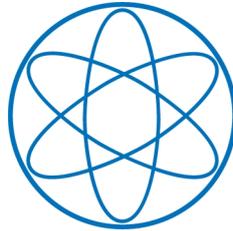


PHYSIK-DEPARTMENT



Produktion von ultrakalten Neutronen mit einem  
festen Deuteriumkonverter

Dissertation

von

Andreas Frei



TECHNISCHE UNIVERSITÄT  
MÜNCHEN

TECHNISCHE UNIVERSITÄT MÜNCHEN  
Physik Department E18

Produktion von ultrakalten Neutronen  
mit einem festen Deuteriumkonverter

Andreas Frei

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. Michael Ratz

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr. Stephan Paul  
2. Univ.-Prof. Dr. Klaus Schreckenbach

Die Dissertation wurde am 12.08.2008 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 28.10.2008 angenommen.

*Non est scientia quae hominem redimit.*  
*Homo per caritatem redimitur.*

BENEDICTUS PP. XVI

## Zusammenfassung

Die spontane Brechung fundamentaler Symmetrien ist ein attraktives Kapitel der modernen Teilchenphysik. Das qualitative und quantitative Verständnis der Parameter, die in diese Art von Prozessen involviert sind, könnte dabei helfen, die völlig unausgeglichene Balance zwischen Materie (Baryonen) und Antimaterie (Antibaryonen) zu erklären. Bedingt durch ihre Eigenschaften sind ultrakalte Neutronen (UCN) bestens für Experimente geeignet, die mit höchster Genauigkeit das elektrische Dipolmoment des Neutrons (EDM), die Neutronenlebensdauer  $\tau_n$ , die Axialvektorkopplungskonstante  $g_A$  oder Quanteneffekte der Gravitation bestimmen.

In dieser Arbeit wird der Aufbau einer Quelle für ultrakalte Neutronen mit einem festen Deuteriumkonverter beschrieben, welche als Prototyp einer neuartigen, starken UCN-Quelle entwickelt wurde, die am FRMII in Garching konzipiert und gebaut wird. Der Quellen-Prototyp wurde in Betrieb genommen und entscheidende Kenngrößen wurden experimentell charakterisiert. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit theoretischen Modellen verglichen, um Berechnungen über die Leistungsfähigkeit der neuen Quelle am FRMII zu bestätigen.

## Abstract

Spontaneous breaking of fundamental symmetries is an attractive topic in modern particle physics. Understanding qualitative and quantitative the parameters involved in these kind of processes could help to explain the unbalanced presence in the universe of matter (baryons) with respect to antimatter (anti-baryons). Due to their intrinsic properties, ultra cold neutrons (UCN) are excellent candidates for experiments measuring with high level of accuracy parameters like the electric dipole moment (EDM), the neutron lifetime ( $\tau_n$ ), the axial-vector coupling constant ( $g_A$ ), or in search of quantum effects of gravity.

In this work the setup of a source for ultra cold neutrons with a solid deuterium converter is described, which serves as a prototype for a new, strong UCN source, that is currently designed and constructed at the FRMII in Garching. The prototype source has been taken into operation and important parameters have been measured. These experimental results have been compared with theoretical models to prove calculations for the performance of the new source at the FRMII.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Ultrakalte Neutronen</b>	<b>7</b>
2.1	Fundamentale Wechselwirkungen . . . . .	7
2.1.1	Die starke Wechselwirkung . . . . .	7
2.1.2	Die Gravitation . . . . .	8
2.1.3	Die schwache Wechselwirkung . . . . .	9
2.1.4	Die magnetische Wechselwirkung . . . . .	9
2.2	Produktion von ultrakalten Neutronen . . . . .	10
2.2.1	Moderation . . . . .	10
2.2.2	Superthermischer Konverter . . . . .	11
2.3	Festes Deuterium als Konverter . . . . .	12
2.3.1	Produktions- und Verlustmechanismen . . . . .	12
2.3.2	Kristallbildung . . . . .	14
2.3.3	Ortho- und Para-Deuterium . . . . .	15
2.3.4	Konversion . . . . .	17
<b>3</b>	<b>Die UCN-Quelle am TRIGA-Reaktor Mainz</b>	<b>19</b>
3.1	Der TRIGA-Reaktor . . . . .	20

3.2	Der Inpile-Kryostat . . . . .	23
3.2.1	Die Konverternase . . . . .	24
3.2.2	Der UCN-Leiter . . . . .	25
3.2.3	Der Kryostatenbehälter . . . . .	26
3.3	Das Deuterium-Gassystem . . . . .	26
3.3.1	Das Vakuumsystem . . . . .	27
3.3.2	Das Deuteriumsystem . . . . .	29
3.3.3	Der Para/Ortho Konverter . . . . .	31
3.3.4	Das Raman-Spektrometer . . . . .	31
3.4	Das Steuerungssystem . . . . .	34
3.5	Detektor, Ausleseelektronik und Datenerfassung . . . . .	35
3.5.1	Detektor . . . . .	35
3.5.2	Ausleseelektronik und Datenerfassung . . . . .	36
3.6	Diverse Versorgungssysteme . . . . .	37
<b>4</b>	<b>Experimentelle Resultate</b>	<b>38</b>
4.1	Flugzeitspektrum . . . . .	38
4.2	UCN-Zählraten bei verschiedenen D <sub>2</sub> -Mengen . . . . .	40
4.3	UCN-Zählraten bei verschiedener Pulsenergie . . . . .	42
4.4	Vormoderatoren . . . . .	44
4.5	Temperaturabhängigkeit . . . . .	46
4.6	UCN-Geschwindigkeitsspektrum . . . . .	47
4.6.1	Gravitationsspektrometer . . . . .	48
4.6.2	Flugzeitspektrometer . . . . .	50
4.7	Speicherexperiment . . . . .	54
4.8	Wasserstoff-Konverter . . . . .	55

<b>5 Interpretation der experimentellen Resultate</b>	<b>57</b>
5.1 Verluste im Deuterium-Konverter . . . . .	57
5.2 Monte-Carlo-Simulation . . . . .	59
5.3 UCN-Erzeugung mit Vormoderator . . . . .	60
5.4 UCN-Produktionsraten im festen Deuteriumkonverter . . . . .	62
5.4.1 UCN-Produktionsrate in inkohärenter Näherung . . . . .	62
5.4.2 Neutronenfluss im Konverter . . . . .	64
5.4.3 UCN-Zählrate am Detektor . . . . .	65
5.4.4 Auswirkungen auf die UCN-Quelle Mini-D <sub>2</sub> am FRMII . . . . .	70
<b>Schlussbetrachtung</b>	<b>74</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>77</b>
<b>Danksagung</b>	<b>86</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Historische Entwicklung der UCN-Quellen. JINR: Joint Institute for Nuclear Research (Dubna, Russland). IAE: Kurchatov Institute of Atomic Energy (Moskau, Russland). PNPI: St. Petersburg Nuclear Physics Institute (Gatchina, Russland). TUM: Technische Universität München (Garching, Deutschland). SRIAR: Scientific Research Institute of Atomic Reactors (Dimitrovgrad, Russland). ILL: Institut Laue-Langevin (Grenoble, Frankreich). Daten aus [Ser1994, Ser2000]. . . . .	3
2.1	Phononenzustandsdichte für Ortho-D <sub>2</sub> bei 5 K. Kurve $g(\epsilon)$ berechnet von Nielsen und Bjerrum Møller [Nie1971]. Kurve $G(\epsilon)$ ist ein Debye-Spektrum mit überlagerten Gauss-Peaks bei 5.08, 5.50, 7.40 und 9.05 meV. Debye-Temperatur des Spektrums ist 110 K. $g(\epsilon)$ und $G(\epsilon)$ sind normalisiert: $\int_0^\infty g(\epsilon) = \int_0^\infty G(\epsilon) = 1$ . Plot aus [Yu1986]. . . . .	13
2.2	Aufwärtsstreuquerschnitte für festes Deuterium in Abhängigkeit der Konvertertemperatur für UCN mit $v = 8$ m/s. Durchgezogene Kurve: Aufwärtsstreuung an Ortho-D <sub>2</sub> durch Abregung eines Phonons. Gestrichelte Kurve: Aufwärtsstreuung an Para-D <sub>2</sub> durch Abregung eines Phonons. Gestricheltgekreuzte Kurve: Aufwärtsstreuung an Para-D <sub>2</sub> durch Umwandlung von Para-D <sub>2</sub> in Ortho-D <sub>2</sub> . Plot aus [Liu2000]. . . . .	14
2.3	Energieniveaus (schematisch) von Ortho-Deuterium (links, $J =$ gerade) und Para-Deuterium (rechts, $J =$ ungerade). . . . .	16
2.4	Gleichgewichtskonzentration von Para-Deuterium in Abhängigkeit von der Deuterium-Temperatur. . . . .	18
3.1	Zeitlicher Verlauf der Leistung bei verschiedenen Pulsformen des TRIGA Mainz (schematisch). . . . .	22

3.2	Anordnung der Strahlrohre am TRIGA Mainz. . . . .	22
3.3	Gemessene Neutronenfluenz (total und thermisch) pro Reaktorpuls (10.2 MJ) an den Strahlrohren C und D bei verschiedenen Abständen vom Strahlrohrende. Die Fehler liegen bei etwa 5%. . . . .	23
3.4	Der Inpile-Kryostat vor dem Einschieben in das Strahlrohr C. Im Bildhintergrund ist der Schutzgastank des Deuterium-Gassystems zu sehen. . . . .	24
3.5	Linke Seite: Die Konverternase am reaktorseitigen Ende des Inpile-Rohres. Abmessungen: Innendurchmesser 66 mm, Länge des doppelwandigen Teils 80 mm. Rechte Seite: Behälter für Vormoderatoren. Innendurchmesser des Behälters entspricht dem Außendurchmesser des doppelwandigen Teils der Konverternase, auf die er aufgeschoben werden kann. Zur thermischen Ankopplung zwischen Konverternase und Vormoderatorbehälter wurde Wärmeleitpaste verwendet. . . . .	25
3.6	Blick auf das UCN-Fenster am Ende des Neutronenleiters im Kryostatenbehälter. Zur mechanischen Stabilisierung wurde eine kreuzförmige Unterstützung angebracht. . . . .	27
3.7	Schematischer Aufbau des Deuterium-Gassystems. . . . .	28
3.8	Gemessene Konversionsrate des verwendeten Para/Ortho-Konverters. . . . .	32
3.9	Schematische Zeichnung des OXISORB <sup>®</sup> Para/Ortho Konverters. . . . .	32
3.10	Aufbau des Raman-Spektrometers zur Bestimmung des Para-Deuterium-Gehalts (schematisch). . . . .	33
3.11	Links: Gemessenes Raman-Spektrum einer mit Wasserstoff verunreinigten Deuterium-Probe. Rechts: Vergleich von zwei Raman-Spektren von Deuterium-Proben mit unterschiedlichem Para-Anteil. . . . .	34
3.12	Berechnete Detektions-Effizienz des Cascade-Detektors für UCN. An der UCN-Quelle am TRIGA Mainz wurden 200 nm <sup>10</sup> B benutzt. . . . .	36
4.1	Flugzeitspektren der am Detektor registrierten UCN, normiert auf die Reaktorleistung, nach einem Reaktorpuls (zur Zeit $t = 0$ ) ohne Vormoderator. Schwarze Rauten: Registrierte UCN bei 4.55 mol D <sub>2</sub> ohne Folie. Weisse Kreise: Untergrund ohne D <sub>2</sub> -Moderator. Schwarze Kreise: Ni-Folie vor der sensitiven Detektorfläche bei 4.65 mol D <sub>2</sub> . Weisse Dreiecke: Cu-Folie vor der sensitiven Detektorfläche bei 4.35 mol D <sub>2</sub> . . . . .	39

4.2	Gemessene UCN-Zählraten (normiert auf die Reaktor-Pulsenergie) als Funktion der ausgefrorenen D <sub>2</sub> -Menge. Schwarze Quadrate: Zählrate bei schrittweiser Erhöhung der D <sub>2</sub> -Menge um (0.2 – 0.3) mol bei konstanter Konvertertemperatur von 6 K ohne thermische Zyklen. Weisse Kreise: Thermische Zyklen des gefrorenen D <sub>2</sub> bewirken eine Zunahme der Zählrate, besonders bei Mengen größer 2 mol. Schraffiertes Dreieck: Zugehörige Fehlerbalken, hauptsächlich resultierend aus der Unsicherheit in der Reproduzierbarkeit (10%) der thermischen Zyklen. . . . .	40
4.3	Thermische Zyklen bei 4 mol festem Deuterium. Schwarze Quadrate: Gemessene Neutronen-Zählraten normalisiert auf die Pulsenergie bei aufeinanderfolgenden Reaktorpulsen. Hierbei wurde die Temperatur $T$ des Konverters (weisse Quadrate) im Bereich $6\text{ K} \leq T \leq 13\text{ K}$ periodisch erhöht und wieder abgesenkt. Ab Puls Nr. 25 war die Konvertertemperatur 6 K, und die gemessene Zählrate blieb konstant bei etwa 12000/MJ. . . . .	42
4.4	Gemessene Neutronen-Zählrate (normalisiert auf die Pulsenergie) ohne Vormoderator nach thermischen Zyklen des Konverters bei verschiedenen Deuteriummengen. Schwarze Quadrate: Ohne Folie vor dem Detektor. Weisse Kreise: Cu-Folie (500 nm) vor dem Detektor. Weisse Dreiecke: Ni-Folie (200 nm) vor dem Detektor. Die gestrichelten Linien sind gezeichnet, um die Effekte deutlich zu machen. . . . .	43
4.5	Integrale Neutronen-Zählraten bei verschiedenen Pulsenergien bei 4 mol festem Deuteriums. Der statistische Fehlerbalken ist kleiner als die Symbole. . . . .	43
4.6	Integrale Neutronen-Zählrate normiert auf die Pulsenergie nach thermischen Zyklen als Funktion der ausgefrorenen Deuteriummenge. Schwarze Quadrate: Ohne Vormoderator. Weisse Kreise: Mit Mesitylen-Vormoderator. Die gestrichelte Linie ist zur optischen Unterstützung. . . . .	46
4.7	Neutronen-Zählrate pro Puls in Abhängigkeit der Temperatur des festen Deuterium-Konverters (6 mol, mit Vormoderator, nach thermischen Zyklen). Die durchgezogene Linie ist eine Fitkurve (Polynom 3. Grades) an die Datenpunkte. . . . .	47
4.8	Schematischer Aufbau des Gravitationsspektrometers. 1: Vakuum-Shutter, 2: Bor-Plastik (Dicke etwa 10 cm), 3: UCN-Detektor. Der Detektor wurde zur Unterdrückung des Untergrundes mit Bor-Plastik abgeschirmt (nicht gezeigt). . . . .	48

4.9	Gemessene UCN-Zählraten pro Pulsenergie in Abhängigkeit von der effektiven Steighöhe des Gravitationsspektrometers. Bei allen Datenpunkten ist der Untergrund subtrahiert. . . . .	49
4.10	Schematische Darstellung des Flugzeitspektrometers. . . . .	50
4.11	Geschwindigkeitsspektrum der UCN-Quelle gemessen mit dem Flugzeitspektrometer. Schwarze Punkte: 4 mol-Konverter nach thermischen Zyklen. Weisse Punkte: 6.1 mol-Konverter ohne thermische Zyklen. Die Linie zeigt die Geschwindigkeitskomponente parallel zur Strahlachse. . . . .	51
4.12	Simulierte Winkelverteilung des Polarwinkels $\theta$ zwischen dem Impulsvektor der Neutronen und der Strahlachse des Neutronenleiters für verschiedene Neutronen-Geschwindigkeiten. Schwarze Quadrate: (5 – 10) m/s. Weisse Quadrate: (10 – 15) m/s. Schwarze Kreise: (15 – 20) m/s. Weisse Kreise: (20 – 25) m/s.	53
4.13	Gemessene Anzahl gespeicherter UCN (normiert auf die Reaktorenergie und untergrundbereinigt) in Abhängigkeit der Speicherzeit. Die eingezeichnete Gerade ist ein Fit an die Datenpunkte. . . . .	54
4.14	Gemessene Neutronenzählrate normiert auf die Pulsenergie als Funktion der Menge an festem Wasserstoff. Schwarze Punkte: Natürlicher Wasserstoff (25% ortho-H <sub>2</sub> ). Rote Punkte: Para-Wasserstoff (ortho-H <sub>2</sub> Anteil < 1%). . . . .	56
5.1	Vergleich von gemessenem und simuliertem Flugzeitspektrum der Neutronen nach einem Reaktorpuls. Beim gemessenem Spektrum wurde ein Konverter mit 7.5 mol D <sub>2</sub> benutzt, der thermische Zyklen (siehe Kapitel 4.2) durchlaufen hat. Das simulierte Spektrum wurde auf die Peakhöhe im gemessenen Spektrum normiert. . . . .	59
5.2	Integrale Neutronenzählrate normalisiert auf die Pulsenergie nach thermischen Zyklen als Funktion der ausgefrorenen Deuteriummenge. Schwarze Quadrate: Ohne Vormoderator. Weisse Kreise: Mit Mesitylen-Vormoderator. Die gestrichelte Linie ist zur optischen Unterstützung. Die durchgezogene Linie ist ein Fit an die Messpunkte gemäß Gleichung 5.10. . . . .	61
5.3	Horizontale Schnitte durch die Monte Carlo Modelle des Konverters bei verschiedenen Deuterium-Füllmengen. Die spektralen Neutronenflussdichten werden jeweils in Kugeln in der UCN-Quelle bestimmt. . . . .	66

5.4	Spektrale Neutronenflussdichten $d\Phi/dE$ (simuliert) im Konverter als Funktion der Menge festen Deuteriums <i>ohne</i> Vormoderator. Als Fit-Modell wurde eine Superposition von zwei Maxwell-Verteilungen gewählt. Die Kurven sind normiert $\int_0^\infty \frac{d\Phi}{dE} dE = 1$ . . . . .	67
5.5	Spektrale Neutronenflussdichten $d\Phi/dE$ (simuliert) im Konverter als Funktion der Menge festen Deuteriums <i>mit</i> Vormoderator. Als Fit-Modell wurde eine Superposition von zwei Maxwell-Verteilungen gewählt. Die Kurven sind normiert $\int_0^\infty \frac{d\Phi}{dE} dE = 1$ . . . . .	67
5.6	Modelle für die Phononenzustandsdichte $g(\epsilon)$ im festen Deuterium, die bei den theoretischen Berechnungen der UCN-Produktionsrate verwendet wurden. Beide Funktionen sind normiert $\int_0^\infty g(\epsilon)d\epsilon = 1$ . . . . .	68
5.7	Vergleich der berechneten UCN-Zählraten (durchgezogene Linien) am Detektor mit den experimentellen Messungen (Rechtecke) <i>ohne</i> Vormoderator. Als Fitparameter wurde $\lambda_{\text{loss}} = 8$ cm für alle berechneten Kurven gewählt. . . . .	69
5.8	Vergleich der berechneten UCN-Zählraten (durchgezogene Linien) am Detektor mit den experimentellen Messungen (Rechtecke) <i>mit</i> Vormoderator. Als Fitparameter wurde $\lambda_{\text{loss}} = 5$ cm für alle berechneten Kurven gewählt. . . . .	69
5.9	Schnitt durch den FRMII (schematisch). Die geplante UCN-Quelle Mini-D <sub>2</sub> soll im durchgehenden Strahlrohr SR6 eingebaut werden. Der Abstand des UCN-Konverters vom Strahlrohrausgang nach dem biologischen Schild beträgt 6 m. . . . .	72

# Tabellenverzeichnis

2.1	Fermi-Potentiale einiger ausgewählter Materialien, die teilweise bei der in dieser Arbeit beschriebenen UCN-Quelle verwendet wurden. Werte aus [Ign1990, Gol1991]. . . . .	8
2.2	Physikalische Daten von Ortho-Deuterium. Daten aus [Rod1973, Sil1980, Sou1986, Har1999]. . . . .	12
3.1	Zusammenfassung der im Schema 3.7 verwendeten Abkürzungen. . . . .	29
5.1	Zusammenfassung der erreichbaren UCN-Flüsse und UCN-Dichten der Mini-D <sub>2</sub> -Quelle am FRMII und des Prototyps am TRIGA Mainz. . . . .	73

# Kapitel 1

## Einleitung

Neutronen bezeichnet man als ultrakalt, wenn sie so langsam sind, dass sie gespeichert werden können. Solche Speicheranordnungen können aus geeigneten Materialien mit einem hohen kohärenten stark wechselwirkenden Potential, dem Fermi-Potential bestehen. Hohe Fermi-Potentiale sind in der Größenordnung von  $\sim 300$  neV. Auch die magnetische und die gravitative Wechselwirkung der Neutronen können zur Speicherung eingesetzt werden.

Gespeicherte Neutronen verhalten sich in vielerlei Hinsicht wie ein ideales Gas mit einer korrespondierenden Temperatur von einigen Millikelvin. Sie können über lange Zeiträume beobachtet werden. In idealen Neutronenspeichern ist die Speicherzeit nur durch die Lebensdauer des freien Neutrons begrenzt. Dies resultiert in langen Beobachtungsdauern von einigen Minuten, verglichen mit Strahlexperimenten, bei denen die typischen Beobachtungszeiten nur etliche Millisekunden betragen.

Speicherexperimente mit Neutronen ermöglichen durch die lange Beobachtungsdauer die Bestimmung von fundamentalen Eigenschaften des Neutrons mit höchster Präzision. Das Neutron stellt hierbei ein Labor dar, in welchem fundamentale Symmetrien und ihre Brechung in der Natur untersucht werden können.

Dies geschieht bei der Untersuchung des Neutronenzerfalls, wobei die Lebensdauer des Neutrons eine wichtige und komplementäre Größe zur Bestimmung von Zerfalleigenschaften darstellt. Gerade bei der Messung der Lebensdauer herrscht derzeit große Unsicherheit: Im Vergleich zum Wert für die Lebensdauer, der von der Particle Data Group (PDG) akzeptiert wird [Yao2006], beziehungsweise zu der genauesten Messung [Arz2000], aus der im wesentlichen der Fehler dieses Werts gebildet wird, zeigen jüngste Messungen der Lebensdauer [Ser2005] eine Abweichung um mehr als  $6.5\sigma$  vom Mittelwert bzw.  $5.6\sigma$  von der genauesten Messung. Deshalb wird diese Messung von der PDG momentan nicht akzeptiert. Wohl aber sieht die PDG Klärungsbedarf und regt neue Messungen der Neutronenlebensdauer an. Deshalb wird

auch an diesem Lehrstuhl ein neues Experiment zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer vorbereitet [Pic2004, Bro2004, Pic2005].

Der Neutronenzerfall ist ein Prozess der schwachen Wechselwirkung. Im Standardmodell können aus der Lebensdauer und den Korrelationskoeffizienten des Zerfalls die Kopplungskonstanten  $g_v$  und  $g_a$  der schwachen Wechselwirkung abgeleitet werden. Ein Hauptelement der Cabibbo-Kobayashi-Maskawa-Matrix (CKM-Matrix), die im Standardmodell der Teilchenphysik die Mischung von Massen-Eigenzuständen und Eigenzuständen der schwachen Wechselwirkung beschreibt, nämlich  $V_{ud}$  kann aus den Koeffizienten des  $\beta$ -Zerfalls und der Lebensdauer abgeleitet werden. Die Bestimmung von  $V_{ud}$  mit höchster Präzision kann Hinweise auf eventuelle Abweichungen vom Standardmodell geben, die derzeit untersucht werden [Abe2004].

Eine weitere wichtige Messgröße, die mit ultrakalten Neutronen bestimmt werden kann, ist das elektrische Dipolmoment (EDM) des Neutrons. Die Existenz eines EDM des Neutrons ist durch die Erhaltung der Zeitumkehrinvarianz verboten. Eine Brechung dieser Symmetrie, insbesondere die Beobachtung eines Dipolmoments in der Größenordnung von  $10^{-32}$  e · cm oder mehr, könnte nicht durch bisherige theoretische Modelle erklärt werden. Neue Theorien der Symmetrieeigenschaften könnten bestätigt oder widerlegt werden.

Jüngste Messungen des elektrischen Dipolmoments  $d$  geben als Obergrenze  $|d| < 2.9 \cdot 10^{-26}$  e · cm (90% C.L.) [Bak2006] an. In diesem Bereich sind also signifikante Verbesserungen nötig, um die Obergrenze weiter zu senken. Derzeit werden von einigen Gruppen weltweit neue Experimente geplant, die Messungen des EDM mit höchster Präzision erlauben [NEDM-PSI].

Ebenfalls wurden Quantenzustände des Neutrons im Gravitationsfeld der Erde mit ultrakalten Neutronen beobachtet [Nes2002, Nes2003, Nes2005]. Die Quantisierung von Teilchen, die in Potentialtöpfen gebunden sind, ist ein gängiges Konzept der modernen Physik. Allerdings ist die Gravitation im Vergleich zur elektromagnetischen oder starken Wechselwirkung extrem schwach, so dass die Beobachtung solcher Quantenzustände experimentell sehr anspruchsvoll ist. Ultrakalte Neutronen sind für solche Experimente die geeignetsten Kandidaten [Abe2003, Bae2007].

Der statistische Fehler in all diesen Experimenten resultiert aus der Anzahl an ultrakalten Neutronen, die beobachtet wurden. Konventionelle Produktionsmechanismen basieren auf der Extraktion der Neutronen im niederenergetischsten Teil des Geschwindigkeitsspektrums, welches durch Kernspaltung und anschließende Thermalisierung erzeugt wird. Kalte Moderatoren können dieses Spektrum weiter zu kleineren Energien hin verschieben.

Schon seit etwa 40 Jahren [Lus1969] wurden etliche Quellen für ultrakalte Neutronen an verschiedenen Orten weltweit installiert, teilweise über viele Jahre hinweg betrieben und ständig verbessert. So konnte die erreichbare UCN-Dichte, die diese Quellen den Experimenten lie-

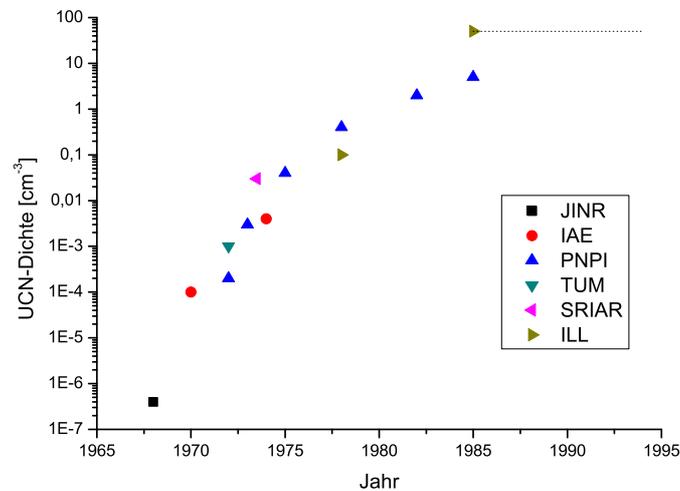


Abbildung 1.1: Historische Entwicklung der UCN-Quellen. JINR: Joint Institute for Nuclear Research (Dubna, Russland). IAE: Kurchatov Institute of Atomic Energy (Moskau, Russland). PNPI: St. Petersburg Nuclear Physics Institute (Gatchina, Russland). TUM: Technische Universität München (Garching, Deutschland). SRIAR: Scientific Research Institute of Atomic Reactors (Dimitrovgrad, Russland). ILL: Institut Laue-Langevin (Grenoble, Frankreich). Daten aus [Ser1994, Ser2000].

ferten, bis zum heutigen Tag um viele Größenordnungen gesteigert werden, wie in Abbildung 1.1 zu sehen ist. All diese Quellen haben eine Sache gemeinsam: Sie funktionieren nach dem Moderator-Prinzip. Die derzeit leistungsstärkste Quelle für ultrakalte Neutronen dieser Art befindet sich am Institut Laue-Langevin (ILL), wo sich in der kalten Quelle, die einem thermischen Neutronenfluss von  $4.5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  ausgesetzt ist, eine Dichte an ultrakalten Neutronen von etwa  $1000 \text{ cm}^{-3}$  aufbaut. Allerdings ist die Extraktion der Neutronen in die Experimente mit signifikanten Verlusten behaftet, sodass sich dort Dichten einstellen, die um etwa zwei Größenordnungen kleiner sind als die Dichte in der kalten Quelle.

Seit etwa 20 Jahren stagniert die Leistungssteigerung bei den UCN-Quellen. So wurde bis heute keine neue UCN-Quelle in Betrieb genommen, die die des ILL übertrifft. Der Grund hierfür ist, dass das Moderationsprinzip und das UCN-Extraktionsprinzip nahezu ausgeschöpft sind. Leistungsstärkere Quellen würden noch großvolumigere und kältere Moderatoren an noch flusstärkeren Neutronenquellen benötigen. Stärkere Neutronenquellen verursachen aber noch größeren Wärmeeintrag durch nukleare Heizung in die Moderatoren, die andererseits gleichzeitig kälter werden und ein größeres Volumen haben sollten. Dies führt zu massiven Problemen bei der technischen Realisierbarkeit der dazu benötigten Kryosysteme. Der Ausweg hieraus

kann nur ein andersartiges Prinzip zur Produktion der ultrakalten Neutronen sein.

”Superthermische” Produktionsmechanismen können ultrakalte Neutronendichten liefern, die bestehende Quellen um Größenordnungen übertreffen. Ein solcher Produktionsmechanismus in superfluidem  $^4\text{He}$  wurde erstmals 1975 von Golub und Pendlebury vorgeschlagen [Gol1975] und wenig später experimentell nachgewiesen [Gol1983b]. Dieser Produktionsprozess nutzt die Anregung von Phononen im flüssigen Helium aus, um kalte Neutronen in das Energieregime der ultrakalten Neutronen zu streuen. Die Streuung von bereits erzeugten ultrakalten Neutronen hin zu höheren Energien wird hierbei stark unterdrückt ( $\propto \exp(-E/(k_{\text{B}}T))$ ), wenn das superfluide  $^4\text{He}$  auf tiefen Temperaturen ( $T \approx 0.5\text{ K}$ ) gehalten wird. Eine superthermische Quelle für ultrakalte Neutronen, die dieses Produktionsprinzip verfolgt, wurde erst kürzlich an diesem Lehrstuhl entwickelt und erfolgreich in Betrieb genommen [Sco2003, Scm2006a, Scm2006b, Fra2007, Zim2007].

Die Dichte ultrakalter Neutronen, die in einem superthermischen Konverter erreicht werden kann, ist beschränkt durch die Verluste bei Stößen dieser Neutronen mit den Wänden, die den Konverter umgeben, und durch die Absorption des Konvertermaterials. Für einen  $^4\text{He}$ -Konverter ist letztere gleich Null. Auch andere Materialien als  $^4\text{He}$  sind als Konverter nach dem superthermischen Prinzip geeignet. Bei vielen ist aber die nicht vernachlässigbare Absorption ein limitierender Faktor.

Festes Deuterium ist ein Konvertermaterial mit einem vergleichsweise kleinen Wirkungsquerschnitt für Absorption. Es besitzt ein Phononenanregungsspektrum, das geeignet ist, thermische und kalte Neutronen in den ultrakalten Bereich zu streuen [Gol1983a]. Die daraus resultierende Produktionsrate an ultrakalten Neutronen ist hierbei etwa einen Faktor 30 größer als bei  $^4\text{He}$ . Bei Konvertertemperaturen unterhalb von 5 K ist der Wirkungsquerschnitt für die Streuung von ultrakalten Neutronen hin zu höheren Energien kleiner als der Absorptionsquerschnitt [Yu1986, Liu2000]. Dies vereinfacht die erforderliche Kryotechnik, da die Kühlung des Konverters mit flüssigem Helium erfolgen kann.

Aus dem Wirkungsquerschnitt für Absorption von festem Deuterium [Kap1952] kann die maximal erreichbare Lebensdauer von ultrakalten Neutronen im Deuterium bei 5 K mit  $\tau_{\text{D}_2} = 70\text{ ms}$  berechnet werden [Yu1986]. Dieser Wert kann nur erreicht werden, wenn sich das Deuterium zu 100% im Ortho-Zustand befindet. Diese Lebensdauer ist natürlich zu klein, um eine sinnvolle Anzahl an ultrakalten Neutronen im Deuterium zu akkumulieren. Also sollten die produzierten ultrakalten Neutronen den Konverter möglichst schnell verlassen, und in einem Speichergefäß, das vom Konverter abgetrennt werden kann, gesammelt werden. Mit einer solchen Methode können sich in diesem Speichergefäß unter idealen Bedingungen Dichten von bis zu  $10^4\text{ cm}^{-3}$  aufbauen [Atc2005a], wenn man einen typischen thermischen Neutronenfluss von  $10^{14}\text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  zugrunde legt, wie er an modernen Hochflussreaktoren herrscht. Die Kombination von einem festen Deuteriumkonverter mit einer starken kalten Quelle an einem

Hochfluss-Forschungsreaktor wäre also eine nahezu perfekte Wahl, um die weltweit stärkste Quelle für ultrakalte Neutronen zu bauen.

Neue Quellen nach dem superthermischen Prinzip werden derzeit an der Forschungsneutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRMII) [Tri2000], am Paul-Scherrer-Institut (PSI) [UCN-PSI], am Institut Laue-Langevin (ILL) [Bak2003], an der High Energy Accelerator Research Organisation (KEK) [Mas2002, Yos1992], am Los Alamos Neutron Science Center (LANSCE) [San2004] und am PULSTAR-Reaktor der North Carolina State University [Kor2007] geplant oder befinden sich im Bau. Zum jetzigen Zeitpunkt ist keine dieser Quellen voll einsatzfähig oder übertrifft die UCN-Quelle am ILL. Lediglich LANSCE hat seine UCN-Quelle bereits in Betrieb genommen und berichtete von gespeicherten UCN-Dichten von  $(145 \pm 7)$  UCN/cm<sup>3</sup> [San2004] in einem Volumen von knapp 3.6 l, welches allerdings nur etwa 1 m in horizontaler Richtung vom Konverter entfernt war. Effektiv nutzbare UCN-Dichten bei Experimenten, welche aus Platzgründen weiter entfernt vom Konverter, außerhalb eines biologischen Schildes installiert sind, sind wohl um mehr als eine Größenordnung geringer, wie jüngste Berichte zeigen [See2008].

Der Lehrstuhl E18 des Physik Departments der Technischen Universität München beschäftigt sich schon seit einigen Jahren intensiv mit der Planung und dem Bau der "Mini-D<sub>2</sub>"-Quelle für ultrakalte Neutronen am FRMII [Sei1999, Gro2001, Fre2002, Gsc2003, Scd2005, Tor2007, Urb2007], welche einen festen Deuteriumkonverter benutzen soll. Aber nicht nur an Hochflussreaktoren können superthermische Quellen gebaut werden. Auch pulsare TRIGA-Reaktoren mit ihrem vergleichsweise kleinen Wärmeeintrag in den Konverter durch nukleare Heizung bieten geeignete Voraussetzungen, um ultrakalte Neutronen zu erzeugen und zu speichern, was von Pokotilovski bereits 1995 vorgeschlagen wurde [Pok1995].

