

Optimierung des Gas-Jet-Systems bei TRIGA-SPEC

Diplomarbeit von

Jessica Grund

Institut für Kernchemie
Johannes Gutenberg-Universität Mainz

13. Januar 2014

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	3
2	Grundlagen der Aerosolphysik	8
2.1	Gas-Jet-Systeme	9
2.2	Aerodynamisches Strömungsverhalten	10
2.3	Ursachen für Partikelverluste	17
2.4	Koagulation von Aerosolpartikeln	21
2.5	Prinzip einer aerodynamischen Linse	23
2.5.1	Spezifika bei TRIGA-SPEC	28
2.6	Detektion und Charakterisierung von Aerosolen	29
3	Experiment	33
3.1	Aerosolherzeugung und Aerosolmaterialien	33
3.2	Transport von Spaltprodukten	34
3.3	Charakterisierung des TRIGA-SPEC-Gas-Jets	36
3.4	Überprüfung der Kalibrierung des Electrostatic Classifiers	38
3.5	Druckverhältnisse	39
3.6	Sammlungen von Spaltprodukten	40
4	Resultate	43
4.1	Kalibrierung der Ofentemperatur	43
4.2	Kalibrierung des Electrostatic Classifiers	45
4.3	Untersuchungen mit KCl	48
4.4	Untersuchungen mit CdI ₂	52
4.5	Sammlungen von transportierten Spaltprodukten mit monodispersen Aerosol	58
4.6	Abhängigkeit der Transporteffizienz von Temperatur und Gasfluss . .	63
4.7	Druckabschätzung	66

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	2
5 Diskussion	68
5.1 Einfluss des Gasflusses	68
5.2 Einfluss der Temperatur	70
5.3 Einfluss verschiedener Parameter auf den Transport von Spaltprodukten	71
5.4 Ergebnis	73
5.5 Vergleich von KCl und CdI ₂	75
6 Aerodynamische Linse	82
6.1 Designstudie	82
6.2 Design	86
7 Zusammenfassung und Ausblick	90

Kapitel 1

Einführung

Die Bindungsenergie eines Atomkerns spiegelt die im Kern wirkenden Kräfte zwischen den einzelnen Nukleonen wider und ist über den Massendefekt experimentell zugänglich. Es ist daher von fundamentalem Interesse, möglichst genaue Kenntnis über die Masse eines Kerns zu besitzen, um dadurch die bestehenden Kernmodelle überprüfen und weiterentwickeln zu können. Aus diesem Grund ist die Massenmessung wichtiger Bestandteil aktueller Forschung in der Kern- und Atomphysik. Viele neutronenreiche Nuklide sind aufgrund ihrer geringen Halbwertszeit und entsprechend begrenzter Verfügbarkeit nur in geringem Maße untersucht oder noch vollkommen unerforscht.

Das TRIGA-SPEC-Experiment (Abb. 1.1) verfügt über eine direkte Anbindung an den Forschungsreaktor TRIGA Mainz. Über kollineare Laserspektroskopie und Massenspektrometrie können bei diesem Experiment Daten über den Grundzustand neutronenreicher radioaktiver Nuklide erhalten werden. Nach dem Gas-Jet und der *common beamline* teilt sich der Aufbau in zwei verschiedene Experimente: TRIGA-LASER und TRIGA-TRAP.

Durch präzise Massenmessungen mittels einer Penningfalle werden bei TRIGA-TRAP Atommassen mit einer Genauigkeit von bis zu $\delta m/m = 10^{-8}$ erhalten. Derart genaue Messungen lassen detaillierte Rückschlüsse auf die Bindungsenergie von Atomkernen zu. Durch die *on-line* Anbindung an einen Reaktor können kurzlebig Nuklide, die aus einer neutroneninduzierten Kernspaltung von ^{235}U und ^{249}Cf entstehen, untersucht werden. Eine *off-line*-Quelle ermöglicht zusätzlich die Untersuchung

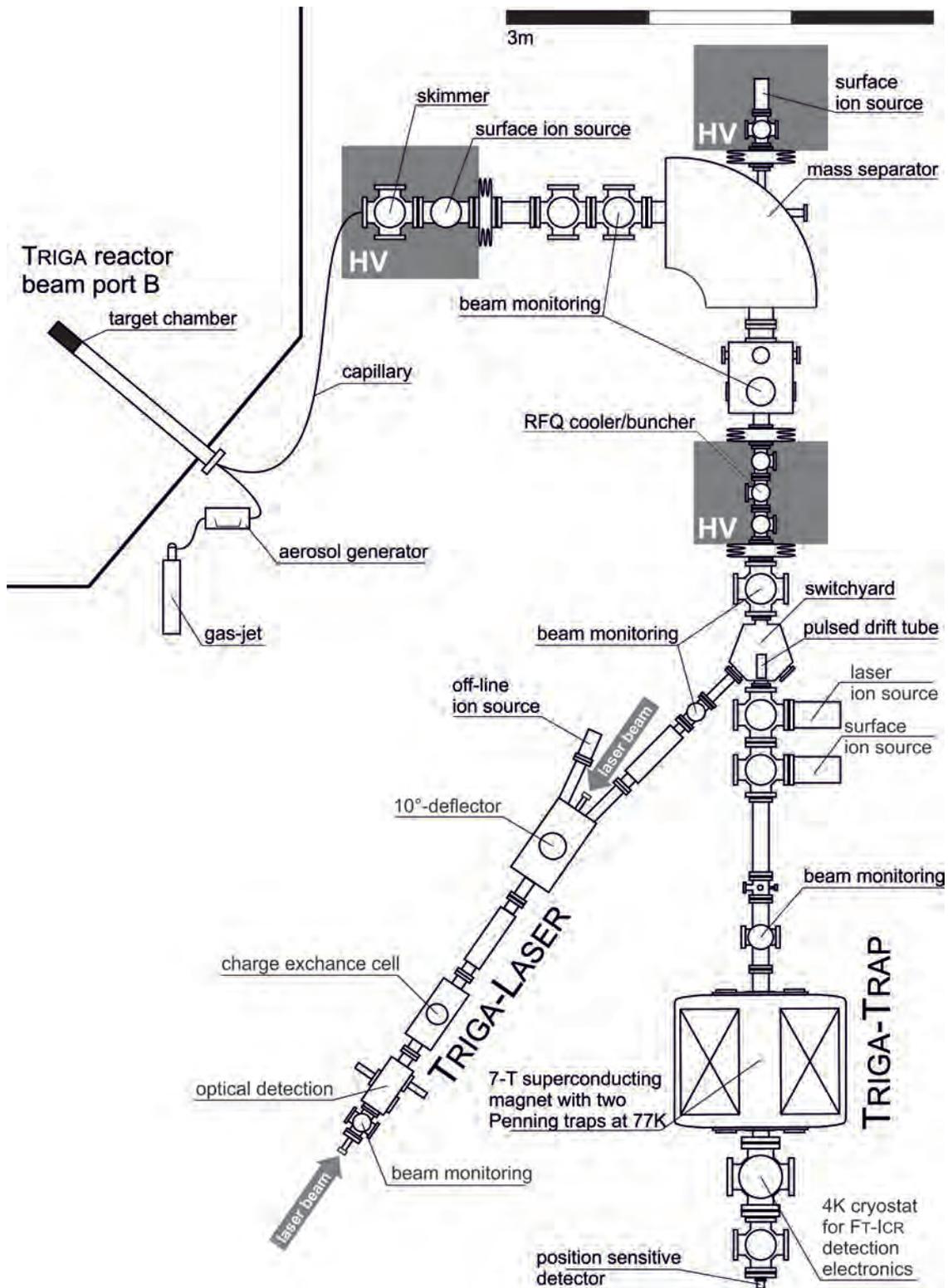


Abbildung 1.1: Das TRIGA-SPEC-Experiments am Forschungsreaktor TRIGA Mainz [Bey]. Der Aufbau teilt sich in TRIGA-LASER, einem Aufbau für kollineare Laserspektroskopie und TRIGA-TRAP, einem Penningfallen-Massenspektrometer. Hier sollen Grundzustandseigenschaften neutronreicher Spaltprodukte untersucht werden. Für Details siehe [Bey], [Ket08].

langlebiger Isotope der Transurane bis einschließlich Einsteinium.

Am TRIGA-LASER-Experiment wird mittels kollinearer Laserspektroskopie der Kernspin, der Ladungsradius, das magnetische Moment sowie das elektrische Quadrupolmoment eines Atomkerns ermittelt. Aus diesen Daten können Aussagen über die Größe und die Form von Atomkernen erhalten werden.

Ein gemeinsamer Aufbau, der die Spaltprodukte mittels eines Gas-Jet-Systems aus dem Reaktor extrahiert und zu einer Ionenquelle transportiert, versorgt die beiden Experimente mit den zu untersuchenden radioaktiven Ionen.

Gas-Jet-Systeme sind in den verschiedensten Formen seit den 1960er Jahren weit verbreitet. Sie sind prädestiniert für einen schnellen Transport von Kernreaktionsprodukten vom Entstehungsort zu Trenn- und Nachweisapparaturen. Durch Ankopplung eines Gas-Jets an chemische Systeme oder Massenseparatoren können Reaktionsprodukte mit einer Halbwertszeit von mindestens wenigen Sekunden abgetrennt und untersucht werden. Ein weiterer Vorteil liegt darin, dass ein kontinuierlicher Fluss aufrecht erhalten werden kann, sodass die Kernreaktion nicht unterbrochen werden muss. Dadurch werden *on-line* Messungen möglich, bei denen speziell kurzlebige Nuklide untersucht werden können.

Erstmals wurde diese Technik von Macfarlane et al. eingesetzt, um kurzlebige α -Emitter und verzögerte Protonenemitter zu untersuchen [Mac69]. Auf diese Weise konnten Nuklide mit einer Halbwertszeit von bis zu 1 ms Halbwertszeit studiert werden. Anfang der 70er Jahre entwickelten Wien et al. ein System, mit dem Spaltprodukte des ^{252}Cf transportiert werden konnten [Wie72]. Als deutlich wurde, dass die Effizienz eines Gas-Jet-Systems hauptsächlich von der Art des Aerosols abhängt, gab es vermehrt Untersuchungen zur Ermittlung des am besten geeigneten Materials. 1974 wurden bei der Synthese von Seaborgium erstmals anorganische Salze als Transportmittel eingesetzt [Ghi74].

