

Die Chemie von GALLEX – Messung von Sonnenneutrinos mit einem radiochemischen Galliumdetektor

Von Edmund Henrich und Klaus H. Ebert*

Beim GALLium-EXperiment, GALLEX, werden erstmals die energiearmen Sonnenneutrinos aus der Hauptreaktion der Wasserstoff-Fusion im Sonneninneren mit einem radiochemischen Galliumdetektor gemessen. Damit sollen die Theorien des Sternaufbaus überprüft und die Frage nach der Existenz einer Neutrinoruhemasse einer Beantwortung nähergebracht werden. Das Experiment wird von Forschergruppen mehrerer Länder in einer internationalen Kollaboration im Gran-Sasso-Untergrundlabor in den Abruzzen, Italien, durchgeführt. Im folgenden wird ein Überblick über die Planung, den Aufbau und den ersten Versuchsbetrieb des Galliumdetektors gegeben, wobei der Schwerpunkt auf den chemischen Aspekten des Experiments liegt. Dabei geht es um die Abtrennung von wenigen ^{71}Ge -Atomen aus 100 t einer salzsäuren, hochkonzentrierten GaCl_3 -Lösung in hoher und zuverlässig bestimmbarer Ausbeute, deren Isolierung und Umwandlung in German GeH_4 sowie die Messung des ^{71}Ge in einer Low-Level-Zähleinrichtung. Nach umfangreichen Vorarbeiten, die durch die extremen Anforderungen an das Experiment viel Zeit in Anspruch nahmen, liegen nun die ersten Meßergebnisse vor.

1. Einleitung

Direkte Informationen über das Innere der Sonne, in dem die energieerzeugenden Fusionsreaktionen stattfinden, sind nur über die Sonnenneutrinos zu erhalten. Während die Photonen etwa eine Million Jahre benötigen, um an die Oberfläche zu diffundieren, und sich auf diesem Weg weitestgehend verändern, gelangen die Neutrinos in 500 Sekunden vom Sonneninneren zur Erde. Das Standard-Sonnenmodell (SSM)^[1] postuliert im wesentlichen zwei Arten von Sonnenneutrinos: 1. die pp-Neutrinos aus der Hauptreaktion des Fusionszyklus mit einer Maximalenergie von 0.42 MeV, 2. energiereichere Neutrinos aus Nebenreaktionen mit Maximalenergien bis 18.8 MeV.

Bisher gelang es in aufwendigen Experimenten nur, die energiereichen Neutrinos nachzuweisen, jedoch waren die Meßwerte um mindestens die Hälfte kleiner als die nach dem SSM berechneten Erwartungswerte. Dies hat zu mannigfältigen Diskussionen und Spekulationen geführt, die sowohl die Richtigkeit des SSM als auch die Frage nach einer Ruhemasse des Neutrinos^[2, 3] betrafen. Die Lösung dieses Sonnenneutrino-Rätsels erwartet man von Experimenten, die pp-Neutrinos mit einem radiochemischen Galliumdetektor quantitativ erfassen. Zwei solche Experimente sind seit einiger Zeit im Gange: SAGE^[4], eine russisch-amerikanische Kollaboration, im Baksan-Untergrundlabor im Kaukasus^[5] und GALLEX^[6–8], eine internationale Kollaboration, im Gran-Sasso-Untergrundlabor in Italien^[9]. Alle Experimente zum Nachweis von Sonnenneutrinos müssen möglichst gut von der kosmischen Strahlung abgeschirmt sein und daher in Untergrundlaboratorien durchgeführt werden.

Der Nachweis von Neutrinos ist schwierig, da ihre Wechselwirkungen mit Materie extrem schwach sind – bei den energiearmen noch schwächer als bei den energiereichen. Die energiereicheren Neutrinos können in Echtzeitexperimenten nach Stößen mit Elektronen anhand der Čerenkov-Strahlung nachgewiesen werden, allerdings sind dazu extrem

große Detektoren notwendig. Ein solcher Detektor, der 680 t Wasser als Streumedium enthält, ist seit 1987 in Japan im Untergrundlabor der Kamioka-Mine in Betrieb. Dort wurden Neutrinos mit einer Energie > 7.3 MeV nachgewiesen^[10]. Auch mit radiochemischen Detektoren lassen sich Neutrinos nachweisen; diese Detektoren beruhen auf dem Einfang eines Neutrinos entsprechend einem umgekehrten β -Zerfall (bekanntlich werden Neutrinos beim β -Zerfall ermittelt). Durch den Neutrinoeinfang entsteht ein anderes Element, das chemisch selektiv abgetrennt werden kann. Derzeit existieren drei radiochemische Detektoren zum Nachweis der Sonnenneutrinos: ein Chlor- und zwei Galliumdetektoren.

Der Chlordetektor beruht auf der Umwandlung von ^{37}Cl in ^{37}Ar . Die Voraussetzungen dieses Detektors sind günstig: 1. Es gibt viele flüssige Verbindungen mit hohem Chloranteil, die als Target dienen können. 2. ^{37}Ar zerfällt mit einer Halbwertzeit von 35 d unter Elektroneneinfang. 3. Die Abtrennung und Reinigung von Argon ist relativ einfach. Allerdings werden mehrere 100 t Chlor benötigt, damit die Zahl der ^{37}Ar -Atome noch so groß ist, daß sie mit Low-Level-Zählmethoden sicher nachgewiesen werden können. Der Nachteil des Chlordetektors ist, daß er nur auf Neutrinos mit einer Energie über 0.81 MeV anspricht und daher die energiearmen Sonnenneutrinos nicht erfaßt. Der Chlordetektor wurde schon vor mehr als zwanzig Jahren im Brookhaven National Laboratory (BNL) von dem Chemiker Raymond Davis, einem Pionier auf dem Gebiet radiochemischer Neutrino-Detektoren, und seinen Mitarbeitern in der Homestake-Goldmine in South Dakota aufgestellt; er wird seit 1970 betrieben^[11]. Als Ergebnis umfangreicher Messungen damit erhielt man etwa ein Drittel des Erwartungswertes nach dem SSM^[12].

Der Galliumdetektor wurde bereits 1964 von Kuzmim vorgeschlagen^[13]. Er beruht auf der Umwandlung von ^{71}Ga in ^{71}Ge und ist für Neutrinos ab einer Energie von 0.23 MeV empfindlich. Lange Jahre jedoch blieb der Galliumdetektor eine Utopie, weil die Weltjahresproduktion an Gallium weit geringer war als die Mindestmenge von 30 t, die man für das Experiment benötigte. Erst im letzten Jahrzehnt nahm dank einer größeren Nachfrage die Produktion zu.

[*] Prof. Dr. K. H. Ebert, Dr. E. Henrich
Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Heiße Chemie
Postfach 3640, W-7500 Karlsruhe

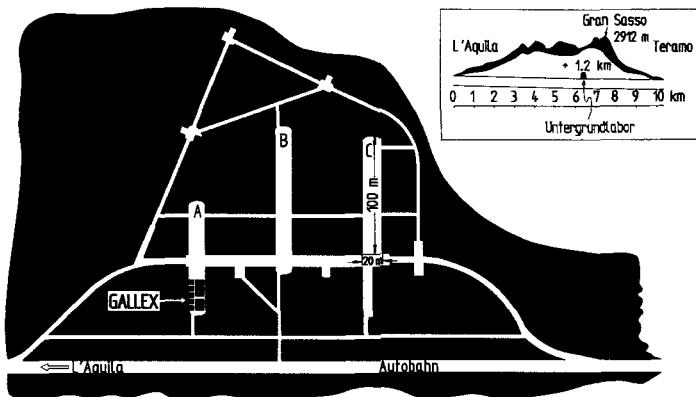


Abb. 1. Grundriß des LNGS-Untergrundlabors mit dem Standort von GALLEX in der Halle A.

Untersuchungen zum Galliumchloriddetektor wurden schon in den siebziger Jahren im BNL ausgeführt; dabei hatte man sich für eine konzentrierte, salzaure GaCl_3 -Lösung als Target entschieden^[14, 15]. Das Experiment sollte im Untergrundlabor der Homestake-Mine, deren Zugang durch den Förderschacht begrenzt ist, durchgeführt werden. Geplant war, die Gesamtmenge der Detektorlösung von etwa 100–150 t auf 20 bis 30 Tanks von etwa 3 m³ aufzuteilen und durch Entgasung das GeCl_4 aus dieser Tankbatterie abzutrennen. Das Vorhaben^[16] scheiterte Mitte der achtziger Jahre aus finanziellen Gründen. Danach hat sich auf Initiative des Max-Planck-Instituts für Kernphysik die

GALLEX-Kollaboration gebildet, der ein Platz im Gran-Sasso-Untergrundlabor schon zugesagt wurde, als dieses erst im Entstehen war. Abbildung 1 zeigt einen Grundriß des LNGS-Untergrundlabors^[9] mit dem Standort von GALLEX.

Das Standard-Sonnenmodell (SSM) und die Masse von Neutrinos

Die wesentlichen Fusionsreaktionen, in denen Wasserstoff (Protonen p) zu Helium verbrannt wird, lassen sich in den Hauptcyclus (Schema 1A), Nebenreaktionen (Schema 1B) und den CNO-Cyclus mit ^{12}C als „Katalysator“ (Schema 1C) einteilen.

Der Hauptcyclus liefert etwa 83 % der Gesamtenergie der Sonne, die Nebencyclen 15 % und der CNO-Cyclus etwa 1.6 %. Die existierenden Sonnenmodelle^[1, 17] unterscheiden sich im wesentlichen in den Anteilen der Haupt- und Nebenreaktionen und damit in der Temperatur im Sonneninneren. Bei höheren Temperaturen wird der Anteil der Nebencyclen größer. Allerdings sind durch die gesamte abgestrahlte Energie, deren Absolutwert aus der Solarkonstanten sehr genau bekannt ist, enge Grenzen gegeben.

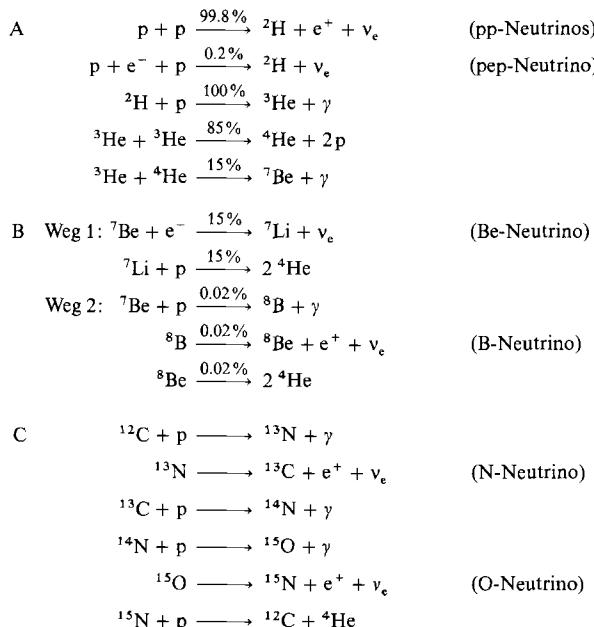
Bei sechs der Fusionsreaktionen in Schema 1 entstehen Neutrinos (ν_e). Sie werden durch das Voransetzen der Elemente, aus denen sie gebildet werden, unterschieden, z.B. pp-Neutrinos aus der Reaktion von zwei Protonen miteinander oder Be-Neutrinos aus der Reaktion des Beryllium-

Klaus Ebert, geb. 1928 in Berlin, schloß sein Chemiestudium in Wien 1953 mit der Promotion über Eigenschaften von chemisch veränderten Silicatoberflächen ab. Nach einem Postdoc-Aufenthalt an der University Durham bei Prof. Paneth und einer Assistenztätigkeit am Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz ging er 1957 als Assistent an das Institut für Technische Chemie der Technischen Hochschule München zu Prof. F. Patai, wo er sich 1964 mit Arbeiten über Mechanismus und Kinetik der enzymatischen Dextranpolymerisation habilitierte. Nach kurzer Industrietätigkeit in der BASF (1968–1969) wurde er im Wintersemester 1969 Ordinarius für Angewandte Physikalische Chemie der Universität Heidelberg, an der er auch als Dekan der Fakultät für Chemie und der Naturwissenschaftlichen Gesamtfakultät (1969–1972) sowie als Prorektor (1972–1974) wirkte. 1980 wurde er Leiter des Instituts für Heiße Chemie des Kernforschungszentrums Karlsruhe (von der Universität Heidelberg beurlaubt) und befaßte sich mit der Weiterentwicklung des Prozesses zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Seit 1984 arbeitet er am GALLEX-Projekt mit. Die Forschungsgebiete reichen von Einfluß der kosmischen Höhenstrahlung auf Meteorite über die Kinetik und Modellierung komplexer chemischer Gasreaktionen (Pyrolysen) und die Abbaumechanismen hochpolymerer Stoffe bis – neuerdings – zu Untersuchungen zur Chemie in überkritischen Fluiden. Ebert ist Mitbegründer des Sonderforschungsbereichs „Modellierung komplexer Reaktionen“, Autor des Lehrbuchs „Computeranwendungen in der Chemie“ und Mitglied der überregionalen Studienreformkommission Chemie.