Deshalb wurde am TRIGA-Reaktor des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz eine Quelle ultrakalter Neutronen mit einem festen Deuteriumkonverter aufgebaut und in Betrieb genommen. Diese Quelle dient als Prototyp für die geplante Mini-D<sub>2</sub>-Quelle am FRMII. Grundlegende Funktionen, wie etwa die Kryotechnik und Konverterpräparation, wurden an ihr untersucht. Die erreichbare Ausbeute an ultrakalten Neutronen wurde gemessen. Dies erlaubt durch Skalierung der thermischen Neutronenflüsse vom TRIGA Mainz auf den FRMII berechnete Produktionsraten an der Mini-D<sub>2</sub>-Quelle zu bestätigen.

Die Prototyp-Quelle erlaubt es, in einfacher Weise Materialuntersuchungen von neuen Neutronenleiter- und Speicherflaschenbeschichtungen durchzuführen. Verschiedene Vormoderatormaterialien wurden auf ihren möglichen Einsatz an der Mini-D<sub>2</sub>-Quelle überprüft. Ein etwas verbesserter Nachbau der Prototyp-Quelle wird derzeit in ein leistungsfähigeres Strahlrohr des TRIGA Mainz gebaut.

Ziel und Aufgabe dieser Dissertation war es, die Prototyp-Quelle aufzubauen und in Betrieb

zu nehmen, und wesentliche Parameter, wie beispielsweise die UCN-Produktion zu vermessen. Die gewonnenen Ergebnisse erlaubten es, einige Parameter der geplanten Mini-D<sub>2</sub>-Quelle am FRMII zu optimieren. Einige gravierende Probleme konnten so bereits in der Planungsphase erkannt und behoben werden. Auch andere superthermische Quellen können die experimentellen Ergebnisse zur Optimierung Ihrer Betriebsparameter nutzen.

# Kapitel 2

## Ultrakalte Neutronen

Ultrakalte Neutronen (ultra cold neutrons, UCN) sind Neutronen mit sehr kleinen kinetischen Energien, typischerweise kleiner  $\sim 300$  neV. Wie in den folgenden Abschnitten ausgeführt wird, können UCN in materiellen oder magnetischen Gefäßen gespeichert werden. Dies ermöglicht lange Beobachtungszeiten, im Prinzip nur begrenzt durch die Lebensdauer des freien Neutrons.

### 2.1 Fundamentale Wechselwirkungen

Neutronen unterliegen allen bekannten Arten der fundamentalen Wechselwirkungen. Die einzige Ausnahme sind elektrische Felder, da das Neutron nach außen hin elektrisch neutral ist. Die folgenden Abschnitte geben eine kurze Zusammenfassung über die verschiedenen Wechselwirkungen, denen das Neutron unterliegt. Dabei werden auch Sonderfälle diskutiert, die speziell für ultrakalte Neutronen gelten.

#### 2.1.1 Die starke Wechselwirkung

Die starke Wechselwirkung zwischen Nukleonen kann durch einen Potentialtopf  $V_0 \simeq -40$  MeV mit einer Reichweite von  $R \simeq 2$  fm beschrieben werden. Die daraus resultierende Kraft zwischen den Nukleonen ist also stets attraktiv.

Für ultrakalte Neutronen ist diese Beschreibung aber nicht ausreichend. Da deren Wellenlänge  $\lambda > 50$  nm  $\gg R$  ist, sehen diese nicht den Potentialtopf eines einzelnen Nukleons, sondern eine Überlagerung der Potentiale von vielen Nukleonen.

Element	<sup>58</sup> Ni	Be	Al	Edelstahl	D	Cu	Ti
$V_f$ [neV]	335	252	54	210	106	168	-48

Tabelle 2.1: Fermi-Potentiale einiger ausgewählter Materialien, die teilweise bei der in dieser Arbeit beschriebenen UCN-Quelle verwendet wurden. Werte aus [Ign1990, Gol1991].

Die Wechselwirkung von UCN mit Materie kann nach Fermi [Fer1936, Hal1941, Gld1947] durch ein effektives Potential  $V_f$  der Form

$$V_f = V - iW \quad , \quad V = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \cdot N \cdot b \quad , \quad W = \frac{\hbar}{2} \cdot N \cdot \sigma \cdot v \quad , \quad (2.1)$$

beschrieben werden. Hierbei bezeichnet  $m$  die Neutronenmasse,  $v$  die Geschwindigkeit des Neutrons,  $N$  die Teilchendichte des betrachteten Materials,  $b$  deren kohärente Streulänge und  $\sigma$  den Wirkungsquerschnitt für Verlustmechanismen (Absorption und Aufwärtsstreuung). Das Potential ist also lediglich abhängig von den Eigenschaften der Materie [Ign1990, Gol1991].

Der Realteil  $V$  des Potentials bestimmt die Höhe der Potentialbarriere, der Imaginärteil  $W$  die Verlustmechanismen bei der Streuung der UCN an diesem Potential. Der Verlust pro Stoss wird dann bestimmt durch  $f = W/V$ . Hieraus kann mit  $v_c = \sqrt{2V/m}$  eine kritische Geschwindigkeit angegeben werden. Alle Neutronen mit einer normalen Geschwindigkeitskomponente kleiner als  $v_c$  werden an einer Oberfläche mit solchem Potential reflektiert. Dies führt zur Definition von ultrakalten Neutronen: Ist deren Geschwindigkeit kleiner als  $v_c$ , so werden sie unter allen Winkeln von materiellen Oberflächen reflektiert, und können somit in Materie-Flaschen gespeichert werden.

Für die meisten Elemente ist das Fermi-Potential positiv. UCN können also an derartigen Wänden reflektiert werden. Tabelle 2.1 zeigt die Zahlenwerte der Fermi-Potentiale einiger ausgewählter Materialien, die teilweise bei der in dieser Arbeit beschriebenen UCN-Quelle verwendet wurden.

### 2.1.2 Die Gravitation

Die Wechselwirkung eines Neutrons der Masse  $m$  im Gravitationsfeld der Erde, welches eine Höhendifferenz  $h$  durchläuft, wird beschrieben durch:

$$V_g = mgh \quad (2.2)$$

Mit  $m = 939.57 \text{ MeV}/c^2$  und  $g = 9.81 \text{ m/s}^2$  ergibt sich:

$$\frac{V_g}{h} \approx 102 \frac{\text{neV}}{\text{m}} \quad (2.3)$$

Also kann beispielsweise ein UCN mit einer Energie von 300 neV nur eine Höhendifferenz von knapp drei Metern überwinden. Bei vielen Experimenten mit UCN wird dies ausgenützt. So kann man beispielsweise UCN in Flaschen speichern, die nach oben offen sind, solange sie nur eine entsprechende Höhe besitzen. Oder man nutzt eine Fallstrecke aus, um UCN mit genügend Energie zu versehen, damit sie das Fermipotential eines Fensters überwinden können, welches vor einem Detektor sitzt, oder das eine UCN-Quelle von einem Experiment trennt.

### 2.1.3 Die schwache Wechselwirkung

Ein freies Neutron ist nicht stabil, sondern zerfällt:

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e + 782 \text{ keV} \quad (2.4)$$

Der derzeit von der Particle Data Group (PDG) akzeptierte Wert für die Lebensdauer  $\tau$  des freien Neutrons ist [Yao2006]:

$$\tau = (885.7 \pm 0.8) \text{ s} \quad (2.5)$$

Im Standardmodell der Teilchenphysik ist die Neutronenlebensdauer mit anderen Parametern der schwachen Wechselwirkung korreliert:

$$\tau \propto \frac{|V_{ud}|}{|g_v|^2 (1 + 3|\lambda|^2)} \quad (2.6)$$

Hierbei ist  $\lambda = g_a/g_v$  das Verhältnis der Kopplungskonstanten der schwachen Wechselwirkung und  $V_{ud}$  das erste Element der CKM-Matrix, welches die Wahrscheinlichkeit der Umwandlung eines d-Quarks in ein u-Quark beschreibt.

Sind Neutronen in Atomkernen zusammen mit Protonen gebunden, so ist die Bindungsenergie (typischerweise einige MeV) größer, als die beim Neutronenzerfall frei werdende Energie. Beispielsweise beträgt die Bindungsenergie beim Deuteron 2.225 MeV, dem einfachsten Atomkern, der Neutronen und Protonen enthält. Also ist das Deuteron stabil.

Um freie Neutronen zu produzieren, muss man sie also aus ihrem gebundenen Zustand im Atomkern lösen. Dies kann durch zahlreiche Kernreaktionen passieren, beispielsweise durch Spaltung von  $^{235}\text{U}$  in Kernreaktoren.

### 2.1.4 Die magnetische Wechselwirkung

Ein äußeres Magnetfeld der Stärke  $\vec{B}$  erzeugt für Neutronen ein Potential

$$V_{\text{mag}} = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} = \pm 60.4 \frac{\text{neV}}{\text{T}} \quad (2.7)$$

Hierbei ist  $\vec{\mu}$  das magnetische Moment des Neutrons. Das Vorzeichen des magnetischen Potentials ist abhängig von der Spinstellung des Neutrons relativ zum Magnetfeld. Dies ermöglicht die Speicherung von ultrakalten Neutronen in magnetischen Flaschen. Der Vorteil einer solchen Speichermethode ist, dass es keine Verluste von Neutronen durch Absorption oder Aufwärtsstreuung bei Wandstößen gibt. Nachteilig ist, dass nur 50% der Neutronen, nämlich die mit passender Spinorientierung, gespeichert werden können. Außerdem muss man feldfreie Bereiche mit  $B \approx 0$  vermeiden, da sonst Spin-Flips auftreten können. In inhomogenen Magnetfeldern ergibt sich eine Kraft auf die Neutronen:

$$\vec{F}_{\text{mag}}(\vec{r}) = -\vec{\nabla}V_{\text{mag}} = \vec{\nabla} \left[ \vec{\mu}\vec{B}(\vec{r}) \right] \quad (2.8)$$

## 2.2 Produktion von ultrakalten Neutronen

Wie bereits in Abschnitt 2.1.3 angesprochen wird der  $\beta$ -Zerfall des gebundenen Neutrons durch die Bindungskräfte im Atomkern verhindert. Will man freie Neutronen erzeugen, ist es also notwendig im Kern gebundene Neutronen herauszulösen. Dies kann durch Spallationsreaktionen in Beschleunigern oder durch Kernspaltung in Reaktoren bewerkstelligt werden. In beiden Fällen werden freie Neutronen mit vergleichsweise hohen Energien (typisch einige MeV) erzeugt. Um diese Neutronen in den thermischen oder subthermischen Energiebereich zu bringen, werden Moderatoren benutzt. Durch elastische Stöße mit den Kernen des Moderatormaterials verlieren die Neutronen hierbei ihre Energie, solange bis sie im thermischen Gleichgewicht mit dem Moderator sind.

### 2.2.1 Moderation

Wenn man einen Moderator betrachtet, dessen Kerne die Neutronen nicht absorbieren und der unendlich groß ist, so wird sich ein thermisches Gleichgewicht zwischen dem Moderator und den Neutronen einstellen. Das Energiespektrum der Neutronen wäre dann ein Maxwell-Spektrum, dessen charakteristische Temperatur der des Moderators entsprechen würde. Durch Kühlen des Moderators ist es also möglich, subthermische oder kalte Neutronen zu erzeugen.

Im thermischen Gleichgewicht gilt für die Dichte  $\rho$  von Neutronen mit Geschwindigkeiten zwischen  $v$  und  $v + dv$  [Gol1991]

$$\rho(v)dv = \frac{2\Phi_0}{\alpha} \frac{v^2}{\alpha^2} e^{-v^2/\alpha^2} \frac{dv}{\alpha}. \quad (2.9)$$

Hierbei ist  $\Phi_0$  der thermische Fluss,  $\alpha = (2k_B T_n/m)^{1/2}$ , und  $T_n$  die Neutronentemperatur. Um die Anzahl derjenigen Neutronen zu erhalten, die in einem Potentialtopf der Höhe  $V$

eingeschlossen werden können, integriert man Gleichung (2.9) und erhält für  $v \ll \alpha$

$$\rho_{\text{ucn}} = \frac{2}{3} \frac{\Phi_0}{\alpha} \left( \frac{V}{k_B T} \right)^{3/2}. \quad (2.10)$$

Nimmt man typische Werte ( $T = 300 \text{ K}$  und  $V = 250 \text{ neV}$ ) findet man

$$\rho_{\text{ucn}} = 10^{-13} \Phi_0 \text{ cm}^{-3}. \quad (2.11)$$

In modernen Hochflussreaktoren mit  $\Phi_0 \sim 10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  sind also im thermischen Maxwellspektrum etwa  $10^2 \text{ cm}^{-3}$  UCN enthalten. Durch die zusätzliche Verwendung von kalten Moderatoren kann man diesen Wert noch größenordnungsmäßig um einen Faktor 20 steigern. Das Problem hierbei ist jedoch die Extraktion der UCN aus den Reaktoren. Hierbei treten üblicherweise hohe Verluste auf, so dass praktisch erreichbare UCN-Dichten in Experimenten oft um Größenordnungen niedriger liegen. Die derzeit leistungsstärkste UCN-Quelle, die auf dem Moderations-Prinzip beruht, findet man am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble. Sie liefert UCN-Dichten in den Experimenten von maximal etwa  $40 \text{ cm}^{-3}$  [Ste1986].

### 2.2.2 Superthermischer Konverter

Die Produktion von ultrakalten Neutronen mit Moderatoren ist begrenzt durch den Satz von Liouville: Die 6-dimensionale Phasenraumdicke bleibt konstant. Also kann die Phasenraumdicke im Experiment nicht größer sein als im Moderator. Um dies zu umgehen, benötigt man einen Moderator, der durch einen zusätzlichen Prozess Energie aufnehmen kann. Bei festem Deuterium ist dies die Anregung von Phononen, also Gitterschwingungen. Moderatoren, die durch zusätzliche Prozesse Energie aufnehmen können, bezeichnet man als Konverter.

Betrachtet man einen Konverter, der neben dem Grundzustand einen angeregten Zustand mit der Energiedifferenz  $\Delta$  besitzt, so findet man unter Anwendung des Prinzips des detaillierten Gleichgewichts für die Wirkungsquerschnitte  $\sigma$  der Prozesse  $E_{\text{ucn}} + \Delta \rightarrow E_{\text{ucn}}$  (ein Neutron regt den Zustand an und verliert Energie, Abwärtsstreuung) und  $E_{\text{ucn}} \rightarrow E_{\text{ucn}} + \Delta$  (ein Neutron nimmt die Energie eines bereits angeregten Zustands auf und gewinnt Energie, Aufwärtsstreuung) folgenden Zusammenhang:

$$\sigma(E_{\text{ucn}} \rightarrow E_{\text{ucn}} + \Delta) = \frac{E_{\text{ucn}} + \Delta}{E_{\text{ucn}}} \cdot e^{-\Delta/k_B T} \cdot \sigma(E_{\text{ucn}} + \Delta \rightarrow E_{\text{ucn}}) \quad (2.12)$$

Falls nun  $\Delta \gg k_B T \gg E_{\text{ucn}}$  ist, also falls man einen ausreichend kalten Konverter, der energetisch passende, anregbare Zustände besitzt, einem Neutronenfluss der Temperatur  $T_n \geq \Delta$  aussetzt, so wird der Wirkungsquerschnitt für Aufwärtsstreuung vernachlässigbar klein gegenüber dem Wirkungsquerschnitt für Abwärtsstreuung. Gibt es keine zusätzlichen Verlustmechanismen, so wird mit einem derartigen Konverter die UCN-Dichte proportional zu  $(E_{\text{ucn}}/\Delta)e^{\Delta/k_B T}$  exponentiell ansteigen. UCN-Quellen, die auf diesem Prinzip beruhen, nennt man superthermische Quellen.

Physikalische Größe	Wert
Tripelpunkt	$T_t = 18.69 \text{ K}$
Schmelzpunkt bei $p = 1 \text{ bar}$	$T_m = 18.7 \text{ K}$
Siedepunkt bei $p = 1 \text{ bar}$	$T_b = 23.7 \text{ K}$
Kritische Temperatur	$T_k = 38.26 \text{ K}$
Kritischer Druck	$p_k = 16.4 \text{ bar}$
Dichte bei $T = 4.2 \text{ K}$	$\rho = 0.2059 \text{ g/cm}^3$
Bindungsenergie	$E = 4.6 \text{ eV}$

Tabelle 2.2: Physikalische Daten von Ortho-Deuterium. Daten aus [Rod1973, Sil1980, Sou1986, Har1999].

## 2.3 Festes Deuterium als Konverter

Bei der UCN-Quelle am TRIGA Reaktor in Mainz, die in den folgenden Kapiteln näher beschrieben wird, wird zur Erzeugung der ultrakalten Neutronen festes Deuterium (im Folgenden als  $sD_2$  abgekürzt) als UCN-Konverter verwendet. Dieses liegt in zwei verschiedenen Spinzuständen vor, was zur Unterscheidung von Deuteriummolekülen in Ortho- und Para-Deuterium führt, welche zum Teil unterschiedliche physikalische Eigenschaften besitzen. Einige physikalische Daten für Ortho-Deuterium sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst.

Die folgenden Abschnitte beschäftigt sich mit den für die UCN-Erzeugung relevanten Eigenschaften der beiden Deuterium-Zustände.

### 2.3.1 Produktions- und Verlustmechanismen

Wie bereits in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, muss ein UCN-Konverter anregbare Zustände besitzen, die in einem energetisch passenden Bereich liegen. Will man thermische oder kalte Neutronen zur UCN-Erzeugung verwenden, müssen diese also Zustände mit Energien von einigen meV haben. Abbildung 2.1 zeigt berechnete Phononenzustandsdichten von Ortho-Deuterium bei 5 K [Yu1986]. Diese Zustandsdichten wurden aus Neutronenstreuungsmessungen durch Bestimmung der Phononendispersion in festem Deuterium ermittelt. Wie zu sehen ist, gibt es insbesondere im subthermischen Bereich anregbare Phononen-Zustände, so dass zu erwarten ist, dass festes Ortho-Deuterium ein geeignetes Konvertermaterial ist. Erst kürzlich wurden an diesem Lehrstuhl mehrere Experimente durchgeführt, um das Phononenzustandsspektrum nachzumessen. Hierbei konnte das berechnete Spektrum im wesentlichen reproduziert werden, wengleich auch im Detail ein paar Abweichungen festgestellt wurden. Um diesen Ergebnissen auf den Grund zu gehen ist eine Fortführung dieser Experimente geplant.

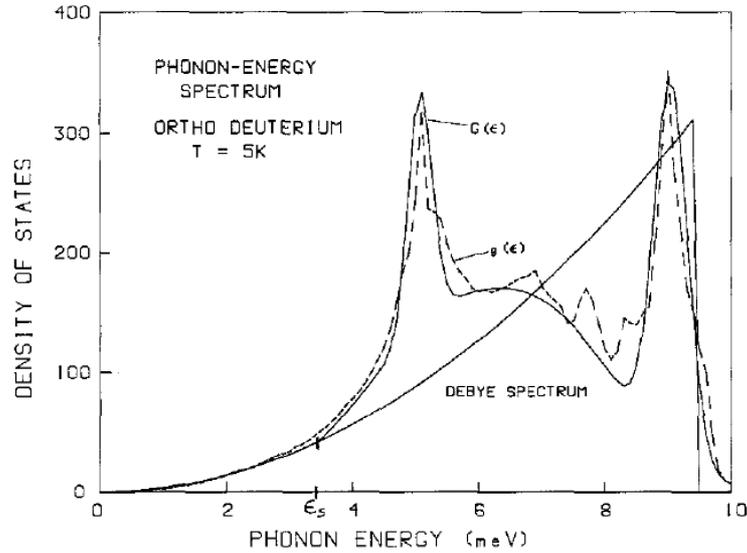


Abbildung 2.1: Phononenzustandsdichte für Ortho-D<sub>2</sub> bei 5 K. Kurve  $g(\epsilon)$  berechnet von Nielsen und Bjerrum Møller [Nie1971]. Kurve  $G(\epsilon)$  ist ein Debye-Spektrum mit überlagerten Gauss-Peaks bei 5.08, 5.50, 7.40 und 9.05 meV. Debye-Temperatur des Spektrums ist 110 K.  $g(\epsilon)$  und  $G(\epsilon)$  sind normalisiert:  $\int_0^\infty g(\epsilon) = \int_0^\infty G(\epsilon) = 1$ . Plot aus [Yu1986].

Neben der UCN-Produktion spielen natürlich auch die Verlustmechanismen im Konverter eine entscheidende Rolle für die Effizienz einer UCN-Quelle. Ein Verlustmechanismus ist die Absorption durch das Deuterium. Der Absorptionsquerschnitt für Neutronen ist unabhängig von der Konvertertemperatur und beträgt für thermische Neutronen [Gol1983a]

$$\sigma_{\text{abs}}(v = 2200 \text{ m/s}) = 5 \cdot 10^{-4} \text{ b.} \quad (2.13)$$

Der Absorptionsquerschnitt ist für UCN mit  $v = 5 \text{ m/s}$  aufgrund der  $1/v$ -Abhängigkeit  $\sigma_{\text{abs}} = 0.22 \text{ b.}$

Neben der Absorption ist die Aufwärtsstreuung von UCN ein weiterer Verlustmechanismus. Da die Temperatur des Konverters nicht Null sein kann, ja aus praktischen Gründen wohl eher bei 5 K liegen wird (Kühlung mit flüssigem Helium mit  $T = 4.2 \text{ K}$ , nukleare Heizung und andere Wärmeeinträge), sind durch thermische Anregung im Deuterium-Konverter bereits Zustände über dem Grundzustand besetzt, so dass die erzeugten UCN diese Zustände abregen können, und durch den daraus resultierenden Energiegewinn als UCN verloren sind.

Zusätzlich zu diesen Aufwärtsstreuprozessen an Phononen ist bei Deuterium auch ein Prozess ohne Phononenstreuung möglich: Der Grundzustand von Para-Deuterium ist höherenergetisch als der Grundzustand von Ortho-Deuterium. Daher kann bei der Streuung eines UCN an einem Para-D<sub>2</sub> Molekül dieses in ein Ortho-D<sub>2</sub> Molekül umgewandelt werden (0-Phononen-

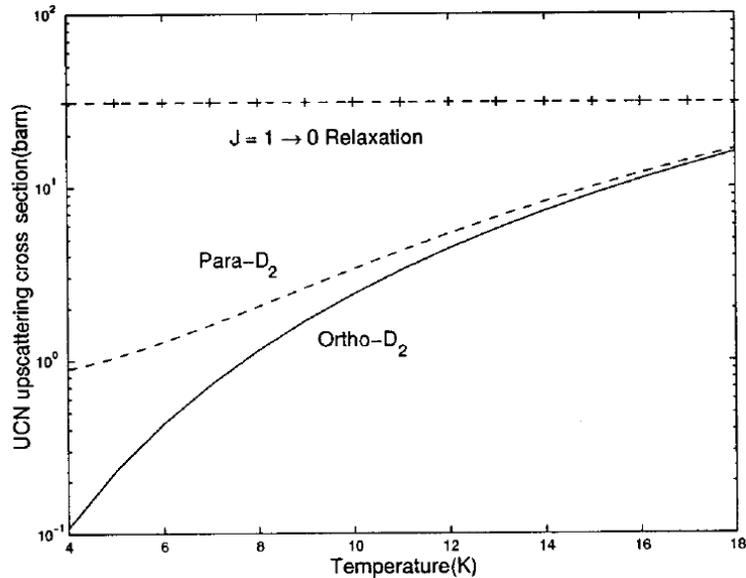


Abbildung 2.2: Aufwärtsstreuquerschnitte für festes Deuterium in Abhängigkeit der Konvertertemperatur für UCN mit  $v = 8$  m/s. Durchgezogene Kurve: Aufwärtsstreuung an Ortho- $D_2$  durch Abregung eines Phonons. Gestrichelte Kurve: Aufwärtsstreuung an Para- $D_2$  durch Abregung eines Phonons. Gestrichelt-gekennzeichnete Kurve: Aufwärtsstreuung an Para- $D_2$  durch Umwandlung von Para- $D_2$  in Ortho- $D_2$ . Plot aus [Liu2000].

Prozess), und das UCN die Energiedifferenz aufnehmen. In Abbildung 2.2 sind die Wirkungsquerschnitte für diese Prozesse zu sehen. Man stellt fest, dass der Streuquerschnitt des 0-Phononenprozesses bei einer Konvertertemperatur von 5 K mehr als zwei Größenordnungen über dem des 1-Phononen-Prozesses von Ortho- $D_2$  liegt. Um also zusätzliche Verluste zu vermeiden ist es erforderlich, den Anteil von Para- $D_2$  im Konverter auf idealerweise unter 1% zu senken.

### 2.3.2 Kristallbildung

Die  $D_2$ -Kristallbildung und die anschließende Temperaturbehandlung haben einen signifikanten Einfluss auf die UCN-Verlustrate. Dies wurde an der UCN-Quelle am TRIGA Mainz experimentell festgestellt und wird im Detail in Kapitel 4.2 beschrieben.

Festes Deuterium kann in zwei unterschiedlichen Kristallstrukturen vorkommen [Sil1980]. Wird ein Deuterium-Kristall aus der flüssigen Phase nahe dem Tripelpunkt ausgefroren, entsteht ein hcp-Gitter, das auch bei weiterem Abkühlen des Kristalls erhalten bleibt. Nur bei hohem Druck oder einem hohem Anteil an Para-Deuterium kann eine Umwandlung in ein

fcc-Gitter erfolgen. Wird der Kristall langsam aus der Gasphase bei einer Temperatur von etwa 5 K ausgefroren bildet sich ein fcc-Gitter. Durch anschließendes Aufwärmen des Kristalls auf über 10 K geht dann das fcc-Gitter in ein hcp-Gitter über. Dieser Übergang ist irreversibel [Sou1986, Col1996].

Ein aus der Gasphase erzeugter Kristall ist optisch klar und durchsichtig, während ein aus der flüssigen Phase generierter Kristall milchig und trüb erscheint [Fil2000]. Lediglich durch Ausfrieren des Deuteriums am Tripelpunkt und anschließend sehr langsames Abkühlen über mehrere Stunden können optisch klare Kristalle erzeugt werden. Dies wurde auch experimentell bei einem erst kürzlich am FRMII durchgeführten Experiment bestätigt und genauer untersucht [Alt2006].

Das molare Volumen von festem Deuterium hängt von der Temperatur ab [Sou1986]:

$$V_{\text{mol}}(T) = A \cdot T^b + V_0, \quad (2.14)$$

mit

$$A = 1.788 \cdot 10^{-6} \frac{\text{cm}^3}{\text{mol}}, \quad b = 4.308, \quad V_0 = 19.930 \frac{\text{cm}^3}{\text{mol}}. \quad (2.15)$$

Der angegebene Wert von  $V_0$  gilt für Deuterium mit dem natürlichen Anteil an Para- $D_2$  und unterscheidet sich geringfügig von dem Wert für reines Ortho-Deuterium. Das molare Volumen verringert sich also beim Abkühlen vom Tripelpunkt auf eine Temperatur von 5 K um etwa 2.6%, was zu mechanischen Spannungen und Rissen im Kristall führt. Dies hat eine schlechtere optische Transparenz zur Folge und kann zusätzliche Verluste bei der UCN-Extraktion bewirken.

### 2.3.3 Ortho- und Para-Deuterium

Ein Deuterium-Molekül besteht neben zwei Elektronen aus zwei Deuteronen, welche Bosonen sind. Da die Nukleonen-Gesamtwellenfunktion, bestehend aus Spin-, Rotations- und Vibrationswellenfunktion, symmetrisch unter Austausch der Kerne sein muss, ergeben sich zwei Möglichkeiten, dies zu erreichen:

Entweder muss bei symmetrischer Spinwellenfunktion auch die Rotationswellenfunktion symmetrisch sein, da die Vibrationswellenfunktion stets symmetrisch ist – dieser Zustand mit gerader Rotationsquantenzahl  $J$  wird Ortho-Deuterium genannt – oder es muss bei anti-symmetrischer Spinwellenfunktion auch die Rotationswellenfunktion antisymmetrisch sein – dieser Zustand mit ungerader Rotationsquantenzahl  $J$  wird dann Para-Deuterium genannt.

Ortho-Deuterium ( $oD_2$ ) besitzt eine Multiplizität von sechs, Para-Deuterium ( $pD_2$ ) eine Multiplizität von drei, woraus man sofort ableiten kann, dass im Gleichgewichtsfall bei Raumtemperatur der Anteil von  $pD_2 = 1/3$  ist. Abbildung 2.3 zeigt ein Schema der Energieniveaus von

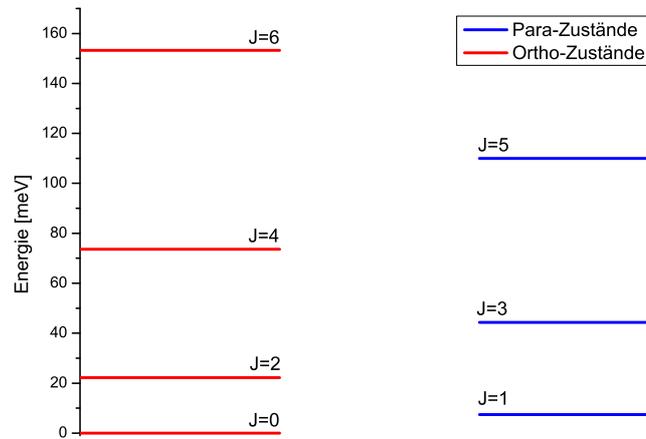


Abbildung 2.3: Energieniveaus (schematisch) von Ortho-Deuterium (links,  $J = \text{gerade}$ ) und Para-Deuterium (rechts,  $J = \text{ungerade}$ ).

Ortho- und Para-Deuterium. Der symmetrische Ortho-Zustand als tiefster Zustand liegt im Vergleich zum Para-Zustand um etwa 7 meV niedriger [Sil1980]. Dieser Zustand wird daher für die UCN-Produktion im festen Deuterium bevorzugt. Dies hat mehrere Gründe:

Stößt ein ankommendes thermisches oder kaltes Neutron mit einem Para-Deuterium-Molekül, so kann dieses unter Abgabe von Energie, welche dann vom Neutron aufgenommen wird, in den Ortho-Zustand konvertieren. Damit geht das Neutron durch Energieaufnahme als ultrakaltes Neutron verloren.

Liegt das Deuterium im natürlichen Mischungsverhältnis von Ortho- und Para-Zuständen vor, werden die ultrakalten Neutronen im Mittel auf einem höherem Energieniveau produziert, da sie den Konverter verlassen müssen und dabei durch dessen Fermi-Potential beschleunigt werden. Dadurch wird die zur Verfügung stehende Differenz zwischen Produktionsenergie und maximaler Grenzenergie und damit die nutzbare UCN-Anzahl verkleinert.

Ortho-Deuterium besitzt bei niedrigen Temperaturen eine wesentlich größere Wärmeleitfähigkeit als Para-Deuterium. Der Wärmeleitkoeffizient von 98%-igem Ortho-Deuterium ist bei einer Temperatur von 5 K mehr als zehnmal so groß, wie der von Deuterium mit natürlichem Mischungsverhältnis [Gor1977, Gor1981]. Hohe  $\text{oD}_2$ -Konzentrationen sind folglich wünschenswert, um die im Konverter entstehende Wärme (etwa durch nukleare Heizung) abführen zu können.

### 2.3.4 Konversion

In Abschnitt 2.3.1 wurde gezeigt, dass der Para-Anteil im Deuterium möglichst unter 1 % liegen sollte. Hierzu sind verschiedene Konversionsmechanismen denkbar, welche sich zum Teil erheblich in der Konversionsrate unterscheiden.

Die Gleichgewichtskonzentration von Para- und Ortho-Deuterium ist temperaturabhängig. Für den Anteil  $c_u$  von Para-Deuterium findet man:

$$c_u = \frac{g_u}{Z} \sum_{J=1,3,\dots} (2J+1)e^{-E_J/(k_B T)}, \quad (2.16)$$

mit der Zustandssumme

$$Z = g_e \sum_{J=0,2,\dots} (2J+1)e^{-E_J/(k_B T)} + g_u \sum_{J=1,3,\dots} (2J+1)e^{-E_J/(k_B T)}, \quad (2.17)$$

den Entartungsgraden  $g_e = 6$ ,  $g_u = 3$ , der Boltzmann-Konstanten  $k_B$  und der Rotationsenergie  $E_J$  im Rotationszustand  $J$ . Diese ist für ein zweiatomiges Molekül bestimmt durch [Sil1980]

$$E_J = B_0 J(J+1) - D_0 J^2(J+1)^2 + H_0 J^3(J+1)^3. \quad (2.18)$$

Für Deuterium sind die Rotations-Konstanten mit  $B_0 = 29.9132 \text{ cm}^{-1}$ ,  $D_0 = 0.01151 \text{ cm}^{-1}$  und  $H_0 = 0.69 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$  experimentell bestimmt worden [Mck1978]. Der Gleichgewichtsanteil von Para-Deuterium als Funktion der Temperatur kann somit berechnet werden und ist in Abbildung 2.4 gezeigt.

Man sieht, dass für Temperaturen oberhalb von etwa 100 K der Para-Anteil in den Sättigungswert  $1/3$  übergeht, für tiefe Temperaturen unterhalb 10 K ist praktisch kein Para-Deuterium mehr vorhanden. Um also den Para-Anteil zu erniedrigen, müsste man lediglich das Deuterium bei tiefen Temperaturen lagern. Allerdings ist die natürliche Konversionsrate  $K'$  für den Übergang von Para- zu Ortho-Deuterium sehr klein: Messungen ergaben für eine Temperatur von 4.2 K [Sil1980]

$$K' = (0.060 \pm 0.003) \%/\text{h}. \quad (2.19)$$

Also ist die zeitliche Abhängigkeit des Para-Anteils

$$c_u(t) = c_u(0)e^{-K't}. \quad (2.20)$$

Man kann leicht ausrechnen, dass man das Deuterium etwa ein halbes Jahr bei 4.2 K lagern müsste, damit der Para-Anteil, ausgehend von einer 33%-igen Konzentration, unter 2% absinkt.

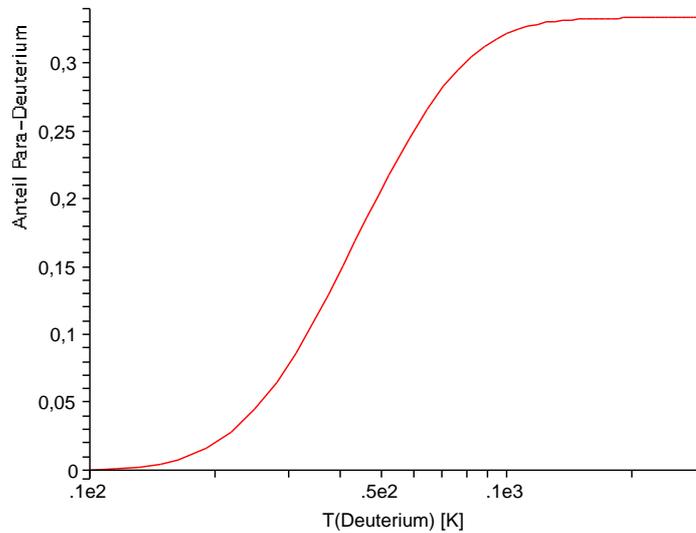


Abbildung 2.4: Gleichgewichtskonzentration von Para-Deuterium in Abhängigkeit von der Deuterium-Temperatur.

