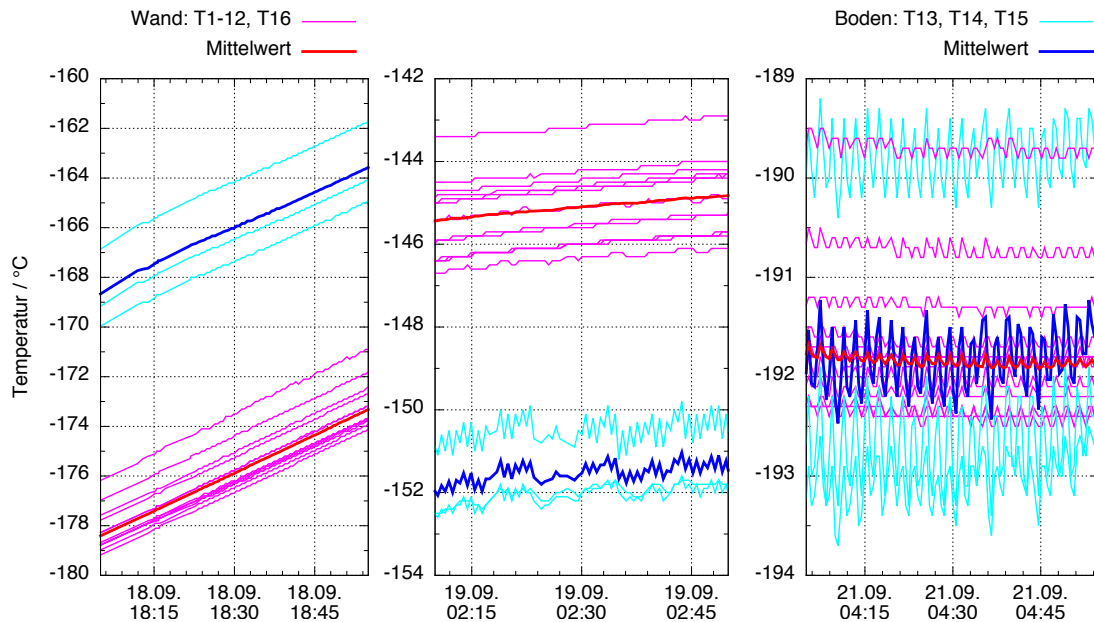
Die möglichen Neutronenverluste am Schlitz des Verschlussstopfens durch den Riss in der Polymerschicht wurden bereits diskutiert. Zwei Alternativen bieten eine Lösung des Problems: Zum einen könnte ein Heizdraht von unten in die Bodenplatte, wenige Millimeter unter die Oberfläche eingebaut werden. Nach jedem Schließen wird damit kurzzeitig das Polymer über den Schmelzpunkt erhitzt und es kann so den Riss wieder verschließen. Weniger aufwendig kann zum anderen die Kontaktfläche zwischen Stopfen und Bodenplatte mit gebräuchlicher *Fomblin*-Paste versehen werden. Sie verschließt den Schlitz und reflektiert die Neutronen, welche in den Riss eindringen. Optimierungspotential bietet außerdem die lineare Vakuumdurchführung. Wie auch beim Rohr zum Auftragen des PFMO der Fall, könnte Luftfeuchtigkeit in das Vakuumsystem eingebracht werden. Eine magnetisch gekoppelte Linearführung würde dies effizient verhindern. Es wird allerdings davon ausgegangen, dass die Wassermoleküle bereits auf den kalten Neutronenleitern außerhalb der Speicherkammer kondensierten und somit keine Verluste im Speichervolumen verursachten.

### 6.2.3. Kühlsystem

Das System zur Kühlung der Speicherkammer auf Temperaturen bis  $-190\text{ °C}$  und die Messung dergleichen funktionierte während der Strahlzeit ohne Einschränkungen. Die bei der finalen Strahlzeit verwendeten Rohrleitungen und die konstruierten Temperatursensoren konnten Leckagen und Sensorausfälle, wie beim ILL-Aufenthalt 2013 aufgetreten, erfolgreich verhindern. Die quasi-automatische Softwaresteuerung erlaubte auch die unbeaufsichtigte Kühlung, wenn vorher empirisch die Steuerparameter ermittelt worden waren. Diese sind bereits in [Abschnitt 4.4.3](#) angegeben. Neben den Parametern Öffnungsweite des Ventils, Zyklusdauer und Öffnungsverhältnis nahm auch der Druck im  $LN_2$ -Dewar Einfluss auf die Kühlleistung. Da er elektronisch weder geregelt noch kontrolliert werden konnte, musste er konstant auf dem Maximum von 3 bar gehalten werden.

Im Verlauf der Strahlzeit wurde festgestellt, dass bisher nicht quantisierbare Einflüsse auf die Kühlung einwirkten. So musste mehrfach beobachtet werden, dass nach mehreren Stunden konstanter Temperatur plötzlich die eingestellte Kühlleistung nicht mehr ausreichte und sich die Apparatur langsam erwärmte. Eine automatische Reaktion der Steuerung auf diese Einflüsse wurde noch nicht programmiert. Es musste daher manuell korrigiert werden. Eine

Ursache für diese Anomalien konnte nicht gefunden werden. Zukünftig kann durch Verwendung und nach vorheriger, sorgfältiger Einstellung eines PID-Reglers<sup>1</sup> auch eine vollkommen automatische Steuerung benutzt werden.



**Abbildung 6.1.:** Typische Temperaturverläufe der Sensoren im Rohr und der Bodenplatte. Links: Aufwärmen der Kammer; Mitte: Kühlung um den Schmelzpunkt von PFMO; Rechts: Kühlung am Minimum. Die Oszillationen rechts und in der Mitte sind eine Folge des gepulsten Einlass' von Stickstoff.

Die in Schrauben eingeklebten PT100-Elemente erwiesen sich als sehr zuverlässig, die angezeigten Messwerte konnten reproduzierbar erfasst werden. In [Abbildung 6.1](#) sind für drei typische Situationen (rechts: Erwärmen der Speicherkammer, mittig: Kühlung um den Schmelzpunkt von PFMO, links: Kühlung am Minimum) die jeweiligen Temperaturverläufe der Sensoren im Speicherrohr und der Bodenplatte dargestellt. Die Abweichungen zwischen den einzelnen Sensoren lagen unter den zuvor bestimmten 2 °C und waren konstant. Jeweils zwischen den 13 Temperaturkanälen des Rohrs und den drei der Bodenplatte traten Unterschiede zwischen den Sensoren von bis zu 3 °C auf. Die Bodenplatte reagierte schneller auf Änderungen der Kühlung, beim Erwärmen war sie ca. 10 °C wärmer als das Rohr. Am absoluten Minimum lagen alle Sensoren in einem Bereich von 4 °C-Breite, die beiden Mittelwerte sind identisch. An den vertikalen Wänden konnte ein Gradient festgestellt werden, der aber im Rahmen der Genauigkeit der Sensoren lag. Die in der vorherigen Datenanalyse verwendeten Temperaturwerte sind der Mittelwert, welcher aus den Rohrsensoren gebildet wurde (rote Linie).

<sup>1</sup>Regler mit einem proportionalen (P), integralen (I) und differenziellen (D) Glied.

Optimierungspotential besitzt das Kühlsystem bei der computergestützten, automatisierten Steuerung und bei einer digitalen Messung des Dewardrucks, damit auch dieser Parameter bei der Regelung berücksichtigt werden kann. Außerdem könnte durch einen noch geringeren  $lN_2$ -Fluss durch die Bodenplatte die Temperaturdifferenz zwischen dieser und dem restlichen Rohr reduziert werden.

#### 6.2.4. Speicherdetektoren

Die PIPS-Detektoren in der Wand der Speicherkammer wurden kontinuierlich verwendet. Für jede Speichermessung wurden dann zwei Bereiche getrennt ausgewertet: Einlass und Speicherung der Neutronen. Dabei waren die Signale der gespeicherten Neutronen nützlich und korrespondierten mit dem relativen Verlauf der UCN-Speichersummen. Wie erwartet, war der Einfluss verschiedener PFMO-Beschichtungen deutlich in der Zählrate erkennbar. Insbesondere zeigten Unterschiede zwischen den fünf Detektoren ungleichmäßige Beschichtungen. Leider war es nicht möglich, zeitliche Prozesse (wie das Abfließen von PFMO) auf Grund des hohen Untergrundes und der geringen Zählrate beobachten zu können. Zwei große Probleme erschwerten die Auswertung und bieten Ansätze zur Optimierung:

**Untergrund.** In den fünf Detektoren war mit ca.  $1 \text{ cts/s}$  der Untergrund sehr hoch und erschwerte dadurch die Auswertung der geringen Zählraten während der Speicherung. Zum Vergleich wurde im  $^3\text{He}$ -Detektor bei deutlich größerer aktiver Fläche nur eine Untergrundzählrate von  $0,2 \text{ cts/s}$  gemessen. Verursacht wurde das hohe Signal durch die mangelnde Abschirmung der Detektoren nach dem Einbau in die Speicherkammer. Beispielsweise durch angepasste Cadmium-Bleche kann hier aber sehr einfach eine Schirmung gegen höherenergetische Neutronen von außen integriert werden.

**Rauschen.** Ein elektronisches Störsignal wirkte meist unregelmäßig und zufällig auf alle fünf Detektorkanäle. Dadurch konnten teilweise über lange Zeiträume einzelne oder alle Kanäle nicht verwendet werden. Gerade während des ersten Beschichtungszyklus' verhinderten diese Störungen die Datenaufnahme vollständig. Da meistens die Ursache nicht gefunden oder nicht eliminiert werden konnte, sollte zukünftig die elektronische Abschirmung der Signalkabel bis zum Verstärker verbessert werden. Durch eine zentrale Erdung aller Masseleitungen werden außerdem Schleifen verhindert, die ebenfalls Störsignale erzeugen können.

Der Vergleich der Messzyklen 4 und 7 zeigte eindeutige Unterschiede am Detektor 1. Diese höhere Transmission der Neutronen im schlechteren Zyklus wird auch für die deutlich geringere Speicherzeit verantwortlich sein. Wird also die Sensitivität der Messung durch eine Reduktion von Rauschen und Untergrund erhöht, können auch sehr viel feinere Unterschiede zwischen verschiedenen Beschichtungen beobachtet werden. Es sollte dann auch möglich sein, eine zeitliche Veränderung (z.B. bei Temperaturvariation) erfassen zu können.

Darüber hinaus wäre eine Energieeffizienz-Kalibrierung der Sensoren nützlich. So könnten die tatsächlichen Verluste durch die Polymerschicht auf die gesamte Kammer energieabhängig extrapoliert werden. Auf Grund der nützlichen Erkenntnisse der fünf Speicherdetektoren wäre es sinnvoll, die Bodenplatte ebenfalls mit einem oder zwei Detektoren zu versehen. Insbesondere der Temperaturunterschied führte hier zu einem früheren Schmelzen des Polymers, was dann auch im Detektor erkennbar wäre. Außerdem könnte hier eine systematische Untersuchung zur Temperaturabhängigkeit des Verdampfens von PFMO durchgeführt werden.

### 6.3. Fazit

Das innerhalb von drei Jahren entwickelte Experiment zur Bestimmung der Speichereigenschaften des neuen Polymers PFMO wurde bei zwei Strahlzeiten 2013 und 2015 ausgiebig getestet. Die Speicherzeit in der beschichteten Speicherkammer konnte von 85 s auf 290 s deutlich verbessert werden. Für ein Experiment zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer sind allerdings weitaus längere Zeiten im Bereich von 800 s notwendig. Die Diskussion sollte daher mögliche Ursachen gegeneinander stellen.

Das verwendete Polymer versprach auf Grund seiner chemischen Zusammensetzung sehr gute Speichereigenschaften. Mit Hilfe von PGAA wurden allerdings Verunreinigungen von 170 ppm Chlor und 11 ppm Wasserstoff nachgewiesen. Während Chlor auf Grund seiner Neutronenabsorption einen Verlustkanal darstellt, ist bei Wasserstoff der Wirkungsquerschnitt für unelastische Hochstreuung sehr groß. Die Verlustberechnung unter Berücksichtigung beider Elemente führte zu einem Wert von  $\eta_{\text{PFMO}} = (1,23 \pm 0,03) \cdot 10^{-6}$ . Verluste durch weitere Verunreinigungen wie Restgase oder eingebrachte Luftfeuchtigkeit haben im Bereich der gemessenen Speicherqualität des Polymers noch keine signifikante Auswirkung. Direkt nach dem Auftragen zeigte sich im Kamerabild eine gleichmäßige, amorphe Bedeckung der inneren Wände. Es kann auch davon ausgegangen werden, dass der Schlitz zwischen Bodenplatte und Rohr durch das geschmolzene PFMO effektiv verschlossen wurde. Allerdings bietet der

Schlitz am Verschlussstopfen erhebliches Potential für Verluste. Durch die häufige Bewegung könnte das erstarrte Polymer hier sukzessive aufgebrochen sein. Die Signale einzelner Speicherdetektoren oberhalb des Untergrunds zeigten aber auch, dass bei verschiedenen Zyklen die Beschichtungen unterschiedlich stark und teilweise noch durchlässig waren. Die grundsätzliche Eignung von PFMO als Speichermedium konnte nicht widerlegt werden. Es ist daher davon auszugehen, dass die schlechte Speicherzeit durch eine unzureichende Beschichtung verursacht wurde.

Der experimentelle Aufbau zeigte bei der Strahlzeit 2015 eine große Zuverlässigkeit. Die elektronischen und mechanischen Komponenten funktionierten ohne Einschränkungen über die gesamte Dauer des Experimentaufenthalts. Die Apparatur zur Beschichtung konnte unter Kontrolle der Geschwindigkeit reproduzierbare Bedeckungen liefern. Weitere Untersuchungen könnten hier ein noch besseres Verständnis vom Verhalten des PFMO bei der Konditionierung liefern. Der Verschlussmechanismus wurde nach 2013 stark verbessert und konnte sich 2015 bewähren. Die o.g. Verluste hier könnten durch die Verwendung von *Fomblin*-Paste oder kurzzeitiges Schmelzen des Polymers im Bereich des Schlitzes eliminiert werden. Das Kühlsystem der Speicherkammer erlaubte die Regulation der Temperatur auf unter  $-190\text{ °C}$ . Die entwickelten Temperatursensoren erwiesen sich als zuverlässig. Durch eine weitere Automatisierung des System könnte die Kühlsteuerung zukünftig ganz ohne Benutzerinteraktionen erfolgen. Bei den handlichen Detektoren in der Wand des Speichervolumens traten Probleme durch Rauschen und einem sehr hohen Untergrund auf. Der Nutzen konnte aber eindeutig belegt werden: Unterschiedlich gute Beschichtungen der Wände wurden durch das Detektorsignal abgebildet. Eine Reduktion des Untergrunds kann noch genauer die Unterschiede verdeutlichen. Das vorgestellte Experiment konnte die grundsätzliche Eignung zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer unter Beweis stellen. Durch Speichermessungen mit einem bereits erprobtem Polymer könnte dies zusätzlich gezeigt werden.