Das Gas-Jet-System des TRIGA-SPEC-Experiments besteht aus mehreren Komponenten: Zunächst wird in einem Röhrenofen, dem Aerosolgenerator, eine Suspension aus festen Partikeln und Trägergas gebildet. Dieses Aerosol wird in die Targetkammer geleitet, die sich in Strahlrohr A des TRIGA-Reaktors, Mainz, befindet. Das Urantarget ist dort bei einer Reaktorleistung von 100 kW einem thermischen Neutronenfluss von $1.0 - 5.4 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}/\text{s}^{-1}$ ausgesetzt [Ebe00]. Die entstehenden Spaltprodukte werden durch das Trägergas thermalisiert und adsorbieren an die

Aerosolpartikel. Anschließend werden sie zu einem Skimmer transportiert, der das Trägergas von den Spaltprodukten trennt, sodass ausschließlich diese in die nachfolgende Ionenquelle gelangen und dort ionisiert werden. Der Übergang zwischen der aus der Targetkammer kommenden Kapillare und dem Skimmer ist in Abb. 1.2 schematisch dargestellt. Die Öffnung des Skimmers besitzt einen Durchmesser von 1

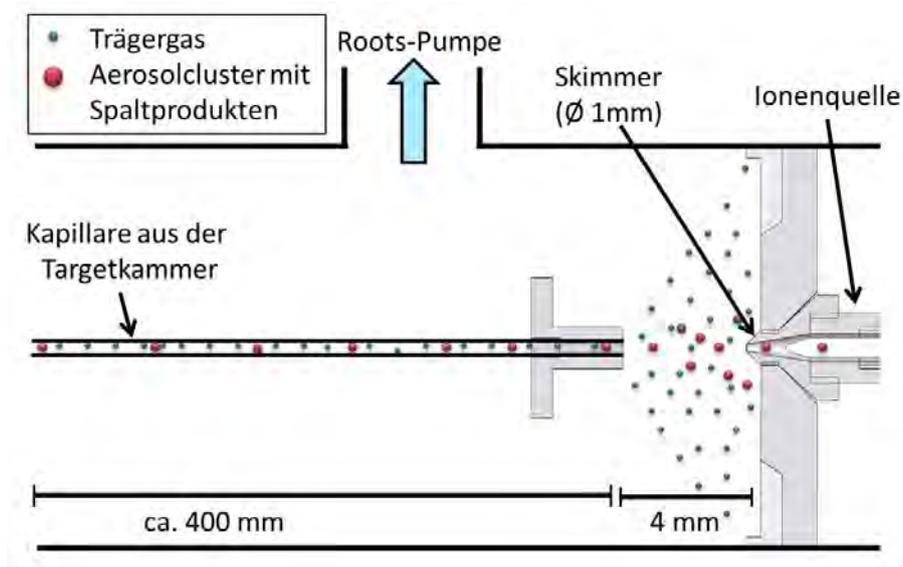


Abbildung 1.2: Übergang zwischen der aus der Targetkammer kommenden Kapillare und Skimmer mit nachfolgender Ionenquelle. Der große Öffnungswinkel der Aerosolcluster verhindert, dass die gesamte Anzahl an vorhandenen Clustern die Eingangsöffnung des Skimmers erreicht.

mm. Die Kapillare endet bereits 4 – 10 mm vor dieser Öffnung, damit das Trägergas mittels einer Pumpe entfernt werden kann. Die Transporteffizienz der Aerosolpartikel aus der Targetkammer bis zum Skimmer beträgt, abhängig von den äußeren Bedingungen, 30 – 60% [Ren13]. Die Effizienz des Skimmers wird über das Verhältnis der Anzahl an Spaltprodukten erhalten, die bis vor dem Skimmereingang und in die Ionenquelle transportiert werden. Diese Effizienz liegt momentan bei lediglich 7 – 19% [Ren13]. Die Ursache für diesen Verlust ist der Öffnungswinkel des Aerosols, der entsteht, sobald dieses die Kapillare verlässt. Dieser Öffnungswinkel nimmt mit sinkender Partikelmasse zu, wodurch das Trägergas einen weitaus größeren Öffnungswinkel besitzt als die transportierenden Aerosolcluster. Dennoch ist der Winkel dieser ausreichend groß, sodass nur ein geringer Teil der Partikel die Öffnung des Skimmers erreicht. Um die Partikelverluste zu minimieren und dadurch die Effizienz

des Skimmers zu steigern, bietet sich die Möglichkeit, eine aerodynamische Linse zu konstruieren, die den Durchmesser des Partikelstrahls reduziert und gleichzeitig den Öffnungswinkel verkleinert.

Der Gasfluss innerhalb der Linse muss subsonisch, kontinuierlich und laminar sein, um einen kollimierten Partikelstrahl zu erzeugen. Da gleichzeitig der Raum vor dem Skimmer auf nur etwa 400 mm begrenzt ist, darf die aerodynamische Linse diese Länge nicht überschreiten. Bei den bisher gegebenen Bedingungen des Experiments, einem Gasfluss von 800 – 1000 mL/min, ist es jedoch nicht möglich, eine aerodynamische Linse zu konstruieren, die diese Voraussetzung erfüllt.

Es ist daher von großem Interesse die experimentellen Bedingungen wie Gasfluss und Ofentemperatur anzupassen, sodass der Einsatz einer Linse und dadurch eine Kollimation des Partikelstrahls möglich ist, ohne die Transporteffizienz des Gas-Jets zu vermindern. Aus diesem Grund ist es notwendig, die charakteristischen Eigenschaften des Aerosols bei verschiedenen Bedingungen zu kennen und den Einfluss verschiedener Parameter auf diese Eigenschaften zu ermitteln.

Durch die Optimierung des Gas-Jets und der daraus resultierenden Konstruktion einer aerodynamischen Linse sollte die Effizienz des Skimmers signifikant gesteigert werden, wodurch mehr Spaltprodukte für nachfolgende Experimente verfügbar wären.

Kapitel 2

Grundlagen der Aerosolphysik

Als Aerosol wird grundsätzlich eine Suspension von festen Partikeln in einem Gas bezeichnet. Sie kommen in der Natur in den verschiedensten Formen zum Vorschein, z.B. als Nebel, Dunst, Rauch, Smog oder Staub. Die Quellen sind dabei ebenso vielfältig: Rauch, der während der Erzeugung von Energie oder durch Industrieanlagen entsteht, photochemisch geformte Partikel, Salzpartikel, die durch die Gischt der Meere in die Luft gelangen, oder Wolken, die aus Wassertropfen oder Eiskristallen gebildet werden, sind nur wenige mögliche Quellen. Einige dieser Aerosole überschreiten in ihrer Lebensdauer kaum einen Zeitraum von wenigen Sekunden, andere sind wiederum über mehrere Jahre beständig. Die Partikelgröße liegt bei Aerosolen typischerweise zwischen $0.002 - 100 \mu\text{m}$ und ist der wohl wichtigste Parameter, um das Verhalten von Aerosolen zu charakterisieren, da alle physikalischen Eigenschaften in unterschiedlich starkem Ausmaß davon beeinflusst werden. Aus diesem Grund muss zunächst das Verhalten der einzelnen, individuellen Partikel betrachtet werden, bevor durch Integration über die gesamte Größenverteilung das durchschnittliche Verhalten eines Aerosols erhalten wird.

Den Transport durch Aerosole erklären zu können bedeutet, die physikalischen Prinzipien eines Gasflusses, in dem Partikel suspendiert sind, zu verstehen, die Wechselwirkungen eines Partikels mit dem ihn umgebendem Gas zu erklären und zu erfahren, wie sich das Verhalten der Partikel durch Einwirkung äußerer Kräfte verändert.

Der feste Bestandteil eines Aerosols macht lediglich einen geringen Teil des Volumens und der Masse aus, meist weniger als 1 ppm. Eigenschaften wie Dichte,

Druck, Temperatur oder Viskosität des Aerosols unterscheiden sich somit nur unmerklich von denen des reinen Gases. Aus diesem Grund müssen Untersuchungen auf mikroskopischer Ebene betrachtet werden, wodurch die komplexen Eigenschaften des Aerosols auf das Verhalten von individuellen Partikeln reduziert werden. Sofern nicht anders vermerkt bezieht sich die Theorie der folgenden Kapitel auf [Hin12] und [Bar93].

2.1 Gas-Jet-Systeme

Ein Gas-Jet-System besteht im Allgemeinen aus drei Teilen: Am Anfang steht der Aerosolgenerator, in dem eine Suspension aus festen Partikeln und Trägergas gebildet wird. Es folgt die Anlagerung der radioaktiven Isotope. Den letzten Teil bildet der Transport zu den nachfolgenden experimentellen Aufbauten.

Das Aerosolmaterial muss primär gute Transporteigenschaften aufweisen. Ferner ist es von Interesse, die Trägersubstanz im Nachhinein schnell und einfach von der transportierten Spezies entfernen zu können, um diese isoliert zur Verfügung zu haben.

Es gibt verschiedenste Möglichkeiten, um Aerosolpartikel darzustellen: Eine verbreitete Möglichkeit ist die Zerstäubung von wässrigen Salzlösungen. Mit dieser Methode lassen sich z.B. Kaliumchlorid-Cluster mit einem Durchmesser von 0.01 - 0.30 μm darstellen [Zud86]. Allerdings gelangt bei der Zerstäubung nicht nur das Salz sondern auch eine erhebliche Menge an Wassermolekülen in das Trägergas, dessen spätere Entfernung nicht trivial ist. Ein Einsatz von Ammoniumchlorid in Alkohol ist eine mögliche Alternative. Bei längerem Gebrauch verstopft diese Mischung jedoch die Kapillaren [Zud86]. Eine andere Variante ist die Verwendung von Kohlenstoff-Clustern, die unter einer Helium-Atmosphäre in einem Lichtbogen zwischen Graphit-Elektroden hergestellt werden [Eib10].

Als Aerosolmaterial steht somit ein breites Spektrum an Substanzen zur Verfügung. Da Wasser oder organische Verbindungen wie Ethylen oder Öl jedoch schwer zu entfernen sind, werden meist anorganische Salze verwendet, die durch Sublimation in ein Trägergas überführt werden. Hier ist der Einsatz von Kaliumchlorid, Cadmiumiodid oder Bleichlorid weit verbreitet.

Das Aerosol wird direkt zum Entstehungsort der Spaltprodukte, d.h. in die Targetkammer geleitet. Die Spaltprodukte treten dort mit hoher kinetischer Energie aus dem Target aus und werden im Trägergas thermalisiert. Als Trägergas stehen Stickstoff oder die Edelgase Helium und Argon zur Verfügung, die nur in geringem Umfang durch Stöße ionisiert werden.

Argon hat eine große atomare Masse, wodurch das Bremsvermögen dieses Gases sehr gut ist; allerdings wird es im Reaktor in hohem Ausmaß aktiviert: Durch Neutroneneinfang entsteht in der Targetkammer ^{42}Ar , welches mit einer Halbwertszeit von 109.34 min durch einen β^- -Prozess zerfällt. Dies führt zu dem Problem, dass das im Experiment verwendete Gas gesammelt werden muss, bevor es aus dem Aufbau ausgeführt werden kann. Helium wiederum wird lediglich zu ^5He aktiviert, dessen Halbwertszeit deutlich unterhalb einer Sekunde liegt. Die entstandene Aktivität stellt somit kein Problem dar. Der Nachteil des Heliums liegt allerdings in seiner geringen Masse. Sie entspricht lediglich einem Zehntel des Werts von Argon, was dazu führt, dass zur vollständigen Thermalisierung der Spaltprodukte eine vergrößerte Targetkammer oder ein erhöhter Überdruck notwendig ist. Stickstoff liegt mit seiner atomaren Masse zwar unterhalb der von Argon, allerdings ist die Reichweite der Spaltfragmente in beiden Medien annähernd gleich. Dies liegt vermutlich darin begründet, dass Stickstoff im Gegensatz zu Argon als Molekül vorliegt. Das Molekül ist entsprechend größer als ein einzelnes Argon-Atom, wodurch sich die Anzahl an Kollisionen mit den Spaltprodukten erhöht. Gleichzeitig führt das Auftreten einer Molekülbindung zu einem erhöhten Energieverlust der Spaltfragmente bei einem Zusammenstoß [Eib09]. Ein weiterer Vorteil des Stickstoffs ist, dass dieser kaum aktiviert wird. Es entstehen folglich keine Probleme durch auftretende Aktivität.

Nach der Thermalisierung der Spaltprodukte werden diese an die Aerosolcluster adsorbiert und im Trägergas in Richtung der experimentellen Aufbauten geleitet.

2.2 Aerodynamisches Strömungsverhalten

Strömungslinien sind Feldlinien, die die Richtung des Gasflusses beschreiben. Sie zeigen die Richtung, in die sich eine infinitesimal kleinen Teilmenge des Fluids an einem beliebigen Ort des Systems bewegt und visualisieren das Verhalten eines Aerosols

innerhalb gegebener, äußerer Bedingungen. Die Strömung eines Fluids wird entweder als laminar oder turbulent beschrieben. Ein laminarer Gasfluss ist gleichmäßig, d.h. die Strömungslinien kreuzen einander nicht und es gibt weder Störungen noch Vermischung der einzelnen Ebenen. Eine turbulente Strömung ist dagegen dadurch gekennzeichnet, dass der Fluss völlig unregelmäßig verläuft.

Häufig wird beim Transport von Gas auf Systeme aus zylindrischen Rohren zurückgegriffen. Um einen eventuellen Partikelverlust vorauszusagen oder die Verteilung der Partikel innerhalb der Röhre zu erhalten, muss zunächst das Flussverhalten ermittelt werden.

