

Kalibrationsaspekte der kryogenen Destillationssäule für das XENON1T-Experiment

David Roth

Bachelorarbeit

Institut für Kernphysik
Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät
Westfälische-Wilhelms-Universität Münster

Referent: Prof. Dr. C. Weinheimer
Koreferent: Prof. Dr. A. Khoukaz

August 2014

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit mit dem Titel

**Kalibrationsaspekte der kryogenen Destillationssäule
für das XENON1T-Experiment**

selbstständig verfasst habe, und dass ich keine anderen Quellen und Hilfsmittel als die angegebenen benutzt habe und dass die Stellen der Arbeit, die anderen Werken - auch elektronischen Medien - dem Wortlaut oder Sinn nach entnommen wurden, auf jeden Fall unter Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht worden sind.

Ort, Datum

Unterschrift

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Das XENON Dark Matter Project	3
2.1. Dunkle Materie	3
2.2. Suche nach dunkler Materie mit Xenon	4
2.2.1. Xenon als Detektormaterial	4
2.2.2. Prinzip der Zwei-Phasen-Zeitprojektionskammer	5
2.2.3. XENON100 und XENON1T-Experiment	6
2.3. Reinigung des Xenons zur Verringerung des intrinsischen Untergrundes	7
2.4. Designvorgaben der kryogenen Destillationssäule für das XENON1T-Experiment	7
3. Die kryogene Destillationssäule	9
3.1. Prinzip der kryogenen Destillation	9
3.2. Aufbau der Säule	10
3.2.1. Fuß der Säule: Reboiler, Preseparator und Wärmetauscher	11
3.2.2. Mittelteil der Säule: Packungsrohr, Liquid Feed-Ports und Analyse-Ventile	12
3.2.3. Kopf der Säule: Top Condenser	13
3.3. Steuerung der Säule	14
3.4. Methoden zur Überprüfung der Separation von Xenon und Krypton	14
3.5. Funktionstests der Kalköpfe an Top Condenser und Preseparator	14
3.5.1. Kühlleistung des Kalkopfs CP140T am Top Condenser	16
3.5.2. Kühlleistung des Kalkopfs CP50 am Preseparator	17
3.6. Argon-Radon-Destillation	19
4. Volumenbestimmung und Flowcontroller-Überprüfung	21
4.1. Messprinzipien und theoretische Grundlagen	21
4.1.1. Näherung als Ideales Gas und Gasmengenstrom	21
4.1.2. Volumenbestimmung nach $pV=\text{const}$	22
4.2. Bestimmung der Volumina	22
4.2.1. Das Volumen des Metallzylinders (V_3)	23
4.2.2. Volumen der Messpipette (V_1) und Gesamtvolumen (V_{123})	23

4.3. Überprüfung der Flowcontroller	26
4.3.1. Der Flowcontroller der Off-Gas-Leitung (bis 0,1 slpm)	27
4.3.2. Der Flowcontroller der Gas-In-Leitung (bis 20 slpm)	29
5. Leitwerte der Analyse-Ventile	31
5.1. Strömungslehre	31
5.2. Bestimmung der Leitwerte	33
5.2.1. Messaufbau und Durchführung	33
5.2.2. Auswertung und Diskussion der Ergebnisse	36
5.2.3. Funktion der Blenden für die Messung der Krypton-Konzentration	40
6. Zusammenfassung und Ausblick	43
A. Anhang	47

1. Einleitung

Die Ergründung der Struktur des Universums stellt seit jeher eine zentrale Frage der Wissenschaft dar. Ein noch ungeklärtes Phänomen liefert dabei die sogenannte dunkle Materie, für die es zahlreiche Hinweise aus der Astrophysik gibt. Ein Kandidat für diese bisher nur durch ihre gravitative Wechselwirkung wahrgenommenen Teilchen ist das sogenannte Weakly Interacting Massive Particle (WIMP).

Das XENON Dark Matter Project ist eine 2002 gestartete internationale Kollaboration zur direkten Suche nach WIMPs. Dabei wird das Edelgas Xenon als Detektormaterial verwendet, mit welchem die WIMPs zusammenstoßen und charakteristische Signale erzeugen sollen. Seit 2011 laufen die Vorbereitungen für das XENON1T-Experiment, die dritte Stufe nach XENON10 und XENON100. Nachdem 2013 das Large Underground Xenon dark matter experiment (LUX) eine obere Grenze für den Spin-unabhängigen Wirkungsquerschnitt zu $\sigma < 7,6 \cdot 10^{-46} \text{ cm}^2$ für eine WIMP-Masse von $33 \text{ GeV}/c^2$ [LUX13] setzte, ist für XENON1T eine Sensitivität von $\sigma = 2 \cdot 10^{-47} \text{ cm}^2$ für eine WIMP-Masse von $50 \text{ GeV}/c^2$ geplant. Hierzu ist jedoch ein erheblicher Aufwand zur Untergrundreduzierung nötig. Das radioaktive Krypton-Isotop ^{85}Kr , welches intrinsische Untergrundsignale erzeugt und in industriell erwerblichem Xenon vorhanden ist, stellt somit ein Problem dar. Krypton kann durch sogenannte kryogene Destillation zum großen Teil von Xenon abgetrennt werden. Im Institut für Kernphysik in Münster wurde mit diesem Ziel eine kryogene Destillationssäule für das XENON1T-Experiment entwickelt und aufgebaut. Einige der Tests der verwendeten Bauteile werden in dieser Arbeit präsentiert.

Zunächst wird in Kapitel 2 das XENON Dark Matter Project mit Fokus auf die Untergrundreduzierung näher vorgestellt.

Im darauffolgenden Kapitel 3 wird das Funktionsprinzip und der Aufbau der Destillationssäule beschrieben. Außerdem wird dargelegt, wie die Kühlleistung der verwendeten Kaltköpfe bestimmt wurde, um sicherzustellen, dass diese den speziellen Anforderungen der Destillationssäule genügt.

Anschließend wird in Kapitel 4 eine Möglichkeit der Bestimmung von Volumina in Gassystemen erläutert und durchgeführt, weil sich bei Kenntnis gewisser Volumina die Gasflüsse berechnen lassen. Mithilfe so bestimmter Gasflüsse können zwei Flowcontroller (Massenflussregler) geprüft werden, welche die Flüsse in der Destillationssäule regeln.

Um letztendlich festzustellen, ob die Destillation wie gewünscht funktioniert, muss die Kryptonkonzentration des Gases in der Säule gemessen werden. Dazu soll Gas über sogenannte Analyse-

Ventile gezielt aus der Säule entnommen werden. Ob dies durch Blenden, die den Ventilen vorgeschaltet sind, ermöglicht wird, kann anhand des Gasstroms durch diese überprüft werden. Dieser ist von den Leitwerten abhängig, die deshalb in Kapitel 5 bestimmt werden.

Eine Zusammenfassung und ein Ausblick finden sich im abschließenden Kapitel 6.

2. Das XENON Dark Matter Project

In diesem Kapitel wird zunächst ein Hinweis für die Existenz von dunkler Materie sowie ein möglicher Kandidat, das sogenannte Weakly Interacting Massive Particle (WIMP), vorgestellt. Anschließend wird die direkte Suche nach diesen Teilchen beim XENON Dark Matter Project im Hinblick auf die Reduzierung des Untergrundes, insbesondere des intrinsischen Untergrundes aus radioaktiven Edelgas-Isotopen, beschrieben. Abschließend werden die Designvorgaben für die kryogene Destillationssäule zur Entfernung des intrinsischen Untergrundes durch Krypton aufgezählt.

2.1. Dunkle Materie

Nach heutiger Kenntnis besteht das Universum zu ca. 4,9 % aus gewöhnlicher, baryonischer Materie und zu den restlichen 95,1 % aus sogenannter dunkler Energie und dunkler Materie, deren Beschaffenheit noch größtenteils unbekannt ist. Die beschleunigte Ausdehnung des Universums macht die Annahme der dunklen Energie notwendig, die etwa 68,3 % der gesamten Energiedichte ausmacht. Die restlichen ca. 26,8 % sind dunkle Materie, die wegen ihrer fehlenden elektromagnetischen Wechselwirkung als dunkel bezeichnet wird. [Pla13]

Ein Hinweis für die Existenz von dunkler Materie findet sich unter anderem in der Untersuchung der Rotationsgeschwindigkeiten von Spiral-Galaxien. Die beobachteten Geschwindigkeiten der einzelnen Sterne in Abhängigkeit der Entfernung vom Zentrum der Galaxie entsprechen nicht dem erwarteten Zusammenhang durch die leuchtende, baryonische Masse. Dabei wird nach Newton'scher Mechanik für große Abstände ein Abfall der Geschwindigkeiten mit $1/\sqrt{r}$ erwartet, welche jedoch konstant bleiben. Dies ist in Abbildung 2.1 am Beispiel der Galaxie NGC 6503 gezeigt. Der Geschwindigkeitsverlauf kann sich durch zusätzlichen Einfluss von galaktischem Gas sowie zu einem großen Teil durch das Einführen von dunkler Materie erklären lassen. [Beg91]

Die genaue Natur der dunklen Materie-Teilchen ist noch ungeklärt. Ein möglicher Kandidat ist das Weakly Interacting Massive Particle (WIMP), welches ein massives und somit nicht-relativistisches Teilchen ist und deshalb zur sogenannten 'kalten' dunklen Materie zählt. Es ist elektrisch neutral und wechselwirkt nur gravitativ sowie auf der Skala der schwachen Wechselwirkung. In der Theorie der Supersymmetrie, die eine Erweiterung des Standard-Modells darstellt, werden Teilchen prognostiziert, die diesen Eigenschaften entsprechen. [Jun96]

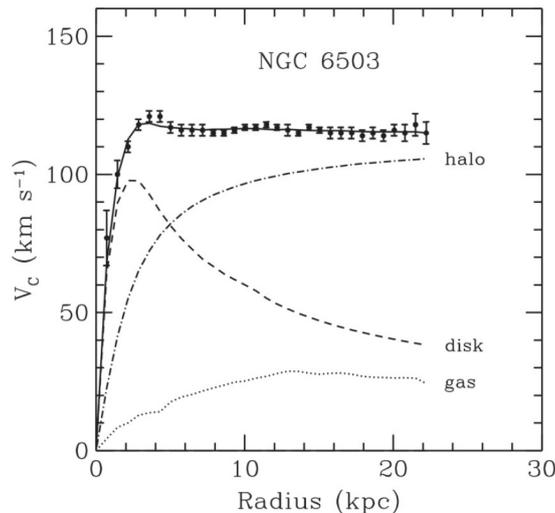


Abbildung 2.1.: Rotationsgeschwindigkeit der Sterne in der Galaxie NGC 6503 abhängig vom Abstand zum Zentrum. Die gemessenen Daten können mit einem Modell aus der sichtbaren Materie (disk), galaktischem Gas (gas) und dunkler Materie (halo) erklärt werden [Beg91].

2.2. Suche nach dunkler Materie mit Xenon

Es gibt verschiedene Formen von Experimenten zur Suche nach dunkler Materie. Das XENON Dark Matter Project sucht mithilfe von Streuexperimenten an flüssigem Xenon nach WIMPs, was als direkte Suche bezeichnet wird. Aufgrund des geringen Wirkungsquerschnitts von $\sigma < 7,6 \cdot 10^{-46} \text{ cm}^2$ für eine WIMP-Masse von $33 \text{ GeV}/c^2$ [LUX13] ist die Detektorempfindlichkeit ein ausschlaggebendes Kriterium, ob dunkle Materie entdeckt wird oder nicht.

2.2.1. Xenon als Detektormaterial

Flüssiges Xenon bietet eine Reihe von Vorteilen als Detektormaterial zur Suche nach WIMPs. Die hohe Kernladungszahl, $Z = 54$, sowie die hohe Dichte sorgen für eine hohe Abschirmung von radioaktiver Strahlung, was zur Untergrundreduzierung beiträgt und die Sensitivität des Detektors erhöht. Zudem besitzt Xenon keine langlebigen radioaktiven Isotope¹, die Untergrundsignale erzeugen könnten. Die verschiedenen Isotope von Xenon mit unterschiedlichem Spin erlauben jedoch eine Untersuchung von Spin-abhängigen Vorgängen. Weil der Spin-unabhängige Wirkungsquerschnitt $\propto A^2$ ist [Fre06], bietet sich Xenon mit $A \approx 131$ als guter Stoßpartner für Streuexperimente an. Die Durchlässigkeit von Xenon für sein eigenes Szintillationslicht ermöglicht die Verwendung einer Zwei-Phasen-Zeitprojektionskammer, deren Funktionsprinzip im Folgenden erklärt wird. [Apr09]

¹abgesehen von ^{136}Xe mit $t_{1/2} = 10^{21} \text{ a}$, das bei der Suche nach dunkler Materie für keinen signifikanten Untergrund sorgt.

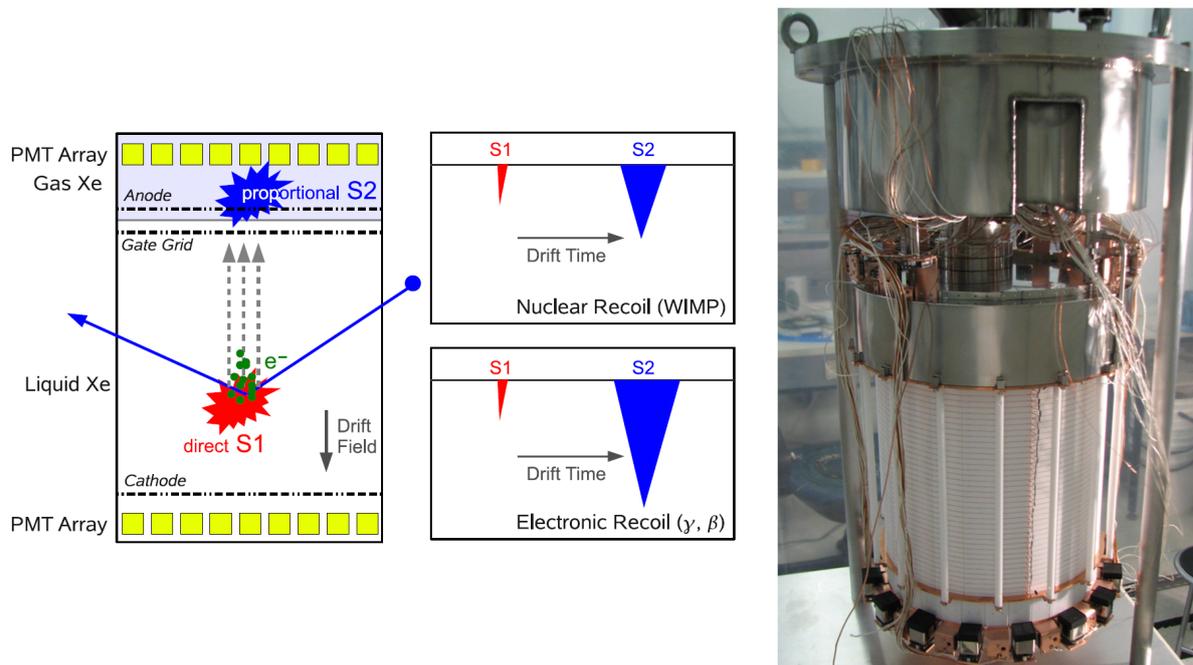


Abbildung 2.2.: Links: Prinzip der Zwei-Phasen-Zeitprojektionskammer mit Xenon [Apr12a]. Rechts: TPC des XENON100-Experiments. Foto mit Genehmigung der XENON Kollaboration.

2.2.2. Prinzip der Zwei-Phasen-Zeitprojektionskammer

Das XENON Projekt verwendet eine sogenannte Zwei-Phasen-Zeitprojektionskammer (TPC, a. d. Engl.: Time Projection Chamber), die eine dreidimensionale Ortsangabe des Ereignisses, eine Energiemessung und die Identifizierung des Teilchens ermöglicht [Apr09]. Dazu werden Signale aus Szintillation sowie Ionisierung genutzt. Abbildung 2.2 zeigt das Prinzip der TPC. Der Detektor ist zum Großteil mit flüssigem Xenon gefüllt, worüber sich eine Gasphase anschließt. An Boden und Decke befindet sich jeweils eine Anordnung von Photomultipliern (PMT Array) zur Messung des Szintillationslichts. Die direkten Szintillationen eines Ereignisses in der Flüssigphase (S1) werden aufgrund von Reflektion am Phasenübergang hauptsächlich am Boden detektiert. Die Elektronen aus Ionisierung werden in einem elektrischen Feld zur Flüssigkeitsoberfläche gedriftet. Am Phasenübergang werden sie durch ein zusätzliches elektrisches Feld aus der Flüssigphase extrahiert und beschleunigt, wobei proportionales Szintillationslicht (S2) erzeugt wird. Aus der Messung von S2 an der Detektordecke lässt sich aufgrund der geometrischen Anordnung der Photomultiplier die x und y Position des Ereignisses bestimmen. Aus dem Zeitunterschied zwischen S1 und S2 erhält man die dritte Koordinate in Richtung des Elektronendrifts. Die Form und Stärke des S2-Signals lässt eine Unterscheidung von Kernrückstößen (Nuclear Recoil) bei WIMPs und Neutronen im Gegensatz zu Rückstößen an der Elektronenhülle (Electronic Recoil) bei Untergrund von β - und γ -Strahlung zu. [Apr12a]

2.2.3. XENON100 und XENON1T-Experiment

Zur Abschirmung kosmischer Höhenstrahlung ist das Experiment in einer Tiefe von 3600 m Wasseräquivalent unter dem Gran Sasso Massiv im Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS) Untergrundlabor stationiert. Im XENON100-Experiment beträgt die verwendete Xenon-Masse in der TPC ca. 161 kg, wovon 62 kg als aktives Detektormaterial genutzt werden. Das bedeutet, dass aufgrund der hohen eigenen Abschirmung von Xenon dessen äußere Schicht als Schild wirkt. Dementsprechend werden nur Ereignisse in einem bestimmten mittleren Bereich des Detektors ausgewertet, der als fiducial volume bezeichnet wird. Das designierte Ziel von XENON100 wurde 2012 erreicht und ein oberes Limit für den Spin-unabhängigen Wirkungsquerschnitt von WIMP-Nukleon-Streuung zu $\sigma < 2 \cdot 10^{-45} \text{ cm}^2$ für eine WIMP-Masse von $50 \text{ GeV}/c^2$ gesetzt [Apr12b]. Für XENON1T ist eine Detektorsensitivität von $\sigma = 2 \cdot 10^{-47} \text{ cm}^2$ vorgesehen. Die Wirkungsquerschnitte im Vergleich mit Ergebnissen anderer Experimente zeigt Abbildung 2.3. Die verwendete Xenon-Masse erhöht sich bei XENON1T auf 3,4 t und 1 t aktives Detektormaterial. Zusätzliche Abschirmung nach außen bietet ein Wassertank von 10 m Durchmesser, in dem die TPC platziert wird. Der vom experimentellen Aufbau selbst herrührende Untergrund wird durch die Verwendung von ultrareinen Materialien reduziert. Es bleiben jedoch noch intrinsische Untergrundsignale aus dem Inneren des Detektors im Xenon selbst, die einer Reinigung des Xenons bedürfen. Diese werden im Folgenden beschrieben. [Apr10]

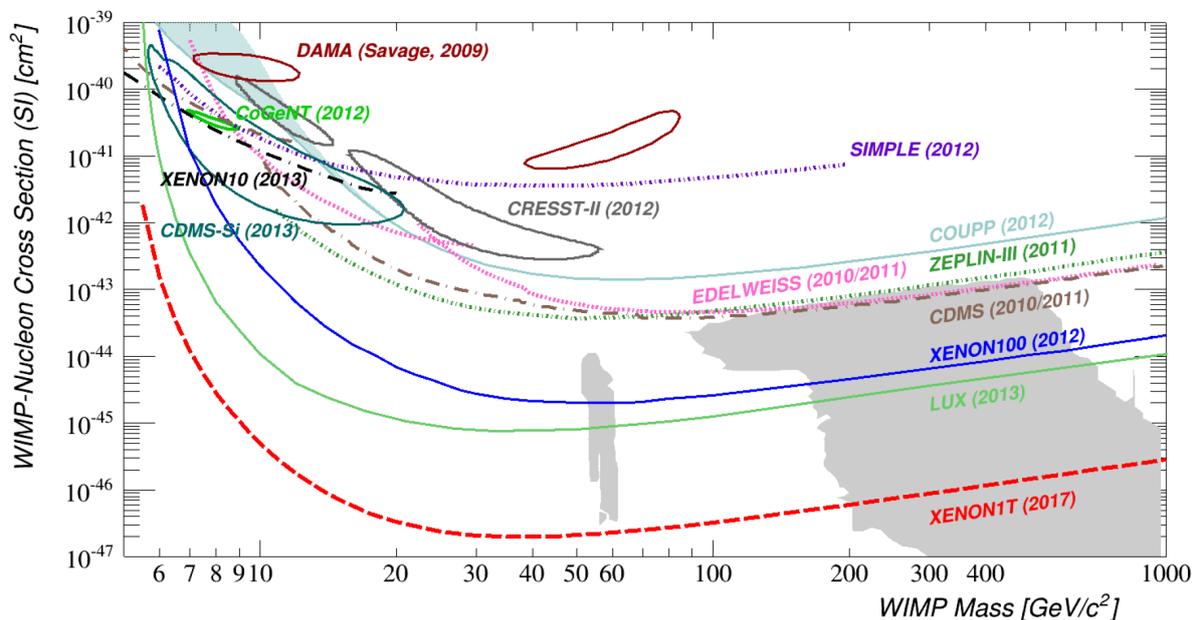


Abbildung 2.3.: Ergebnisse des XENON100-Experiments für das obere Limit des Wirkungsquerschnitts von Spin-unabhängiger WIMP-Nukleon-Streuung im Vergleich mit Ergebnissen anderer Experimente sowie designiertes Ziel von XENON1T. Grau schattierte Gebiete zeigen Regionen aus theoretischen Vorhersagen der Supersymmetrie. Abbildung mit Genehmigung der XENON Kollaboration

2.3. Reinigung des Xenons zur Verringerung des intrinsischen Untergrundes

Intrinsische Verunreinigungen können die Sensitivität des Detektors durch Behinderung der Signaldetektion oder durch zusätzlichen Untergrund beeinträchtigen. Ersteres ist der Fall bei elektronegativen Verunreinigungen wie zum Beispiel O_2 und H_2O , die den Drift der Elektronen stören. Bei XENON1T wird deren Konzentration in einem im Institut für Kernphysik in Münster entwickelten Gasreinigungssystem durch andauerndes Zirkulieren des Xenons durch heiße Getter reduziert. Weitere Informationen dazu folgen in [Ros14a].