## Kapitel 7.

### Zusammenfassung und Ausblick

Die Frage um den Urknall und die Entstehung unserer Welt bewegte nicht nur vor zweitausend Jahren die Gemüter der Gelehrten, sondern ist auch heute noch Gegenstand aktueller Forschungsprojekte. Ein wichtiger Bestandteil dessen ist die Entstehung der ersten Atomkerne Wasserstoff, Helium und Lithium. Diese *Primordiale Nukleosynthese* aus Protonen und Neutronen wurde stark durch den  $\beta$ -Zerfall der freien Neutronen in der Ursuppe beeinflusst. Die Lebensdauer des Neutrons  $\tau_n$  ist daher eine wichtige physikalische Konstante und wird seit Jahrzehnten mit verschiedenen Experimenten bestimmt. Seit einigen Jahren weichen neue, unabhängige Messungen vom bisherigen Wert ab, die Ursache ist unbekannt. Die Situation wird daher auch als „Puzzle of Neutron Lifetime“ bezeichnet. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Experiment entwickelt, welches einen Beitrag zur Lösung des Puzzles liefern kann. Das Projekt hatte dazu zwei Schwerpunkte: (1) Die Konstruktion des experimentellen Aufbaus, der (2) die Charakterisierung eines neuen Polymers zur Speicherung von ultrakalten Neutronen (UCN) ermöglicht.

Dieses Fluorpolymer versprach gute Speichereigenschaften und besitzt einen äußerst niedrigen Schmelzpunkt. Daher wurde es von POKOTILOVSKI für die Verwendung in einem Neutronenexperiment vorgeschlagen. Chemisch betrachtet ist es ein linearer, perfluorierter Methylenpolyether und wurde in diesem Projekt mit der Abkürzung PFMO bezeichnet. Da es nicht kommerziell erhältlich war, wurde es in einer Auftragsynthese hergestellt. Vor Ort erfolgte eine grundlegende Charakterisierung mit physikalischen und chemischen Methoden. So wurde u.a. der Schmelzpunkt zu 159 °C bestimmt. Ausgehend vom bekannten Abkühlverhalten der bisher verwendeten Fluorpolymere kann davon ausgegangen werden, dass PFMO bis Temperaturen von  $-200$  °C im erstarrten Zustand zur Neutronenspeicherung geeignet ist. Die Reinheit der gelieferten Flüssigkeit sollte mit  $^1\text{H}$ -,  $^{13}\text{C}$ - und  $^{19}\text{F}$ -NMR untersucht werden. Hier konnte leider nur das  $^{19}\text{F}$ -NMR sinnvolle Ergebnisse liefern und geringe Restmengen des

Lösungsmittels zeigen. Auf Grund des großen Absorptionsquerschnitts war insbesondere die Verunreinigung mit Chloratomen von Interesse. Eine genauere, quantitative Bestimmung mit PGAA lieferte Restmengen von 170 ppmw Chlor und 11 ppmw Wasserstoff im Polymer. Wasserstoff stellt bei UCN-Speicherexperimenten einen großen Verlustkanal durch unelastische Hochstreuung dar. Beide Elemente wurden bei der Berechnung der theoretischen Verlustrate von Neutronen beim Wandstoß berücksichtigt. Sie liegt bei  $\eta_{\text{PFMO}} = (1,23 \pm 0,03) \cdot 10^{-6}$ . Das Polymer wurde systematischen Untersuchungen zum Abkühlverhalten unterzogen. Dabei zeigte sich, dass es im flüssigen Zustand an Wänden herabfließen und Schlitze verschließen kann. Außerdem wurde das System zur Beschichtung mit diesem Polymer getestet und entsprechend der Ergebnisse optimiert. Zum Einsatz kam dazu ein Helium-Gasjet, welcher verdampftes PFMO auf die tiefkalte Kupferoberfläche sprühte, wo es sofort erstarrte.

Auf Grundlage dieser Erkenntnisse wurde die UCN-Speicherkammer konstruiert. Sie besteht aus einem vertikalen Kupferrohr mit Bodenplatte, dessen innere Oberflächen mit PFMO beschichtet wurde. Eine geregelte Kühlung der Kammer war mit flüssigem Stickstoff bis unter  $-190^\circ\text{C}$  möglich. Das Polymer wurde beim Beschichten ebenso auf den Verschluss des Speicherbehälters aufgetragen. Zur Untersuchung der Schichtqualität während des Experiments waren 5 kleine Detektoren in die Rohrwand eingelassen. Ihr Signal korrespondierte mit der Dicke und Beschaffenheit der Beschichtung.

Im Rahmen einer fünföchigen Strahlzeit im Herbst 2015 am ILL, Grenoble, wurde das fertige Experiment aufgebaut und die Speichereigenschaften von PFMO gemessen. Leider konnte die theoretisch vorhergesagte Speicherzeit im Bereich von über  $\tau_{\text{eff}} = 800\text{s}$  nicht erreicht werden. Auf Grund noch nicht eindeutig identifizierter Neutronenverluste lag sie lediglich bei  $\tau_{\text{eff}} = 289\text{s}$ . Dies stellte allerdings schon eine deutliche Verbesserung gegenüber einer kürzeren Teststrahlzeit 2013 dar. Die Verluste entstanden vermutlich auf Grund einer nicht perfekten Beschichtung im Bereich des Verschlusses. Hierzu wurden Lösungsmöglichkeiten aufgezeigt. Die Messkampagne lieferte auch wichtige Erkenntnisse zur Funktionsweise und Zuverlässigkeit der mechanischen und elektronischen Experimenteile. Fast alle Komponenten arbeiteten zuverlässig, Optimierungsansätze wurden vorgestellt und diskutiert. Im Rahmen einer weiteren Strahlzeit könnte nach dem Umsetzen der Verbesserungen erst ein bekanntes und bewährtes Fluorpolymer gemessen werden. In einem zweiten Schritt werden dann die Speichereigenschaften des neuen Polymers PFMO erneut untersucht.

Das entwickelte Experiment kann dann wie vorgesehen den Grundstein für ein neues Lebensdauerexperiment legen und ein weiteres Puzzleteil liefern.

## Anhang A.

### Literatur

- [Abe08] H. Abele. „The neutron. Its properties and basic interactions“. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, 60 (1) (Jan. 2008): S. 1–81. DOI: [10.1016/j.ppnp.2007.05.002](https://doi.org/10.1016/j.ppnp.2007.05.002). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0146641007000622> (siehe S. 9, 20).
- [Ari+12] Y. Arimoto u. a. „Present status of neutron fundamental physics at J-PARC“. *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, 2012 (1) (Dez. 2012): S. 1–11. DOI: [10.1093/ptep/pts075](https://doi.org/10.1093/ptep/pts075). URL: <http://ptep.oxfordjournals.org/content/2012/1/02B007> (siehe S. 31).
- [Arz+15] S. S. Arzumanov u. a. „A measurement of the neutron lifetime using the method of storage of ultracold neutrons and detection of inelastically up-scattered neutrons“. *Physics Letters B*, 745 (Mai 2015): S. 79–89. DOI: [10.1016/j.physletb.2015.04.021](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2015.04.021). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370269315002646> (siehe S. 25).
- [Arz+09] S. S. Arzumanov u. a. „A new project to measure the neutron lifetime using storage of ultracold neutrons and detection of inelastically scattered neutrons“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 611 (2-3) (Dez. 2009): S. 186–188. DOI: [10.1016/j.nima.2009.07.070](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.07.070). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900209015228> (siehe S. 25).
- [Arz+12] S. S. Arzumanov u. a. „Analysis and correction of the measurement of the neutron lifetime“. *JETP Letters*, 95 (5) (Mai 2012): S. 224–228. DOI: [10.1134/S0021364012050025](https://doi.org/10.1134/S0021364012050025). URL: <http://dx.doi.org/10.1134/S0021364012050025> (siehe S. 25).

- [Arz+00] S. Arzumanov u. a. „Neutron life time value measured by storing ultracold neutrons with detection of inelastically scattered neutrons“. *Physics Letters B*, 483 (1-3) (Juni 2000): S. 15–22. DOI: [10.1016/S0370-2693\(00\)00579-7](https://doi.org/10.1016/S0370-2693(00)00579-7). URL: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0370269300005797> (siehe S. 24, 27).
- [Atc+05] F. Atchison u. a. „Measured Total Cross Sections of Slow Neutrons Scattered by Solid Deuterium and Implications for Ultracold Neutron Sources“. *Physical Review Letters*, 95 (18) (Okt. 2005): S. 1–4. DOI: [10.1103/PhysRevLett.95.182502](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.182502). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.182502> (siehe S. 13).
- [Atc+07] F. Atchison u. a. „Measurement of the Fermi potential of diamond-like carbon and other materials“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 260 (2) (Juli 2007): S. 647–656. DOI: [10.1016/j.nimb.2007.04.253](https://doi.org/10.1016/j.nimb.2007.04.253). URL: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0168583X0700969X> (siehe S. 13).
- [AOS10] E. Aver, K. A. Olive und E. D. Skillman. „A New Approach to Systematic Uncertainties and Self-Consistency in Helium Abundance Determinations“. *Journal of Cosmology and Astroparticle Physics*, 2010 (05) (Jan. 2010). DOI: [10.1088/1475-7516/2010/05/003](https://doi.org/10.1088/1475-7516/2010/05/003). URL: <http://arxiv.org/abs/1001.5218> (siehe S. 2).
- [Ber+12] J. Beringer u. a. „Review of Particle Physics“. *Physical Review D*, 86 (1) (Juli 2012). DOI: [10.1103/PhysRevD.86.010001](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.86.010001). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevD.86.010001> (siehe S. 24).
- [Bie+94] T. R. Bierschenk, T. Juhlke, H. Kawa und R. J. Lagow. *Liquid-phase Fluorination*. 1994. URL: <http://www.google.com/patents/US5322903> (siehe S. 35).
- [BNS48] F. Bloch, D. Nicodemus und H. H. Staub. „A Quantitative Determination of the Magnetic Moment of the Neutron in Units of the Proton Moment“. *Physical Review*, 74 (9) (Nov. 1948): S. 1025–1045. DOI: [10.1103/PhysRev.74.1025](https://doi.org/10.1103/PhysRev.74.1025). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.74.1025> (siehe S. 6).
- [Bow+14] J. D. Bowman u. a. „Determination of the Free Neutron Lifetime“. *arXiv preprint* (Okt. 2014): S. 2–9. URL: <http://arxiv.org/abs/1410.5311> (siehe S. 3, 30).

- 
- [Bro+12] D. Brose, P. Geltenbort, C. Plonka-Spehr und T. Reichert. „Absorber materials for low-energy neutrons—Theoretical and experimental studies“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 664 (1) (Feb. 2012): S. 353–357. DOI: [10.1016/j.nima.2011.11.046](https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.11.046). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900211020882> (siehe S. 83).
- [Bro14] D. Brose. „Konzeption, Entwicklung und Test einer Apparatur zur Messung der elektrischen Ladung des Neutrons“. Dissertation. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2014 (siehe S. 38).
- [Byr+96] J. Byrne u. a. „A revised value for the neutron lifetime measured using a Penning trap“. *EPL (Europhysics Letters)*, 33 (3) (1996): S. 187. URL: <http://stacks.iop.org/0295-5075/33/i=3/a=187> (siehe S. 25).
- [CLS14] A. Ceccucci, Z. Ligeti und Y. Sakai. „CKM quark-mixing matrix“. (February) (2014): S. 1–22 (siehe S. 20).
- [Cha32] J. Chadwick. „Possible Existence of a Neutron“. *Nature*, 129 (3252) (Feb. 1932): S. 312–312. DOI: [10.1038/129312a0](https://doi.org/10.1038/129312a0). URL: <http://www.nature.com/doi/10.1038/129312a0> (siehe S. 5).
- [DL03] A.-J. Dianoux und G. Lander. *Neutron Data Booklet, Second Edition*. 2nd. OCP Science, 2003 (siehe S. 12, 42).
- [DS11] D. Dubbers und M. G. Schmidt. „The neutron and its role in cosmology and particle physics“. *Reviews of Modern Physics*, 83 (4) (Okt. 2011): S. 1111–1171. DOI: [10.1103/RevModPhys.83.1111](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.1111). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.83.1111> (siehe S. 2, 21, 24).
- [Düs10] C. Düsing. „Speicherung von ultrakalten Neutronen in einer Glaskeramik aus Siall“. Diplomarbeit. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2010 (siehe S. 55).
- [ET07] K. Eberhardt und N. Trautmann. „Neutron Activation Analysis at the TRIGA Mark II Research Reactor of the University of Mainz“. *IAEA technical report series*, 455 (2007): S. 537–545 (siehe S. 40).
- [Ezh+14] V. F. Ezhov u. a. „Measurement of the neutron lifetime with ultra-cold neutrons stored in a magneto-gravitational trap“. *arXiv 1412.7434* (Dez. 2014): S. 18–21. URL: <http://arxiv.org/abs/1412.7434> (siehe S. 17, 30).

- [Ezh+09] V. Ezhov u. a. „Magnetic storage of UCN for a measurement of the neutron lifetime“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 611 (2-3) (Dez. 2009): S. 167–170. DOI: [10.1016/j.nima.2009.07.071](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.07.071). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900209015186> (siehe S. 11, 25).
- [FA36] E. Fermi und E. Amaldi. „Absorption of slow neutrons“. *Ric. Sci.* 1 (1936): S. 56–59 (siehe S. 6, 12).
- [FM47] E. Fermi und L. Marshall. „Interference Phenomena of Slow Neutrons“. *Physical Review*, 71 (10) (Mai 1947): S. 666–677. DOI: [10.1103/PhysRev.71.666](https://doi.org/10.1103/PhysRev.71.666). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.71.666> (siehe S. 5).
- [Fre+07] A. Frei u. a. „First production of ultracold neutrons with a solid deuterium source at the pulsed reactor TRIGA Mainz“. *The European Physical Journal A*, 34 (2) (Nov. 2007): S. 119–127. DOI: [10.1140/epja/i2007-10494-2](https://doi.org/10.1140/epja/i2007-10494-2). URL: <http://link.springer.com/10.1140/epja/i2007-10494-2> (siehe S. 7).
- [Fre+10] A. Frei u. a. „Understanding of ultra-cold–neutron production in solid deuterium“. *EPL (Europhysics Letters)*, 92 (6) (Dez. 2010): S. 62001. DOI: [10.1209/0295-5075/92/62001](https://doi.org/10.1209/0295-5075/92/62001). URL: <http://stacks.iop.org/0295-5075/92/i=6/a=62001?key=crossref.5f99e7c7d1415277ef58745c314b1dee> (siehe S. 7).
- [Gie14] C. Giebel. „Entwicklung von Szintillator-Detektoren für ultrakalte Neutronen“. Diplomarbeit. Johannes Gutenberg Universität Mainz, 2014 (siehe S. 77).
- [GRL91] R. Golub, D. Richardson und S. K. Lamoreaux. *Ultra-Cold Neutrons*. 1. Aufl. Taylor und Francis, 1991 (siehe S. 7, 9 f., 13, 15).
- [GBD11] R. R. Greenberg, P. Bode und E. A. De Nadai Fernandes. „Neutron activation analysis: A primary method of measurement“. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 66 (3-4) (März 2011): S. 193–241. DOI: [10.1016/j.sab.2010.12.011](https://doi.org/10.1016/j.sab.2010.12.011). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0584854711000024> (siehe S. 40).
- [Has71] G. G. Haselden, Hrsg. *Cryogenic fundamentals*. London [u.a.]: Academic Press, 1971 (siehe S. 63).
- [Hin05] W. Hinderer. „Der 2D-CASCADE Neutronendetektor und seine Auslese“. Dissertation. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2005 (siehe S. 77).