Der Grund für diese langsame Konversion ist folgender: Für ein einzelnes Deuterium-Molekül ist der Übergang vom Para- zum Orthozustand wegen Symmetriebedingungen verboten. Kühlt man eine Deuteriumprobe auf Heliumtemperatur ab, befinden sich die Moleküle in den jeweils niedrigsten Rotationsenergieniveaus, also in  $J = 0$  bei Ortho- und  $J = 1$  bei Para-Deuterium. Die Konversion eines Para- in ein Ortho-Deuteriummolekül erfordert die gleichzeitige Änderung der Rotationsenergiequantenzahl um  $\Delta J = 1$  und der Spinquantenzahl von  $S = 1$  nach  $S = 0$  oder  $S = 2$ . Dies kann nur durch äußere Störungen wie elektrische oder magnetische Feldgradienten geschehen. Berechnungen dieser Vorgänge ergeben eine sehr geringe Konversionswahrscheinlichkeit, und demzufolge eine kleine Konversionsrate.

Für schnellere Konversion setzt man oft das folgende Verfahren ein: Deuteriumgas, das sich bei Raumtemperatur in natürlichem Gleichgewicht befindet, wird an einem Katalysator mit der gewünschten Gleichgewichtstemperatur adsorbiert und anschließend wieder desorbiert. Der Katalysator besteht hierbei meist aus einem pulverförmigem para- oder ferromagnetischen Material mit großer Oberfläche. Durch das große magnetische Moment der Katalysatormoleküle kann die Konversionsrate deutlich erhöht werden, so dass man nicht mehr Monate, sondern nur noch Stunden oder wenige Tage warten muss, um die gewünschte Para-Konzentration zu erreichen. Für die UCN-Quelle am TRIGA-Reaktor in Mainz wurde ein solcher Konverter gebaut und erfolgreich eingesetzt. Details zu diesem Konverter sind in Kapitel 3.3.3 beschrieben.

## Kapitel 3

# Die UCN-Quelle am TRIGA-Reaktor Mainz

Ein wesentlicher Teil dieser Dissertation bestand im Aufbau und in der Inbetriebnahme einer Quelle zur Erzeugung von ultrakalten Neutronen mit einem festen Deuteriumkonverter am TRIGA-Reaktor in Mainz. Das folgende Kapitel beschreibt den Aufbau dieser Quelle. Sie besteht aus folgenden Teilapparaturen:

**Der TRIGA-Reaktor:** Er ist die Quelle für thermische Neutronen, von denen ein Teil zu UCN konvertiert wird.

**Der Inpile-Kryostat:** Er umfasst den  $sD_2$ -Konverter Kristall, die mit flüssig Helium gekühlte Kryonase, in welcher der Kristall ausgefroren wird, den daran anschließenden UCN-Leiter, sowie Versorgungsleitungen für flüssiges Helium und flüssigen Stickstoff.

**Das Deuterium Gassystem:** Es dient zur sicheren Lagerung des Deuteriums in gasförmiger oder fester Form. Neben diversen Ventilen und Rohrleitungen, sowie Druck- und Vakuumsensoren, beinhaltet es einen Turbomolekular-Pumpstand zur Vakuumerzeugung, einen Kalkopf samt Lagerzelle für festes  $D_2$  und natürlich einen ausreichend großen Behälter ( $V = 270\text{ l}$ ) für gasförmiges Deuterium. Mit dem Gassystem kann ein Para/Ortho-Konverter verbunden werden.

**Das Steuerungssystem:** Es handelt sich hierbei um eine Speicher-Programmierbare-Steuerung (SPS) vom Typ Simatic® [SIMATIC]. Alle Komponenten des Gassystems und des Inpile-Kryostaten werden mit Hilfe dieses Systems gesteuert und die Betriebszustände ausgelesen.

**Detektor, Ausleseelektronik und Datenerfassung:** Der UCN-Detektor ist vom Typ Cascade [CASCADE]. Die Ausleseelektronik wurde am Lehrstuhl E18 gefertigt, und

wird in ähnlicher Form von der COMPASS-Gruppe seit geraumer Zeit verwendet. Die Software für die Datenerfassung ist ROOT.

**Diverse Versorgungssysteme:** Dies umfasst im wesentlichen das System, mit dem flüssiges Helium bereitgestellt und zurückgewonnen wird, und die Versorgung mit flüssigem Stickstoff und gasförmigem Helium zur Druckerzeugung für etliche Einbauten im Deuterium-Gassystem.

### 3.1 Der TRIGA-Reaktor

Der TRIGA-Reaktor [Kou1958, Sto1959] liefert thermische Neutronen für die UCN-Quelle. Er arbeitet mit 20% angereichertem  $^{235}\text{U}$ .

Der TRIGA-Reaktor in Mainz wurde 1965 in Betrieb genommen. Dieser Reaktortyp zeichnet sich durch ein inhärentes Sicherheitskonzept aus, welches auf den verwendeten Brennelementtyp zurückzuführen ist. Der Kernbrennstoff ist Uranzirkonhydrid (UZrH), eine chemische Verbindung des Brennstoffes Uran, des Moderators Wasserstoff und der Trägermatrix Zirkon. Die Zusammensetzung in Gewichtsanteilen beträgt hierbei 8% Uran, 1% Wasserstoff und 91% Zirkon.

Die Verbindung von Moderator und Brennstoff in einem einzigen homogenen Material bewirkt, dass die Neutronen zum großen Teil im Brennelement und nur zu einem geringen Teil im Beckenwasser moderiert werden. Im Gegensatz zu normalen Leichtwasserreaktoren, die ausschließlich über das Beckenwasser moderiert werden, sind damit Brennstofftemperatur und Moderatortemperatur direkt gekoppelt. Genau diese Kopplung gewährleistet die inhärente Sicherheit des Reaktors. Erhöht sich die Temperatur des Uran, so erhöht sich gleichzeitig die Temperatur des Wasserstoffs und damit die Energieverteilung der moderierten Neutronen. Ein wärmerer Moderator bedeutet ein höherenergetisches Spektrum der Neutronen. Da der Spaltquerschnitt des Uran mit zunehmender Neutronenenergie deutlich absinkt, bewirkt ein höherenergetisches Spektrum zugleich aber einen starken Rückgang der Spaltrate im Kernbrennstoff, letztendlich bis zum Abbruch der nuklearen Kettenreaktion. Dieser negative Temperaturkoeffizient der Reaktivität garantiert eine Selbstregelung des Reaktors innerhalb weniger Millisekunden.

Der sehr große negative Temperaturkoeffizient der TRIGA-Reaktoren macht es möglich, sie zu pulsen. Dazu wird der Reaktor zunächst angefahren, d.h. die Regelstäbe werden so weit aus dem Kern herausgezogen, bis der Reaktor verzögert überkritisch ist. Die Reaktivität  $\rho = (k - 1)/k$  (mit dem Neutronenmultiplikationsfaktor  $k$ ) ist dann leicht positiv. Die Reaktorleistung steigt nun zunächst mit großer Zeitkonstante exponentiell an. Ein Maß dafür ist die Reaktorperiode  $T = \tau/\rho$  mit der mittleren Verweildauer  $\tau$  der thermischen Neutronen im

Reaktor. Sie gibt das Zeitintervall an, in dem sich die thermische Neutronenpopulation im Reaktorkern um den Faktor  $e$  vergrößert. Für einen verzögert kritischen Reaktor ist  $T = \infty$ , im Falle des verzögert überkritischen Reaktors liegt  $T$  jedoch im Bereich mehrerer hundert Sekunden. Der negative Temperaturkoeffizient der Reaktivität im TRIGA-Reaktor begrenzt das exponentielle Anwachsen der Leistung. Die Reaktorleistung erreicht nach endlicher Zeit ein Gleichgewicht, welches durch die Position der Regelstäbe festgelegt ist. Dieser Zustand ist der Ausgangspunkt für einen Reaktor puls.

Um den Puls auszulösen wird der zentrale Regelstab (der Pulsstab) mit Pressluft so weit aus dem Reaktorkern herausgeschossen, dass der Reaktor prompt überkritisch wird. Die Reaktorperiode springt dabei in den Millisekundenbereich, d.h. Leistung und Neutronenfluss wachsen nun exponentiell innerhalb weniger Millisekunden an. Je nach eingestellter Ausgangsleistung und Anschlaghöhe des Pulsstabs erreicht der TRIGA Mainz innerhalb von etwa 30 ms eine Leistung von bis zu 250 MW bzw. einen Neutronenfluss von  $4 \cdot 10^{15}$  n/(cm<sup>2</sup> · s).

Wieder begrenzt der negative Temperaturkoeffizient dieses Wachstum und führt den Reaktor innerhalb von einigen 10 ms bis 100 ms in einen Gleichgewichtszustand über. Die zeitliche Verzögerung ist die Ursache für das Entstehen des Pulses. Die Wärmeleitung verläuft im Brennstoff langsamer als die Zunahme der Spaltrate. Die Wärme wird im Uran also schneller freigesetzt als sie durch das Atomgitter des Brennstoffes zum Moderator Wasserstoff gelangen kann. Die Neutronen bewegen sich dagegen um Größenordnungen schneller zwischen den Moderator- und Spaltstoffkernen. Die Änderung des Neutronenspektrums hin zu höheren Energien greift darum erst mit einigen Millisekunden Zeitverzögerung, genug für eine Spitze in Leistung und Neutronenfluss. Sie markiert gleichzeitig das Ende der Leistungsexplosion und den Beginn der Relaxation in den Gleichgewichtszustand.

Danach wäre der Reaktor rein physikalisch wieder pulsbereit. Die Sicherheits- und Betriebsbestimmungen am TRIGA Mainz lassen jedoch nur 12 Pulse pro Stunde zu. Das Diagramm 3.1 zeigt schematisch drei verschiedene mögliche Pulsformen des TRIGA Mainz. Diese werden durch die beim Puls maximal erreichte Reaktivität  $\rho$  festgelegt, welche in der Einheit  $\$$  gemessen wird. Ein  $\$$  ist dabei per Definition genau diejenige Reaktivität, bei der ein Reaktor vom verzögert kritischen zum prompt kritischen Zustand übergeht. Dieser Grenzwert hängt von der Geometrie des Neutronenflusses, der Reaktorgeometrie, der Brennstoffzusammensetzung und der Brennstoffart ab und ist daher von Reaktor zu Reaktor verschieden und auch über längere Zeiträume veränderlich.

Der TRIGA Mainz besitzt drei radiale Strahlrohre mit den Bezeichnungen A, B und D, sowie ein tangenciales Strahlrohr C. Abbildung 3.2 zeigt die räumliche Anordnung der Strahlrohre.

In das tangenciales Strahlrohr C wurde die UCN-Quelle eingeschoben und betrieben. Der Vorteil dieses Strahlrohrs ist die geringere thermische Belastung durch nukleare Aufheizung

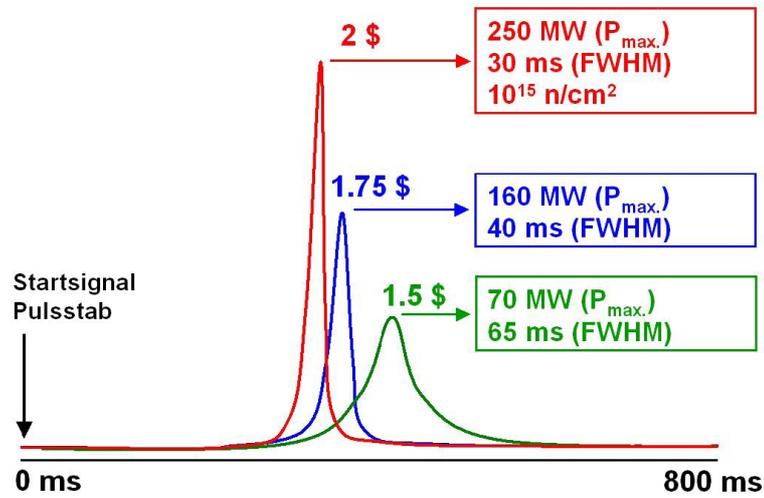


Abbildung 3.1: Zeitlicher Verlauf der Leistung bei verschiedenen Pulsformen des TRIGA Mainz (schematisch).

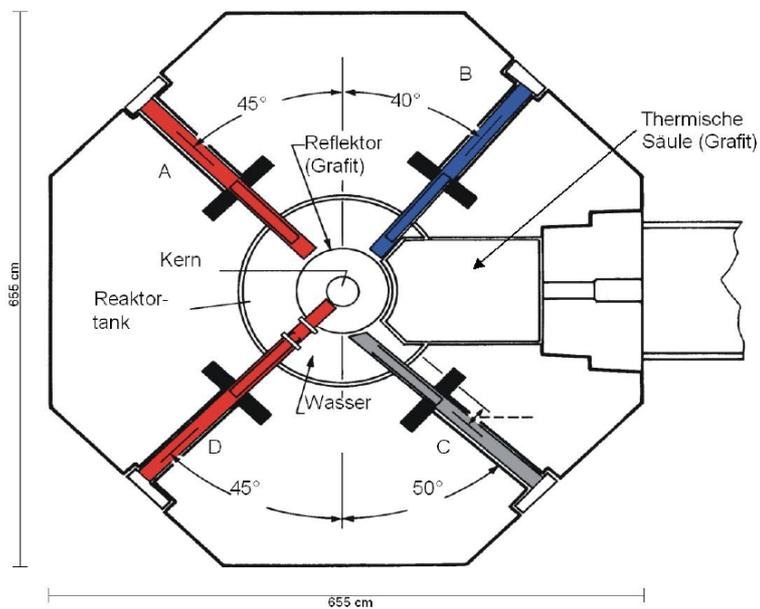


Abbildung 3.2: Anordnung der Strahlrohre am TRIGA Mainz.

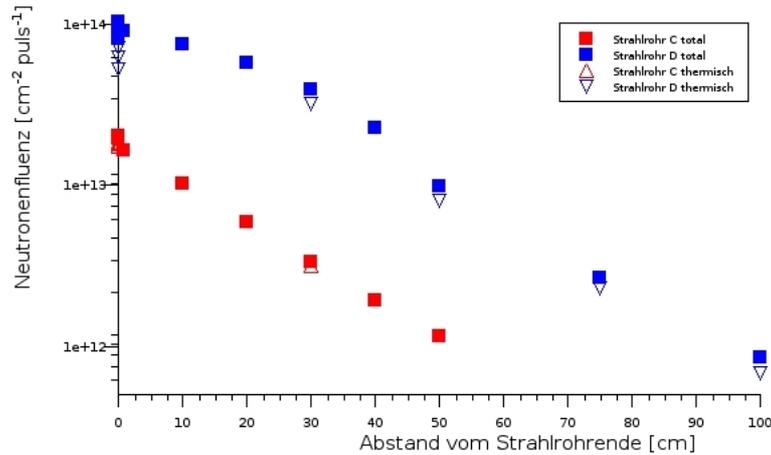


Abbildung 3.3: Gemessene Neutronenfluenz (total und thermisch) pro Reaktor puls (10.2 MJ) an den Strahlrohren C und D bei verschiedenen Abständen vom Strahlrohrende. Die Fehler liegen bei etwa 5%.

des  $\text{sD}_2$  beim Reaktorbetrieb, da keine direkte Sicht auf das Brennelement besteht. Beim 2 $\text{s}$ -Puls beträgt die Neutronenfluenz am Rand des Graphitreflektors (an dieser Stelle befindet sich der UCN-Konverter) etwa  $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  pro Puls. Die Neutronenfluenz an verschiedenen Stellen der Strahlrohre C und D wurde mittels Goldfolienaktivierung gemessen. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Abbildung 3.3 dargestellt.

Ein alternativer Platz für die UCN-Quelle wäre das Strahlrohr D. Es ist ein radiales Strahlrohr, welches durch den Graphitreflektor hindurch ragt und direkt auf den Kern blickt. Der Neutronenfluss hier ist etwa um einen Faktor 5 höher als am Strahlrohr C. Allerdings steigt auch die thermische Belastung der UCN-Quelle durch nukleare Heizung. Da im Laufe des Betriebs der UCN-Quelle am Strahlrohr C festgestellt wurde, dass die Aufheizung des Deuteriumkonverters zwar messbar, aber beherrschbar ist, wird derzeit eine zweite UCN-Quelle am Strahlrohr D aufgebaut. Diese wird sich nur geringfügig von der bisherigen Quelle am Strahlrohr C unterscheiden. Die höhere nukleare Heizung bedingt einige kleinere Änderungen bei der Kühlung mit flüssigem Helium, sowie den Ersatz einiger Edelstahlteile, die sich im höheren Fluss zu stark aktivieren würden. Auch muss natürlich der Inpile-Teil an die Geometrie des Strahlrohrs D angepasst werden.

### 3.2 Der Inpile-Kryostat

Der Inpile-Kryostat besteht aus zwei Teilen, der Inpile-Sektion und dem Kryostatenbehälter. Beide sind starr miteinander verbunden und auf einem Schienensystem vor dem Strahlrohr



Abbildung 3.4: Der Inpile-Kryostat vor dem Einschieben in das Strahlrohr C. Im Bildhintergrund ist der Schutzgastank des Deuterium-Gassystems zu sehen.

C montiert. Dies ermöglicht eine komplette Montage der Quelle außerhalb des Reaktors. Anschließend kann sie leicht in das Strahlrohr eingeschoben und bei Bedarf wieder zurückgezogen werden. Abbildung 3.4 zeigt den Kryostaten vor dem Einschieben in das Strahlrohr.

### 3.2.1 Die Konverternase

Wesentlicher Bestandteil des Inpile-Kryostaten ist der Konverter mit  $sD_2$ . Dieser wird am reaktorseitigen Ende des Inpile-Rohres in einer zylindrischen, doppelwandigen Nase aus Edelstahl ausgefrozen. Abbildung 3.5 zeigt eine Zeichnung der Nase. Der Innendurchmesser beträgt 66 mm, die Höhe ist 80 mm und die Wandstärke 0.6 mm. Damit ergibt sich ein maximales Konvertervolumen von etwa  $270 \text{ cm}^3$ . Die Kühlung der Nase erfolgt durch flüssiges Helium, welches zwischen den Wänden der Nase hindurchströmt. Auf die Nase kann ein Behälter aufgeschoben werden, der ein Material zur Vormoderation enthält. Ein zylindrisches Schild aus Aluminium, welches mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird, umgibt die Nase, um den Eintrag an Wärme durch Strahlung zu verringern. Die tiefste bisher erreichte Temperatur an der Nase betrug 5.1 K. Maximal wurden bisher  $200 \text{ cm}^3$  Deuterium ausgefrozen. Wegen der schlechten Wärmeleitfähigkeit von festem Deuterium ist es bei dieser Geometrie der Nase nicht gelungen, noch größere Mengen auszufrieren, da das bereits an den gekühlten Wänden angelagerte Deuterium wie ein thermischer Isolator wirkt, und damit die Kühlung der weiter innen liegenden Schichten begrenzt. Wegen der horizontalen Einbaulage des Inpile-Rohres kann das Ausfrieren des Deuteriums nur direkt aus der gasförmigen Phase heraus erfolgen. Dafür muss die Temperatur  $T < 18.7 \text{ K}$  und der Gasdruck  $p < 0.17 \text{ bar}$  sein. Die Temperatur wird gere-

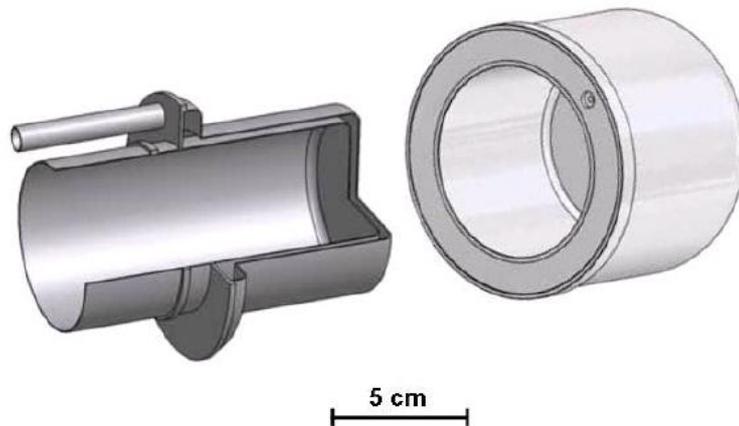


Abbildung 3.5: Linke Seite: Die Konverternase am reaktorseitigen Ende des Inpile-Rohres. Abmessungen: Innendurchmesser 66 mm, Länge des doppelwandigen Teils 80 mm. Rechte Seite: Behälter für Vormoderatoren. Innendurchmesser des Behälters entspricht dem Außendurchmesser des doppelwandigen Teils der Konverternase, auf die er aufgeschoben werden kann. Zur thermischen Ankopplung zwischen Konverternase und Vormoderatorbehälter wurde Wärmeleitpaste verwendet.

gelt, indem das einströmende Helium mit einem Heizer vorgewärmt wird. Der Gasdruck des Deuteriums kann mit Hilfe eines Ventils und einem Durchflussmesser reguliert werden.

### 3.2.2 Der UCN-Leiter

Ein innen elektropoliertes Edelstahlrohr leitet die im Konverter erzeugten ultrakalten Neutronen aus dem Reaktor heraus in den Kryostatenbehälter. Es ist 3.5 m lang, sein Innendurchmesser beträgt 66 mm und die Wandstärke 2 mm. Auf den letzten 40 cm am reaktorseitigen Ende des Rohres wurde die Wandstärke auf 0.5 mm reduziert, um den Wärmeeintrag des auf Raumtemperatur gehaltenen Rohres in die Konverternase zu reduzieren. Die Konverternase ist mit dem UCN-Leiter verschweißt. Entlang der ersten 3 m des Rohres (vom Kryostatenbehälter aus gesehen) wurde außen ein Heizdraht aufgelötet, um das Rohr auf Raumtemperatur zu halten, wenn die Konverternase gekühlt wird. Dadurch wird ein eventuelles Ausfrieren von Deuterium oder von Restgasen entlang der Innenseite des UCN-Leiters verhindert.

Ein identisches Rohr wurde am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble mit ultrakalten Neutronen vermessen [Alt2005, Alt2007a], um die Transporteigenschaften für UCN und die Verlustmechanismen zu bestimmen. Die Verlustwahrscheinlichkeit pro Wandstoß betrug bei den neuesten Messungen  $\mu = (2.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-4}$ , der Anteil der diffusen Reflexion wurde zu

$f = (6 \pm 1) \%$  bestimmt [Alt2007b].

Der gesamte UCN-Leiter samt Konverternase befindet sich in einem doppelwandigen Hüllrohr aus Aluminium. Zwischen dem UCN-Leiter und der ersten Wand des Hüllrohrs wird ein Kryovakuum erzeugt. Das Zwischenvolumen des Hüllrohrs ist mit dem Helium-Schutzgasraum des Deuterium-Gassystems verbunden.

### 3.2.3 Der Kryostatenbehälter

Der UCN-Leiter mündet am reaktorabgewandten Ende in den Kryostatenbehälter. In diesem befinden sich die Zu- und Ableitungen für das flüssige Helium, den flüssigen Stickstoff und die diversen elektrischen Durchführungen für Temperatursensoren und Heizer. Der Kryostatenbehälter ist, wie alle Systeme mit Deuterium, doppelwandig, wobei das Zwischenvolumen mit dem Helium-Schutzgasraum des  $D_2$ -Gassystems verbunden ist. Zwei doppelwandige, flexible Leitungen verbinden das Innenvolumen des UCN-Leiters, sowie das Kryovolumen und den UCN-Leiter mit den entsprechenden Systemen des  $D_2$ -Gassystems.

Der UCN-Leiter verläuft geradlinig durch den Kryostatenbehälter hindurch und endet auf der reaktorabgewandten Seite in einem UCN-Fenster aus Aluminium. Es hat einen Durchmesser von 66 mm und ist 100  $\mu\text{m}$  dick. Abbildung 3.6 zeigt einen Blick durch den Kryostatenbehälter auf das UCN-Fenster. Um den mechanischen Belastungen bei eventuell auftretenden Druckunterschieden standhalten zu können, wurde auf beiden Seiten der Fensterfolie ein Stützgitter aus Edelstahl angebracht. Experimentell wurde nachgewiesen, dass das Fenster mit Stützgitter einem Differenzdruck von bis zu 4 bar standhält.

Das Aluminiumfenster ist gleichzeitig die Schnittstelle zwischen der UCN-Quelle und dem Experiment, das an die Quelle angebaut werden kann. Durch diese Abtrennung wird die Quelle, im Besonderen das Deuteriumvolumen, nicht von Vorgängen beeinflusst, die experimentseitig stattfinden.

## 3.3 Das Deuterium-Gassystem

Das  $D_2$ -Gassystem stellt ein zentrales Element der UCN-Quelle dar. Es ermöglicht die sichere Handhabung des brennbaren  $D_2$ -Gases. Um dies zu gewährleisten, wurden bei der Planung und dem Aufbau des Gassystems immer zwei Barrieren vorgesehen, die das Deuterium von der Raumluft abschotten. Zwischen diesen beiden Barrieren befindet sich Helium-Schutzgas bei einem Absolutdruck von 140 kPa. Bei einer unterstellten Leckage an einer der Barrieren wird also entweder das Deuterium mit Helium durchmischt, oder das Helium strömt nach außen.



Abbildung 3.6: Blick auf das UCN-Fenster am Ende des Neutronenleiters im Kryostatenbehälter. Zur mechanischen Stabilisierung wurde eine kreuzförmige Unterstüzung angebracht.

Der Druck im He-Schutzgasraum wird durch die Sensoren CP301 und CP311 redundant überwacht, die Temperatur zeigt der Sensor CT301.

Der schematische Aufbau des D<sub>2</sub>-Gassystems ist in Abbildung 3.7 gezeigt. Hierbei ist zu sehen, dass sich das System prinzipiell in zwei Teile aufgliedert: Ein Teil, der hauptsächlich der Vakuumerzeugung dient (Vakuumsystem), und ein Teil, der zur Handhabung des Deuteriums ausgelegt ist (Deuteriumsystem). Tabelle 3.1 zeigt eine Zusammenfassung der im Schema 3.7 verwendeten Abkürzungen.

### 3.3.1 Das Vakuumsystem

Zur Vakuumerzeugung dient ein ölfreies Pumpsystem, bestehend aus der Vorpumpe AA500 und der Turbomolekularpumpe AA501. Die Vorpumpe befindet sich außerhalb des mit He-Schutzgas befüllten Behälters BB300 und kann durch das Handventil AA512 abgetrennt werden. Der Drucksensor CP509 und der Vakuumsensor CP504 messen den anliegenden Druck bzw. das erzeugte Vakuum.

Das Ventil AA508 trennt das Vakuumsystem vom Isoliervakuumraum, der die Kryo-Lagerzelle für festes Deuterium BB500 umgibt. Der Vakuumsensor CP506 überwacht das Isoliervakuum.

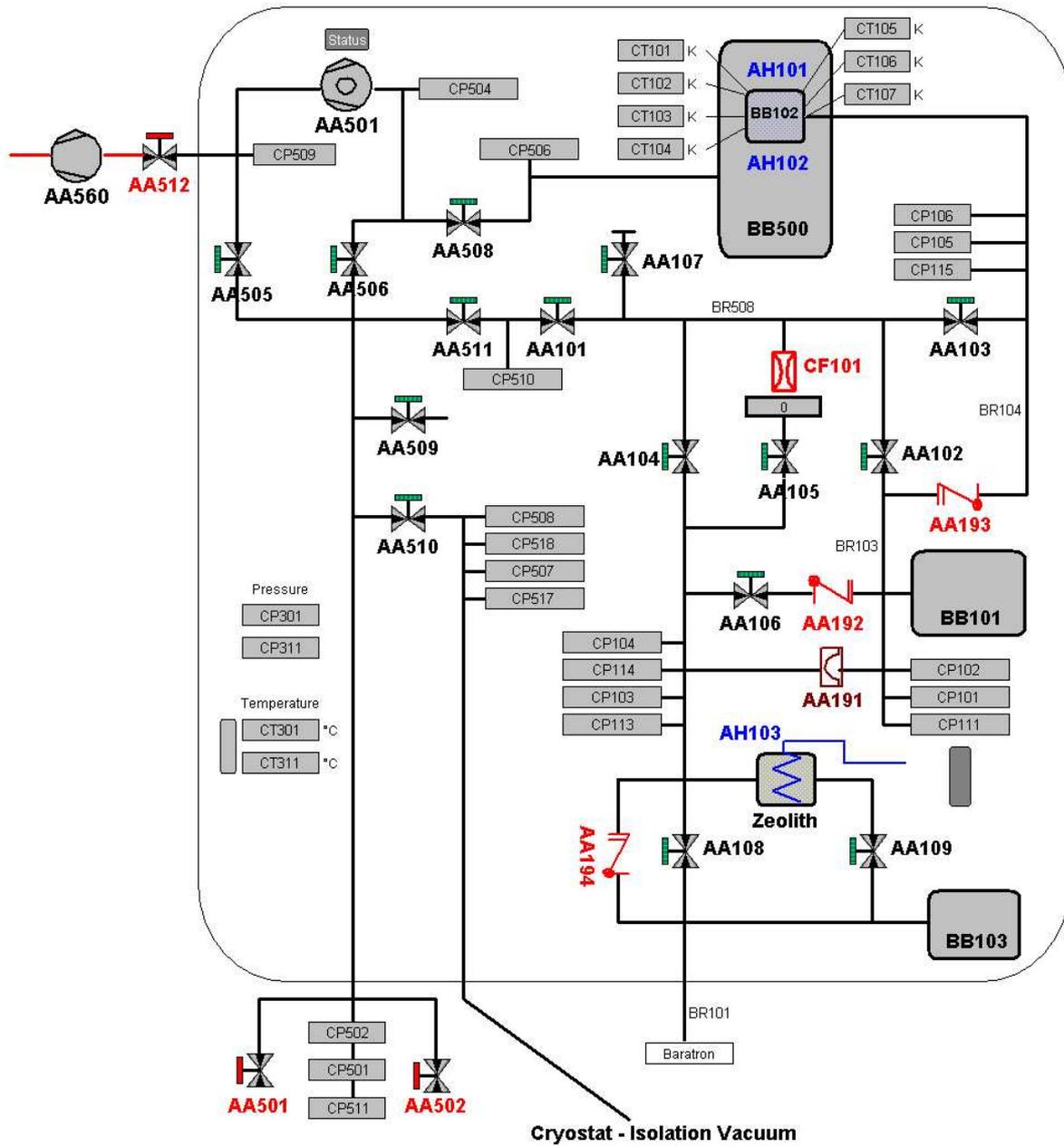


Abbildung 3.7: Schematischer Aufbau des Deuterium-Gassystems.

Abkürzung	Beschreibung
AAxxx	Ventil, Rückschlagklappe, Berstscheibe
AHxxx	Heizer
ANxxx	Vakuumpumpe
BBxxx	Behälter
BRxxx	Rohrleitung, Verbindungsleitung
CFxxx	Gasflussmesser
CPxxx	Drucksensor, Vakuumsensor
CTxxx	Temperatursensor

Tabelle 3.1: Zusammenfassung der im Schema 3.7 verwendeten Abkürzungen.

Die Ventile AA505 und AA506 ermöglichen es wahlweise, die angrenzenden Systeme nur mit der Vorpumpe oder mit der Kombination aus Vor- und Turbomolekularpumpe zu evakuieren.

Das Ventil AA510 trennt das Vakuumsystem vom Isoliervakuumraum des Kryostatenbehälters. Dieser ist mit einer flexiblen Leitung, die ebenfalls doppelwandig ausgeführt ist, mit dem Vakuumsystem verbunden. Die Drucksensoren CP507 und CP517, sowie die Vakuumsensoren CP508 und CP518 überwachen redundant diese Verbindung.

Das Ventil AA509 trennt das Vakuumsystem vom Helium-Schutzgasraum. Damit kann dieser vor dem Befüllen mit Helium mit der Vorpumpe abgepumpt werden. Die Drucksensoren CP301 und CP311 überwachen redundant den anliegenden Heliumdruck.

Die Handventile AA501 und AA502 dienen als Schnittstelle zum erstmaligen Befüllen des Gassystems mit Helium und Deuterium. Die Drucksensoren CP501 und CP511, sowie der Vakuumsensor CP502 überwachen den Füllvorgang.

Das Ventil AA511 bildet die Schnittstelle zwischen Vakuumsystem und Deuteriumsystem. Der Druck in der verbindenden Rohrleitung wird durch den Drucksensor CP510 überwacht.

### 3.3.2 Das Deuteriumsystem

Zentrale Elemente des Deuteriumsystems sind die Lagerbehälter für gasförmiges und festes Deuterium. Hierbei dient der Behälter BB101 (Volumen 270l, maximaler D<sub>2</sub>-Fülldruck 90 kPa) zur Aufnahme des gasförmigen Deuteriums. Der Behälter BB102 (Volumen 400 cm<sup>3</sup>) ist auf einem zweistufigen Kaltkopf montiert, der eine Minimaltemperatur von etwa 10 K erreicht. Somit kann hier das Deuterium im festen Zustand gelagert werden.

Das Ventil AA101 mit der angrenzenden Rohrleitung BR508 bildet die Schnittstelle zwi-

schen Deuteriumsystem und Vakuumsystem. Hiermit kann ein entsprechendes Vakuum in den Behältern und Rohrleitungen des Deuteriumsystems erzeugt werden, bevor diese mit gasförmigem  $D_2$  befüllt werden.

Der Lagerbehälter für gasförmiges Deuterium BB101 mit der Rohrleitung BR103 ist durch das Ventil AA102, die Rückschlagklappen AA192 und AA193 und die Berstscheibe AA191 (Differenzdruck beim Bersten 2 bar) vom restlichen System abgetrennt. Der Druck im BB101 wird durch die Sensoren CP101, CP102 und CP111 redundant überwacht.

Der Kryo-Lagerbehälter BB102 ist über die Rohrleitungen BR103, BR104 und BR105 mit dem Lagerbehälter BB101 für gasförmiges Deuterium verbunden. Die Ventile AA102 und AA103 trennen hierbei den BB102 vom BB101. Falls sich das Deuterium im festen Zustand im BB102 befindet, und man den Ausfall des Kaltkopfs unterstellt, so kann das verdampfende Deuterium, auch falls die Ventile AA102 und AA103 geschlossen sind, über die Rückschlagklappe AA193 (Differenzdruck zum Öffnen 200 mbar) in den BB101 strömen, ohne dass ein gefährlicher Druckanstieg in den Rohrleitungen und im BB102 auftritt. Der Vakuumsensor CP106 und die Drucksensoren CP105 und CP115 überwachen hierbei redundant den Druck im BB102 und in der Leitung BR104. Die Temperaturen im BB102 werden mit den Sensoren CT101 bis CT107 überwacht. Zur Temperaturregelung dienen die Heizer AH101 (an der Verbindung zwischen BB102 und BR104) und AH102 (an der Verbindung zwischen Kaltkopf und BB102).