Edmund Henrich wurde 1941 in Kaiserslautern geboren. Von 1961 bis 1967 studierte er Chemie an den Universitäten Mainz und Heidelberg und verbrachte einen Forschungsaufenthalt beim CERN in Genf. Nach seiner Promotion 1971 bei Franz Baumgärtner über Herstellung und Eigenschaften siebenwertiger Transurane blieb er noch bis 1974 als Assistent in Heidelberg. Seit 1974 ist er wissenschaftlicher Mitarbeiter im Kernforschungszentrum Karlsruhe. Der Schwerpunkt seiner Arbeiten lag auf der anwendungsbezogenen Entwicklung neuer Verfahren zur sicheren Beherrschung der flüchtigen Radionuclide in der Kernbrennstoffwiederaufarbeitung, insbesondere bei der Abgasreinigung, Spaltiodbehandlung und Spaltedgasrückhaltung sowie bei Reinigungsverfahren durch Kristallisation. Neben Planung, Bau und Betrieb der verfahrenstechnischen Anlagen für GALLEX wandte er sich in den letzten Jahren der Entwicklung von schadstoff- und abfallarmen Verfahren zu.





Schema 1. Wesentliche Reaktionen bei der Fusion von Wasserstoff.
A) Hauptcyclus, B) Nebenreaktionen, C) CNO-Cyclus.

kerns mit Elektronen. Die Zusammensetzung des Neutrinoeflusses der Sonne ergibt sich aus dem SSM (Tabelle 1). Die Neutrinos aus den verschiedenen Fusionreaktionen haben unterschiedliche Energien, teilweise diskrete Werte, teilweise kontinuierliche Energiespektren (Tabelle 1, Abb. 2). Für den

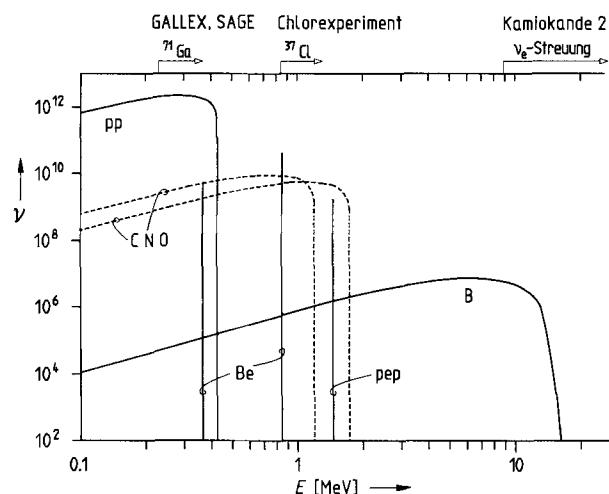


Abb. 2. Spektrum der Sonnenneutrinos (Abkürzungen siehe Schema 1). E = Neutrinoenergie; ν = Sonnenneutrinoefluß auf der Erde pro cm^2/s ; MeV; die Nachweisgrenzen der Neutrondetektoren sind oben angegeben. Kamiokande 2 = Neutrondetektor 2 in der Kamioka-Mine.

Gesamtneutrinoefluß auf der Erde errechnet sich aus dem SSM ein Wert von 66 Milliarden Neutrinos pro cm^2 und Sekunde.

Allgemein wird angenommen, daß Neutrinos keine Ruhenmasse und keine Ladung haben. Da sie nur der schwachen Wechselwirkung unterliegen, ist ihre Wechselwirkung mit Materie extrem selten und macht ihren Nachweis schwierig. Mit fallender Energie nimmt der Wirkungsquerschnitt zu dem stark ab (Abb. 3), d.h. die energiearmen Neutrinos sind noch weit schwieriger zu messen als die energiereichen.

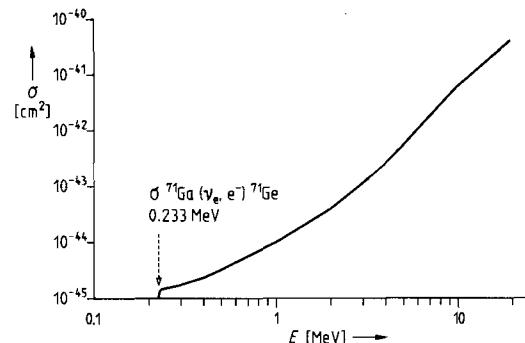


Abb. 3. Querschnitt σ der Neutrinoefangreaktion von Gallium in Abhängigkeit von der Neutrinoenergie E (nach [1]). Der gestrichelte Pfeil markiert die Schwellenenergie für den Neutronenachweis.

Gerade diese energiearmen pp-Neutrinos, die aus der Hauptreaktion kommen, haben nach dem SSM einen Anteil von 91 % am Neutrinoefluß. Auf sie spricht nur der Galliendetektor an, allerdings auch er nur auf die energiereicher unter ihnen. Die anderen Detektoren (Chlordetektor, Kamioka-Detektor) können nur die energiereichen Neutrinos aus den Nebenreaktionen, die einen geringen Anteil am gesamten Fusionssyklus haben, nachweisen. In Abbildung 2 sind die Nachweisgrenzen der Detektoren eingezeichnet.

Die Annahme, daß Neutrinos masselos sind, wurde in den letzten Jahren mehr und mehr in Frage gestellt. Für die Teilchenphysik und die Astrophysik gleichermaßen ist eine Klärung von erheblicher Bedeutung. Die moderne Physik lehrt, daß sich die Elementarteilchen in drei gleichartige Familien gruppieren lassen, die sich nur in ihren Massenwerten unterscheiden. Die Leptonen werden in die Elektron-, die Myon- und die Tauon-Familie eingeteilt. Bei den Quarks stellt sich heraus, daß Teilchenumwandlungen – Oszillationen genannt – zwischen den Familien möglich sind. Solche Oszillationen sind jedoch auf Elementarteilchen beschränkt, die eine

Tabelle 1. Beiträge der Sonnenneutrinoarten zur Produktion von ^{71}Ge oder ^{37}Ar im Gallium- bzw. Chlordetektor.

Art [a]	Energie		Neutrinoefluß [$10^6 \text{ v cm}^{-2} \text{s}^{-1}$]	[%]	Beiträge in % der Kernreaktionen	
	absolut [MeV]	relativ [%]			$^{71}\text{Ga}(\nu_e, e^-)^{71}\text{Ge}$	$^{37}\text{Cl}(\nu_e, e^-)^{37}\text{Ar}$
pp	0–0.42		$60000 \pm 2\%$	91.0	53.6	0
pep	1.44	100	$140 \pm 15\%$	0.21	2.3	2.5
Be	0.86	90	$4700 \pm 15\%$	7.1	26.0	14.0
	0.38	10				
B	0–15		$5.8 \pm 37\%$	0.009	10.6	77.5
CNO	0–1.20		$1100 \pm 58\%$	1.7	7.5	5.0
	0–1.73					
	0–1.74				100^{+15}_{-13} [b]	100 ± 33 [b]

[a] Siehe Schema 1. [b] Aufsummierte prozentuale Beiträge.

Die GALLEX-Kollaboration

Ein Experiment, das auf mehreren Gebieten der Chemie, Physik und Verfahrenstechnik derart extreme Anforderungen stellt, kann nur als Kollaboration vieler Arbeitsgruppen erfolgreich durchgeführt werden. Die GALLEX-Kollaboration hat sich im Jahre 1984 auf Initiative des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg (MPIK)^[*] formiert, kurz nachdem eine Zusammenarbeit für den gleichen Forschungszweck zwischen dem Brookhaven National Laboratory (BNL) und dem MPIK beendet worden war, weil das BNL sein Sonnenneutrino-Programm aus finanziellen Gründen reduziert hatte.

GALLEX zielte auf eine im wesentlichen westeuropäische Kollaboration hin. Es zeigte sich bald, daß das Interesse sehr groß war und daß eine reelle Chance bestand, die Mittel für die notwendigen Investitionen aufzubringen. Entscheidend für GALLEX im frühen Stadium war, daß die 30 Tonnen Gallium – immerhin eine halbe Weltjahresproduktion – beschafft und durch Zuwendungen des Bundesministeriums für Forschung und Technologie, der Alexander-Krupp-von-Bohlen-und-Halbach-Stiftung und der Max-Planck-Gesellschaft finanziert werden konnten und daß das Istituto Nazionale di Fisica Nucleare (INFN) ausreichend Platz im Laboratorio Nazionale del Gran Sasso (LNGS) in den Abruzzen, im größten Untergrundlabor der Welt, anbot.

Bereits im Jahre 1986 war die GALLEX-Kollaboration komplett; sie besteht aus Wissenschaftlern von zehn Institutionen. Zum jetzigen Zeitpunkt gehören ihr an: P. Anselmann, W. Hampel, G. Heusser, J. Kiko, T. Kirsten, E. Pernicka, R. Plaga, U. Rönn, M. Sann, C. Schlosser, R. Wink, M. Wojcik (Max-Planck-Institut für Kernphysik (MPIK), Heidelberg), R. von Ammon, K. H. Ebert, T. Fritsch, K. Hellriegel, E. Henrich, L. Stieglitz, F. Weirich (Institut für Heiße Chemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe (IKH-KFK), Karlsruhe), M. Balata, E. Bellotti, N. Ferrari, H. Lalla, T. Stolarsky (INFN – Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS), L’Aquila (Italien)), C. Cattadori, O. Cremonesi, E. Fiorini, S. Pezzoni, L. Zanotti (Dipartimento di Fisica, Università di Milano, und INFN – Sezione di Milano, Mailand (Italien)), F. von Feilitzsch, R. Mößbauer, U. Schanda (Physikalisch-Technische Universität München (TUM), Garching), G. Berthomieu, E. Schatzman (Observatoire de la Côte d’Azur, Nizza (Frankreich)), I. Carmi, I. Dostrovsky (Department of Environmental and Energy Research, Weizmann Institute of Science (WIS), Rehovot (Israel)), C. Bacci, P. Belli, R. Bernabei, S. d’Angelo, L. Paoluzzi (Dipartimento di Fisica II Università di Roma, und INFN – Sezione di Roma 2, Rom (Italien)), S. Carbit, M. Cribier, G. Dupont, L. Gosset, J. Rich, M. Sprio, C. Tao, D. Vignaud (DAPNIA, CEN-Saclay, Gif-sur-Yvette (Frankreich)), R. L. Hahn, F. X. Hartmann, J. K. Rowley, R. W. Stoerner, J. Weneser (Brookhaven National Laboratory (BNL), Upton, NY (USA)). – Am Bau und Betrieb der technischen Anlagen waren außerdem folgende KFK-Mitarbeiter beteiligt: J. Amend, O. Brenk, P. Fischer, W. Habicht, D. Heidt, M. Kluth, G. König, F. Koch, M. Persohn, J. Römer, W. Rösch, G. Schnabel, F. Schübel, P. Schwab, J. Unk, R. Will.

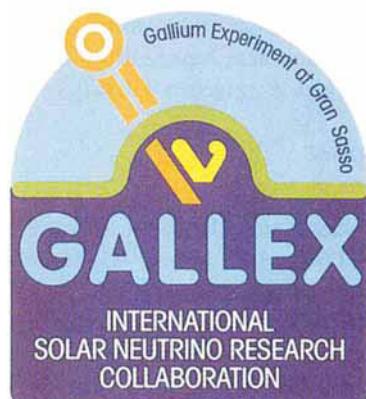
Eine Kollaboration dieser Größe kann nur erfolgreich sein, wenn einerseits die Verantwortlichkeiten bei der Planung, dem Aufbau und der Durchführung klar abgegrenzt sind und andererseits die Kommunikation reibungslos funktioniert. Die GALLEX-Kollaboration hat sich über die ganze Zeit hinweg in halbjährigem Abstand zu GALLEX-Meetings – seit Beginn des Experiments stets im LNGS – getroffen, bei denen das Programm im Detail diskutiert und festgelegt wurde. Wichtige Informationen wurden über das Jahr elektronisch (E-Mail) als „GALLEX-News“ jedem Mitglied der Kollaboration zugänglich gemacht, und der GALLEX-Koordinator vor Ort, der im Turnus von allen Gruppen gestellt wurde, sorgte dafür, daß GAL-

LEX im LNGS stets präsent war, die laufenden Geschäfte erledigte und die zahlreichen Besucher betreut wurden. Die GALLEX-Kollaboration hat in Till Kirsten einen Sprecher, der dem Projekt von Anfang an nicht nur als Promotor diente, sondern auch über die Zeit hinweg als Koordinator wirkte. Besondere Erwähnung verdient die hervorragende Ausstattung des Untergrundlagers, die der eines modernen Technikums in nichts nachsteht. Darüber hinaus ist die großzügige Unterstützung durch die Mitarbeiter des LNGS und seines Direktors Enrico Belotti hervorzuheben. Die Zusammenarbeit innerhalb der Kollaboration war bisher vorbildlich, alle Mitglieder haben sich jederzeit für das Experiment voll eingesetzt. So war es zum Beispiel auch nicht unüblich, daß sich Physiker am Betrieb der chemischen Anlage durch die Übernahme von Nachschichten beteiligten.

Innerhalb des Projekts wurden die Hauptaufgaben auf die einzelnen Gruppen verteilt. Im Verlauf des Experiments ergaben sich häufig neue Probleme und Aufgaben, die einer schnellen Lösung bedurften; sie wurden meist in interdisziplinärer Zusammenarbeit bearbeitet. So kamen sich im Laufe des Experiments die Mitglieder der Kollaboration immer näher. Dies sollte nicht vergessen werden, wenn im folgenden Aufgaben aufgelistet sind, die den einzelnen Institutionen verantwortlich zugeteilt sind.