- 
- [Hol07] J. Holdsworth. *Feynman-Diagramm Neutron*. 2007. URL: <https://en.wikipedia.org/wiki/Neutron> (besucht am 17.03.2016) (siehe S. 19).
- [Ign90] V. K. Ignatovich. *The physics of ultracold neutrons*. Oxford: Clarendon Press, 1990 (siehe S. 15 f.).
- [Imp49] Imperial Chemical Industries Ltd. „U.S. Patent. 2,449,469“. *Chem. Abstr.* 43 (1949): 1051h (siehe S. 35).
- [Jen+13] T. Jenke u. a. „Ultracold neutron detectors based on  $^{10}\text{B}$  converters used in the qBounce experiments“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 732 (Dez. 2013): S. 1–8. DOI: [10.1016/j.nima.2013.06.024](https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.06.024). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900213008449> (siehe S. 79 f.).
- [Kar+14] J. Karch u. a. „Performance of the solid deuterium ultra-cold neutron source at the pulsed reactor TRIGA Mainz“. *The European Physical Journal A*, 50 (4) (Apr. 2014): S. 78. DOI: [10.1140/epja/i2014-14078-9](https://doi.org/10.1140/epja/i2014-14078-9). URL: <http://link.springer.com/10.1140/epja/i2014-14078-9> (siehe S. 8).
- [Kar12] B. Karches. „*Untersuchung spätlatene- frühkaiserzeitlicher Glasperlen auf ihre Elementzusammensetzung mittels INAA*“. Examensarbeit. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2012 (siehe S. 40).
- [Kle00] M. Klein. „*Entwicklung eines neuen Detektors zum ortsaufgelösten Nachweis thermischer Neutronen auf großen Flächen*“. Dissertation. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2000. URL: [http://www.physi.uni-heidelberg.de/Publications/phd%7B%5C\\_%7Dklein.pdf](http://www.physi.uni-heidelberg.de/Publications/phd%7B%5C_%7Dklein.pdf) (siehe S. 78).
- [KMN14] S. Koltzenburg, M. Maskos und O. Nuyken. *Polymere: Synthese, Eigenschaften und Anwendungen*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2014. DOI: [10.1007/978-3-642-34773-3](https://doi.org/10.1007/978-3-642-34773-3). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-3-642-34773-3> (siehe S. 35).
- [Lau10] T. Lauer. „*Investigation of a superthermal ultracold neutron source based on a solid deuterium converter for the TRIGA Mainz reactor*“. Diss. Johannes Gutenberg Universität Mainz, 2010 (siehe S. 7).

- [Lau12] B. Lauss. „Startup of the high-intensity ultracold neutron source at the Paul Scherrer Institute“. *Hyperfine Interactions*, 211 (1) (2012): S. 21–25. DOI: [10.1007/s10751-012-0578-7](https://doi.org/10.1007/s10751-012-0578-7). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10751-012-0578-7> (siehe S. 7).
- [MAG81] W. Mampe, P. Ageron und R. Gähler. „Ultra cold neutron life times in glow discharge cleaned bottles“. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 45 (1) (März 1981): S. 1–14. DOI: [10.1007/BF01294271](https://doi.org/10.1007/BF01294271). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/BF01294271> (siehe S. 16).
- [Mam+93] W. Mampe u. a. „Measuring neutron lifetime by storing ultracold neutrons and detecting inelastically scattered neutrons“. *JETP Letters*, 57 (1993): S. 82–97. URL: [http://www.jetpletters.ac.ru/ps/1175/article%7B%5C\\_%7D17737.pdf](http://www.jetpletters.ac.ru/ps/1175/article%7B%5C_%7D17737.pdf) (siehe S. 25, 43).
- [Mam+89] W. Mampe u. a. „Neutron lifetime measured with stored ultracold neutrons“. *Physical review letters*, 63 (6) (Aug. 1989): S. 593–596. URL: <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/10041122> (siehe S. 24).
- [MLG81] P. Marche, W. Lanford und R. Golub. „An investigation of methods to reduce the hydrogen concentration on surfaces useful for ultra-cold neutron storage“. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* 189 (2-3) (1981): S. 533–541. DOI: [10.1016/0029-554X\(81\)90440-7](https://doi.org/10.1016/0029-554X(81)90440-7). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X81904407> (siehe S. 127).
- [MKS04] G. J. Mathews, T. Kajino und T. Shima. „Big Bang Nucleosynthesis with a New Neutron Lifetime“. *Physical Review D*, 71 (2) (Aug. 2004): S. 021302. DOI: [10.1103/PhysRevD.71.021302](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.71.021302). URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevD.71.021302> (siehe S. 23 f.).
- [Mol04] G. L. Molnár, Hrsg. *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis*. Boston, MA: Springer US, 2004. DOI: [10.1007/978-0-387-23359-8](https://doi.org/10.1007/978-0-387-23359-8). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-0-387-23359-8> (siehe S. 40).
- [Nau07] M. Nau. *Elektrische Temperaturmessung*. Fulda: JUMO, 2007, S. 1–166. URL: [http://www.jumo.de/de%7B%5C\\_%7DDE/support/faq-weiterbildung/literatur/themen/temperaturmesstechnik/FAS146.html](http://www.jumo.de/de%7B%5C_%7DDE/support/faq-weiterbildung/literatur/themen/temperaturmesstechnik/FAS146.html) (siehe S. 63).

- 
- [Nic+05] J. S. Nico u. a. „Measurement of the neutron lifetime by counting trapped protons in a cold neutron beam“. *Physical Review C*, 71 (5) (Mai 2005): S. 055502. DOI: [10.1103/PhysRevC.71.055502](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.71.055502). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.71.055502> (siehe S. 25).
- [Oli14] K. A. Olive. „Review of Particle Physics“. *Chinese Physics C*, 38 (9) (Aug. 2014). DOI: [10.1088/1674-1137/38/9/090001](https://doi.org/10.1088/1674-1137/38/9/090001). URL: <http://dx.doi.org/10.1088/1674-1137/38/9/090001> (siehe S. 2, 10, 25 f., 125).
- [Pac+91] J. Pacansky u. a. „Study of the structure of perfluoro ethers: structural models for poly(perfluoroformaldehyde), poly(perfluoroethylene oxide) and poly(perfluoropropylene oxide)“. *Journal of the American Chemical Society*, 113 (1) (Jan. 1991): S. 329–343. DOI: [10.1021/ja00001a047](https://doi.org/10.1021/ja00001a047). URL: <http://dx.doi.org/10.1021/ja00001a047> (siehe S. 36).
- [Pam14] Pamputt. *Kernreaktionen bei der Nukleosynthese nach dem Urknall*. 2014. URL: [https://en.wikipedia.org/wiki/Big%7B%5C\\_%7DBang%7B%5C\\_%7Dnucleosynthesis](https://en.wikipedia.org/wiki/Big%7B%5C_%7DBang%7B%5C_%7Dnucleosynthesis) (besucht am 17.03.2016) (siehe S. 22).
- [Pau09] S. Paul. „The Puzzle of Neutron Lifetime“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 611 (2) (Feb. 2009): S. 10. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900209015174><http://arxiv.org/abs/0902.0169> (siehe S. 22, 24).
- [Pic+10] A. Pichlmaier, V. Varlamov, K. Schreckenbach und P. Geltenbort. „Neutron lifetime measurement with the UCN trap-in-trap MAMBO II“. *Physics Letters B*, 693 (3) (Okt. 2010): S. 221–226. DOI: [10.1016/j.physletb.2010.08.032](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2010.08.032). URL: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0370269310009792> (siehe S. 24 f., 28).
- [Pic08] R. Picker. „*PENeLOPE and AbEx: On the Way Towards a New Precise Neutron Lifetime Measurement*“. Dissertation. Technische Universität München, 2008. URL: <http://mediatum.ub.tum.de/?id=650460> (siehe S. 27, 31).
- [Pla] W. Plasse. *Weltveränderer - Menschen, die die Welt beweg(t)en*. URL: <http://www.geo.de/GE0lino/mensch/weltveraenderer-menschen-die-die-welt-bewegten-72059.html?eid=79725> (siehe S. 1).

- [Plo13] C. Plonka. „*Ergebnisse der Monte-Carlo-Simulationen*“. Persönliche Nachricht. 2013 (siehe S. 97).
- [Plo05] C. Plonka. „*Untersuchung der Zeitumkehrinvarianz am D-Koeffizienten des freien Neutronenzerfalls mit TRINE*“. Dissertation. Technische Universität München, 2005 (siehe S. 78, 81).
- [Pok16] Y. N. Pokotilovski. „*Layer Thickness of PFMO*“. Persönliche Nachricht. 2016 (siehe S. 43).
- [Pok15] Y. N. Pokotilovski. „*Options for depositing cold surfaces with fluoropolymers*“. Persönliches Gespräch. 2015 (siehe S. 69).
- [Pok10] Y. N. Pokotilovski. „Options for the neutron lifetime measurements in traps“. *Physics of Atomic Nuclei*, 73 (5) (Mai 2010): S. 725–736. DOI: [10.1134/S1063778810050017](https://doi.org/10.1134/S1063778810050017). URL: <http://www.springerlink.com/index/10.1134/S1063778810050017> (siehe S. 56).
- [Pok99] Y. N. Pokotilovski. „Possibility for low temperature fluid-wall neutron bottle with very low neutron upscattering losses“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 425 (1-2) (Apr. 1999): S. 320–322. DOI: [10.1016/S0168-9002\(98\)01384-9](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)01384-9). URL: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0168900298013849> (siehe S. 29, 33).
- [Pok05] Y. N. Pokotilovski. „UCN anomaly and the possibility for further decreasing neutron losses in traps“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 554 (1-3) (Dez. 2005): S. 356–362. DOI: [10.1016/j.nima.2005.07.026](https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.07.026). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2005.07.026> (siehe S. 33).
- [Sal+14] D. J. Salvat u. a. „Storage of ultracold neutrons in the magneto-gravitational trap of the UCN  $\tau$  experiment“. *Physical Review C*, 89 (5) (Mai 2014): S. 052501. DOI: [10.1103/PhysRevC.89.052501](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.89.052501). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.89.052501> (siehe S. 30).
- [Sau59] G. Sauerbrey. „Verwendung von Schwingquarzen zur Wägung dünner Schichten und zur Mikrowägung“. *Zeitschrift für Physik*, 155 (2) (1959): S. 206–222. DOI: [10.1007/BF01337937](https://doi.org/10.1007/BF01337937). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/BF01337937> (siehe S. 76).

- 
- [Ser07] A. P. Serebrov. „Neutron  $\beta$ -decay, Standard Model and cosmology“. *Physics Letters B*, 650 (5-6) (Juli 2007): S. 321–324. DOI: [10.1016/j.physletb.2007.05.047](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2007.05.047). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370269307006417> (siehe S. [21 f.](#), [24](#)).
- [SF11] A. P. Serebrov und A. Fomin. „New evaluation of neutron lifetime from UCN storage experiments and beam experiments“. *Physics Procedia*, 17 (2011): S. 199–205. DOI: [10.1016/j.phpro.2011.06.037](https://doi.org/10.1016/j.phpro.2011.06.037). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389211003683> (siehe S. [23 f.](#)).
- [Ser+16] A. P. Serebrov u. a. „Neutron lifetime measurement on setups with gravitational trap“. *Crystallography Reports*, 61 (1) (Jan. 2016): S. 139–143. DOI: [10.1134/S106377451601020X](https://doi.org/10.1134/S106377451601020X). URL: <http://dx.doi.org/10.1134/S106377451601020X> [20http://link.springer.com/10.1134/S106377451601020X](http://link.springer.com/10.1134/S106377451601020X) (siehe S. [30](#)).
- [Ser+08] A. P. Serebrov u. a. „Neutron lifetime measurements using gravitationally trapped ultracold neutrons“. *Physical Review C - Nuclear Physics*, 78 (3) (2008): S. 1–15. DOI: [10.1103/PhysRevC.78.035505](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.78.035505) (siehe S. [28 f.](#)).
- [Ser+05] A. Serebrov u. a. „Measurement of the neutron lifetime using a gravitational trap and a low-temperature Fomblin coating“. *Physics Letters B*, 605 (1-2) (Jan. 2005): S. 72–78. DOI: [10.1016/j.physletb.2004.11.013](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2004.11.013). URL: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0370269304015552> (siehe S. [24 f.](#), [33](#)).
- [Sie15] C. Siemensen. „*Untersuchung der Ladungsneutralität des Neutrons*“. Dissertation. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2015 (siehe S. [6](#)).
- [SB62] R. M. Silverstein und G. C. Bassler. „Spectrometric identification of organic compounds“. *Journal of Chemical Education*, 39 (11) (Nov. 1962): S. 546. DOI: [10.1021/ed039p546](https://doi.org/10.1021/ed039p546). URL: <http://dx.doi.org/10.1021/ed039p546> (siehe S. [39](#)).
- [Sol+09] T. Soldner u. a. „Proceedings of the International Workshop on Particle Physics with Slow Neutrons“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 611 (2-3) (Dez. 2009). DOI: [10.1016/j.nima.2009.07.101](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.07.101). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900209014806> (siehe S. [2](#)).