Da die Gewinnung von Xenon aus der Luft erfolgt, ist industriell gefertigtes Xenon in der Größenordnung ppb^2 mit anderen ebenfalls in der Luft vorkommenden Edelgasen wie Krypton verunreinigt. Der Zerfall des radioaktiven Isotops ^{85}Kr mit einer Halbwertszeit von 10,76 a führt im Xenon-Detektor zu einem permanenten Untergrundsignal, das sich nicht abschirmen lässt und nicht vollständig durch die Diskrimination von S1 und S2 identifiziert werden kann. Aus diesem Grund ist die Entfernung dieser Verunreinigung von entscheidender Bedeutung für die Empfindlichkeit des Detektors.

Eine Möglichkeit die Verunreinigungen mit Krypton und somit auch das störende ^{85}Kr durch einmaliges Reinigen vor Beginn des Experiments zu entfernen, bietet die sogenannte kryogene Destillation. Dazu wurde im Institut für Kernphysik in Münster eine kryogene Destillationssäule entwickelt und aufgebaut. Der Aufbau und die Funktion der Destillationssäule wird in Kapitel 3 beschrieben.

Eine weitere intrinsische Kontamination ist das Radon-Isotop ^{222}Rn mit einer Halbwertszeit von 3,8 d, welches durchgehend aus den Materialien des Detektors in das Xenon ausgast. Deshalb muss dieses während des Experiments kontinuierlich entfernt werden. Eine Möglichkeit dazu könnte ebenfalls kryogene Destillation sein, was derzeit untersucht wird.

2.4. Designvorgaben der kryogenen Destillationssäule für das XENON1T-Experiment

Aus den Zielen des XENON1T-Experiments können Rückschlüsse auf die Designvorgaben für Detektor und Untergrundreduzierung gezogen werden. An die kryogene Destillationssäule sind demnach folgende Anforderungen gestellt:

- Die Krypton-Konzentration im Xenon muss unter $0,5 ppt^3$ gesenkt werden. Bei anfänglicher ppb Konzentration von Krypton entspricht das einem Separationsfaktor von $10^4 - 10^5$

²1ppb = 1 part per billion = 10^{-9} mol/mol

³1ppt = 1 part per trillion = 10^{-12} mol/mol

- Um die komplette Xenon-Masse in einer angemessenen Zeit von 7 Wochen destillieren zu können, wird ein Massenfluss von 3 kg/h benötigt.
- Bei der Destillation sollen 99% des genutzten Xenons zurückgewonnen und als Detektormaterial verwendet werden und nur 1% als mit Krypton angereichertes Off-Gas gespeichert werden.

3. Die kryogene Destillationssäule

Dieses Kapitel umfasst das Prinzip und den Aufbau der kryogenen Destillationssäule zur Trennung von Xenon und Krypton im Institut für Kernphysik in Münster. Die einzelnen Teile der Säule werden hinsichtlich der Relevanz für diese Arbeit erläutert und die Steuerung per LabView basierter Slowcontrol wird kurz beschrieben. Anschließend werden verschiedene Möglichkeiten zur Überprüfung der Separationseffizienz der Säule vorgestellt. Zuletzt werden die Tests der Kühlleistung der verwendeten Kälteköpfe dargestellt, woraus sich Rückschlüsse auf eine mögliche Destillation von Argon und Radon ziehen lassen.

3.1. Prinzip der kryogenen Destillation

Das Prinzip der Trennung von Xenon und Krypton wird im Folgenden beschrieben. Die Trennung per Destillation wird durch die unterschiedlichen Dampfdrücke von Xenon und Krypton möglich. Weil Krypton einen höheren Dampfdruck als Xenon hat - vgl. Abbildung 3.1 -, ist in einem 2-Phasen-Xenon-Krypton-Gemisch aufgrund des höheren Partialdrucks die Krypton-Konzentration in der Gasphase höher als in der Flüssigphase. Dies wird auch als einzelne theoretische Trennstufe bezeichnet. Das Prinzip einer kryogenen, mehrstufigen Destillationssäule besteht darin, dass mehrere theoretische Trennstufen hintereinander geschaltet werden.

Im Sumpf der Säule wird flüssiges Xenon verdampft. Darüber befinden sich die theoretischen Trennstufen. Der aufsteigende Dampf mit erhöhter Krypton-Konzentration kondensiert dabei in der nachfolgenden Stufe und hat somit einen höheren Krypton-Anteil als die Flüssigphase im Fuß der Säule. Durch wiederholtes Verdampfen und Kondensieren in den nachfolgenden Stufen wird die Krypton-Konzentration damit weiter erhöht und somit der Trennfaktor verstärkt. Dies ist schematisch in Abbildung 3.1 gezeigt. Kondensation oben im Kopf der Säule, inklusive des teilweisen Rückflusses in diese, führt zu einem kontinuierlichen Kreislauf des Prozesses, der Rektifikation genannt wird. Dabei kann fortwährend neues Gas zur Destillation eingelassen werden sowie gereinigtes (zum Großteil von Krypton befreites) Xenon aus dem Sumpf der Säule entnommen werden. Ein kleiner Teil fällt am Kopf der Säule als Gas mit erhöhter Krypton-Konzentration an.

Die benötigte Anzahl theoretischer Trennstufen für einen gewünschten Separationsfaktor von 10^4 - 10^5 lässt sich standardmäßig nach dem McCabe-Thiele-Verfahren bestimmen [Mur14a]. Die technische Realisierung erfolgt mit sogenanntem Packungsmaterial, das entsprechend einem

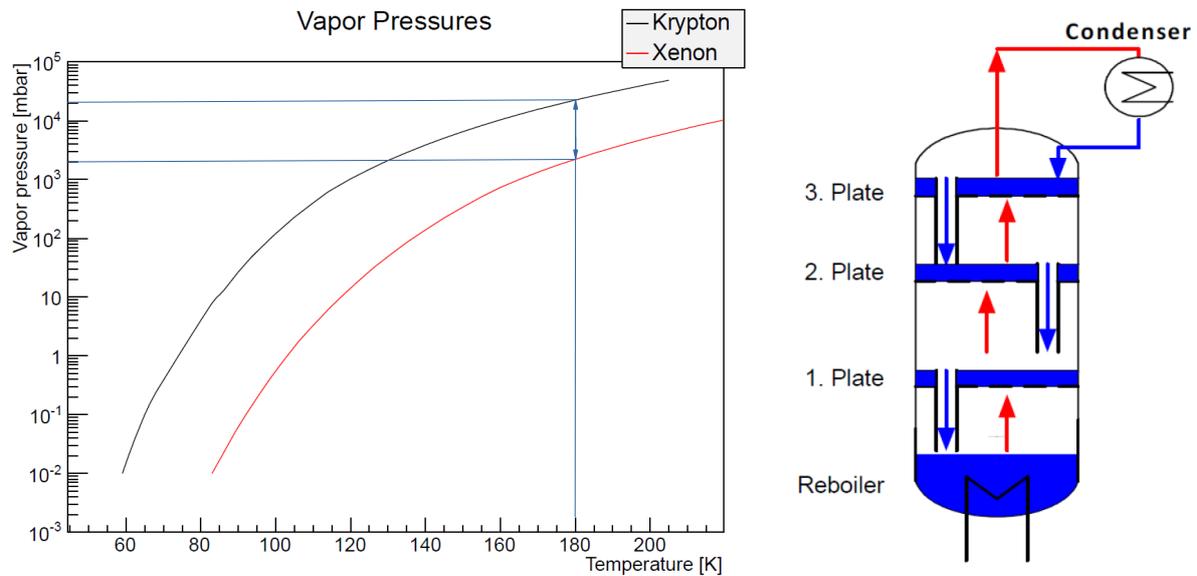


Abbildung 3.1.: Links: Dampfdrücke von Xenon (rot) und Krypton (schwarz) [Bro13]. Der Dampfdruckunterschied bei einer Betriebstemperatur von 180 K ist markiert. Rechts: Schema einer kryogenen Destillationssäule. Die Anzahl theoretischer Trennstufen der 5m-Säule ist größer. Quelle (rechts): C. Huhmann, IKP Münster

HETP-Wert (Height Equivalent for one Theoretical Plate) für die Anzahl theoretischer Trennstufen sorgt und in Abschnitt 3.2.2 genauer beschrieben wird. Im nachfolgenden Abschnitt wird der technische Aufbau der Säule näher erläutert.

3.2. Aufbau der Säule

Die Entwicklung und der Bau der Säule wurde in zwei Phasen unterteilt. Zunächst wurde eine Testsäule von insgesamt 3 m Höhe entwickelt und aufgebaut, an der die Funktionsweise der kryogenen Destillation erfolgreich getestet wurde [Ros14a]. Anschließend wurde die Säule auf eine Gesamthöhe von 5 m erweitert, wobei im Wesentlichen der mittlere Teil verlängert wurde, um so die theoretisch berechneten Designvorgaben zu erfüllen. Die Messungen zu dieser Arbeit fanden während des Aufbaus und den anschließenden Tests der 5 m-Säule statt.

Der Aufbau der Säule lässt sich entsprechend in drei Teile gliedern: den Fuß der Säule, den Mittelteil mit Packungsmaterial und den Kopf der Säule. Im Folgenden werden die für die Arbeit relevanten Teile und Funktionen erläutert. Eine detailliertere Beschreibung ist in [Mur14a] zu finden.

3.2.1. Fuß der Säule: Reboiler, Preseparator und Wärmetauscher

Den Fuß der Säule zeigt Abbildung 3.2. Die größte Komponente ist der Reboiler (Verdampfer) - ein Becken, in dem sich das gereinigte flüssige Xenon sammelt. Zur Verdampfung sind in den Wänden elektrisch betriebene Heizpatronen installiert. Am Boden des Beckens kann sauberes, flüssiges Xenon über eine Leitung entnommen werden. Diese ist über einen Wärmetauscher mit der Gas-In-Leitung des von außen kommenden, warmen, ungereinigten Gases verbunden und kühlt dieses. Das ungereinigte Gas fließt zur weiteren Kühlung in den Preseparator (Vortrenner). In diesem kleineren Becken wird das Gas mithilfe eines Kaltkopfs Coolpower (CP) 50 der Firma Leybold gekühlt und kondensiert. Dieser wird in Abschnitt 3.5 näher beschrieben. Der Kaltkopf ist thermisch mit einem OFHC-Kupferblock (oxygen free high thermal conductivity) mit Lamellen-Struktur im Inneren verbunden, an dem das Gas kondensiert. Da aufgrund der Trennung von Gas- und Flüssigphase hier eine erste Destillation stattfindet, entspricht dies einer einzelnen Trennstufe und wird deshalb als Preseparator bezeichnet. Am Kupferblock können sich andere, in geringer Konzentration vorhandene, leichter zu verdampfende Edelgase wie z. B. Argon und Helium ablagern und als Isolierschicht die Kühlung behindern. Um diesem sogenannten Blanket-Effekt vorzubeugen, werden mögliche Ablagerungen durch eine Bohrung im Kupferblock über eine Viertelzoll-Leitung (äußerer Rohrdurchmesser = 1/4 Zoll) abgesaugt. Diese Leitung

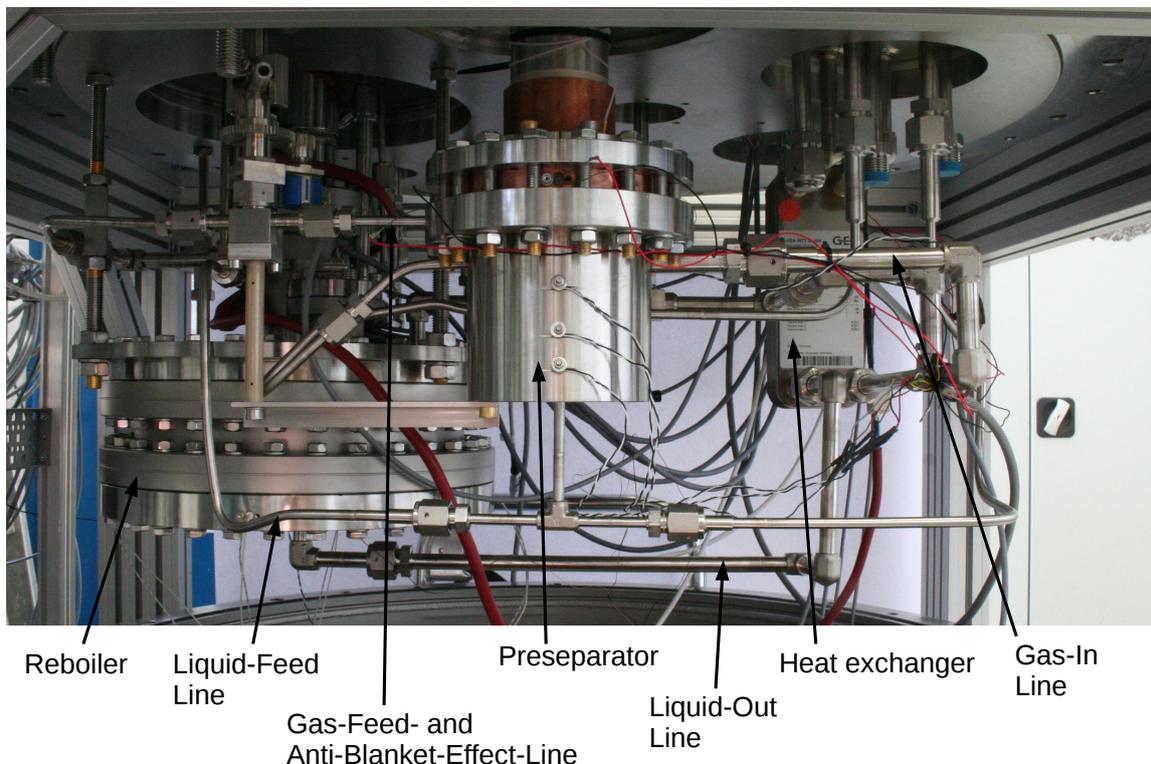


Abbildung 3.2.: Fuß der Säule ohne Isolierkessel. Zu sehen sind Reboiler, Preseparator und Wärmetauscher sowie diverse weitere Leitungen und Verkabelungen.

bietet auch die Möglichkeit einer gasförmigen Einspeisung des Xenons am Kopf der Säule. Das am Boden des Preseparator verflüssigte Xenon kann mit Überdruck in einer weiteren Viertelzoll-Leitung nach oben gedrückt und in den Mittelteil der Säule eingespeist werden. Der Fuß der Säule befindet sich in einem Stahlbecken von 750 mm Durchmesser für ein Isoliervakuum.

3.2.2. Mittelteil der Säule: Packungsrohr, Liquid Feed-Ports und Analyse-Ventile

Der Mittelteil besteht aus einem ca. 3 m hohen Rohr, das sich an den Reboiler anschließt. In ihm befindet sich das Packungsmaterial vom Typ Ex der Firma Sulzer. Das Geflecht aus Edelstahl stellt eine große Oberfläche zur Verfügung, an dem das verflüssigte Xenon hinabläuft. Dadurch wird der Austausch mit entgegenkommenden Teilchen aus dem aufsteigenden Gasstrom begünstigt und somit die Separation weiter verstärkt. Parallel dazu verlaufen mehrere Leitungen, wie etwa die schon erwähnte Leitung für die Einspeisung von flüssigem Xenon in das Packungsrohr. Die Einspeisung ist an 6 verschiedenen Stellen - den sogenannten Liquid-Feed-Ports - in unterschiedlicher Höhe mithilfe von manuellen Ventilen möglich. Neben dieser Liquid-Feed-Leitung verläuft eine Analyse-Leitung mit ebenfalls 6 identischen Ventilen an den selben Höhen. Damit können während der Destillation Proben entnommen werden, um die Zusammensetzung des Gases zu überprüfen. Vor den Analyse-Ventilen ist jeweils eine Blende mit 1 mm Durchmesser und 5 mm Länge installiert. Diese sollen verhindern, dass durch Öffnen der Ventile das Gleichgewicht der Krypton-Konzentration innerhalb der Säule und somit der Destillationsprozess gestört wird. In Kapitel 5 wird das Verhalten und die Funktionsweise der Blenden bei Gasdurchfluss untersucht. Abbildung 3.3 zeigt einen Abschnitt des Packungsrohrs inklusive eines Liquid-Feed-Ports und eines Analyse-Ventils. Die thermisch isolierte Bedienung der Ventile erfolgt von außen über

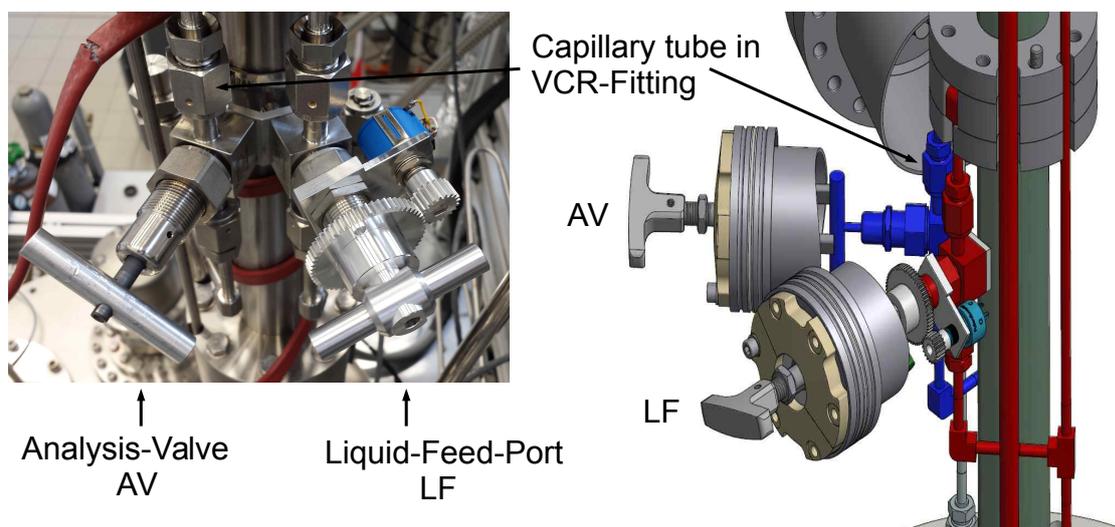


Abbildung 3.3.: Links: Analyse-Ventil und Liquid-Feed-Port vor Installation des Isolierrohrs. Rechts: Teil des Packungsrohrs (grün) mit Analyse-Ventil und Analyse-Leitung (blau) sowie Liquid-Feed-Port und Liquid-Feed-Leitung (rot) inklusive thermisch isoliertem Bedienelement. Quelle (rechts): Technische Zeichnung von C. Huhmann, IKP Münster.

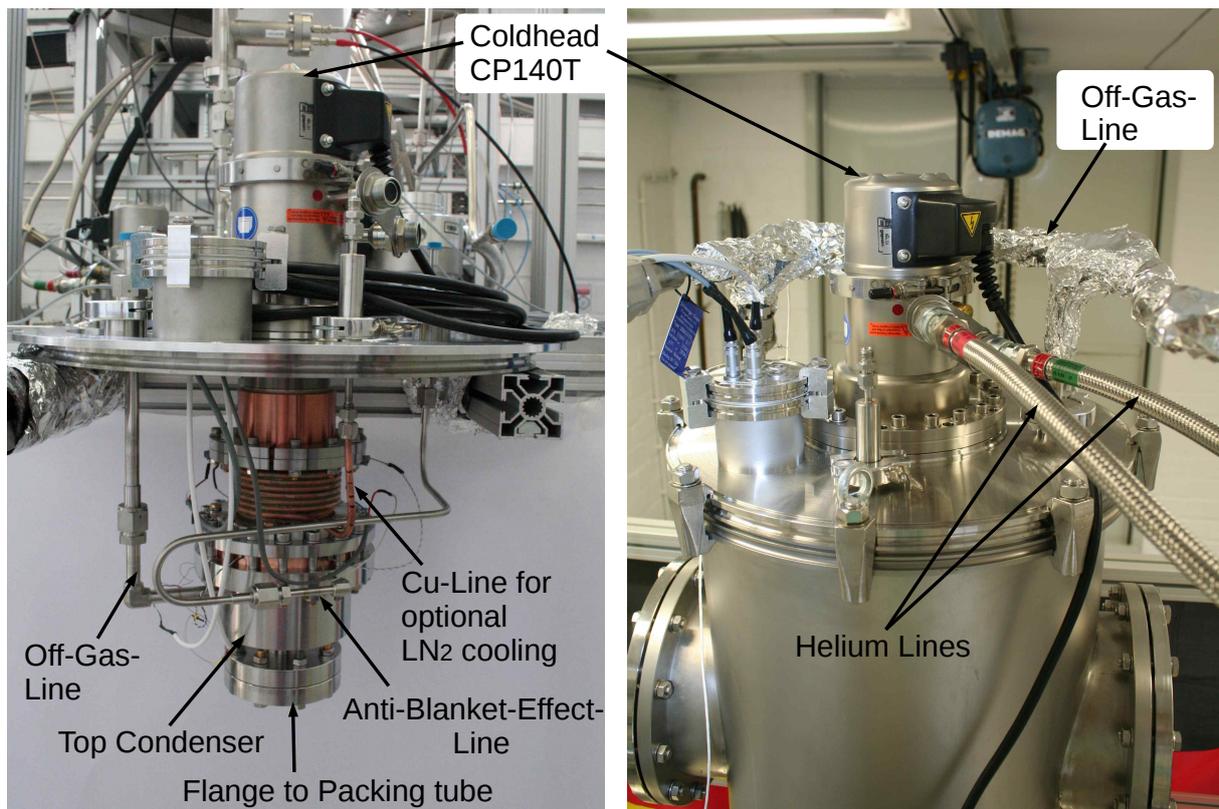


Abbildung 3.4.: Kopf-Teil der Säule vor der Installation ohne Isolierkessel (links) und installiert auf der Säule (rechts). Zu sehen sind der Kaltkopf, Top Condenser sowie diverse Leitungen.

speziell angefertigte Edelstahlgabeln. Der Mittelteil befindet sich in einem Stahlrohr von 259 mm Durchmesser für das Isoliervakuum.