- Wissenschaftliche und technische Infrastruktur sowie Messung der Untergrundstrahlung im Tunnel: INFN-LNGS, INFN-Milano, INFN-Roma
- Planung, Bau und Betrieb des Detektors und der verfahrenstechnischen Einrichtungen: IKH-KFK
- Spezifikation und Chemie der Detektorlösung: MPIK, KFK, BNL, TUM
- Nebenreaktionen im Detektor: INFN, CEN-Saclay, MPIK, KFK
- Umwandlung des GeCl_4 in GeH_4 , Reinigung und Einbringen in das Zählrohr: BNL, MPIK, WIS.
- Entwicklung und Betrieb der Low-Level-Zähleinrichtung, Spurenanalytik (Detektorlösung, Betriebsanalytik): MPIK
- Planung und Bau der 1.5 MCi- ^{51}Cr -Neutrinoquelle, Neutronenmessung im Prozeßgebäude: CEN-Saclay

An der Auswertung und Bewertung der Meßergebnisse beteiligten sich alle Gruppen der Kollaboration. Es war eine besonders gute Idee der Initiatoren von GALLEX, von vorneherein auch Teilchen- und Astrophysiker in die Kollaboration einzubinden. Sie haben auf den GALLEX-Meetings und in vielen Einzeldiskussionen die Experimentatoren – auch die fachfremden – durch ideenreiche Beiträge immer wieder neu motiviert und einen großen Anteil daran, daß mit der Veröffentlichung der ersten Meßergebnisse von GALLEX [6] zeitgleich auch eine Bewertung erscheinen konnte [7].



[*] T. Kirsten, *Jahresbericht des Max-Planck-Instituts für Kernphysik*, Heidelberg, 1984, S. 139.

Ruhemasse haben. Gelingt der Nachweis, daß auch Neutrinos oszillieren, müssen sie eine – wenn auch sehr kleine – Masse besitzen^[2, 3, 18].

In den Fusionsreaktionen der Sonne entstehen ausschließlich Elektron-Neutrinos ν_e , und alle radiochemischen Detektoren für Sonnenneutrinos sprechen nur auf diese Neutrinos an. Die Geschwindigkeit der Umwandlung der Elektron-Neutrinos in eine andere Art, z.B. in Myon-Neutrinos, hängt stark von ihrer Energie ab. Die bisherigen Experimente zum Nachweis von Sonnenneutrinos, die nur energiereiche Neutrinos erfaßten, haben nur die Hälfte bis ein Drittel der erwarteten Signalintensität ergeben. Dies wurde als Hinweis auf Neutrino-Oszillationen gewertet^[19]. Deshalb ist es von großem Interesse zu wissen, ob es auch für energiearme Neutrinos solche Hinweise gibt. Nur mit dem Galliumdetektor ist dazu eine Aussage möglich, da er allein auch diese Neutrinos erfaßt^[20].

Sollte sich herausstellen, daß Neutrinos eine endliche Ruhemasse haben, so gäbe deren Wert einen wichtigen Impuls für die „Grand Unified Theories“, insbesondere einen Hinweis auf die Energie, bei der sich alle elektromagnetischen, schwachen und starken Wechselwirkungen zu einer einheitlichen Kraft vereinigen. Für die Astrophysik ist es ebenfalls wichtig zu wissen, ob Neutrinos eine Masse haben. Selbst wenn diese kleiner als der 10^{-4} te Teil der Masse des Elektrons wäre, könnten die Neutrinos zur fehlenden Masse im Universum beisteuern, da ihre Zahl im All enorm groß ist. Diese Neutrinos im All stören allerdings den Nachweis der Sonnenneutrinos auf der Erde nicht, da ihre Energie und damit ihre Wechselwirkung mit Materie noch um viele Größenordnungen geringer ist als die der energiearmen pp-Neutrinos.

2. Grundlagen von GALLEX

2.1. ^{71}Ge -Produktion aus ^{71}Ga

Gallium als Neutrino-Detektor kann im Prinzip in jeder beliebigen chemischen Form eingesetzt werden. Aus ^{71}Ga wird durch den Einfang eines Neutrinos ^{71}Ge gebildet: $^{71}\text{Ga}(\nu_e, e^-) ^{71}\text{Ge}$. Dabei ist die ^{71}Ge -Produktion P durch das Produkt aus der Zahl n der ^{71}Ga -Atome, dem Neutrinoeinfangquerschnitt σ und dem Neutrinofluß Φ , integriert über die Neutrinoenergien E_i , gegeben [Gl. (a)]. In 30.3 t natürli-

$$P = n \int_0^{E_{\max}} \sigma(E_i) \Phi(E_i) dE \quad (\text{a})$$

chem Gallium – der Menge, die GALLEX zur Verfügung hat – sind 12 t, d.h. 1.037×10^{29} Atome ^{71}Ga enthalten^[21]. Eine Rechnung unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Einfangquerschnitte der Neutrinos ergab für GALLEX eine Produktion von 1.18 ^{71}Ge -Atomen pro Tag. Nach vier Wochen sind rund 16 ^{71}Ge -Atome vorhanden, da ^{71}Ge mit einer Halbwertzeit von 11.4 d zerfällt. Diese Ge-Atome müssen möglichst quantitativ und mit hoher Selektivität vom Ga-Target abgetrennt und über ihren radioaktiven Zerfall gezählt werden. Bei einer Trennausbeute von 90 % und einer Zählausbeute von 66 % würde man im Zählrohr im Mittel 9.5 ^{71}Ge -Impulse registrieren. Die Trennung und Zählung muß dann so oft wiederholt werden, bis der statistische

Meßfehler so klein ist, daß ein gesicherter Meßwert vorliegt. Dazu sind vier Jahre Meßdauer notwendig, in denen insgesamt rund 500 ^{71}Ge -Impulse registriert werden. Ein erstes Ergebnis, das auf etwa 70 ^{71}Ge -Impulsen beruht, wurde vor kurzem veröffentlicht^[6].

Es muß sichergestellt sein, daß alle ^{71}Ge -Atome aus der Reaktion mit Neutrinos und nicht durch andere Kernreaktionen entstanden sind. Die wichtigste Nebenreaktion von ^{71}Ga ist die mit schnellen Protonen ($E \geq 1.02$ MeV), bei der ebenfalls ^{71}Ge -Atome gebildet werden^[16, 22]: $^{71}\text{Ga}(p, n) ^{71}\text{Ge}$.

Protonen können auf drei Wegen entstehen: 1. durch schnelle Myonen aus der kosmischen Strahlung, 2. durch schnelle Neutronen ($E_n > 0.4$ MeV), die durch α -Strahlen in der Detektorumgebung entstehen, 3. durch α -Strahlen im Detektor selbst. Um diese Nebenreaktionen so gering wie möglich zu halten, müssen an die Reinheit der Detektorlösung sowie an die Materialien der Apparaturen und der Umgebung hohe Anforderungen gestellt werden.

2.2. Abtrennung des GeCl_4 aus einer GaCl_3 -Lösung

Das Verfahren von GALLEX ist in Abbildung 4 vereinfacht dargestellt. Es besteht aus drei Schritten: 1. Abtrennung des GeCl_4 aus dem Tank und Überführen in etwa 1 L wäßrige Lösung; 2. weitere Konzentrierung, Überführung in Germanium GeH_4 , Reinigung durch Gaschromatographie und Einfüllen in das 1 mL fassende Zählrohr; 3. Low-Level-Zählung und Identifizierung der Zählimpulse.

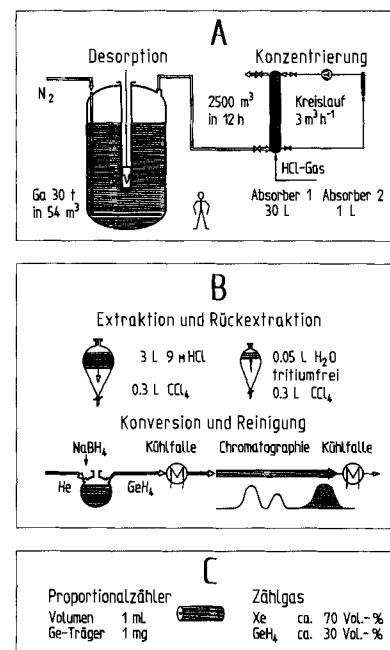


Abb. 4. Verfahrensablauf von GALLEX. A: Desorption, Absorption und Konzentrierung in 1L Lösung; B: Extraktion, Konversion und Reinigung; C: Zählen des $^{71}\text{GeH}_4$.

Das Germaniumchlorid, das in salzsaurer Lösung flüchtig ist, wird aus der Detektorlösung mit einem inertem Gas (Stickstoff) ausgetrieben (desorbiert) und in einem kleinen Flüssigkeitsvolumen wieder absorbiert. Die Flüchtigkeit von GeCl_4 ist stark abhängig von der HCl-Konzentration

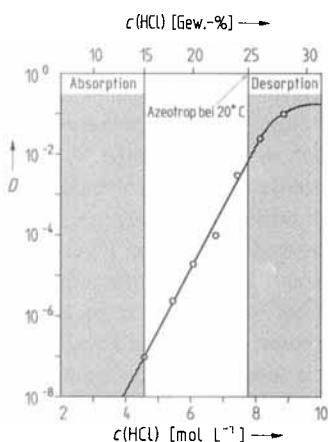


Abb. 5. Verteilungskoeffizient D von Ge^{IV} in salzsaurer Lösung. D ist definiert als das Verhältnis der Konzentrationen im Gasraum und in der Flüssigkeit.

(Abb. 5): Bei kleinen HCl-Konzentrationen hydrolysiert GeCl_4 und geht in Lösung, während es bei hohen Konzentrationen flüchtig und daher leicht austreibbar ist. In der Targetlösung genügt allerdings eine geringere HCl-Konzentration, da GaCl_3 die Flüchtigkeit von GeCl_4 erheblich steigert^[16, 23]. Dies ist in Abbildung 6 dargestellt, in der die Verteilungskoeffizienten von Ge^{IV} als Höhenlinien in Abhängigkeit von der GaCl_3 - und der HCl-Konzentration angegeben sind. Der Bereich hoher Flüchtigkeit ist durch die graue Fläche gekennzeichnet. Man erkennt eine „Zunge“, die bei einer 8 M GaCl_3 -Lösung bis fast auf eine HCl-Konzentration von 1M herunterreicht. Dort sind das Volumen der Lösung sowie die Konzentration und der Partialdruck von HCl am kleinsten. Deshalb wird zur Desorption wenig Inertgas benötigt und dabei wenig HCl ausgetragen.

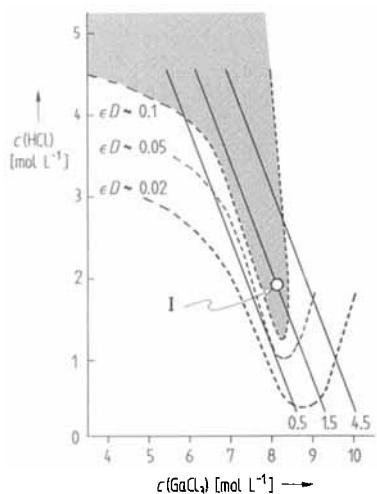


Abb. 6. Dynamischer Verteilungskoeffizient εD (gestrichelte Kurven) von Ge^{IV} in Abhängigkeit von der GaCl_3 - und der HCl-Konzentration; I = Zusammensetzung der GALLEX-Detektorlösung; durchgezogene Linien: Partialkonzentrationen von HCl in der Lösung. Die Werte an den Geraden gelten für 20 °C und sind in g m^{-3} angegeben.

Bei der Berechnung der Desorption ist zu berücksichtigen, daß ${}^{71}\text{Ge}$ während der Desorption sowohl zerfällt als auch nachgebildet wird. Daher sollte die Austreibungsdauer möglichst kurz sein. Die Menge an Ge ist zunächst ohne Bedeutung. Will man allerdings die Ausbeute der Desorption be-

stimmen, so ist die Zugabe einer inaktiven Germaniumverbindung („Ge-Träger“), erforderlich. Diese ist jedoch wegen der kleinen Zählrohre auf eine Menge von 1 mg begrenzt.

Bei konstanter Gaseinleitung nimmt die Konzentration c des Ge-Trägers in der Detektorlösung mit der Desorptionszeit t_d exponentiell ab [Gl. (b)]; c_0 ist die Anfangskonzentration und τ_d die mittlere Ge-Verweilzeit während der Desorption; diese kann gemessen oder aus Stoff- und Betriebsdaten berechnet werden [Gl. (c)]. Dabei ist G der Desorptionsgas-

$$R = c/c_0 = e^{-t_d/\tau_d} \quad (\text{b})$$

$$\tau_d = \frac{L}{G \cdot D} \quad (\text{c})$$

fluß in $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$, L das Lösungsvolumen in m^3 , D der Ge-Verteilungskoeffizient und ε ein Maß für die Einstellung des Verteilungsgleichgewichts; im Betrieb liegt ε üblicherweise zwischen 0.5 und nahezu 1.