Das Deuteriumsystem ist über die flexible Leitung BR101 an den Kryostatenbehälter angebunden. Über diese kann gasförmiges  $D_2$  mittels Kryopumpwirkung bis zur Konverternase gebracht und dort ausgefroren werden. Zur Regelung des  $D_2$ -Gasstroms, der ausgefroren werden soll, dient die Kombination aus dem Durchflussmesser CF101 und dem Absperrventil AA105. Diese verbinden den Behälter BB101 mit der Zuleitung zum Kryostaten BR102. Der Druck in der Zuleitung zum Kryostaten wird mittels der Sensoren CP103, CP104, CP113 und CP114 redundant überwacht. Soll in der Konverternase ausgefrorenes Deuterium verdampft und in den BB101 zurückgeführt werden, so kann das durch Öffnen der Ventile AA104 und AA102 geschehen. Im Fehlerfall kann dies auf dem Weg durch das Ventil AA106 – dies ist das einzige Ventil, das ohne Steuerstrom und Steuerdruck offen ist – und die Rückschlagklappe AA192 (Differenzdruck zum Öffnen 200 mbar) erfolgen. Sollte auch das Ventil AA106 geschlossen sein und das Deuterium in der Konverternase ungewollt, etwa durch Ausfall der Kühlung mit flüssigem Helium, verdampfen, so kann es durch die Berstscheibe AA191 in den BB101 entspannen.

Durch die soeben beschriebene Anordnung von Ventilen, Rückschlagklappen und Berstscheibe sind alle Störfälle, die beim Betrieb des UCN Konverters auftreten können, abgesichert. Es wurde sichergestellt, dass bei einem Ausfall der Kühlung, sei es am Konverter oder in der Kryo-Lagerzelle, das gasförmige Deuterium wieder in den Lagerbehälter strömen kann, ohne

dass der Druck in den einzelnen Systemteilen gefährlich ansteigt. Da das System doppelwandig ist, mit Helium-Schutzgas unter Überdruck zwischen den Wänden, kann bei Leckagen eine Mischung von Sauerstoff (Raumluft) und Deuterium vermieden werden. Selbst für den extrem unwahrscheinlichen Fall, dass eine Mischung von Deuteriumgas und Raumluft erfolgt (aus welchen Gründen auch immer), und dieses Gemisch gezündet wird, sind alle Hüllrohre, Verbindungsleitungen und der Behälter des Helium-Schutzgassystems so ausgelegt, dass sie dem Druck bei einer Deflagration des Deuteriums standhalten könnten.

### 3.3.3 Der Para/Ortho Konverter

Zum Befüllen des Gassystems mit Deuterium wurde ein Para/Ortho-Konverter konstruiert (siehe Abbildung 3.9), der mit dem Gassystem verbunden werden kann. Er besteht im Wesentlichen aus einem zweistufigen Kaltkopf, an dem eine Kryozelle (Volumen  $400 \text{ cm}^3$ ) aufgesetzt wurde. Die Zelle wurde mit OXISORB<sup>®</sup> [OXYSORB] (Chromsalze gebunden in Kieselgel) befüllt, welches durch seine paramagnetischen Eigenschaften die Konversion von para-D<sub>2</sub> in ortho-D<sub>2</sub> katalytisch beschleunigt. Der Befüllvorgang fand unter Ar-Schutzgas statt, um Verunreinigungen des OXISORB<sup>®</sup> mit Wasserstoff zu vermeiden.

Zur katalytischen Konversion wird die Konverterzelle auf etwa 19 K abgekühlt und das D<sub>2</sub>-Gas durch Kryopumpen in die Zelle gesaugt. Das Deuterium schlägt sich an den kalten Wänden nieder und geht in den flüssigen Zustand über. Nachdem die gesamte Deuteriummenge verflüssigt wurde, schließt man den Gaseinlass ab und erhöht die Temperatur auf etwa 22 K, so dass das Deuterium zu kochen beginnt. Somit wird sichergestellt, dass das gesamte Deuterium in Kontakt mit dem Katalysator kommt und die Konversion beschleunigt abläuft. Mit dieser Methode wurde eine Konversionsrate von  $K_{\text{kat}} = 0.35 \text{ h}^{-1}$  erzielt. Diese ist etwa 580-mal größer als die natürliche Konversionsrate  $K_{\text{nat}} = 6 \cdot 10^{-4} \text{ h}^{-1}$  [Sil1980]. Abbildung 3.8 zeigt die Messung eines Konversionsprozesses.

Eine detaillierte Beschreibung des Konversionsprozesses findet sich in Ref. [Fre2008]. Im Gleichgewichtsfall befindet sich bei Raumtemperatur 1/3 des Deuteriums im Para-Zustand ( $S = 1$ ). Da der Wirkungsquerschnitt für Aufwärtsstreuung an para-D<sub>2</sub> mehr als zwei Größenordnungen über dem Aufwärts-Streuquerschnitt an ortho-D<sub>2</sub> liegt, ist eine schnelle und effektive Konversion von para-D<sub>2</sub> zu ortho-D<sub>2</sub> notwendige Voraussetzung, um die Verluste bei der UCN Erzeugung klein zu halten.

### 3.3.4 Das Raman-Spektrometer

Um den Para-Deuterium-Gehalt nach der Konversion im katalytischen Konverter zu bestimmen wurde das Deuterium erwärmt, und eine kleine Menge in eine Probenzelle entnommen.

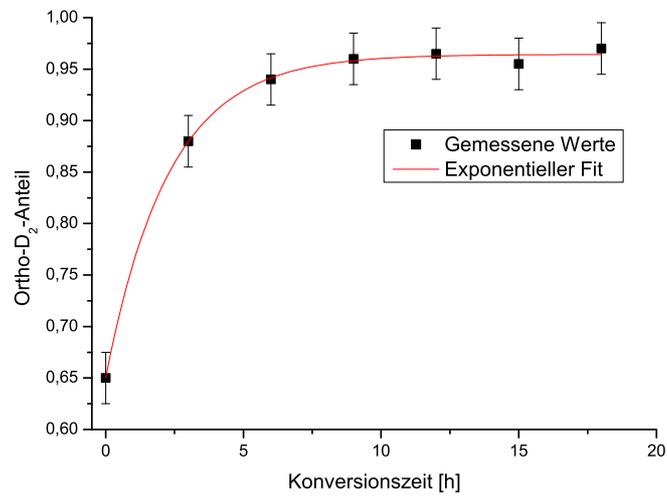


Abbildung 3.8: Gemessene Konversionsrate des verwendeten Para/Ortho-Konverters.

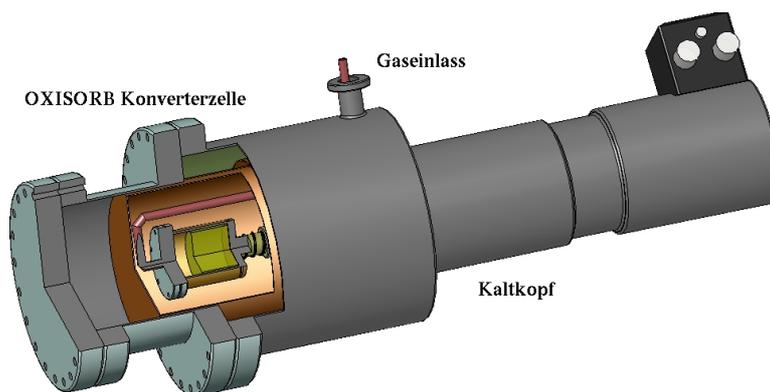


Abbildung 3.9: Schematische Zeichnung des OXISORB<sup>®</sup> Para/Ortho Konverters.

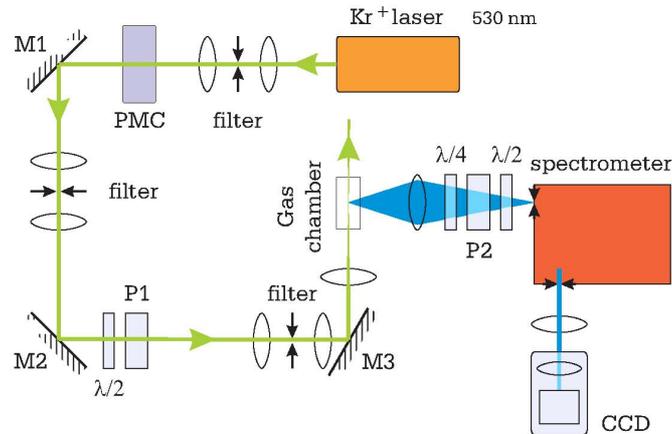


Abbildung 3.10: Aufbau des Raman-Spektrometers zur Bestimmung des Para-Deuterium-Gehalts (schematisch).

Diese Probenzelle (Abmessungen  $40 \times 40 \times 40$  mm) besitzt, neben zwei Ventilen zum Evakuieren und Befüllen, vier Suprasil-Fenster [SUPRASIL]. Damit ist es möglich die gasförmige Deuteriumprobe an einem bestehenden Raman-Spektrometer [RAM-WMI] zu vermessen.

Abbildung 3.10 zeigt schematisch den Aufbau des Raman-Spektrometers. Zentrale Elemente dieses Aufbaus sind ein Krypton-Laser ( $\lambda = 530.8$  nm,  $k = 1/\lambda = 18837$  cm<sup>-1</sup>, Leistung 40 mW) und eine CCD-Kamera, um das Raman-gestreuete Licht zu detektieren. Bei der verwendeten Probenzelle durchdringt der Laser zwei Suprasil-Fenster und die Gasprobe, senkrecht dazu kann das gestreute Licht durch die anderen beiden Suprasil-Fenster zur Kamera gelangen.

Abbildung 3.11 zeigt links ein gemessenes Raman-Spektrum einer absichtlich mit Wasserstoff verunreinigten Deuteriumprobe. Neben den Raman-Peaks, die den Ortho- bzw. Para-Zuständen zuzuordnen sind, sind auch deutlich Peaks zu sehen, die von HD-Molekülen stammen. Damit ist es also nicht nur möglich den Para-Deuterium Anteil zu bestimmen, sondern auch das Deuterium auf eventuelle Verunreinigungen zu überprüfen. Auf der rechten Seite von Abbildung 3.11 sind zwei Spektren mit unterschiedlichem Para-Anteil gezeigt. Deutlich ist der Unterschied in den Peaks zu sehen, die den Para-Zuständen zugeordnet werden können.

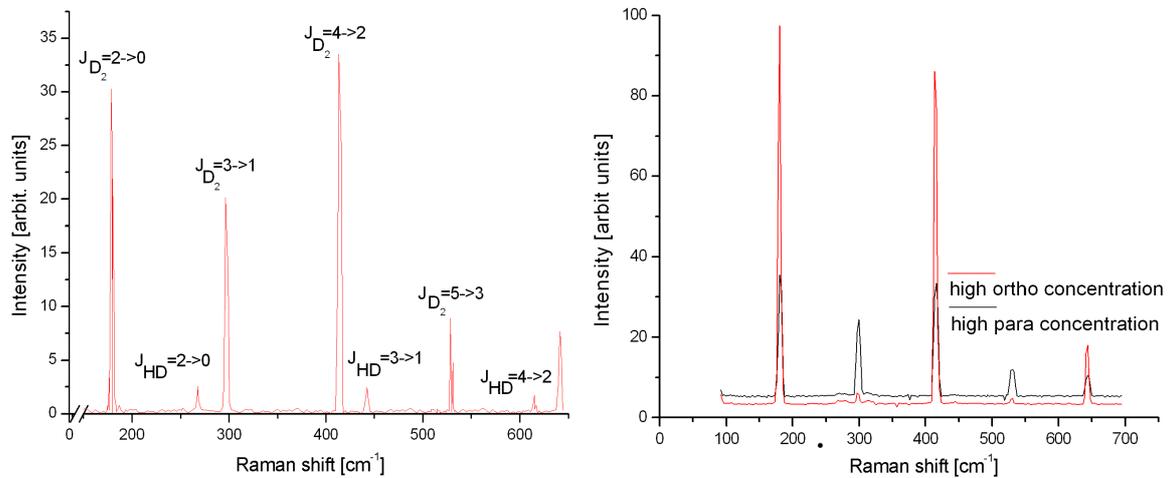


Abbildung 3.11: Links: Gemessenes Raman-Spektrum einer mit Wasserstoff verunreinigten Deuterium-Probe. Rechts: Vergleich von zwei Raman-Spektren von Deuterium-Proben mit unterschiedlichem Para-Anteil.

### 3.4 Das Steuerungssystem

Bei dem Steuerungssystem handelt es sich um eine elektronische Speicher-Programmierbare-Steuerung (SPS) vom Typ Simatic<sup>®</sup>-S7 der Firma Siemens. Die Steuerungsfunktionen werden als Programm im Speicher einer CPU-Baugruppe gespeichert. Programmiert wurde die Simatic<sup>®</sup> mittels der Programmiersoftware STEP5/STEP7. Das Automatisierungssystem ist modular und kann neben der CPU mit unterschiedlichen digitalen und analogen Peripheriebaugruppen sowie vorverarbeitenden, intelligenten Baugruppen bestückt werden. Die Baugruppen können zentral (in der Nähe der CPU) oder dezentral aufgebaut sein. Simatic<sup>®</sup>-S7-Steuerungen zeichnen sich durch ihre Robustheit gegenüber elektromagnetischen Störungen und klimatischen Beanspruchungen sowie durch hohe Geschwindigkeit und Ausbaufähigkeit aus. In jüngster Zeit spricht man bei einer derartigen Steuerung von "Totally-Integrated-Automation" (TIA). Das TIA-Konzept ist Bestandteil der Simatic<sup>®</sup>-S7. "Safety Integrated" und "Hochverfügbar" spielen hierbei eine große Rolle. Dies bedeutet, dass die Fehlersicherheit bereits redundant in die Steuerung integriert ist und somit ein aktiver bzw. passiver Fehler kompensiert werden kann.

Im Fall der UCN-Quelle am TRIGA Mainz werden mit diesem System alle aktiven Komponenten des D<sub>2</sub>-Gassystems und des Inpile-Kryostaten gesteuert und/oder deren Betriebszustände ausgelesen und protokolliert. Dies trifft besonders auf alle Ventile, Heizer, Pumpen und Sensoren (Druck, Vakuum, Temperatur, Gasfluss) zu. Denkbare Fehlerzustände und Störfälle werden automatisch behandelt. Mittels einer graphischen Benutzeroberfläche sind lediglich

als "erlaubt" programmierte Systemzustände einzustellen. Dies gewährt neben der nötigen Funktionalität ein Höchstmaß an Sicherheit, wie es bei Kernkraftwerken und Forschungsreaktoren vorgeschrieben ist.

### 3.5 Detektor, Ausleseelektronik und Datenerfassung

Wie bereits in Kapitel 3.1 beschrieben, wurde hauptsächlich der gepulste Modus des TRIGA Reaktors zur UCN-Erzeugung genutzt. Um diese zu detektieren, wurde an den Inpile-Kryostaten nach dem Al-Fenster ein Neutronenleiter, welcher identisch mit dem der Inpile-Sektion ist, und ein UCN Detektor angebaut. Nach dem Al-Fenster folgt ein 45°-Bogen, daran schließt sich ein horizontal verlaufendes Leiterstück von 1.5 m Länge an, das nach einem weiteren 90°-Bogen 0.5 m vertikal nach unten verläuft und in den Detektor mündet. Dieser einfache Aufbau bietet einerseits die Möglichkeit, durch eine geeignete Abschirmung den Neutronen- und  $\gamma$ -Untergrund am Detektor zu unterdrücken. Andererseits werden die im Puls-Modus des Reaktors erzeugten UCN nicht in einer separaten Neutronen-Flasche gespeichert, sondern sie gelangen nach kurzer Laufzeit zum Detektor. Hierzu ist ein Detektor samt Auslesesystem nötig, der hohe Zählraten (bis zu  $10^6 \text{ s}^{-1}$ ) nahezu totzeitfrei verarbeiten können muss.

#### 3.5.1 Detektor

Der Cascade-Detektor [Kle2001] basiert auf der GEM-Technologie [Sal1997]. Die ankommenden UCN treten durch ein Al-Fenster (Fläche  $100 \times 100 \text{ mm}^2$ , Dicke  $100 \mu\text{m}$ ), das auf der Innenseite mit einer 200 nm dicken  $^{10}\text{B}$ -Schicht belegt ist, in den Detektor ein. Da die UCN eine Höhendifferenz von 0.5 m durchfallen bevor sie den Detektor erreichen, besitzen sie genügend Energie, um das Fermi-Potential des Al-Fensters ( $V_{\text{Al}} = 54 \text{ neV}$ ) zu überwinden. Im  $^{10}\text{B}$  findet dann folgende Konversionsreaktion statt:



Die geladenen Zerfallsprodukte dringen in das Zählgas (Mischung aus Ar/ $\text{CO}_2$  im Verhältnis 80/20) des Detektors ein, und erzeugen dort durch Ionisation Elektronen-Ionen-Paare. Die Elektronen driften dann zur GEM-Folie, wo sie durch Mikro-Löcher kanalisiert und vervielfacht werden, bevor sie zur Auslesestruktur (Elektroden, Vorverstärker, Pulsformer, Diskriminator) gelangen. Die Effizienz des Cascade-Detektors in Abhängigkeit von der UCN-Geschwindigkeit zeigt Abbildung 3.12. Die Zählrate, die die GEM-Struktur verarbeiten kann, liegt größenordnungsmäßig bei  $10^7 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  [Bre1999], was für die Anforderungen an der UCN-Quelle am TRIGA Mainz mehr als ausreichend ist.

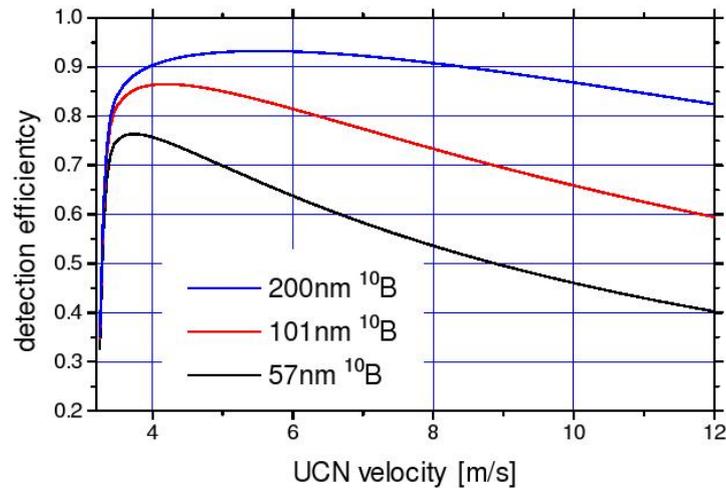


Abbildung 3.12: Berechnete Detektions-Effizienz des Cascade-Detektors für UCN. An der UCN-Quelle am TRIGA Mainz wurden 200 nm <sup>10</sup>B benutzt.

### 3.5.2 Ausleseelektronik und Datenerfassung

Die verwendete Ausleseelektronik und das Datenerfassungssystem, welches bei den Experimenten mit der UCN-Quelle am TRIGA Mainz verwendet wurde, orientiert sich an Teilen des Datenerfassungssystems für das COMPASS<sup>1</sup> Experiment [Sct2004] am CERN<sup>2</sup>, wenngleich auch in deutlich reduzierter Form. Die integralen Datenmengen bei COMPASS sind natürlich deutlich höher als die zu erwartenden UCN Zählraten. Trotzdem müssen wegen der UCN-Erzeugung im Pulsbetrieb für kurze Zeiten (einige Sekunden) hohe Zählraten (bis zu  $10^6 \text{ s}^{-1}$ ) von der Ausleseelektronik und vom Datenerfassungssystem bewältigt werden. Deshalb entschied man sich, Teile der Ausleseelektronik, wie sie für GEM Detektoren bei COMPASS verwendet werden, zu kopieren. Wesentliche Teile dieser Elektronik wurden bereits an der TU München entwickelt und standen zur Verfügung.

Die Datensignale des Cascade-Detektors werden hierbei mit Hilfe einer speziellen Schaltungsplatine, welche an diesem Lehrstuhl gebaut wurde, aufgenommen und verarbeitet. Dann werden die Daten mittels optischer Signalübertragung an die "Spillbuffer"-PCI Karte des Datenerfassungs-PCs weitergeleitet. Diese Signalübertragung folgt dem S-Link [Bij1997] Standard, der am CERN entwickelt wurde. Die Online- und Offline-Datenanalyse erfolgte mittels der Software ROOT [Bru1997].

<sup>1</sup>Common Muon and Proton Apparatus for Structure and Spectroscopy

<sup>2</sup>European Organization for Nuclear Research, Geneva, Switzerland

### 3.6 Diverse Versorgungssysteme

Der Bereich des UCN Konverters im Inpile-Teil der Quelle ist mit einem Strahlungsschild aus Aluminium umgeben, welches mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird. Entsprechende Versorgungsleitungen hierfür sind im Kryostatenbehälter montiert. Die Versorgung mit flüssigem Stickstoff erfolgt durch Behälter (100 l) mit geregelter Druckaufbau. Der Einlass-Überdruck beträgt etwa (0.2 – 0.3) bar. Im normalen Betriebsmodus der Quelle liegt der Verbrauch von flüssigem Stickstoff bei etwa (5 – 10) l/h. Der Fluss wird manuell durch Einstellen des gewünschten Einlassdrucks gesteuert. Das Stickstoff-Abgas wurde über einen Wärmetauscher in die Abgasleitung des TRIGA Reaktors geführt.

Die Kühlung des UCN Konverters selbst erfolgt mit flüssigem Helium. Leider steht derzeit am TRIGA Reaktor Mainz weder ein geschlossener Helium-Verflüssigungskreislauf noch eine Abgas-Rückführleitung zur dortigen Kältemittelversorgung zur Verfügung. Deshalb muss auch die Kühlung mit flüssigem Helium mit mobilen Behältern (250 l, geregelter Druckaufbau) erfolgen. Im normalen Betriebsmodus genügt ein Einlass-Überdruck von (0.20 – 0.25) bar, um den Konverter auf bis zu 5 K abzukühlen und auf dieser Temperatur zu halten. Wegen der einfachen Geometrie der Konverter-Nase ist das Verhältnis von kühlender Fläche zu Konvertervolumen relativ klein ( $\sim 30 \text{ m}^{-1}$ ), so dass die Kühlung nicht sehr effektiv ist, und einen hohen Verbrauch von flüssigem Helium zur Folge hat ( $\sim 20 \text{ l/h}$ ). Das Helium-Abgas durchläuft einen Wärmetauscher, wird anschließend in einem Ballon (maximales Volumen  $\sim 5 \text{ m}^3$ ) gesammelt und mit einem Kompressor in Gasflaschen komprimiert (maximaler Enddruck  $\sim 180 \text{ bar}$ ). Bei der Kältemittelversorgung der Universität Mainz kann dann das Helium in den Gasflaschen wieder verflüssigt werden.

Die Ventile im Deuterium-Gassystem werden pneumatisch betrieben. Da sich diese aber im Helium-Schutzgasraum des Gassystems befinden, kann man nicht wie üblich Druckluft zum Betrieb verwenden, da bei einer Leckage im pneumatischen System der Helium-Schutzgasraum mit Luft durchmischt würde. Deshalb erfolgt der Betrieb des Pneumatik-Systems mit Helium aus Gasflaschen. Der Betriebsdruck des Systems beträgt hierbei (6 – 7) bar.

# Kapitel 4

## Experimentelle Resultate

Im folgenden Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse der Messungen an der UCN-Quelle präsentiert. Im Detail wurde das Flugzeitspektrum der am Detektor ankommenden UCN untersucht, die Zählrate in Abhängigkeit von der ausgefrorenen D<sub>2</sub>-Menge gemessen und das Energiespektrum der Neutronen bestimmt. Ein Teil dieser experimentellen Resultate wurde bereits an anderer Stelle veröffentlicht [Fre2007].

### 4.1 Flugzeitspektrum

Ein typisches Flugzeitspektrum (TOF-Spektrum) der am Detektor registrierten UCN im Pulsbetrieb, normiert auf die Reaktorleistung, ist in Abbildung 4.1 gezeigt. Der Zeitpunkt  $t = 0$  entspricht hier dem Reaktorimpuls. Bei allen Spektren betrug die Menge des ausgefrorenen Deuteriums etwa 4.5 mol. Ein Vormoderator war nicht installiert. Das Untergrundspektrum wurde ohne ausgefrorenes D<sub>2</sub> gemessen. Der Untergrund ist hier nahezu vernachlässigbar, da er nur in den ersten beiden Sekunden nach dem Reaktorimpuls mit weniger als 1% zu den UCN Zählraten beiträgt. Bei allen Spektren mit ausgefrorenem Konverter wurde der Untergrund abgezogen. Etwa zwei Sekunden nach dem Reaktorimpuls zeigt sich ein Maximum in den gemessenen Zählraten, welche dann mit einer Zeitkonstante von etwa fünf Sekunden annähernd exponentiell abfallen.

Die am Detektor registrierten Neutronen sind eine Mischung aus UCN und höherenergetischen Neutronen (d.h. Neutronen mit einer Geschwindigkeit größer als die Grenzggeschwindigkeit des Edelstahl-Neutronenleiters  $v_{\text{grenz}}(\text{Edelstahl}) = 6 \text{ m/s}$ ). Um den UCN-Anteil am gesamten Spektrum abzuschätzen, wurden Folien-Transmissionsexperimente durchgeführt, deren Ergebnisse ebenfalls in Abbildung 4.1 zu sehen sind. Bei diesen Messungen wurden direkt vor der sensitiven Detektorfläche verschiedene Folien angebracht. Im Detail handelt es sich hierbei

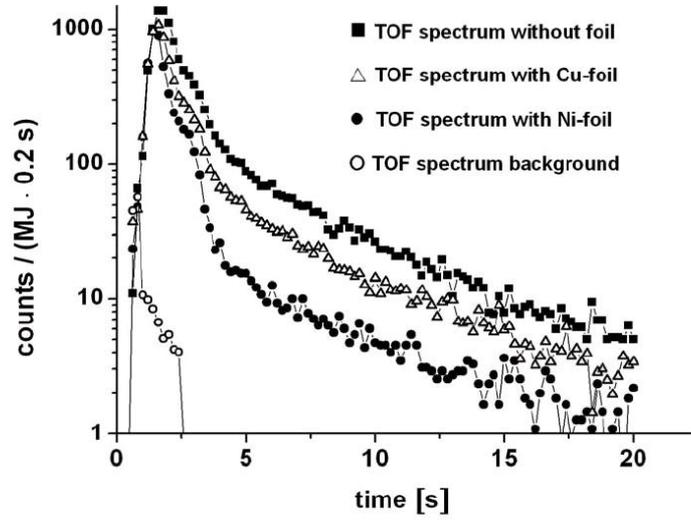


Abbildung 4.1: Flugzeitspektren der am Detektor registrierten UCN, normiert auf die Reaktorleistung, nach einem Reaktor puls (zur Zeit  $t = 0$ ) ohne Vormoderator. Schwarze Rauten: Registrierte UCN bei 4.55 mol  $D_2$  ohne Folie. Weiße Kreise: Untergrund ohne  $D_2$ -Moderator. Schwarze Kreise: Ni-Folie vor der sensitiven Detektorfläche bei 4.65 mol  $D_2$ . Weiße Dreiecke: Cu-Folie vor der sensitiven Detektorfläche bei 4.35 mol  $D_2$ .

um Aluminium Folien (Dicke  $12.5 \mu\text{m}$ ), die entweder mit natürlichem Nickel (Dicke 200 nm) oder mit Kupfer (Dicke 500 nm) besputtert wurden. Diese dünnen Schichten wurden an der Universität Heidelberg hergestellt und charakterisiert. Die zugehörigen Fermi-Potentiale  $V_F$  bzw. Grenzgeschwindigkeiten  $v_{\text{grenz}}$  der Folien wurden experimentell zu  $V_F(\text{Ni}) = 250 \text{ neV}$ ,  $V_F(\text{Cu}) = 165 \text{ neV}$ ,  $v_{\text{grenz}}(\text{Ni}) = 6.9 \text{ m/s}$  und  $v_{\text{grenz}}(\text{Cu}) = 5.6 \text{ m/s}$  bestimmt [Atc2007b].

Vergleicht man die integrale Anzahl  $N$  der detektierten Neutronen (untergrundbereinigt) mit und ohne Folie, so erhält man:

$$N(\text{ohne Folie}) : N(\text{Cu Folie}) : N(\text{Ni Folie}) = 12100 : 7800 : 5200 \quad (4.1)$$

Wie bereits in Kapitel 3.5 beschrieben, durchfallen die produzierten Neutronen vor dem Detektor eine Höhendifferenz von 50 cm. Daher wird ihr Energiespektrum um etwa 50 neV hin zu höheren Energien verschoben. Definiert man also in diesem Fall Neutronen mit einer Energie  $E \leq V_F(\text{Edelstahl}) + 50 \text{ neV}$  als ultrakalt, so kann man aus diesem Vergleich ableiten, dass etwa 50% der detektierten Neutronen UCN sind.

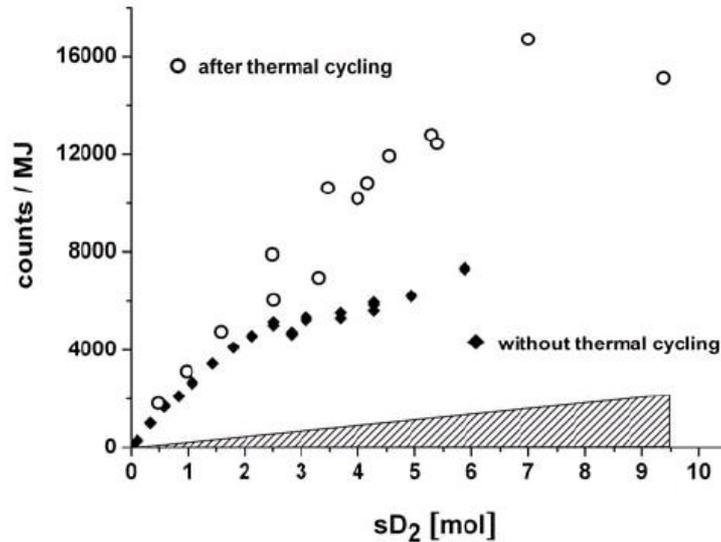


Abbildung 4.2: Gemessene UCN-Zählraten (normiert auf die Reaktor-Pulsenergie) als Funktion der ausgefrorenen D<sub>2</sub>-Menge. Schwarze Quadrate: Zählrate bei schrittweiser Erhöhung der D<sub>2</sub>-Menge um (0.2 – 0.3) mol bei konstanter Konverter-Temperatur von 6 K ohne thermische Zyklen. Weisse Kreise: Thermische Zyklen des gefrorenen D<sub>2</sub> bewirken eine Zunahme der Zählrate, besonders bei Mengen größer 2 mol. Schraffiertes Dreieck: Zugehörige Fehlerbalken, hauptsächlich resultierend aus der Unsicherheit in der Reproduzierbarkeit (10%) der thermischen Zyklen.

## 4.2 UCN-Zählraten bei verschiedenen D<sub>2</sub>-Mengen

Die gemessenen Neutronenzählraten in Abhängigkeit von der ausgefrorenen D<sub>2</sub>-Menge, normiert auf die Pulsenergie, sind in Abbildung 4.2 aufgetragen. Bei diesen Messungen wurde kein Vormoderator verwendet. In einem ersten Versuch wurde die ausgefrorene D<sub>2</sub>-Menge schrittweise um etwa (0.2 – 0.3) mol erhöht, während die Temperatur des Konverters konstant auf etwa 6 K gehalten wurde. Bei dieser Vorgehensweise stellt sich ab etwa (2 – 3) mol eine Sättigung in der Neutronenzählrate ein.

In einem zweiten Versuch wurde nach jeder schrittweisen Erhöhung der D<sub>2</sub>-Menge mindestens ein thermischer Zyklus am Konverter durchgeführt: Ausgehend von der Ausfrieretemperatur (6 K) wurde die Temperatur des Konverters auf etwa (11 – 13) K erhöht, und mindestens 30 Minuten gehalten (bei großen D<sub>2</sub>-Mengen auch wesentlich länger, ab 5 mol mindestens 90 Minuten lang). Danach wurde der Konverter wieder auf 6 K abgekühlt. Gegenüber dem ersten Versuch konnte mit diesem Verfahren die Zählrate deutlich erhöht werden. Bei D<sub>2</sub>-Mengen größer 4 mol ist eine Erhöhung um etwa einen Faktor 2 zu beobachten.

Offensichtlich führen also thermische Zyklen des Konverters zu erhöhter Effizienz. Dieses Verhalten stimmt mit Beobachtungen der optischen Eigenschaften des gefrorenen Deuteriums überein [Bod2004], und ebenso mit der irreversiblen Umordnung der Kristallstruktur des Deuteriums von einem fcc-Gitter in ein hcp-Gitter, was experimentell bereits beobachtet wurde [Sou1986, Col1996]. Dies liefert allerdings nur eine qualitative Erklärung des beobachteten Verhaltens. Der Zusammenhang zwischen den optischen Eigenschaften des Konverter-Kristalls und seiner Effizienz hinsichtlich der UCN-Produktion und Extraktion bedarf sicherlich weiterer Untersuchungen.

Ab etwa 7 mol konnte keine Erhöhung der Zählrate mehr gemessen werden. Der Grund dafür liegt in der Geometrie der Konvertiernase: Bei großen Mengen sind die weiter innen liegenden D<sub>2</sub>-Schichten durch die geringe Wärmeleitfähigkeit des bereits ausgefrorenen Deuteriums von der gekühlten Behälterwand thermisch entkoppelt. Gleichzeitig wirkt auf diese Schichten die Wärmestrahlung des ungekühlten (300 K) Neutronenleiters. Dies bewirkt eine Temperaturerhöhung des Konverters und damit eine geringere UCN Konversions- bzw. Produktionsrate und eine größere Verlustrate.

Das effektiv nutzbare Konvertervolumen bestimmt sich aus dem zur UCN-Produktion beitragendem Volumen und der mittleren freien Weglänge der UCN im festen Deuterium. Letztere ist in einem idealem D<sub>2</sub>-Einkristall bestimmt durch die inkohärente elastische Streulänge

$$\lambda_{\text{inc}} = \frac{1}{N \cdot (4\pi b_{\text{inc}}^2)} = 8.0 \text{ cm} . \quad (4.2)$$

Hierbei ist  $N = 6.1 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  [Sil1980] die Teilchendichte des festen Deuteriums und  $b_{\text{inc}} = 4.04 \text{ fm}$  [Sea1992] die gebundene inkohärente Streulänge. In einem größeren Volumen festen Deuteriums werden die UCN also (evtl. auch mehrfach) elastisch gestreut und gehen dann durch Absorption oder Aufwärtsstreuung verloren. In einem nicht perfekten Einkristall wird die freie Weglänge deutlich kleiner sein, da hier noch zusätzlich Streuung an Kristallgrenzen, Defektstellen usw. auftritt. Dies kann zumindest qualitativ die Sättigung in der UCN-Zählrate beim thermisch unbehandelten Kristall erklären.

Die Messungen mit thermischen Zyklen wurden mehrere Male mit verschiedenen Mengen festen Deuteriums ((1–9) mol) durchgeführt, um die Reproduzierbarkeit abschätzen zu können. Die beobachteten Variationen in der maximalen UCN-Zählrate lagen hierbei im Bereich von etwa (5 – 10)%, wie auch in Abbildung 4.2 zu sehen ist.