3.2.3. Kopf der Säule: Top Condenser

Das Kopfteil der Säule vor der Installation und ohne Isolierkessel sowie die fertige Installation sind in Abbildung 3.4 gezeigt. Der Top Condenser (Kondensator) des Kopfteils ist über einen Bellow (Federungskörper) mit dem Packungsrohr des Mittelteils verbunden. Er ähnelt in der Bauweise dem Preseparator, ist jedoch größer. Auch der verwendete Kaltkopf CP140T der Firma Oerlikon Leybold Vacuum ist größer und erreicht laut Hersteller eine größere Kühlleistung von bis zu 260 W bei 178 K [Ley11]. Die Kaltköpfe und ihre Funktionstests werden in Abschnitt 3.5 näher behandelt. Im Inneren der Säule wird mit dem Kaltkopf wiederum ein Kupferblock mit Lamellen-Struktur gekühlt, an dem das aufsteigende Gas kondensieren und zurückgeführt werden kann. Eine spiralförmige Kupferleitung verläuft zudem um das Verbindungsstück zwischen Kaltkopf und Kupferblock, um im Bedarfsfall eine weitere Kühlung mit flüssigem Stickstoff zu ermöglichen. Über eine Leitung aus dem Top Condenser werden schließlich ca. 1 % des Xenons als Off-Gas - das Gas mit erhöhter Krypton-Konzentration - sowie weitere Edelgase, die den

Blanket-Effekt hervorrufen könnten, abgeführt und in einer Gasflasche gelagert. Abbildung 3.5 zeigt ein Foto der kompletten Säule.

3.3. Steuerung der Säule

Die Säule wird mit einer LabView basierten Slowcontrol (Prozesssteuerung) gesteuert. Mithilfe verschiedener Druck- und Temperatursensoren erfolgt über die Heizpatronen in Top Condenser und Reboiler eine Proportional-Integral-Derivative (PID) Regelung. Die effektive Kühlleistung wird durch Heizen reguliert - entweder am Kopf oder am Fuß der Säule. Dadurch kann das System auf eine konstante Temperatur oder einen konstanten Druck geregelt werden. Die Regelung der Flüsse (Flows) erfolgt über Flowcontroller (Flussregler) der Firma MKS Instruments vom Typ 1479B. Der an der Gas-In-Leitung installierte Flowcontroller hat einen Regelbereich bis maximal 20 slpm (Standardliter pro Minute). An der Off-Gas-Leitung sind zwei Flowcontroller mit maximal 10 slpm bzw. 0,1 slpm angebracht. Ein vierter Flowcontroller befindet sich an der Liquid-Out-Leitung mit maximal 20 slpm.

3.4. Methoden zur Überprüfung der Separation von Xenon und Krypton

Zur Bestimmung der Separations-Effizienz der Destillationssäule sind verschiedene Methoden entwickelt worden, um Krypton in Xenon nachzuweisen. Bei einer in Münster entwickelten Methode wird Krypton mit einem Residual-Gas-Analyzer (RGA) und einer zusätzlichen Kältefalle detektiert. Damit können Krypton-Konzentrationen in der Größenordnung von ppt gemessen werden [Bro13]. Eine zweite in Münster entwickelte ^{83m}Kr Tracer Methode nutzt aus einer ^{83}Rb -Quelle stammendes radioaktives ^{83m}Kr . Damit wird das Xenon während der Destillation gedopt und die Separations-Effizienz aus den Zerfallsraten des ^{83m}Kr an Gas-In-, Off-Gas- und Liquid-Out-Leitung bestimmt [Ros14b]. Weitere Möglichkeiten zur Analyse der entnommenen Proben bietet an der Columbia University ein Atom Trap Trace Analysis (ATTA) System [Apr13] und am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg ein gaschromatographisches System mit Massenspektrometer [Lin14].

3.5. Funktionstests der Kalkköpfe an Top Condenser und Preseparator

Der Top Condenser und Preseparator werden wie bereits erwähnt mit einstufigen Kalkköpfen der Firma Oerlikon Leybold Vacuum betrieben. Die Kalkköpfe CP50 und CP140T arbeiten nach dem Gifford-McMahon-Verfahren. Dabei wird Helium in einem Kompressor verdichtet und im Kalkkopf entspannt, was zur Kühlung führt. Bei den Betriebsbedingungen der Säule von ca.

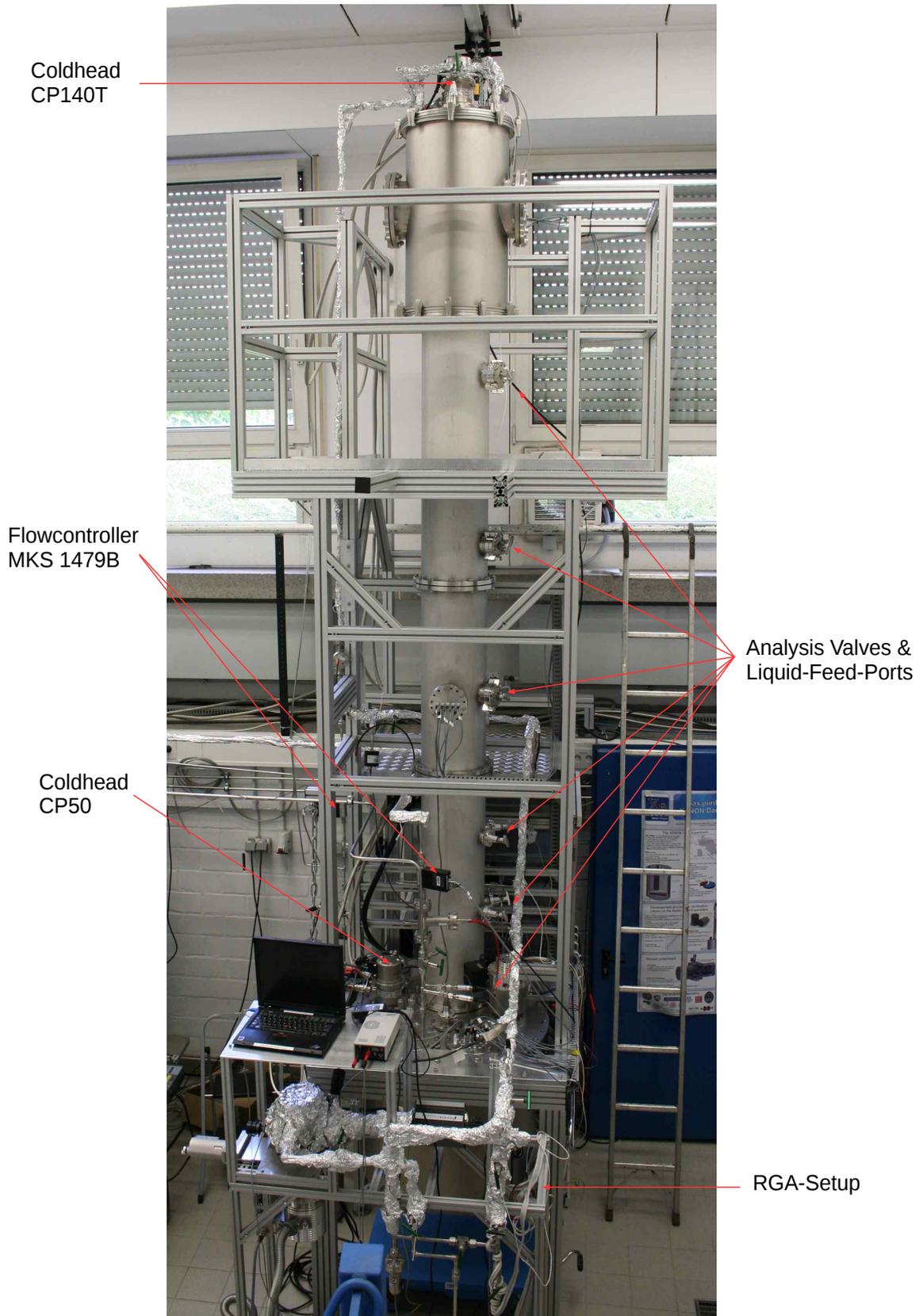


Abbildung 3.5.: Die kryogene Destillationssäule. Im Vordergrund zu sehen ist der RGA-Aufbau zur Analyse der Krypton-Konzentration.

2 bar und 163 K bis 183 K (-110° bis -90° C) beträgt die maximal benötigte Kühlleistung 150 W im Top Condenser zum Kondensieren des aufsteigenden Gases bei einem maximalen Massenfluss von 5,73 kg/h [Mur14a]. Die Kühlleistung im Betriebsbereich der Säule an der Siedetemperatur von Xenon bei ca. 178 K wurde dort aus Herstellerangaben [Ley11] auf ca. 260 W abgeschätzt. Zur Regulierung der Temperatur sind in beiden Kaltköpfen Heizpatronen installiert, deren Heizleistung abgelesen werden kann. Die Kühlleistung lässt sich bestimmen, wenn man die Temperatur mithilfe der Slowcontrol über die Heizpatronen reguliert, welche dabei gegen die Kühlung anheizen. Die PID-Regulierung führt zu Oszillationen um die eingestellte Temperatur, die nach ca. 20 min abgeklungen sind. Wenn sich die Temperatur nicht mehr ändert, entspricht im Isoliervakuum von ca. 10^{-6} mbar die effektive Kühlleistung des Kaltkopfs der Heizleistung der Heizpatronen.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurden in Zusammenarbeit mit Michael Murra durchgeführt, der Teile der Ergebnisse für eigene Veröffentlichungen verwenden kann.

3.5.1. Kühlleistung des Kaltkopfs CP140T am Top Condenser

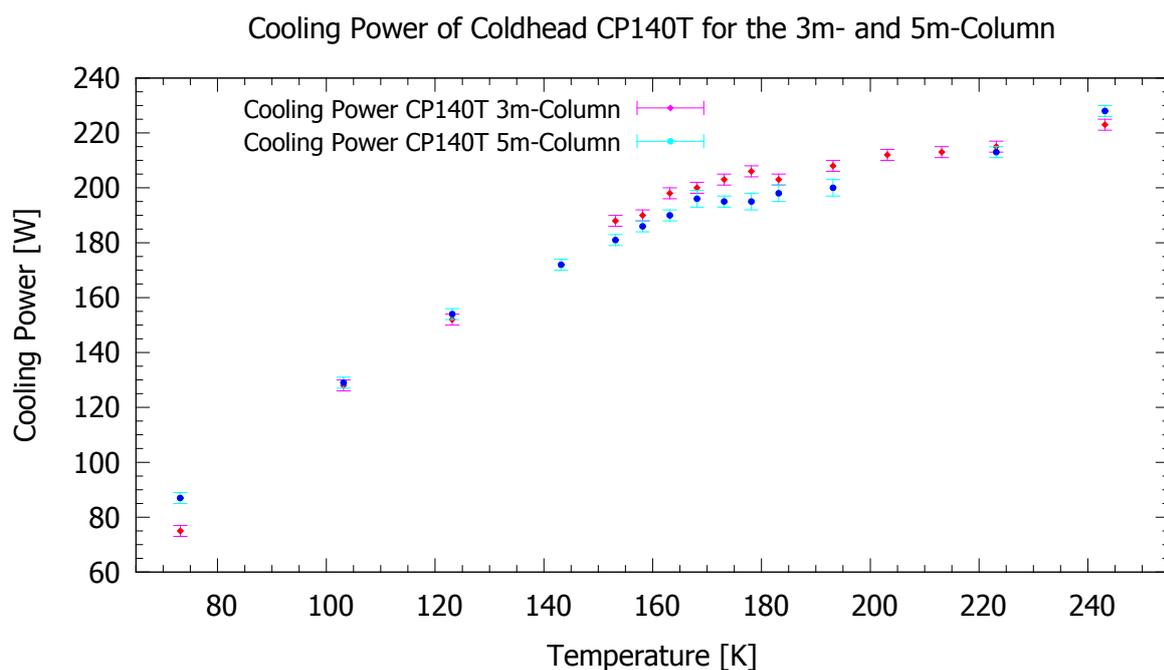


Abbildung 3.6.: Kühlleistung des Kaltkopfs CP140T am Top Condenser für die 3m-Säule (rot) und 5m-Säule (blau) - Im relevanten Bereich zwischen 163 und 183 K ist die Kühlleistung an der 5m-Säule 4-11 W geringer.

Für Temperaturen von -30° C (73,15 K) bis -200° C (243,15 K) wurde die Kühlleistung des Kaltkopfs CP140T wie im letzten Abschnitt beschrieben bestimmt. Abbildung 3.6 zeigt die Ergebnisse der hier durchgeführten Messung im Vergleich mit Ergebnissen einer Messung nach

dem selben Prinzip von M. Murra für die 3m-Säule [Mur14a]. Die geschätzte Unsicherheit der Kühlleistung ergibt sich aus Fluktuationen auf der Anzeige der Heizleistung. Die Schwankungen der Temperatur um $< 10^{-2}$ K werden vernachlässigt.

Die Kühlleistung an der 5m-Säule liegt im relevanten Bereich zwischen 163 und 183 K im Bereich von 190-200 W. Dies ist zwischen 4 und 11 W niedriger als an der 3m-Säule. Die benötigten 150 W werden aber nicht unterschritten. Die Verringerung der Leistung gegenüber der 3m-Säule kann durch die größere Masse und größere Oberfläche des zu kühlenden Materials erklärt werden. Der generelle Leistungsverlust von ca. 60 W gegenüber dem geschätzten theoretischen Wert von 260 W wurde in dieser Arbeit nicht weiter untersucht.

3.5.2. Kühlleistung des Kältekopfs CP50 am Preseparator

Die Kühlleistung des Kältekopfs CP50 am Preseparator wurde analog zu der im letzten Abschnitt beschriebenen Kühlleistung des Kältekopfs CP140T am Top Condenser bestimmt. Die Ergebnisse der Messung zeigt Abbildung 3.7. Die Messunsicherheiten ergeben sich wiederum aus den Fluktuationen der Anzeige der Heizleistung. Im relevanten Temperaturbereich beträgt die Kühlleistung ca. 90 W.

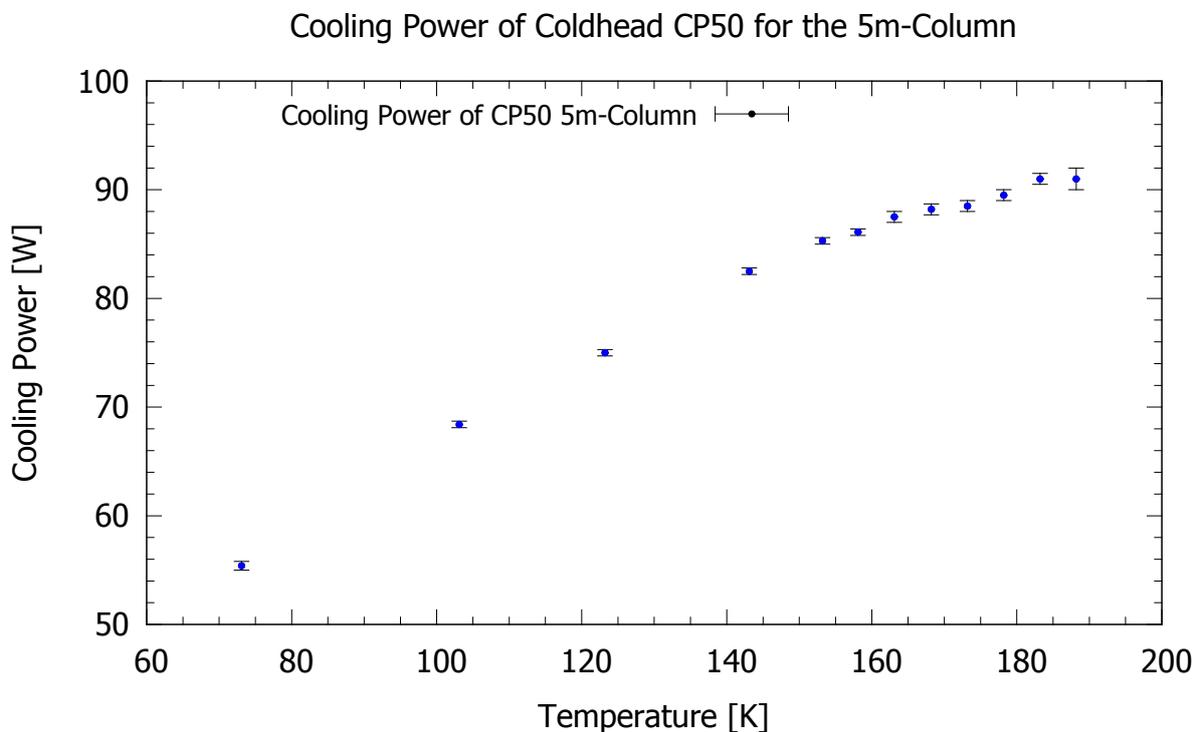


Abbildung 3.7.: Kühlleistung des Kältekopfs CP50 am Preseparator für die 5m-Säule. Bei 178 K beträgt die Kühlleistung ca. 89 W.

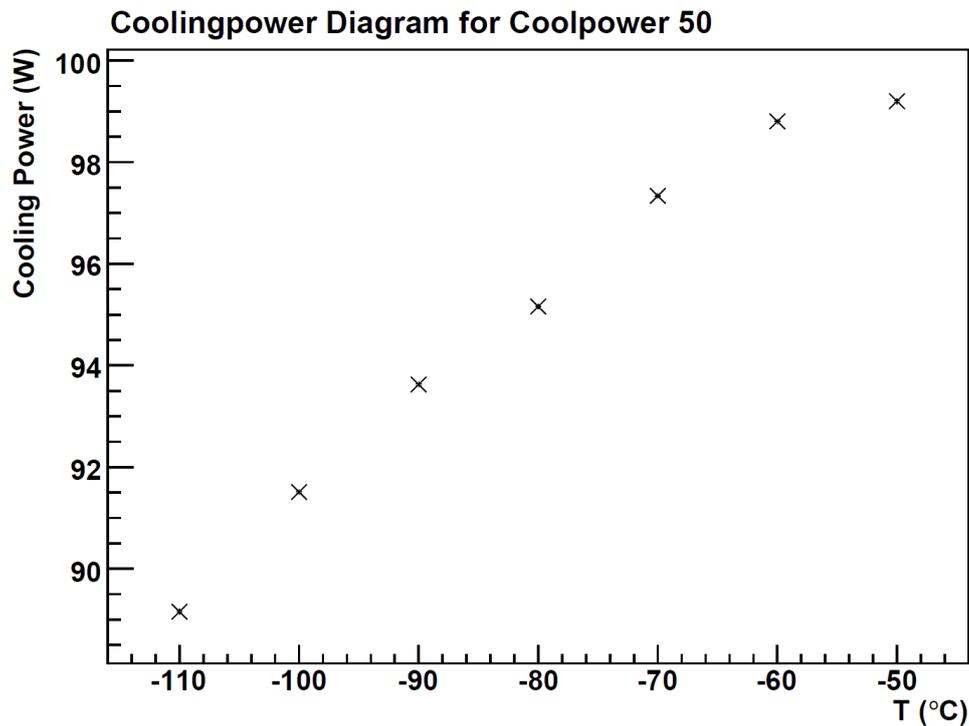


Abbildung 3.8.: Kühlleistung eines anderen Kaltkopfs CP50 an der TPC in Münster, der einen identischen Kupferblock zur Kühlung nutzt [Sch11].

Die Ergebnisse können mit Messungen von J. Schulz an einem Kaltkopf vom selben Typ an einer TPC in Münster in Abbildung 3.8 verglichen werden [Sch11]. Die Kühlleistung liegt im sich überschneidenden Messbereich 1,5-2,5 W oberhalb der Messung am Preseparator. Die Abweichung der Kühlleistung nach oben kann durch die unterschiedliche Montage der Kaltköpfe erklärt werden.

Aus der noch zur Verfügung stehenden Kühlleistung am Preseparator der Säule von $P \approx 89 \text{ W} = 320 \text{ kJ/h}$ am Siedepunkt des Xenons bei ca. 178 K lässt sich der maximal zu verflüssigende Massenfluss \dot{m} bestimmen. Die benötigten Werte wurden [NIST] entnommen. Zunächst wird ein Teil der Kühlleistung P_{CD} zum Herunterkühlen um $\Delta T = 115 \text{ K}$ von 293 K auf 178 K benötigt. Aufgrund der geringen Änderung der Wärmekapazität wird für diese ein gemittelter Wert von $c_p = 0,17 \text{ kJ/kgK}$ angenommen. Anschließend wird der Rest der Kühlleistung P_L zum Verflüssigen des Xenons anhand der Enthalpiedifferenz Δh benötigt. Bei $p = 2 \text{ bar}$ beträgt die Enthalpie in der Gasphase $h_g = 4,4 \text{ kJ/kg}$ und in der Flüssigphase $h_l = 96,9 \text{ kJ/kg}$.

Der maximale Massenfluss wird wie folgt berechnet:

$$\begin{aligned}
 P_{CD} &= \dot{m} \cdot c_p \Delta T & \text{und} & & P_L &= \dot{m} \cdot \Delta h \\
 P &= P_{CD} + P_L \\
 \Rightarrow P &= \dot{m} \cdot (c_p \Delta T + \Delta h) \\
 \Rightarrow \dot{m} &= \frac{P}{c_p \Delta T + \Delta h} & & & & (3.1) \\
 &= \frac{320 \text{ kJ/h}}{0,17 \text{ kJ/kgK} \cdot 115 \text{ K} + 96,9 \text{ kJ/kg} - 4,4 \text{ kJ/kg}} = 2,86 \text{ kg/h}.
 \end{aligned}$$

Die Kühlung durch den Kaltkopf CP50 im Preseparator ermöglicht es also allein, einen Massenfluss von 2,86 kg/h zu verflüssigen. Durch die schon vorher erfolgte Abkühlung des Gases im Wärmetauscher wird eine Verflüssigung von Massenflüssen $> 3 \text{ kg/h}$ möglich.

3.6. Argon-Radon-Destillation

Zur Reduktion des Untergrundes im XENON-Experiment muss wie in Abschnitt 2.3 beschrieben auch die Radon-Konzentration im Xenon gesenkt werden. Das Edelgas Radon ist im Gegensatz zu Krypton schwerer als Xenon. Wenn Radon und Xenon per kryogener Destillation getrennt werden können, entspräche dies einem umgekehrten Betrieb der Säule, bei dem die Radonkonzentration in der Flüssigphase am Fuß steigen sollte und gereinigtes Xenon am Kopf der Säule entnommen werden könnte. Ob dies mit der Destillationssäule in Münster möglich ist, wird derzeit untersucht.