Die Reibung, die das Gas erfährt, ist an den Innenwänden des Rohrs größer als in der Mitte des Systems. Dies wirkt sich entsprechend auf die Bewegung der Gasmoleküle aus, wodurch eine parabolische Geschwindigkeitsverteilung - auch Poiseuille-Fluss genannt - entsteht (Abb. 2.1). Die Strömungsgeschwindigkeit ist dabei im

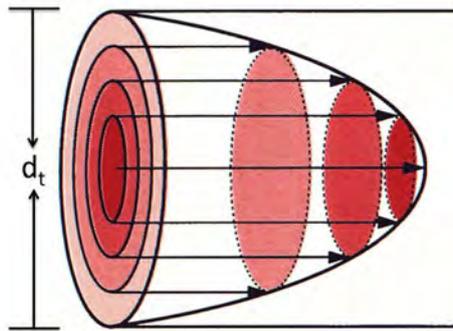


Abbildung 2.1: Parabolisches Geschwindigkeitsprofil¹

Zentrum etwa doppelt so groß, wie die durchschnittliche Geschwindigkeit in der Röhre, während sie an den Wänden Null ist.

Gasmoleküle beeinflussen die Bewegung der Partikel, wobei sich die Art dieses Einflusses ändert, sobald die Partikel kleiner sind als der Raum zwischen den Gasmolekülen. Die Reibungskraft, die ein Partikel in einem Fluid erfährt, wirkt der Geschwindigkeit des Partikels entgegen. Befindet sich das Partikel in einem Gas, wird dieses Phänomen auch schlicht Strömungswiderstand genannt. Die Größe die-

¹http://web.physik.rwth-aachen.de/~hebbeker/web-hu-lectures/hu-lectures/www-eep.physik.hu-berlin.de/_hebbeker/lectures/i189_l05.html, 10.12.2013

ses Widerstands F_{drag} kann für ein sich in Gas bewegendes Partikel durch die Stokes-Gleichung abgeschätzt werden:

$$F_{drag} = 3\pi\eta V\chi d_v \quad (2.1)$$

η entspricht der dynamischen Gasviskosität und V der Geschwindigkeit des Partikels. Da Partikel nur selten vollkommen sphärisch sind, wird der dynamische Shape-Faktor χ zur Korrektur verwendet. Entsprechend beschreibt d_v den volumenäquivalenten Durchmesser, der dem Durchmesser eines sphärischen Partikels entspricht, das die gleiche Masse hat, wie das reale, unregelmäßige Partikel.

Die Art dieser Wechselwirkungen ist zusätzlich von der Partikelgröße abhängig. Liegt der Durchmesser der Aerosolpartikel unterhalb von $1 \mu\text{m}$, so haben Zusammenstöße mit Gasmolekülen einen deutlich größeren Einfluss auf die Geschwindigkeit und Richtung der Partikelbewegung. Sind die Aerosolpartikel im Extremfall schließlich kleiner als der Abstand zwischen zwei Gasmolekülen, so können sich diese durch das Vakuum, das zwischen zwei Molekülen herrscht, hindurchbewegen, ohne mit den Gasmolekülen zu wechselwirken. Bei diesen Betrachtungen muss allgemein hervorgehoben werden, dass die Bewegung der Gasmoleküle nicht kontinuierlich ist, sondern dass es sich hierbei um ein Ensemble aus vielen, sich schnell bewegenden Molekülen handelt, die vollkommen zufällig miteinander bzw. mit anderen Partikeln kollidieren. Die durchschnittliche Strecke, die von Gasmolekülen zurückgelegt wird, bevor eine Kollision mit einem weiteren Gasmolekül stattfindet, wird als freie Weglänge λ bezeichnet:

$$\lambda = \frac{\bar{c}}{n_z} \quad (2.2)$$

n_z beschreibt dabei die durchschnittliche Anzahl an Zusammenstößen pro Sekunde und \bar{c} die durchschnittliche Geschwindigkeit der Moleküle. Für ein gegebenes Gas mit festem Moleküldurchmesser d_g ist die freie Weglänge lediglich von der Dichte des Gases anhängig, die direkt proportional zur Anzahl der Teilchen n ist:

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}n\pi d_g^2} \quad (2.3)$$

Die Wechselwirkung von Gas und Partikel wird im Allgemeinen durch die Knud-

sen Zahl Kn beschrieben; diese ist eine dimensionslose Zahl, die dem Verhältnis zwischen freier Weglänge des reinen Gases und dem Partikelradius $d_p/2$ entspricht:

$$Kn = \frac{2\lambda}{d_p} \quad (2.4)$$

Sie ist ein Maß für die Dichte der Gasströmung. $Kn \ll 1$ zeigt an, dass der Gasfluss kontinuierlich ist, d.h. die Partikel deutlich größer sind als der Abstand zwischen zwei Gasmolekülen, während bei $Kn \gg 1$ eine freie Molekularströmung vorhanden ist. Der Bereich von $Kn = 0.4 - 20$ wird als Slip Flow Regime bezeichnet, da die Partikel zwischen den Gasmolekülen hindurchschlupfen können. Dies führt zu einem verminderten Widerstand, wodurch die durchschnittliche Geschwindigkeit der Teilchen steigt. Um diesen Effekt bei der Abschätzung des Reibungswiderstandes zu berücksichtigen, wird der Cunningham-Korrekturfaktor C_c eingeführt:

$$C_c = 1 + Kn[\alpha + \beta e^{(-\gamma/Kn)}] \quad (2.5)$$

α , β und γ sind dabei empirische Konstanten, deren genaue Größe von der Art des Gases und des umgebenden Drucks abhängig ist. Sowohl bei der Molekularströmung, als auch im Slip Flow Regime nimmt C_c einen Wert >1 an, während sich dieser Faktor bei einem kontinuierlichen Fluss an 1 annähert. Der Reibungswiderstand wird somit zu Gl.(2.6) korrigiert.

$$F_{drag} = \frac{3\pi\eta V \chi d_V}{C_c} \quad (2.6)$$

Um die aerodynamischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln zu verstehen, muss als weiteres die Reynolds-Zahl Re herangezogen werden; diese ist eine dimensionslose Größe, die den Fluss durch eine Röhre oder um ein Hindernis, wie z.B. ein Aerosolpartikel beschreibt.

$$Re = \frac{\rho_g U_{rel} d_p}{\eta} \quad (2.7)$$

mit der relativen Geschwindigkeit zwischen Aerosolpartikel und Gas U_{rel} , der Dichte des Gases ρ_g und dem Durchmesser der Partikel d_p . Die Reynolds-Zahl ist somit nicht von der absoluten Geschwindigkeit des Partikels, sondern lediglich von

der relativen Geschwindigkeit zwischen Aerosolpartikel und dem es umgebenden Gas abhängig. Es ist folglich nicht von Bedeutung, ob sich die Partikel selbst durch ein stehendes Gas bewegen oder ob Gas um ein bewegungsloses Partikel strömt. Die Reynolds-Zahl ist eine der fundamentalen Größen, um das Strömungsverhalten von Fluiden zu beschreiben: Einerseits ist sie proportional zum Verhältnis von Trägheitskräften zu Reibungskräften, die auf jeden Bestandteil des Fluids wirken, wodurch abgeschätzt werden kann, welche Strömungswiderstände herrschen. Andererseits ist die Größe dieses Parameters ein Indikator dafür, ob ein Fluss turbulent oder laminar ist.

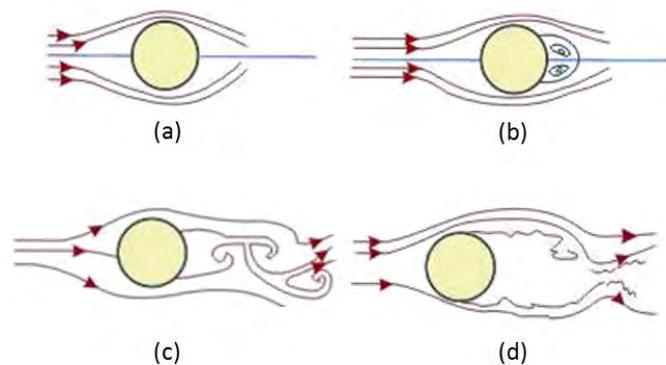


Abbildung 2.2: Gasfluss um einen sphärischen Partikel (a) $Re < 1$, (b) $Re \approx 1 - 90$, (c) $Re > 90$, (d) $Re > 500$.²

Wird das Strömungsverhalten um ein Partikel betrachtet, so wird die Partikel-Reynolds-Zahl Re_p erhalten. Bei niedrigen Reynolds-Zahlen ($Re_p < 1$) ist eine laminare Strömung vorhanden, bei der die Reibungskräfte über die Trägheitskräfte dominieren (Abb. 2.2(a)). Bei Werten > 1 entstehen hinter dem Partikel Wirbel, die mit erhöhter Reynolds-Zahl ausgeprägter und zahlreicher werden (Abb. 2.2(b)). Ab einer Größe von etwa $Re_p \approx 90$ bilden sich auf der strömungsabgewandten Seite der Partikel zwei gegenläufig rotierende Wirbelströme aus, die typische, periodische Pendelbewegungen zeigen. Diese werden auch als *Kármán'sche Wirbelstraße* bezeichnet. Bei $Re_p > 500$ überlagern sich mehrere Frequenzen dieser Bewegungen, was zu einer zunehmend chaotischen Wirbelbewegung führt; der Fluss wird somit turbulent (Abb.

²<http://nptel.iitm.ac.in/courses/Webcourse-contents/IIT-KANPUR/FLUID-MECHANICS/lecture-31/31-3.mechanics.htm>, 10.12.2013

2.2(c,d)). Wird nun ein Gasfluss betrachtet, der durch eine Röhre strömt, so wird in Gl. (2.7) der Durchmesser der Partikel d_p durch den Durchmesser dieser Röhre d_f ersetzt und dadurch die Fluss-Reynolds-Zahl erhalten. Ein Gasfluss durch eine Leitung mit kreisförmigem Querschnitt ist bis etwa $Re_f < 2300$ laminar und wird ab $Re_f > 4000$ turbulent. Die Ursache für diesen Unterschied liegt darin, dass die Trägheitskräfte im Fluid eine höhere Bedeutung kriegen. Im dazwischen liegenden Bereich existiert ein sogenannter Übergangfluss. Dieser ist in hohem Maße von der vorherigen Entwicklung der Gasbewegung abhängig. Steigt die Reynolds-Zahl nur langsam an, so kann es vorkommen, dass der Gasfluss bei diesen erhöhten Werten weiterhin laminar bleibt.

Eine weiterer wichtiger Aspekt bei der Beschreibung der Strömungsdynamik von Fluiden ist die Kompressibilität. Ein Fluid ist inkompressibel, sofern seine Dichte zu jedem Zeitpunkt und an jedem Ort des betrachteten Systems konstant ist. Der Begriff der Inkompressibilität impliziert nicht, dass das Gas selbst inkompressibel ist. Erreichen die Moleküle allerdings eine Geschwindigkeit V nahe der Schallgeschwindigkeit V_{sonic} , so wird das Fluid kompressibel. Das Ausmaß der Kompression wird durch die Mach-Zahl beschrieben:

$$Ma = \frac{V}{V_{sonic}} \quad (2.8)$$

Ist $Ma \ll 1$, ist das Gas inkompressibel und die Strömung wird als subsonisch bezeichnet.