Abbildung 4.3 zeigt detailliert den Effekt thermischer Zyklen bei einer konstanten Menge von 4 mol festem Deuterium. Hierbei wurde die gesamte Menge in einem Schritt bei einer Temperatur von etwa 6 K aus der Gasphase ausgefroren. Danach wurde die Konvertertemperatur periodisch auf 13 K erhöht und wieder auf 6 K abgesenkt. Nach vier dieser Zyklen hatte sich die gemessene Zählrate um einen Faktor 1.7 von 7000/MJ auf 12000/MJ erhöht. Nach diesen

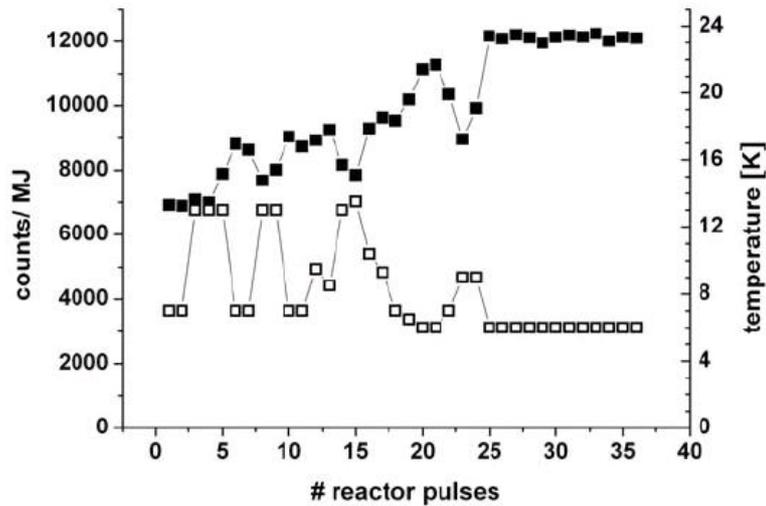


Abbildung 4.3: Thermische Zyklen bei 4 mol festem Deuterium. Schwarze Quadrate: Gemessene Neutronen-Zählraten normalisiert auf die Pulsenergie bei aufeinanderfolgenden Reaktorpulsen. Hierbei wurde die Temperatur  $T$  des Konverters (weisse Quadrate) im Bereich  $6\text{ K} \leq T \leq 13\text{ K}$  periodisch erhöht und wieder abgesenkt. Ab Puls Nr. 25 war die Konvertertemperatur 6 K, und die gemessene Zählrate blieb konstant bei etwa 12000/MJ.

Zyklen wurde die Konvertertemperatur konstant auf 6 K gehalten. Es ergab sich daraufhin keine weitere Änderung in der Zählrate.

Abbildung 4.4 zeigt zusätzlich die gemessenen maximalen Neutronenzählraten nach thermischen Zyklen mit Kupfer- und Nickel-Folien vor der sensitiven Detektorfläche. Ein nahezu linearer Anstieg der Zählraten mit zunehmender Konvertermenge konnte ohne und mit Folien gezeigt werden. Das Verhältnis der Steigungen spiegelt das Verhältnis der Zählraten aus Gleichung 4.1 wieder.

### 4.3 UCN-Zählraten bei verschiedener Pulsenergie

In einer Serie von Messungen wurde die Pulsleistung des Reaktors und damit auch der auf den Konverter treffende thermische Neutronenfluss variiert. Abbildung 4.5 zeigt die untergrundbereinigten integralen Zählraten als Funktion der Pulsenergie bei 4 mol festem Deuterium. Es ergab sich ein linearer Zusammenhang zwischen Pulsenergie und integraler Zählrate. Diese Linearität konnte auch bei anderen Deuteriummengen bis zu 7 mol beobachtet werden.

Dieses Ergebnis zeigt, dass der thermische Schock beim Puls die Eigenschaften des Deuteri-

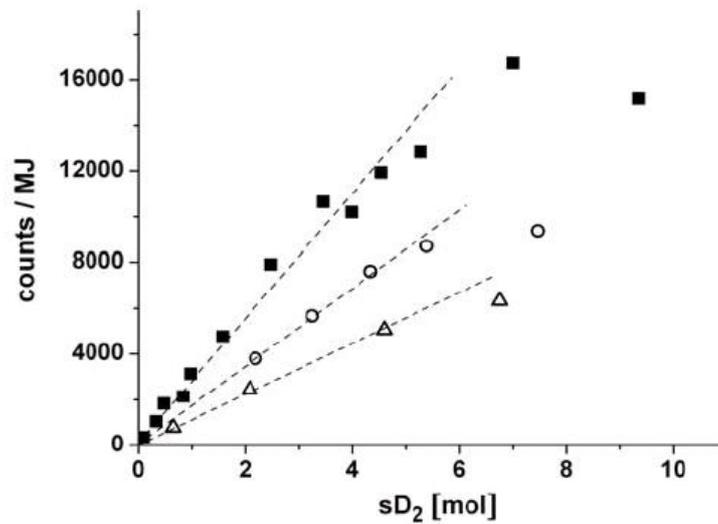


Abbildung 4.4: Gemessene Neutronen-Zählrate (normalisiert auf die Pulsenergie) ohne Vor-moderator nach thermischen Zyklen des Konverters bei verschiedenen Deuteriummengen. Schwarze Quadrate: Ohne Folie vor dem Detektor. Weiße Kreise: Cu-Folie (500 nm) vor dem Detektor. Weiße Dreiecke: Ni-Folie (200 nm) vor dem Detektor. Die gestrichelten Linien sind gezeichnet, um die Effekte deutlich zu machen.

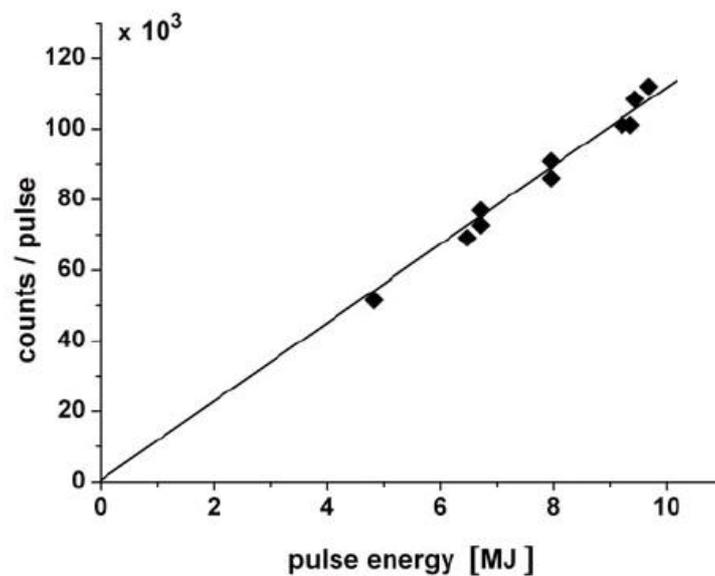


Abbildung 4.5: Integrale Neutronen-Zählraten bei verschiedenen Pulsenergien bei 4 mol festem Deuterium. Der statistische Fehlerbalken ist kleiner als die Symbole.

ums als Konverter nicht verändert. Bei einer Pulsenergie von 10 MJ beträgt die freigesetzte Energie im festen Deuterium am Strahlrohr C etwa 50 mJ/g. Dieser Wert wurde aus MCNP-Rechnungen [Bri2000] gewonnen. Zusätzlich wurde die Aufheizung von verschiedenen Substanzen im zentralen Bestrahlungsrohr des TRIGA-Reaktors gemessen [Pok2004], was die MCNP-Rechnungen bestätigte.

Die spezifische Wärmekapazität von festem ortho-Deuterium bei 6 K beträgt  $0.1 \text{ J}/(\text{g} \cdot \text{K})$  [Hil1959]. Daher erwartet man eine Temperaturerhöhung beim Puls von etwa 0.5 K. Dies konnte experimentell nicht eindeutig bestätigt werden. Es wurden von den Temperatursensoren unkorreliert Temperaturerhöhungen von  $(0 - 2) \text{ K}$  angezeigt, die nach etwa zwei Sekunden wieder verschwanden, was eher auf eine Aufheizung der Sensoren und nicht des Konverters selbst schließen lässt. Da die maximale Pulsrate beim TRIGA Mainz aber nur 12 Pulse/Stunde beträgt, kann man reproduzierbare integrale Zählraten im Pulsbetrieb erwarten.

## 4.4 Vormoderatoren

Die UCN-Produktionsrate im festen Deuterium-Konverter hängt vom Energiespektrum der auf den Konverter treffenden Neutronen (Maxwell-Spektrum) ab. Dieses ist charakterisiert durch die Temperatur  $T_n$ , wobei im Fall von Deuterium ein Maximum der Produktionsrate bei  $T_n = 30 \text{ K}$  [Yu1986] zu erwarten ist. Die Produktionsrate  $P$  des Konverters (pro Volumeneinheit) ist dann:

$$P = N \int dE_n \sigma(E_n) \frac{d\Phi_0(E_n)}{dE_n} \quad (4.3)$$

Hierbei ist  $N$  die Teilchendichte des Konverters,  $\sigma(E_n)$  der Wirkungsquerschnitt für Abwärtsstreuung der mit Energie  $E_n$  einfallenden Neutronen in den Energiebereich der UCN, und  $d\Phi_0(E_n)/dE_n$  der einfallende differentielle Neutronenfluss. Nimmt man an, dass die Ein-Phonon-Näherung gilt, ist die Produktionsrate  $P$  direkt mit dem Phononen-Anregungsspektrum des festen Deuterium-Konverters korreliert. Also ist die Verwendung eines Vormoderators sinnvoll, um das einfallende Neutronen-Energiespektrum dem Phononen-Anregungsspektrum anzupassen, und um damit eine höhere UCN-Produktionsrate zu erhalten.

Im Verlauf der Experimente wurden zwei verschiedene Vormoderator-Materialien getestet: Mesitylen ( $(\text{CH}_3)_3\text{C}_6\text{H}_3$ ) und eine Mischung aus Mesitylen und Toluol ( $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_5$ ), mit 67 Vol% Mesitylen und 33 Vol% Toluol. Methyl-Derivate von Benzen, wie beispielsweise Mesitylen und Toluol, werden seit einiger Zeit als Moderatoren für kalte Neutronenquellen, auch an pulsaren TRIGA-Reaktoren, erforscht und erfolgreich eingesetzt [Uts1976, Unl1994, Cse2000, Con2004, Nat2004, Can2006, Kiy2006, Tos2006]. Beide Substanzen besitzen einen

vergleichsweise niedrigen Schmelzpunkt (Mesitylen: 227 K, Toluol: 180 K [Nat2004]) und erlauben, selbst bei Temperaturen von etwa 20 K, Rotationsanregungen der Methyl-Gruppen. Daher können bei Stößen von Neutronen mit dem Kristallgitter niederenergetische Anregungen erzeugt werden und den Neutronen Energie entzogen werden.

Bei der UCN-Quelle am TRIGA Mainz wurden die Vormoderator-Substanzen bei Raumtemperatur als Flüssigkeit in den Vormoderator-Behälter eingefüllt (siehe Abbildung 3.5 rechte Seite), welcher anschließend dicht verschlossen und auf die Konverternase aufgeschoben wurde. Die Kühlung des Vormoderators erfolgte durch thermischen Kontakt zwischen Konverternase und Vormoderator-Behälter. Damit konnten am Vormoderator Temperaturen von etwa (15 – 20) K erreicht werden. Die effektive Dicke der Vormoderatorschicht betrug dann etwa 15 mm.

Bei diesen Versuchen zeigte sich, dass der Mesitylen-Vormoderator etwa (10 – 15)% höhere integrale UCN-Zählraten lieferte als die Mischung aus Mesitylen und Toluol. Eine Besonderheit des festen Mesitylen ist, dass es abhängig von der Ausfriereschwindigkeit und thermischen Nachbehandlung in drei verschiedenen Kristallstrukturen vorkommen kann, welche unterschiedliche Wirkungsquerschnitte für inelastische Neutronenstreuung zeigen. Im Fall der Quelle am TRIGA Mainz ist aber für den Vormoderator kein separater Kühl-Regelkreislauf installiert, so dass die Ausfriereschwindigkeit nur sehr unzureichend kontrolliert werden kann. Sobald Deuterium im Konverter ausgefroren wurde, ist eine thermische Nachbehandlung nicht möglich, da sonst das  $D_2$  wieder verdampfen würde. Bei einer Ausfriereschwindigkeit von etwa 3 K/min und ohne thermische Nachbehandlung produziert man im Mesitylen eine Mischung der Kristallphasen I und III. Im Vergleich zur Phase III haben die Phasen I und II mehr niederenergetische Phononenanregungszustände und sind daher besser als Moderatoren für kalte Neutronen geeignet [Nat2004].

In Abbildung 4.6 sind die integralen UCN+VCN-Zählraten (normiert auf die Reaktor-Pulsleistung) mit und ohne Mesitylen-Vormoderator als Funktion der Menge festen Deuteriums gezeigt. Offensichtlich werden, wie erhofft, mit Vormoderator mehr UCN erzeugt. Bei kleinen Deuteriummengen bis etwa 4 mol führt der Vormoderator zu einer Erhöhung der integralen Zählrate um etwa einen Faktor 2. Bei größeren Konvertermengen wird der Zählraten-Zugewinn mit Vormoderator kleiner. Dies kann qualitativ erklärt werden: Ohne Mesitylen-Vormoderator wirkt das feste Deuterium selbst sowohl als Konverter, als auch als Vormoderator. Dies bewirkt den nahezu linearen Anstieg der integralen Zählraten bei kleinen Deuteriummengen. Bei größeren Mengen wird der Vormoderatoreffekt des Deuterium verstärkt, so dass der Unterschied zum Mesitylen-Vormoderator kleiner wird.

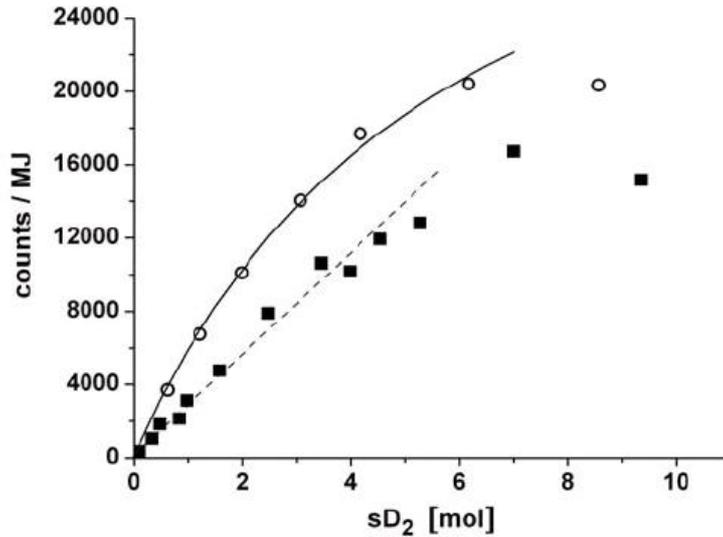


Abbildung 4.6: Integrale Neutronen-Zählrate normiert auf die Pulsenergie nach thermischen Zyklen als Funktion der ausgefrorenen Deuteriummenge. Schwarze Quadrate: Ohne Vormoderator. Weisse Kreise: Mit Mesitylen-Vormoderator. Die gestrichelte Linie ist zur optischen Unterstützung.

## 4.5 Temperaturabhängigkeit

Wie bereits in Kapitel 2.3.1 beschrieben, ist der Wirkungsquerschnitt für Aufwärtsstreuung der UCN an Ortho-Deuterium durch 1-Phonon-Prozesse stark temperaturabhängig. Bei einer Konvertertemperatur von 5 K ist er etwa genau so gross wie der Wirkungsquerschnitt für nukleare Absorption, bei 15 K liegt er um etwa eine Größenordnung höher. Man erwartet also eine signifikante Senkung der UCN-Zählrate, wenn man die Temperatur des festen Deuteriums erhöht.

Es wurde versucht diesen Effekt auch experimentell nachzuweisen. Die Konvertertemperatur konnte variiert werden, indem das flüssige Helium vor der Konvertiernase mittels eines Heizers verdampft und damit erwärmt wurde. Damit konnten Helium-Kaltgastemperaturen im Bereich von (6 – 16) K eingestellt werden.

Abbildung 4.7 zeigt das Ergebnis dieser Messungen. Wie erwartet sinkt die Neutronen-Zählrate im Bereich zwischen (6 – 16) K deutlich, wenn gleich auch nicht um eine ganze Größenordnung. Dies kann wie folgt erklärt werden: Die Temperatur des Deuteriums wurde durch einen Sensor bestimmt, der an der gekühlten Konvertiernase angebracht war. Da die Wärmeleitfähigkeit des Deuteriums aber in diesem Temperaturbereich sehr gering ist, dauert es sehr lange, bis der gesamte Kristall eine gleichmäßige Temperatur erreicht hat. Überdies wird sich

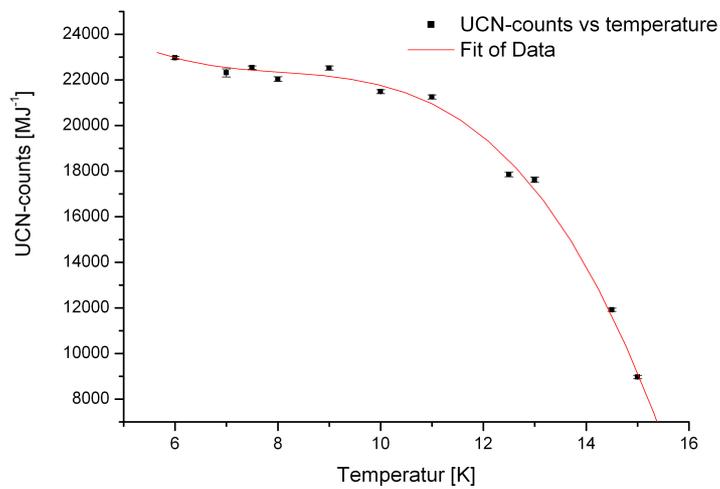


Abbildung 4.7: Neutronen-Zählrate pro Puls in Abhängigkeit der Temperatur des festen Deuterium-Konverters (6 mol, mit Vormoderator, nach thermischen Zyklen). Die durchgezogene Linie ist eine Fitkurve (Polynom 3. Grades) an die Datenpunkte.

im Kristall immer ein quantitativ nicht exakt zu bestimmender Temperaturgradient aufbauen. Auf der einen Seite liegt der Kristall an der gekühlten Konverterwand an, auf der anderen Seite ist er der Temperaturstrahlung des Neutronenleiters ausgesetzt, der Raumtemperatur besitzt. Als Folge davon wird dieser Teil des Kristalls immer wärmer sein, als der Teil der an der Konverterwand anliegt. Daher ist zwar eine Änderung der Zählrate bei Variation der Temperatur zu erwarten. Allerdings führen die eben genannten Effekte zu einer Abschwächung der theoretischen Temperaturabhängigkeit der UCN-Zählrate.

## 4.6 UCN-Geschwindigkeitsspektrum

In einer Reihe von Messungen wurde versucht, das Geschwindigkeitsspektrum aus der UCN-Quelle genauer zu vermessen, als das mit den Folien-Messungen (siehe Abschnitt 4.1) möglich war. Hierfür wurden zwei verschiedene Messmethoden verwendet: Zum einen wurde ein Gravitationspektrometer benutzt, zum anderen wurde mit einem Chopper gemessen.

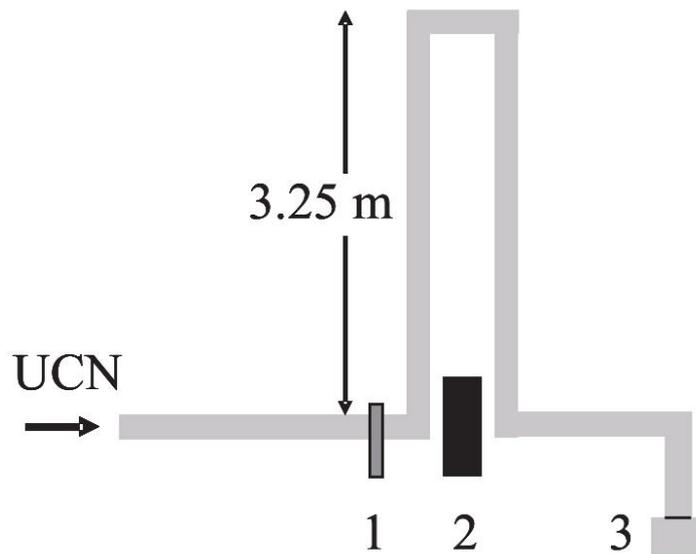


Abbildung 4.8: Schematischer Aufbau des Gravitationspektrometers. 1: Vakuum-Shutter, 2: Bor-Plastik (Dicke etwa 10 cm), 3: UCN-Detektor. Der Detektor wurde zur Unterdrückung des Untergrundes mit Bor-Plastik abgeschirmt (nicht gezeigt).

#### 4.6.1 Gravitationspektrometer

Das verwendete Gravitationspektrometer ist eine U-förmige Schikane des Neutronenleiters, die zwischen Kryostatenbehälter und UCN-Detektor eingebaut wurde. Eine schematische Darstellung des Versuchsaufbaus findet sich in Abbildung 4.8. Die im Konverter produzierten UCN treffen nach dem 45°-Bogen am Ausgang des Kryostatenbehälters auf den U-förmigen Neutronenleiter, dessen effektive Höhe durch Drehen um die horizontale Achse variiert werden kann ((0 – 3.5) m). Zur Sicherheit wurde vor dem U-Rohr ein Vakuum-Shutter eingebaut, um bei einem eventuellen Vakuum-Einbruch beim Drehen des Rohres Rückwirkungen auf die Quelle zu vermeiden. Leider besaß der geöffnete Shutter einen relativ großen Spalt, was zu einem etwa 40%-igem Verlust in der UCN-Zählrate führte. Nach dem U-Rohr folgt ein 90°-Bogen, der den Leiter in vertikaler Richtung nach unten umlenkt, bevor nach etwa 50 cm Fallhöhe der Detektor angebracht ist. Diese Fallstrecke bewirkt, dass alle ankommenden UCN das Al-Eintrittsfenster (Fermi-Potential 54 neV) des Detektors durchdringen können.

Mit dieser Versuchsanordnung ist es möglich den niederenergetischen Teil des Spektrums zu vermessen. Die im Konverter generierten UCN besitzen als Minimalenergie das Fermipotential des Konvertermaterials (bei Deuterium 106 neV), da sie beim Verlassen des Konverters diese Potentialstufe "hinunterfallen" und somit beschleunigt werden (auf mindestens 4.5 m/s). Gleichzeitig blendet diese Anordnung des Neutronenleiters den höherenergetischen Anteil des

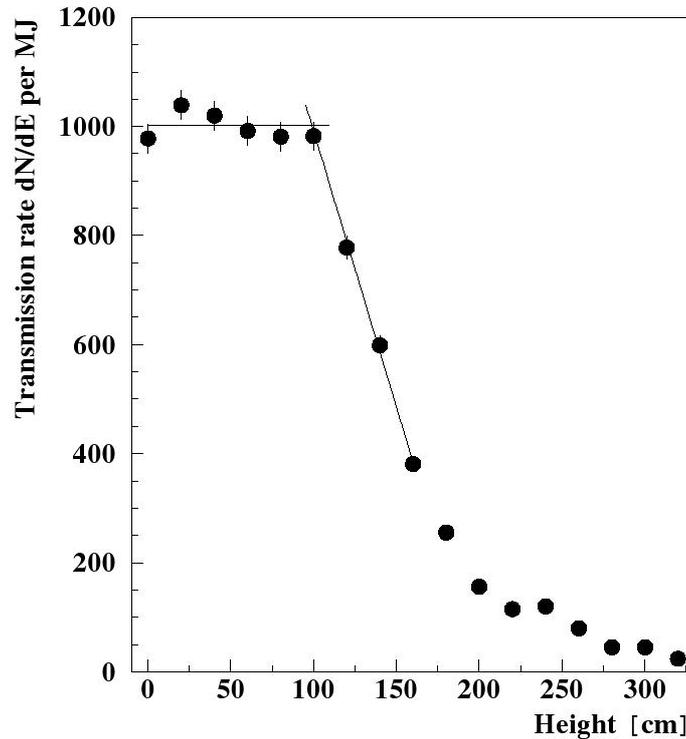


Abbildung 4.9: Gemessene UCN-Zählraten pro Pulsenergie in Abhängigkeit von der effektiven Steighöhe des Gravitationsspektrometers. Bei allen Datenpunkten ist der Untergrund subtrahiert.

Spektrums (der Teil der über dem Fermi-Potential von Edelstahl liegt, 210 neV, 6.3 m/s, [Atc2007b]) fast vollständig aus. Die UCN müssen auf ihrem Weg zum Detektor insgesamt fünf  $90^\circ$ -Bögen und einen  $45^\circ$ -Bogen durchlaufen. Daher ist es sehr unwahrscheinlich, dass UCN mit Geschwindigkeiten von über 6 m/s den Detektor erreichen, da sie immer nur in sehr flachen Winkeln mit den Neutronenleiterwänden stoßen dürften. Dies gilt insbesondere für die  $90^\circ$ -Bögen.

Der Ablauf der Messungen war folgender: Zuerst wurde der Untergrund vermessen. Dies geschah zum einen vor dem Ausfrieren des Konverters, zum anderen nach dem Ausfrieren bei geschlossenem Shutter. Das U-Rohr befand sich dabei jeweils in der Horizontalen. Beide Male ergab sich ein Untergrund von etwa 20 UCN/MJ. Dann wurde das U-Rohr gedreht, und somit die Steighöhe, welche die UCN auf ihrem Weg zum Detektor überwinden mussten, variiert. Um systematische Fehler auszuschließen, wurden die verschiedenen Steighöhen in zufälliger Reihenfolge eingestellt. Jede Höhe wurde mit mindestens zwei aufeinanderfolgenden Reaktorpulsen vermessen.

Die gemessenen Zählraten in Abhängigkeit von der effektiven Höhe des Gravitationsspektro-

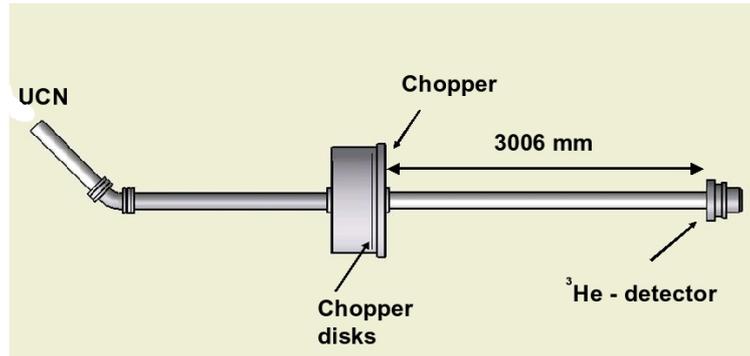


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung des Flugzeitspektrometers.

meters sind in Abbildung 4.9 zu sehen. Bei Steighöhen kleiner 100 cm zeigt sich, wie erwartet, keine Änderung in der Zählrate. Ab einer Steighöhe von 100 cm nimmt die Zählrate linear ab. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der Theorie. Die UCN haben nach dem Konverter eine minimale Energie von 106 neV. Man kann erwarten, dass oberhalb dieser Energie das Geschwindigkeitsspektrum quadratisch ansteigt ( $\propto v^2$ ) [Yu1986], bzw. dass das Energiespektrum linear ansteigt. Dies bewirkt den linearen Abfall in der Zählrate  $dN/dE$  in Abbildung 4.9. Ab etwa 200 cm Steighöhe bricht der lineare Abfall ab, was gut mit dem Fermi-Potential von Edelstahl (210 neV) übereinstimmt: Die UCN werden nicht mehr unter beliebigen Winkeln von den Wänden des Neutronenleiters reflektiert und daher ausgefiltert. Die vergleichsweise kleine Anzahl von Ereignissen mit Energien über 210 neV kann von UCN herrühren, die nicht spiegelnd, sondern diffus an den Wänden gestreut werden.

Die Geraden, die in Abbildung 4.9 eingezeichnet sind, sind Fits an das Plateau unterhalb 100 cm, und an den linearen Abfall oberhalb 100 cm. Es wurde eine Konstante  $y_1 = A$  mit  $A = (1002 \pm 12) \text{ MJ}^{-1}$  an das Plateau, und eine Gerade  $y_2 = Bx + C$  mit  $B = (-10.1 \pm 0.6) \text{ MJ}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  und  $C = (2002 \pm 86) \text{ MJ}^{-1}$  an den linearen Abfall angefitet. Durch den Schnittpunkt beider Geraden ergibt sich das Fermi-Potential von Deuterium. Das experimentelle Ergebnis  $(99 \pm 7) \text{ neV}$  zeigt gute Übereinstimmung mit der Theorie. Diese spezielle Messung wurde auch bereits an anderer Stelle veröffentlicht [Alt2007c].

#### 4.6.2 Flugzeitspektrometer

In einem weiteren Versuch wurde mit Hilfe eines Flugzeitspektrometers (TOF) das Geschwindigkeitsspektrum der UCN aus der Quelle vermessen. Hierfür wurde nach dem 45°-Bogen am Ausgang des Kryostatenbehälters eine typische Flugzeitanordnung mit Chopper-Scheiben installiert. Eine schematische Darstellung dieses Aufbaus ist in Abbildung 4.10 zu sehen. Details des Aufbaus des TOF-Spektrometers finden sich in [Atc2006a, Atc2007b, Fie2006].

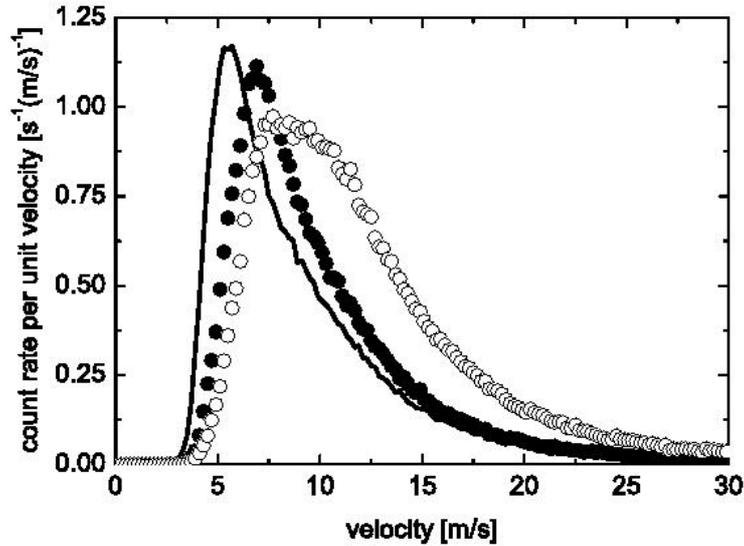


Abbildung 4.11: Geschwindigkeitsspektrum der UCN-Quelle gemessen mit dem Flugzeit-spektrometer. Schwarze Punkte: 4 mol-Konverter nach thermischen Zyklen. Weiße Punkte: 6.1 mol-Konverter ohne thermische Zyklen. Die Linie zeigt die Geschwindigkeitskomponente parallel zur Strahlachse.

Bei diesem Versuch wurde der TRIGA-Reaktor nicht im Pulsmodus, sondern im Dauermodus mit einer konstanten Leistung von  $100 \text{ kW}_{\text{th}}$  betrieben. Es wurden zwei verschiedene Konvertermengen benutzt, einmal 4.0 mol, ein anderes Mal 6.1 mol festes Deuterium. Im Fall von 4 mol wurde der Konverterkristall sorgfältig thermisch behandelt, wie in Kapitel 4.3 beschrieben. Der 6.1 mol-Kristall wurde hauptsächlich zur genauen Zeit-Kalibrierung des Flugzeit-spektrometers benutzt. Die im Konverter produzierten ultrakalten und sehr kalten Neutronen gelangen nach dem  $45^\circ$ -Bogen mit einer Rate von  $\approx 650 \text{ s}^{-1}$  zum TOF-Spektrometer, und fliegen durch einen Chopper mit einem Arbeitszyklus von 5.5% [Fie2006]. Nach der Flugstrecke wurden die Neutronen mit einem  $^3\text{He}$ -Detektor (Nachweisreaktion  $n + ^3\text{He} \rightarrow ^3\text{H} + p$ ) gezählt, der direkt nach dem Spektrometer (ohne zusätzliche Fallstrecke) angebracht war. Dieser Detektor besitzt ein Aluminium-Eintrittsfenster mit einer Dicke von  $100 \mu\text{m}$ . Mit einer derartigen Anordnung kann die gemittelte Geschwindigkeitskomponente in Vorwärtsrichtung bestimmt werden [Atc2006a, Atc2007b].

Das mit diesem Aufbau gemessene Geschwindigkeitsspektrum der UCN-Quelle ist in Abbildung 4.11 zu sehen. Neutronen mit einer Geschwindigkeitskomponente senkrecht zur Detektor-Eintrittsfolie von weniger als  $3.2 \text{ m/s}$  können diese nicht durchdringen. Bis zu einer Geschwindigkeit von  $4.5 \text{ m/s}$  (dies entspricht der Minimalgeschwindigkeit aufgrund der Beschleunigung durch das Fermi-Potential von Deuterium) sind sehr wenige UCN registriert worden. Das Spektrum zeigt oberhalb dieser Geschwindigkeit einen steilen Anstieg bis zu einem

Maximum bei etwa 7 m/s. Nach dem Maximum ist ein exponentieller Abfall des Spektrums zu erkennen. Dieses experimentelle Ergebnis wurde auch bereits an anderer Stelle veröffentlicht [Alt2008].

Die mit Geschwindigkeiten kleiner als 4.5 m/s registrierten UCN sind, wie bereits erwähnt, unerwartet, da alle UCN mindestens die Geschwindigkeit besitzen sollten, die dem Fermi-Potential von Deuterium entspricht. Monte-Carlo-Simulationen zeigten jedoch, dass eine kleine Wahrscheinlichkeit für diffuse Streuung an den Wänden des Neutronenleiters der Flugstrecke nach dem Chopper existiert. Zusätzlich können UCN mit sehr kleinen Geschwindigkeitskomponenten in Strahlrichtung das Eintrittsfenster des Detektors, welches ja senkrecht zur Strahlrichtung steht, nicht durchdringen, sondern werden an ihm reflektiert. Falls solche UCN anschließend diffus gestreut werden, besteht die Möglichkeit, dass sie später in den Detektor gelangen und dort verzögert registriert werden. Diese Effekte täuschen sehr kleine Geschwindigkeiten der UCN vor.

Wie bereits erwähnt, kann mit einer derartigen Flugzeitanordnung direkt die Geschwindigkeitskomponente  $v_p$  der Neutronen parallel zur Strahlrichtung gemessen werden. Um von dieser das Spektrum der absoluten Geschwindigkeit  $v = v_p / \cos \theta$  ( $\theta$  ist der Polarwinkel zwischen der Strahlachse und Impulsvektor der Neutronen) abzuleiten, ist es notwendig, die Winkelverteilung der Geschwindigkeit zu kennen. Hierfür wurden mit Hilfe des Software-Pakets VITESS Monte-Carlo-Simulationen durchgeführt [Zsi2004, VITESS]. Als Simulationsparameter geht hierbei vor allem der Anteil der diffusen Reflexion der UCN an den Neutronenleiterwänden ein. Bis zu Geschwindigkeiten von 6 m/s wurde dieser Anteil mit 4% pro Wandstoß gewählt, für Geschwindigkeiten größer als 6 m/s wurde 1% diffuse Reflexion angenommen, was aus UCN-Transmissionsmessungen der Neutronenleiter [Alt2005] abgeleitet werden kann. Die Ergebnisse dieser Simulationen sind in Abbildung 4.12 gezeigt.