Am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg wurde eine Mobile Radon-Extraktions-Anlage (MoREx) entwickelt, mit welcher die Radon-Konzentration gemessen werden kann. Diese Anlage kann Radon jedoch besser in Argon als in Xenon nachweisen. Deshalb könnte man die Trennung von Radon mit Argon simulieren, das wie Xenon leichter als Radon ist.

Für eine mögliche Argon-Radon-Destillation ist die Kühlleistung im Bereich des Siedepunkts von Argon um eine Temperatur von 94 K bei einem Druck von 2 bar relevant. Am Preseparator lässt sich die Kühlleistung anhand von Abbildung 3.7 im Bereich um 94 K auf $60 \text{ W} = 216 \text{ kJ/h}$ konservativ nach unten abgeschätzt. Eine analoge Rechnung zu (3.1) für den zu verflüssigenden Massenfluss ergibt für die Abkühlung von 293 K auf 94 K bei 2 bar mit der Enthalpiedifferenz $\Delta h = 156 \text{ kJ/K}$ und der sich nur geringfügig ändernden Wärmekapazität $c_p = 0,59 \text{ kJ/kgK}$:

$$\begin{aligned}
 \dot{m} &= \frac{P}{c_p \Delta T + \Delta h} & & & & (3.2) \\
 &= \frac{216 \text{ kJ/h}}{0,59 \text{ kJ/kgK} \cdot 199 \text{ K} + 156 \text{ kJ/kg}} \\
 &= 0,79 \text{ kg/h}
 \end{aligned}$$

Die benötigten Werte wurden [NIST] entnommen.

Es kann also mindestens ein Fluss von 0,79 kg/h verflüssigt werden. Dies ist ausreichend für einen möglichen Destillationsbetrieb. Am Kalkopf des Top Condensers lässt sich die dortige Kühlleistung in Abbildung 3.6 auf 100 W konservativ nach unten abschätzen. Daraus ergeben sich die möglichen Flüsse innerhalb der Säule während der Destillation. Von technischer Seite ist eine Argon-Radon-Destillation an der Säule möglich [Mur14b].

4. Volumenbestimmung und Flowcontroller-Überprüfung

Dieses Kapitel umfasst die Bestimmung von Volumina in einem Gassystem sowie die Bestimmung von Gasmengenströmen an Flowcontrollern. Die Messprinzipien und theoretischen Grundlagen werden kurz vorgestellt. Anschließend werden die Messungen und Ergebnisse der Volumenbestimmung präsentiert. Zuletzt werden die Gasmengenströme am Flowcontroller der Off-Gas-Leitung (bis 0,1 slpm) sowie am Flowcontroller der Gas-In-Leitung (bis 20 slpm) bestimmt und mit den eingestellten Werten verglichen.

4.1. Messprinzipien und theoretische Grundlagen

Bei idealen Gasen gilt die Zustandsgleichung

$$p V = N k_B T. \quad (4.1)$$

Dabei bezeichnet p den Druck, V das Volumen, N die Teilchenzahl, k_B die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur. Die Messprinzipien und theoretischen Grundlagen werden ausgehend von dieser Gleichung im Folgenden erläutert.

4.1.1. Näherung als Ideales Gas und Gasmengenstrom

Einatomige Gase wie Xenon können im Allgemeinen als ideales Gas betrachtet werden, weil ihre Ausdehnung klein gegenüber der mittleren freien Weglänge ist. Darüber hinaus ist die ideale Näherung eines Gases zulässig, wenn die Temperatur T groß gegenüber der kritischen Temperatur T_c oder der Druck p klein gegenüber dem kritischen Druck p_c ist [Jou06]. Der kritische Punkt bezeichnet den Zustand, oberhalb dessen sich die Dichte von Flüssig- und Gasphase gleichen und eine Unterscheidung derselben verhindern. Für Xenon beträgt der kritische Druck $p_c = 58,4$ bar [NIST]. Für alle vorkommenden Messbereiche von 0-2,5 bar ist die Näherung somit zulässig.

Der Gas-Fluss (Flow) durch ein Rohr kann als Gasmengenstrom Q_{pV} angegeben werden. Im Gegensatz zum reinen Volumenstrom $\dot{V} = \frac{\partial V}{\partial t}$ berücksichtigt der auch als pV-Durchfluss bezeichnete Strom $Q_{pV} = p \frac{\partial V}{\partial t}$ den vorherrschenden Druck und somit die strömende Gasmenge.

Die gebräuchliche Einheit von Q_{pV} ist Standardliter-pro-Minute (slpm):

$$1 \text{ slpm} = \frac{1013,25 \text{ mbar} \cdot 1 \text{ l}}{1 \text{ min}} \quad \text{bei } T = 273,15 \text{ K.} \quad (4.2)$$

1 slpm bezeichnet somit den Gasmengenstrom, der unter Normbedingungen dem Volumenstrom von 1 l/min entspricht.

Ist der Gasmengenstrom nicht isobar, sondern isochor, indem z. B. Gas in ein konstantes Volumen einströmt, lässt sich in idealer Näherung Q_{pV} bei konstanter Temperatur auch über die Druckänderung angeben:

$$Q_{pV} = V \frac{\partial p}{\partial t}. \quad (4.3)$$

Anhand dieses Zusammenhangs kann in Abschnitt 4.3 der Gas-Fluss berechnet und somit die Regelung durch den Flowcontroller überprüft werden.

4.1.2. Volumenbestimmung nach $pV=\text{const}$

In Gassystemen ist es im Allgemeinen hilfreich die auftretenden Volumina zu kennen, weil diese in vielen Größen und Berechnungen eine Rolle spielen. Für diese Arbeit werden bestimmte Volumina zur Überprüfung der Regelung eines Flowcontrollers in Abschnitt 4.3 sowie für die Leitwertbestimmung der Analyse-Ventile in Kapitel 5 benötigt.

Aufgrund von komplizierten Konstruktionen ist es nicht immer einfach, Volumina geometrisch zu bestimmen. Im vorliegenden Fall können Volumina ausgehend von der idealen Gasgleichung bestimmt werden. Das Messprinzip geht nun von einem abgeschlossenen System mit konstanter Teilchenzahl N aus, sowie davon, dass die Temperatur vor und nach der Messung identisch mit der Temperatur im Labor ist. Dann gilt in idealer Näherung bei einer Zustandsänderung von a nach b:

$$p_a V_a = p_b V_b = \text{const.} \quad (4.4)$$

Bei einem bekannten, gefüllten Ausgangsvolumen V_a lässt sich aus der Messung der Drücke vor und nach Veränderung des Volumens, das neue Volumen V_b bestimmen.

4.2. Bestimmung der Volumina

Im Folgenden werden die Messungen und Auswertungen zur Bestimmung der Volumina einer Messpipette und des Gesamtvolumens des Systems beschrieben, welche in Abschnitt 4.3 und Kapitel 5 für weitere Messungen benötigt werden. Die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurden in Zusammenarbeit mit Alexander Fieguth und Michael Murra durchgeführt, die Teile der Ergebnisse für ihre Veröffentlichungen verwenden können.

4.2.1. Das Volumen des Metallzylinders (V_3)

Als Ausgangsvolumen wurde ein Metallzylinder von $(25,0 \pm 0,1)$ cm äußerer Höhe und einem äußeren Grundflächendurchmesser von $(10,0 \pm 0,2)$ cm verwendet. An dessen Boden sind zwei Swagelok VCR[®]-Halbzoll-Fittinge angeschweißt, die mit Blindflanschen verschlossen wurden. An der Oberseite ist ein Halbzoll-Fitting angeschweißt, über den der Zylinder an das Gassystem angeschlossen werden kann. Abbildung 4.1 zeigt ein Foto des Zylinders vor der Installation.



Abbildung 4.1.: Metallzylinder (V_3) inklusive eines manuellen Ventils an einem der zwei am Boden angeschweißten Fittinge.

Das Volumen des Metallzylinders inklusive Fittinge wurde per Wägung bestimmt. Mit einer Waage wurde zunächst die Masse des leeren Zylinders und danach die Masse des mit deionisiertem Wasser gefüllten Zylinders gemessen. Die Einzelmessungen wurden je drei mal durchgeführt. Die Wassertemperatur betrug $(22 \pm 1)^\circ\text{C}$. Daraus folgt eine Wasserdichte von $\rho_{\text{H}_2\text{O}, 22^\circ\text{C}} = 0,9974 \text{ g/ml}$ [Jun11]. Aus dem Mittelwert der Wassermasse berechnet sich das Volumen des Metallzylinders über $V = m/\rho$ zu $V_{3\text{w}} = (1815 \pm 3) \text{ ml}$. Die Unsicherheit ergibt sich aus der Standardabweichung (1σ) der dreimaligen Messung der Wassermasse. Der Fehler der Dichte $\rho_{\text{H}_2\text{O}, 22^\circ\text{C}}$ sowie die Messgenauigkeit der Waage $\pm 0,1 \text{ g}$ wurde vernachlässigt. Als Gegenprobe wurde das Volumen des Zylinders per Füllung mit Wasser aus Standzylindern überprüft. Diese Einzelmessung ergab $V_{3\text{sz}} = (1816 \pm 7) \text{ ml}$, wobei die Abweichung aus der Messgenauigkeit der Standzylinder resultiert. Für die späteren Auswertungen wurde der Wert der Wägungsmessung verwendet.

4.2.2. Volumen der Messpipette (V_1) und Gesamtvolumen (V_{123})

Den Messaufbau zur Bestimmung der Volumina mit dem oben beschriebenen Prinzip aus der Annahme $pV = \text{const.}$ zeigt Abbildung 4.2. Das Ziel der Messungen war die Bestimmung des Volumens einer Messpipette (V_1) und des Gesamtvolumens $V_1 + V_2 + V_3 = V_{123}$. Die Messpipette hat eine Länge von $(70 \pm 1) \text{ cm}$ und besteht aus einer Halbzoll-Leitung und vier darin integrierten manuellen Ventilen. Das Volumen (V_2) besteht aus den verbindenden Rohrleitungen. Der Druck

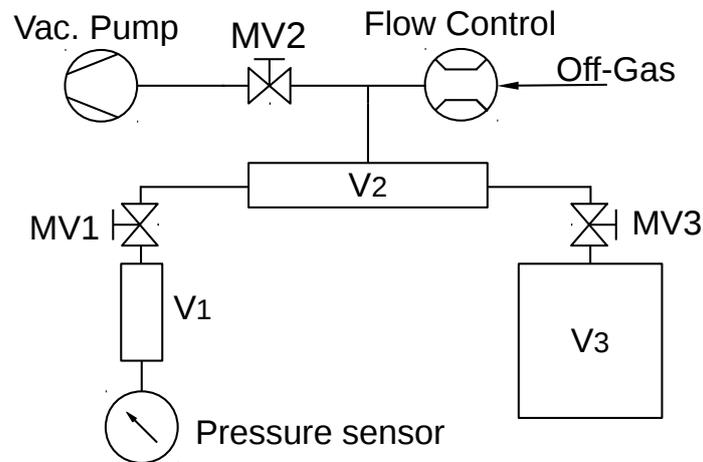


Abbildung 4.2.: Messaufbau zur Bestimmung der Volumina V_1 und V_{123} , sowie zur Überprüfung des Flowcontrollers der Off-Gas-Leitung (bis 0,1 slpm). Der Druck wurde jeweils mit dem Sensor an V_1 gemessen. MV bezeichnet manuelle Ventile.

wurde mit einem Sensor des Typs Baratron[®] 121A der Firma MKS Instruments gemessen, der an V_1 angebracht ist. Dabei handelt es sich um einen Absolutdrucksensor mit einem Messbereich bis 10000 mbar, der den Druck in ein lineares Gleichspannungssignal von 0-10 V umwandelt. Die Genauigkeit beträgt 1 mbar (0,01% vom Endwert). Der Druck wurde am PC alle 5 Sekunden aufgezeichnet und muss vor der Messung im Vakuum auf Null eingestellt werden. Weil dies nicht exakt erfolgt ist, muss vor der Auswertung ein Offset abgezogen werden, der bei jeder Messung verschieden war. Die Lage des Sensors an V_1 ergibt, dass nur Messungen vorgenommen werden können, die dieses Volumen beinhalten. Das Messverfahren wird nun an einem Beispiel erläutert: Das Gesamtvolumen V_{123} wurde durch eine Vorpumpe und eine Turbo-Molekular-Pumpe (TMP) evakuiert. Dabei war das Vakuum am Turbopumpen-Eingang in der Größenordnung von 10^{-6} mbar. Aus diesem Grund werden die Vakuumdrücke in der Auswertung gleich Null gesetzt. Anschließend wurden die Volumina V_1 , V_2 und V_3 über den Flowcontroller (bis 0,1 slpm) durch die Off-Gas-Leitung bis zu einem Druck von (1995 ± 2) mbar gefüllt. Danach entsprach der ge-

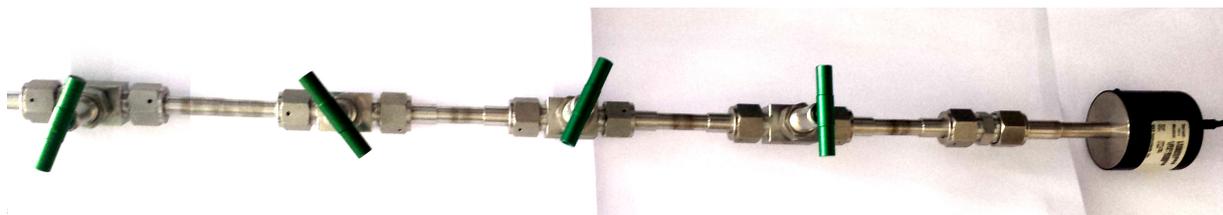


Abbildung 4.3.: Messpipette (V_1) mit vier manuellen Ventilen und rechts angebrachtem Druck-Sensor.

geschlossene Flowcontroller ohne Fluss einem geschlossenen Ventil. Nach Schließen von MV3 blieb der Druck in V_3 identisch mit dem gemessenen Anfangsdruck des Gesamtsystems ($P_3 = (1995 \pm 2)$ mbar), während in $V_1 + V_2 = V_{12}$ Vakuum erzeugt wurde ($P_{12} \approx 0$). Das Gas wurde danach (bei geschlossenem MV2) durch Öffnen von MV3 in das Vakuum in V_{12} expandiert, sodass sich in V_{123} der neue Druck $P_{123} \approx (1615 \pm 2)$ mbar einstellte. Daraus lässt sich das Volumen V_{12} wie folgt bestimmen:

$$\begin{aligned} pV &= \text{const} & \text{und} & & p_{12} &= 0 \\ \Rightarrow p_3 V_3 &= p_{123} \cdot (V_{12} + V_3) \\ \Rightarrow V_{12} &= \left(\frac{p_3}{p_{123}} - 1 \right) \cdot V_3 = (427 \pm 2) \text{ ml.} \end{aligned} \quad (4.5)$$

Die Messungen für V_{12} wurden mit verschiedenen Drücken drei mal durchgeführt. Mithilfe dieses Volumens kann man V_1 für eine analoge Messung von p_1 und p_{12} bei geschlossenem MV3 bestimmen. Der Restdruck in V_{12} betrug (nach einer anderen Einzelmessung) $p_{12} = (1612 \pm 2)$ mbar. Nach Schließen von MV1 wurde V_2 abgepumpt und anschließend das Gas von V_1 mit $p_1 = (1612 \pm 2)$ mbar in V_2 expandiert, sodass sich $p_{12} = (262 \pm 2)$ mbar einstellte.

$$\begin{aligned} pV &= \text{const} & \text{und} & & p_2 &= 0 \\ \Rightarrow p_1 V_1 &= p_{12} V_{12} \\ \Rightarrow V_1 &= \frac{p_{12}}{p_1} \cdot V_{12} = (69,0 \pm 0,5) \text{ ml.} \end{aligned} \quad (4.6)$$

Für V_1 erfolgten zwei Einzelmessungen. Die Druckwerte für die Auswertung ergeben sich aus der Mittelung von Werten über einen Zeitraum konstanten Drucks minus dem jeweiligen Offset, wobei als Fehler die Standardabweichung (1σ) angenommen wird. Die Fehler der Volumina wurden nach Gauß'scher Fehlerfortpflanzung bestimmt. Dabei wurde der systematische Fehler von 1 mbar zunächst vernachlässigt. Der letztliche Wert folgt aus einem konstanten, gewichteten Fit über die 3 bzw. 2 Einzel-Messwerte mit Gnuplot nach der Methode der kleinsten Quadrate (least-squares). Die Unsicherheit folgt aus dem asymptotischen Standard-Fehler des Fits plus einer Abschätzung des im Allgemeinen in die selbe Richtung zeigenden systematischen Fehlers des Drucksensors. Dazu wurde die Zentralwert-Rechnung mit +1 mbar bzw. -1 mbar auf alle Druckwerte wiederholt und die Abweichung auf die statistische Unsicherheit addiert.

Die Ergebnisse der Volumenbestimmung zeigt Tabelle 4.1. Mit dem Ergebnis des Gesamtvolumens V_{123} wird im nächsten Abschnitt die Regelung des Flowcontrollers überprüft. Die Messpipette V_1 dient in Kapitel 5 als neues Ausgangsvolumen für eine weitere Volumenbestimmung.

Tabelle 4.1.: Ergebnisse der Volumenbestimmung.

Messpipette	V_1	(69 ± 1) ml
Rohrvolumen	V_2	(355 ± 3) ml
	V_{12}	(424 ± 3) ml
Metallzylinder	V_3	(1815 ± 3) ml
Gesamtvolumen	V_{123}	(2239 ± 5) ml

4.3. Überprüfung der Flowcontroller

Bei den verwendeten Flowcontrollern handelt es sich um Massenflussregler vom Typ MKS 1479B mit einem Maximalfluss von 0,1 slpm bzw. 20 slpm. Das Funktionsprinzip wird im Folgenden kurz erläutert:

In einem Messteil des Flowcontrollers wird zunächst der Massenfluss des einströmenden Gases bestimmt. Dazu fließt das Gas durch ein Sensorröhrchen, in dem mithilfe von Widerstandsheiz-elementen ein konstantes Temperaturprofil aufrechterhalten wird. Die dazu benötigte Energie ist abhängig von der Massenflussrate. Anschließend folgt eine PID-Regelung über ein Regelventil, das im ausgeschalteten Fall geschlossen (normally closed) ist. Die Messgenauigkeit beträgt 0,5% vom Messwert zuzüglich 0,2% vom Endwert. [MKS03]

Die Flowcontroller wurden vom Hersteller bei einer Temperatur von 296 K für die Verwendung mit Xenon-Gas kalibriert.



Abbildung 4.4.: Flowcontroller vom Typ MKS 1479B an der Off-Gas-Leitung.

4.3.1. Der Flowcontroller der Off-Gas-Leitung (bis 0,1 slpm)

Die Überprüfung des Massenflusses an dem Flowcontroller der Off-Gas-Leitung erfolgte am selben Messaufbau wie zur Volumenbestimmung in Abbildung 4.2.

Der Eingangsdruck auf der Gegenseite des Flowcontrollers lag bei $(2,04 \pm 0,02)$ bar. Das Volumen V_{123} wurde für eingestellte Flüsse von 0,05 slpm und 0,1 slpm jeweils einmal von Vakuumdruck bis 2 bar gefüllt. Die Druckmessung erfolgte am Sensor an V_1 . Den Druckanstieg in Abhängigkeit der Zeit zeigt Abbildung 4.5 für 0,1 slpm und Abbildung 4.6 für 0,05 slpm.

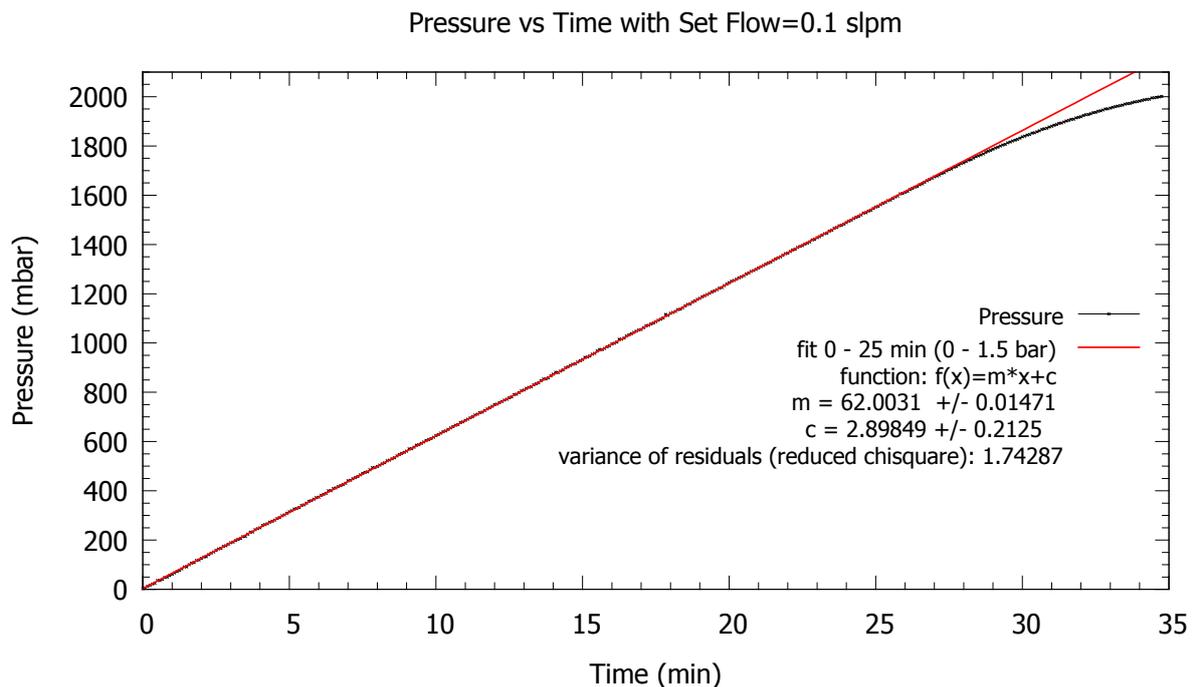


Abbildung 4.5.: Druckanstieg bei eingestelltem Fluss von 0,1 slpm - Der lineare Fit erfolgte im Bereich 0-25 min.