Bei der Diskussion von Vorgängen mit wenigen Atomen muß man im Auge behalten, daß Konzentrationsangaben Mittelwerte von Poisson-Verteilungen sind. Die Abnahme der ${}^{71}\text{Ge}$ -Konzentration verläuft anfangs parallel zur der des Ge-Trägers, flacht aber dann ab. Für die Desorption von ${}^{71}\text{Ge}$ gilt Gleichung (d) mit R gemäß Gleichung (b) definiert und $A = \exp(-t_e/\tau)$, $B = \exp(-t_d/\tau)$; dabei ist t_e die Expositionszeit und τ die Lebensdauer von ${}^{71}\text{Ge}$ (16.5 d). Für die

$${}^{71}R = \frac{B - A}{1 - A} R + \frac{\tau_d}{\tau_d + \tau} \frac{1 - BR}{1 - A} \quad (\text{d})$$

${}^{71}\text{Ge}$ -Grenzkonzentration im Target, die auch bei $t_e = t_d$ nicht unterschritten werden kann, ergibt sich der näherungsweise Zusammenhang (e). Die berechneten Desorptionskur-

$${}^{71}R_{\text{grenz}} \approx \frac{\tau_d}{(\tau_d + \tau)(1 - A)} \quad (\text{e})$$

ven für den Ge-Träger und für ${}^{71}\text{GeCl}_4$ aus dem Detektortank sind in Abbildung 7 dargestellt. Daraus folgt, daß bei einer Gasdurchleitungsgeschwindigkeit von $200 \text{ m}^3 \text{h}^{-1}$ eine

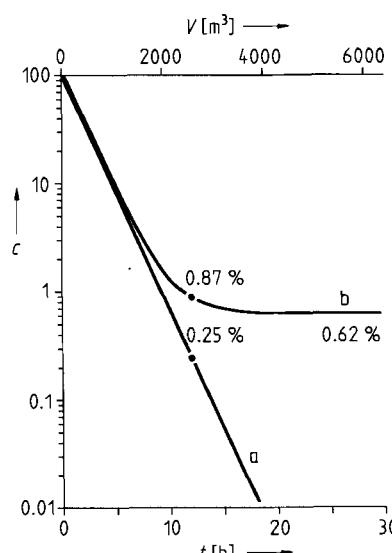


Abb. 7. Desorption von Ge-Träger (a) und ${}^{71}\text{GeCl}_4$ (b) für einen Standardlauf im Tank A ($t_e = 27 \text{ d}$, $t_d = 2 \text{ h}$); c = Ge-Anteil in Lösung in %, t = Desorptionszeit, V = Ausgasungsvolumen. Die Prozentzahlen an den Kurven geben die Restgehalte von Ge-Träger und ${}^{71}\text{Ge}$ relativ zur jeweiligen Anfangskonzentration an.

Desorptionsdauer von 12 h im optimalen Bereich liegt; längeres Ausgasen erhöht den ^{71}Ge -Zugewinn nicht mehr wesentlich. Bei geringeren Gasdurchleitungsgeschwindigkeiten verlaufen die Desorptionskurven flacher, und die Restkonzentrationen von ^{71}Ge pendeln sich bei höheren Absolutwerten ein. So wird bei einer Gasdurchleitungsgeschwindigkeit von $95 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ und einer Desorptionsdauer von 20 h – den Bedingungen der ersten Versuchsreihe im Tank B – eine Desorptionsausbeute an ^{71}Ge von 97–98 % erreicht.

Die Absorption des GeCl_4 aus dem Inertgas in einem Wäscher wurde mit dem Modell der Übergangseinheiten^[24] berechnet. Da der GeCl_4 -Partialdruck über Wasser und verdünnter Salzsäure vernachlässigbar klein ist, nimmt er mit der Packungshöhe des Wäschers exponentiell ab. In einer Pilotanlage (Maßstab 1:9) wurde die Höhe einer Übergangseinheit bestimmt, und damit die Packungshöhe der Absorber in der Anlage für eine Ausbeute von 99.8 % ausgelegt. Bei der Absorption können Verluste an GeCl_4 auch durch Desorption aus der Waschsäure, durch den Austrag kleiner Tröpfchen und durch Kondensationsnebel entstehen (siehe auch Abschnitt 5.1.). Experimentell wurden Bedingungen ermittelt, bei denen diese Verluste unter 1 % bleiben, ein sehr kleiner Wert für ein Verhältnis von Gasdurchsatz zu Waschsäurevolumen von $10^5:1$.

Während der Konzentrierungsschritte lassen sich die Trennausbeuten nur am Ge-Träger bestimmen. Dabei ist jedoch zu bedenken, daß in der Detektorlösung ein Gleichverhalten von ^{71}Ge und Ge-Träger nicht von vornherein gegeben ist, während nach der Desorption der Träger und ^{71}Ge in der gleichen chemischen Form – GeCl_4 – und in weitgehend konstantem Verhältnis (siehe Abb. 7) vorliegen. Der Detektorlösung wird der Träger als H_2GeO_3 -Lösung zugesetzt, ^{71}Ge aber entsteht durch eine Kernreaktion. Es ist bekannt, daß angeregte Rückstoßatome aus einer Kernreaktion in reaktionsträgen Systemen nach der Thermalisierung meist in anderer chemischer Form vorliegen als die gleiche Spezies im thermischen Gleichgewicht^[25]. In der Detektorlösung mit rund 50 Gew.-% Chlor (siehe Tabelle 3) ist es jedoch sehr wahrscheinlich, daß ein ^{71}Ga -Atom nach dem Neutrinoefang zuerst GeCl_4 bildet. Da der Träger in gleicher Form vorliegt, sollte dann auch das chemische Verhalten gleich sein. Darüber hinaus wurde experimentell verifiziert, daß sich ^{71}Ge -Atome, die durch β -Zerfall von ^{71}As (β^+ , Halbwertszeit 64 h) in der Lösung entstehen, genausogut desorbieren lassen wie ein zugesetzter stabiler Ge-Träger^[16, 26]. Dies läßt den Schluß zu, daß anhand des Trägers ermittelte Trennausbeuten auch für das $^{71}\text{GeCl}_4$ gelten.

2.3. Zählgas und Low-Level-Zähltechnik

Das chemische Verfahren zur quantitativen Umwandlung des abgetrennten Germaniums in GeH_4 wurde im BNL ausgearbeitet und kann im Gegensatz zu den bisher besprochenen Verfahrensschritten im Labormaßstab durchgeführt werden (Abb. 4B). Nach dem Ansäuern des 1 L-Konzentrats wird GeCl_4 durch Hin- und Rückextraktion mit CCl_4 in 50 mL tritiumfreies Wasser überführt. Durch Zugabe von tritiumfreiem NaBH_4 wird es in der Wärme bei pH 11 quantitativ zu 0.3 mL GeH_4 -Gas umgesetzt und gaschromatographisch gereinigt. Das GeH_4 wird ausgefroren und das Volu-

men für die Ausbeutebestimmung gemessen. Anschließend werden die 0.3 mL GeH_4 -Gas mit 0.7 mL aktivitätsfreiem Xenon gemischt (Abb. 4C) und in einem Gas-proportionszähler ein halbes Jahr lang gezählt. Von der Extraktion bis zum Beginn des Zählens werden rund 8 h benötigt.

Besondere Anforderungen werden an das Zählen der wenigen ^{71}Ge -Atome gestellt. Am MPIK in Heidelberg wurden die miniaturisierten Gasproportionalzähler vom Davis-Typ vor allem im Hinblick auf einen niedrigen Zähluntergrund und hohe Zählausbeuten auf den weltweit höchsten Stand entwickelt^[27]. Der hohe Standard der GALLEX-Zähler vom Typ HD2 Fe/Si hat entscheidenden Einfluß darauf, daß GALLEX mit nur 30 t Ga durchgeführt werden kann.

^{71}Ge -Atome zerfallen nach Elektroneneinfang (K- 87.7 %, L- 10.3 %, M-Einfang 2.0 %) unter Emission von Auger-Elektronen und Röntgenquanten^[28]. Die Röntgenquanten erzeugen wegen ihrer niedrigen Energie von 10.4 (K-Einfang) und 1.2 keV (L-Einfang) punktförmige Ionisationsereignisse im Zählgas, die einen schnellen Impulsanstieg bewirken. Diese Impulse lassen sich mit einer Pulsformanalyse von den langsam ansteigenden Impulsen der energiereichen Compton-Elektronen oder β -Teilchen unterscheiden, weil diese ausgedehnte Ionisationsspuren hervorrufen. In Abbildung 8 sind Zählimpulse in Abhängigkeit von der Energie und der Anstiegszeit aufgetragen. Die ^{71}Ge -Impulse liegen mit rund 95 % Wahrscheinlichkeit in den eingezeichneten K- und L-Zählfenstern. Der Zähluntergrund in den Fenstern beträgt etwa zwei Impulse pro Monat, bei einigen ausgewählten Zählrohren auch noch weniger.

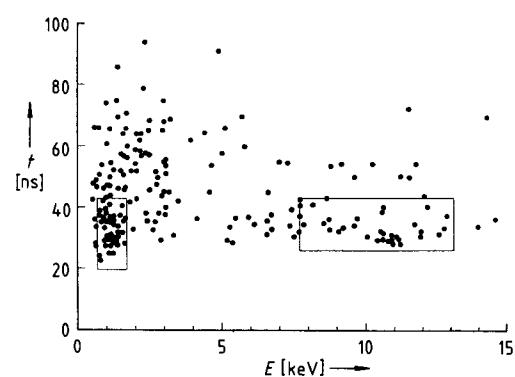


Abb. 8. Zählimpulse in Abhängigkeit von der Energie E des Impulses und der Impulsanstiegs geschwindigkeit; als Anstiegszeit t wurde die Zeit genommen, in der die Impulsenergie von 10 auf 70 % des Maximalwerts zunahm. Das Diagramm zeigt alle ^{71}Ge -Zählimpulse der ersten ^{71}Ge -Meßreihe während der ersten ^{71}Ge -Lebensdauer (16.5 d). (Aus [6].)

Werden die Zählrohre zur gleichzeitigen Messung von γ -Strahlung im Bohrloch eines großen NaI-Paarspektrometers betrieben, kann man durch Koinzidenz/Antikoinzidenz-Messungen aus den ermittelten γ -Quanten zusätzliche Informationen über die Art der zerfallenden Nuclide erhalten, allerdings auf Kosten eines etwas höheren Zähluntergrunds von ca. 1 Impuls pro Woche. Daher kann man ^{68}Ge -Zerfälle nicht nur anhand der längeren Halbwertszeit von ^{71}Ge -Zerfällen unterscheiden, sondern auch durch die verzögerte Koinzidenz der γ -Strahlung des Tochternuclids ^{68}Ga . Zerfälle von ^{69}Ge lassen sich durch direkte γ -Koinzidenz identifizieren.

3. Verfahren und Ausrüstung

3.1. Verfahrenskonzeption

Als chemische Form des Ga-Targets kamen metallisches Gallium ($F_p = 29.8^\circ\text{C}$) oder eine GaCl_3 -Lösung in Frage. Bei den Vorarbeiten im BNL hatte man sich für die GaCl_3 -Lösung entschieden und eine Reihe von Versuchen, teilweise im Pilotmaßstab, durchgeführt, so daß bereits ein gewisses Know-how vorhanden war^[16]. Für die Bewertung der beiden Targetformen war die einfachere Chemie und Verfahrenstechnik bei der Abtrennung des ^{71}Ge aus dem GaCl_3 -Target wesentlich. Ein Vorteil des metallischen Targets ist das zehnmal kleinere spezifische Volumen und die geringere Empfindlichkeit gegenüber Verunreinigungen.

Moderne Technik für die Herstellung Polyvinylidenfluorid (PVDF) ausgekleideter Behälter aus glasfaserverstärktem Vinylester (GFK) machte es möglich, die gesamten 100 t GaCl_3 -Lösung in einem Tank unterzubringen, was die Verfahrenstechnik erheblich vereinfachte^[30]. Die GFK-Tanks weisen bezüglich Korrosionsresistenz und Gewicht deutliche Vorteile gegenüber Emalztanks auf. Wegen des Umgangs mit HCl in einem Untergrundlabor mit geringem Luftwechsel sowie der Berücksichtigung von Erdbeben waren ein zweiter Tank, eine Auffangwanne und Notaufnahmetanks (100 m³) erforderlich. Der hohe Preis des Galliums und versicherungstechnische Gründe spielten dabei ebenfalls eine Rolle.

Für die Desorption war zwischen einem Kreislaufsystem und einem offenen Durchflußsystem zu entscheiden. Der Kreislauf wäre unempfindlicher gegen Verunreinigungen von außen, doch ist dieser Vorteil nur mit einer aufwendigen Verfahrenstechnik zu erkauft. Die Option wurde aufgegeben, vor allem weil ein geeigneter salzsäureresistenter Umlaufkompressor (ca. 30 kW Leistung) nicht beschafft werden konnte. Daher wurde ein Durchflußsystem konzipiert, bei dem flüssiger Stickstoff am Ort verdampft und dem Begangssystem zugeführt wird^[29, 30].

Als Absorbersystem wurden drei handelsübliche Kolonnen aus Glas mit einer Kühlung im Waschsäureumfluß vorgesehen. Eine Drei-Kolonnen-Version ist auch an einen Kreislaufbetrieb einfach anpaßbar^[30]. Die Konzentrierung, d. h. die Desorption des GeCl_4 aus der Waschlösung und die Reabsorption in einer kleinen Kolonne, erfolgte weitgehend in Apparaturen im Labormaßstab, wobei auf möglichst vollständige Entleerung und geringe Totvolumina geachtet werden mußte.

Alle verwendeten Werkstoffe und Materialien mußten bezüglich Korrosion, Verhalten gegenüber Germanium und auf α -Strahler, die schnelle Neutronen erzeugen können, untersucht werden. Besondere Vorsicht war geboten bei den zum Tankaufbau verwendeten Glasfasern sowie bei den Substanzen, die dem Tank zugeführt werden müssen. Für die Glasfasern wurde S2-Glas (Fa. Corning, USA) verwendet, das von allen verfügbaren Glasfaserqualitäten den weitaus geringsten Gehalt an Uran und Thorium aufwies.