Die Zeit, die ein Partikel benötigt, um seine Geschwindigkeit an eine plötzlich auftretende Änderung der äußeren Kräfte anzupassen, wird durch die Relaxationszeit τ charakterisiert. Bei $Re < 1$ ist sie durch

$$\tau = \frac{\rho d_p^2 C_c}{18\eta} \quad (2.9)$$

gegeben. Sie ist sowohl abhängig von Durchmesser d_p und Dichte ρ des Partikels als auch der Dichte des Gases. C_c ist der bereits beschriebene Cunningham-Korrekturfaktor. Es muss dabei berücksichtigt werden, dass die Relaxationszeit von der Viskosität des umgebenden Gases und dem Cunningham-Korrekturfaktor beeinflusst wird, die wiederum von Temperatur und Druck abhängig sind. Der Bremsweg S

beschreibt die Strecke, die ein Partikel der Geschwindigkeit V_0 in einem ruhenden Gas bis zum völligen Stillstand zurücklegt. Durch die Beziehung zur Relaxationszeit τ (Gl. 2.10) ist sie von Partikeldurchmesser und -dichte abhängig und somit von der Masse des Partikels.

$$S = V_0\tau \quad (2.10)$$

Eine wichtige Anwendung dieser Größe besteht in der Beschreibung der Partikelbewegung bei einer abrupten Richtungsänderung um 90° . In diesem Fall beschreibt der Bremsweg über welche Distanz das Teilchen bei seiner ursprünglichen Bewegungsrichtung bleibt. Dies ist besonders bei großen Aerosolpartikeln mit hohen Geschwindigkeiten von Bedeutung, d.h. bei Reynolds-Zahlen, die kleiner als eins sind. Beschreibt ein Partikel eine gekrümmte Flugbahn, so kann dies verschiedene Ursachen haben. Bei gradlinig strömendem Gas resultiert die kurvenförmige Bewegung der Partikel aus zwei oder mehr Krafteinflüssen, die sich in Abhängigkeit von Zeit oder Ort unterschiedlich stark verändern. Eine gekrümmte Bahn entsteht allerdings auch, wenn das Gas konvergent verläuft, die Richtung ändert oder auf ein Hindernis trifft. Es resultieren gekrümmte Strömungslinien, die die Richtung der suspendierten Partikel verändern. Kleine Partikel mit vernachlässigbarer Masse folgen diesen Linien nahezu perfekt, während große und schwere Partikel dazu tendieren, ihre ursprüngliche Bewegungsrichtung in gerader Linie beizubehalten, unabhängig davon, wie sich das Trägergas verhält. Das größte Interesse gilt entsprechend den Partikeln, deren Verhalten zwischen diesen beiden Extremen liegt. Das Vermögen von Partikeln der umgebenden Strömung zu folgen, kann durch die dimensionslose Stokes-Zahl St beschrieben werden. Sie wird aus dem Verhältnis des Bremswegs des betrachteten Partikels zu einer charakteristischen Dimension des Hindernisses gebildet; anders ausgedrückt ist sie das Verhältnis von Partikelträgheitskraft zur Strömungswiderstandskraft. Für den Fluss durch ein Rohr mit kreisförmigem Querschnitt des Durchmessers d_c ergibt sich die Stokes-Zahl aus Gl. 2.11.

$$St = \frac{S}{d_c} = \frac{\tau V_0}{d_c} \quad (2.11)$$

Ist $St \gg 1$ so folgen die Partikel den Strömungslinien vollständig; bei $St \ll 1$

setzen die Partikel ihre ursprüngliche Bewegung gradlinig fort, wenn ein Hindernis auftritt. Durch Variation von d_c kann die Stokes-Zahl für verschiedene Anwendungen spezifisch angepasst werden.

2.3 Ursachen für Partikelverluste

Ein Gas-Jet-System besteht aus der Kombination von verschiedenen Kapillaren, Biegungen und Verengungen. Um Verluste zu minimieren, ist es erstrebenswert, die Distanz zwischen Anfang und Ziel so kurz wie möglich zu gestalten. Es gibt verschiedene Abscheidungsmechanismen, die zu unterschiedlich starken Partikelverlusten führen. Diese Mechanismen sind

- Sedimentation aufgrund der Gravitationskraft
- Diffusion
- Impaktion durch Turbulenzen
- Impaktion in Kurven und Krümmungen

Die Transporteffizienz ergibt sich entsprechend aus dem Produkt der einzelnen Effizienzen.

Partikel sinken aufgrund der Gravitation und bewegen sich dadurch während des Transports zu niedrigeren Positionen des Systems zu. Für ein gerades, horizontales Rohr mit kreisförmigem Querschnitt, in dessen Inneren sich eine laminare Strömung befindet, ergibt sich die Transporteffizienz η_{grav} zu:

$$\eta_{grav} = e^{\left(-\frac{d_c L V_{ts} \cos \theta}{Q}\right)} \quad (2.12)$$

d_c ist in dieser Gleichung der innere Durchmesser und L die Länge des Rohrs; θ ist dessen Neigungswinkel, während Q den Gasfluss durch das Rohr und V_{ts} die Sedimentationsgeschwindigkeit beschreibt. Diese Geschwindigkeit wird durch das Verhältnis von Gravitationskraft F_{grav} zum Luftwiderstand F_{drag} bestimmt. Durch einen erhöhten Gasfluss, eine verminderte Rohrlänge oder einem verkleinerten Rohrdurchmesser können entsprechend die Transporteffizienz vergrößert und Verluste durch Sedimentation vermindert werden.

Die zufällige und ungerichtete Brown'sche Bewegung von Gasmolekülen führt zu Gas- und Partikeldiffusion, sofern ein Konzentrationsgradient vorhanden ist. Sie ist - abgesehen von der Konvektion - der primäre Mechanismus für den Transport und die Sedimentation von Aerosolpartikeln, die kleiner sind als $0.1 \mu\text{m}$.

Während die Brown'sche Bewegung von Aerosolteilchen einem unregelmäßigen Zittern gleicht, beschreibt die Diffusion den Transport eines Teilchenensembles entlang eines Konzentrationsgradienten. Der Transport findet dabei stets von der höheren Konzentration in Richtung der niedrigeren Konzentration statt. Da sich Aerosolpartikel anders als Gasmoleküle verhalten, finden keine elastischen Stöße mit den Innenwänden der Kapillaren statt. Stattdessen bleiben die Partikel durch Adhäsionskräfte an den Innenwänden haften und werden somit aus dem Gas entfernt, wodurch sich die Konzentration an Partikeln im Trägergas verringert. Es entsteht ein Konzentrationsgradient, bei dem die Konzentration an den Innenwänden Null ist. Durch die Diffusion entlang dieses Gradienten kommt es zu einer stetigen Abnahme der Partikelkonzentration. Diese Minderung der Partikelmenge ist dann besonders stark, wenn der Durchmesser der durchströmten Kapillare im Bereich von 1 mm oder kleiner ist oder der Partikeldurchmesser kleiner ist als $0.05 \mu\text{m}$. Die Transporteffizienz mit dem Partikelverlust durch Diffusion ist durch

$$\eta_{Diff} = e^{\left(-\frac{\pi d L V_{Diff}}{Q}\right)} \quad (2.13)$$

gegeben. V_{Diff} bezeichnet die Geschwindigkeit, in der Partikel durch Diffusion verloren werden. Um Verluste zu minimieren sollte entsprechend die Länge oder der Durchmesser des Rohrs minimiert oder der Gasfluss erhöht werden.

Abb. 2.3 zeigt die durch Sedimentation und Diffusion entstehenden Verluste für Kaliumchlorid und Cadmiumiodid bei verschiedenen Gasflüssen. Mit sinkenden Gasflüssen sinkt auch die Transporteffizienz, wobei signifikante Verluste durch die betrachteten Effekte allerdings erst bei einem Gasfluss von 200 mL/min erwartet werden. Bei kleinen Partikelgrößen dominieren Verluste durch Diffusion, während die Verluste bei großen Partikeln durch Sedimentation entstehen.

Insbesondere an Weichen, Übergängen zwischen verschiedenen Komponenten oder beim Wechsel zwischen unterschiedlichen Kapillargrößen kommt es zu Störungen des laminaren Strömungsprofils, wodurch Turbulenzen entstehen. Bei der ent-

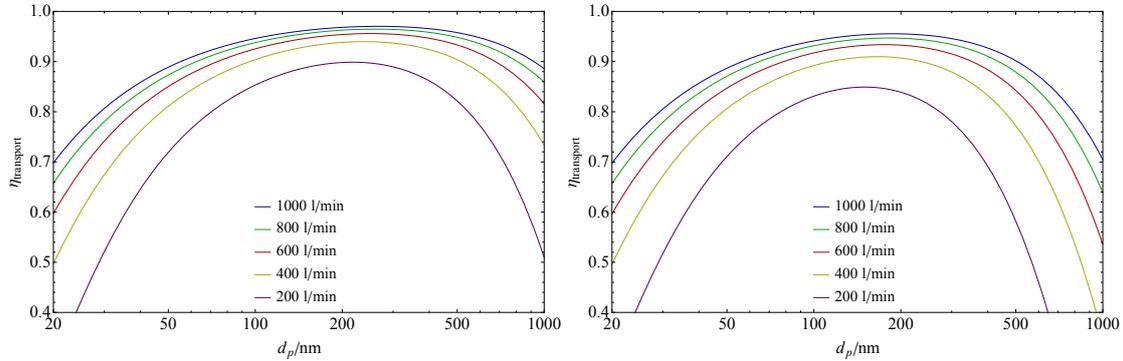


Abbildung 2.3: Partikelverluste durch Sedimentation und Diffusion bei verschiedenen Gasflüssen. Die Kurven sind für die Aerosolmaterialien KCl (links) und CdI₂ (rechts) berechnet.

stehenden turbulenten Diffusion spielen Durchmesser und Masse der Partikel die entscheidende Rolle. Die Verluste erhöhen sich entsprechend mit zunehmender Partikelgröße. Die Transporteffizienz ist durch

$$\eta_{turb} \sim e^{\left(-\frac{\pi d L Re St^2}{Q}\right)} \quad (2.14)$$

gegeben. Die Verluste steigen mit wachsender Reynolds-Zahl sowie der Stokes-Zahl eines Partikels an und werden zusätzlich durch die Brown'sche Bewegung verstärkt.

Wird ein Aerosol durch eine Kurve geleitet, kann es dazu kommen, dass die Bewegung der Aerosolpartikel in Abhängigkeit ihrer Masse von den Gasströmungslinien abweicht. Diese Abweichung kann zu einer Impaktion an die Wand der Biegung führen. Kommt es zusätzlich zur Störung des laminaren Flusses, entstehen durch die Umwälzung des Gases Wirbel, die den axialen Fluss an die Außenseite der Kurve drücken. Sie führen entsprechend zu Partikelverlusten vor und nach der Krümmung. Das Ausmaß der entstehenden Turbulenzen ist dabei sowohl von der Reynolds-Zahl also auch vom Radius der Kurve abhängig. Das Verhalten der Aerosolpartikel innerhalb dieser Kurve wird zusätzlich durch die Stokes-Zahl St bestimmt. Diese wird häufig zur Charakterisierung der trägheitsbedingten Impaktion von Partikeln auf Hindernisse oder Kapillarinnenwände verwendet. Die Transporteffizienz von Parti-

keln in einem laminaren Fluss kann mittels

$$\eta_{bend} = \left[1 + \left[\frac{St}{0.171} \right]^{0.452 \frac{St}{0.171} + 2.242} \right]^{-\frac{2}{\pi} \varphi} \quad (2.15)$$

abgeschätzt werden. φ beschreibt in dieser Gleichung den Krümmungsradius der Kurve. Abrupte Richtungsänderungen sollten entsprechend vermieden werden, um Partikelverluste gering zu halten. Dieser Verlust ist dann minimal, wenn der Fluss laminar und $St < 0.05$ ist. Der Vorgang der Impaktion ist bereits eingehend untersucht und findet sogar verbreitet Anwendung bei der Sammlung und Analyse von Aerosolpartikeln. Ein oft verwendeter Impaktor ist in Abb. 2.4 zu sehen. Er besteht

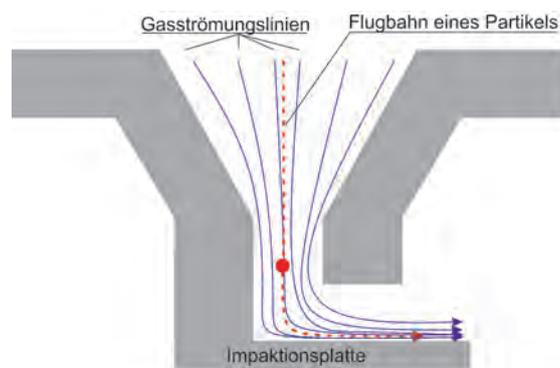


Abbildung 2.4: Schema des Impaktors. Die Partikel (rot) werden zu einer abrupten Änderung ihrer Bewegungsrichtung gezwungen. Partikel, deren Trägheit zu groß ist, können den Gasströmungslinien (blau) nicht schnell genug folgen und kollidieren mit der Impaktionsplatte. Dieser Effekt kann somit zur Größenseparation ausgenutzt werden.

aus einer schmalen Düse, vor deren Ausgang sich eine flache Platte befindet. Die Gasströmungslinien werden gezwungen eine 90°-Kurve zu beschreiben. Die Partikel folgen diesen Linien in Abhängigkeit ihrer Größe. Kleine Partikel mit geringer Trägheit ($St < 1$) werden dementsprechend an dieser Platte vorbeigeleitet. Große Partikel mit erhöhter Trägheit ($St > 1$) sind dagegen nicht in der Lage, diesen abrupten Richtungswechsel zu vollführen und kollidieren mit der Impaktionsplatte. Dort werden sie adsorbiert und somit aus dem Aerosol entfernt. Dieser Effekt kann dadurch zur Größenseparation von Partikeln genutzt werden. Die Ablagerung von geladenen Partikeln auf nicht leitende Kapillarwände kann dabei dazu führen, dass diese elektrische Felder aufbauen, die potentiell andere geladene Partikel von ihrer

ursprünglichen Bahn ablenken.