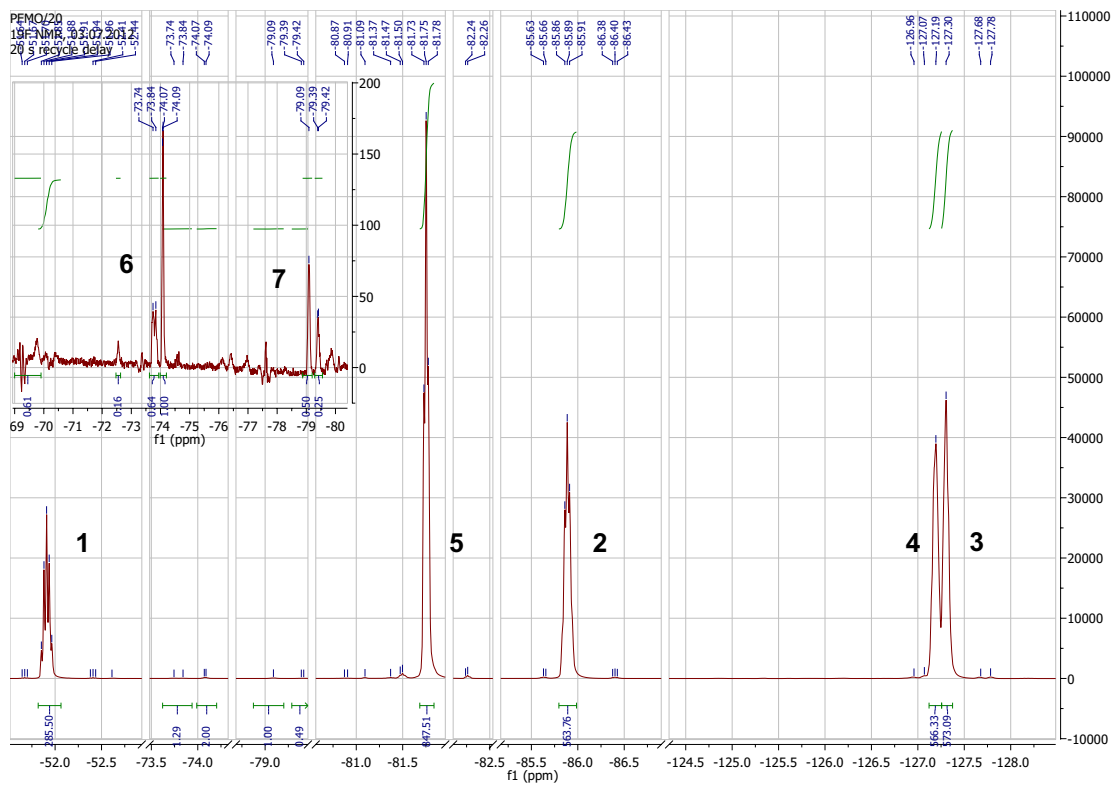
- [Spe+07] D. N. Spergel u. a. „Three-Year Wilkinson Microwave Anisotropy Probe (WMAP) Observations: Implications for Cosmology“. *The Astrophysical Journal Supplement Series*, 170 (2) (Juni 2007): S. 377–408. DOI: [10.1086/513700](https://doi.org/10.1086/513700). URL: <http://stacks.iop.org/0067-0049/170/i=2/a=377> (siehe S. 23).
- [Sta90] W. Staudacher. „Perfluorierte Polyäther Arbeitsflüssigkeiten für Extrembedingungen in der Vakuumtechnik“. *Vakuum in Forschung und Praxis*, 2 (1) (1990): S. 37–40. DOI: [10.1002/vipr.19900020109](https://doi.org/10.1002/vipr.19900020109). URL: <http://dx.doi.org/10.1002/vipr.19900020109> (siehe S. 34).
- [Ste+86] A. Steyerl u. a. „A new source of cold and ultracold neutrons“. *Physics Letters A*, 116 (7) (Juni 1986): S. 347–352. DOI: [10.1016/0375-9601\(86\)90587-6](https://doi.org/10.1016/0375-9601(86)90587-6). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375960186905876> (siehe S. 7 f.).
- [Ste+12] A. Steyerl u. a. „Quasielastic scattering in the interaction of ultracold neutrons with a liquid wall and application in a reanalysis of the Mambo I neutron-lifetime experiment“. *Physical Review C*, 85 (6) (Juni 2012): S. 065503. DOI: [10.1103/PhysRevC.85.065503](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.85.065503). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.85.065503> (siehe S. 25).
- [Str+00] A. Strelkov u. a. „Identification of a new escape channel for UCN from traps“. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 440 (3) (Feb. 2000): S. 695–703. DOI: [10.1016/S0168-9002\(99\)01064-5](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)01064-5). URL: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0168900299010645> (siehe S. 17).
- [SL95] K. Sung und R. Lagow. „Synthesis and Physical Properties of Novel Perfluorinated Methylene Oxide Oligomers. The Ultimate Low Temperature Fluids“. *Journal of the American Chemical Society*, 117 (24) (1995): S. 4276–4278. URL: <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ja00120a008> (siehe S. 34 ff.).
- [SL96] K. Sung und R. Lagow. „The Synthesis and Physical Properties of Capped Perfluoro Methylene Oxide Oligomers; The Ultimate Low Temperature Fluids“. *Synthetic communications*, (January 2012) (1996): S. 37–41. URL: <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/00397919608003626> (siehe S. 35).
- [WG11] F. E. Wietfeldt und G. L. Greene. „Colloquium: The neutron lifetime“. *Reviews of Modern Physics*, 83 (4) (Nov. 2011): S. 1173–1192. DOI: [10.1103/RevModPhys.83.1173](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.1173)

- 
- RevModPhys.83.1173. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.83.1173> (siehe S. 3).
- [Wra14] C. Wrana. *Polymerphysik*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2014. DOI: [10.1007/978-3-642-45076-1](https://doi.org/10.1007/978-3-642-45076-1). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-3-642-45076-1> (siehe S. 35).
- [Wut+00] M. Wutz, H. Adam, W. Walcher und K. Jousten. *Handbuch Vakuumtechnik*. Hrsg. von K. Jousten. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag, 2000. DOI: [10.1007/978-3-322-99947-4](https://doi.org/10.1007/978-3-322-99947-4). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-3-322-96971-2> (siehe S. 54).
- [Yao+06] W.-M. Yao u. a. „Review of Particle Physics“. *Journal of Physics G*, 33 (2006). URL: <http://pdg.lbl.gov> (siehe S. 24).
- [You+14] A. R. Young u. a. „Beta decay measurements with ultracold neutrons: a review of recent measurements and the research program at Los Alamos National Laboratory“. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, 41 (11) (Nov. 2014): S. 114007. DOI: [10.1088/0954-3899/41/11/114007](https://doi.org/10.1088/0954-3899/41/11/114007). URL: <http://stacks.iop.org/0954-3899/41/i=11/a=114007> (siehe S. 3, 15, 27 f., 30).
- [Yue+13] A. T. Yue u. a. „Improved Determination of the Neutron Lifetime“. *Physical Review Letters*, 111 (22) (Nov. 2013): S. 222501. DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.222501](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.222501). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.222501> (siehe S. 25, 31).
- [Zen13] J. Zenner. „*The search for the neutron electric dipole moment*“. Dissertation. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013 (siehe S. 6).
- [ZG15] O. Zimmer und R. Golub. „Ultracold neutron accumulation in a superfluid-helium converter with magnetic multipole reflector“. *Physical Review C*, 92 (1) (Juli 2015): S. 015501. DOI: [10.1103/PhysRevC.92.015501](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.92.015501). URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevC.92.015501> (siehe S. 9, 31).
- [Zim13] S. Zimmermann. „*Untersuchung eines Niedertemperatur-Fomblins zur Speicherung von ultrakalten Neutronen*“. Diplomarbeit. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2013 (siehe S. 43, 58, 91, 127).

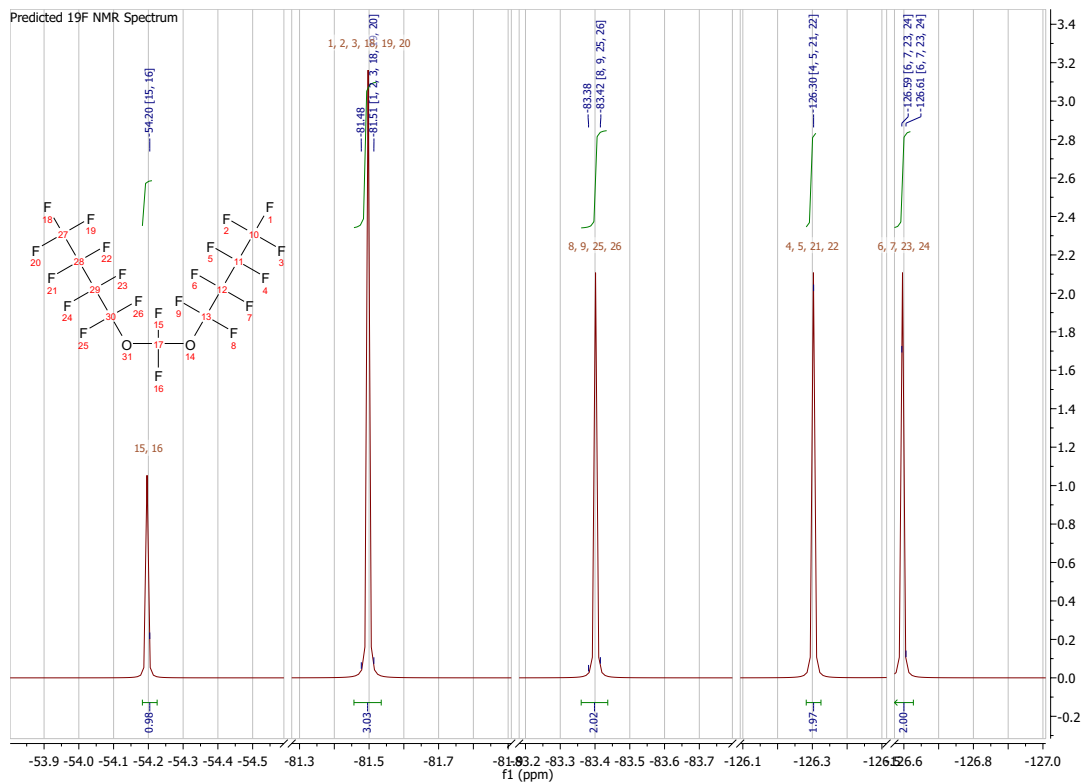


## **Anhang B.**

### **NMR-Spektren von PFMO**

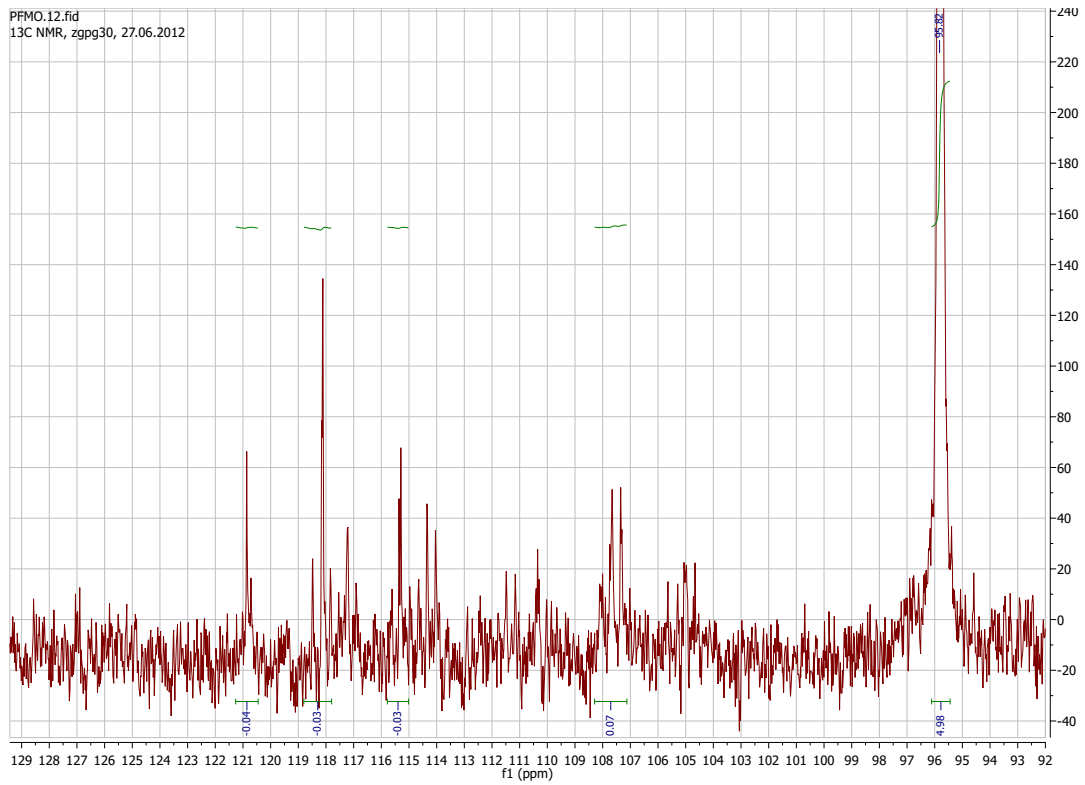


(a) Gemessenes Spektrum von PFMO.

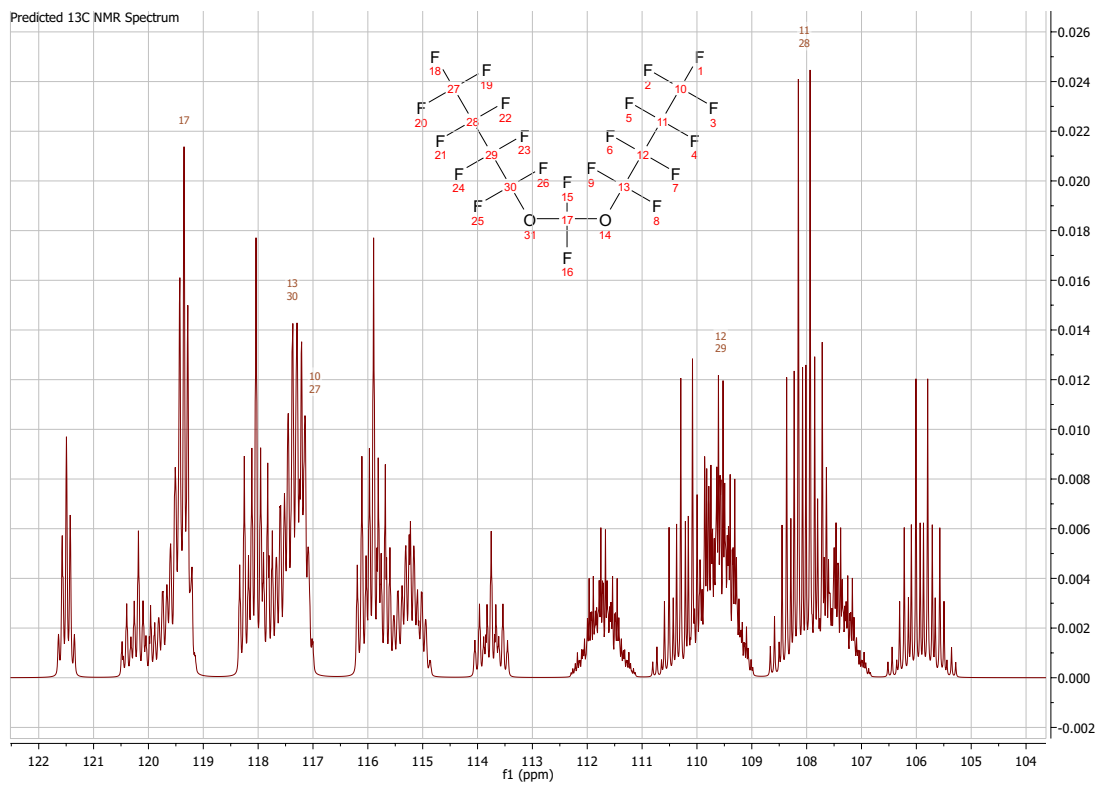


(b) Erwartetes Spektrum von PFMO.

Abbildung B.1.:  $^{19}\text{F}$ -NMR-Spektren.



(a) Gemessenes Spektrum von PFMO.



(b) Erwartetes Spektrum von PFMO.

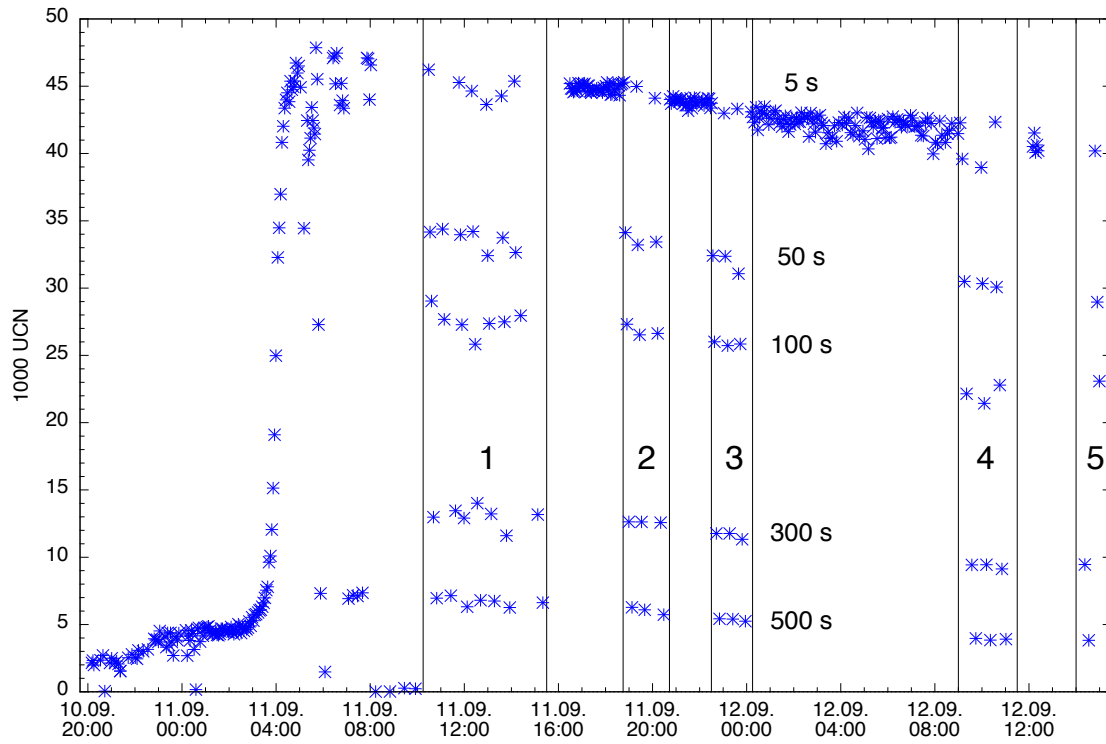
Abbildung B.2.: <sup>13</sup>C-NMR-Spektren.