Nach Herstellerangaben wird der Maximalfluss der Regelung für einen Überdruck von 0,7 bis 2,8 bar am Flowcontroller-Eingang, bei 1 bar am Ausgang erreicht [MKS03]. In den beiden Messungen entspricht das dem Bereich um 1 bar (Ausgangsdruck 1 bar, Überdruck am Eingang ca. 1 bar). Die Herstellerangaben beziehen sich jedoch auf Stickstoff und nicht auf Xenon. Für niedrigere Druckdifferenzen werden lediglich geringere Flüsse erreicht bis keine Regelung mehr erfolgt, weil der Gegendruck bei maximaler Öffnung des Regelventils zu stark ist, um den Fluss aufrecht zu erhalten. Deutlich zu sehen ist dies in Abbildung 4.5 ab ca. 1,7 bar anhand der Verringerung der Druckänderung und somit des Flusses nach Formel (4.3). Der Druckanstieg zeigt auch schon für kleinere Drücke in geringem Maße Abweichungen vom linearen Anstieg. Ab ca. 0,1 bar beginnt der Fluss abzunehmen. Die Änderung ist jedoch über weite Strecken so klein, dass der Druck im Intervall von 0-25 min mit Gnuplot linear gefittet wurde. Als Fehler

des Drucks wurde die Standardabweichung (1σ) von Nullpunktsschwankungen vor Beginn der Messung gewählt. Der Zeitfehler wurde vernachlässigt, ebenso der systematische Fehler, weil nur Druckänderungen betrachtet werden. Für den Fehler der Steigung wurde der ausgegebene asymptotische Standard-Fehler des Fits gewählt. Daraus ergibt sich eine Druckänderung von $\frac{\partial p}{\partial t}|_{0,1} = (62,00 \pm 0,02) \text{ mbar/min}$.

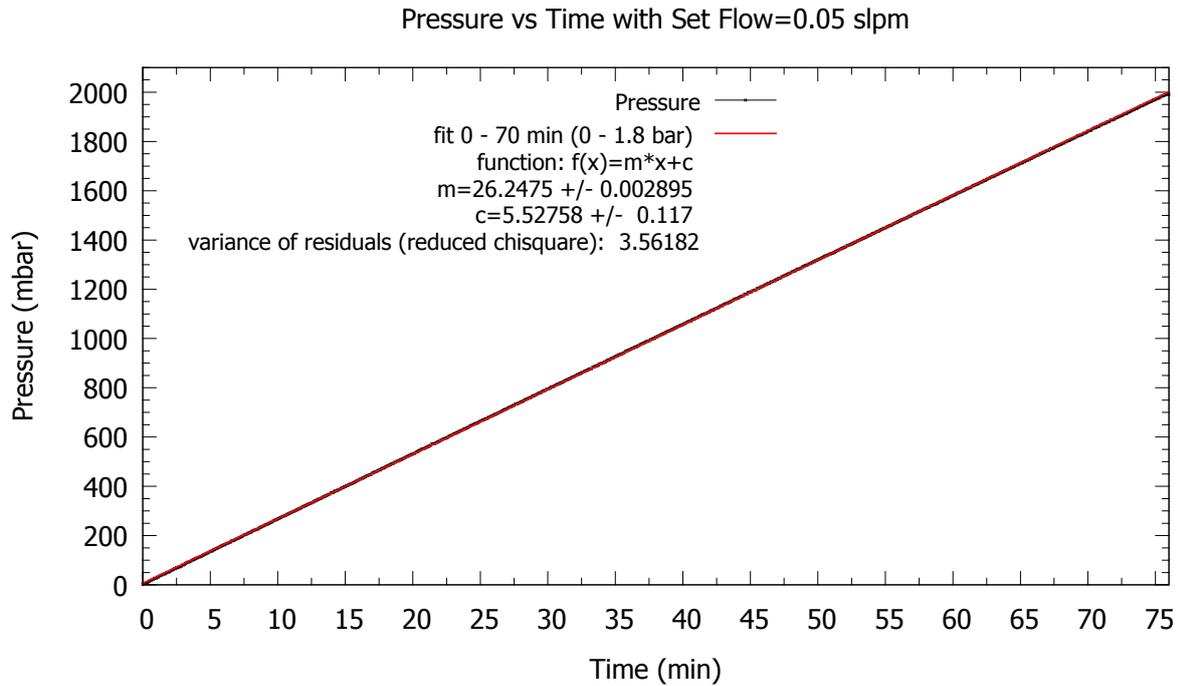


Abbildung 4.6.: Druckanstieg bei eingestelltem Fluss von 0,05 slpm - Der lineare Fit erfolgte im Bereich 0-70 min.

Bei einem eingestellten Fluss von 0,05 slpm zeigt sich in Abbildung 4.6 qualitativ ein ähnlicher Verlauf wie zuvor - jedoch weniger stark ausgeprägt. Weil das Regelventil nicht maximal geöffnet wird, bricht der Druckanstieg nicht für niedrige Druckdifferenzen ein. Die Steigung wurde inklusive Unsicherheit wie zuvor beschrieben aus einem Fit über das Intervall 0-70 min bestimmt. Es ergibt sich eine Druckänderung von $\frac{\partial p}{\partial t}|_{0,05} = (26,248 \pm 0,003) \text{ mbar/min}$.

Die Umrechnung in den Gasmengenstrom in slpm ergibt sich aus den Formeln (4.2) und (4.3) mit dem Volumen $V_{123} = (2,239 \pm 0,005) \text{ l}$ unter Berücksichtigung der Temperatur des Gases, die von der Normtemperatur abweicht und aufgrund von Messungen an zwei unterschiedlichen Tagen verschieden ist ($T_{0,1} = (297 \pm 5) \text{ K}$ und $T_{0,05} = (300 \pm 5) \text{ K}$):

$$Q_{pV} (\text{slpm}) = V(1) \frac{\partial p (\text{mbar})}{\partial t (\text{min})} \cdot \frac{273,15 \text{ K}}{1013,25 \cdot T (\text{K})}$$

Die Unsicherheit des Flusses wurde per Gauß'scher Fehlerfortpflanzung aus den Unsicherheiten

des Volumens V_{123} , der Temperaturen T sowie der Druckänderungen $\frac{\partial p}{\partial t}$ bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.2 gezeigt.

Tabelle 4.2.: Ergebnisse der Flowcontroller-Überprüfung an der Off-Gas-Leitung (bis 0,1 slpm).

Eingestellter Fluss [slpm]	Bestimmter Fluss [slpm]	Abweichung [%]
0,1	$0,126 \pm 0,003$	+26%
0,05	$0,053 \pm 0,001$	+6%

Der gemessene Fluss weicht in beiden Fällen deutlich gegenüber dem eingestellten Fluss nach oben ab. Für 0,1 slpm beträgt die Abweichung +26%, für 0,05 slpm +6%. Die unterschiedliche Abweichung bei verschiedenen Flüssen legt einen Fehler der Regelung nahe und nicht einen unbekannt konstanten systematischen Fehler. Ein kleiner Teil der Abweichung kann aus dem Temperaturunterschied zur Kalibrierungstemperatur des Flowcontrollers von 296 K erklärt werden [MKS03]. Dies führt bei den Unterschieden von wenigen Kelvin mit dem Faktor T/T_{kal} jedoch zu einer maximalen Abweichung von +2%. Die Messgenauigkeit laut Herstellerangaben von 0,7% für 0,1 slpm und 0,9% für 0,05 slpm gilt allerdings nur für das Kalibrierungsgas Stickstoff bei Normbedingungen von $p = 1013,25$ mbar und $T = 273,15$ K.

Eine mögliche Ursache für die Abweichung ist demnach, dass die Regelung des Flowcontrollers für Flüsse dieser Größenordnung stärker von den Messbedingungen wie Temperatur oder verwendetem Gas abhängt und auch die Position und Einbaulage eine Rolle spielt, was bei der Benutzung dieses Flowcontrollers zu berücksichtigen ist.

4.3.2. Der Flowcontroller der Gas-In-Leitung (bis 20 slpm)

Der Flowcontroller an der Gas-In-Leitung ist vom selben Typ wie der an der Off-Gas-Leitung, ist jedoch für einen maximalen Fluss von 20 slpm ausgelegt. Die Regelung kann bei konstant eingestelltem Fluss anhand der in die Säule gefüllten Xenon-Masse aus einer Lager-Flasche überprüft werden. Dazu wurde mit einer Waage an der Lagerflasche die Massendifferenz vor und nach dem Füllvorgang gemessen. Die Messungen wurden für zwei verschiedene Flüsse von 8,0 slpm und 12,0 slpm durchgeführt. Die Messdaten und Ergebnisse zeigt Tabelle 4.3.

Tabelle 4.3.: Messdaten und Ergebnisse zur Flowcontroller-Überprüfung an der Gas-In-Leitung.

Eingestellter Fluss	8,0 slpm	12,0 slpm
gemittelter Druck p	2,31 bar	2,34 bar
Massendifferenz Δm	10,426 kg	1,945 kg
Fülldauer Δt	240 min	30 min
Temperatur T	293 K	293 K
Dichte ρ von Xe [NIST]	0,01256 g/ml	0,01278 g/ml
Bestimmter Fluss	7,34 slpm	10,93 slpm
Abweichung	-8%	-9%

Aus der Dauer des Füllvorgangs kann der tatsächliche Massenfluss bestimmt werden. Mit der Dichte des Xenons folgt der Volumenstrom:

$$\begin{aligned}\dot{m} &= \frac{\Delta m}{\Delta t} & \dot{V} &= \frac{\dot{m}}{\rho} \\ \rightarrow \dot{V}_8 &= \frac{10,426 \text{ kg} \cdot \text{l}}{0,01256 \text{ kg} \cdot 240 \text{ min}} \approx 3,46 \frac{\text{l}}{\text{min}} \\ \rightarrow \dot{V}_{12} &= \frac{1,945 \text{ kg} \cdot \text{l}}{0,01278 \text{ kg} \cdot 30 \text{ min}} \approx 5,07 \frac{\text{l}}{\text{min}}.\end{aligned}$$

Die Umrechnung in slpm erfolgt unter Berücksichtigung der Temperatur T und des Drucks p :

$$\begin{aligned}Q_{pV} \text{ (slpm)} &= \dot{V} \left(\frac{\text{l}}{\text{min}} \right) \cdot \frac{p(\text{bar}) \cdot 273,15 \text{ K}}{1,01325 \cdot 293 \text{ K}} \\ \rightarrow Q_8 &= 3,46 \frac{\text{l}}{\text{min}} \cdot \frac{2,31 \text{ bar} \cdot 273,15 \text{ K}}{1,01325 \cdot 293 \text{ K}} \approx 7,34 \text{ slpm} \\ \rightarrow Q_{12} &= 5,07 \frac{\text{l}}{\text{min}} \cdot \frac{2,34 \text{ bar} \cdot 273,15 \text{ K}}{1,01325 \cdot 293 \text{ K}} \approx 10,93 \text{ slpm}.\end{aligned}$$

Der aus der Massendifferenz bestimmte Fluss weicht für einen eingestellten Fluss von 8,0 slpm um 8% nach unten ab, für 12,0 slpm um 9% nach unten. Dies ist deutlich außerhalb der angegebenen Messgenauigkeit des Flowcontrollers von $(8,0 \pm 0,1)$ slpm sowie $(12,0 \pm 0,1)$ slpm, welche jedoch analog zum Flowcontroller der Off-Gas-Leitung für das Kalibrierungsgas Stickstoff bei Normbedingungen gilt. Ursachen für die Abweichungen könnten auch hier die Verwendung von Xenon sowie die Montage des Geräts sein.

5. Leitwerte der Analyse-Ventile

Im stabilen Destillationsbetrieb stellt sich in der Säule ein zeitlich konstantes Gefälle der Krypton-Konzentration ein. In diesem Kapitel wird untersucht, ob die an den Analyse-Ventilen installierten Blenden dazu geeignet sind, den Fluss bei Öffnen der Ventile klein genug zu halten, sodass dieser Konzentrations-Gradient nicht gestört wird. Zwar führt auch ein vorsichtiges, nur teilweises Öffnen der Ventile zu einem kleinen Fluss, jedoch ist die exakte Bedienung über die Edelstahlgabeln zur thermischen Isolierung, welche in Abschnitt 3.2.2 beschrieben wurden, schwierig. Die Leitwerte der Blenden geben Rückschlüsse über deren Funktionsweise sowie über eventuell zu beachtende Unterschiede an den einzelnen sechs Ventilen.

Zunächst werden die Theorie des Strömungsleitwerts und die verschiedenen Arten von Rohrströmungen vorgestellt. Anschließend wird die Bestimmung der Leitwerte präsentiert und die Funktion der Blenden im Hinblick auf ihr Anwendungsziel diskutiert.

5.1. Strömungslehre

Bei der Strömung von Fluiden durch ein Rohr stellt sich aufgrund von Reibung ein Druckabfall zwischen Eingang und Ausgang der Leitung ein. Der Leitwert C bezeichnet dabei den Kehrwert dieses Strömungswiderstands und ist mit dem pV-Durchfluss wie folgt definiert [Jou06]:

$$C = \frac{Q_{pV}}{p_e - p_a}. \quad (5.1)$$

Der Leitwert ist demnach umso größer, je größer der Durchfluss bei einer bestimmten Druckdifferenz von Eingangsdruck p_e und Ausgangsdruck p_a ist und lässt sich durch gleichzeitige Messung dieser drei Größen bestimmen. Er ist im Allgemeinen druckabhängig und hängt insbesondere von der Art der Rohrströmung ab.

Die Strömung eines Fluids durch ein langes Rohr mit kreisförmigem Querschnitt lässt sich in drei verschiedene charakteristische Arten aufteilen: molekulare, viskose und gasdynamische Strömung. Diese werden im Hinblick auf die Messungen zur Bestimmung der Leitwerte der Analyse-Ventile vorgestellt.

Molekulare Strömung tritt bei sehr niedrigen Drücken auf, wenn die mittlere freie Weglänge der Teilchen groß gegen den Rohrdurchmesser ist. Die Teilchenwechselwirkung kann dann vernachlässigt werden. Diese Strömung kommt bei den Messungen an den Analyse-Ventilen mit einem Eingangsdruck von mindestens 2 bar nicht vor.

Viskose Strömung tritt bei größeren Drücken auf, wenn die Teilchenwechselwirkung zu innerer Reibung führt. Bei viskosen Strömungen unterscheidet man zusätzlich laminares und turbulentes Verhalten.

Bei der laminaren Strömung in einem Rohr gleiten die Teilchen in geordneten, parallelen Schichten aneinander vorbei. Nach der Bernoulli-Gleichung sorgen durch Störungen verursachte Geschwindigkeitsunterschiede in der Strömung, wie sie durch Reibung der äußersten Schicht an der Rohrwand gegeben sind, für einen Druckunterschied und somit zu einer Kraft orthogonal zur Strömung. Bei laminarer Strömung ist die innere Reibung mit den benachbarten Teilchen jedoch so groß, dass die Teilchen ihre Schicht nicht verlassen. Ist die Druckkraft aufgrund des Geschwindigkeitsunterschieds größer als die Reibungskraft, können die Teilchen ihre geordnete Anordnung verlassen und die Strömung kann durchgewirbelt werden. Dies wird turbulente Strömung genannt und beeinträchtigt den Leitwert. [Jun11]

Die dynamische Viskosität η ist eine Materialeigenschaft, die die Zähigkeit eines Fluids und somit die Stärke der inneren Reibung beschreibt. Die Viskosität von Gasen hängt besonders von der mittleren thermischen Geschwindigkeit ab und wächst mit steigender Temperatur [Sch13]. Oberhalb eines kritischen Druckunterschieds erreicht die Strömungsgeschwindigkeit die Schallgeschwindigkeit des Mediums und kann nicht weiter zunehmen. Dies ist ein gasdynamischer Prozess, der auch als verblockte Strömung bezeichnet wird [Jou06].

Ein Unterscheidungskriterium, ob laminare oder turbulente Strömung vorliegt, bietet die Reynoldszahl anhand der Dichte ρ und der Viskosität η des Fluids, der mittleren Strömungsgeschwindigkeit v sowie des Rohrdurchmessers d [Jou06]:

$$Re = \frac{\rho v d}{\eta} = \frac{4\rho Q_V}{\pi \eta d} = \frac{4\rho Q_{pV}}{\pi \eta d p}. \quad (5.2)$$

Hierbei wurde v aus dem Volumenstrom Q_V über die Querschnittsfläche $\frac{\pi}{4}d^2$ bestimmt, welcher durch den pV-Durchfluss bei Berücksichtigung des Drucks gegeben ist [Jou06]. Die Reynoldszahl ist eine dimensionslose Größe, deren Wert bei Strömungen durch ein kreisrundes Rohr folgende empirischen Charakterisierungen zulässt [Jou06]:

$$Re = \begin{cases} < 2300 & \text{laminare Strömung} \\ > 4000 & \text{turbulente Strömung.} \end{cases} \quad (5.3)$$

Der Leitwert eines langen, geraden Rohres mit kreisförmigem Querschnitt und der Länge l lässt sich für laminare Strömung ausgehend vom Gesetz von Hagen-Poiseuille exakt berechnen [Jou06]:

$$C_{\text{lam}} = \frac{\pi}{256} \cdot \frac{d^4}{\eta \cdot l} \cdot (p_e + p_a). \quad (5.4)$$

Der Leitwert eines ebensolchen Rohres im Fall turbulenter Strömung kann semi-empirisch

nach folgender Formel berechnet werden [Jou06]:

$$C_{\text{turb}} = 1,015 \cdot d^{\frac{19}{7}} \left(\frac{\bar{c}^6}{\eta} \right)^{\frac{1}{7}} \cdot \left(\frac{p_e + p_a}{l} \right)^{\frac{4}{7}} \cdot (p_e - p_a)^{-\frac{3}{7}}. \quad (5.5)$$

Dabei bezeichnet \bar{c} die mittlere thermische Geschwindigkeit, die von der Temperatur T , der universellen Gaskonstante R und der molaren Masse M abhängt [Jou06]:

$$\bar{c} = \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}}. \quad (5.6)$$

5.2. Bestimmung der Leitwerte

Zunächst werden der Messaufbau und die Durchführung zur Bestimmung der Leitwerte beschrieben. Anschließend wird die Auswertung erläutert und die Ergebnisse werden diskutiert. Die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurden in Zusammenarbeit mit Michael Murra durchgeführt, der Teile der Ergebnisse für eigene Veröffentlichungen verwenden kann.

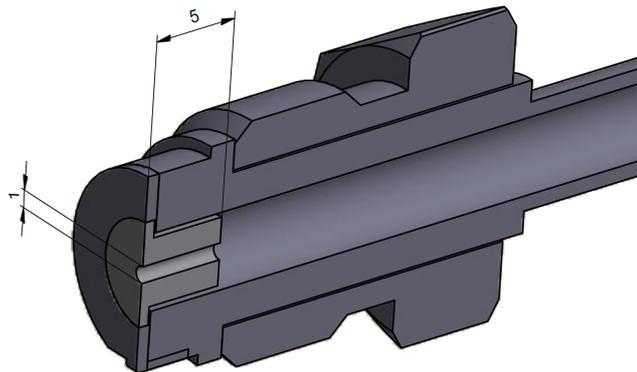


Abbildung 5.1.: Die Blende mit Durchmesser 1 mm und Länge 5 mm ist in die Dichtung des Fittings (Viert Zoll-Leitung) integriert, welcher die Verbindung zum Analyse-Ventil herstellt. Quelle: Technische Zeichnung von C. Huhmann, IKP Münster.

5.2.1. Messaufbau und Durchführung

Bei den Analyse-Ventilen handelt es sich um manuelle Faltenbalgventile der Firma Swagelok. Vor jedem Ventil befindet sich eine Blende mit einem Durchmesser von 1 mm und einer Länge von 5 mm. Diese Blende ist in die Dichtscheibe geschweißt, die zwischen dem Fitting des Analyse-Ventils und dem Fitting der Viert Zoll-Leitung in Richtung des Packungsrohrs liegt. Eine technische Zeichnung ist in Abbildung 5.1 gezeigt.

Der Messaufbau zur Bestimmung der Leitwerte ist in Abbildung 5.2 zu sehen. Den Druck

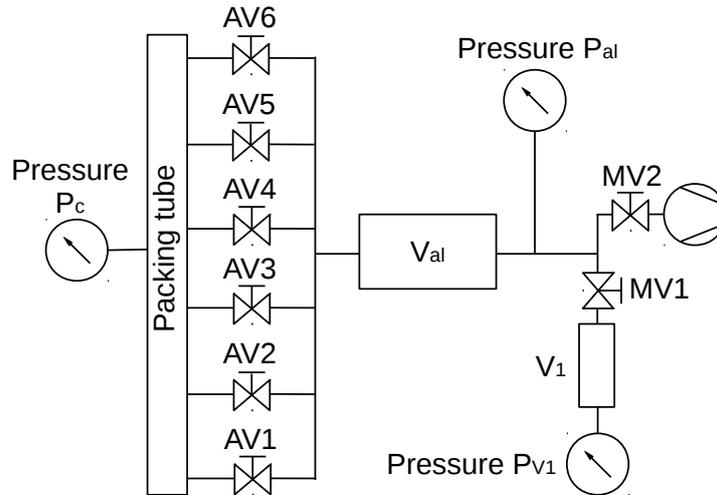


Abbildung 5.2.: Messaufbau zur Bestimmung der Leitwerte von AV1-AV6. MV bezeichnet manuelle Ventile.

in der Säule bezeichnet p_c , der mit einem Sensor vom Typ MKS Baratron[®] 121A mit einem Messbereich bis 10000 mbar und einer Messgenauigkeit von 1 mbar (vgl. Abschnitt 4.2.2) gemessen wurde. Mit einem Sensor vom selben Typ wurde der Druck p_{V_1} gemessen, der zur Bestimmung des Volumens V_{al} benötigt wird. Dieses umfasst innerhalb des Isoliervakuum die Analyse-Leitung - eine Viertelzoll-Leitung von $(3,5 \pm 0,5)$ m Länge -, woran sich außerhalb des Isolierbereichs Halbzoll-Leitungen von insgesamt $(5,0 \pm 0,5)$ m Länge anschließen¹. Der Druck p_{al} im Volumen V_{al} wurde mit einem Swagelok UHP Pressure Transducer mit einem Messbereich von ebenfalls bis 10000 mbar gemessen, welcher jedoch eine schlechtere Messgenauigkeit von 50 mbar hat.