2.4 Koagulation von Aerosolpartikeln

Eine der wichtigsten Charakteristiken von Aerosolpartikeln ist, dass sie durch Adhäsionskräfte aneinander haften, sobald sie miteinander in Kontakt kommen. Dieses Verhalten unterscheidet sie stark von Gasatomen und -molekülen, sowie Partikeln, deren Größe sich über einige Millimeter erstreckt. Die Adhäsionskräfte beschränken sich jedoch nicht nur auf andere Partikel, sondern wirken auch sobald Partikel in Kontakt mit anderen Oberflächen kommen. Die Adhäsionskräfte haben ihren Ursprung in den London-van der Waals- Kräften, die – verglichen mit den Dimensionen der Partikel – über eine geringe Distanz wirken.

Als *Koagulation* wird der Prozess bezeichnet, bei dem ein Aerosolpartikel mit einem weiteren kollidiert und beide aneinander haften bleiben, wodurch ein größeres Teilchen entsteht. Dieser Vorgang wird auch *Agglomeration* genannt, die gebildeten Cluster *Agglomerate*. Wenn die relative Bewegung zwischen zwei Partikeln der Brown'schen Bewegung entspricht, wird dieser Vorgang als *thermische Koagulation* bezeichnet. Dieses Phänomen findet spontan statt und ist somit in Aerosolen stets präsent.

Entspringt die relative Bewegung zweier Partikel nicht der Brown'schen Bewegung sondern der Einwirkung äußerer Kräfte – Gravitation oder elektrische Kräfte – so wird von einer *kinematischen Koagulation* gesprochen. Partikel mit unterschiedlich großem Durchmesser sinken aufgrund des Strömungswiderstands F_{drag} mit unterschiedlich großen Geschwindigkeiten. Während kleinere Partikel mit vernachlässigbar kleiner Geschwindigkeit sinken, ist bei größeren Partikeln eine erhöhte Sinkgeschwindigkeit zu beobachten. Sinken größere Partikel zu Boden, so treffen sie bei dieser Bewegung auf mehrere kleine Partikel. Durch die relative Bewegung der Partikel zueinander kommt es folglich zu Kollisionen zwischen diesen, die zur Koagulation führen. Die Rate, mit der eine kinematische Koagulation stattfindet, hängt somit von der Sinkgeschwindigkeit, dem Durchmesser der großen Partikel sowie der Anzahl an kleineren Partikeln ab. Sind beide Partikel vom gleichen Durchmesser, so nähert sich die Wahrscheinlichkeit eines Zusammenstoßes einem Wert von Null an.

Befinden sich Partikel in einem Gasstrom, wie es in einem Gas-Jet der Fall ist, sind diese innerhalb der Kapillaren einem Geschwindigkeitsgradienten ausgesetzt: Im Zentrum der Kapillare ist die Geschwindigkeit der Strömung größer als am Rand. Dieser Geschwindigkeitsgradient führt ebenfalls zu einer relativen Bewegung zwischen den Partikeln, die auch dann entsteht, wenn Partikel von der gleichen Größe sind. Dieses Verhalten ist in Abb. 2.5 zu sehen. Aerosolpartikel, die sich weiter im In-

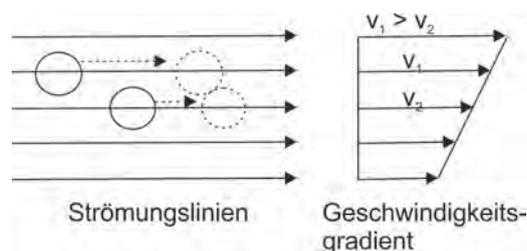


Abbildung 2.5: Schema der Koagulation, die durch einen Geschwindigkeitsgradienten verursacht wird. Ein schnelleres Partikel trifft auf einen langsameren und reißt dieses mit sich.

neren der Kapillare befinden und entsprechend eine höhere Geschwindigkeit besitzen, überholen langsamere Partikel und reißen sie mit.

Auch innerhalb von Turbulenzen kommt es zu Kollisionen zwischen Partikeln, wodurch Agglomerate gebildet werden. Dieser Vorgang wird *turbulente Koagulation* genannt. Am effektivsten ist dieser Mechanismus, wenn sich die Strömungswirbel in der gleichen Größenordnung wie der Bremsweg der Partikel sind. Generell gilt, dass es zu vermehrter Koagulation kommt, umso intensiver die Turbulenzen sind. Dieser Mechanismus ist allerdings hauptsächlich bei Partikeln zu beobachten, deren Durchmesser größer als $1 \mu\text{m}$ ist.

Partikel eines monodispersen Aerosols sind im Wesentlichen durch den Partikeldurchmesser charakterisierbar. Liegt jedoch ein polydisperses Aerosol vor, so erstreckt sich die Größe der Partikel über einen breiten Bereich, der sich üblicherweise über ein bis zwei Größenordnungen ausdehnt. Da die physikalischen Eigenschaften - wie bereits erwähnt - stark von der Partikelgröße beeinflusst werden, ist es wichtig, die Größenverteilung zu kennen. Durch empirische Untersuchungen wurde ermittelt, dass die Größenverteilung von Aerosolpartikeln stets einer Log-Normalverteilung gleicht. Diese erstreckt sich über einen weiten Größenbereich und kann keine negativen Werte annehmen; beides ist bei Aerosolpartikeln der Fall, da sich die Partikel in ihrer Größe stark unterscheiden und ein negativer Teilchendurchmesser physikalisch

unmöglich ist. Die Log-Normalverteilung selbst ist charakterisiert durch einen un-symmetrischen Peak, eine definierte Peakbreite und einen signifikanten Ausläufer bei großen Werten der unabhängigen Variablen, die in diesem Fall dem Partikeldurchmesser entspricht. Die Anzahl an Partikeln, die einen Durchmesser d_p besitzen, kann durch Gl. 2.16 erhalten werden.

$$f(d_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}d_p\sigma_g} e^{-\frac{(\ln(d_p)-\bar{d}_p))^2}{\sigma_g^2}} \quad (2.16)$$

\bar{d}_p beschreibt den Median der Aerosolpartikel, während σ_g die Standardabweichung der Verteilung darstellt. Diese wird durch Gl. 2.17 erhalten.

$$\sigma_g = \left(\frac{\sum n_p (d_p - \bar{d}_p)^2}{N - 1} \right)^{1/2} \quad (2.17)$$

Dabei beschreibt N die Gesamtzahl aller Partikel und n_p die Zahl der Partikel mit dem Durchmesser d_p . Der Median dieser Verteilung entspricht der Größe, bei dem jeweils genau eine Hälfte der Partikel größer und die andere Hälfte kleiner als dieser Wert ist. Bei einer Log-Normalverteilung ist dieser Wert äquivalent zum geometrischen Mittelwert.

2.5 Prinzip einer aerodynamischen Linse

Aerodynamische Kollimation ist ein weit verbreitetes Prinzip, um einen kollimierten Strahl aus Partikeln zu erzeugen, die weder eine elektrische Ladung noch ein magnetisches Moment besitzen. Die Kollimation ermöglicht eine Aufrechterhaltung eines engen Partikelstrahls über eine weite Distanz. Damit mit Hilfe einer aerodynamischen Linse überhaupt eine Partikelkollimation erhalten werden kann, muss der Gasfluss im Inneren der aerodynamischen Linse kontinuierlich, laminar und subsonisch sein, da ein instabiler Fluss und auftretende Turbulenzen eine Fokussierung zerstören würden.

Das System einer aerodynamischen Linse besteht – wie in Abb. 2.6 zu sehen – aus mehreren Teilen:

- Der Eingang der Linse mit anschließender Relaxationskammer

- Mehrere Blenden, die durch Spacer voneinander getrennt werden
- Eine Düse, die den Ausgang der Linse bildet

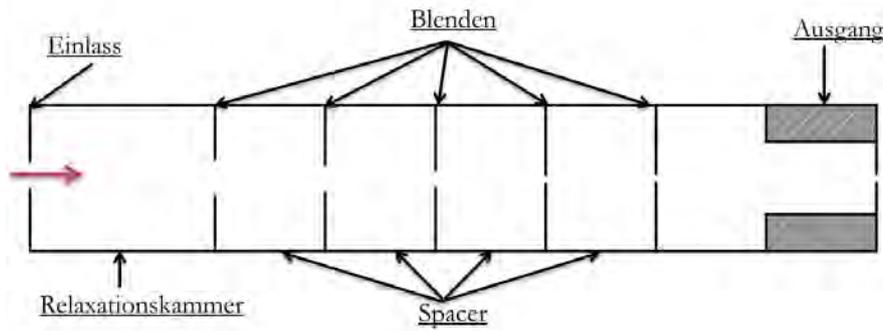


Abbildung 2.6: Schema einer aerodynamischen Linse [Wan06].

Die Eingangsöffnung bestimmt die Massenflussrate \dot{m} durch das System und reduziert gleichzeitig den Arbeitsdruck, sodass eine aerodynamische Fokussierung ermöglicht wird. Der Massenfluss kann durch

$$\dot{m} = A_f \frac{C_d Y}{\sqrt{1 - \beta^4}} p_1 \sqrt{\frac{2M}{RT_1} \frac{\Delta p}{p_1}} \quad (2.18)$$

erhalten werden [Wan06]. A_f beschreibt dabei die Querschnittsfläche des Eingangs, während C_d ein Koeffizient ist, der von der Reynolds-Zahl Re abhängt, die wiederum durch den Durchmesser des Eingangs und den Massenfluss beeinflusst wird. M ist die molare Masse des Trägergases und R die universelle Gaskonstante. Der Expansionsfaktor Y ist vom Verhältnis des Durchmesser des Eingangs zum Durchmesser des folgenden Spacers β abhängig. Des Weiteren spielen sowohl die Temperatur T_1 und der Druck p_1 vor der Linse sowie der Druckabfall Δp innerhalb der Linse eine signifikante Rolle. Der Durchmesser des Eingangs d_f kann durch

$$d_f = \left(\frac{2\rho_p d_p^2 C_c \dot{m}}{9\pi\rho_1 \mu St} \right) \quad (2.19)$$

berechnet werden [Wan06]. Die Stokes-Zahl St ist dabei abhängig vom Durchmesser des Eingangs d_f . C_c lässt sich mit Hilfe der Knudsen-Zahl Kn berechnen, die

ebenfalls von d_f beeinflusst wird. d_p beschreibt den Durchmesser und ρ_p die Dichte der zu kollimierenden Partikel, ρ_1 die Dichte des Trägergases und μ die Viskosität dieses Gases. Kleine Öffnungen in den Blenden limitieren entweder den Gasfluss zu kleinen Werten oder führen zu großen Stokes-Zahlen.

Im direkten Anschluss an den Einlass der Linse folgt die Relaxationskammer, in der zunächst ein Druckabfall stattfindet und die Geschwindigkeit der Aerosolpartikel reduziert wird. Die Kammer ist notwendig, um Partikelverluste durch Impaktion zu minimieren. Der innere Durchmesser dieser Kammer kann mit Hilfe des Bremsweges der größten Partikel abgeschätzt werden.