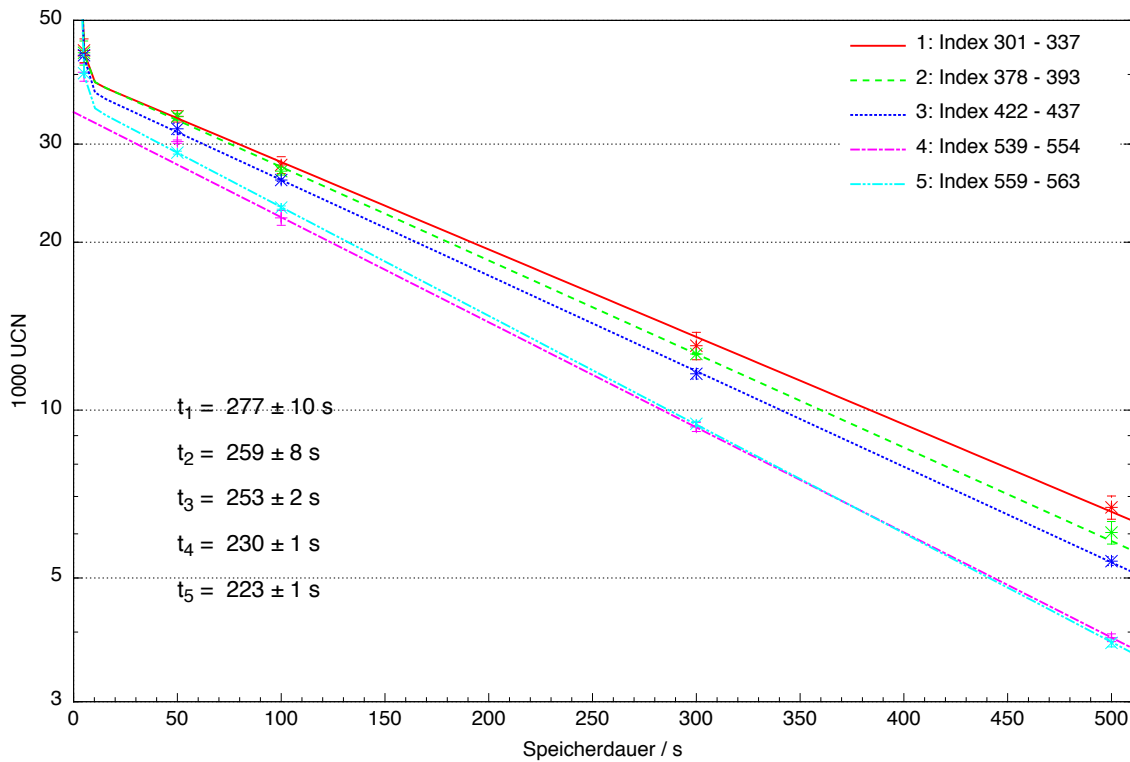
## **Anhang C.**

### **Speichermessungen**

#### **C.1. UCN-Summen und Speicherkurven aller Messzyklen**

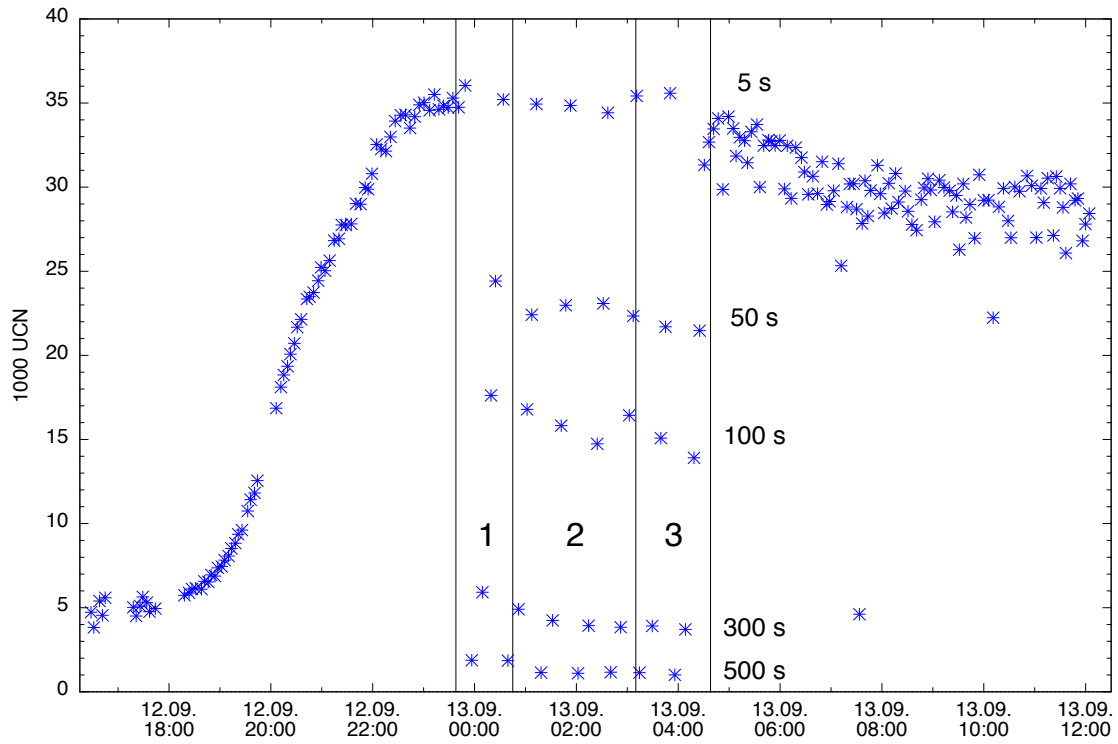


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.

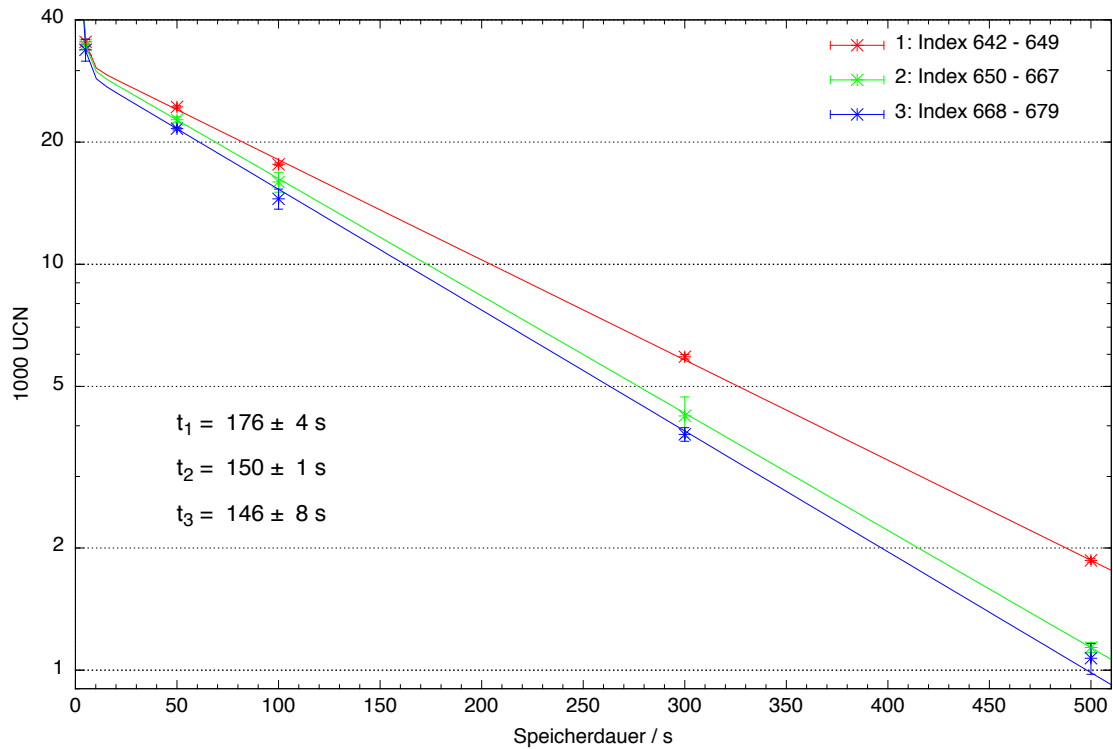


(b) Speicherkurven und Zeitkonstanten  $\tau_2$  der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.1.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 1.

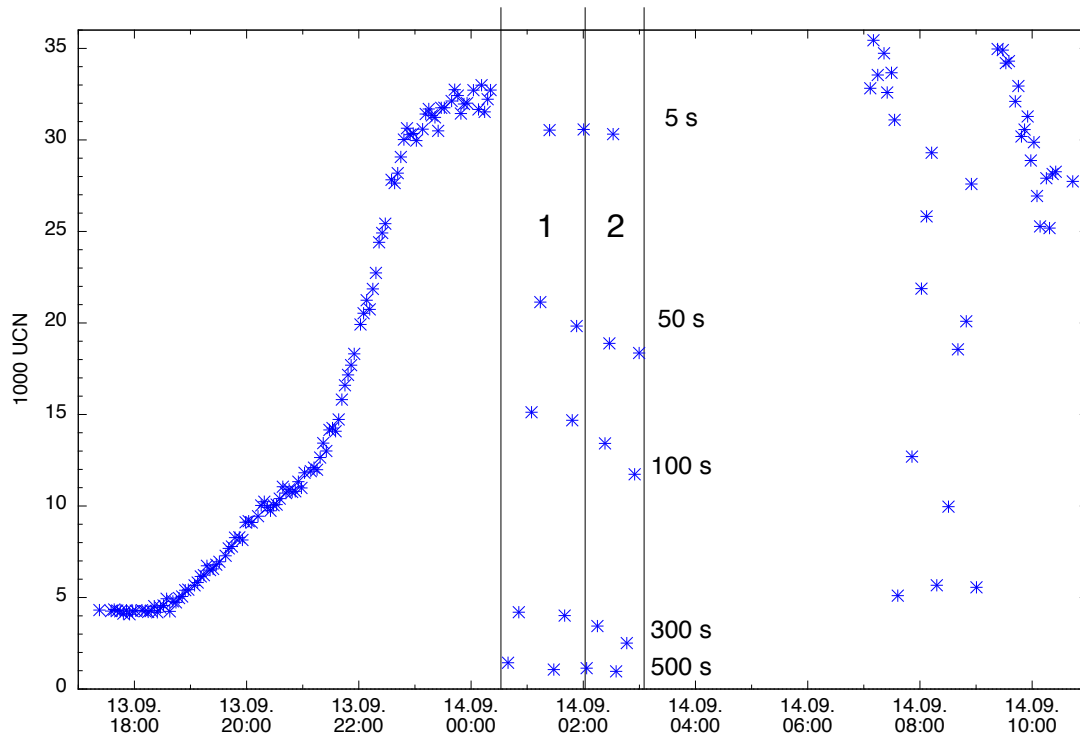


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.

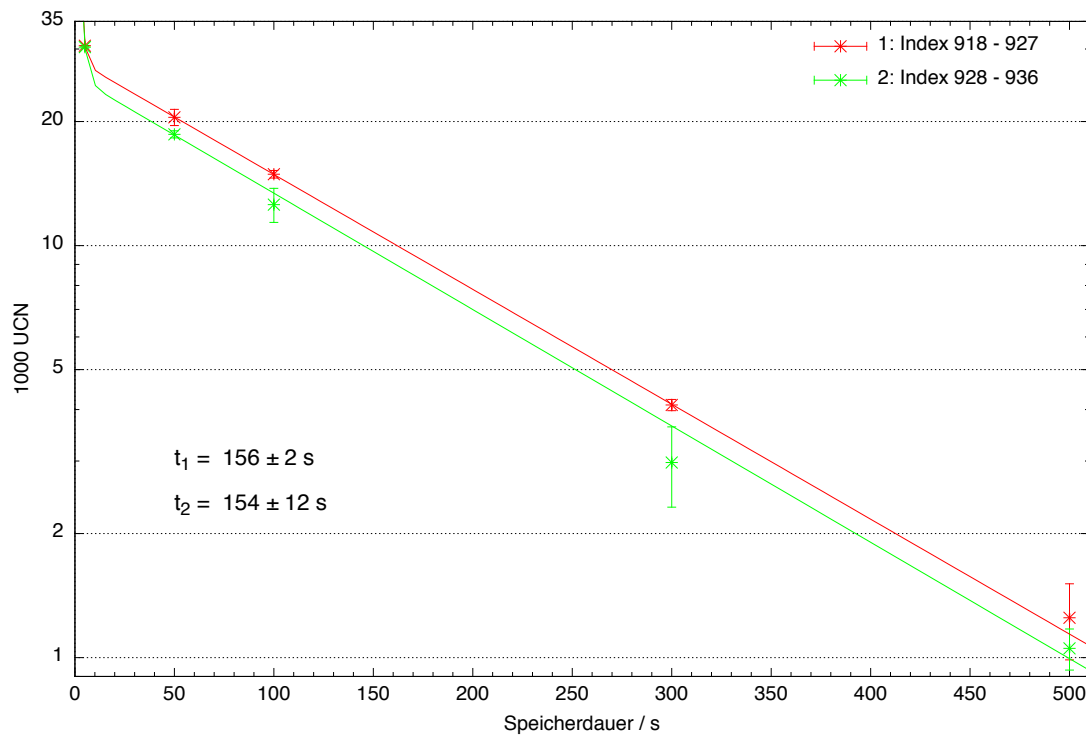


(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.2.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 2.