Interessant ist auch der Vergleich der Geschwindigkeitsspektren für den thermisch behandelten 4 mol-Kristall und den thermisch unbehandelten 6.1 mol-Kristall. Bei letzterem ist eine deutliche Verschiebung des Spektrums hin zu höheren Geschwindigkeiten zu sehen. Dies kann qualitativ wie folgt erklärt werden: Beim thermisch unbehandelten Kristall ist offenbar die Transparenz für UCN kleiner als beim thermisch behandelten Kristall. Daher findet die Produktion der UCN, die den Kristall verlassen können, in einer dünneren Schicht an dem Neutronenleiter nahen Ende des Konverters statt. Der Rest des Kristalls wirkt als Moderator, aber sicher nicht als Konverter. Folglich ändert die thermische Behandlung das Verhältnis von effektiven Konvertervolumen zu Moderatorvolumen. Im Fall des thermisch unbehandelten 6.1 mol-Kristalls ist dieses Verhältnis kleiner als beim thermisch behandelten 4 mol-Kristall. Also wird der Anteil von "echten" UCN (mit Geschwindigkeiten unter der Grenzggeschwindigkeit des Neutronenleiters), die durch Konversion entstehen, zu "sehr schnellen" UCN (mit Geschwindigkeiten knapp oberhalb der Grenzggeschwindigkeit des Neutronenleiters), die durch

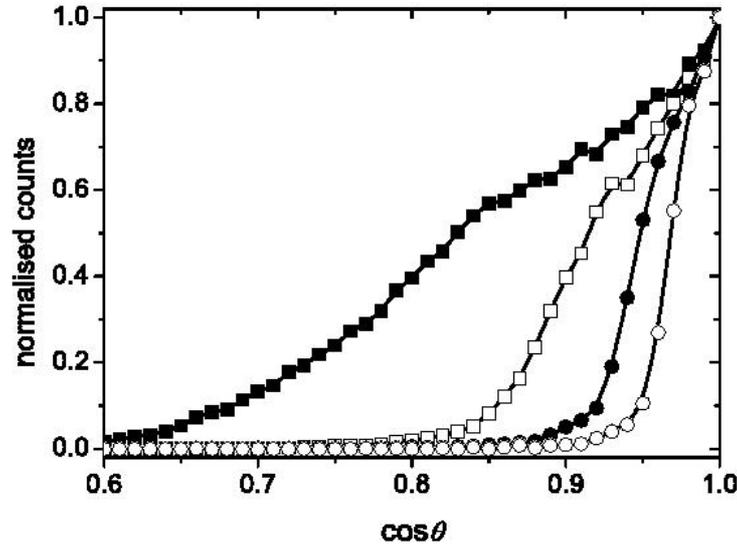


Abbildung 4.12: Simulierte Winkelverteilung des Polarwinkels  $\theta$  zwischen dem Impulsvektor der Neutronen und der Strahlachse des Neutronenleiters für verschiedene Neutronengeschwindigkeiten. Schwarze Quadrate: (5–10) m/s. Weiße Quadrate: (10–15) m/s. Schwarze Kreise: (15–20) m/s. Weiße Kreise: (20–25) m/s.

Moderation entstehen, kleiner sein. Dieser Effekt ist deutlich in Abbildung 4.11 zu erkennen. Bei den Messungen mit verschiedenen Folien vor dem Detektor (siehe Kapitel 4.1) konnte das in dieser Deutlichkeit nicht bemerkt werden. Hier war der Verlauf der Neutronenleiter hin zum Detektor ein anderer. Es gab einen zusätzlichen  $90^\circ$ -Bogen, welcher einen Großteil der UCN mit Geschwindigkeiten über der Grenzgeschwindigkeit des Neutronenleitersmaterials ausfilterte.

Ein wesentlicher Punkt den man aus der Betrachtung der Geschwindigkeitsspektren (Abbildung 4.11) lernen kann, ist die räumliche Anordnung von (Speicher-)Experimenten an dieser UCN-Quelle. Wenn man nach dem Kryostatenbehälter die Neutronen um etwa 1 m im Gravitationsfeld der Erde nach oben steigen lässt, wird das Geschwindigkeitsspektrum im Bereich von (5–9) m/s in den UCN-Bereich von (0–7) m/s verschoben. Gerade dieser Geschwindigkeitsbereich der UCN ist für Speicherexperimente interessant, da solche UCN in Behältnissen aus Beryllium oder Diamant-ähnlichem Kohlenstoff (Diamond Like Carbon, DLC) gespeichert werden können [Atc2005b, Bry2005, Atc2006b]. Mit einer Platzierung der Experimente um 1 m oberhalb des Konverter-Niveaus sollte sich also die Anzahl der speicherbaren UCN etwa verdoppeln lassen.

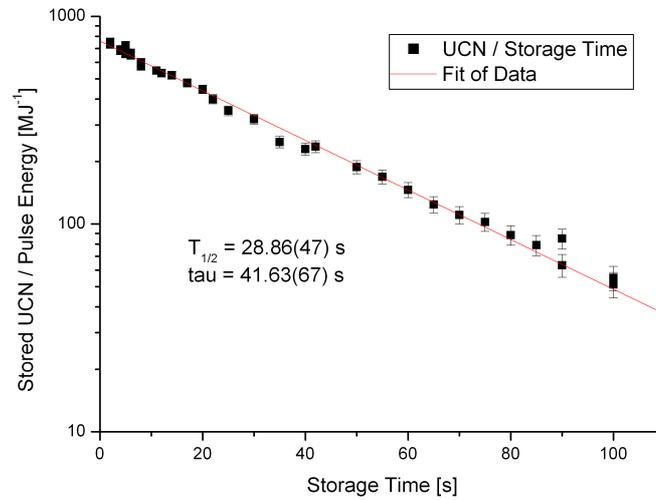


Abbildung 4.13: Gemessene Anzahl gespeicherter UCN (normiert auf die Reaktorenergie und untergrundbereinigt) in Abhängigkeit der Speicherzeit. Die eingezeichnete Gerade ist ein Fit an die Datenpunkte.

## 4.7 Speicherexperiment

Per definitionem bezeichnet man solche Neutronen als ultrakalt, die sich speichern lassen, also die an Wänden unter allen Einfallswinkeln reflektiert werden. Ein UCN-Speicherexperiment ist also der direkteste Nachweis, ob die produzierten Neutronen ultrakalt sind, d.h. wieviele davon gespeichert werden können. Deshalb wurde ein solches Experiment auch an dieser UCN-Quelle durchgeführt.

Da es lediglich darum ging, zu zeigen, dass die produzierten Neutronen ultrakalt sind, wurde auf die Optimierung der Speicherzeit, die beispielsweise bei einem Experiment zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer eine entscheidende Rolle spielt, keinen großen Wert gelegt. Dies vereinfachte den experimentellen Aufbau. Im Detail wurde nach dem 45°-Bogen am Ausgang des Kryostaten ein Neutronenleiter aus Edelstahl im Winkel von ca. 45° zur Horizontalen montiert, der eine effektive Steighöhe von 1 m realisierte. Dadurch wurde das ursprüngliche Geschwindigkeitsspektrum hin zu kleineren Geschwindigkeiten verschoben, wie bereits in Kapitel 4.6.2 beschrieben. Nach dem Neutronenleiter befand sich eine zylindrische Speicherflasche aus Edelstahl (Volumen  $\approx 161$ ), die an beiden Enden mit pneumatisch betriebenen Klappen verschlossen werden konnte. Nach dem Ausgang der Flasche wurde in vertikaler Richtung ein 90°-Bogen montiert, der nach einer Fallstrecke von 50 cm in einen Cascade-Detektor mündete.

Die Anzahl der mit dieser Anordnung gespeicherten UCN in Abhängigkeit von der Speicherzeit ist in Abbildung 4.13 zu sehen. Gemessen wurde im Pulsmodus des TRIGA-Reaktors. Als Konverter wurden 4 mol festes Deuterium, welches thermische Zyklen durchlaufen hatte, benutzt. Dabei wurde die Eingangsklappe zum Speichervolumen 2.2 s nach dem Puls geschlossen, was als optimale Füllzeit für diese spezielle Geometrie experimentell bestimmt worden war. Nach verschiedenen Speicherzeiten wurde die Klappe am Ausgang des Speichervolumens geöffnet, so dass die UCN zum Detektor gelangen konnten. Der Untergrund wurde mit geschlossenen Klappen gemessen.

Aus der Steigung der Fit-Geraden an die Datenpunkte konnte die Speicherzeit der Flasche mit  $\tau = (41.6 \pm 0.7)$  s, beziehungsweise die Halbwertszeit mit  $T_{1/2} = (28.9 \pm 0.5)$  s bestimmt werden. Durch Extrapolation zur Speicherzeit Null kann die maximale UCN-Dichte in der Flasche bestimmt werden. Für eine typische Pulsstärke von 10 MJ ergibt sich diese UCN-Dichte zu  $\rho_{\text{ucn,max}} \approx 0.5 \text{ cm}^{-3}$ .

## 4.8 Wasserstoff-Konverter

Wie bereits in Kapitel 2.2.2 erwähnt, ist festes Deuterium nicht das einzige Material, das als superthermischer UCN-Konverter in Frage kommt. Auch andere Elemente und Elementverbindungen, wie beispielsweise Para-Wasserstoff (Para-H<sub>2</sub>), deuteriertes Methan (CD<sub>4</sub>) oder Sauerstoff besitzen geeignete Phononen- und Magnonenanregungsspektren. Diese Materialien wurden oder werden derzeit auf ihre Tauglichkeit als superthermische Konverter untersucht [Atc2007a].

Da Wasserstoff sehr oft als Vormoderatormaterial eingesetzt wird, aber gleichzeitig auch ein geeignetes Phononenanregungsspektrum zur Konversion besitzt, wurde zum Vergleich zu Deuterium ein Wasserstoffkonverter ausgefroren und vermessen. Bei diesen Messungen wurde auf einen zusätzlichen Vormoderator verzichtet, um auch die moderierenden Eigenschaften sehen zu können.

Ähnlich wie Ortho- und Para-Deuterium kommt auch Wasserstoff in zwei verschiedenen Zuständen bei Raumtemperatur vor. Hierbei ist der niederenergetischere Grundzustand der Para-Wasserstoff; Ortho-Wasserstoff besitzt im Grundzustand eine um 14.7 meV höhere Energie und kann durch Streuung mit einem UCN in den Para-Zustand übergehen [Ham1947]. Um reinen Para-Wasserstoff zu erzeugen, wurde derselbe katalytische Konverter, wie er für Deuterium benutzt wurde, verwendet.

Als weiterer Verlustmechanismus kommt bei Wasserstoff vor allem Absorption in Betracht. Der Absorptionsquerschnitt von H<sub>2</sub> beträgt für thermische Neutronen  $\sigma_{\text{abs}} = (332.6 \pm$

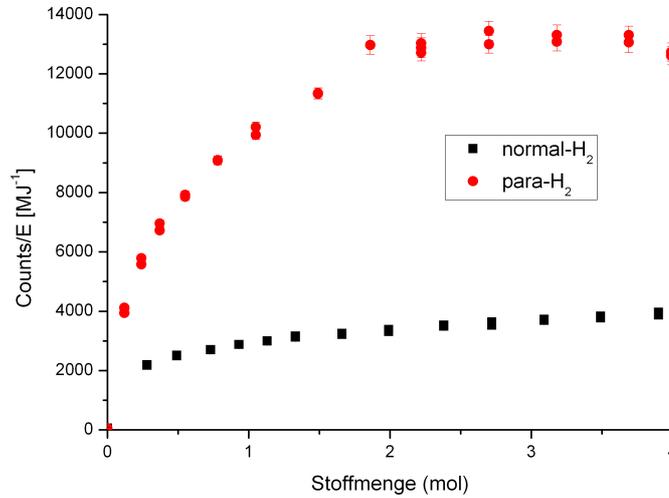


Abbildung 4.14: Gemessene Neutronenzählrate normiert auf die Pulsenergie als Funktion der Menge an festem Wasserstoff. Schwarze Punkte: Natürlicher Wasserstoff (25% ortho-H<sub>2</sub>). Rote Punkte: Para-Wasserstoff (ortho-H<sub>2</sub> Anteil < 1%).

0.7) mbarn [Sea1992]. Er ist etwa 665-mal so gross wie der Absorptionsquerschnitt von Deuterium. Die daraus resultierende mittlere Weglänge  $\lambda_{\text{abs}}$ , die ein ultrakaltes Neutron im festen Wasserstoff zurücklegt, bevor es absorbiert wird, beträgt etwa  $\lambda_{\text{abs}}(\text{H}_2) \approx 1.5$  mm, verglichen mit  $\lambda_{\text{abs}}(\text{D}_2) \approx 40$  cm für festes Deuterium. Daher ist zu erwarten, dass sich schon bei sehr viel dünneren Konverter-Schichten eine Sättigung in der UCN-Zählrate einstellen wird.

Abbildung 4.14 zeigt die gemessenen Neutronen-Zählraten in Abhängigkeit der ausgefrorenen Wasserstoffmengen. Zum Vergleich wurde einmal natürlicher Wasserstoff (Ortho-H<sub>2</sub> Anteil 25%) und einmal reiner Para-Wasserstoff (Ortho-H<sub>2</sub> Anteil kleiner 1%) vermessen. Wie zu erwarten war, stellt sich eine Sättigung der Zählrate schon bei sehr geringen Konvertermengen ein. Bei höheren Wasserstoffmengen wirkt der dem Neutronenleiter abgewandte Teil des Konverters als Moderator und lediglich die letzte Wasserstoff-Schicht wirkt effektiv als Konverter.

# Kapitel 5

## Interpretation der experimentellen Resultate

Aus den in Kapitel 4 beschriebenen experimentellen Resultaten können einige wichtige physikalische Größen, die die UCN-Erzeugung und die Effizienz einer Quelle beeinflussen, abgeleitet werden. Dies wird in den folgenden Abschnitten beschrieben.

### 5.1 Verluste im Deuterium-Konverter

Die verschiedenen Verlustmechanismen im Konverter bestimmen entscheidend seine maximal sinnvolle Größe. Ist die UCN erzeugende Deuterium-Schicht zu dünn, so wird die Produktion sinken. Ist sie zu dick, so steigen die Verluste an UCN, da diese vor dem Verlassen des Konverters verloren gehen. Zwar sind theoretische Werte für die Verlust-Wirkungsquerschnitte bekannt, allerdings treten unter realen Bedingungen oft zusätzliche Mechanismen auf, die vorher nicht bedacht wurden oder noch nicht bekannt waren. Daher ist die experimentelle Bestimmung der Verluste, gerade im Hinblick auf die geplante Mini-D<sub>2</sub>-Quelle, entscheidend.

Die mittlere Weglänge  $\lambda_{\text{loss}}$  eines ultrakalten Neutrons im festen Deuterium, bevor es verloren geht, ergibt sich aus den einzelnen Verlustmechanismen:

$$\frac{1}{\lambda_{\text{loss}}} = \frac{1}{\lambda_{\text{abs,D}_2}} + \frac{1}{\lambda_{\text{up,D}_2}} + \frac{1}{\lambda_{\text{para,D}_2}} + \frac{1}{\lambda_{\text{abs,H}_2}} \quad (5.1)$$

Hierbei bezeichnet  $\lambda_{\text{abs,D}_2}$  die Absorption in Deuterium,  $\lambda_{\text{up,D}_2}$  die Aufwärtsstreuung an Phononen im Ortho-Deuterium,  $\lambda_{\text{para,D}_2}$  die Aufwärtsstreuung am Para-Deuterium und  $\lambda_{\text{abs,H}_2}$  die Absorption an Wasserstoff, welcher von eventuellen Verunreinigungen wohl den größten Anteil hat.

Der Wirkungsquerschnitt für die Absorption im Deuterium beträgt für thermische Neutronen  $\sigma_{\text{abs,D}_2} = 0.57$  mbarn [Kap1952]. Die mittlere Geschwindigkeit  $\bar{v}_{\text{ucn}}$  der UCN im Deuterium ist [Tri2000]:

$$\bar{v}_{\text{ucn}} = \frac{3}{4} \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot [V_{\text{F}}(\text{Edelstahl}) - V_{\text{F}}(\text{D}_2)]}{m_{\text{n}}}} \approx 3.0 \frac{\text{m}}{\text{s}} \quad (5.2)$$

Damit erhält man für die mittlere Weglänge durch Absorption (mit der Atomdichte von festem Deuterium  $N = 6.1 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ ):

$$\lambda_{\text{abs}} = \left( N \cdot \sigma_{\text{abs}} \cdot \frac{\bar{v}_{\text{thermisch}}}{\bar{v}_{\text{ucn}}} \right)^{-1} \approx 40 \text{ cm} \quad (5.3)$$

Der Wirkungsquerschnitt für Aufwärtsstreuung durch Phononen im Deuterium ist bei der Temperatur  $T = 5 \text{ K}$  etwa so groß wie der Wirkungsquerschnitt für Absorption [Liu2000]. Also ist  $\lambda_{\text{up,D}_2} \approx \lambda_{\text{abs,D}_2} = 40 \text{ cm}$ .

Der Anteil an Para-Deuterium im Konverter wurde mittels Raman-Spektroskopie bestimmt [Fre2008]. Als obere Grenze für den Para-Deuteriumanteil wurden 2% gemessen. Damit ergibt sich der mit der Konzentration gewichtete Wirkungsquerschnitt zu [Liu2000]:

$$\sigma_{\text{para,D}_2} \leq \frac{248 \text{ barn} \cdot \frac{\text{m}}{\text{s}}}{3 \frac{\text{m}}{\text{s}}} \cdot 0.02 \approx 1.6 \text{ barn} \quad (5.4)$$

Daraus resultiert eine Weglänge durch diesen Verlustmechanismus von  $\lambda_{\text{para,D}_2} \geq 10.5 \text{ cm}$ .

Als Hauptverunreinigung des Deuteriums kommt nur Wasserstoff in Frage. Er besitzt auch von allen denkbaren Verunreinigungen den höchsten Absorptionsquerschnitt. Der Wasserstoffanteil im Deuterium kann ebenfalls durch Raman-Spektroskopie bestimmt werden. Im vorliegenden Fall konnte kein Wasserstoff im Konverter nachgewiesen werden, so dass als obere Grenze für den Wasserstoffanteil die Messgenauigkeit von 0.5% zugrunde gelegt werden muss. Der Absorptionswirkungsquerschnitt von  $\text{H}_2$  für thermische Neutronen ist 0.33 barn [Sea1992]. Also ergibt sich für den mit der Konzentration gewichteten UCN-Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_{\text{abs,H}_2} = 0.33 \text{ barn} \cdot \frac{\bar{v}_{\text{thermisch}}}{\bar{v}_{\text{ucn}}} \cdot 0.005 \leq 1.2 \text{ barn} . \quad (5.5)$$

Für die mittlere Weglänge durch Wasserstoffabsorption erhält man also

$$\lambda_{\text{abs,H}_2} \geq (n \cdot \sigma_{\text{abs,H}_2})^{-1} = 14 \text{ cm} . \quad (5.6)$$

Damit sind die Verlustmechanismen im Deuterium quantifiziert, und man erhält als untere Grenze für die mittlere Weglänge der UCN im Deuterium

$$\lambda_{\text{loss}} \geq 4.6 \text{ cm} . \quad (5.7)$$

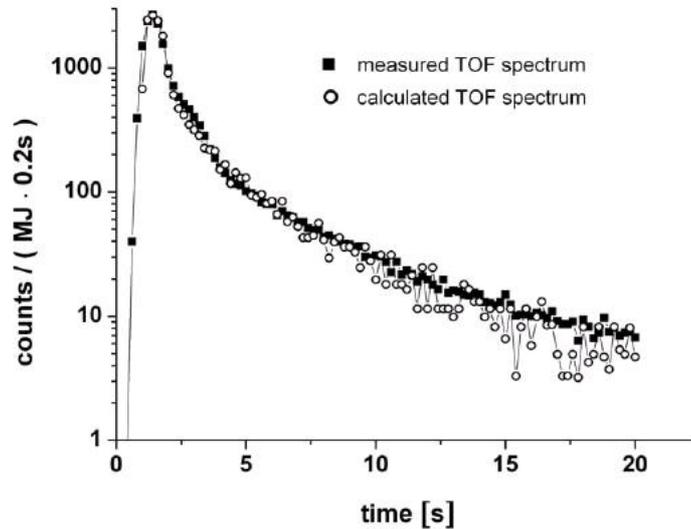


Abbildung 5.1: Vergleich von gemessenem und simuliertem Flugzeitspektrum der Neutronen nach einem Reaktorpuls. Beim gemessenem Spektrum wurde ein Konverter mit 7.5 mol  $D_2$  benutzt, der thermische Zyklen (siehe Kapitel 4.2) durchlaufen hat. Das simulierte Spektrum wurde auf die Peakhöhe im gemessenen Spektrum normiert.

## 5.2 Monte-Carlo-Simulation

Um aus den experimentell gewonnenen Daten Rückschlüsse auf die Produktions- bzw. Verlustrate im Deuterium-Konverter ziehen zu können, wurden Monte-Carlo-Simulationen durchgeführt. Vor allem musste der Weg der UCN nach dem Verlassen des Konverters bis hin zum Detektor charakterisiert werden. Dies ist am einfachsten und sichersten mit Monte-Carlo-Simulationen möglich, in denen die entsprechende Geometrie eingearbeitet wurde.

Simuliert wurden Neutronen, die mit Geschwindigkeiten  $0 < v < 20$  m/s im Deuterium zufällig erzeugt werden, wobei ein quadratisches Geschwindigkeitsspektrum und eine isotrope Winkelverteilung der Geschwindigkeitsvektoren angenommen wurde. Die Beschleunigung der Neutronen beim Verlassen des Konverters durch das Fermi-Potential von Deuterium wurde berücksichtigt, ebenso mögliche Reflexionen. Auf dem Weg zum Detektor wurde der Anteil an diffuser Reflexion und die Verlustwahrscheinlichkeit bei Stößen mit der Neutronenleiterwand berücksichtigt, genau so wie mögliche Reflexionen am und Verluste beim Weg durch das Al-Neutronfenster. Auch die geschwindigkeitsabhängige Effizienz des UCN-Detektors wurde berücksichtigt.

Um die Richtigkeit der Simulationen zu überprüfen, wurden gemessene Flugzeitspektren mit simulierten Spektren verglichen. Ein Ergebnis zeigt Abbildung 5.1. Hierbei wurde das Flug-

zeitspektrum eines Konverters mit 7.5 mol D<sub>2</sub>, der thermische Zyklen (siehe Kapitel 4.2) durchlaufen hat, mit einem simulierten Spektrum verglichen. Das simulierte Spektrum wurde auf die Peakhöhe im gemessenen Spektrum normiert. Wie zu sehen ist, stimmen die gemessenen und die simulierten Spektren in ihrer Form gut überein.

### 5.3 UCN-Erzeugung mit Vormoderator

Die integrale Zählrate  $dN/E_{\text{puls}}$  an ultrakalten Neutronen im Detektor, normiert auf die Energie eines Reaktorpulses ist gegeben durch

$$\frac{dN}{E_{\text{puls}}} = \left[ \int_0^{E_b} \int_0^{E_{\text{max}}} dP(E_i, E_f) dE_i dE_f \right] \cdot n_{\text{D}_2} \cdot P_{\text{escape}} \cdot P_{\text{trans}} \cdot P_{\text{det}}. \quad (5.8)$$

Hierbei ist  $dP(E_i, E_f)$  die UCN-Produktionsrate pro Puls und D<sub>2</sub>-Menge,  $E_b$  das Fermi-Potential des Neutronenleitermaterials,  $E_i$  die Energie der auf den Konverter treffenden thermischen oder kalten Neutronen,  $E_f$  die Energie der erzeugten UCN,  $n_{\text{D}_2}$  die Zahl der Mole an festem Deuterium,  $P_{\text{escape}}$  die Wahrscheinlichkeit, dass die erzeugten UCN den Konverter verlassen,  $P_{\text{trans}}$  die Wahrscheinlichkeit, dass die UCN vom Konverter zum Detektor gelangen, und  $P_{\text{det}}$  die Wahrscheinlichkeit, dass sie im Detektor registriert werden.

Die Transmissionswahrscheinlichkeit vom Konverter zum Detektor wurde mit Monte-Carlo-Simulationen bestimmt und die Detektoreffizienz ist bekannt [Kle2001]. Die Wahrscheinlichkeit, dass die im Konverter erzeugten UCN diesen verlassen können ergibt sich zu [Fre2007]

$$P_{\text{escape}} = \frac{\lambda_{\text{loss}}}{2d} \int_0^{\pi/2} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{2d}{\lambda_{\text{loss}} \cos \theta}\right) \right] \sin \theta \cos \theta d\theta. \quad (5.9)$$

Diese Formel gilt näherungsweise, wenn man eine zylinderförmige Geometrie des Konverters mit der Dicke  $d$  annimmt.

Um eine erste Abschätzung für  $\lambda_{\text{loss}}$  aus den gemessenen UCN-Zählraten zu erhalten, führt man folgende Näherungen ein:

1. Alle am Detektor registrierten Neutronen sind UCN mit  $E_{\text{ucn}} \leq V_{\text{F}}(\text{Edelstahl})$ .
2. Die inkohärente Streuung im Deuterium wird vernachlässigt ( $\lambda_{\text{inc}} \rightarrow \infty$ ).
3. Die Reflexion der UCN am Übergang Deuterium/Vakuum wird vernachlässigt.
4. Die gesamte Moderation des einfallenden Neutronenflusses wird vom Vormoderator geleistet. Das Deuterium selbst wirke nicht als Moderator.

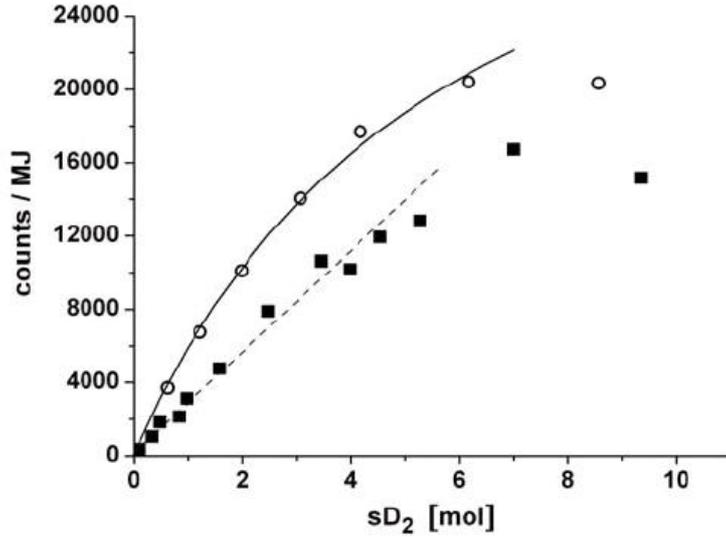


Abbildung 5.2: Integrale Neutronenzählrate normalisiert auf die Pulsenergie nach thermischen Zyklen als Funktion der ausgefrorenen Deuteriummenge. Schwarze Quadrate: Ohne Vormoderator. Weisse Kreise: Mit Mesitylen-Vormoderator. Die gestrichelte Linie ist zur optischen Unterstützung. Die durchgezogene Linie ist ein Fit an die Messpunkte gemäß Gleichung 5.10.

Dann bestimmt für einen zylindrischen Konverter der Dicke  $d$  das Produkt

$$Y = S \cdot P_{\text{escape}} \cdot d = \frac{S \cdot \lambda_{\text{loss}}}{2} \int_0^{\pi/2} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{2d}{\lambda_{\text{loss}} \cos \theta}\right) \right] \sin \theta \cos \theta d\theta \quad (5.10)$$

die Steigung der gemessenen UCN-Zählraten in Abhängigkeit von der Konvertermenge [Fre2007]. Hierbei ist  $S$  ein Skalierungsfaktor. Unter Berücksichtigung der Geometrie der Konverternase kann die Dicke des Konverters aus der molaren Menge umgerechnet werden, wenn man annimmt, dass das  $D_2$  in zylindrischer Form ausgefroren ist:

$$d = \frac{M_{D_2}}{\rho \cdot A} \cdot n_{D_2} \quad (5.11)$$

Hierbei ist  $M_{D_2} = 4$  g/mol die molare Masse,  $\rho = 0.2059$  g/cm<sup>3</sup> die Dichte von festem  $D_2$  bei  $T = 5$  K und  $A = r^2\pi = 3.3^2\pi$  cm<sup>2</sup> die Grundfläche des zylindrischen Konverters. Einsetzen dieser Zahlenwerte liefert  $d$  [cm]  $\approx 0.57 \cdot n_{D_2}$  [mol].

Abbildung 5.2 zeigt noch einmal die Messdaten mit Vormoderator. Hierbei wurden die Messpunkte "mit Vormoderator" im Bereich  $0 \leq n_{D_2} \leq 7$  mol mit Gleichung 5.10 gefittet, mit  $\lambda_{\text{loss}}$  und  $S$  als freien Parametern. Das Ergebnis ist die durchgezogene Linie in Abbildung 5.2. Durch diesen Fit wurde die mittlere Verlust-Weglänge mit  $\lambda_{\text{loss}}^{\text{fit}} \approx 10$  cm bestimmt, was unter den getroffenen Näherungen als obere Grenze angesehen werden kann.

Daher kann man die Verlustweglänge der ultrakalten Neutronen im Konverter mit festem Deuterium bei der Temperatur  $T = 5$  K einschränken auf:

$$4.6 \text{ cm} < \lambda_{\text{loss}} < 10 \text{ cm} \quad (5.12)$$

## 5.4 UCN-Produktionsraten im festen Deuteriumkonverter

Neben der Charakterisierung der Verlustmechanismen im Konverter und auf dem Weg vom Konverter zum Detektor, ist die UCN-Produktionsrate im Konverter die entscheidende Größe zur Beschreibung der Leistungsfähigkeit einer Quelle für ultrakalte Neutronen. Prinzipiell kann diese Produktionsrate auf zwei verschiedenen Wegen berechnet werden: Entweder unter Verwendung eines Phononen-Zustandsdichte-Modells in inkohärenter Näherung, oder unter Verwendung der Streufunktion  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  (mit dem Impulsübertrag  $\mathbf{Q}$  und dem Energieübertrag  $\hbar\omega$  der Neutronen) des Konverters.

Der zweite Weg liefert sicherlich die genaueren Ergebnisse, wobei hier die Streufunktion entweder experimentell bestimmt werden muss, oder gewisse Annahmen in ein theoretisches Modell einfließen. Derzeit werden an diesem Lehrstuhl verschiedene Experimente durchgeführt [Urb2007], um die Streufunktion zu messen. Diese Experimente sind technisch anspruchsvoll, und die Datenauswertung ist aufwendig. Derzeit liegen aus diesen Experimenten noch keine publizierten Ergebnisse vor, so dass im Folgenden der erste Weg zur Bestimmung der UCN-Produktionsrate besprochen wird.

### 5.4.1 UCN-Produktionsrate in inkohärenter Näherung

Die UCN-Produktionsrate  $P$  [ $\text{UCN} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ] im Konverter ist bestimmt durch

$$P(E_f)dE_f = \int_0^\infty dE_i \Sigma_s(E_i \rightarrow E_f) \Phi_0(E_i) dE_f. \quad (5.13)$$

Hierbei ist  $E_i$  die Energie der auf den Konverter treffenden thermischen und kalten Neutronen, die in den Energiebereich  $E_f$  bis  $E_f + dE_f$  der ultrakalten Neutronen gestreut werden,  $\Phi_0(E_i)$  der eintreffende Neutronenfluss und  $\Sigma_s(E_i \rightarrow E_f)$  der makroskopische Wirkungsquerschnitt für Abwärtsstreuung, welcher aus dem mikroskopischen Streuquerschnitt  $\sigma_s(E_i \rightarrow E_f)$  und der Teilchendichte  $N$  des Konverters berechnet werden kann:

$$\Sigma_s(E_i \rightarrow E_f) = \frac{d\sigma_s(E_i \rightarrow E_f)}{dE_f} \cdot N \quad (5.14)$$

Die gemäß Gleichung 5.13 produzierten UCN durchlaufen den Konverter, bis sie entweder absorbiert, elastisch oder inelastisch gestreut werden oder den Konverter verlassen. Sieht

man von der elastischen Streuung ab, die im realen Kristall hauptsächlich an Inhomogenitäten stattfinden wird, so erhält man den UCN-Fluss, der den Konverter verlässt, durch Multiplikation der Produktionsrate  $P(E_f)dE_f$  mit der effektiven Konverterschichtdicke, die durch Verluste durch Absorption und inelastischer Streuung gekennzeichnet ist. Der Wirkungsquerschnitt für inelastische Aufwärtsstreuung kann im Fall eines kalten Konverters in guter Näherung durch einen 1-Phonon-Prozess beschrieben werden, und ist somit proportional zum Phononen-Anregungsspektrum  $g(\epsilon)$  (mit dem Energieübertrag  $\epsilon = E_i - E_f$ ) des Konverterkristalls. In erster Näherung ist das Anregungsspektrum ein Debye-Spektrum

$$g(\epsilon) = \frac{3\epsilon^2}{(k_B\theta)^3} \quad \text{falls } \epsilon \leq k_B\theta \quad \text{sonst } g(\epsilon) = 0 \quad (5.15)$$

mit der Debye-Temperatur  $\theta$ . Bei der inelastischen Abwärtsstreuung müssen im allgemeinen Fall auch Mehr-Phononen-Prozesse berücksichtigt werden, was die mathematische Betrachtung aufwendig werden lässt. Detaillierte Berechnungen wurden unter anderem von Turchin, Golub und Serebrov durchgeführt [Tur1963, Tur1965, Gol1991, Ser1994]. Allgemein ist der Streuquerschnitt  $\sigma_s$  die Summe der Streuquerschnitte der verschiedenen  $n$ -Phononen-Prozesse

$$\sigma_s(E_i \rightarrow E_f) = \sum_{n=1}^{\infty} \sigma_n(E_i \rightarrow E_f), \quad (5.16)$$

wobei man sinnvollerweise die Summation schon bei kleinen  $n$  abbrechen kann ohne einen nennenswerten Fehler zu machen. Die einzelnen Streuquerschnitte  $\sigma_n$  sind [Tur1963]:

$$\frac{d\sigma_n}{dE_f} = \sigma_0 \left(1 + \frac{1}{\mu}\right)^2 \sqrt{\frac{E_f}{E_i}} \frac{f_n(\epsilon)}{n!} F_n(E_i, E_f) \quad (5.17)$$

Hierbei ist  $\mu$  die Massenzahl des Konverters,  $\sigma_0 = 4\pi(b_{\text{coh}}^2 + b_{\text{inc}}^2) = 7.63$  barn [Yu1986] der gebundene Streuquerschnitt,

$$f_n(\epsilon) = \int_{-\infty}^{+\infty} f_{n-1}(\epsilon') f(\epsilon - \epsilon') d\epsilon', \quad (5.18)$$

$$f(\epsilon) = \frac{g(|\epsilon|)}{\epsilon(1 - e^{-\epsilon/k_B T})} \quad , \quad |\epsilon| < k_B\theta, \quad (5.19)$$

$$F_n(E_i, E_f) = \frac{\mu}{4\sqrt{E_i E_f}} \int_{(\sqrt{E_i} - \sqrt{E_f})/\mu}^{(\sqrt{E_i} + \sqrt{E_f})/\mu} x^n e^{-x/\tau} dx, \quad (5.20)$$

$$\tau = \left( \int_0^{\infty} \frac{1}{\epsilon} \coth\left(\frac{\epsilon}{2k_B T}\right) g(\epsilon) d\epsilon \right)^{-1}. \quad (5.21)$$

Betrachtet man die Produktion von ultrakalten Neutronen so gilt in guter Näherung  $E_f \ll E_i$ , und der Impulsübertrag  $Q$  kann durch den Impuls des einfallenden Neutrons  $k_i$  ersetzt werden,

was zu

$$F_n(E_i, E_f) = \frac{\mu\tau}{4\sqrt{E_i E_f}} e^{-(E_i+E_f)/\mu\tau} \sum_{k=0}^n \frac{n!}{k! \mu^k} \left[ e^{2\sqrt{E_i E_f}/\mu\tau} \left( \sqrt{E_i} - \sqrt{E_f} \right)^{2k} - e^{-2\sqrt{E_i E_f}/\mu\tau} \left( \sqrt{E_i} + \sqrt{E_f} \right)^{2k} \right] \quad (5.22)$$

führt. Mit diesem Formalismus kann man also bei bekanntem Phononen-Anregungsspektrum  $g(\epsilon)$  des Konverterkristalls alle höheren Ordnungen der Multiphononenstreuung berechnen. So ist beispielsweise die Lösung für den 1-Phononprozess

$$\frac{d\sigma_1}{dE} = \sigma_0 \left( 1 + \frac{1}{\mu} \right)^2 \frac{\tau}{2E_i E_i} \frac{g(E_i)}{(1 - e^{-E_i/k_B T})} e^{-(E_i+E_f)/\mu\tau} \times \left[ (E_i + E_f + \mu\tau) \sinh \left( \frac{2\sqrt{E_i E_f}}{\mu\tau} \right) - 2\sqrt{E_i E_f} \cosh \left( \frac{2\sqrt{E_i E_f}}{\mu\tau} \right) \right]. \quad (5.23)$$

Durch Integration über den betrachteten Energiebereich der zu produzierenden UCN ( $0 - E_f^{\max}$ ) erhält man

$$\sigma_1(E_i) = \int_0^{E_f^{\max}} \frac{d\sigma_1}{dE_f}(E_i, E_f) dE_f. \quad (5.24)$$

Somit ist, falls man nur den 1-Phononprozess betrachtet, die UCN-Produktionsrate  $P_1$  im Energiebereich von  $0 - E_f^{\max}$

$$P_1 = N \int_{E_i^{\min}}^{E_i^{\max}} \frac{d\Phi_0}{dE_i} \sigma_1(E_i) dE_i. \quad (5.25)$$

Die Produktionsraten aus den höheren Ordnungen der Phononenstreuung können in analoger Weise berechnet werden, wobei hier dann allerdings die Faltungen von  $f_n$  eingehen. In den folgenden Berechnungen wurde sowohl der reine 1-Phononprozess, als auch die Summe aus 1-Phonon- und 2-Phononenprozess betrachtet. Bei allen Rechnungen zeigte sich, dass die zusätzliche Korrektur durch den 2-Phononenprozess etwa 20% des 1-Phononprozesses betrug.