Nach dieser Kammer folgen eine oder mehrere Blenden, die durch sogenannte Spacer voneinander getrennt werden. Es gibt Systeme, die lediglich aus einer einzigen Blende bestehen. Diese sind speziell auf die Kollimierung von Nanopartikeln < 30 nm ausgerichtet und dadurch in ihrem Einsatzgebiet stark eingeschränkt. Um einen breiteren Bereich an Partikelgrößen abzudecken, wird ein System benötigt, das aus mehreren Linsen zusammengesetzt ist.

Die inneren Lochdurchmesser der Blenden verringern sich üblicherweise im Verlauf des Systems. Wird jedoch mit großen Druckabfällen gearbeitet, muss dieser Trend invertiert werden, um den spezifischen Wert der Stokes-Zahl und einen subsonischen Fluss ausrechtzuerhalten [Wan05]. Bei gegebenem Massenfluss und bekanntem Druck kann durch Gl. 2.18 und Gl. 2.19 der Durchmesser jeder Blende im System berechnet werden. Der Druck p_f , der notwendig ist, um Partikel durch die Blenden zu fokussieren, ist durch

$$p_f = \frac{2\rho_p d_p^2 C_c \dot{m} RT}{9\pi\mu d_f^3 M St_0} \quad (2.20)$$

gegeben [Wan06]. Große Partikel besitzen entsprechend einen größeren Druckbereich als kleinere Partikel. Kleinere Partikel können dennoch bei annehmbaren Druck kollimiert werden, sofern ein leichteres Trägergas verwendet wird. Weiterhin muss bei Gl. 2.20 berücksichtigt werden, dass C_c von p_f abhängt. Somit sind iterative Berechnungen notwendig, um den Druck abzuschätzen.

Abb. 2.7 zeigt die Strömungslinien des Trägergases in einem Spacer, der zwei Blenden voneinander separiert. Erscheint eine Blende, so löst sich der Gasfluss von den inneren Wänden des Rohrs. Ist die Verengung der Linse überwunden, entstehen hinter diesem Hindernis Turbulenzen aufgrund der Rezirkulation des Gases. Nach

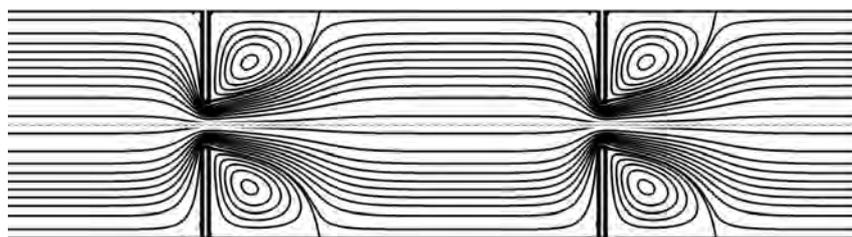


Abbildung 2.7: Strömungslinien des Trägergases innerhalb eines Spacers, der sich zwischen zwei Blenden befindet. Durch das Auftreten einer Blende wird das Gas zusammengedrückt. Ist diese Verengung überwunden, kommt es zunächst zur Rezirkulation des Gases bis sich schließlich wieder ein laminares Strömungsprofil bildet [Wan06].

einer bestimmten Länge erreicht das Gas wieder die Innenwände und füllt den gesamten Querschnitt des Spacers aus. Es wird entsprechend wieder ein homogener, laminarer Fluss beobachtet.

Der Ausgang der Linse wird durch eine Düse gebildet, die das Gas auf seine finale Geschwindigkeit beschleunigt und gleichzeitig den maximalen Betriebsdruck im Inneren des Systems bestimmt. Das Prinzip der aerodynamischen Linse beruht darauf, dass durch die Anordnung von mehreren Blenden hintereinander eine Expansion bzw. eine Kontraktion eines Aerosols erzeugt wird. Sowohl Aerosolpartikel als auch Gasmoleküle werden beim Durchlaufen der Verengungen beschleunigt und beim Verlassen dieser wieder gebremst. Die Strömungslinien des Trägergases verlaufen entsprechend alternierend konvergent oder divergent. Der Verlauf dieser Linien bzw. die Bewegung der Partikel ist in Abb. 2.8 zu sehen. Die im Gas befindlichen Partikel folgen dieser Strömung in Abhängigkeit von ihrer Masse. Bei einer Kontraktion des Aerosols durch eine Blende werden die Aerosolpartikel in Richtung der horizontalen Achse der Linse gedrückt. Bei der anschließenden Expansion des Gases hinter einer Linse folgen kleinere Partikel mit geringer Trägheit dem Trägergas annähernd vollständig, während größere Partikel größtenteils ihre Bewegung in der ursprünglichen Richtung fortsetzen. Sie befinden sich somit nun näher an der Achse der Linse als vor der Blende. Durch mehrere hintereinander geschaltete Blenden werden die Aerosolpartikel sukzessive vom Trägergas separiert, wodurch ein engerer Partikelstrahl entsteht.

Der Größenbereich der generell kollimierbaren Partikel ist durch verschiedene Effekte limitiert: Kleine Partikel mit einem Durchmesser von ≤ 25 nm folgen den Gass-

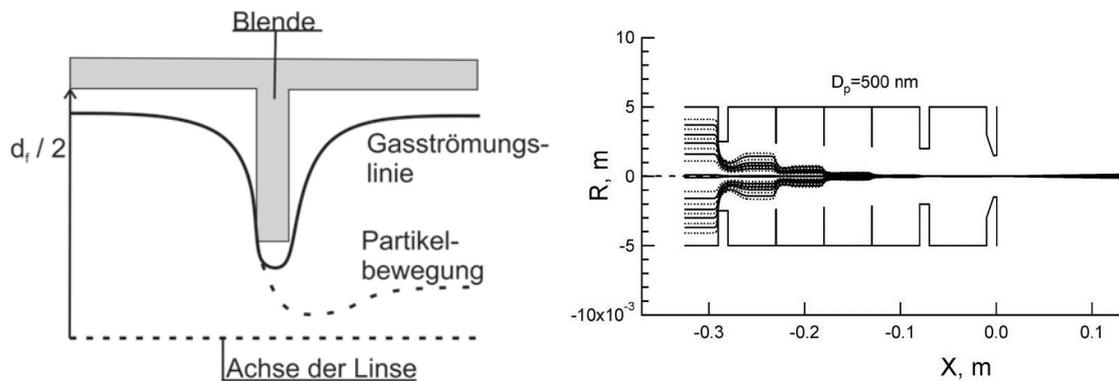


Abbildung 2.8: Links: Bewegung von Trägergas und Aerosolpartikeln bei Auftreten einer Blende. Aufgrund des geringeren Öffnungswinkels der Partikel kommt es zur Separation von Partikeln und Trägergas. Rechts: Teilchenbewegung innerhalb der aerodynamischen Linse für eine Partikelgröße von $D_p = 500$ nm und einem Gasfluss von 97.3 mL/min [Zha04]. Eine sukzessive Kollimation führt zu einem fokussierten Partikelstrahl.

trömungslinien annähernd exakt und lassen sich somit nur schwer vom Trägergas trennen. Die Kollimation sinkt außerdem durch ihren hohen Diffusionskoeffizienten, welcher zu Partikelverlusten und Strahlaufweitung führt [Wan05]. Die obere Grenze der Partikelgröße liegt bei etwa 2500 nm. Durch die erhöhte Trägheit der Partikel können diese den Strömungslinien nicht mehr folgen, sodass ein großer Teil durch Impaktion auf die Blenden verloren geht. Ähnlich wie bei kleinen Partikeln, kann es auch hier zu einer Strahlaufweitung kommen. Die Ursache hierfür liegt allerdings woanders: Große Partikel werden zum Teil so stark in Richtung Achse gelenkt, dass sie diese kreuzen. Durch diese Überfokussierung verbreitert sich der Partikelstrahl erheblich.

Eine Linse ist stets für einen begrenzten Größenbereich der Partikel ausgelegt, der eine optimale Kollimation erfährt. Um diesen Bereich zu vergrößern gibt es zwei verschiedene Strategien: Zum einen kann die Zahl der Blenden erhöht werden, um größere Partikel zu refokussieren, bevor sie verloren werden. Zum anderen können auch die ersten Blenden dazu verwendet werden, größere Partikel zu kollimieren. Die hinteren Blenden werden anschließend zur Kollimation von kleineren Partikeln genutzt, die bei diesem System allerdings suboptimal verläuft. Solange Partikel groß genug sind, dass Verluste durch Diffusion nicht signifikant werden, und große Partikel nicht überfokussiert werden, gilt der Trend, dass die Kollimation umso effektiver ist, je mehr Blenden im System vorhanden sind.

Tabelle 2.1: Physikalische Eigenschaften von Stickstoff bei 296.15 K und 1013 mbar [Rad90], [Hay12]

Molare Masse	28 g/mol
Isentropenexponent	1.4
Viscosity	$1.78 \cdot 10^{-5} Pa \cdot s$
Sutherland Konstante	110 K
Freie Weglänge	67.4 nm

Gewöhnlich wird eine Serie aus 3 – 5 Blenden verwendet, um sphärische Partikel einer Größe von 25 – 250 nm zu einem schmalen Partikelstrahl zu kollimieren. Meist beträgt der Druck vor der Linse etwa 200 Pa und der Druckabfall innerhalb der Linse ist gering. Der Gasfluss beschränkt sich üblicherweise auf < 100 mL/min [Zha04]. Um die Effizienz einer aerodynamischen Linse für ein gegebenes Gas-Jet-System zu bestimmen, sind mehrere experimentelle oder numerische Studien notwendig.

2.5.1 Spezifika bei TRIGA-SPEC

Bei dem Design einer aerodynamischen Linse gibt es verschiedene Parameter, die auf die spezifischen Bedürfnisse eines Experiments angepasst werden müssen. Diese sind einerseits auf die geometrischen Aspekte der Linse bezogen: Anzahl und Durchmesser der Linsen, Länge und Durchmesser der Spacer sowie die Dimension des Einlasses und der Ausgangsdüse müssen bestimmt werden. Andererseits muss festgelegt werden, welches Trägergas verwendet wird, da Masse, Viskosität, freie Weglänge, Sutherland Konstante sowie der Isentropenexponent des verwendeten Gases bei der Berechnung der Linsendimensionen berücksichtigt werden. Auch die Wahl des Aerosolmaterials spielt eine bedeutende Rolle. Bei diesem ist seine Dichte der entscheidende Parameter. Zusätzlich muss bestimmt werden, welche Partikelgröße kollimiert werden soll. Auch experimentelle Bedingungen wie Temperatur und Druck müssen bekannt sein. Weiterhin hat der Gasfluss einen deutlichen Einfluss auf die Dimensionen der Linse und das Ausmaß der Kollimation.

Beim Gasjet des TRIGA-SPEC-Experiments wird als Trägergas Stickstoff eingesetzt. Die relevanten Eigenschaften sind in Tab. 2.1 zusammengefasst. Als Aerosolmaterial soll sich zunächst – im Hinblick auf die Konstruktion einer aerodynamischen Linse – auf Kaliumchlorid beschränkt werden. Die Dichte von KCl beträgt 1984

kg/m^3 , während die Dichte von Cadmiumiodid mit 5640 kg/m^3 annähernd dreimal so groß ist [Hay12]. Die Dichte der Aerosolpartikel spielt bei der Berechnung der Stokes-Zahl (Gl. 2.1) eine große Rolle, die damit bei Cadmiumiodid deutlich größer ist. Dieser Unterschied hat unverkennbar Auswirkungen auf das Design der Linse, weshalb es nicht möglich ist, eine aerodynamische Linse zu konstruieren, die für beide Salze geeignet ist.