3.2. Prozeßführung

Ein Versuchslauf (Run) beginnt mit dem Zumischen einer Lösung des Ge-Trägers, die 1 mg eines angereicherten stabilen Ge-Isotops enthält. Nach drei oder vier Wochen Exposi-

tion wird mit 2500 m³ Stickstoff, dem 0.2 % Sauerstoff zugesetzt sind, im Verlauf von 12 h ausgegast. Der Sauerstoff soll das Oxidationspotential so hoch halten, daß keine Reduktion von $\text{Ge}^{(\text{IV})}$ zu nichtflüchtigem $\text{Ge}^{(\text{II})}$ eintritt. Die Desorption wird durch Messung des Gasdurchsatzes und der HCl-Menge in den Wäschern verfolgt. Aus dem Gasstrom werden GeCl_4 und HCl (etwa 4 kg) im Gegenstrom von Wasser bei 10–12 °C absorbiert (siehe Abb. 4A). Der HCl-Gehalt in den Wäschern darf dabei 15 % nicht übersteigen, um Ge-Verluste sicher zu vermeiden. Nach dem Ende der Desorption ist das Germanium vollständig im Sumpf des ersten Wäschers in einem Volumen von 25–30 L enthalten. Der Wäscher wird dann vom System abgekoppelt und mit dem kleinen Konzentrationskreislauf verbunden. Nach Evakuierung auf 0.1 bar und Ansäuern mit HCl-Gas auf 30 % wird das GeCl_4 aus der Waschsäure mit Hilfe eines umlaufenden Gasstroms von 3 m³ h⁻¹ ausgetrieben und in den kleinen Absorber des Konzentrationskreislaufs überführt. Nach sorgfältigem Spülen der Apparatur ist das GeCl_4 vollständig in etwa 1 L verdünnter Salzsäure enthalten. An einer Probe wird die Ge-Ausbeute atomspektrometrisch bestimmt. Dann folgt die weitere Konzentrierung und die Umwandlung in German.

Um die Verluste an ^{71}Ge durch radioaktiven Zerfall klein zu halten – in 4 h zerfällt etwa 1 % – müssen alle Verfahrensschritte so schnell wie möglich durchgeführt werden. Verluste können dann in Kauf genommen werden, wenn durch einen rascheren Arbeitsablauf letztlich genausoviel ^{71}Ge in das Zählrohr gelangt.

3.3. Ausbeutebestimmung

Für die erfolgreiche Anwendung des Abtrennverfahrens muß die Ausbeute an Ge-Träger zuverlässig bestimmbare und hoch sein. Wenn das chemische Verhalten von ^{71}Ge und Ge-Träger gleich ist, kann die ^{71}Ge -Ausbeute aus der Trägerausbeute berechnet werden. Die Ausbeute wird jeweils auf die Ge-Trägermenge bezogen, die zu Beginn des Versuchs zugesetzt wurde. Bei einer Folge gleicher Versuche werden Verluste infolge unvollständiger Desorption durch die Überhangmenge aus früheren Versuchen kompensiert, was die Ausbeutebestimmung anhand des GeH_4 -Volumens verfälscht. Da Träger mit unterschiedlich angereicherten Ge-Isotopen (^{72}Ge , ^{74}Ge , ^{76}Ge) eingesetzt werden, kann massenspektrometrisch geprüft werden, ob Ge aus früheren Versuchen – oder von außen – eingeschleppt wurde. Die massenspektrometrische Analyse des Zählgases nach der Zählperiode bezieht alle Operationen in die Kontrolle ein. Der endgültige Wert für die Ausbeute liegt daher frühestens ein halbes Jahr nach der Versuchsdurchführung vor.

3.4. Technische Ausrüstung

Die gesamte Anlage ist im Prozeßgebäude im Südflügel der Halle A untergebracht (Abb. 9); lediglich die Stickstoffgasversorgung liegt außerhalb des Gebäudes. In einem sich anschließenden Gebäude befinden sich die Zähleinrichtungen. Das Prozeßgebäude ist 14.6 m lang, 9.2 m breit und 9.6 m hoch. Es beherbergt die beiden Detektortanks, das



Abb. 9. GALLEX-Prozeßgebäude in der Halle A des LNGS-Untergrundlagers.

Absorbersystem, die Laborapparaturen zur Herstellung und Reinigung von German sowie eine Reihe von Hilfsanlagen (Abb. 10). Die Abluft der Gebäudeventilation und die Gebäudeatmosphäre werden über Wäscher geführt und kontinuierlich auf HCl überwacht.

Eine Gesamtübersicht über die technische Ausstattung zeigt Abbildung 11. Als Detektortanks dienen zwei glasfaserver-

stärkte 70 m^3 -Behälter aus Vinylesterharz mit einer Innenauskleidung aus 4 mm starkem PVDF und den Außenmaßen 3.9 m Durchmesser und 7.9 m Gesamthöhe. Mit diesen Maßen ist ein Transport im Tunnel gerade noch möglich (Abb. 12). Das Zentralrohr zur Aufnahme einer Eich-Neutrinoquelle (siehe Ausblick) ist nur im Tank A vorhanden (Abb. 11). Das Begasungssystem im Tank A ist für $250 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ ausgelegt und besteht aus vier konzentrischen Rohrringen, die auf der Unterseite gelocht sind. Das Begasungssystem im Tank B besteht nur aus einem Begasungsring und ist für rund zehnmal kleinere Gasdurchsätze ausgelegt. Die Tanklösung kann durch Rohrbündelheizer auf Temperaturen zwischen 10 und 60°C thermostatisiert werden; zur Wärmeisolation sind die Tanks mit Kunststoff-Folien ummantelt. Alle inneren Tankaufbauten und die Medienseiten der Versorgungsleitungen und Pumpen sind aus PVDF gefertigt.



Abb. 12. Einfahrt eines Detektortanks in den Gran-Sasso-Tunnel.

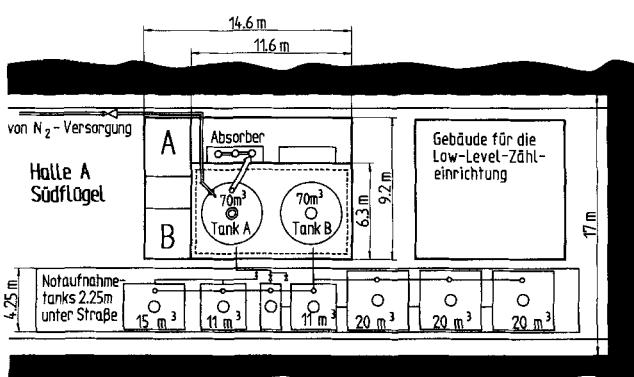


Abb. 10. Grundriß der GALLEX-Anlage (ohne Gasversorgung). A: Sicherheitsausrüstung, Werkstatt, ^{37}Ar -Labor; B: Gebäudeventilation, Lager, ^{71}Ge -Labor.

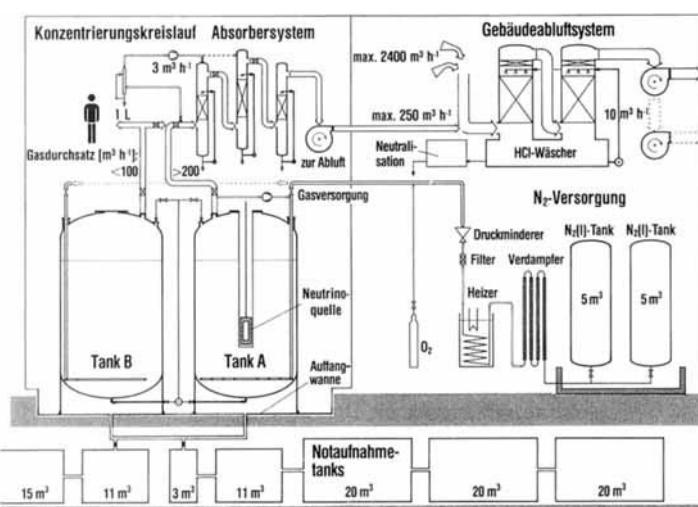


Abb. 11. Vereinfachtes Fließbild und Übersicht über die technische Ausrüstung der GALLEX-Anlage.

Das Absorbersystem besteht aus drei hintereinander geschalteten Glaskolonnen handelsüblicher Konstruktion mit einem Durchmesser von 0.3 m und einer Höhe von 3.5 m. Die Austauschbereiche sind mit 12 mm-Glaswendeln gefüllt und für einen Gasdurchsatz von maximal $250 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ (Gasgeschwindigkeit ca. 1 m s^{-1}) ausgelegt. Mit Wärmetauschern aus Tantal kann das Waschwasser auf knapp oberhalb des Taupunktes der Umgebung (8°C) thermostatisiert werden.

4. Die GaCl₃-Detektorlösung

4.1. Beschaffung und Spezifikation

Die Beschaffung der sehr großen Menge von 30.3 t Gallium in einem relativ kurzen Zeitraum als hochkonzentrierte GaCl₃-Lösung mit besonderen Reinheitsspezifikationen war eine schwierige Aufgabe. Die GaCl₃-Lösung wurde von der Fa. Rhône-Poulenc, Frankreich, hergestellt und von Dezember 1988 bis Mai 1990 in insgesamt 46 Chargen zu je etwa 2.2 t in eigens dafür konstruierten Transportbehältern geliefert. Alle Chargen wurden sorgfältig auf Gewicht, Zusammensetzung und kritische Verunreinigungen untersucht, bevor sie in den Zwischenlagertanks im Außentechnikum vereinigt wurden. Keine der Chargen gab Anlaß zu Reklamationen. Die Übereinstimmung der Analysen, die in drei Labors

Tabelle 2. Vergleich von gemessenen und spezifizierten Werten der GALLEX-Detektorlösung.

	gemessen	spezifiziert
Gehalt an Ga [g L^{-1}]	567 ± 2	565 ± 10
Gehalt an Cl [g L^{-1}]	937 ± 4	
Cl/Ga [mol/mol]	3.24 ± 0.01	>3.15
Dichte [g L^{-1}]	1887	
Gehalt an ^{226}Ra [pCi kg^{-1}]	≤ 0.04	<0.5 [a]
Gehalt an U [ppb]	<0.04	<25 [a]
Gehalt an Th [ppb]	<0.04	<2 [a]
Gehalt an Zn [ppb]	ca. 20	

[a] Aus diesen Werten folgt ein ^{71}Ge -Beitrag von 1% nach dem SSM.

durchgeführt wurden, war überraschend gut. Die vorgegebenen Spezifikationen und die gemessenen Mittelwerte sind in Tabelle 2, die Zusammensetzung und die Eigenschaften der Detektorlösung in Tabelle 3 zusammengestellt.

Tabelle 3. Zusammensetzung und Eigenschaften der Detektorlösung; 8.13 M GaCl_3 , 2.0 M HCl.

	GaCl_3	Spezies HCl	H_2O	Elemente			
				Ga	Cl	H	O
$m [\text{l}]$	78.5	3.9	20.5	30.3	50.0	2.4	18.2
Gew.-%	75.9	3.9	20.2	30	49.6	2.4	18
10^3 mol	435	107	1135	435	1411	2377	1135
Mol-%	25.9	6.4	67.7	8.1	26.3	44.4	21.2

Eigenschaften bei 20°C
 Gewicht: 100.87 t Volumen: 53.46 m³ Dichte: 1.887 t m⁻³ Partialdruck (H_2O): $0.4 \pm 0.1 \text{ gm}^{-3}$ Partialdruck (HCl): $1.55 \pm 0.1 \text{ gm}^{-3}$ (+7% pro K)
 Ge-Verteilungskoeffizient D : 0.14 (+ 2.4% pro K) Viskosität: 8 cPoise

Die Lösung mit rund 76 Gew.-% GaCl_3 entspricht eher einem „geschmolzenen Salz“; physikalisch-chemische Daten von verdünnten GaCl_3 -Lösungen können deshalb nur mit großen Vorbehalten extrapoliert werden. Die Lösung verkokt organisches Material ähnlich wie konzentrierte Schwefelsäure und ist bei Luftzutritt stark korrosiv. Dies wurde bei der Prozeßführung berücksichtigt, indem Operationen mit der Lösung auf das Allernotwendigste beschränkt wurden. Radioaktive Spurenverunreinigungen aus den natürlichen Zerfallsreihen wurden durch Aktivierungsanalyse für ^{238}U und ^{232}Th sowie durch Desorption für ^{226}Ra an allen Lieferchargen bestimmt^[22, 32]. Sie lagen zum Teil weit unterhalb der Spezifikationen (siehe Tabelle 2).

Das Vorhandensein von chemischen Verunreinigungen, die für die GeCl_4 -Desorption kritisch sind, wurde an Proben

der Detektorlösung durch Messung des Desorptionsverhaltens von trägerfreiem ^{68}Ge überprüft. Dabei entsprach die anfängliche ^{68}Ge -Konzentration etwa der Ge-Trägerkonzentration beim Experiment. Die Desorptionskurve zeigt zunächst eine exponentielle Abnahme und flacht unterhalb von 0.1 % deutlich ab (Abb. 13)^[33]. Dieser schwerflüchtige Anteil an Germanium – auch Tail genannt – ist ein empfindlicher Indikator für anderweitig schwer nachweisbare Spurenverunreinigungen. Die Untersuchungen ergaben Hinweise darauf, daß Spuren von Kieselsäure die Verursacher der Tails sind^[31–33].

Bei einem so extremen Low-Level-Experiment können bereits rund 60 Atome ^{68}Ge den Zähluntergrund verdoppeln, eine Zahl, die acht Größenordnungen unterhalb der Nachweisgrenze von Kontaminationsmonitoren liegt. Dies erklärt die besondere Vorsicht, die beim Arbeiten in der GALLEX-Anlage geboten ist.