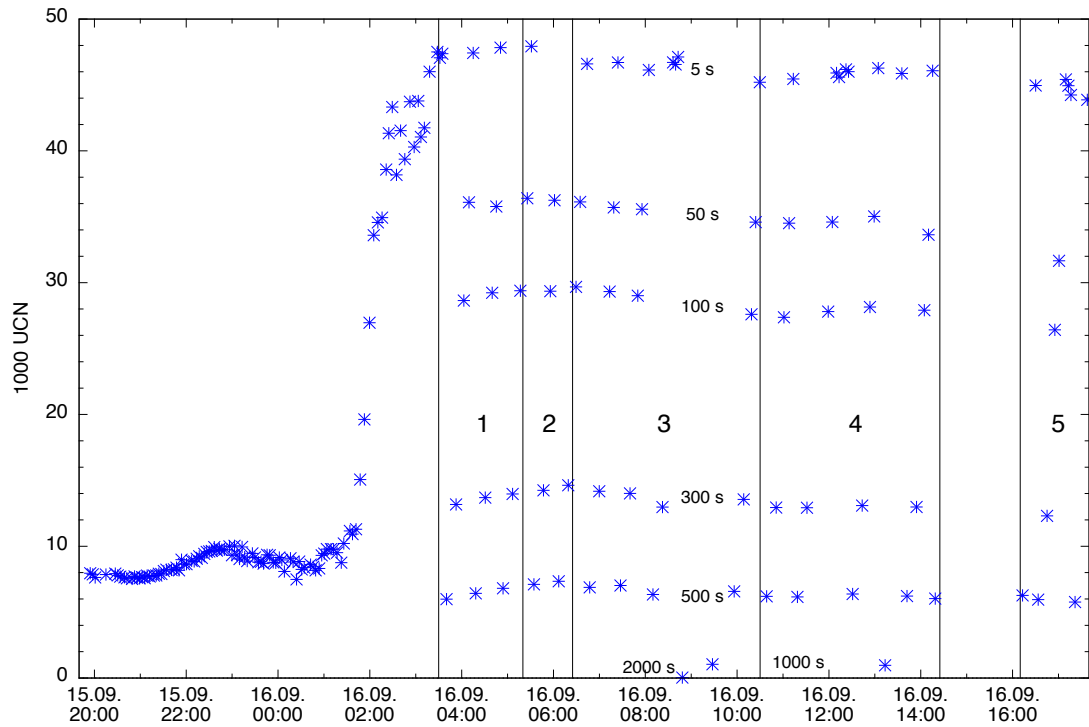


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet. Rechts war der Untergrund zu hoch für eine Auswertung.

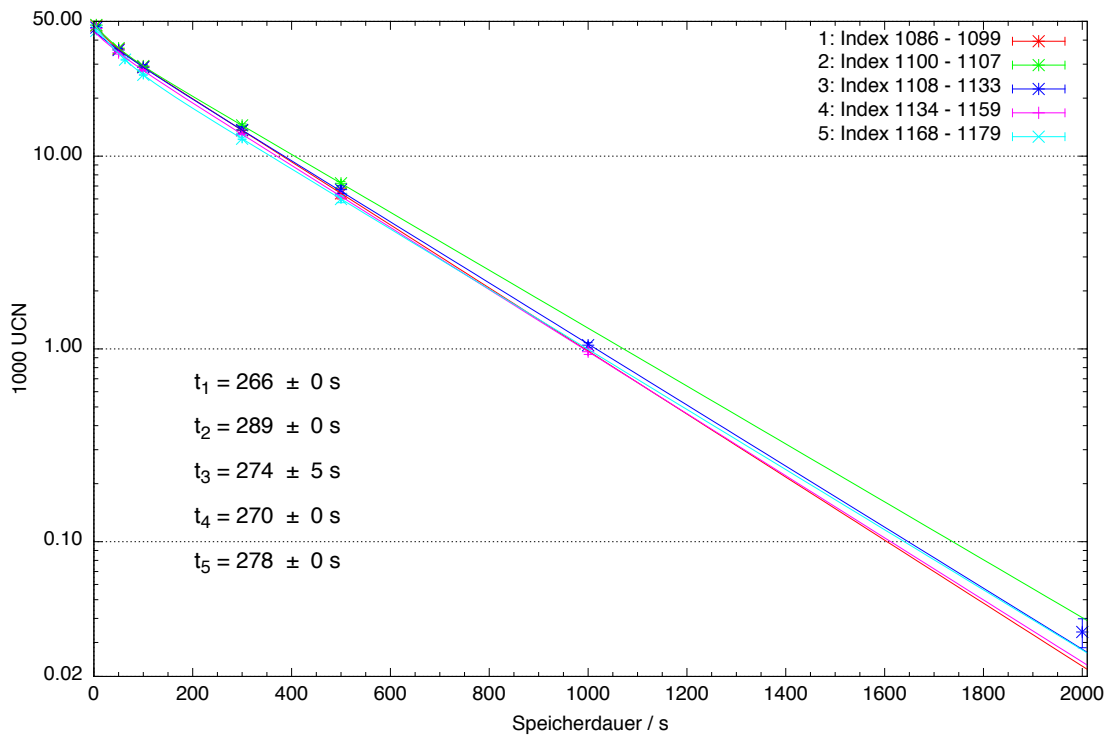


(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.3.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 3.

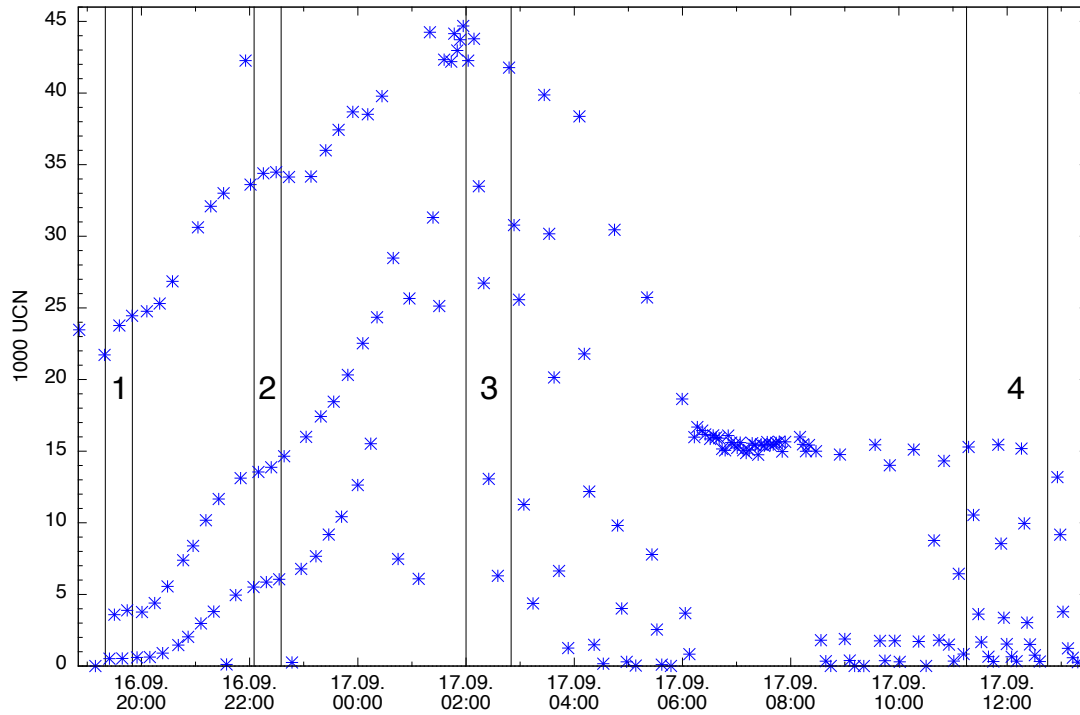


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.

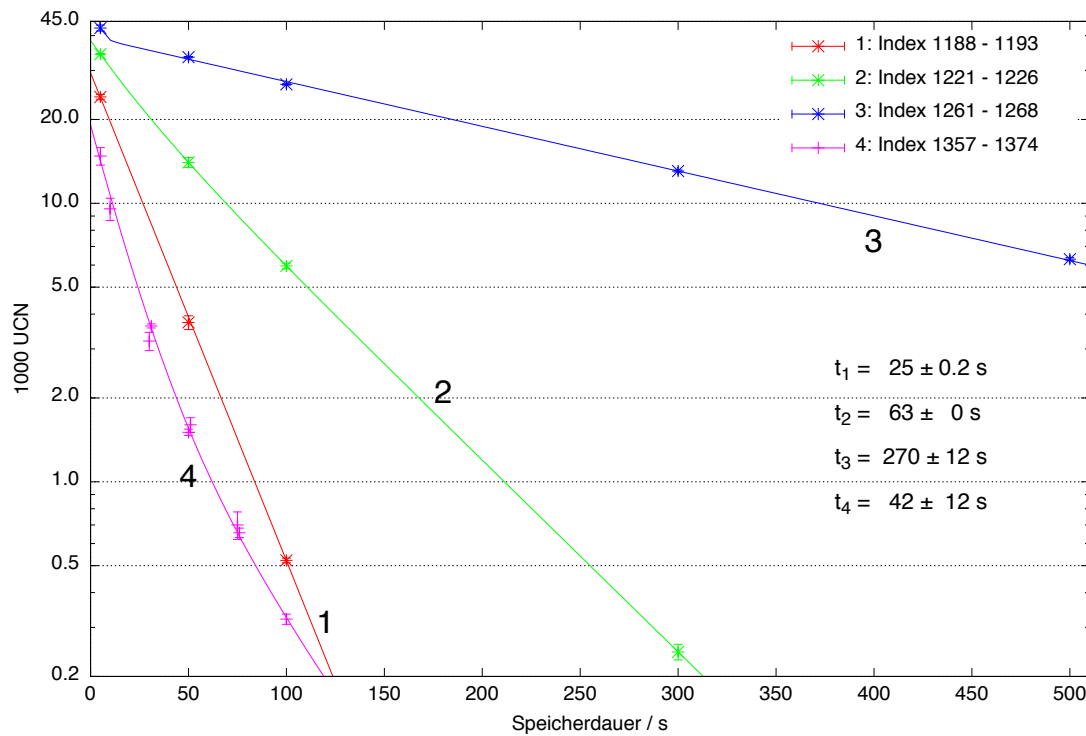


(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.4.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 4.

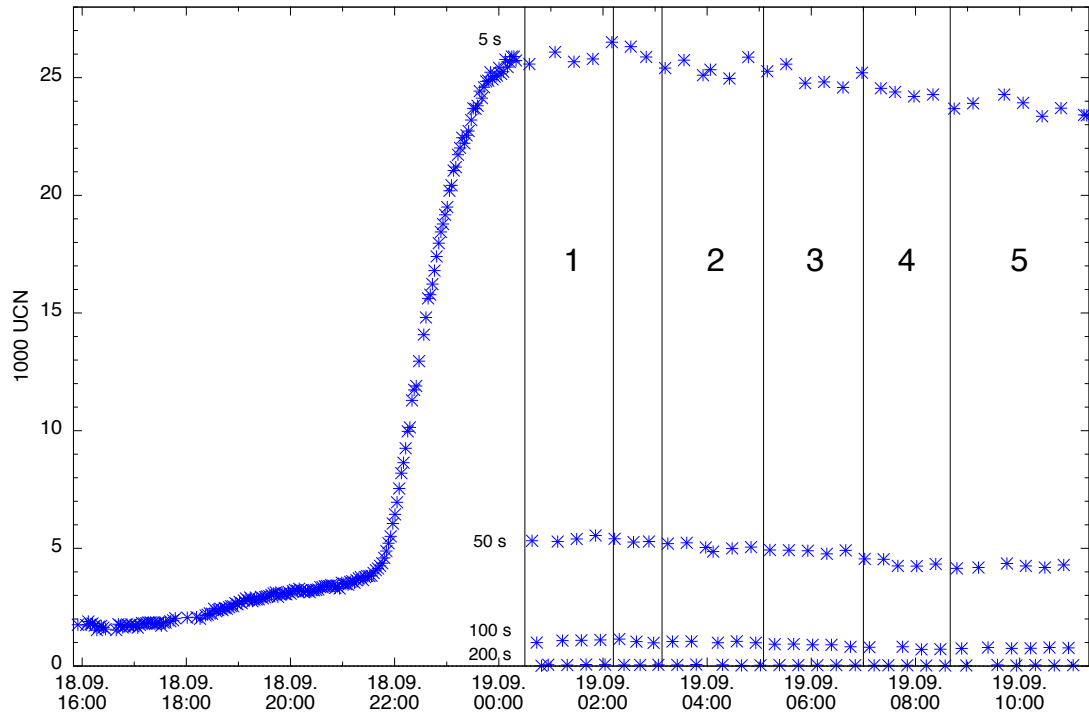


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.

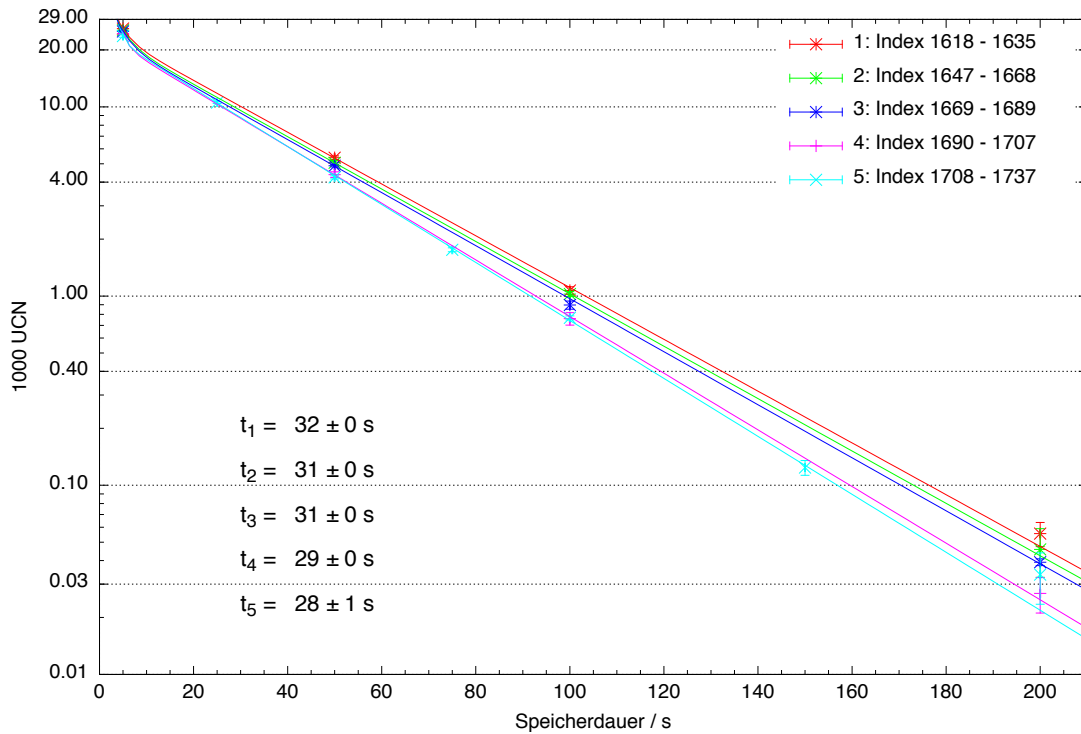


(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.5.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 5.

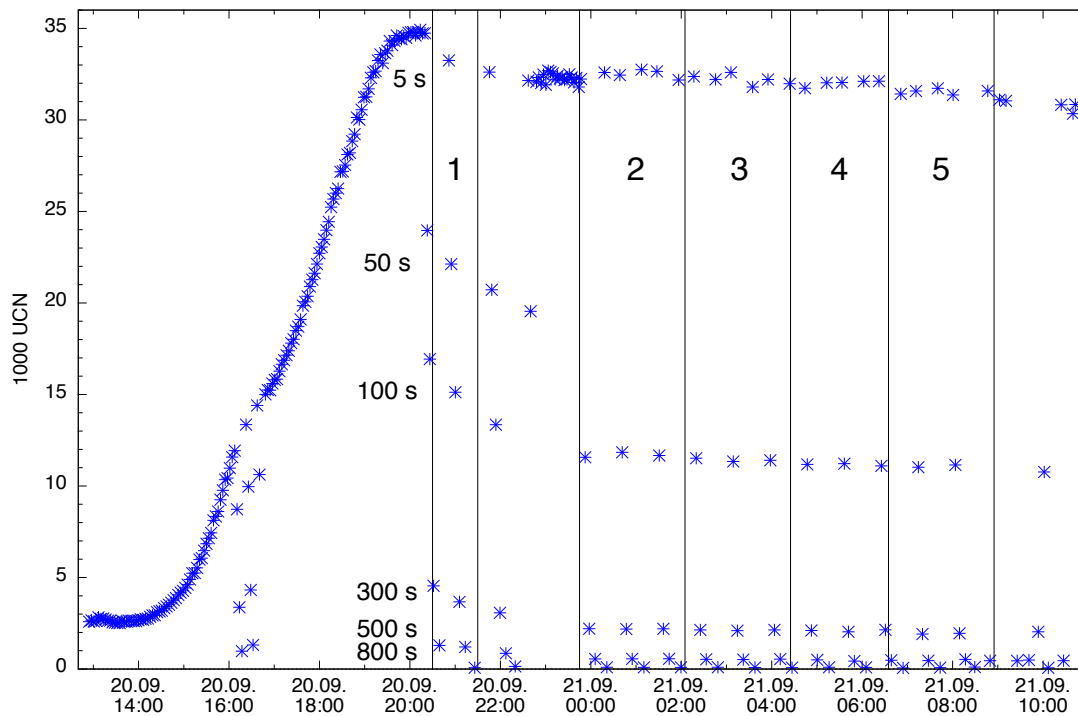


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.