Wie bereits in Kapitel 1 beschrieben, stellt der stark begrenzte Raum an der TRIGA-SPEC-Apparatur die größte Einschränkung für das Design der Linse dar. Dieser erstreckt sich über lediglich 40 cm. Dies hat direkte Folgen für die Dimensionen der Linse, insbesondere der Länge der Spacer. Die Spacer, die die einzelnen Blenden voneinander separieren, müssen lang genug sein, sodass sich das Gas zwischen den einzelnen Abschnitten vollkommen entspannen kann und wieder ein laminarer Fluss entsteht. Die Länge jedes einzelnen Spacers hängt von der Geschwindigkeit der Gas- und Aerosolpartikel ab, die wiederum von der Gasflussrate abhängt. Eine erhöhte Menge an Gas führt entsprechend zu höheren Geschwindigkeiten und folglich zu längeren Spacern. Es ist daher zur Konstruktion einer möglichst kurzen Linse erforderlich, den minimalen Gasfluss zu ermitteln, bei dem die Transporteffizienz dennoch nicht beeinträchtigt wird.

2.6 Detektion und Charakterisierung von Aerosolen

Eine Methode zur Bestimmung der Größenverteilung ist die Verwendung eines Scanning Mobility Particle Sizers, welcher einer Kombination aus Electrostatic Classifier (EC) und Condensation Particle Counter (CPC) entspricht, wie sie in Abb. 2.9 zu sehen ist. Ein Electrostatic Classifier kann sowohl zur Untersuchung von polydisperssem Aerosol (Analysator) als auch als Generator von monodisperssem Aerosol verwendet werden. Zur Erzeugung von monodisperssem Aerosol wird das zunächst polydisperse Aerosol zu Beginn durch einen Impaktor geleitet (Abb. 2.4). Größere und somit trägere Partikel ab einem Durchmesser von etwa 800 nm können den Strömungslinien nicht schnell genug folgen, prallen auf die Platte und werden dadurch aus dem Aerosol entfernt. Anschließend gelangen die verbliebenen Partikel zu

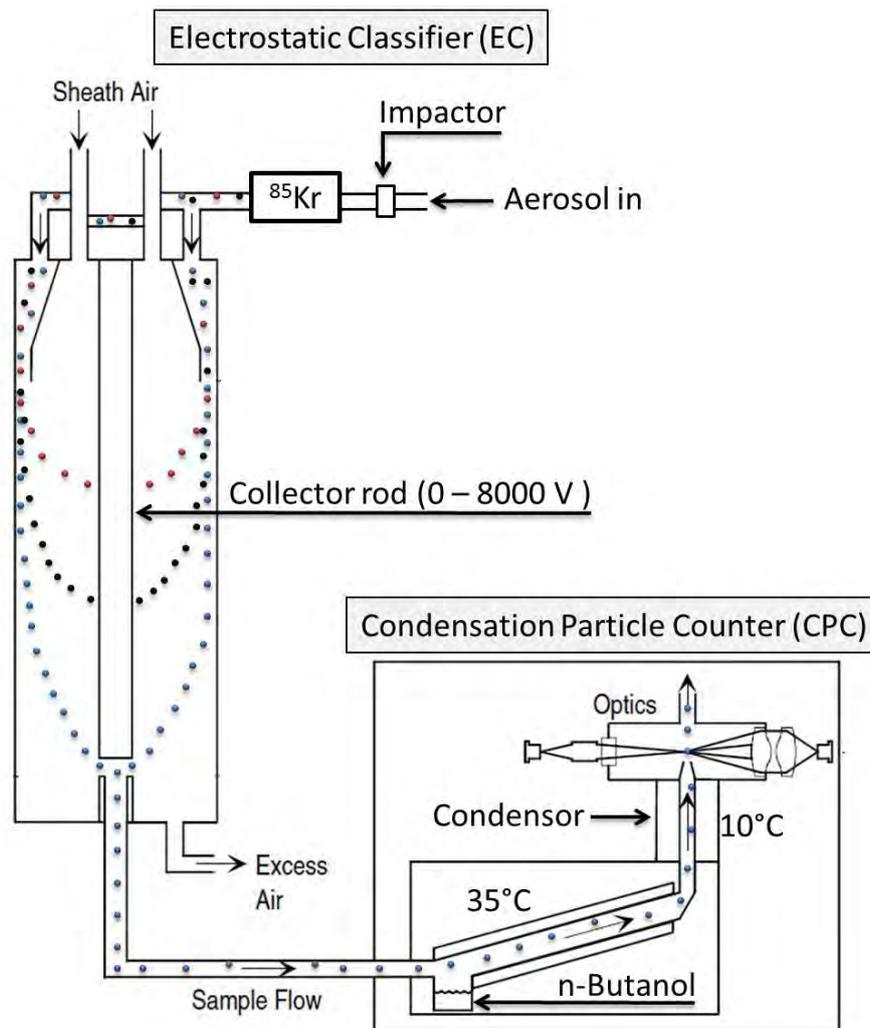


Abbildung 2.9: Electrostatic Classifier und Condensation Particle Counter [Wor00]. Die polydispersen Aerosolpartikel werden im EC durch Variation der am Kollektor angelegten Spannung nach ihren elektrischen Mobilitäten getrennt. Das entstehende monodisperse Aerosol wird anschließend im CPC analysiert.

einer ^{85}Kr -Quelle, die als β^- -Strahler Elektronen aussendet, wodurch entsprechend einer Boltzmann-Verteilung geladene Ionen entstehen. Partikel, deren Durchmesser zwischen 10-400 nm beträgt, sind dabei hauptsächlich einfach geladen, während bei größeren Partikeln der Anteil an mehrfach geladenen Ionen deutlich ansteigt.

Der Electrostatic Classifier besteht aus zwei Metallzylindern, von denen der äußere geerdet ist, während an den inneren Zylinder – dem Kollektor – eine negative Spannung gelegt wird. Dadurch entsteht zwischen diesen Röhren ein elektrisches Feld. Die erzeugten Ionen werden nun im Trägergas zusammen mit der sogenannten Sheath Air von oben in den Zwischenraum geleitet. Die Sheath Air – ein partikelfreies Gas, meist Luft oder Stickstoff – wird eingesetzt, um zu gewährleisten, dass keine Turbulenzen im Inneren des EC's entstehen und somit nur Partikel einer ausgewählten Größe den Ausgangsschlitz erreichen. Sie umfließt den Kollektor und wird nach außen hin ringförmig vom polydispersen Aerosol umgeben. Beide Gasflüsse sind laminar, sodass keine Vermischung beider Spezies stattfindet. Da der innere Zylinder ein negatives Potential aufweist, bewegen sich die positiv geladenen Ionen nun entsprechend ihrer elektrischen Mobilität auf ihn zu und treffen schließlich auf dessen Oberfläche. Die Dimension der elektrischen Mobilität Z_p ist dabei von mehreren Faktoren abhängig:

$$Z_p = \frac{neC_c}{3\pi\mu d_p} \quad (2.21)$$

spielen sowohl der Durchmesser des Partikels d_p , die Elementarladung e , die Ladung des Partikels n , als auch die Viskosität des Trägergases μ eine bedeutende Rolle. Der Cunningham-Korrekturfaktor C_c ist eine Funktion des Partikeldurchmessers und ermöglicht die Abschätzung der Reibungskräfte, die auf Aerosolpartikel mit einem Durchmesser von unter $15 \mu\text{m}$ wirken. Diese Kräfte unterscheiden sich erheblich von denen, die auf größere Cluster ausgeübt werden. Es wird dabei angenommen, dass die Partikel eine sphärische Form und eine konstante Dichte besitzen. Wie bereits beschrieben, bewegen sich die Ionen auf den inneren Zylinder des Classifiers zu. Je größer ihre elektrische Mobilität ist, desto weiter oben ist der Ort des Auftreffens auf den Kollektor. Nur Partikel einer bestimmten Mobilität werden zum Ausgangsspalt gelenkt und weiter in Richtung Condensation Particle Counter geleitet. Diese Mobilität kann gemäß Gl. 2.22 durch Variation der Spannung bestimmt

werden.

$$Z_p = \frac{\left[q_t - \frac{1}{2}(q_s + q_a) \right] \ln(r_2/r_1)}{2\pi UL} \quad (2.22)$$

mit dem gesamten Gasfluss innerhalb des ECs q_t , dem polydispersen Aerosolfluss q_a , dem monodispersen Aerosolfluss q_s , dem Radius des Kollektors $r_1 = 0.937 \text{ cm}$, dem Radius der äußeren Elektrode $r_2 = 1.958 \text{ cm}$, der Länge des Kollektors $L = 44.44 \text{ cm}$ und schließlich der angelegten Spannung U .

Die Breite der elektrischen Mobilitäten ΔZ_p , die in den Ausgangsschlitz geleitet werden, erstreckt sich dabei über folgenden Bereich:

$$\Delta Z_p = \frac{(q_s + q_a) \ln(r_2/r_1)}{2\pi UL} \quad (2.23)$$

Durch die Kombination von Gl. 2.21 und Gl. 2.22 kann über die angelegte Spannung schließlich der Durchmesser der Partikel d_p erhalten werden. Das entstehende monodisperse Aerosol gelangt schließlich aus dem EC in die Sättigungskammer des CPCs. Diese besteht aus einem geneigten Rohr, in dessen Inneren sich ein Vlies befindet, das in ein mit n -Butanol gefülltes Reservoir taucht und dadurch mit Alkohol getränkt ist. Das Rohr wird auf 35°C erwärmt, wodurch der Alkohol vom Vlies in die Atmosphäre gelangt. Der monodisperse Aerosolstrom fließt durch diese mit n -Butanol gesättigte Kammer und reichert entsprechend Alkoholmoleküle an. Es wird anschließend weiter in den auf 10°C gekühlten Kondensator geleitet. Durch die Temperaturdifferenz ist das Gas nun übersättigt und die Butanolmoleküle beginnen auf den Partikeln zu kondensieren, wodurch Tropfen mit einem Durchmesser von einigen μm entstehen. Diese gelangen in den optischen Detektor des CPC, der im Wesentlichen aus einer Laserdiode, einem Kollimator, einer Linse und einem Photodetektor besteht. Das von den Partikeln gestreute Licht wird gesammelt und in elektrische Impulse umgewandelt, die ein Maß für die Partikelkonzentration sind.

Die mit dieser Methode zu untersuchenden Partikel sind auf einen Größenbereich von $0.01\text{-}1.0 \mu\text{m}$ limitiert [Ins02].

Kapitel 3

Experiment

Um eine aerodynamische Linse zu konstruieren, die einen kollimierten Partikelstrahl mit einem Durchmesser unter 1 mm erzeugt, ist es von großer Bedeutung die genauen Versuchsbedingungen zu kennen. Zu diesem Zweck wurde ein Gas-Jet-System, analog zu dem bei TRIGA-SPEC verwendeten System, im Labor nachgebaut, um den Einfluss von Gasfluss und Ofentemperatur zu untersuchen. Insbesondere die Größenverteilung der erhaltenen Aerosole ist wichtig, da eine aerodynamische Linse nur für einen spezifischen Größenbereich einen kollimierten Partikelstrahl liefert (Vgl. Abschnitt 2.5). Es wurde die Anzahl der entstandenen Partikel, die Breite der Größenverteilung und die Lage des Maximums bestimmt. Eine besondere Herausforderung ist dadurch gegeben, dass die aerodynamische Linse aus Platzgründen am TRIGA-SPEC-Aufbau eine gegebene Länge von etwa 400 mm nicht überschreiten darf. Im Hinblick auf die zu entwickelnde Linse war es notwendig, Temperatur und Gasfluss anzupassen, ohne die Transporteigenschaften der Aerosolpartikel für die Spaltprodukte zu beeinträchtigen. Vorgehen und Ergebnisse sind in den folgenden Kapiteln beschrieben.

3.1 Aerosolerzeugung und Aerosolmaterialien

Eine verbreitete Methode ist die Erzeugung eines Aerosols durch Sublimation eines anorganischen Salzes. Dazu wird dieses in einem Ofen auf 100 – 150°C unterhalb seines Schmelzpunktes erhitzt [Maz81]. Dabei muss darauf geachtet werden, dass ein

kontinuierlicher Gasfluss durch den Ofen geleitet wird.