Es wurden Messungen für jedes Ventil jeweils einmal mit warmem Gas in der Säule bei Raumtemperatur von 293 K und einmal bei laufenden Kaltköpfen mit kaltem Gas bei einer Temperatur von 183 K durchgeführt. Um Leitwerte nach Formel (5.1) berechnen zu können, wird der pV-Durchfluss und die Druckdifferenz $\Delta p = p_c - p_{al}$ vor und hinter den Ventilen benötigt. Der pV-Durchfluss wurde wie in Abschnitt 4.2.2 nach Formel (4.3) bestimmt. In diesem Fall ist die Annahme, dass der Druck p_{al} bei Raumtemperatur $T_{al} = 293$ K gemessen wurde. Bei der Messung mit kaltem Gas in der Säule ist deshalb ausgehend von der idealen Gasgleichung (4.1) der zusätzliche Druckanstieg aufgrund der Temperaturerhöhung bei der Bestimmung des pV-Durchflusses zu berücksichtigen:

$$Q_{pV_{al}} = V_{al} \cdot \frac{\partial p_{al}}{\partial t} \cdot \frac{T_{al}}{T_c}. \quad (5.7)$$

Dabei ist T_c die Temperatur des Gases in der Säule.

¹Eine genauere Angabe ist für die hier angestellten Untersuchungen nicht relevant.

Zunächst wurde dafür das Volumen V_{al} nach dem in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Verfahren bestimmt. Dazu waren alle Analyse-Ventile geschlossen und das Volumen V_{al} wurde mit einer Vorpumpe und einer TMP hinter MV2 auf ca. 10^{-6} mbar - gemessen am TMP-Eingang - evakuiert. Die Messpipette V_1 wurde an der in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Apparatur bis 2 bar gefüllt und so am Messaufbau zur Leitwertbestimmung installiert. Anschließend wurde das Gas aus V_1 ins evakuierte Volumen V_{al} expandiert und die Drücke vorher und nachher an p_{V_1} gemessen.

Die Druckänderung $\frac{\partial p_{al}}{\partial t}$ wurde daraufhin wie folgt bestimmt:

Der Druck in der Säule p_c lag zu Messbeginn zwischen 2 und 2,5 bar. Nach erneutem Abpumpen von V_{al} und bei geschlossenen Ventilen MV1 und MV2 wurde ein Analyse-Ventil komplett geöffnet, sodass Gas von der Säule in V_{al} strömte. Der Druckanstieg von p_{al} wurde mithilfe eines LabView Programms in Zeitabständen von 0,1 s gemessen. Diesen Zusammenhang zeigt beispielhaft Abbildung 5.3 bei Öffnen von AV5. Der Druck p_{al} in V_{al} stieg ca. 10 Sekunden lang an, bis der Druckausgleich mit dem Säulendruck p_c erreicht wurde. Nach Schließen des Analyse-Ventils wurde V_{al} abgepumpt, bevor das nächste Ventil vermessen wurde.

Das Vorgehen verlief bei den anderen Ventilen analog. Bei der Messung mit warmem Gas lag p_c zu Beginn der Messung bei unterschiedlichen Werten zwischen 2,2 bar und 2,5 bar und nahm während jeder Messung um maximal 80 mbar ab. Bei kaltem Gas war p_c aufgrund der Regelung der Säule konstant bei $(2,04 \pm 0,02)$ bar.

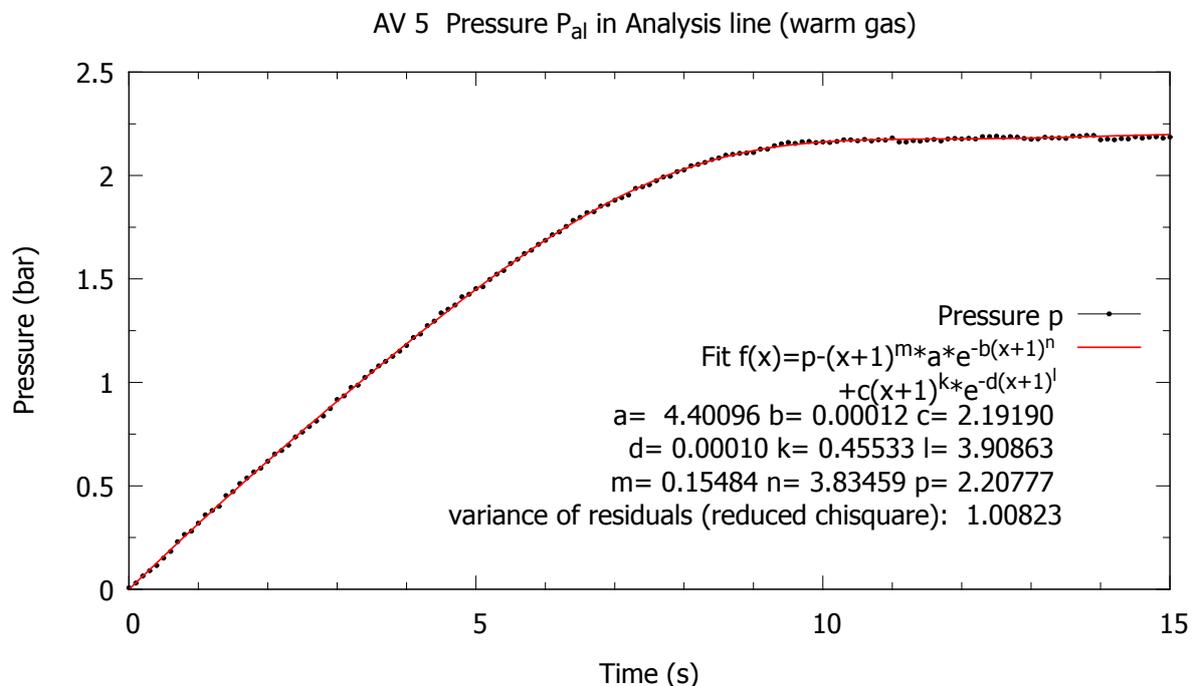


Abbildung 5.3.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV5 für die Messung mit warmem Gas. Die Fehlerbalken der statistischen Schwankungen des Drucks sind kleiner als die Symbole.

5.2.2. Auswertung und Diskussion der Ergebnisse

Der Leitwert der Blenden ist unter der Annahme, dass die Leitwerte der anschließenden Leitungen aufgrund des größeren Durchmessers vernachlässigt werden können, nach Formel (5.1) gegeben durch:

$$C = \frac{Q_p V_{al}}{p_c - p_{al}}. \quad (5.8)$$

Für die Volumenbestimmung von V_{al} ergab der Fit-Wert eines konstanten Fits mit Gnuplot über zwei Einzelmessungen $V_{al} = 661 \pm 7$ ml.

Vor der Auswertung der Druckmessung wurde bei p_{al} der im Vakuum bestimmte Offset abgezogen. Der Säulendruck p_c war bereits genullt. Anschließend wurde der Verlauf von p_{al} nach Öffnen eines Ventils ebenfalls mit Gnuplot gefittet - vgl. Abbildung 5.3. Für den Fehler des Drucks wurde die Standardabweichung ($1\sigma = 7$ mbar) von statistischen Schwankungen im Vakuum vor Beginn der Messung angenommen. Der systematische Fehler von 50 mbar des Sensors an p_{al} wurde für die Auswertung nicht berücksichtigt, weil nach Druckausgleich mit dem genaueren p_c (± 1 mbar) keine größeren Abweichungen als in der Größenordnung von 1σ beobachtet wurden. Aus der Ableitung der Fit-Funktion $f(x)$ wurde die Druckänderung $\frac{\partial p_{al}}{\partial t} = f'(x)$ bestimmt:

$$f(x) = p - a \cdot (x + 1)^m \cdot \exp(-b \cdot (x + 1)^n) + c \cdot (x + 1)^k \cdot \exp(-d \cdot (x + 1)^l)$$

$$f'(x) = c \cdot \frac{k \cdot (x + 1)^{k-1} - dl \cdot (x + 1)^{k+l-1}}{\exp(d \cdot (x + 1)^l)} - a \cdot \frac{m \cdot (x + 1)^{m-1} - bn \cdot (x + 1)^{m+n-1}}{\exp(b \cdot (x + 1)^n)}. \quad (5.9)$$

In diesem Fall bezeichnen a, b, c, d, k, l, m, n und p die Fit-Parameter. Aus Multiplikation mit dem Volumen V_{al} und (bei kaltem Gas) mit dem Korrekturfaktor für die Temperatur erhält man den sich zeitlich ändernden Fluss $Q_p V_{al}$ nach Formel (5.7). Der Fehler des Fits wurde dabei vernachlässigt und der Fehler der Temperaturkorrektur nicht berücksichtigt.

Schließlich erhält man die Leitwerte in Abhängigkeit der Druckdifferenz nach Formel (5.8). Dabei wurden Druckdifferenzen $< 0,03$ bar aufgrund der statistischen Schwankungen beider Drücke nicht berücksichtigt. Abbildung 5.4 zeigt die bei Messung mit warmem Gas erhaltenen Leitwerte der Analyse-Ventile im Vergleich und Abbildung 5.5 zeigt die Ergebnisse für kaltes Gas. Die Leitwerte liegen zwischen 0,05 l/s für sehr hohe und 1,2 l/s für kleine Druckunterschiede. Einen Ausschnitt für Druckdifferenzen zwischen 0,25-0,75 bar zeigen die Abbildungen 5.6 und 5.7. In beiden Fällen sind die Leitwerte von AV2, AV3 und AV4 für kleine Druckdifferenzen deutlich größer als die von AV1, AV5 und AV6. Die Abweichung beträgt bis zu 20% und nimmt für größere Druckdifferenzen ab. Da dies auch bei der Messung mit kaltem Gas so ist, kann es nicht nur an unterschiedlichen Eingangsdrücken p_c liegen. Eine Erklärung könnte die Maschinentoleranz bei der Fertigung der Blenden sein, die zu kleinen Unterschieden in den Abmessungen führt. Desweiteren könnte eine leicht unterschiedliche Ausrichtung der Blenden zu verschiedenem Einströmungsverhalten führen. Ein Vergleich der Abbildungen zeigt, dass die Leitwerte für warmes Gas größer sind als für kaltes Gas. Dies wird weiter unten am Beispiel von AV5 diskutiert.

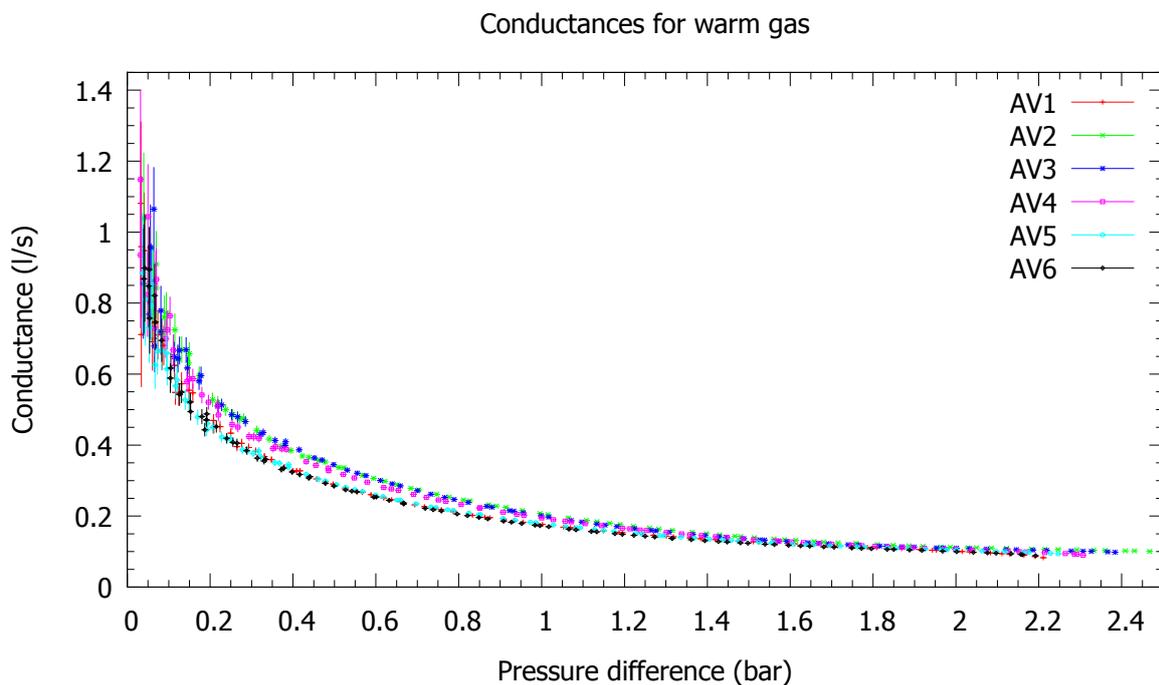


Abbildung 5.4.: Leitwerte C der verschiedenen Analyse-Ventile für warmes Gas. Die Fehlerbalken stammen aus statistischen Schwankungen des Drucks. Der systematische Fehler wurde nicht berücksichtigt.

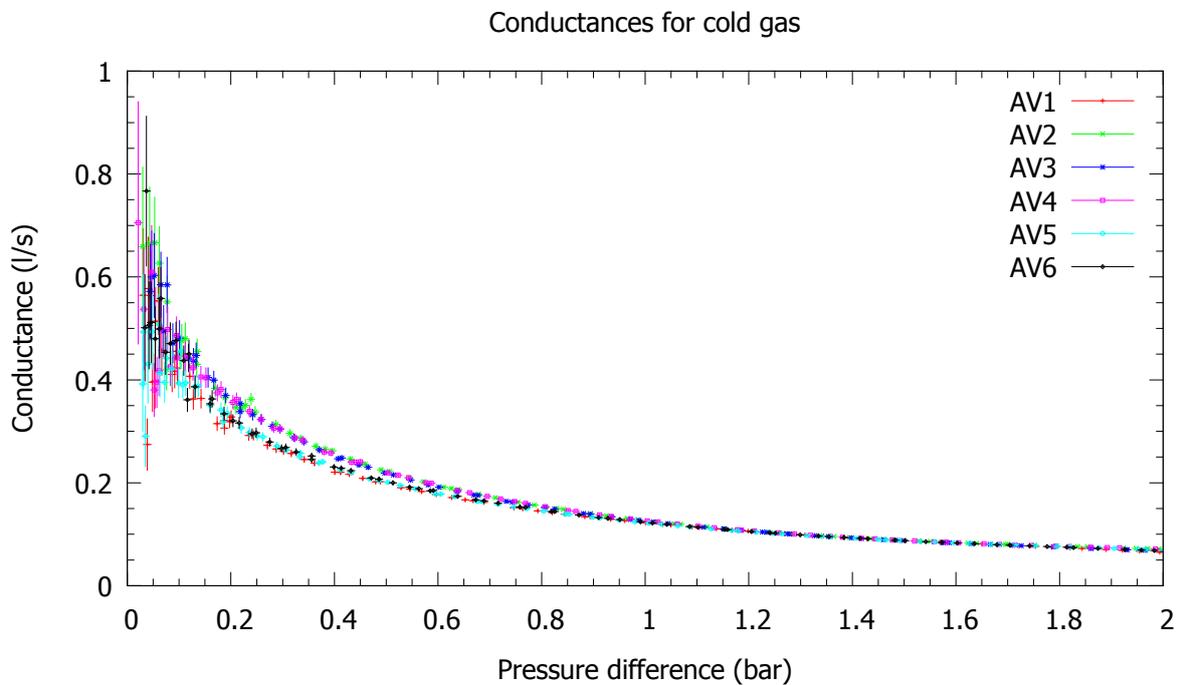


Abbildung 5.5.: Leitwerte C der verschiedenen Analyse-Ventile für kaltes Gas. Fehlerbalken wie in Abbildung 5.4.

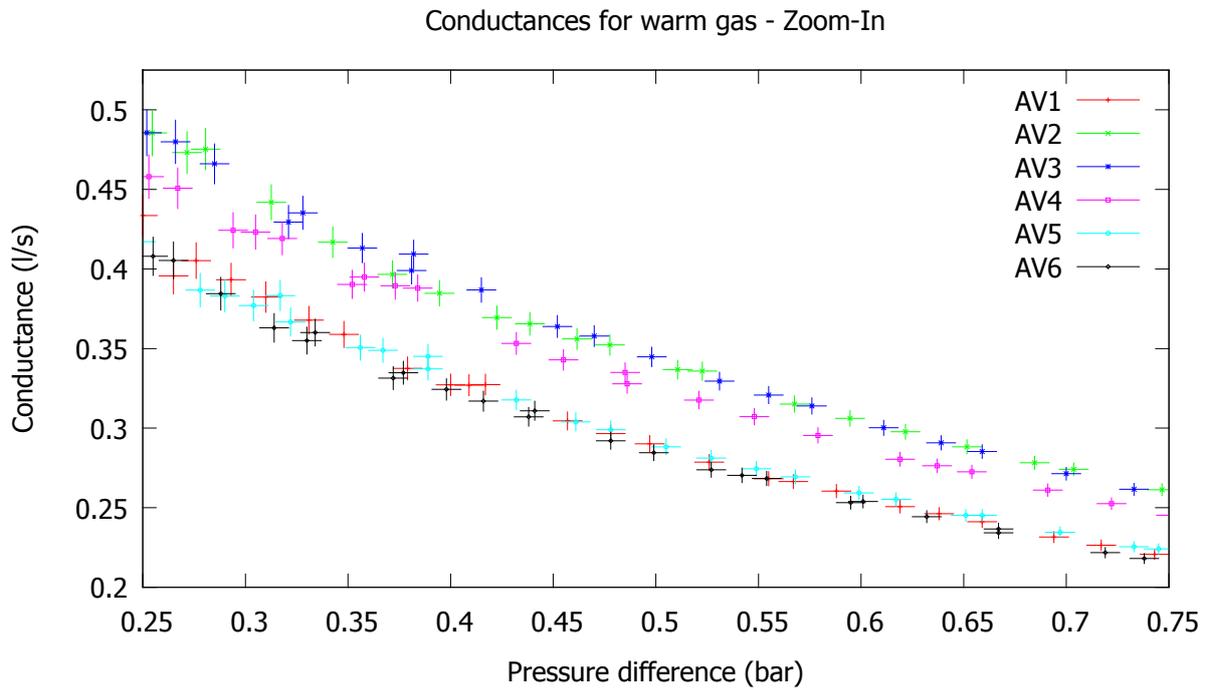


Abbildung 5.6.: Leitwerte C der verschiedenen Analyse-Ventile für warmes Gas und Druckdifferenzen zwischen 0,25-0,75 bar. Fehlerbalken wie in Abbildung 5.4.

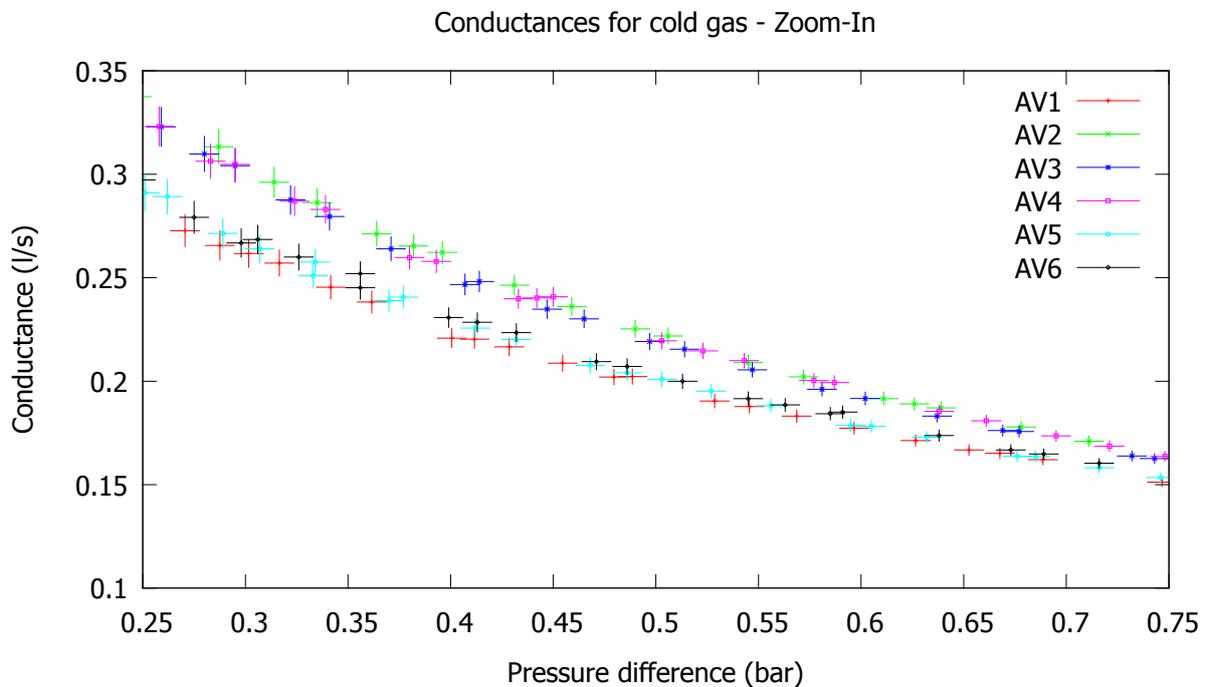


Abbildung 5.7.: Leitwerte C der verschiedenen Analyse-Ventile für kaltes Gas und Druckdifferenzen zwischen 0,25-0,75 bar. Fehlerbalken wie in Abbildung 5.4.