### 5.4.2 Neutronenfluss im Konverter

Als wesentlicher Parameter geht der auf den Konverter treffende Neutronenfluss  $\Phi_0(E_i)$  in die Produktionsrate ein, also dessen effektive Temperatur  $T_n$  und sein integraler Wert  $\Phi_0$ . An der UCN-Quelle am TRIGA Mainz wurden zwei verschiedene Konverter-Konfigurationen vermessen:

1. Festes D<sub>2</sub> ohne Vormoderator.

## 2. Festes D<sub>2</sub> mit Mesitylen-Vormoderator.

In beiden Fällen stellt sich die Frage, welches  $T_n$  und  $\Phi_0$  man bei der quantitativen Berechnung der beiden Konfigurationen annehmen soll. Diese Frage stellte sich auch Pokotilovski, als er MCNP<sup>1</sup>-Simulationen zu diesen Konfigurationen durchführte [Pok2004, MCNP]. Er simulierte den Neutronenfluss am TRIGA-Reaktor, und stellte bei der Überprüfung mittels Aktivierungsmessungen fest, dass sein theoretisches Ergebnis um etwa einen Faktor 1.5 vom experimentellen Ergebnis abwich. Die Ursache für diese Abweichung konnte letztendlich nicht schlüssig erklärt werden; Ein Grund könnte gewesen sein, dass sein Modell des Reaktors zu ungenau war.

Ein neuer Ansatz zur Klärung dieser Frage ergab sich durch MCNP-Simulationen, die im Hinblick auf die geplante Mini-D<sub>2</sub> UCN-Quelle am FRMII durchgeführt wurden [Gru2008]. Hierbei betrachtete man unter anderem auch geometrisch der UCN-Quelle Mainz sehr ähnliche Konverter/Vormoderator-Konfigurationen, und simulierte den spektralen Neutronenfluss im Konverter (siehe Abbildung 5.3).

Die Abbildungen 5.4 und 5.5 zeigen die Ergebnisse der Monte Carlo Simulation der spektralen Neutronenflussdichten im festen Deuteriumkonverter ohne und mit Vormoderator. Deutlich zu sehen ist, dass ohne Vormoderator einerseits die mittlere Neutronenenergie mit zunehmender Konvertermenge abnimmt, was im Hinblick auf die moderierenden Eigenschaften des Deuteriums nicht verwunderlich ist. Zudem zeigt sich mit zunehmender Konvertermenge eine immer deutlichere Doppelpeak-Struktur in den Spektren. Als Fitfunktion wurde jeweils eine Superposition von zwei Maxwell-Verteilungen gewählt.

$$\frac{d\Phi}{dE} = \Phi_{\text{cold}} E \frac{e^{-E/(k_B T_{\text{cold}})}}{(k_B T_{\text{cold}})^2} + \Phi_{\text{therm}} E \frac{e^{-E/(k_B T_{\text{therm}})}}{(k_B T_{\text{therm}})^2}. \quad (5.26)$$

Alle Kurven in den Abbildungen 5.4 und 5.5 sind normiert  $\int_0^\infty \frac{d\Phi}{dE} dE = 1$ . Ist ein Vormoderator installiert, so ändert sich die Temperatur des Neutronenflusses im Deuterium mit der Konvertermenge nur noch in geringem Maße, wohl aber die Intensität des kalten Flusses.

### 5.4.3 UCN-Zählrate am Detektor

Da man nunmehr die spektrale Energieverteilung des Neutronenflusses im festen Deuteriumkonverter theoretisch berechnet und den integralen Fluss am Strahlrohr C gemessen hat (siehe Abbildung 3.3), kann man mit diesen Größen die UCN-Produktionsrate im Konverter nach Gleichung 5.25 berechnen. Die Austrittswahrscheinlichkeit der UCN aus dem Konverter in den Neutronenleiter kann dann in guter Näherung mit Gleichung 5.9 bestimmt werden. Schlussendlich muss noch die Transportwahrscheinlichkeit der UCN vom Konverter zum

---

<sup>1</sup>Monte Carlo N-Particle

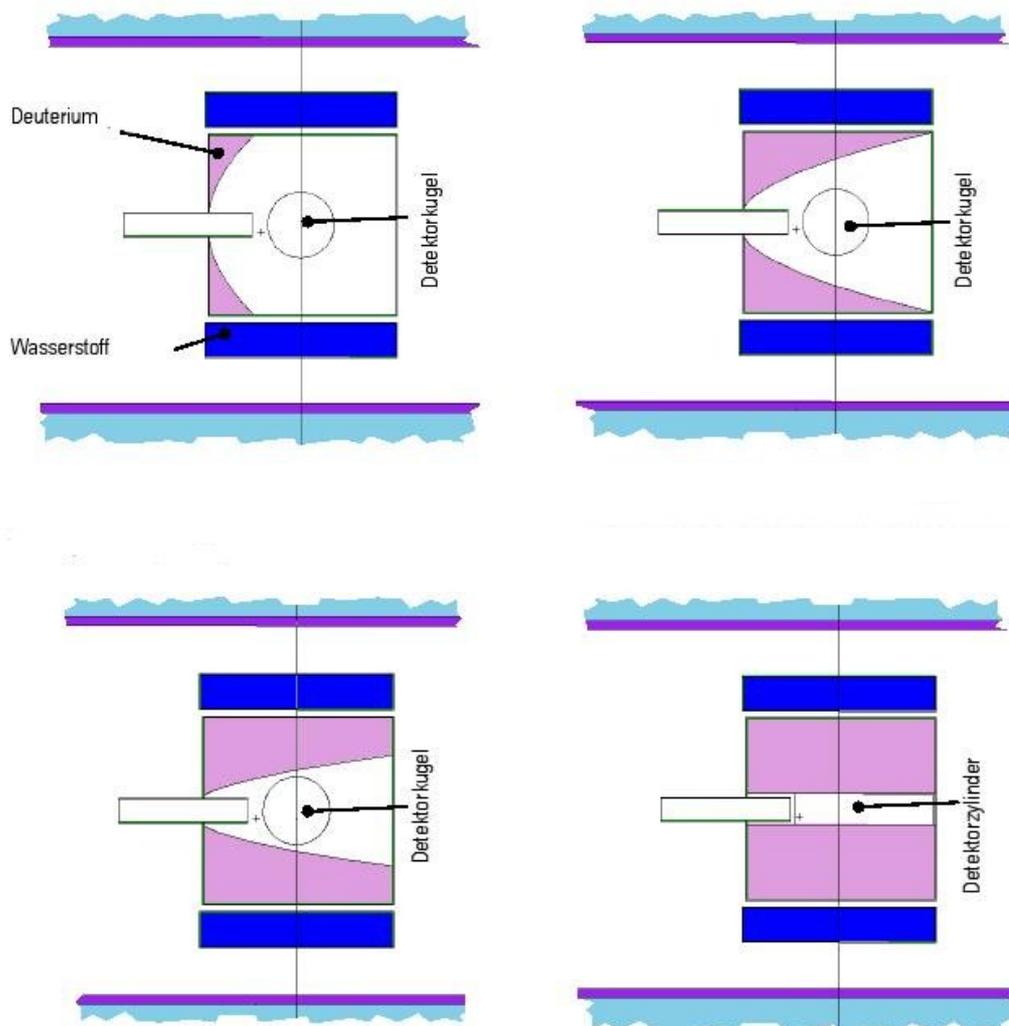


Abbildung 5.3: Horizontale Schnitte durch die Monte Carlo Modelle des Konverters bei verschiedenen Deuterium-Füllmengen. Die spektralen Neutronenflussdichten werden jeweils in Kugeln in der UCN-Quelle bestimmt.

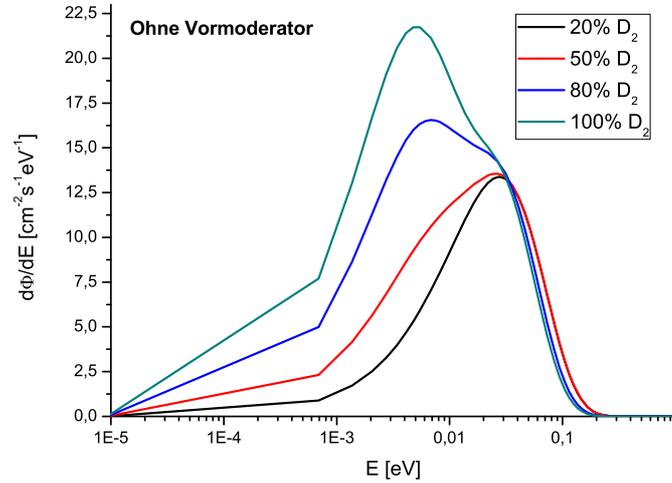


Abbildung 5.4: Spektrale Neutronenflussdichten  $d\Phi/dE$  (simuliert) im Konverter als Funktion der Menge festen Deuteriums *ohne* Vormoderator. Als Fit-Modell wurde eine Superposition von zwei Maxwell-Verteilungen gewählt. Die Kurven sind normiert  $\int_0^\infty \frac{d\Phi}{dE} dE = 1$ .

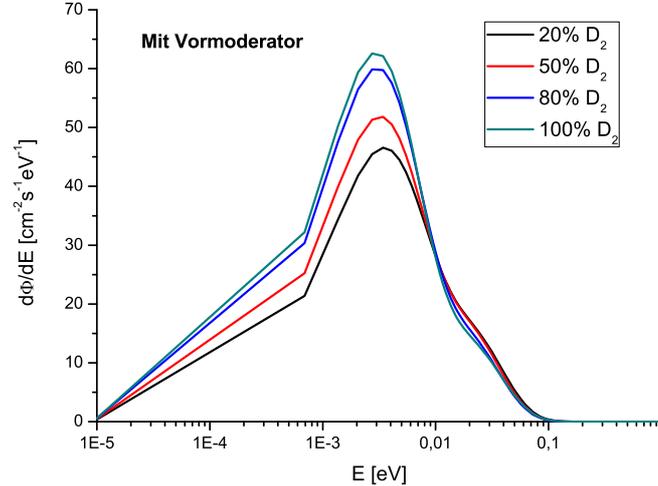


Abbildung 5.5: Spektrale Neutronenflussdichten  $d\Phi/dE$  (simuliert) im Konverter als Funktion der Menge festen Deuteriums *mit* Vormoderator. Als Fit-Modell wurde eine Superposition von zwei Maxwell-Verteilungen gewählt. Die Kurven sind normiert  $\int_0^\infty \frac{d\Phi}{dE} dE = 1$ .

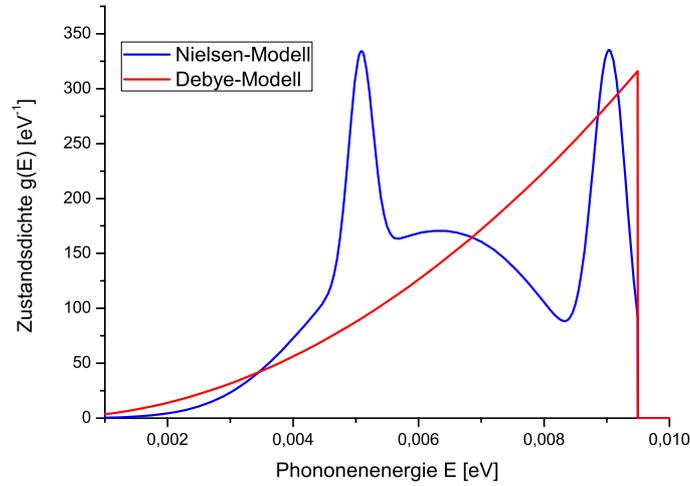


Abbildung 5.6: Modelle für die Phononenzustandsdichte  $g(\epsilon)$  im festen Deuterium, die bei den theoretischen Berechnungen der UCN-Produktionsrate verwendet wurden. Beide Funktionen sind normiert  $\int_0^\infty g(\epsilon)d\epsilon = 1$ .

Detektor, sowie die Detektoreffizienz berücksichtigt werden. Ersteres geschah durch Monte-Carlo-Simulationen (siehe Kapitel 5.2), und ergab im Mittel für die Transportwahrscheinlichkeit bei der verwendeten Geometrie  $P_{\text{trans}} \approx 0.2$ . Die Detektoreffizienz ist in Abbildung 3.12 zu sehen.

Ein weiterer, wichtiger Parameter ist das Modell für die Phononenzustandsdichte in festem Deuterium, welches man bei den Rechnungen zugrunde legt. Im folgenden wurden zwei verschiedene Modelle betrachtet: Zum einen wurde die Phononenzustandsdichte  $g(\epsilon)$  durch ein Debye-Modell angenähert, zum anderen durch ein aus Messungen abgeleitetes Modell von Nielsen und Bjerrum Møller [Nie1971, Yu1986], im folgenden als "Nielsen-Modell" bezeichnet. In beiden Modellen, die in Abbildung 5.6 dargestellt sind, wurden die Phononenzustandsdichten  $g(\epsilon)$  auf  $\int_0^\infty g(\epsilon)d\epsilon = 1$  normiert.  $g(\epsilon)$  entsteht im Nielsen-Modell durch Überlagerungen von vier Gaussfunktionen,

$$g_{\text{Nielsen}}(\epsilon) = \sum_{i=1}^4 B_i e^{-a_i^2(\epsilon - \epsilon_i)^2}, \quad (5.27)$$

wobei die Parameter  $B_i$ ,  $a_i$  und  $\epsilon_i$  aus [Yu1986] stammen.

Unter Verwendung all dieser Informationen kann dann die erwartete UCN-Zählrate am Detektor berechnet und mit den experimentellen Resultaten verglichen werden. Dies ist in den Abbildungen 5.7 und 5.8 gezeigt. Der einzige verbleibende freie Parameter in den Rechnun-

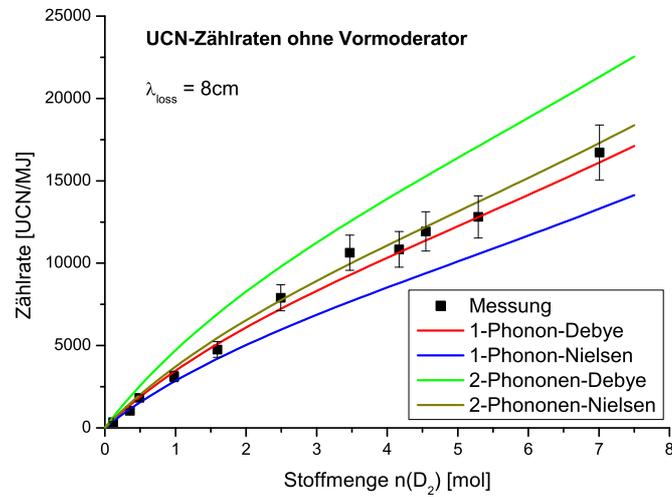


Abbildung 5.7: Vergleich der berechneten UCN-Zählraten (durchgezogene Linien) am Detektor mit den experimentellen Messungen (Rechtecke) *ohne* Vormoderator. Als Fitparameter wurde  $\lambda_{\text{loss}} = 8 \text{ cm}$  für alle berechneten Kurven gewählt.

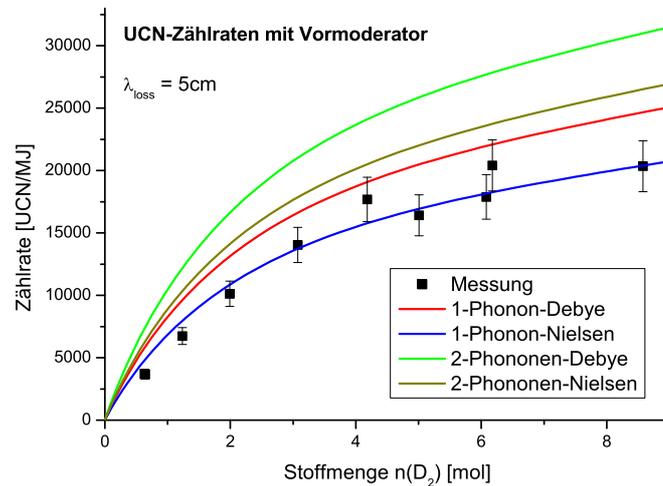


Abbildung 5.8: Vergleich der berechneten UCN-Zählraten (durchgezogene Linien) am Detektor mit den experimentellen Messungen (Rechtecke) *mit* Vormoderator. Als Fitparameter wurde  $\lambda_{\text{loss}} = 5 \text{ cm}$  für alle berechneten Kurven gewählt.

gen ist die mittlere freie Verlustweglänge  $\lambda_{\text{loss}}$  der UCN im festen Deuterium. In Kapitel 5.3 wurde diese Größe bereits aus den Messungen grob abgeschätzt zu  $4.6 \text{ cm} < \lambda_{\text{loss}} < 10 \text{ cm}$ . Daher wurde bei den theoretischen Berechnungen  $\lambda_{\text{loss}}$  in diesem Bereich variiert und an die Form der gemessenen Kurve angepasst. In der Konfiguration ohne Vormoderator ergaben sich gute Übereinstimmungen zwischen Messungen und Rechnungen für  $6 \text{ cm} < \lambda_{\text{loss}} < 8 \text{ cm}$ , je nachdem welches Modell für die Phononenzustandsdichte zugrunde gelegt wurde und ob mit der 1-Phonon- oder 2-Phononennäherung gerechnet wurde. Mit Vormoderator ergaben sich gute Fits mit  $4.5 \text{ cm} < \lambda_{\text{loss}} < 6 \text{ cm}$ .

Auf den ersten Blick mag es verwunderlich sein, dass die Verlustweglänge unterschiedlich ist, je nachdem ob man einen Vormoderator verwendet oder nicht. Der Grund hierfür liegt höchstwahrscheinlich in der Übertragung der Simulationen der auf den Konverter treffenden Neutronenflüsse von Grünauer für die Mini-D<sub>2</sub> Quelle am FRMII auf die Geometrie am TRIGA Mainz. Grünauer simulierte einen Wasserstoff-Vormoderator, während in Mainz ein Mesitylen-Vormoderator verwendet wurde. Zwar sind die Moderationseigenschaften beider Materialien sehr ähnlich, der Vormoderator in Mainz wurde jedoch technisch sehr einfach realisiert: In das Moderatorgefäß wurde bei Raumtemperatur (flüssiges) Mesitylen eingefüllt, danach wurde der Behälter verschlossen und abgekühlt. Das Mesitylen gefriert, gewinnt damit an Dichte, und füllt somit das Moderatorgefäß nicht mehr voll aus. Da der Moderator horizontal um den Konverter herum positioniert ist, ergibt sich wahrscheinlich im oberen Teil des Moderator-Volumens eine geringere Mesitylen-Schichtdicke, was dazu führt, dass ein Teil des auf den Konverter treffenden Flusses untermoderiert ist. Grünauer hingegen nahm in seinen Simulationen eine gleichmäßige Moderatoricke an. Somit ist es nicht sehr verwunderlich, dass die Rechnungen mit Vormoderator die UCN-Produktionsrate in Mainz etwas überschätzen, was im Fit ein kleineres  $\lambda_{\text{loss}}$  zur Folge hat.

Insgesamt zeigt sich aber, dass trotz etlicher Näherungen und vereinfachender Annahmen die theoretischen Rechnungen die Messergebnisse gut reproduzieren. Sowohl in der Konfiguration ohne Vormoderator als auch in der mit Vormoderator liegt der Bereich des Fitparameters  $\lambda_{\text{loss}}$  innerhalb der groben Abschätzung, die in Kapitel 5.3 vorgenommen wurde. Die Rechnungen sind also belastbar, und erlauben durch Umskalierung auf den thermischen und kalten Neutronenfluss am FRMII und die dortige Geometrie Rückschlüsse auf die Verhältnisse in der geplanten UCN-Quelle Mini-D<sub>2</sub>.

#### 5.4.4 Auswirkungen auf die UCN-Quelle Mini-D<sub>2</sub> am FRMII

Die UCN-Quelle am TRIGA Mainz wurde in erster Linie als Prototyp einer neuen starken UCN-Quelle am FRMII entwickelt. Hauptaugenmerk bei dieser neuen Quelle muss es sein, einem Experimentator am Ort seines Versuchsaufbaus den maximal möglichen UCN-Fluss zur

Verfügung zu stellen. Hierbei ist es weniger entscheidend, welche UCN-Dichten oder Flüsse sich im oder direkt nach dem Konverter einstellen, entscheidend ist, mit wievielen ultrakalten Neutronen (pro Zeiteinheit) ein Experiment wirklich "befüllt" werden kann. Also muss die Kombination aus UCN-Produktion, Extraktion aus dem Konverter und Transport zum Experiment bestimmt werden.

Um möglichst belastbare Daten für eine Skalierung dieser Parameter auf die Quelle am FRMII zu erhalten, wurde ein einfaches Experiment durchgeführt, welches den realen Bedingungen, die später am FRMII herrschen werden, sehr nahe kommt: Mit installiertem Mesitylen-Vormoderator wurden 8.5 mol Deuterium als Konverter ausgefroren, und der TRIGA-Reaktor wurde nicht im Pulsmodus, sondern mit  $100 \text{ kW}_{\text{th}}$  im Dauerbetrieb gefahren. Damit entfällt eine möglicherweise fehlerbehaftete Umrechnung von Pulsbetrieb zu Dauerbetrieb. Mittels Goldfolienaktivierung wurde der thermische Neutronenfluss am Ort des Konverters bestimmt: Er betrug  $1.1 \cdot 10^{11} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  [Pok2004], gemittelt über die Konverterlänge. Nach einer horizontalen Flugstrecke von mehr als 6 m, mit zwei  $90^\circ$ -Bögen, wurden die ankommenden UCN detektiert.

Im Energiebereich  $100 \text{ neV} < E_{\text{UCN}} < 200 \text{ neV}$  wurde eine UCN-Flussdichte von  $20 \text{ UCN}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  gemessen, wobei die Detektoreffizienz hier noch nicht berücksichtigt ist. Wie in Kapitel 4.6.2 bereits ausgeführt wurde, kann man diese Zahl nochmals verdoppeln, wenn man die UCN eine Höhendifferenz von 1 m überwinden lässt, um das Spektrum in den Bereich  $0 < E_{\text{UCN}} < 200 \text{ neV}$  zu verschieben.

Abbildung 5.9 zeigt schematisch einen Schnitt durch den Forschungsreaktor FRMII. In das durchgehende Strahlrohr SR6 soll die geplante UCN-Quelle Mini-D<sub>2</sub> eingebaut werden. Der thermische Neutronenfluss am Ort des Konverters am FRMII beträgt  $2 \cdot 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  [Gru2008]. Würde man also dieselbe Prototyp-Quelle vom TRIGA Mainz am FRMII aufbauen, würde man in 6 m Abstand vom Konverter (außerhalb des biologischen Schildes) eine UCN-Flussdichte von  $3.6 \cdot 10^4 \text{ UCN}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  ( $100 \text{ neV} < E_{\text{UCN}} < 200 \text{ neV}$ ), beziehungsweise mit eingebauter Höhenverschiebung  $\sim 7 \cdot 10^4 \text{ UCN}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  ( $0 < E_{\text{UCN}} < 200 \text{ neV}$ ) messen. Unter Berücksichtigung der Geometrie am Strahlrohr SR6 des FRMII, wo ein Neutronenleiter mit 120 mm Durchmesser Platz findet, würde man dort also einen Fluss von  $8 \cdot 10^6 \text{ UCN/s}$  ( $0 < E_{\text{UCN}} < 200 \text{ neV}$ ) erhalten. Dieser Fluss kann direkt den dort platzierten Experimenten zur Verfügung gestellt werden.

Die erreichbare Dichte an UCN in einem Experiment ist a priori nur sehr schwer abzuschätzen, da diese wesentlich von den Verlustmechanismen abhängt, die beim Befüllen auftreten. Stellt man sich ein anfänglich leeres Experimentvolumen  $V$  vor, das für eine Zeit  $\Delta t$  mit einem konstanten UCN-Fluss  $\Phi$  befüllt wird, so wird sich nach dieser Zeit eine Dichte von

$$\rho = \frac{\Phi \Delta t (1 - \eta)}{V} e^{-\Delta t / \tau} \quad (5.28)$$

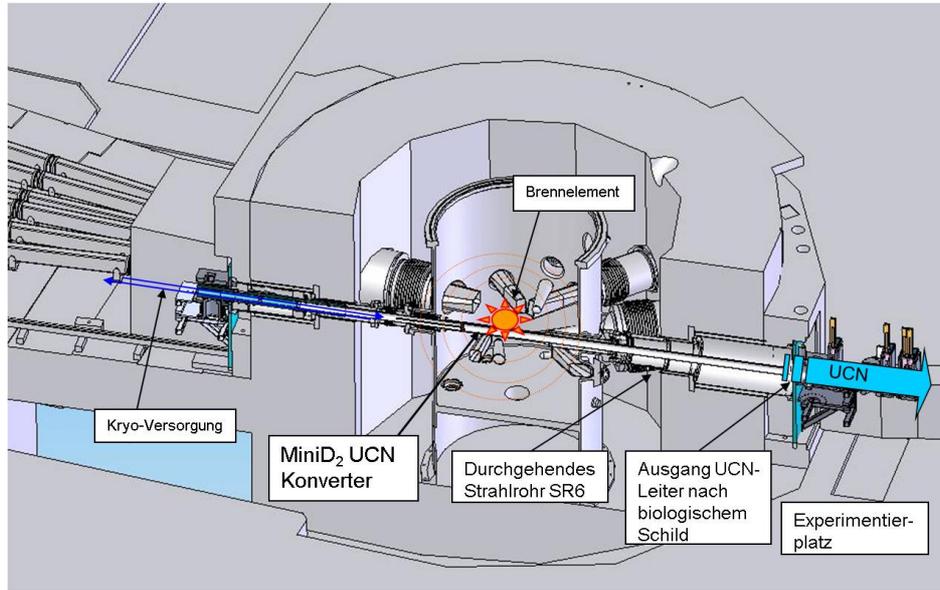


Abbildung 5.9: Schnitt durch den FRMII (schematisch). Die geplante UCN-Quelle Mini-D<sub>2</sub> soll im durchgehenden Strahlrohr SR6 eingebaut werden. Der Abstand des UCN-Konverters vom Strahlrohrausgang nach dem biologischen Schild beträgt 6 m.

einstellen. Hierbei soll der Faktor  $\eta$  den Teil der UCN repräsentieren, die während des Füllens wieder aus dem Experiment zurück in den Neutronenleiter strömen. Die Verluste an UCN, die im Experiment bei Wandstößen und durch Löcher verloren gehen, oder die während der Zeit  $\Delta t$  bereits zerfallen, werden durch die effektive Lebensdauer  $\tau$  ausgedrückt.

Um einen Zahlenwert für die UCN-Dichte zu erhalten, soll im folgenden ein "typisches" Speicherexperiment betrachtet werden: Das Experimentvolumen sei ein Zylinder mit dem Radius  $r = 25$  cm und der Höhe  $h = 50$  cm, also mit einem Volumen  $V = 100$  l, das aus einem Neutronenleiter mit 120 mm Durchmesser befüllt wird. Der Faktor  $\eta$  ergibt sich dann in erster Näherung durch das Flächenverhältnis von Neutronenleiter zu Experiment:  $\eta = A_{\text{Leiter}}/A_{\text{Experiment}}$ . Setzt man die Zahlenwerte ein, erhält man  $\eta = 0.01$ . In diesem Fall würde also etwa 1% des ankommenden UCN-Flusses wieder aus dem Experiment zurück in den Neutronenleiter strömen. Diese Abschätzung gilt natürlich nur, wenn man annimmt, dass die UCN im Experiment eine isotrope Winkelverteilung ihrer Geschwindigkeitsvektoren besitzen.

Die effektive Lebensdauer  $\tau$  erhält man durch Summation der Lebensdauern der verschiedenen Verluste:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{\beta}} + \frac{1}{\tau_{\text{Wand}}} + \frac{1}{\tau_{\text{Loch}}} \quad (5.29)$$

Hierbei ist  $\tau_{\beta} = (885.7 \pm 0.8)$  s die Lebensdauer des freien Neutrons [Yao2006]. Die Verlustrate

	TRIGA Mainz Dauerbetrieb	Mini-D <sub>2</sub> Ausgang SR6	Experimentierhalle PENeLOPE
Flussdichte [UCN/(cm <sup>2</sup> · s)]	40	7.0 · 10 <sup>4</sup>	6.2 · 10 <sup>4</sup>
Fluss [UCN/s]	1.4 · 10 <sup>3</sup>	8.0 · 10 <sup>6</sup>	7.0 · 10 <sup>6</sup>
Max. Dichte [UCN/cm <sup>3</sup> ]	2 (V = 1001)	1.2 · 10 <sup>4</sup> (V = 1001)	3 · 10 <sup>3</sup> (V = 7001)

Tabelle 5.1: Zusammenfassung der erreichbaren UCN-Flüsse und UCN-Dichten der Mini-D<sub>2</sub>-Quelle am FRMII und des Prototyps am TRIGA Mainz.

durch Wandstöße ist  $\tau_{\text{Wand}} = ((\bar{v}/\bar{\ell})\mu)^{-1} = 725 \text{ s}$  [Tri2000], mit der mittleren Geschwindigkeit der UCN  $\bar{v} = \frac{3}{4}\sqrt{2E_{\text{max}}/m_n} = 4.6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ , der mittleren freien Weglänge im Experiment  $\bar{\ell} = 4V/A = 0.33 \text{ m}$ , und der Verlustwahrscheinlichkeit pro Wandstoß  $\mu = 1 \cdot 10^{-4}$ . Der hier angenommene Wert für  $\mu$  ist ein typischer Mittelwert, der in mehreren Experimenten bestimmt wurde (siehe z.B. [Alf1992, Alt2005]). Der Verlust an UCN, die durch Löcher entweichen, ist  $\tau_{\text{Loch}}^{-1} = (\bar{v}/\bar{\ell})A_{\text{Loch}}/A_{\text{Experiment}}$ . Dieser kann in einem sorgfältig konstruierten Speicherexperiment wahrscheinlich vernachlässigt werden.

Nimmt man die eben genannten Werte für die einzelnen Verlustmechanismen, ergibt sich  $\tau \approx 400 \text{ s}$  für die effektive Lebensdauer im Experiment. Die daraus resultierende maximale UCN-Dichte ist dann  $\rho \approx 1.2 \cdot 10^4 \text{ UCN/cm}^3$ , bei der Füllzeit  $\Delta t = \tau = 400 \text{ s}$ . Bereits nach einer Füllzeit von  $\Delta t = 100 \text{ s}$  erreicht man etwa 55% der maximalen Dichte im Experiment.

Am Lehrstuhl E18 des Physik Departments wird derzeit das Experiment "PENeLOPE" zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer vorbereitet [Pic2008]. Es soll etwa 6 m entfernt vom Ausgang des Strahlrohrs SR6, also 12 m vom festen Deuteriumkonverter entfernt in der Experimentierhalle des FRMII aufgebaut werden. Das UCN-Speichervolumen von PENeLOPE, welches von Magnetfeldern begrenzt wird, wird etwa 7001 betragen. Nimmt man dieselben Verlustfaktoren wie oben an, und berücksichtigt zusätzlich einen Transmissionskoeffizienten von  $T = 0.96 \text{ m}^{-1}$  [Alt2005] für den UCN-Transport vom Strahlrohrausgang zum Experiment, so kann man dort eine maximale UCN-Dichte von  $\rho \approx 3 \cdot 10^3 \text{ UCN/cm}^3$  erreichen, bzw. 55% der maximalen Dichte nach einer Füllzeit von 100 s.

Eine Zusammenfassung der Berechnungen der erreichbaren UCN-Flüsse bzw. UCN-Dichten ist in Tabelle 5.1 zu sehen. Diese Abschätzungen zeigen, dass es durchaus möglich ist UCN-Dichten in Experimenten von etwa  $1.2 \cdot 10^4 \text{ UCN/cm}^3$  zu erreichen. Vergleichen kann man diese Werte mit denen des ILL, wo maximal  $\sim 50 \text{ UCN/cm}^3$  erreicht wurden. Die Messungen am Prototyp für die UCN-Quelle am FRMII bestätigen also, dass diese in der UCN-Dichte die aktuell stärkste Quelle am ILL um Größenordnungen übertreffen kann, und dass sie so die weltweit stärkste Quelle für ultrakalte Neutronen werden kann.