4.2. Vordesorption von kosmogenem Germanium

Sobald die Einrichtungen im Untergrundlabor es zuließen, wurde die im Außentechnikum zwischengelagerte Detektorlösung in einem 10 m³ fassenden Behälter in den Tunnel transportiert. Kurz davor wurde das durch kosmische Strahlung erzeugte Germanium ausgegast. Abbildung 14 zeigt eine Innenansicht des Außentechnikums mit der technischen Ausrüstung: Transporttank, Absorptionskolonne und Zwischenlagertanks. Die insgesamt acht Transportchargen wurden in je 24 h mit 1000 m³ Stickstoff ausgegast. Die Desorption wurde mit Hilfe von wenigen mg Ge-Träger durch atomspektrometrische Konzentrationsbestimmung in der

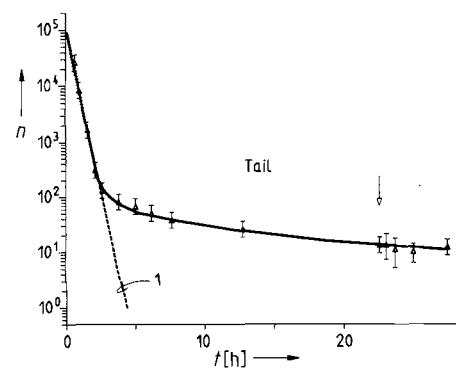


Abb. 13. Zeitlicher Verlauf der ^{68}Ge -Desorption aus der Detektorlösung; 1 = idealer Verlauf. n = Zahl der ^{68}Ge -Impulse pro mL. Nach dem Pfeil sind Meßwerte, die nach 80 d erhalten wurden, aufgetragen.



Abb. 14. LNGS-Außentechnikum mit Transporttank, Zwischenlagertanks und überbauter Brückenwaage im Vordergrund.

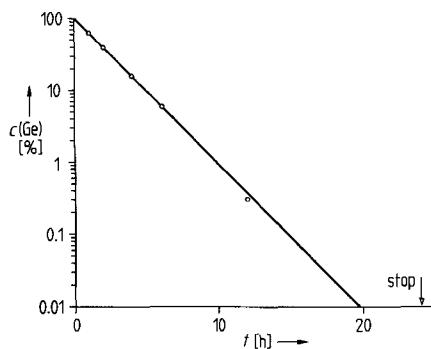


Abb. 15. Zeitliche Abnahme des Ge-Trägergehalts während der Vordesorption.

Waschsäure verfolgt. Wie Abbildung 15 zeigt, wurde ein exponentieller Desorptionsverlauf über rund zweieinhalb Größenordnungen erhalten.

Welche Mengen an kosmogener Ge-Aktivität bei der Vordesorption entfernt und wieviel davon noch in den Tunnel transportiert wurde, lässt sich nur grob angeben. Aus vorliegenden Messungen^[16, 34] wird die kosmogene Produktion von ^{71}Ge in Meereshöhe auf etwa 1000 Atome pro Tag und Tonne Gallium geschätzt. Die Produktion von ^{68}Ge und ^{69}Ge ist etwa zwei- bzw. dreimal größer^[16, 35]. Im Außen-technikum, etwa 1000 m über Meereshöhe, wird um den Faktor 2 mehr Ge produziert^[36].

Bei der Herstellung der Galliumchloridlösung wurde das kosmogene Germanium abgetrennt; während Transport und Lagerung bildete sich jedoch kosmogenes Germanium nach. Aus einer Mitteilung über die Nachproduktionszeiten aller 46 Einzelchargeen ergibt sich für die kürzerlebigen Isotope ^{69}Ge und ^{71}Ge nahezu Sättigungsaktivität und für das langlebige ^{68}Ge ein Wert, der etwa 30 % des Sättigungswertes entspricht. Das ausgegaste ^{68}Ge wurde bei drei Vordesorptionen gemessen. Hochgerechnet auf die Gesamtmenge ergeben sich 18×10^6 ^{68}Ge -Atome am Ende der Lagerzeit oder ein Sättigungswert von rund 6×10^7 Atomen, was in guter Übereinstimmung mit der Abschätzung ist.

Nach der Vordesorption blieben weniger als 0,1 % des flüchtigen kosmogenen ^{68}Ge in der Lösung zurück. Während der Desorption im Transsporttank (mittlere Verweilzeit ca. 6 h) und des Transports in den Tunnel (etwa 4 h) bildet sich wieder etwas Ge-Aktivität nach, entsprechend einer etwa zehnstündigen Exposition. Mit diesen Angaben kann die Zahl der in den Tunnel eingeschleppten kosmogenen Ge-Atome auf etwa 60000 (ca. 1 Atom pro L) geschätzt werden. Selbst diese Menge stört die eigentliche ^{71}Ge -Messung so, daß man die Vordesorption unter Abschirmung, d. h. im Untergrundlabor, vervollständigen muß. Wenn alle ^{68}Ge -Atome in flüchtiger Form vorlägen, würden dazu drei Ausgusungen genügen. Sind Tails vorhanden, wird die Desorption verzögert und erfordert zusätzliche Maßnahmen. Für das kurzlebige ^{69}Ge und für ^{71}Ge löst sich das Problem durch den Zerfall innerhalb weniger Monate von selbst.

4.3. ^{68}Ge -Desorption im Detektortank

Im Juni 1990 war die gesamte Detektorlösung in den Tank B transferiert. Zur Entfernung der restlichen ^{68}Ge -Aktivität wurde genau so verfahren wie bei ^{71}Ge -Messungen,

außer daß auf hohe Ausbeuten kein so großer Wert gelegt werden mußte. Nach den ersten Versuchen stellte sich heraus, daß die ^{68}Ge -Freisetzung mit 100–200 Atomen pro Tag persistent war und erheblich über der tolerierbaren Menge von ≤ 3 Atomen pro Tag lag (Abb. 16). Zuerst wurde durch

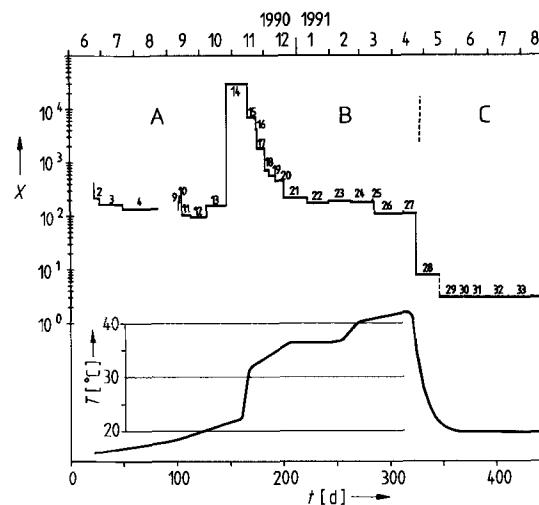


Abb. 16. Freisetzung x von ^{68}Ge in Atomen pro Tag im Tank B (Runs B2–B33) im Verlauf der Temperaturbehandlung der Tanklösung (untere Kurve). A: kalte Runs; B: warme Runs; C: kalte Runs, ^{71}Ge -Messung. Die Messungen erfassen die Zeit von Juni 1990 bis Juli 1991 (obere Skala).

Blindversuche sichergestellt, daß die Freisetzung nicht durch Memoryeffekte aus den Absorbern vorgetäuscht wurde. Das Begasungssystems im Tank B wurde mit einem Durchsatz bis $95 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ weit im Überlastbereich gefahren, um die erforderlichen Desorptionsausbeuten in maximal 20 h zu erreichen. Dafür wurden Absorptionsverluste durch den Austrag kleiner Lösungströpfchen und durch Kondensationsnebel von einigen Prozent in Kauf genommen.

Die Eigenschaften der ^{68}Ge -Tails im Detektortank müssen nicht mit denen der im Labor untersuchten übereinstimmen, da sich die Konzentrationen um mehrere Größenordnungen unterscheiden und die Vorgeschichte verschieden ist. Deshalb wurde versucht, durch erhöhte Trägerzugabe (vier Runs (B5–B8) mit je 10 mg Ge-Träger) sowie durch Runs mit unterschiedlich langer Exposition (B9–B13) die Freisetzungsraten zu verringern. Die unverändert starke Freisetzung (Abb. 16A) belegt die Reaktionsträgheit der Tailsspezies gegenüber Isotopenaustausch und weist auf eine gleichbleibende Freisetzung aus einem ^{68}Ge -Depot hin.

Daraufhin wurde die Lösung thermisch behandelt; sie wurde im Verlauf von sechs Monaten bis auf 42 °C erwärmt, einige Zeit dort belassen und dann wieder abgekühlt (Abb. 16B, C). Während dieser Zeit wurden laufend Desorptionen durchgeführt. Beim ersten Erwärmen über 30 °C wurden rund 600000 ^{68}Ge -Atome desorbiert, was – zerfalls-korrigiert – etwa 5 % des ursprünglich vorhandenen kosmogenen ^{68}Ge -Inventars entspricht. In der Folge sank die Freisetzung – trotz weiterem Erwärmen – allmählich wieder auf das ursprüngliche Niveau von etwa 100 ^{68}Ge -Atomen pro Tag. Unter der Annahme, daß die Freisetzung tatsächlich auf die Zersetzung einer Ge-Spezies mit einer Aktivierungs-energie von etwa 100 kJ mol^{-1} – die sich letztlich aus den bei 40 und 25 °C freigesetzten Mengen ergab – zurückzuführen ist, war zu erwarten, daß sich nach dem Abkühlen (Runs B27

und B28) die ^{68}Ge -Freisetzung auf das angestrebte niedrige Niveau von ≤ 3 ^{68}Ge -Atomen pro Tag einstellte. Als dies der Fall war (Abb. 16C) konnte die erste ^{71}Ge -Meßreihe begonnen werden. Es wurde entschieden, diese zunächst im Tank B weiter zu führen.

5. Erster Versuchsbetrieb

5.1. Germaniumausbeuten

Für die Messung der ^{71}Ge -Produktion im Tank B mußte wieder größerer Wert auf das Erreichen hoher Absorptionsausbeuten gelegt werden. Die Absorptionsausbeuten an GeCl_4 und HCl in den drei Kolonnen sind in Tabelle 4 für mehrere Betriebsbedingungen zusammengestellt. Die Zahlen

die letzte Kolonne verschleppt und gehen für die Messung verloren.

Für die aus dem GeH_4 -Volumen ermittelte Zählrohrausbeute erhält man für alle ab B35 durchgeführten Versuche einen Mittelwert von $91.8 \pm 2.2\%$. Dieser Wert muß noch um die Überhangmenge aus dem vorangegangenen Run korrigiert werden, die aus der Isotopenzusammensetzung des Germaniums im Zählgas erhalten wird. Bei den bisher gemessenen Runs – die meisten sind noch nicht zu Ende gezählt – wurden 98.5–99% des eingesetzten Trägers wiedergefunden, was mit der aus den Betriebsdaten berechneten Überhangmenge von 1–1.5% gut übereinstimmt (siehe auch die Gleichungen in Abschnitt 2.2).

In Tabelle 5 ist die Ge-Massenbilanz für den Ge-Träger und ^{71}Ge für die unter Standardbedingungen durchgeführten Versuche in den Tanks A und B zusammengefaßt. Die

Tabelle 4. Prozentuale Absorptionsausbeuten an GeCl_4 und HCl .

Kolonne	1	2	3
<i>Tank A:</i> Gasdurchsatz ca. $200 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$			
GeCl_4	> 99	< 0.5	< 0.5
HCl	> 99.2	< 0.7	< 0.1
<i>Tank B:</i> Gasdurchsatz ca. $95 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$			
GeCl_4	88.5	3.4	8.1
HCl	74.3	9.1	16.6
GeCl_4 [a]	88.6	9.3	2.1

[a] Mit Ansäuern des Nebels nach Kolonne 1.

sind Mittelwerte von Versuchsgruppen mit gleichen Betriebsbedingungen. Während beim auslegungsgemäßen Betrieb im Tank A GeCl_4 und HCl bereits in der ersten Kolonne zu über 99% absorbiert werden, werden sie beim Überlastbetrieb des Begasungssystems im Tank B durch die Bildung von Kondensationsnebeln teilweise in die zweite und dritte Kolonne verschleppt und erst dort vollständig zurückgehalten. Die Ursache der Nebelbildung ist der scharfe Gasstrahl aus den Düsen des Begasungsrohrs im Überlastbereich: Pro m^3 Gas werden ca. 0.14 mL Lösung als ca. 1 μm große Tröpfchen ausgetragen. In der feuchten, mit HCl übersättigten Gasphase der Wäscher sind diese Tröpfchen gute Kondensationskeime und wachsen in der Wäscherpackung auf den etwa vierfachen Durchmesser zu einem Kondensationsnebel von 8 mL m^{-3} an. Bei geringem Druckverlust und kleinen Gasgeschwindigkeiten ($\leq 0.4 \text{ m s}^{-1}$) können die Nebeltröpfchen die Wäscherpackung passieren^[37]. Der letzte Wäscher wird bei höherem Druckverlust knapp unterhalb des Flutungspunktes betrieben, so daß der Nebel sicher zurückgehalten wird.

Aus der ersten Kolonne werden GeCl_4 und HCl ausschließlich als Nebel verschleppt. Deshalb wurde durch Einspeisen von HCl -Gas (4 kg in 7 h) nach der ersten Kolonne der Nebel so stark angesäuert, daß GeCl_4 aus ihm in die Gasphase freigesetzt wurde. In der zweiten Kolonne wurde es dann wieder absorbiert. Nachdem rund 80% des GeCl_4 aus dem Tank desorbiert waren, wurde die HCl -Einspeisung abgebrochen, damit in der Waschsäure der zweiten Kolonne die HCl -Konzentration unter 15 Gew.-% blieb. Die Wirksamkeit dieser einfachen Maßnahme ist aus Tabelle 4 ersichtlich (letzte Zeile): statt 8–9% werden nur etwa 2% des GeCl_4 in

Tabelle 5. Massenbilanz für den Ge-Träger und ^{71}Ge in den Tanks A und B.