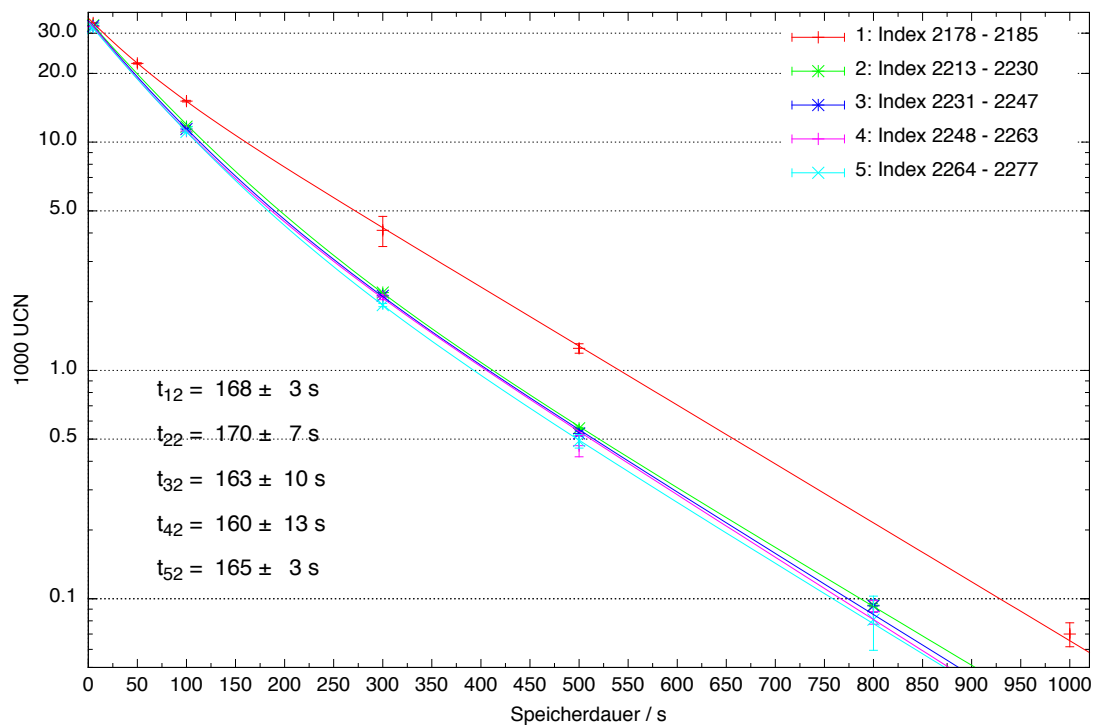


(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.6.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 6.

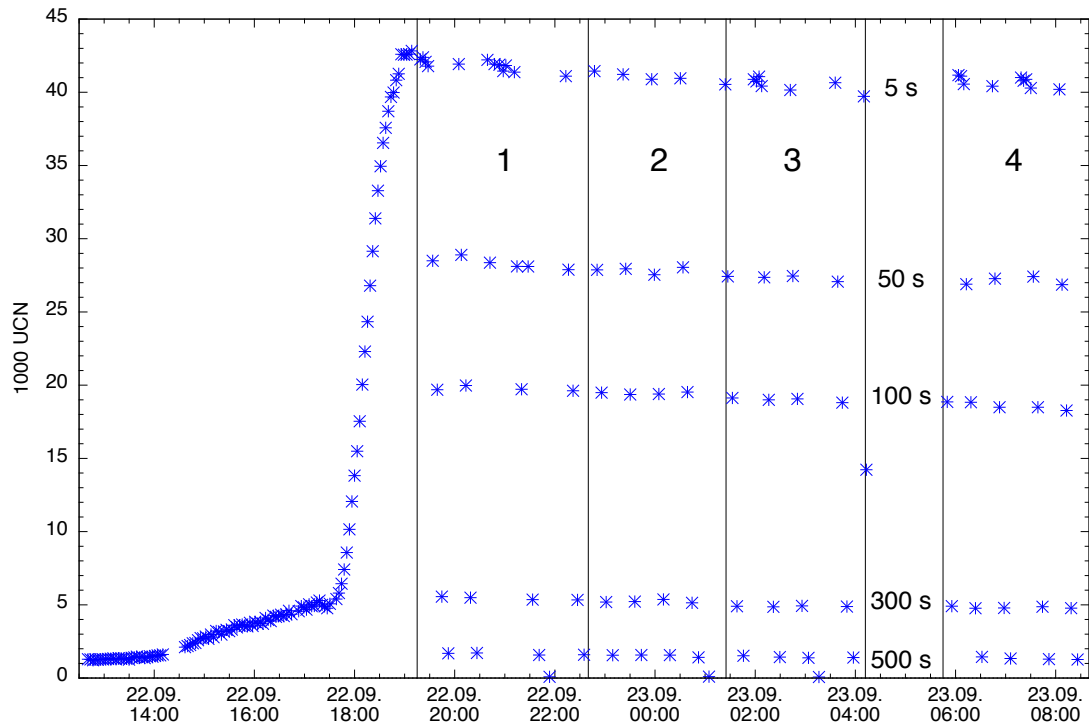


(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.

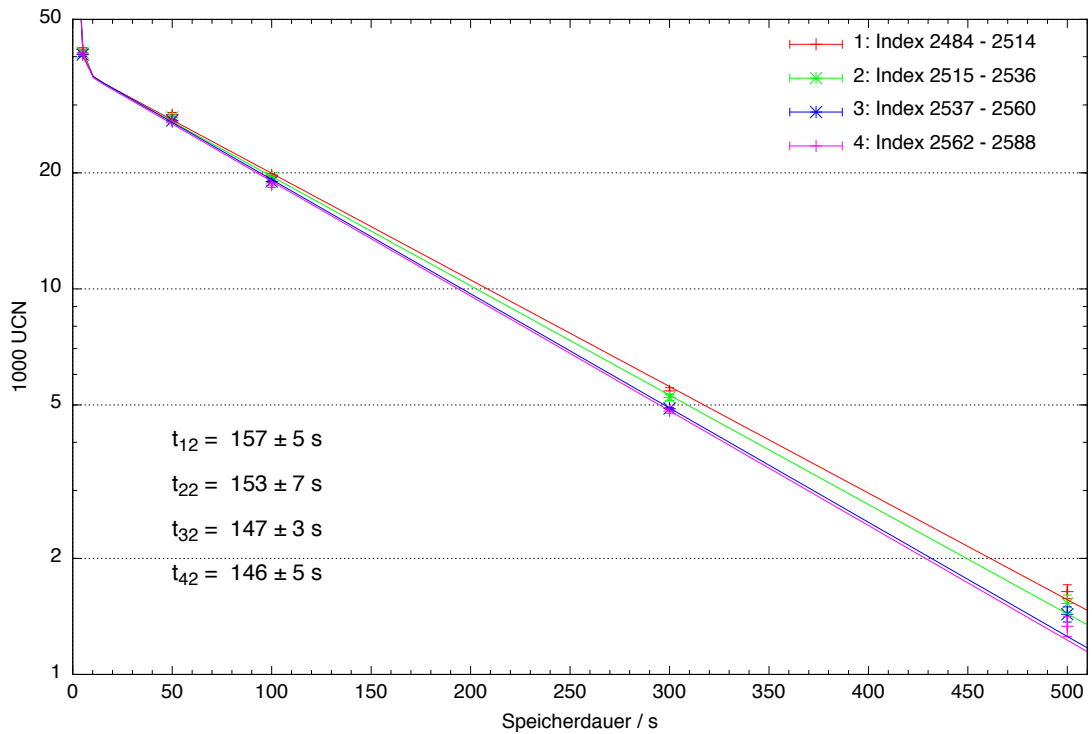


(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche. Da hier vermutlich ein geringer Untergrund von

**Abbildung C.7.:** UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 8.



(a) Zeitlicher Verlauf der UCN-Summen. Die nummerierten Bereiche zwischen den Balken wurden für die Speicherkurven verwendet.



(b) Speicherkurven der jeweiligen Bereiche.

Abbildung C.8.: UCN-Summen und Speicherkurven für Beschichtungszyklus 9.