## Schlussbetrachtung

Ultrakalte Neutronen sind durch ihre besonderen Eigenschaften bestens geeignet, um mit ihnen fundamentale Experimente zur modernen Teilchenphysik durchzuführen. Besonders die Suche nach dem elektrischen Dipolmoment des Neutrons und die Bestimmung der Neutronenlebensdauer erlauben Tests des Standardmodells der physikalischen Wechselwirkungen, sowie die Untersuchung fundamentaler Symmetrien bzw. deren Brechung. Derzeit sind diese Experimente hauptsächlich durch statistische Fehler in ihren Aussagen limitiert, was die Entwicklung von noch leistungsstärkeren UCN-Quellen notwendig macht.

Vor etwa 40 Jahren wurden erste Quellen für ultrakalte Neutronen gebaut. Seitdem konnten die UCN-Dichten, die diese Quellen den Experimenten zur Verfügung stellen, um etwa acht Größenordnungen gesteigert werden. Allerdings stagniert diese Entwicklung seit zwei Jahrzehnten. So wurde die aktuell leistungsstärkste UCN-Quelle am ILL bereits 1986 in Betrieb genommen. Eine Erhöhung der UCN-Dichten um weitere Größenordnungen scheint nur durch andere Produktionsmechanismen möglich.

Der "superthermische" UCN-Produktionsmechanismus ist wohl der vielversprechendste Ansatz für neuartige Quellen. Rechnungen sagen damit mögliche Steigerungen der UCN-Dichte um etwa vier Größenordnungen voraus. Daher werden derzeit weltweit, auch am FRMII in Garching, neuartige UCN-Quellen mit superthermischen Konvertern konzipiert oder befinden sich bereits im Bau. Bislang ist allerdings keine dieser Quellen voll einsatzfähig oder konnte das ILL übertreffen.

Superthermische Konverter können Neutronen nicht nur durch elastische Stoßprozesse moderieren, sondern bieten zusätzlich mindestens einen inelastischen Stoßprozess, bei dem die Neutronen zusätzlich Energie an den Konverter abgeben, um in das ultrakalte Energiergime zu gelangen. Es sind Kryo-Kristalle, in denen Festkörperanregungen, wie beispielsweise Phononen, einen Großteil der kinetischen Energie der einfallenden Neutronen aufnehmen. Gleichzeitig müssen die Verlustmechanismen, wie etwa Absorption oder Streuprozesse hin zu höheren Energien, für bereits erzeugte UCN klein sein, um diese entweder noch effektiv aus dem Konverter extrahieren zu können, oder um sie noch innerhalb des Konverters detektieren zu können. Da der Energieverlust der Neutronen im Konverter in erster Näherung durch einen einzigen Stoßprozess erfolgt, kann das Konvertervolumen klein sein im Vergleich zu üblichen Moderatoren, die ein grosses Volumen bei sehr kleinen Temperaturen (im Fall von ultrakalten Neutronen im Bereich von mK) haben müssen, um die einfallenden Neutronen nahezu ins thermische Gleichgewicht mit dem Moderator material zu bringen.

Ein geeignetes Konvertermaterial ist festes Deuterium bei einer Temperatur von etwa 5 K. Es besitzt anregbare Phononenzustände im Energiebereich der subthermischen und kalten

Neutronen. Gleichzeitig sind die diversen Verlust-Wirkungsquerschnitte klein genug, um die erzeugten UCN noch aus dem Konverter extrahieren und Experimenten zur Verfügung stellen zu können. Die sich derzeit im Aufbau befindliche UCN-Quelle am FRMII wird festes Deuterium als Konverter benutzen, welches mit Hilfe eines Wasserstoff-Vormoderators einem kalten Neutronenfluss ( $E_n < 5 \text{ meV}$ ) von  $(3 - 4.5) \cdot 10^{13} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  ausgesetzt wird, wobei der eintreffende thermische Neutronenfluss  $2 \cdot 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$  beträgt.

Eine der Hauptschwierigkeiten bei der Konzeption der UCN-Quelle am FRMII ist der Wärmeeintrag durch nukleare Heizung in den Konverter, der sich etwa 60 cm entfernt vom zentralen Brennelement befindet. Zwar kann dieses Problem durch moderne Kryotechnik gelöst werden, doch sind der technische Aufwand und die damit verbundenen Kosten hoch. Deshalb wurde entschieden, vor Baubeginn der Quelle am FRMII eine Prototyp-Quelle am TRIGA-Reaktor in Mainz zu installieren.

TRIGA Reaktoren zeichnen sich neben ihrer inhärenten Sicherheit dadurch aus, dass sie pulsbar sind. Somit kann einerseits während eines Pulses ein hoher thermischer Neutronenfluss (beim TRIGA Mainz eine Fluenz von  $2 \cdot 10^{13} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{puls})$ ) auf den Konverter treffen, andererseits ist der Wärmeeintrag durch die kurze Pulsdauer (30 ms fwhm) und die geringe Pulsrate (max. 12 Pulse/Stunde) um Größenordnungen kleiner als an einer Hochfluss-Neutronenquelle im Dauerbetrieb. Der kryotechnische Aufwand zur Kühlung des Konverters ist daher vergleichsweise gering.

Natürlich ist es nicht möglich, am TRIGA Mainz die Bedingungen in der weltweit stärksten UCN-Quelle zu simulieren, da der zur Verfügung stehende Neutronenfluss im Dauerbetrieb zu gering ist. Trotzdem konnten wesentliche Parameter der geplanten Quelle am FRMII am Prototypen in Mainz untersucht werden:

- Ein Gasversorgungssystem für Deuterium wurde aufgebaut, dessen Funktionalität getestet und im Hinblick auf die Anforderungen am FRMII verbessert wurde. Ein Gassystem für einen Wasserstoff-Vormoderator am FRMII kann nun in analoger Weise nachgebaut werden.
- Ein Sicherheitskonzept für den Umgang mit Deuterium an Forschungsreaktoren in der Nähe des Brennelements wurde entwickelt. Dies wurde am Prototypen umgesetzt, wobei gleichzeitig diverse Schwierigkeiten beim Betrieb erkannt und beseitigt wurden.
- Zur Erzeugung von Deuterium mit hohem Ortho-Anteil wurde ein katalytischer Konverter gebaut und auf seine Effizienz hin untersucht.
- Das superthermische Produktionsprinzip wurde experimentell verifiziert und quantifiziert. Dabei wurden die entscheidenden Parameter eingehend untersucht: Die Konvertermenge und -schichtdicke, der Ausfriervorgang des Deuteriums, die Konvertertempe-

ratur, der Einfluss des Verhältnisses von Ortho- zu Para-Deuterium und die thermische Behandlung des Konvertermaterials nach dem Ausfrieren.

- Die Extraktion der UCN aus dem Konverter bis hin zu Experimenten außerhalb des biologischen Schildes wurde untersucht. Die Haupteinflussparameter, wie die Kristallstruktur des Konverters und die Qualität des Neutronenleiters, seine Temperatur und Oberflächenbeschaffenheit wurden optimiert.
- Das Energiespektrum der UCN wurde vermessen. Die ultrakalten Neutronen wurden in einer Materieflasche gespeichert und damit als solche identifiziert.

Die experimentellen Ergebnisse am Prototypen wurden mit Modellen verglichen und zeigten gute Übereinstimmung. Damit ist es möglich, diese Ergebnisse, insbesondere die erreichbaren UCN-Produktions- und Zählraten und damit verbunden die erreichbare UCN-Dichte in Experimenten, auf die Quelle am FRMII zu übertragen. Es zeigte sich, dass dort UCN-Dichten in Experimenten von mehr als  $1 \cdot 10^4$  UCN/cm<sup>3</sup> zu erreichen sind. Dies würde eine Verbesserung der aktuell leistungsstärksten Quelle um etwa drei Größenordnungen bedeuten. Nach jetzigem Stand der Dinge ist mit der Inbetriebnahme der UCN-Quelle am FRMII ab dem Jahr 2010 zu rechnen.

Experimente zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer und des elektrischen Dipolmoments des Neutrons an der UCN-Quelle am FRMII werden derzeit vorbereitet. Neben diesen beiden Experimenten, deren Aufbau und Durchführung etliche Jahre in Anspruch nehmen wird, wird ein weiterer UCN-Strahlplatz in der Experimentierhalle des FRMII direkt außerhalb des biologischen Schildes und damit so nahe wie möglich am UCN-Konverter für Experimente mit kürzerer Zeitperspektive zur Verfügung stehen. Diese Experimente könnten von den erreichbaren UCN-Dichten enorm im Hinblick auf ihre statistische Genauigkeit bei vergleichsweise kurzen Messzeiten profitieren.

Alle Ergebnisse, die im Rahmen dieser Dissertation erzielt wurden, zeigen, dass UCN-Quellen mit superthermischem Konversionsprinzip funktionieren, und UCN-Dichten liefern können, die die herkömmlichen Quellen um Größenordnungen übertreffen. Gleichzeitig war die Prototyp-Quelle die erste, die ultrakalte Neutronen horizontal ohne Abtrennung zwischen Konverter und Neutronenleiter extrahieren konnte. Derzeit wird ein leicht modifizierter Nachbau des Prototypen in einem leistungsstärkeren Strahlrohr des TRIGA Mainz realisiert, um dort eine UCN-Quelle für Experimente mit kurzer Zeitperspektive zu haben, die nicht unbedingt auf höchstmögliche UCN-Dichten angewiesen sind.

# Literaturverzeichnis

- [Abe2003] H. Abele, S. Baeßler, A. Westphal, Lect. Notes Phys. **631**, 355 (2003).
- [Abe2004] H. Abele, E. Barberio, D. Dubbers, F. Glück, J. C. Hardy, W. J. Marciano, A. Serebrov, N. Severijns, Eur. Phys. J. C **33**, 1 (2004).
- [Alf1992] V. P. Alfimenkov, A. V. Strelkov, V. N. Shvetsov, V. V. Nesvizhevsky, A. P. Serebrov, R. R. Tal'daev, A. G. Kharitonov, JETP Lett. **55**, 84 (1992).
- [Alt2005] I. Altarev, A. Frei, P. Geltenbort, E. Gutschmiedl, F. J. Hartmann, S. Paul, C. Plonka, W. Schmid, D. Tortorella, ILL Experimental Report, Test-939 at PF2/TES (2005).
- [Alt2006] I. Altarev, P. Amos, A. Frei, E. Gutschmiedl, F. J. Hartmann, A. Müller, S. Paul, H. F. Wirth, D. Tortorella, D. Rich, K. Eberhardt, G. Hampel, J. V. Kratz, T. Lauer, N. Wiehl, W. Heil, Y. Sobolev, Y. Pokotilovski, R. Hackl, L. Tassini, *Production of ultracold neutrons at the FRM II and at the TRIGA Mainz*, Annual Report 2006 Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II), 66 (2006).
- [Alt2007a] I. Altarev, A. Frei, P. Geltenbort, E. Gutschmiedl, F. J. Hartmann, A. R. Müller, S. Paul, C. Plonka, D. Tortorella, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **570**, 101 (2007).
- [Alt2007b] I. Altarev, private Mitteilung (2007).
- [Alt2007c] I. Altarev, F. Atchison, M. Daum, A. Frei, E. Gutschmiedl, G. Hampel, F. J. Hartmann, W. Heil, A. Knecht, J. V. Kratz, T. Lauer, M. Meier, S. Paul, Y. Sobolev, N. Wiehl, Phys. Rev. Lett. **100**, 014801 (2007).
- [Alt2008] I. Altarev, M. Daum, A. Frei, E. Gutschmiedl, G. Hampel, F. J. Hartmann, W. Heil, A. Knecht, J. V. Kratz, T. Lauer, M. Meier, S. Paul, U. Schmidt, Y. Sobolev, N. Wiehl, G. Zsigmond, Eur. Phys. J. A **37**, 9 (2008).

- [Arz2000] S. Arzumanov, L. Bondarenko, S. Chernyavsky, W. Drexel, A. Fomin, P. Geltenbort, V. Morozov, Yu. Panin, J. Pendlebury, K. Schreckenbach, Phys. Lett. B **483**, 15 (2000).
- [Atc2005a] F. Atchison, B. van den Brandt, T. Bryś, M. Daum, P. Fierlinger, P. Hautle, R. Henneck, S. Heule, M. Kasprzak, K. Kirch, J. A. Konter, A. Michels, A. Pichlmaier, M. Wohlmuther, A. Wokaun, K. Bodek, U. Szerer, P. Geltenbort, J. Zmeskal, Y. Pokotilovskiy, Phys. Rev. C **71**, 054601 (2005).
- [Atc2005b] F. Atchison, T. Bryś, M. Daum, P. Fierlinger, P. Geltenbort, R. Henneck, S. Heule, M. Kasprzak, K. Kirch, A. Pichlmaier, C. Plonka, U. Straumann, C. Wermelinger, Phys. Lett. B **625**, 19 (2005).
- [Atc2006a] F. Atchison, B. Blau, M. Daum, P. Fierlinger, A. Foelske, P. Geltenbort, M. Gupta, R. Henneck, S. Heule, M. Kasprzak, M. Kuźniak, K. Kirch, M. Meier, A. Pichlmaier, Ch. Plonka, R. Reiser, B. Theiler, O. Zimmer, G. Zsigmond, Phys. Lett. B **642**, 24 (2006).
- [Atc2006b] F. Atchison, B. Blau, M. Daum, P. Fierlinger, P. Geltenbort, R. Henneck, S. Heule, M. Kasprzak, K. Kirch, K. Kohlik, M. Kuźniak, M. Meier, C.-F. Meyer, A. Pichlmaier, C. Plonka, P. Schmidt-Wellenburg, B. Schultrich, Th. Stucky, V. Weihnacht, O. Zimmer, Phys. Rev. C **74**, 055501 (2006).
- [Atc2007a] F. Atchison, B. Blau, K. Bodek, B. van den Brandt, T. Bryś, M. Daum, P. Fierlinger, A. Frei, P. Geltenbort, P. Hautle, R. Henneck, S. Heule, A. Holley, M. Kasprzak, K. Kirch, A. Knecht, J. A. Konter, M. Kuźniak, C.-Y. Liu, C. L. Morris, A. Pichlmaier, C. Plonka, Y. Pokotilovski, A. Saunders, Y. Shin, D. Tortorella, M. Wohlmuther, A. R. Young, J. Zejma, G. Zsigmond, Phys. Rev. Lett. **99**, 262502 (2007).
- [Atc2007b] F. Atchison, B. Blau, M. Daum, P. Fierlinger, P. Geltenbort, M. Gupta, R. Henneck, S. Heule, M. Kasprzak, A. Knecht, M. Kuźniak, K. Kirch, M. Meier, A. Pichlmaier, R. Reiser, B. Theiler, O. Zimmer, G. Zsigmond, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B **260**, 647 (2007).
- [Bae2007] S. Baeßler, V. V. Nesvizhevsky, K. V. Protasov, A. Yu. Voronin, Phys. Rev. D **75**, 075006 (2007).
- [Bak2003] C. A. Baker, S. N. Balashov, J. Butterworth, P. Geltenbort, K. Green, P. G. Harris, M. G. D. van der Grinten, P. S. Iaydjiev, S. N. Ivanov, J. M. Pendlebury, D. B. Shiers, M. A. H. Tucker, H. Yoshiki, Phys. Lett A **308**, 67 (2003).

- [Bak2006] C. A. Baker, D. D. Doyle, P. Geltenbort, K. Green, M. G. D. van der Grinten, P. G. Harris, P. Iaydjiev, S. N. Ivanov, D. J. R. May, J. M. Pendlebury, J. D. Richardson, D. Shiers, K. F. Smith, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 131801 (2006).
- [Bij1997] H. C. van der Bij, R. A. McLaren, O. Boyle, G. Rubin, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **44**, 398 (1997).
- [Bod2004] K. Bodek, B. van den Brandt, T. Bryś, M. Daum, P. Fierlinger, P. Geltenbort, M. Giersch, P. Hautle, R. Hennek, M. Kasprzak, K. Kirch, J. A. Konter, G. Kühne, M. Kuźniak, K. Mishima, A. Pichlmaier, D. Rätz, A. Serebrov, J. Zmeskal, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* **533**, 491 (2004).
- [Bre1999] A. Bressan, J. C. Labbé, P. Pagano, L. Ropelewski, F. Sauli, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* **425**, 262 (1999).
- [Bri2000] J. F. Briesmeister, LA-13709-M, Los Alamos National Laboratory (2000).
- [Bro2004] J. Bröcker, *Quellen systematischer Fehler bei der Messung der Neutronen-Lebensdauer mit einer magnetischen Flasche*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2004).
- [Bru1997] R. Brun, F. Rademakers, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* **389**, 81 (1997).
- [Bry2005] T. Bryś, M. Daum, P. Fierlinger, P. Geltenbort, D. George, M. Gupta, R. Henneck, S. Heule, M. Horvat, M. Kasprzak, K. Kirch, K. Kohlik, M. Negrazus, A. Pichlmaier, U. Straumann, V. Vrankovic, C. Wermelinger, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* **550**, 637 (2005).
- [Can2006] F. Cantargi, J. R. Granada, S. Petriw, M. M. Scaffoni, *Physica B* **385-386**, 1312 (2006).
- [CASCADE] <http://www.n-cdt.com>
- [Col1996] G. W. Collins, W. G. Unites, E. R. Mapoles, T. P. Bernat, *Phys. Rev. B* **53**, 102 (1996).
- [Con2004] H. Conrad, W. F. Kuhs, K. Nünighoff, C. Pohl, M. Prager, W. Schweika, *Physica B* **350**, e647 (2004).
- [Cse2000] L. Cser, K. Holderna-Natkaniec, I. Natkaniec, A. Pawlukojc, *Physica B* **276-278**, 296 (2000).
- [Fer1936] E. Fermi, *Ricerca Scientifica* **7** (2), 13 (1936).

- [Fie2006] P. Fierlinger, A. Pichlmaier, H. Rauch, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **557**, 572 (2006).
- [Fil2000] R. Carr, B. Filippone, T. M. Ito, C. Jones, J. W. Martin, R. McKeown, B. Tipton, J. Yuan, P. Geltenbort, K. Soyama, T. Bowles, M. Fowler, R. Hill, A. Hime, G. Hogan, K. Kirch, S. Lamoreaux, C. Morris, A. Pichlmaier, A. Saunders, A. Alduschenkoy, A. Kharitonov, M. Lassakov, Yu. Rudnev, A. Serebrov, A. Vasilev, S. Seestrom, P. Walstrom, J. Wilhelmy, S. Hoedl, C-Y. Liu, D. Smith, A. R. Young, T. Kitagaki, K. Asahi, M. Hino, T. Kawai, M. Utsuro, T. Miyachi, M. Makela, M. Pitt, R. B. Vogelaar, *Technical review report for an accurate measurement of the neutron spin - electron angular correlation in polarized neutron beta decay with ultra-cold neutrons*, LANL (2000). [http://p25ext.lanl.gov/people/saunders/UCNA\\_Tech\\_Review.html](http://p25ext.lanl.gov/people/saunders/UCNA_Tech_Review.html)
- [Fra2007] B. Franke, *Production of Ultracold Neutrons with the Superthermal Source "Helimephisto" at the FRM-II*, Bachelor Thesis, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2007).
- [Fre2002] A. Frei, *Untersuchung ausgewählter Elemente der UCN-Quelle Mini-D<sub>2</sub>*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2002).
- [Fre2007] A. Frei, Yu. Sobolev, I. Altarev, K. Eberhardt, A. Gschrey, E. Gutschmiedl, R. Hackl, G. Hampel, F. J. Hartmann, W. Heil, J. V. Kratz, Th. Lauer, A. Lizón Aguilar, A. R. Müller, S. Paul, Yu. Pokotilovski, W. Schmid, L. Tassinini, D. Tortorella, N. Trautmann, U. Trinks, N. Wiehl, Eur. Phys. J. A **34**, 119 (2007).
- [Fre2008] A. Frei, A. R. Müller, D. Tortorella, E. Gutschmiedl, F. J. Hartmann, S. Paul, R. Hackl, L. Tassinini, O. Spieler, *A para-to-ortho converter for a solid-deuterium source for ultra-cold neutrons (UCN)*, zur Veröffentlichung eingereicht bei Nucl. Instrum. and Meth. A (2008).
- [Gld1947] M. L. Goldberger, F. Seitz, Phys. Rev. **71**, 294 (1947).
- [Gol1975] R. Golub, J. M. Pendlebury, Phys. Lett. A **53**, 133 (1975).
- [Gol1983a] R. Golub, K. Böning, Z. Phys. B **51**, 95 (1983).
- [Gol1983b] R. Golub, C. Jewell, P. Ageron, W. Mampe, B. Heckel, I. Kilvington, Z. Phys. B **51**, 187 (1983).
- [Gol1991] R. Golub, D. J. Richardson, S. K. Lamoreaux, *Ultra-Cold Neutrons*, Adam Hilger, Bristol (1991).

- [Gor1977] B. Y. Gorodilov, I. N. Krupskii, V. G. Manzhelii, *Sov. J. Low Temp. Phys.* **3**, 1562 (1977).
- [Gor1981] B. Y. Gorodilov, I. N. Krupskii, V. G. Manzhelii, O. A. Korolyuk, *Sov. J. Low Temp. Phys.* **7**, 424 (1981).
- [Gro2001] S. Gröger, *Untersuchungen zu festem Deuterium als Konvertermaterial für ultrakalte Neutronen*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2001).
- [Gru2008] F. Grünauer, *Monte Carlo Simulationen zu einem Vormoderator für eine ultrakalte Neutronenquelle im Strahlrohr SR 6 des FRM-2*, interner Bericht, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2008).
- [Gsc2003] A. Gschrey, *Aufbau einer Testanordnung zur Erzeugung ultrakalter Neutronen*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2003).
- [Hal1941] O. Halpern, M. Hamermesh, M. H. Johnson, *Phys. Rev.* **59**, 981 (1941).
- [Ham1947] M. Hamermesh, J. Schwinger, *Phys. Rev.* **71**, 678 (1947).
- [Har1999] F. J. Hartmann, *Some thoughts about gaseous and solid deuterium*, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (1999).
- [Hil1959] R. W. Hill, O. V. Lounasmaa, *Phil. Mag.* **4**, 785 (1959).
- [Ign1990] V. K. Ignatovich, *The Physics of Ultracold Neutrons*, Oxford Series on Neutron Scattering in Condensed Matter 5, Clarendon Press, Oxford (1990).
- [Kap1952] L. Kaplan, G. R. Ringo, K. E. Wilzbach, *Phys. Rev.* **87**, 785 (1952).
- [Kiy2006] Y. Kiyonagi, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* **562**, 561 (2006).
- [Kle2001] M. Klein, H. Abele, D. Fiolka, Chr. J. Schmidt, *AIP Conf. Proc.* **596**, 193 (2001).
- [Kor2007] E. Korobkina, B. W. Wehring, A. I. Hawari, A. R. Young, P. R. Huffman, R. Golub, Y. Xu, G. Palmquist, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A* **579**, 530 (2007).
- [Kou1958] S. L. Koutz, T. Taylor, A. McReynolds, F. Dyson, R. S. Stone, H. P. Sleeper Jr., R. B. Duffield, *Proc. UN Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy*, 2nd, Geneva, 282 (1958).
- [Liu2000] C.-Y. Liu, A. R. Young, S. K. Lamoreaux, *Phys. Rev. B* **62**, R3581 (2000).

- [Lus1969] V. I. Lushchikov, Yu. N. Pokotilovskii, A. V. Strelkov, F. L. Shapiro, JETP Lett. **9**, 23 (1969).
- [Mas2002] Y. Masuda, T. Kitagaki, K. Hatanaka, M. Higuchi, S. Ishimoto, Y. Kiyanagi, K. Morimoto, S. Muto, M. Yoshimura, Phys. Rev. Lett. **89**, 284801 (2002).
- [Mck1978] A. R. W. McKellar, T. Oka, Can. J. Phys. **56**, 1315 (1978).
- [MCNP] MCNP is a trademark of Los Alamos National Security, LLC, Los Alamos National Laboratory, <http://mcnp-green.lanl.gov>
- [Nat2004] I. Natkaniec, K. Holderna-Natkaniec, J. Kalus, Physica B **350**, e651 (2004).
- [NEDM-PSI] <http://nedm.web.psi.ch>
- [Nes2002] V. V. Nesvizhevsky, H. G. Börner, A. K. Petukhov, H. Abele, S. Baeßler, F. J. Rueß, T. Stöferle, A. Westphal, A. M. Gagarski, G. A. Petrov, A. V. Strelkov, Nature **415**, 6869 (2002).
- [Nes2003] V. V. Nesvizhevsky, H. G. Börner, A. M. Gagarski, A. K. Petoukhov, G. A. Petrov, H. Abele, S. Baeßler, G. Divkovic, F. J. Rueß, Th. Stöferle, A. Westphal, A. V. Strelkov, K. V. Protasov, A. Yu. Voronin, Phys. Rev. D **67**, 102002 (2003).
- [Nes2005] V. V. Nesvizhevsky, A. K. Petukhov, H. G. Börner, T. A. Baranova, A. M. Gagarski, G. A. Petrov, K. V. Protasov, A. Yu. Voronin, S. Baeßler, H. Abele, A. Westphal, L. Lucovac, Eur. Phys. J. C **40**, 479 (2005).
- [Nie1971] M. Nielsen, H. Bjerrum Møller, Phys. Rev. B **3**, 4383 (1971).
- [OXYSORB] OXISORB<sup>®</sup> ist ein Produkt der Messer Group GmbH (<http://www.messergroup.com>).
- [Pic2004] R. Picker, *A New Superconducting Magnetic Trap for Ultra-cold Neutrons*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2004).
- [Pic2005] R. Picker, I. Altarev, J. Bröcker, E. Gutmiedl, F. J. Hartmann, A. Müller, S. Paul, W. Schott, U. Trinks, O. Zimmer, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **110**, 357 (2005).
- [Pic2008] R. Picker, PENeLOPE and AbEx – One way towards a new precise neutron lifetime measurement, Dissertation, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2008).
- [Pok1995] Yu. N. Pokotilovski, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **356**, 412 (1995).

- [Pok2004] Yu. N. Pokotilovski, K. Eberhardt, W. Heil, V. Janzen, J. V. Kratz, U. Tharun, N. Trautmann, Y. Sobolev, N. Wiehl, *Jahresbericht*, Inst. für Kernchemie Mainz, **A24** (2004).
- [RAM-WMI] <http://www.wmi.badw.de/methods/raman.htm>
- [Rod1973] H. M. Roder, G. E. Childs, R. D. McCarty, P. E. Angerhofer, *Survey of the properties of the hydrogen isotopes below their critical temperatures*, Natl. Bur. Stand. (1973).
- [Sal1997] F. Sauli, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **386**, 531 (1997).
- [San2004] A. Saunders, J. M. Anaya, T. J. Bowles, B. W. Filippone, P. Geltenbort, R. E. Hill, M. Hino, S. Hoedl, G. E. Hogan, T. M. Ito, K. W. Jones, T. Kawai, K. Kirch, S. K. Lamoreaux, C.-Y. Liu, M. Makela, L. J. Marek, J. W. Martin, C. L. Morris, R. N. Mortensen, A. Pichlmaier, S. J. Seestrom, A. Serebrov, D. Smith, W. Teasdale, B. Tipton, R. B. Vogelaar, A. R. Young, J. Yuan, Phys. Lett. B **593**, 55 (2004).
- [Scd2005] W. Schmid, *Erzeugung ultrakalter Neutronen in einem festen Deuteriumkonverter*. Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2005).
- [Scm2006a] P. Schmidt-Wellenburg, O. Zimmer, Cryogenics **46**, 799 (2006).
- [Scm2006b] P. Schmidt-Wellenburg, *Development and Tests of a Superthermal Helium Source for the production of Ultra Cold Neutrons*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2006).
- [Sco2003] W. Schott, J. M. Pendlebury, I. Altarev, S. Gröger, E. Gutschiedl, F. J. Hartmann, S. Paul, G. Petzoldt, P. Schmidt-Wellenburg, U. Trinks, Eur. Phys. J. A **16**, 599 (2003).
- [Sct2004] L. Schmitt, H. Angerer, N. Franz, B. Grube, B. Ketzer, I. Konorov, R. Kuhn, W. Liebl, S. Paul, H. Fischer, A. Grünemaier, F.-H. Heinsius, K. Königsmann, T. Schmidt, U. Fuchs, M. Lamanna, IEEE Trans. Nucl. Sci. **51**, 439 (2004).
- [Sea1992] V. F. Sears, Neutron News **3**, 29 (1992).
- [See2008] S. Seestrom, *Results from the UCNA Experiment at LANSCE*, International Workshop on Particle Physics with Slow Neutrons, Grenoble (2008).
- [Sei1999] C. Seidel, *Entwicklung einer UCN-Quelle für das Strahlrohr SR4 am FRM-II*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (1999).
- [Ser1994] A. P. Serebrov, V. A. Mityukhlyayev, A. A. Zakharov, V. V. Nesvizhevsky, A. G. Kharitonov, JETP Lett. **59**, 757 (1994).

- [Ser2000] A. P. Serebrov, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **440**, 653 (2000).
- [Ser2005] A. Serebrov, V. Varlamov, A. Kharitonov, A. Fomin, Yu. Pokotilovski, P. Geltenbort, J. Butterworth, I. Krasnoschekova, M. Lasakov, R. Tal'daev, A. Vasiljev, O. Zhrebtsov, Phys. Lett. B **605**, 72 (2005).
- [Sil1980] I. F. Silvera, Rev. Mod. Phys. **52**, 393 (1980).
- [SIMATIC] Simatic® ist ein Produkt der Siemens AG  
(<http://www.siemens.com/simatic>).
- [Sou1986] P. C. Souers, *Hydrogen Properties for Fusion Energy*, University of California Press (1986).
- [Ste1986] A. Steyerl, H. Nagel, F.-X. Schreiber, K.-A. Steinhauer, R. Gähler, W. Gläser, P. Ageron, J. M. Astruc, W. Drexel, R. Gervais, W. Mampe, Phys. Lett. A **116**, 347 (1986).
- [Sto1959] R. S. Stone, H. P. Sleeper Jr., R. H. Stahl, G. West, Nucl. Sci. Eng. **6**, 255 (1959).
- [SUPRASIL] <http://www.heraeus-quarzglas.com>
- [Tor2007] D. Tortorella, *Characterization of a solid deuterium converter for UCN in the framework of the Mini-D<sub>2</sub> project at the FRM-II reactor in Munich*, Dissertation, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2007). <http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn:nbn:de:bvb:91-diss-20070209-604884-0-3>
- [Tos2006] L. Torres, J. R. Granada, Physica B **385-386**, 1306 (2006).
- [Tri2000] U. Trinks, F. J. Hartmann, S. Paul, W. Schott, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **440**, 666 (2000).
- [Tur1963] V. F. Turchin, *Slow Neutrons*, Moskow, State Atom Press (1963).
- [Tur1965] V. F. Turchin, V. A. Tarasov, Atomic Energy **18**, 146 (1965).
- [UCN-PSI] <http://ucn.web.psi.ch>
- [Unl1994] K. Ünlü, C. Ríos-Martínez, B. W. Wehring, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **353**, 397 (1994).
- [Urb2007] M. Urban, *Untersuchung von festem Deuterium als Konvertermaterial zur Erzeugung ultrakalter Neutronen*, Diplomarbeit, Techn. Univ. München, unveröffentlicht (2007).
- [Uts1976] M. Utsuro, J. Phys. C **9**, 171 (1976).

- [VITESS] <http://www.hmi.de/projects/ess/vitess>
- [Yao2006] W.-M. Yao *et al.*, J. Phys. G **33**, 1 (2006).
- [Yos1992] H. Yoshiki, K. Sakai, M. Ogura, T. Kawai, Y. Masuda, T. Nakajima, T. Takayama, S. Tanaka, A. Yamaguchi, Phys. Rev. Lett. **68**, 1323 (1992).
- [Yu1986] Z.-Ch. Yu, S. S. Malik, R. Golub, Z. Phys. B **62**, 137 (1986).
- [Zim2007] O. Zimmer, K. Baumann, M. Fertl, B. Franke, S. Mironov, C. Plonka, D. Rich, P. Schmidt-Wellenburg, H.-F. Wirth, B. van den Brandt, Phys. Rev. Lett. **99**, 104801 (2007).
- [Zsi2004] G. Zsigmond, K. Lieutenant, S. Manoshin, H. N. Bordallo, J. D. M. Champion, J. Peters, J. M. Carpenter, F. Mezei, Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A **529**, 218 (2004).

## Danksagung

Im Verlauf dieser Dissertation bekam ich Hilfestellung und Unterstützung von zahlreichen Personen. Besonders erwähnen möchte ich hierbei:

- Herrn Prof. Dr. Stephan Paul, der als Doktorvater diese Dissertation betreut hat.
- Herrn PD Dr. Uwe Trinks, der mich zu dieser Dissertation ermutigt hat, und der mein Mentor während meiner Zeit als Student und Diplomand war.
- Herrn Dr. Erwin Gutschmiedl, der als direkter Betreuer diese Dissertation begleitete.
- Herrn PD Dr. F. Joachim Hartmann, für seine zahllosen Hilfestellungen im Reich der Verwaltung, für die für mich immer wieder inspirierenden Diskussionen über diverse physikalische und nicht-physikalische Themen, sowie für die fruchtbare Zusammenarbeit bei seinen Vorlesungen.
- Herrn Thomas Deuschle und Herrn Herbert Ruhland, deren praktisches Geschick und langjährige Erfahrung entscheidend zum Gelingen der Experimente beigetragen haben.
- Frau Karin Frank, die immer ein offenes Ohr für mich hatte.
- Die Diplomanden und Werkstudenten, die ich während dieser Zeit betreuen durfte, und die wichtige Beiträge zu den Experimenten erbracht haben, insbesondere Herrn Dipl.-Phys. Andreas Gschrey, Herrn Dipl.-Phys. Wolfgang Schmid und Herrn Dipl.-Phys. Markus Urban.
- Alle Mitarbeiter des Lehrstuhls E18, besonders diejenigen, die sich ebenfalls mit (ultrakalten) Neutronen befassen: Herr Dr. Igor Altarev, Herr Dipl.-Phys. Axel-Reimer Müller, Herr Dipl.-Phys. Rüdiger Picker, Herr Dr. Wolfgang Schott, Herr Dipl.-Ing. Rainer Stoepler, Herr Dr. Daniele Tortorella, Herr Dr. Hans-Friedrich Wirth und Herr Prof. Dr. Oliver Zimmer.
- Die Mitarbeiter des Maier-Leibnitz-Laboratoriums, besonders Herrn Dr. Ludwig Beck und Herrn Dipl.-Ing. Peter Hartung.
- Die Kollegen aus Mainz und Mitarbeiter des TRIGA: Herr Jürgen Breuel, Herr Dr. Klaus Eberhardt, Frau Dr. Gabriele Hampel, Herr Prof. Dr. Werner Heil, Herr Dr. Horst Keller, Herr Dipl.-Ing. Hans-Otto Kling, Herr Prof. Dr. Jens-Volker Kratz, Herr Ullrich Krille, Herr Dipl.-Phys. Thorsten Lauer, Herr Gerhard Lehr, Herr Attila Peil, Herr Dr. Yuri Pokotilovski, Herr Arno Schmidt, Herr Heinz-Martin Schmidt, Herr Dr. Yuri Sobolev, Herr Dr. Norbert Trautmann und Herr Dr. Norbert Wiehl.