	Tank B	Tank A
<i>GeH₄-Ausbeute [%]</i>		
Ge-Träger	91 ± 2	$95 + \pm 2$
(^{71}Ge)	86 ± 2	$91 + \pm 2$
<i>Verlustquellen [%]</i>		
Desorption	1.5	0.3 [a]
Absorption	3	1
Konzentrierung	1	1
Probenentnahme	1	0.5
Zählgaspräparation	2.5	2

[a] Aus Betriebsdaten ermittelt.

Verluste an ^{71}Ge durch radioaktiven Zerfall (Differenz zwischen Ge-Träger und ^{71}Ge -Ausbeute) hängen von der Dauer der Operationen ab. Für die Abschätzung der Verluste bei der Desorption des Trägers muß die Überhangmenge des Trägers und der ^{71}Ge -Anteil berücksichtigt werden. In Tabelle 6 sind die Ausbeuten aller Versuche der ^{71}Ge -Meßreihe zusammengestellt.

5.2. ^{71}Ge -Produktion durch Nebenreaktionen

Beiträge von Nebenreaktionen zur ^{71}Ge -Produktion wurden aus einer Reihe von zusätzlichen Untersuchungen abgeschätzt. Der Fluß von kosmischen Myonen und schnellen Neutronen wurde vor Ort im Tunnel gemessen^[38, 39]. Der integrale ^{71}Ge -Produktionsquerschnitt wurde mit Myonenstrahlen^[35] und Pu-Be-Neutronenquellen bekannter Intensität^[16] direkt an der Detektorlösung ermittelt. Aus Produktionsquerschnitt und Teilchenfluß errechnet sich im Untergrundlabor für Myonen ein Betrag, der den erwarteten SSM-Meßwert um $2.9 \pm 0.9\%$ erhöht. Für schnelle Neutronen ergibt sich eine Korrektur von weniger als 0.2%.

Die integrale ^{71}Ge -Produktion durch α -Teilchen wurde direkt in einer 8 M GaCl_3 -Lösung gemessen^[14, 16]. Daraus wurde die zur Produktion eines ^{71}Ge -Atoms erforderliche Zahl Z von α -Teilchen mit (f) als Näherungsgleichung errechnet. E_α wird dabei in MeV (4–9) eingesetzt. Die Rech-

$$\lg Z = 15.36 - 0.67 E_\alpha \quad (f)$$

Tabelle 6. Trägerausbeuten der ersten ^{71}Ge -Meßreihe.

Run	Exposition Ende	Dauer [d]	Ge-Träger Isotop/Menge [μmol]	nach Absorption [%]	Ge-Trägerausbeuten nach Konzentrierung [%]	im Zählrohr [%]
B29	4. Juni 1991	20.96	74/15.68	100.3	90.2	83.7
B30	5. Juni 1991	1.27	72/13.87	102.9	87.4	88.0
B31	26. Juni 1991	20.77	76/15.42	103.5	89.0	84.4
B32	17. Juli 1991	21.00	74/14.29	n.b. [a]	89.1	85.0
B33	7. August 1991	21.00	72/13.80	n.b. [a]	85.4	87.0
B34	28. August 1991	21.00	76/16.27	97.8	87.4	85.2
B35 [b]	19. September 1991	22.25	74/15.88	97.0	94.2	92.6
B36	9. Oktober 1991	19.70	72/13.35	94.4	96.0	93.5
B37	10. Oktober 1991	1.17	76/15.14	95.2	97.3	92.8
B38	30. Oktober 1991	19.88	74/15.03	100.7	89.1	88.8
B39	20. November 1991	20.96	72/11.94	104.5	92.5	92.4
B40	21. November 1991	1.17	76/14.64	104.9	96.4	92.8
B41	11. Dezember 1991	19.88	74/14.86	107.0	89.5	90.9
B42	8. Januar 1992	27.96	72/14.83	96.7	90.0	90.6
B43	9. Januar 1992	1.17	76/15.25	99.7	100.3	94.2
B44 [c]	29. Januar 1992	19.88	74/13.82	101.6	—	[d]
B45	19. Februar 1992	20.96	72/13.35	105.0	95.2	92.8
B46	20. Februar 1992	1.21	76/13.12	98.3	96.2	93.8
B47	11. März 1992	19.81	74/15.02	n.b. [a]	92.9	86.1
B48	12. März 1992	1.19	72/13.56	n.b. [a]	99.2	92.8
B49	31. März 1992	18.83	76/14.83	98.3	97.5	93.2
B50	29. April 1992	29.00	74/15.23	99.0	95.5	89.1
[e, f]				100.5 ± 3.8	94.7 ± 3.5	91.8 ± 2.2
[f, g]				101.1 ± 2.6	88.1 ± 1.7	85.6 ± 1.6

[a] Nicht bestimmt. [b] Ansäuern des Nebels und Standardbedingungen ab B35. [c] Reduktion des statischen Betriebsinhalts im Konzentrationsabsorber von 0.07 auf 0.05 L ab B44. [d] Verlust bei der Präparation, B44 ist nicht in die Mittelwertbildung einbezogen. [e] Mittelwerte bei Standardbedingungen (B35–B50). [f] Die Fehler der Mittelwerte enthalten sowohl die analytischen Bestimmungsfehler als auch die Reproduzierbarkeit der Versuchsdurchführung. Die analytisch am genauesten bestimmmbaren Zählrohrausbeuten sind auf rund $\pm 2\%$ reproduzierbar. [g] Mittelwerte ohne Ansäuern des Nebels (B29–B34).

nung ergibt, daß beispielsweise 1 % des SSM-Erwartungswertes von 200 mg ^{232}Th , im Gleichgewicht mit seinen Tochternucliden, erzeugt wird. Die effektiveren, kurzlebigen α -Strahler entstehen als Töchter langlebiger Nuclide, deshalb müssen auch die langlebigen Radioelemente der natürlichen Zerfallsreihen genauestens kontrolliert werden. In der heutigen Umwelt sollte man zur Absicherung auch Transurane in eine solche Kontrolle einbeziehen. Daher wurden α -spektrometrische Analysen von Transuranen sowie von ^{210}Pb , ^{210}Po und ^{228}Ra durchgeführt^[40]. Bisherige Untersuchungen ergaben, daß die Summe aller bekannten Nebenreaktionsbeiträge durch α -Strahler unter 0.2 % des SSM-Signals liegt.

Gegenüber schnellen Neutronen (≥ 0.4 MeV) ist die Detektorlösung wesentlich empfindlicher als gegenüber α -Teilchen. Die bei der Spontanspaltung ermittelten Neutronen tragen bei schweren gg-Kernen, z.B. ^{244}Pu und ^{252}Cf , mehr zur ^{71}Ge -Produktion bei als die gleichzeitig ermittelten α -Teilchen. Da die α -spektrometrische Analyse zu unempfindlich ist, wird derzeit ein globaler Nachweis von Spontanspaltungereignissen im Tank über die Abtrennung und Messung des Spaltprodukts ^{133}Xe (Halbwertszeit 5.25 d) vorbereitet. Außerdem ist vorgesehen, über die Messung der ^{69}Ge -Produktion weitere Hinweise auf störende Nebenreaktionen zu erhalten.

5.3. Ergebnisse der ersten ^{71}Ge -Meßreihe^[6]

Zwischen Mai 1991 und April 1992 wurden 16 Runs mit drei oder vier Wochen Expositionszeit und 5 Runs mit kurzer Expositionszeit (ca. 1.2 d) durchgeführt (Runs 29–50). Die kurzen Runs sind eine Art Blindversuche, um einge-

schleppte Ge-Aktivität zu detektieren; sie wurden über die gesamte Meßperiode verteilt und ergaben sehr geringe Werte von $6_{-6}^{+12}\%$ des SSM-Signals, was nicht zu einer Korrektur der Meßwerte Anlaß gibt.

Die Zählrohrausbeuten (Tabelle 6) umfassen alle Operationen bis einschließlich dem Einfüllen des Zählgases in das Zählrohr. Von 13 Runs war die Zählperiode im Juni 1992 noch nicht abgeschlossen, d.h. die genaue Bestimmung des Zähluntergrunds ist noch nicht beendet. Die Ergebnisse der ersten Meßperiode umfassen insgesamt 295 Expositionstage.

Die Zählimpulse wurden anhand der Energie und der Impulsanstiegszeit diskriminiert. Abbildung 8 zeigt alle registrierten Impulse während der ersten Lebensdauer des ^{71}Ge . Die Zählfenster für den K- und den L-Peak wurden für jedes Zählrohr durch Kalibrierung ermittelt. Für die Berechnung der ^{71}Ge -Produktion aus den Impulsen innerhalb der beiden Fenster wurde eine „Maximum-likelihood“-Analyse angewendet^[41]. Die ursprüngliche Zahl der ^{71}Ge -Atome erhält

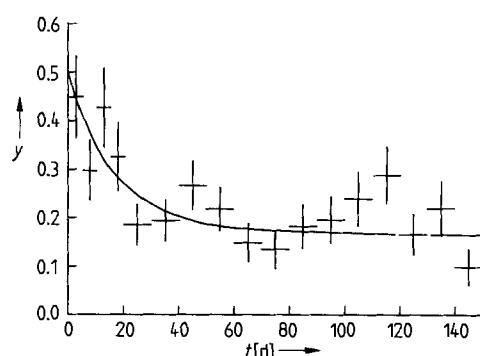


Abb. 17. Abfall der ^{71}Ge -Impulszahl pro Tag (y) im Verlauf der Zählzeit (Mittelwerte von 14 Runs; aus [6]).

man durch Extrapolation aus der Halbwertszeit von 11.43 d und unter der Annahme eines konstanten Untergrunds. Die Ergebnisse sind in Abbildung 17 für alle L- und K-Impulse von 14 Runs zusammengestellt. Die durchgezogene Linie stellt die beste Anpassung an den gemessenen Wert für den Zähluntergrund dar. Abbildung 18 zeigt die Ergebnisse der einzelnen ^{71}Ge -Meßruns. Monte-Carlo-Simulationen ergeben, daß die Abweichungen innerhalb des statistischen Fehlers liegen, der wegen der geringen Gesamtzahl der Impulse (ungefähr 70) noch relativ hoch ist.

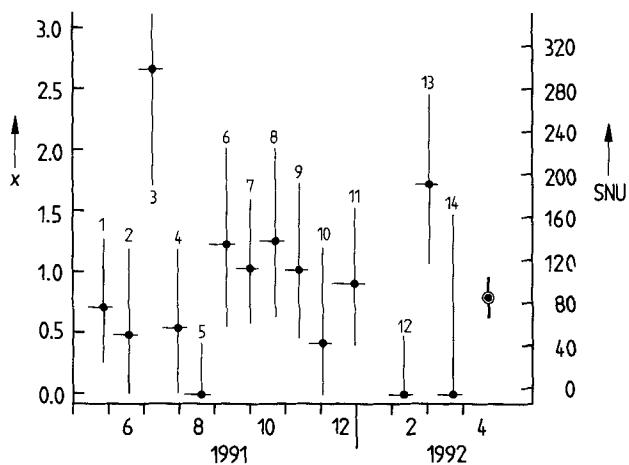


Abb. 18. Ergebnisse der ersten Meßreihe (Mai 1991 – April 1992, 14 Runs); der Mittelwert ist ganz rechts eingezeichnet (aus [6]). $x = {^{71}\text{Ge}}$ -Produktion in Atomen pro Tag. (Aus [6].)

Die Analyse der Zählimpulse ergab eine mittlere ^{71}Ge -Produktion im Detektortank von 0.80 ± 0.17 ^{71}Ge -Atomen pro Tag. Da in der Astrophysik ein Neutrinoefang pro Sekunde und 10^{36} Targetatomen als 1 SNU (Solar Neutrino Unit) bezeichnet wird, ergibt sich ein Wert von 90 ± 19 SNU. Von diesem Wert sind als Korrekturen folgende Zahlenwerte abzuziehen: 1. Myonen: 3.7 ± 1.1 SNU; 2. α -Strahler in der Detektorlösung: 0.2 SNU; 3. schnelle Neutronen: 0.15 ± 0.1 SNU; 4. Radon: 2 ± 1 SNU; 5. ^{69}Ge aus Myonen und ^{8}B -Neutrinos: 1 ± 1 SNU.

Beiträge zum systematischen Fehler aus der Zählausbeute ($\pm 3.6\%$), der Festlegung der Impulsanstiegsgrenzen ($\pm 1.8\%$) und der chemischen Ausbeute ($\pm 1.5\%$) sind noch zu berücksichtigen. Dann erhält man als Ergebnis für den Fluß der Sonnenneutrinos die Ausdrücke (g) und (h). Der

$$(83 \pm 19[\text{statistisch}] \pm 8[\text{systematisch}])\text{SNU} \text{ für } 1\sigma \text{ Fehler} \quad (\text{g})$$

$$(63 \pm 14[\text{statistisch}] \pm 6[\text{systematisch}])\% \text{ des SSM-} \\ \text{Erwartungswertes von } 132 \text{ SNU} \quad (\text{h})$$

SNU-Wert gemäß (g) ist in Abbildung 18 ganz rechts eingezeichnet. Aus der Anpassung der Meßwerte in Abbildung 17 erhält man für die Lebensdauer von ^{71}Ge $13.5^{+5.2}_{-3.5}$ d, was statistisch mit dem Wert von 16.5 d in Einklang ist.