## C.2. Einfluss der Konditionierung auf die UCN-Summen

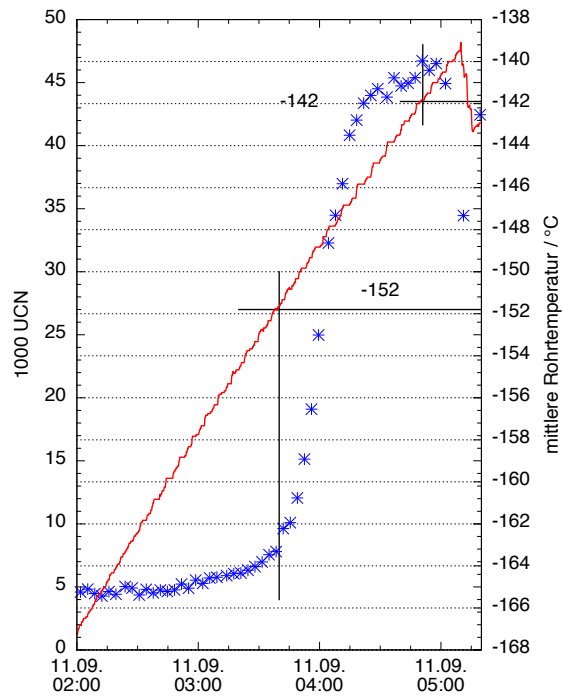


Abbildung C.9.: Messzyklus 1

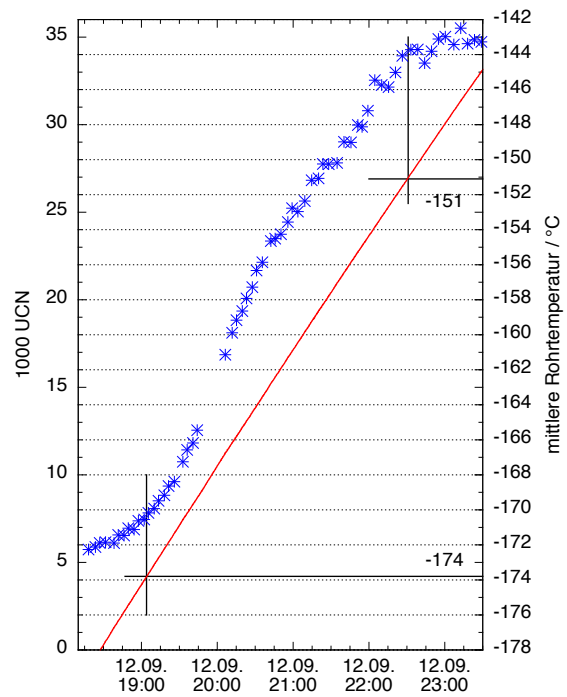


Abbildung C.10.: Messzyklus 2

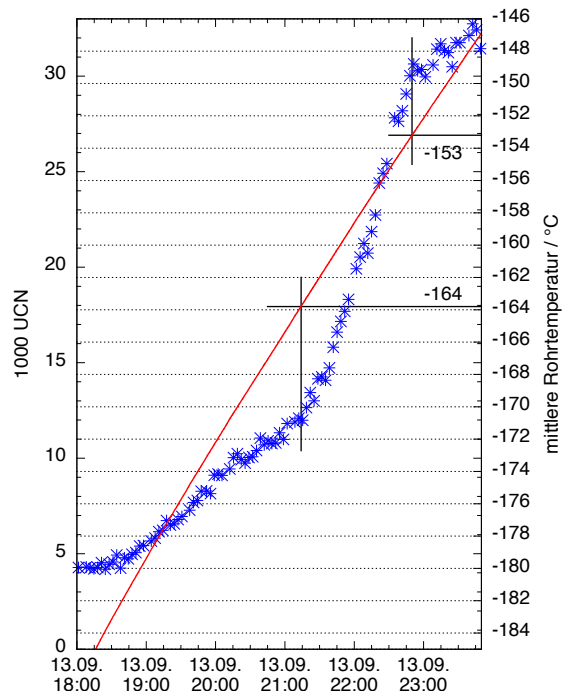


Abbildung C.11.: Messzyklus 3

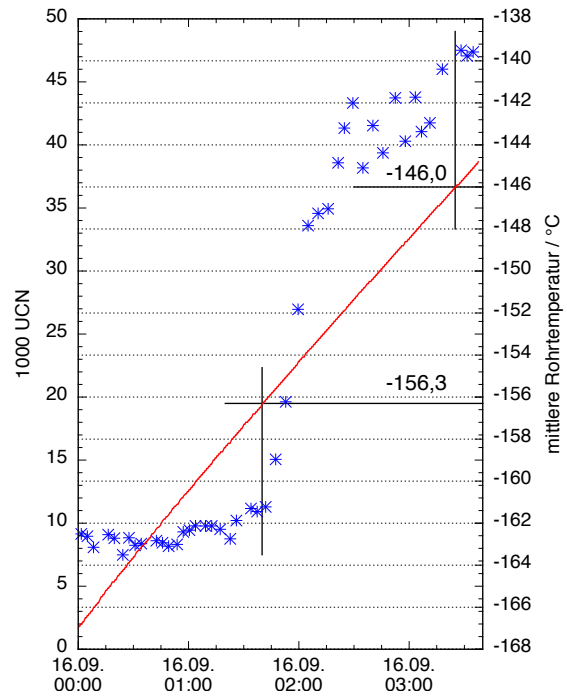


Abbildung C.12.: Messzyklus 4

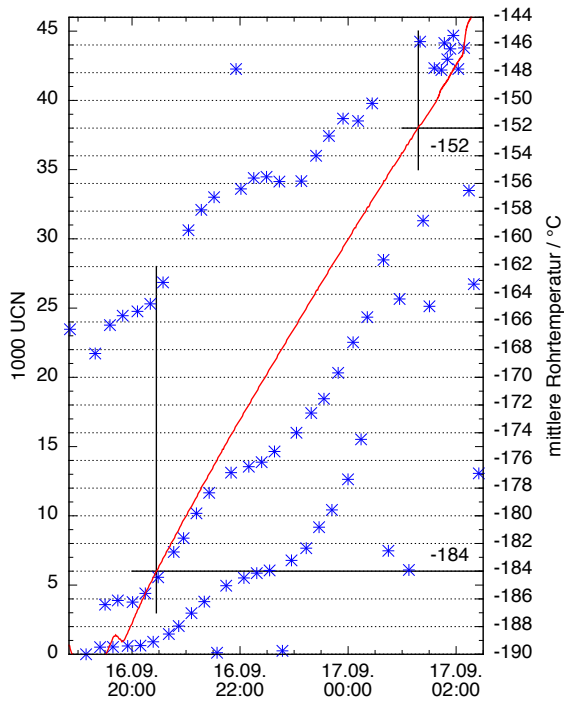


Abbildung C.13.: Messzyklus 5

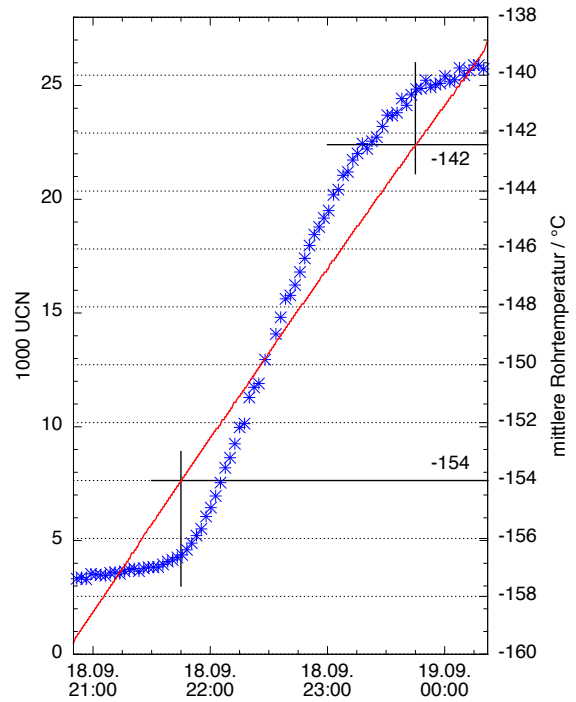


Abbildung C.14.: Messzyklus 6

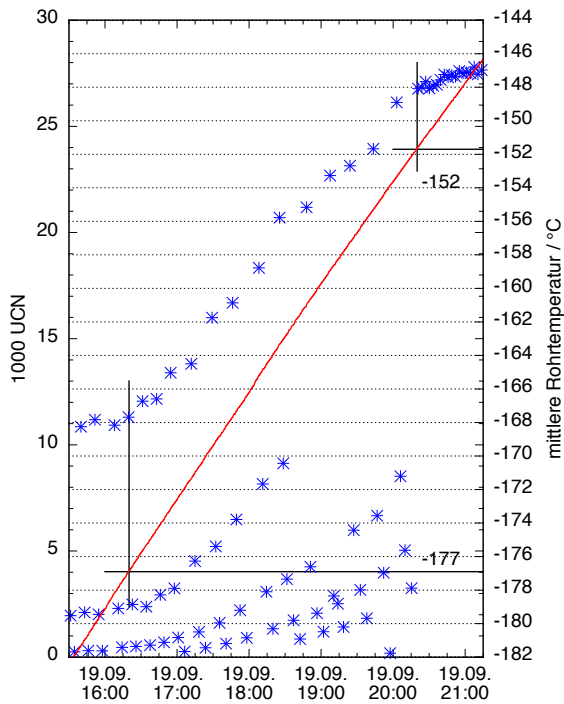


Abbildung C.15.: Messzyklus 7

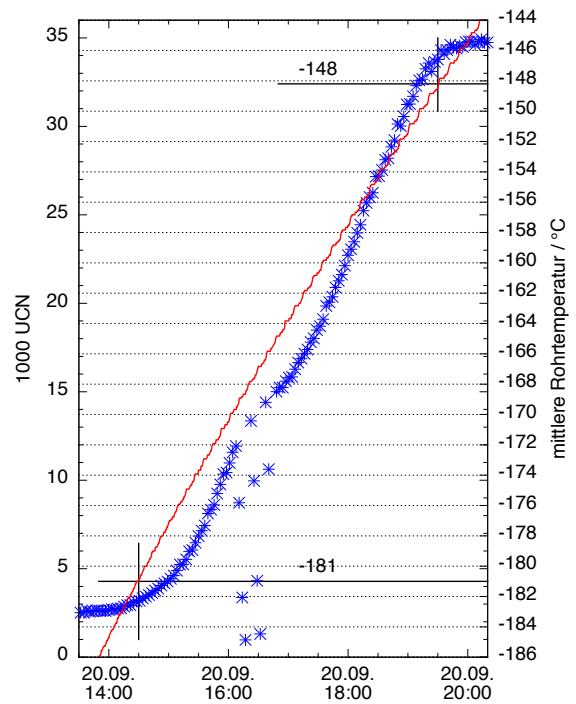


Abbildung C.16.: Messzyklus 8

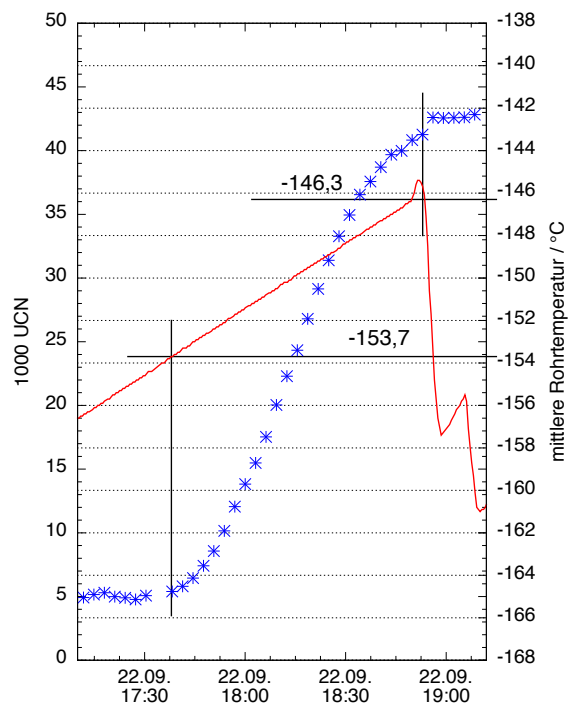
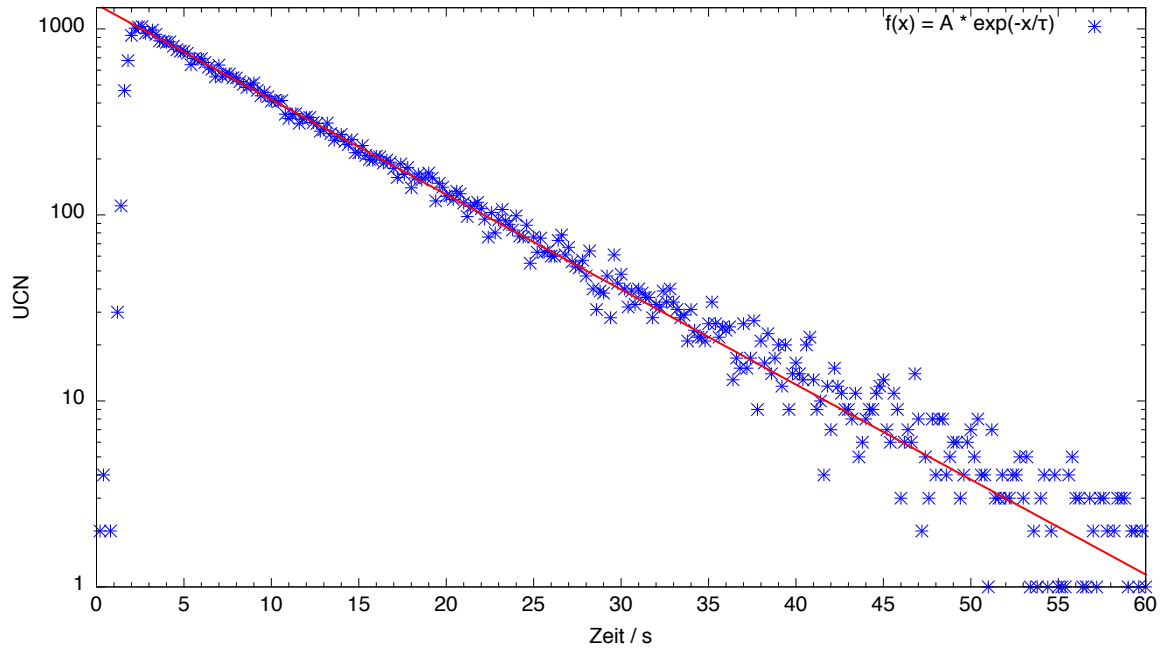
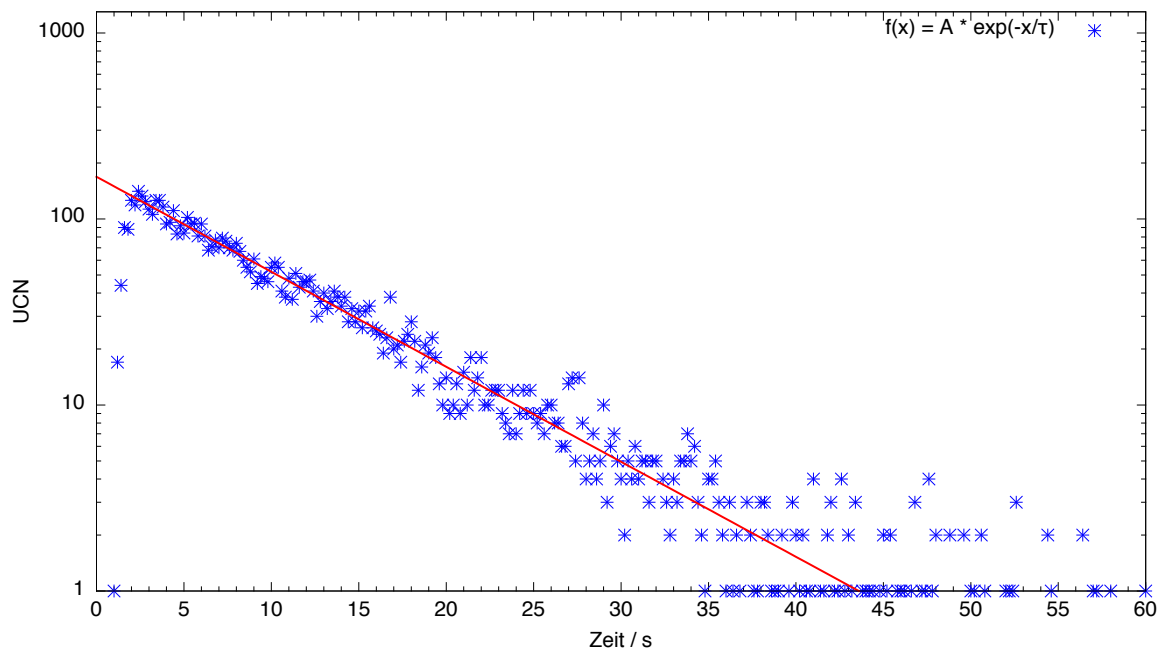


Abbildung C.17.: Messzyklus 9

## C.3. Entleerkurven

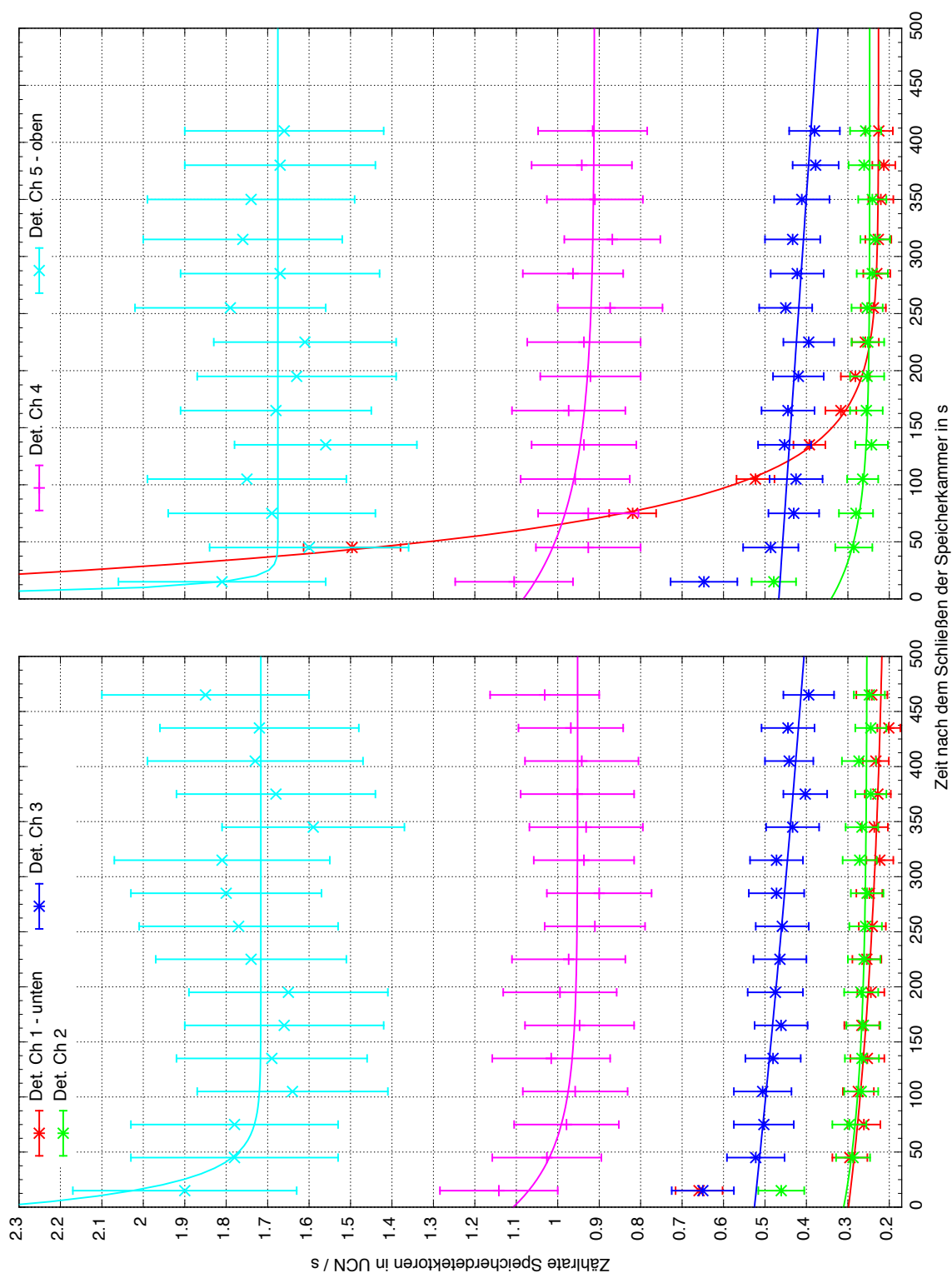


**Abbildung C.18.:** Entleerkurve von Index 1086 nach 5 s Speicherdauer mit einer Entleerzeit von  $(8,50 \pm 0,01)$  s.



**Abbildung C.19.:** Entleerkurve von Index 1087 nach 500 s Speicherdauer mit einer Entleerzeit von  $(8,50 \pm 0,11)$  s.

### C.4. Zählraten während der Speicherung



**Abbildung C.20.:** Verläufe der Zählraten der Speicherdetektoren während der Speicherung in den Zyklen 4 und 8. In den Kanälen 2, 4 und 5 ist das Signal bereits nach kurzer Zeit auf den Untergrund abgefallen. Ein deutlicher Unterschied ist in Kanal 1 (rote Linie) zu erkennen.