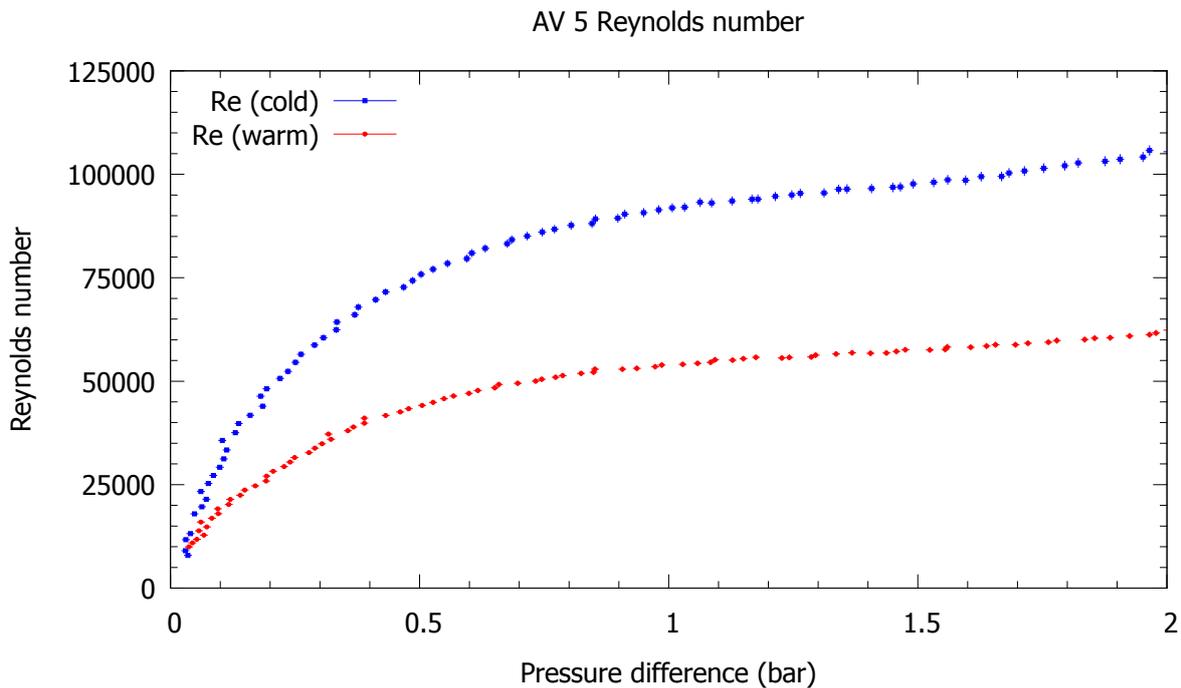


Abbildung 5.8.: Reynoldszahlen an AV5 für warmes Gas (rot) und kaltes Gas (blau).

Die Berechnung der Reynoldszahl anhand des pV-Durchflusses nach Formel (5.2) ergibt für kaltes und warmes Gas Werte von > 7000 für den gesamten ausgewerteten Bereich, sodass nach (5.3) turbulente Strömung vorliegt². Die Reynoldszahlen an AV5 im Vergleich für kaltes und warmes Gas zeigt Abbildung 5.8. Aufgrund der höheren Dichte und niedrigeren Viskosität sind die Reynoldszahlen für kaltes Gas höher.

Für turbulente Strömung lässt sich der Leitwert eines geraden Rohres mit Durchmesser $d = 1$ mm und Länge $l = 5$ mm nach Formel (5.5) berechnen. Hierbei ist $p_e = p_c$ und $p_a = p_{al}$. Abbildung 5.9 zeigt den Vergleich der berechneten mit den gemessenen Leitwerten für warmes und kaltes Gas an AV5. Die benötigten Eigenschaften des Xenon-Gases zur Berechnung der Reynoldszahl sowie des theoretischen Leitwerts für die beiden Messungen mit kaltem und warmem Gas sind in Tabelle 5.1 aufgelistet. Aufgrund der höheren mittleren thermischen Geschwindigkeit sind die berechneten

Tabelle 5.1.: Thermodynamische Eigenschaften von Xenon [NIST]

Temperatur T	293 K	183 K
Druck p	2,2 bar	2 bar
Dichte ρ	12 kg/m ³	18 kg/m ³
Viskosität η	$2,3 \cdot 10^{-5}$ kg/sm	$1,5 \cdot 10^{-5}$ kg/sm
mittl. therm. Geschwindigkeit \bar{c}	217,4 m/s	171,8 m/s

²Ob für sehr hohe Druckdifferenzen eventuell verblockte Strömung auftritt, wurde nicht weiter untersucht.

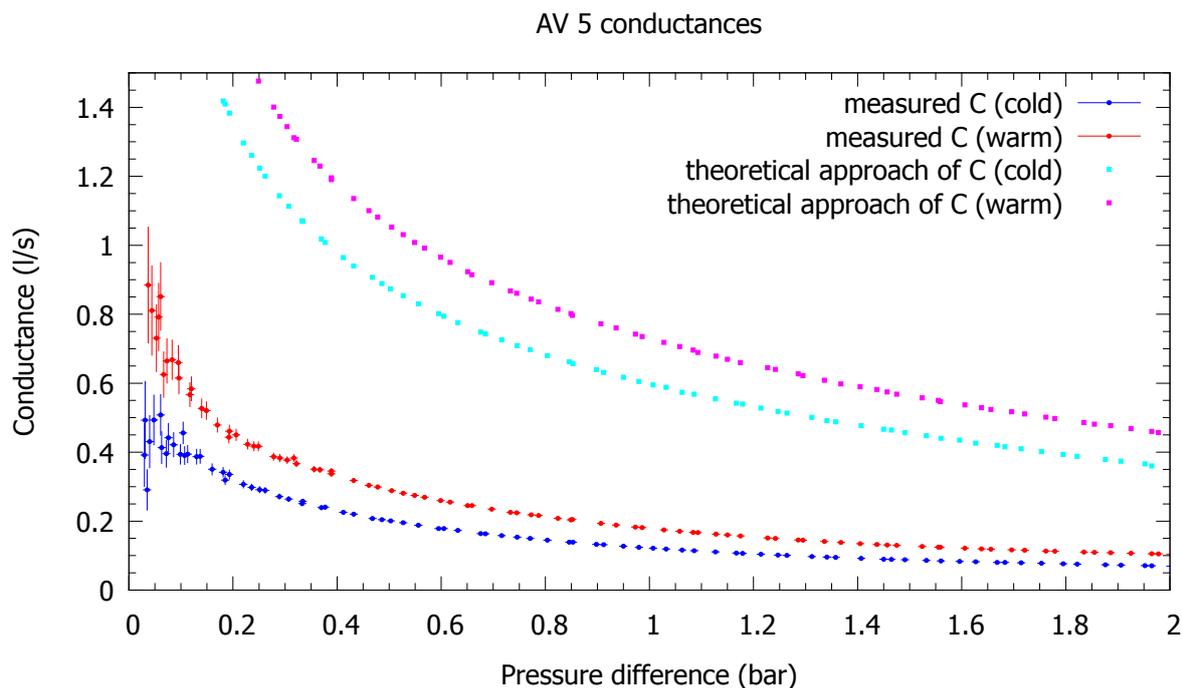


Abbildung 5.9.: Gemessene Leitwerte C von AV5 für kaltes und warmes Gas (blau und rot) sowie die theoretisch berechneten Leitwerte nach Formel (5.5) (cyan und magenta). Fehlerbalken wie in Abbildung 5.4.

Leitwerte für warmes Gas höher. Die theoretische Kurve zeigt qualitativ einen ähnlichen Verlauf wie die Messwerte und auch der Unterschied zwischen warmem und kaltem Gas ist qualitativ gleich. Die theoretischen Werte sind jedoch bis zu 5 mal so groß. Eine mögliche Ursache dafür könnte sein, dass der Leitwert der sich anschließenden Leitungen nicht vernachlässigt werden kann. Die Analyse-Leitung hat einen Innendurchmesser von 4,57 mm und eine Länge von $(3,5 \pm 0,5)$ m mit einigen Krümmungen und 90° Knicken. Der theoretische Leitwert für turbulente Strömung liegt bei diesen Werten in der gleichen Größenordnung wie der theoretische Leitwert der Blende. Die Berechnungen gelten jedoch nur für gerade Rohre, für scharfe Kurven und Knicke sind die Leitwerte kleiner [Jou06], wodurch die Messwerte eventuell erklärt werden können. Eine hypothetische Messung an Ventilen ohne Blenden könnte dies bestätigen oder widerlegen.

5.2.3. Funktion der Blenden für die Messung der Krypton-Konzentration

Die gemessenen Leitwerte der Blenden vor den Analyse-Ventilen sind wahrscheinlich zu hoch, um Proben zu entnehmen ohne das Gleichgewicht der Krypton-Konzentration in der Säule zu stören. Einen Hinweis darauf liefert die Größenordnung der Leitwerte von 10^{-1} l/s sowie der messbare Druckabfall von einigen 10 mbar innerhalb weniger Sekunden im Inneren der Säule bei Messungen mit warmem Gas und ausgeschalteter Regelung. Es strömt also vermutlich auch

Gas aus höheren und tieferen Lagen in Richtung des geöffneten Ventils, sodass die installierten Blenden wahrscheinlich nicht den gewünschten Zweck erfüllen.

6. Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Arbeit zusammengefasst und es wird ein Ausblick auf das daraus resultierende, mögliche, weitere Vorgehen gegeben.

Die gemessene Kühlleistung der Kälteköpfe ist wie in Abschnitt 3.5 dargelegt ausreichend, um die Designvorgaben der Säule zu erfüllen. Der Kältekopf CP50 ermöglicht es, Massenflüsse von 2,86 kg/h zu verflüssigen, wobei mit der zusätzlichen Kühlung durch den Wärmetauscher die geforderten 3 kg/h überschritten werden können. Der Kältekopf CP140T erreicht bei Betrieb der Säule eine Kühlleistung von 190-200 W, wovon maximal 150 W benötigt werden.

Weil die Kühlleistungen der beiden Kälteköpfe ebenfalls eine Argon-Radon-Destillation ermöglichen, soll eine Test-Destillation dieser beiden Gase an der Säule vorgenommen werden.

Die Bestimmung des Gesamtvolumens V_{123} des in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen Messaufbaus ermöglichte die in Abschnitt 4.3 erläuterte Überprüfung der Gasmengenströme durch den Flowcontroller der Off-Gas-Leitung (bis 0,1 slpm) bei eingestellter Regelung auf 0,1 slpm und 0,05 slpm. Im ersten Fall wich der gemessene Fluss um +26% gegenüber dem eingestellten und im zweiten Fall um +6% nach oben ab. Die Überprüfung der Gasmengenströme des Flowcontrollers an der Gas-In-Leitung (bis 20 slpm) ergab Abweichungen des gemessenen Flusses um -8% für einen eingestellten Fluss von 8 slpm und -9% für 12 slpm. Mögliche Ursachen für die Abweichung wurden für beide Flowcontroller diskutiert und mögliche Maßnahmen, wie die Abweichungen eventuell reduziert werden könnten, werden derzeit untersucht.

Mithilfe des Volumens der Messpipette V_1 - vgl. Abschnitt 4.2.2 - konnten in Kapitel 5 die Leitwerte der Blenden an den sechs Analyse-Ventilen bestimmt werden. Es ergibt sich, dass die Leitwerte in der Größenordnung von 10^{-1} l/s vermutlich zu groß sind, als dass die gewünschte gezielte Entnahme von Gasproben möglich ist, weil der sich einstellende Gleichgewichts-Konzentrationsgradient durch den hohen Gasstrom gestört wird. Eine Möglichkeit dies zu testen böte die Analyse der Proben am RGA-Aufbau. Die gemessene Krypton-Konzentration bei vorsichtigem, teilweisen Öffnen der Ventile und somit bei geringerem Fluss sollte sich dann von der gemessenen Konzentration nach komplettem Öffnen der Ventile unterscheiden.

Schlussendlich soll die Destillationssäule nach Abschluss der Tests des Destillationsbetriebs und der Separations-Effizienz sowie der erwähnten probeweisen Argon-Radon-Destillation im Herbst 2014 ihre Arbeit im LNGS Untergrundlabor für das XENON1T-Experiment aufnehmen.

Literaturverzeichnis

- [Apr09] E. Aprile et al., Liquid Xenon Detectors for Particle Physics and Astrophysics, *Rev.Mod.Phys.*82:2053-2097, 2010, arXiv:0910.4956v1, 2009
- [Apr10] E. Aprile (XENON1T), XENON1T at LNGS, Technical Design Report, Oktober 2010
- [Apr12a] E. Aprile et al., The XENON100 Dark Matter Experiment, *Astropart. Phys.* 35 (2012), 573-590, arXiv:1107.2155v2, 2012
- [Apr12b] E. Aprile et al. (XENON100), Dark Matter Results from 225 Live Days of XENON100 Data, *Phys. Rev. Lett.* 109, 181301 (2012), arXiv: 1207.5988, 2012
- [Apr13] E. Aprile et al., An atom trap trace analysis system for measuring krypton contamination in xenon dark matter detectors, *Rev. Sci. Instrum.* 84, 093105 (2013), arXiv:1305.6510v2, 2013
- [Beg91] K. G. Begeman et al., Extended rotation curves of spiral galaxies - Dark haloes and modified dynamics, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* 249, 1991: 523-537
- [Bro13] E. Brown et al., In situ measurements of Krypton in Xenon gas with a quadrupole mass spectrometer following a cold-trap at a temporarily reduced pumping speed, arXiv:1212.5136, 2013
- [Fre06] K. Freese, The dark side of the universe, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 559 (2006) 337-340, 2006
- [Jou06] K. Jousten (Hrsg.), *Wutz Handbuch Vakuumtechnik*, Wiesbaden: Vieweg, 2006
- [Jun11] G. Junge, *Einführung in die Technische Strömungslehre*, Carl Hanser Verlag, München, 2011
- [Jun96] G. Jungman et al., Supersymmetric Dark Matter, *Phys. Rept.*, 267 (1996) 195-373
- [Ley11] Oerlikon Leybold Vakuum, *Coolpower 140T*, 50 Einbau- und Gebrauchsanleitung, 2011
- [Lin14] S. Lindemann et al., Krypton assay in xenon at the ppq level using a gas chromatographic system and mass spectrometer, *Eur. Phys. J. C* (2014) 74:2746, arXiv:1308.4806v2, 2014

- [LUX13] LUX Collaboration, First results from the LUX dark matter experiment at the Sanford Underground Research Facility, arXiv:1310.8214, 2013
- [MKS03] MKS Instruments Deutschland GmbH, Digitaler Massenflussregler Typ 1479B - Benutzerhandbuch, 2003
- [Mur14a] M. Murra, Set up and test of a cryogenic distillation column for the XENON1T experiment, Masterarbeit, WWU Münster, 2014
- [Mur14b] M. Murra, Argon distillation with phase II distillation column from Muenster, Internal Note, Xenon Collaboration, 2014
- [NIST] National Institute of Standards and Technology, homepage: www.nist.gov
- [Pla13] Planck Collaboration, Planck 2013 results. XV. CMB power spectra and likelihood, arXiv:1303.5075v2, 2013
- [Ros14a] S. Rosendahl, zu erscheinende Dissertation, WWU Münster, 2014
- [Ros14b] S. Rosendahl et al., A novel ^{83m}Kr tracer method for characterizing xenon gas and cryogenic distillation systems, arXiv:1407.3981, 2014
- [Sch13] H. Schade et al., Strömungslehre, 4. Auflage, de Gruyter, Berlin/Boston, 2013
- [Sch11] J. Schulz, Design of a 2-Phase Xenon Time Projection Chamber for Electron Drift Length Measurements, diploma thesis, WWU Münster, 2011

A. Anhang

Plots der Messungen zur Leitwertbestimmung in Kapitel 5

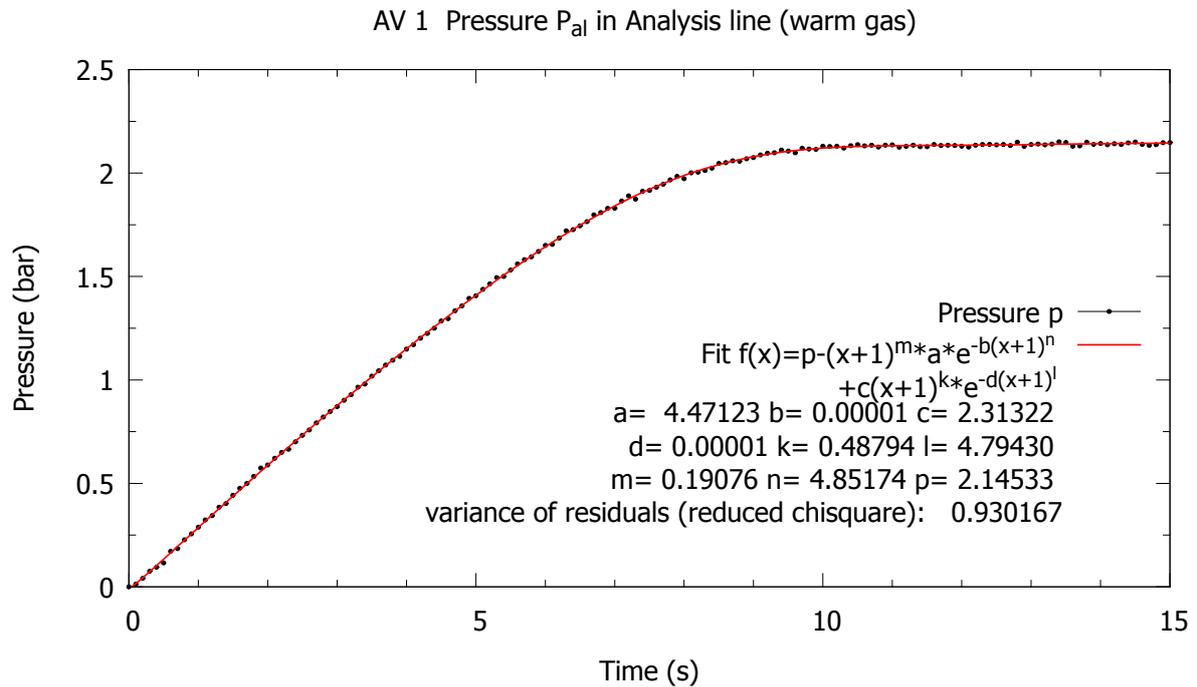


Abbildung A.1.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV1 für die Messung mit warmem Gas.

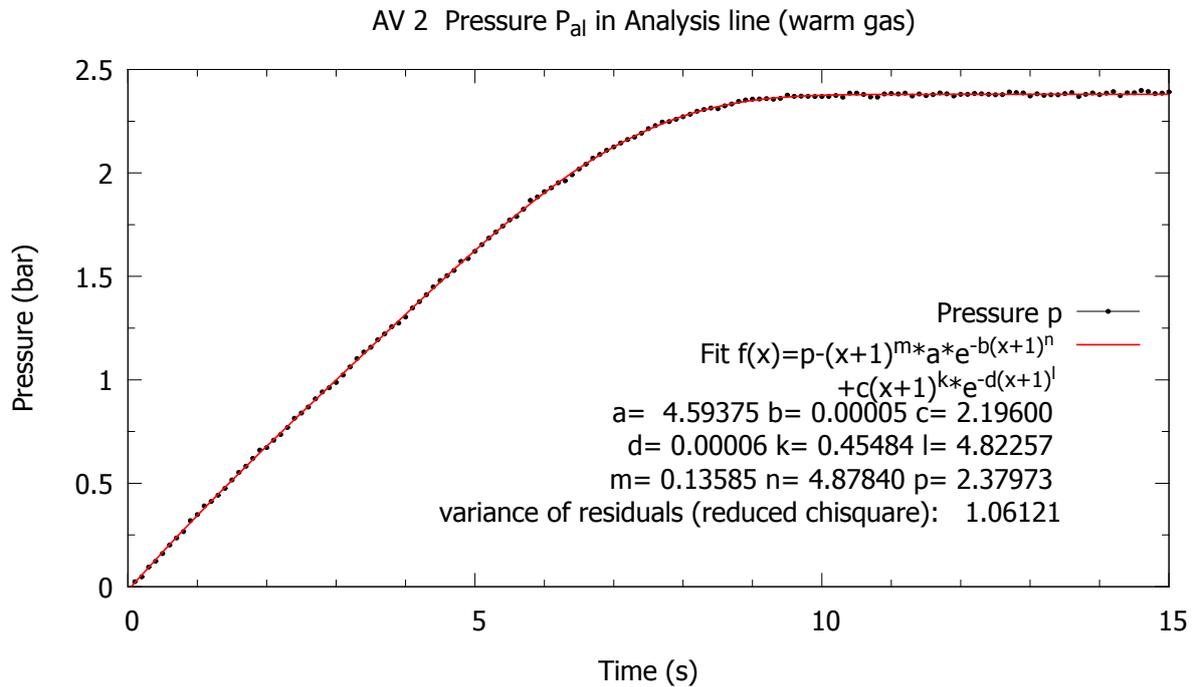


Abbildung A.2.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV2 für die Messung mit warmem Gas.

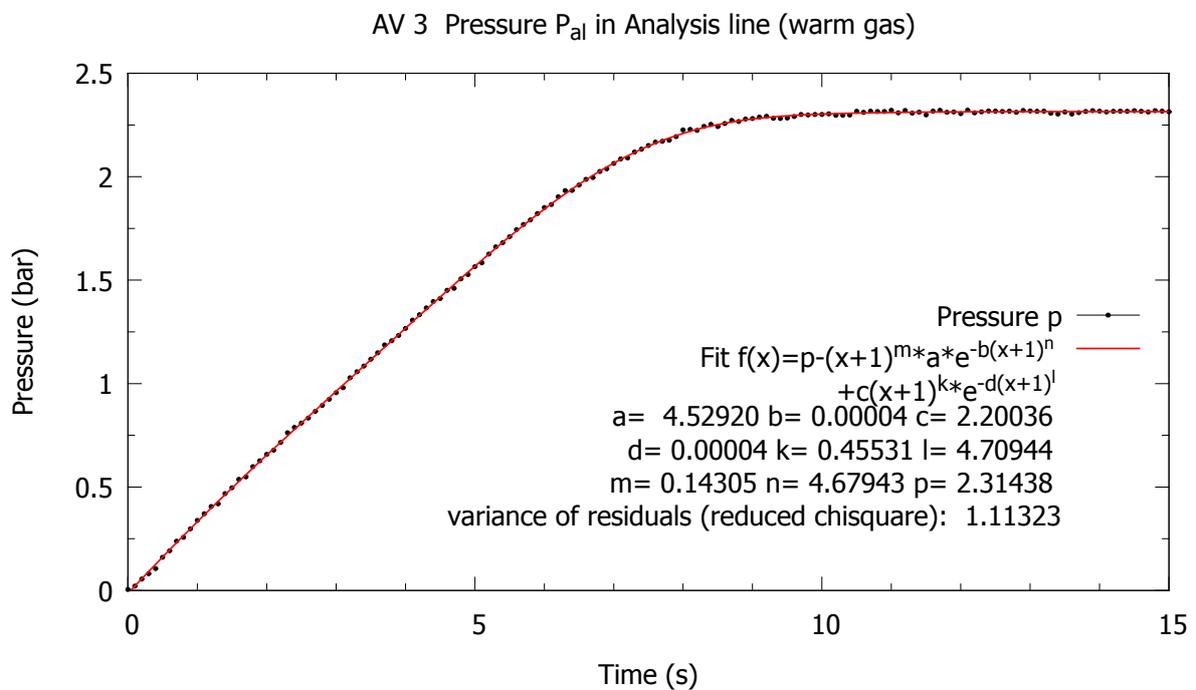


Abbildung A.3.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV3 für die Messung mit warmem Gas.