Eine Bewertung dieses Ergebnisses^[17] in Zusammenhang mit den Theorien des Sternaufbaus und der Fusionsreaktionen im Sterninneren sowie der Neutrinoeigenschaften läßt den Schluß zu, daß GALLEX erstmals den Nachweis der energiearmen pp-Neutrinos aus der Hauptreaktion der Sonne erbracht hat. Das Ergebnis von GALLEX kann in Übereinstimmung mit dem SSM sein, wenn man den noch relativ

großen Fehler berücksichtigt. Aussagen zur Frage, ob Neutrinos eine Ruhemasse haben, sind nicht so eindeutig möglich. Zusammen mit den Ergebnissen aus dem Chlorexperiment^[12] und den Messungen des Kaminoka-Detektors^[10] können aber Grenzen für die Neutrinomasse angegeben werden und – was vielleicht noch wichtiger ist – bestimmte Massenbereiche ausgeschlossen werden. So scheint der wahrscheinlichste Bereich für die Differenz der Massenquadrate von Elektron- und Myon-Neutrino um 10^{-5} eV zu liegen, woraus sich für das schwerere Myon-Neutrino eine Masse von wenigen 10^{-3} eV ergeben würde. Dies ist für die Astrophysik jedoch ein zu kleiner Wert, um die fehlende Masse im Weltall zu erklären.

6. Ausblick

GALLEX ist für eine Meßdauer von vier Jahren konzipiert. Für die Genauigkeit des Endergebnisses sind sowohl hohe Ausbeuten an ^{71}Ge als auch die Kontrolle aller denkbaren Nebenreaktionen wichtig. Gerade der zweite Punkt wird auch in Zukunft mit allem Nachdruck bearbeitet werden. Bei der Überprüfung weiterer Nebenreaktionen erwarten wir aber keine grundlegende Änderung der bisherigen Ergebnisse. Bezüglich der Ausbeuten sind wir an einem Punkt angelangt, an dem keine wesentliche Verbesserung mehr möglich ist, insbesondere nachdem nun die Desorptionen seit Juni 1992 aus dem dafür ausgelegten Tank A erfolgen.

Die ^{71}Ge -Messungen wurden ab August 1992 fortgesetzt (Betriebsperiode 2) und sind zunächst für ein weiteres Jahr geplant. Dabei sollen im Vierwochenrhythmus abwechselnd Runs mit 27 und 1 d Expositionsdauer gefahren werden. Mit vielen kurzen Runs kann man durch Extrapolation auf die Expositionszeit Null einen Nullwert für die ^{71}Ge -Produktion bestimmen und Störungen durch eingeschleppte Ge-Aktivität ausschließen.

Eine wichtige Absicherung der Meßergebnisse ist die Eichung des GALLEX-Detektors mit einer ^{51}Cr -Neutrinoquelle (Halbwertszeit 28 d), die durch Bestrahlung von angereichertem metallischem ^{50}Cr im Höchstflußreaktor in Grenoble hergestellt wird. Sie wird eine Stärke von mehr als 1.5 MCi haben und im Zentrum der Detektorlösung ein ^{71}Ge -Signal erzeugen, das anfangs rund zehnmal größer ist als das auf die Sonnenneutrinos zurückzuführende. Die Vorbereitungen zu zwei Eichexperimenten, die im Anschluß an die zweite Betriebsperiode für Ende 1993 und für 1994 vorgesehen sind, befinden sich im Zeitplan^[42]. Durch diese Eichexperimente soll die korrekte Konzeption des Experiments, der experimentelle Aufbau und die Durchführung aller Operationen nochmals überprüft werden. Im Anschluß daran ist eine weitere zweijährige Meßzeit vorgesehen, um den statistischen Fehler des Ergebnisses weiter zu verringern.

Wenn nach vier Jahren Meßdauer ein Ergebnis über die Fusionsreaktionen der Sonne vorliegt, wird die Mission von GALLEX sicherlich nicht zu Ende sein. Untersuchungen zur Frage eines Zusammenhangs zwischen längerfristigen Schwankungen des Neutrinoflusses und den elfjährigen Sonnenfleckencyclen können eine weitere Aufgabe für GALLEX sein.

Eingegangen am 24. Juli 1992 [A 882]

- [1] J. N. Bahcall, *Neutrino Astrophysics*, Cambridge University Press, 1989; J. N. Bahcall, R. K. Ulrich, *Rev. Mod. Phys.* **1988**, *60*, 297.
- [2] S. P. Mikheev, A. Y. Smirnov, *Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis. C* **1986**, *9*, 17; L. Wolfenstein, *Phys. Rev. D* **1978**, *17*, 2369.
- [3] T. K. Kuo, J. Pantaleone, *Rev. Mod. Phys.* **1989**, *61*, 937.
- [4] SAGE-collaboration, *Phys. Rev. Lett.* **1991**, *67*, 3332; SAGE-collaboration, *16th Int. Symp. Neutrino Mass Rel. Top. (Japan, 1988)*, CONF-880369-3-LA-UR 1461.
- [5] A. A. Pomansky, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B* **1986**, *17*, 406–410.
- [6] GALLEX-collaboration, *Phys. Lett. B* **1992**, *285*, 376–389.
- [7] GALLEX-collaboration, *Phys. Lett. B* **1992**, *285*, 390–397.
- [8] T. Kirsten, *Neutrino 90 (Nucl. Phys. B. (Proc. Suppl.)* **1991**, *19*, 77); T. Kirsten in *Particles and Fields 91, Vol. 2* (Hrsg.: D. Axen et al.), World Scientific, Singapore 2, **1992**, S. 942.
- [9] E. Belotti, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **1988**, *264*, 1; L. Paoluzzi, *ibid.* **1989**, *279*, 133.
- [10] K. S. Hirata, K. Inoue, T. Kajita, T. Kifune, K. Kihara, M. Nakahata, K. Nakamura, S. Ohara, N. Sato, Y. Suzuki, Y. Totsuka, Y. Yaginuma, M. Mori, Y. Oyama, A. Suzuki, K. Takahashi, M. Yamada, M. Koshiba, T. Suda, T. Tajima, K. Miyano, H. Miyata, H. Takei, Y. Fukuda, E. Kodera, Y. Nagashima, M. Takita, K. Kaneyuki, T. Tanimori, E. W. Beier, L. R. Feldscher, E. D. Frank, W. Frati, S. B. Kim, A. K. Mann, F. M. Newcomer, R. Van Berg, W. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **1990**, *65*, 1297; K. S. Hirata, K. Inoue, T. Ishida, T. Kajita, K. Kihara, M. Nakahata, K. Nakamura, S. Ohara, N. Sato, Y. Suzuki, Y. Totsuka, Y. Yaginuma, M. Mori, Y. Oyama, A. Suzuki, K. Takahashi, M. Yamada, M. Koshiba, K. Nishijima, T. Suda, T. Tajima, K. Miyano, H. Miyata, H. Takei, Y. Fukuda, E. Kodera, Y. Nagashima, M. Takita, K. Kaneyuki, T. Tanimori, E. W. Beier, L. R. Feldscher, E. D. Frank, W. Frati, S. B. Kim, A. K. Mann, F. M. Newcomer, R. Van Berg, W. Zhang, *Phys. Rev. D* **1991**, *44*, 2241.
- [11] R. Davis, D. S. Harmer, K. C. Hoffmann, *Phys. Rev. Lett.* **1968**, *20*, 1205.
- [12] R. Davis in *Proc. of the 21st Int. Cosmic Ray Conf., Vol. 12* (Hrsg.: R. J. Protheroe), University of Adelaide Press, **1990**, S. 143.
- [13] V. A. Kuzmin, *Sov. Phys. JETP (Engl. Transl.)* **1966**, *22*, 1051.
- [14] J. N. Bahcall, B. T. Cleveland, R. Davis, I. Dostrovsky, J. C. Evans, W. Frati, G. Friedlander, K. Lande, J. K. Rowley, R. W. Stoenner, J. Wenner, *Phys. Rev. Lett.* **1978**, *40*, 1351.
- [15] I. Dostrovsky in *Proc. of Informal Conf. on Status and Future of Solar Neutrino Research, Vol. 1 (Brookhaven Natl. Lab. Rep. BNL* **1978**, 50879, 231).
- [16] R. Davis, B. T. Cleveland, J. K. Rowley, S. Katcoff, L. P. Remsberg, G. Friedlander, J. Wenner: Proposal for a Fundamental Test of the Theory of Nuclear Fusion in the Sun with a Gallium Solar Neutrino Detector, Brookhaven Natl. Lab., Dept. of Chemistry, 15. April 1981; J. N. Bahcall, L. P. Remsberg, J. Wenner, B. T. Cleveland, G. Friedlander, J. K. Rowley, T. Kirsten, W. Hampel, J. Kiko, G. Heuser, E. Pernicka, R. Schlotz, M. Heubner, R. Wunderlich, G. Eymann, I. Dostrovsky: Proposal for Gallium Solar Neutrino Experiment, submitted to National Science Foundation, 21. April 1983; Brookhaven Natl. Lab.: Proposal to DOE for a Gallium Solar Neutrino Experiment, BNL-37801, 1985.
- [17] S. Turck-Chièze, S. Cahen, M. Casse, C. Dom, *Astrophys. J.* **1988**, *335*, 415.
- [18] B. Pontecorvo, *Sov. Phys. JETP (Engl. Transl.)* **1968**, *26*, 984.
- [19] A. J. Baltz, J. Wenner, *Phys. Rev. D* **1987**, *35*, 528; *ibid.* **1988**, *37*, 3364; J. Bouchez, M. Cribier, W. Hampel, J. Rich, M. Spiro, D. Vignaud, *Z. Phys. C* **1986**, *32*, 499; L. Wolfenstein, *Nature* **1986**, *323*, 579; M. Cribier, W. Hampel, J. Rich, D. Vignaud, *Phys. Lett. B* **1986**, *182*, 89.
- [20] W. Hampel, *Habilitationsschrift*, Universität Heidelberg, **1987**.
- [21] J. W. Gramlich, L. A. Machlan, *Anal. Chem.* **1985**, *57*, 1788.
- [22] A. Lenzing, Dissertation, Universität Heidelberg, **1989**.
- [23] K. Rowley, R. W. Stoenner, *Brookhaven Natl. Lab. Rep. BNL* **1984**, 40818.
- [24] T. K. Sherwood, R. L. Pigford, *Absorption and Extraction*, New York, **1952**.
- [25] G. Stöcklin, *Chemie heiliger Atome*, Verlag Chemie, Weinheim, **1969**.
- [26] R. Hahn, Vortrag auf dem 14th Gallex Meeting (Italien, Oktober 1991).
- [27] R. Wink, Dissertation, Universität Heidelberg **1988**; R. Plaga, T. Kirsten, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **1991**, *309*, 560; W. Hampel et al., *Proc. 19th Int. Cosmic Ray Conf. Vol. 5 (USA 1985)*, 422; G. Heusser, *Proc. 2nd Conf. Trends Astroparticle Phys. (Aachen, 1992)* im Druck.
- [28] C. M. Lederer, V. S. Shirley, *Table of Isotopes*, 7. Aufl., Wiley, New York, **1978**.
- [29] R. von Ammon, K. Ebert, E. Henrich, G. Knittel, J. Unk, *KFK-Nachr.* **1987**, *19*(2), 67.
- [30] E. Henrich, R. von Ammon, K. Ebert, T. Frisch, K. Hellriegel, M. Balata, *KFK-Nachr.* **1990**, *22*(3), 125.
- [31] E. Henrich, R. von Ammon, K. Ebert, T. Frisch, W. Habicht, K. Hellriegel, M. Kluth, W. Rösch, L. Stieglitz, F. Weirich, R. Will, M. Balata, *KFK-Nachr.* **1992**, *25*(3).
- [32] E. Pernicka, Vortrag auf dem 13th GALLEX Meeting (Italien, März 1991).
- [33] U. Schanda, Diplomarbeit, Technische Universität München, **1989**, sowie Mitteilungen bei Gallex-Meetings **1990–1991**.
- [34] V. N. Gavrin, Yu. I. Zakharov, *Institute for Nuclear Research, USSR Academy of Sciences*, Moskau, Preprint-0560, **1987**.
- [35] T. Storarczyk, Dissertation, Université de Paris-sud, CEA-N-2660, **1991**.
- [36] D. Lal, B. Peters in *Handbuch der Physik, Band XLVI/2* (Hrsg.: S. Flügge), Springer, Heidelberg, **1967**, S. 551.
- [37] G. L. Fairs, in *Gas Purification for Air Pollution Control* (Hrsg.: G. Nonhebel), Newnes-Butterworths, London, **1972**, S. 520.
- [38] S. P. Ahlen et al., *Phys. Lett. B* **1990**, *249*, 149; P. Belli et al., *Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis. A* **1989**, *101*, 959.
- [39] R. Aleksan et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **1989**, *274*, 203.
- [40] Die α -spektrometrischen Messungen (Universität Regensburg) sind noch nicht abgeschlossen.
- [41] B. Cleveland, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **1983**, *216*, 451.
- [42] M. Cribier, B. Pichard, J. Rich, M. Spiro, D. Vignaud, A. Besson, A. Bevilacqua, F. Capitan, G. Dupont, P. Sire, J. Gorry, W. Hampel, T. Kirsten, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **1983**, *214*, 451; F. X. Hartmann, R. L. Hahn, Brookhaven Natl. Lab. Rep. *BNL* **1991**, 51281.