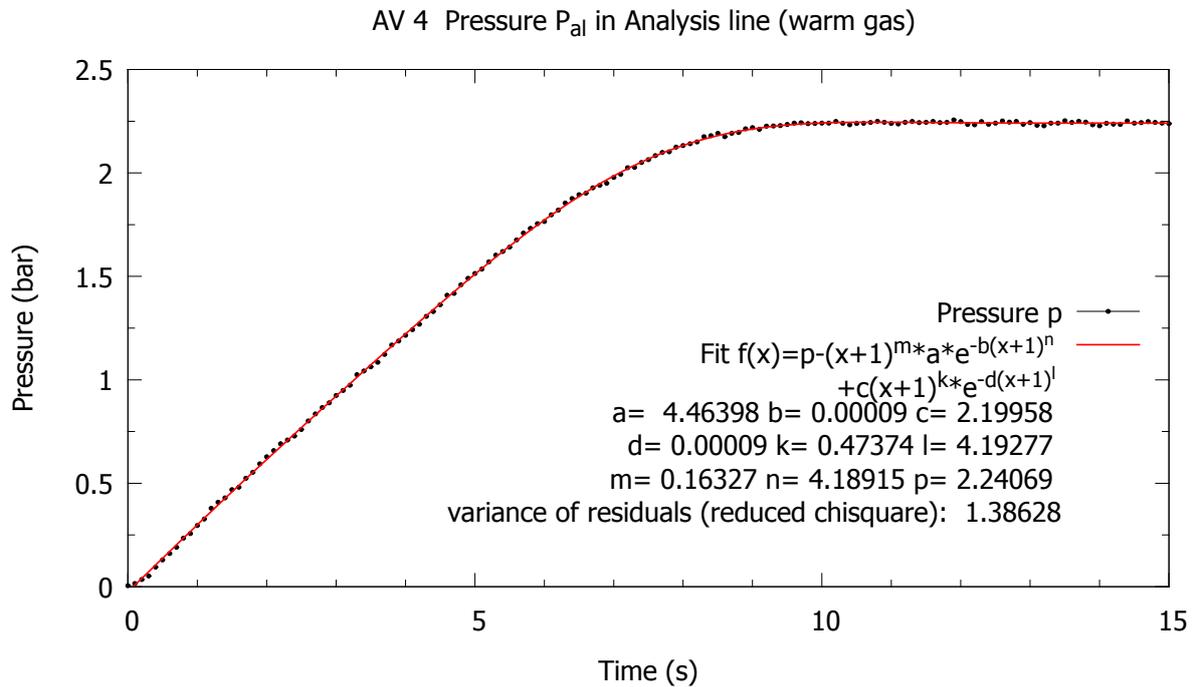


Abbildung A.4.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV4 für die Messung mit warmem Gas.

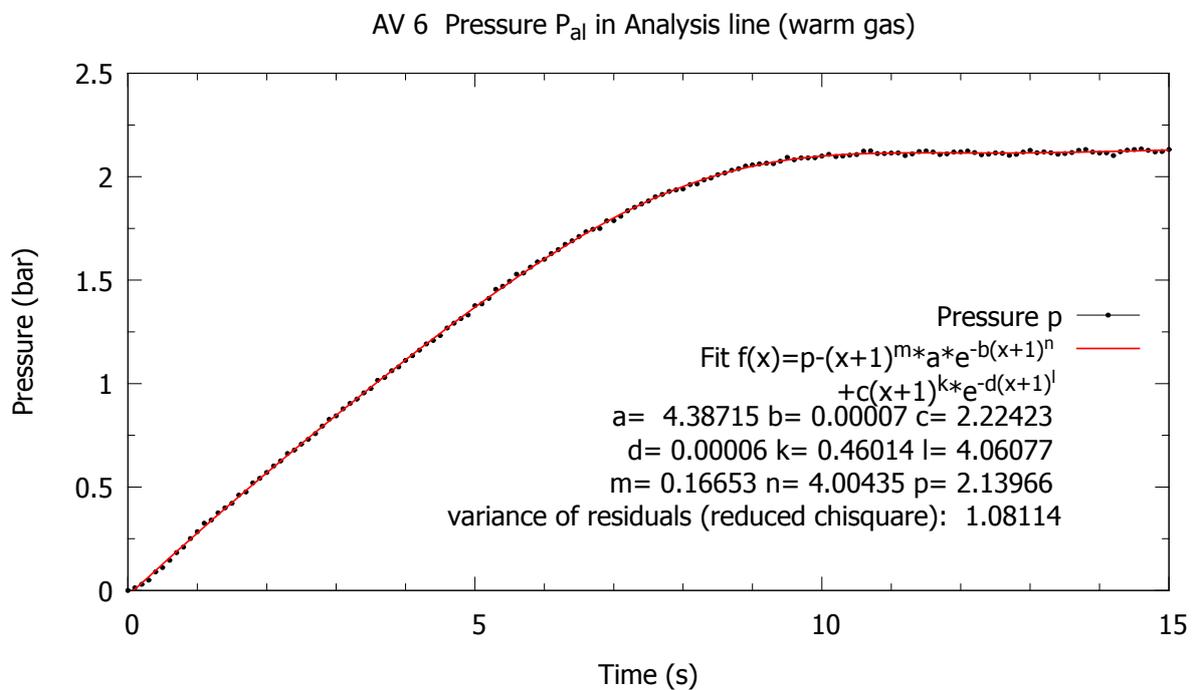


Abbildung A.5.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV6 für die Messung mit warmem Gas.

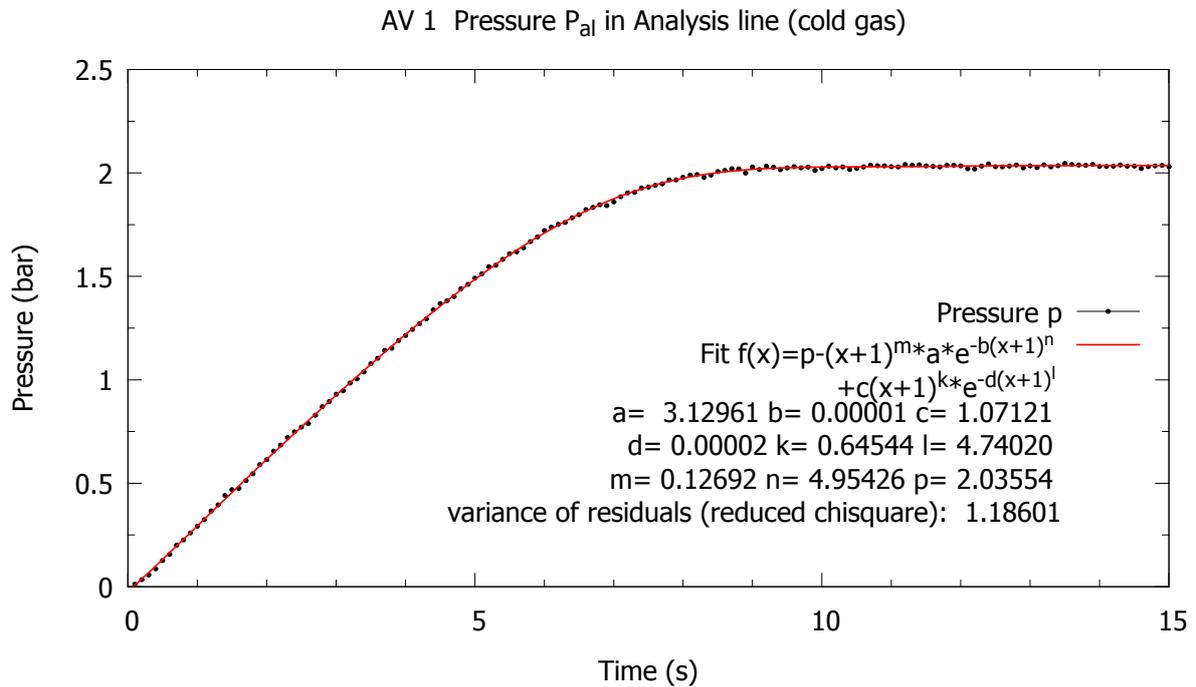


Abbildung A.6.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV1 für die Messung mit kaltem Gas.

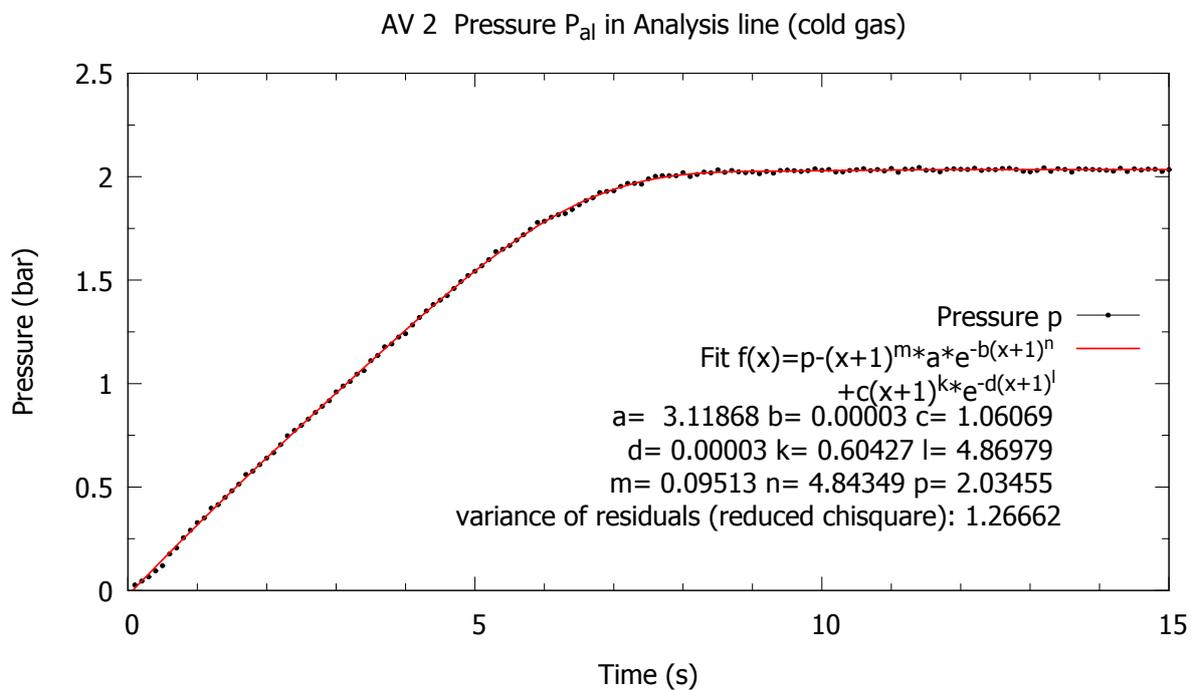


Abbildung A.7.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV2 für die Messung mit kaltem Gas.

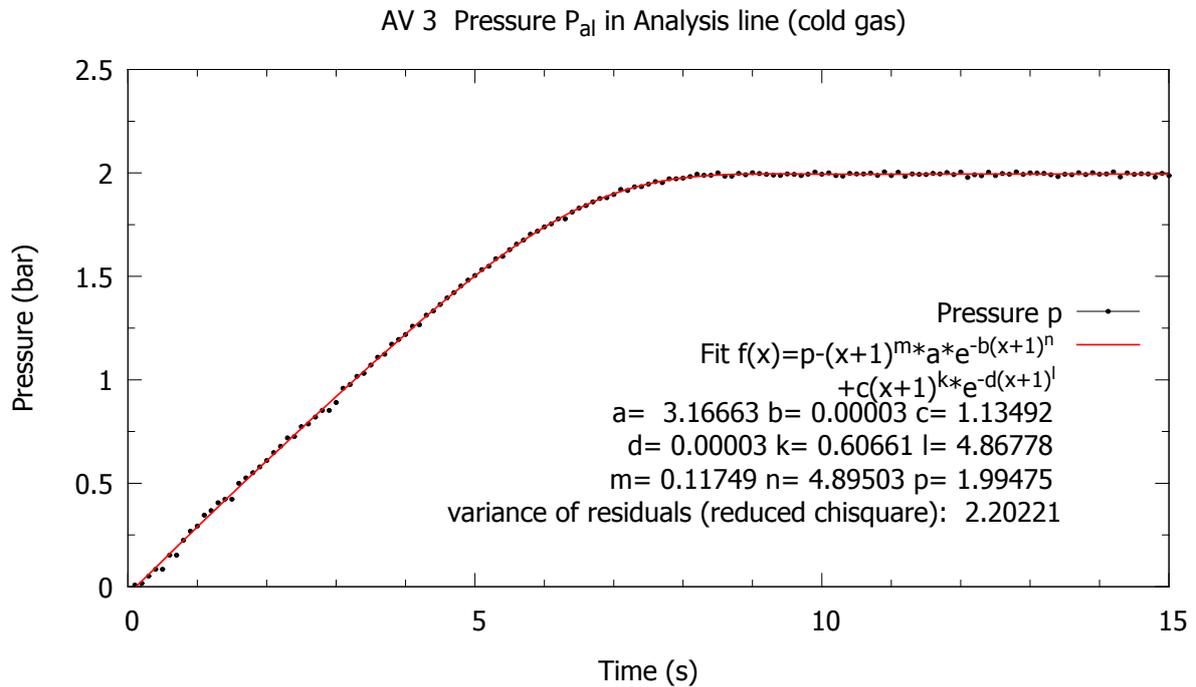


Abbildung A.8.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV3 für die Messung mit kaltem Gas.

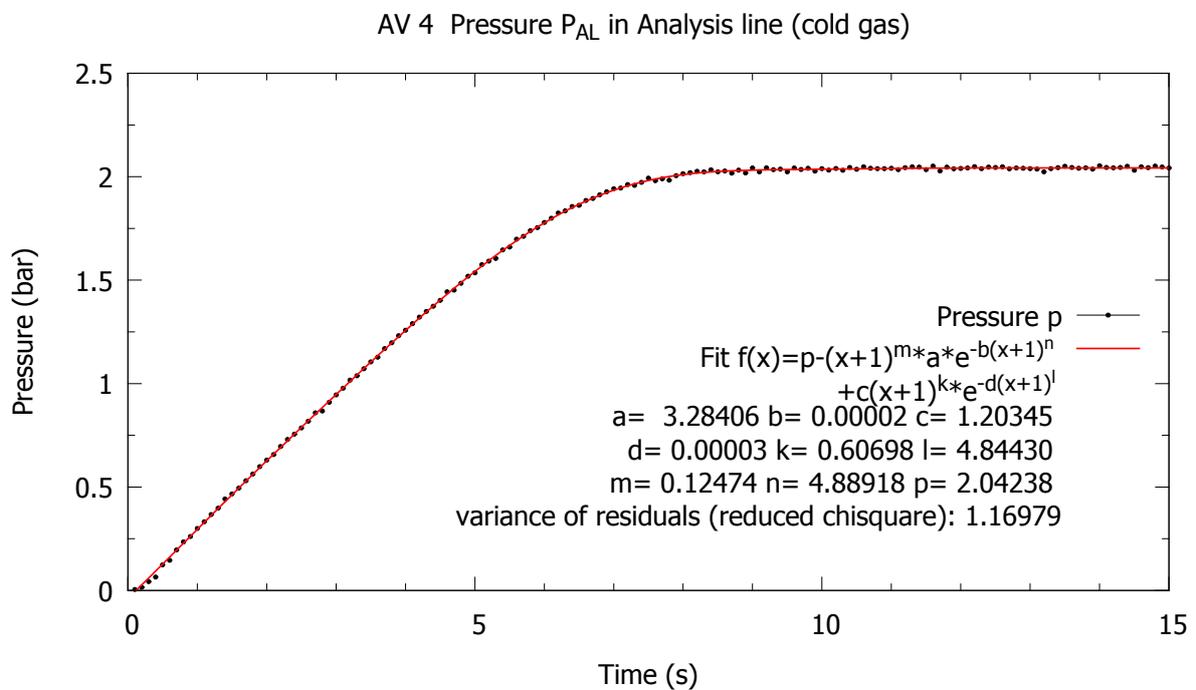


Abbildung A.9.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV4 für die Messung mit kaltem Gas.

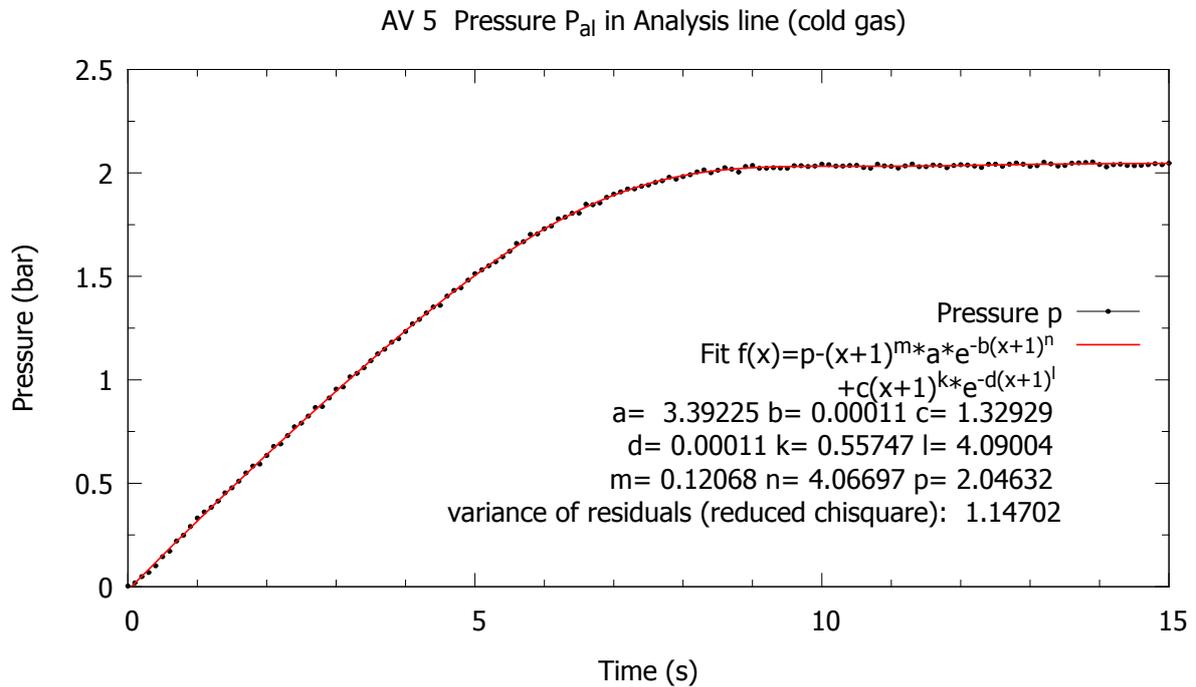


Abbildung A.10.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV5 für die Messung mit kaltem Gas.

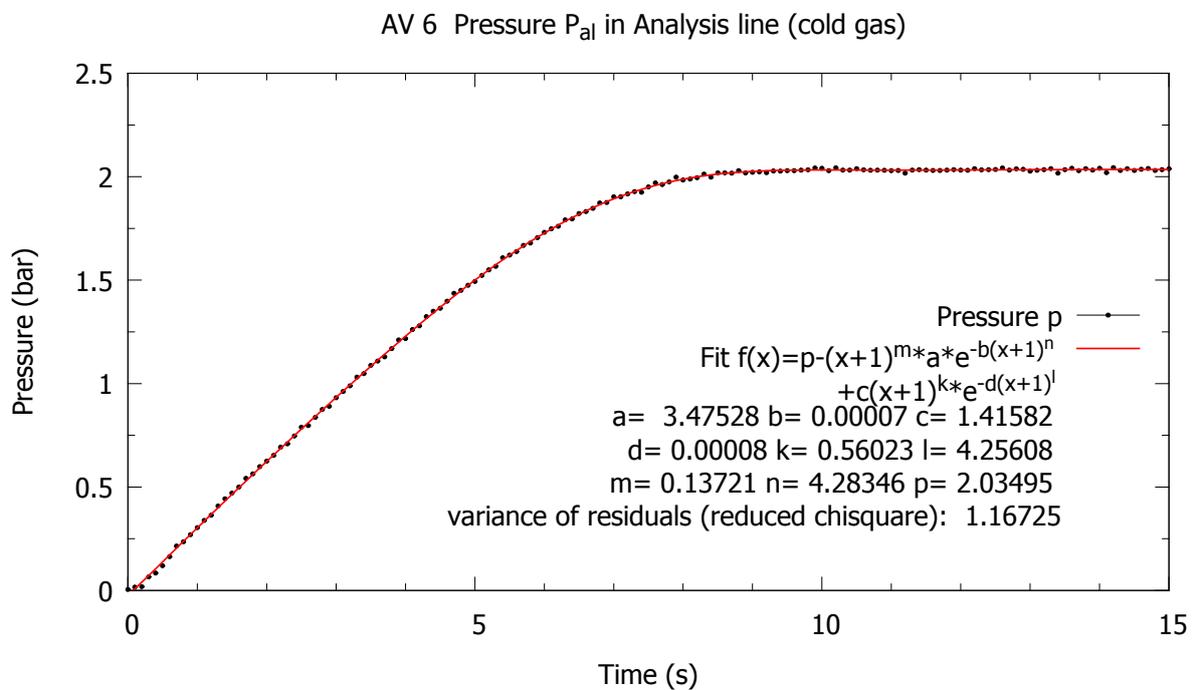


Abbildung A.11.: Druck p_{al} gegen die Zeit nach Öffnen von AV6 für die Messung mit kaltem Gas.