Als Salze eignen sich hierbei unter anderem PbCl_2 , PbI_2 , ZnBr_2 , CdBr_2 , CdI_2 oder KCl [Brü83]. Letzteres liefert in Kombination mit Stickstoff als Trägergas gute Transportausbeuten und wird daher hauptsächlich bei TRIGA-SPEC eingesetzt. Der Schmelzpunkt von Kaliumchlorid liegt bei 770°C [Hay12]. Ab etwa 600°C beginnt dieses in geringem Maße aus der Salzoberfläche zu sublimieren; die maximale Ausbeute an Partikeln wird bei einer Temperatur von etwa 650°C erwartet [Brü83].

Durch den Gasstrom werden die Partikel in kältere Bereiche transportiert, in denen sie aufgrund von Übersättigung zu Clustern kondensieren. Die Partikel können außerdem aufgrund von thermischer oder kinematischer Koagulation Agglomerate bilden (Vgl. Abschnitt 2.4).

Weiterführend wurde Cadmiumiodid als Aerosolmaterial charakterisiert und systematisch auf seine Transporteigenschaften untersucht. Verglichen mit Kalium (Ionisierungspotential: 4.3 eV) liegt das Ionisierungspotential von Cadmium bei 9.0 eV und somit deutlich höher. Es sollte daher in der Oberflächen-Ionenquelle des TRIGA-SPEC-Experiments ein deutlich geringerer Anteil an Aerosolpartikeln ionisiert werden. Im Experiment sind lediglich die Ionen der Spaltprodukte von Interesse. Daher ist es von Vorteil, wenn die Untergrundsignale durch Ionen des Aerosolmaterials möglichst klein sind.

Gleichzeitig ist der Schmelz- und Siedepunkt von Cadmiumiodid niedrig genug, dass sich kein Aerosolmaterial innerhalb der Ionenquelle (765°C) ablagern kann. Der Schmelzpunkt von CdI_2 liegt bei 387°C ; gute Aerosolausbeuten werden bei Ofentemperaturen von 290°C erwartet [Sat13].

3.2 Transport von Spaltprodukten

Die im Ofen entstehenden KCl -Cluster werden mittels Trägergas durch eine ca. 3 m lange Kapillare aus Polyethylen in die Targetkammer geführt (Abb. 3.1), in der die Spaltprodukte erzeugt werden.

Das Target selbst besteht aus $310 \mu\text{g } ^{235}\text{U}$ und befindet sich auf einem Titanträger. Es ist mit einem Aluminiumhalter in der Kammer befestigt und mit einer $13 \mu\text{m}$ dünnen Folie aus Aluminium bedeckt. Dies hat zum einen den Zweck, schwere

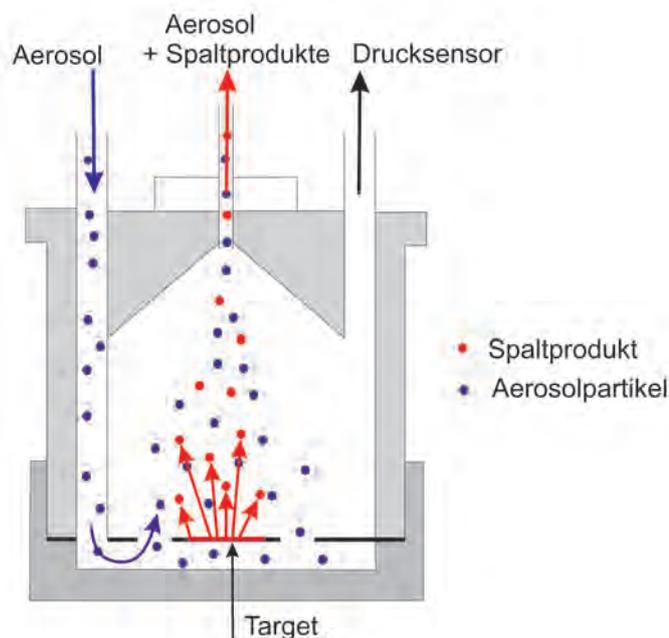


Abbildung 3.1: Schema der Targetkammer: Die Aerosolpartikel werden zum ^{235}U -Target geleitet und umspülen dieses. Die Spaltprodukte treten aus dem Target aus, werden durch das Trägergas gebremst und adsorbieren schließlich an die Aerosolpartikel. Diese transportieren die Spaltfragmente aus der Kammer heraus zu nachfolgenden Apparaturen.

Spaltprodukte daran zu hindern, das Kammervolumen zu erreichen, da sie durch die Folie bereits vollkommen abgebremst werden. Dadurch soll eine Kontamination des experimentellen Aufbaus mit langlebigen Nukliden vermieden werden. Eine Kontamination durch leichte Spaltprodukte ist weniger problematisch, da diese Nuklide Halbwertszeiten von weniger als einem Tag besitzen und somit innerhalb einer kurzen Zeitspanne abklingen. Leichte Spaltprodukte werden durch die Folie gebremst und verlieren so beim Austreten aus dem Target einen Teil ihrer kinetischen Energie. Im Gegensatz zu unabgedeckten Targets können die austretenden Fragmente somit bei einem geringeren Überdruck oder durch ein leichtes Trägergas abgebremst werden.

Das Aerosol gelangt durch eine Kapillare (Innendurchmesser: 4 mm) in den Eingang der Targetkammer. Dabei wurde empirisch nachgewiesen, dass die Ausbeute an Spaltprodukten steigt, sobald die Kapillare einige Millimeter in die Targetkam-

mer hineinragt [Gün93]. Dadurch entstehen beim Übergang weniger Turbulenzen, wodurch ein laminares Strömungsprofil beibehalten wird. Das Aerosol umfließt das Target vollständig, indem es durch kleine Löcher geleitet wird, die sich an den Ecken der Target-Halterung befinden. Dadurch werden die Aerosolpartikel nah an den austretenden Spaltprodukten vorbei geführt. Dabei ist wichtig, dass die Strömung laminar bleibt, um den Verlust an Aerosolpartikeln durch Impaktion an den Innenwänden der Targetkammer zu minimieren. Des Weiteren kann ein strömungsfreies Volumen entstehen, das möglichst minimal sein sollte.

In der Kammer herrscht je nach eingestelltem Gasfluss, Kapillardurchmesser und -länge ein geringer Überdruck zwischen 1 – 2 bar. Aus Sicherheitsgründen wurde die Kammer für einen Überdruck bis zu 5 bar konstruiert, sodass diese selbst unter erschwerten Bedingungen dicht ist. Der vorliegende Innendruck kann über ein angeschlossenes Manometer jederzeit abgelesen werden, um einerseits einen zu großen Überdruck zu verhindern und andererseits die Dichtigkeit der Kammer überprüfen zu können. Das Volumen des Hohlraums ist darauf ausgelegt, dass alle aus dem Target austretenden Fragmente durch Wechselwirkung bzw. Stößen mit Molekülen des Trägergases auf thermische Energie abgebremst werden, bevor sie die Innenwände erreichen. Die Gestalt der gesamten Targetkammer wurde entsprechend den Studien von R. Günther [Gün93] konstruiert und liefert eine effiziente und schnelle Extraktion der Spaltprodukte, ohne unnötige Turbulenzen zu erzeugen.

Die nun thermalisierten Spaltprodukte treffen nun auf die Aerosolcluster und werden an diesen adsorbiert. Anschließend werden sie gemeinsam aus der Kammer hinausgespült und durch eine ca. 5 m lange Kapillare in den nachfolgenden experimentellen Aufbau geleitet. Der Durchmesser dieser Kapillare variiert im weiteren Verlauf des Experiments zwischen 0.8 und 1.5 mm.

3.3 Charakterisierung des TRIGA-SPEC-Gas-Jets

Da die Charakterisierung des Gas-Jet-Systems bzw. der verwendeten Aerosolpartikel nicht direkt am TRIGA-SPEC-Experiment durchgeführt werden kann, wurde dieses System im Labor nachempfunden. Dabei ist es wichtig, etwa gleiche Bedingungen zu schaffen, um möglichst realitätsgetreue Ergebnisse zu erhalten. Der verwendete

Aufbau ist in Abb. 3.2 zu sehen.

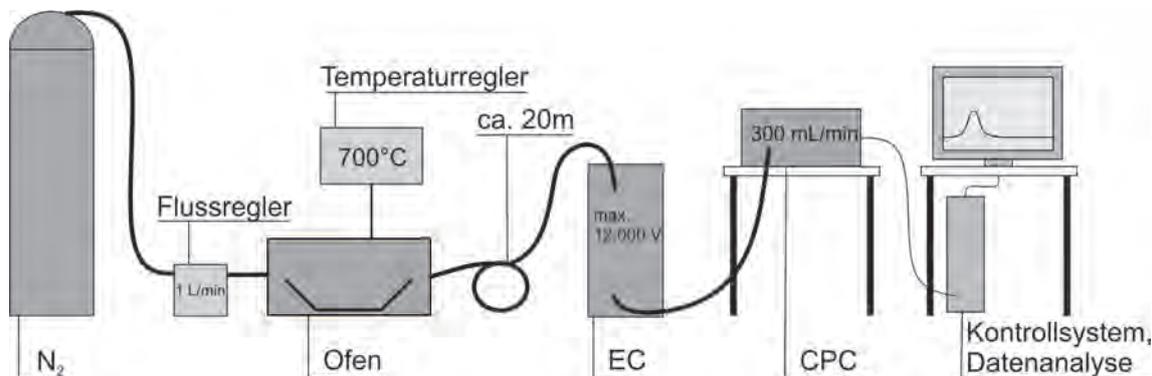


Abbildung 3.2: Gas-Jet-System im Labormaßstab. Zur Ermittlung der Größenverteilung beinhaltet dieser Aufbau einen Electrostatic Classifier und einen Condensation Particle Counter.

Bei dem Aerosolgenerator handelt es sich um einen Rohrofen des Modells Heraeus ROK 3/30. Darin befindet sich eine 41.5 cm lange Quarzröhre mit einem Innendurchmesser von 2.0 cm, die sich nach hinten auf 0.5 cm verjüngt. In diesem Rohr befindet sich ein Keramikschiffchen, das wahlweise mit Kaliumchlorid oder Cadmiumiodid befüllt ist.

Die Temperatur des Ofens wird mit Hilfe eines Ni-Cr/Ni-Thermoelements ermittelt und kann mittels eines Temperaturreglers eingestellt werden. Das im Ofen erzeugte Aerosol wird durch den Electrostatic Classifier und anschließend durch den Condensation Particle Counter geleitet. Die vom CPC erhaltenen Daten werden an einen Computer weitergegeben, sodass sie direkt ausgewertet werden können. Um die gegebenen Versuchsbedingungen am TRIGA-Reaktor möglichst realistisch wiederzugeben, wird eine ca. 20 m lange Kapillare mit einem Innendurchmesser von 0.7 mm zwischen Ofen und Electrostatic Classifier eingebaut. Dadurch soll die Länge der Transportwege von Aerosol und Spaltprodukten möglichst identisch zum Aufbau am TRIGA-SPEC-Experiment sein. Die tatsächliche Länge der Transportwege beträgt bei diesem Experiment 6 ± 4 m.

Als Aerosolmaterial wurden Kaliumchlorid und Cadmiumiodid verwendet und untersucht. Letzteres ist beim Einatmen cancerogen, weshalb eine Freisetzung an die Luft vermieden werden sollte. Es muss daher sichergestellt sein, dass keine Aerosolpartikel in die Atmosphäre gelangen. Da im Vorfeld nichts über die Größe der im Ofen entstehenden Partikel bekannt war, um einen entsprechenden Filter ein-

bauen zu können, bot es sich an, die chemischen Eigenschaften der Substanz zu nutzen: Die Löslichkeit von CdI_2 in Wasser beträgt 1850 g/L (20°C) und ist damit äußerst hoch; das von Cadmium gebildete Carbonat ist praktisch unlöslich in Wasser [Sto13]. Aus diesem Grund wurden sowohl am Ausgang des Particle Counters als auch hinter den Ausgang der Sheath Air am Electrostatic Classifier je zwei Waschflaschen geschaltet, in denen sich eine wässrige Natriumcarbonat-Lösung befand. Die Cadmiumiodid-Partikel wurden durch diese Flüssigkeiten geleitet, wobei sie sich in der Flüssigkeit der ersten Waschflasche lösten und aus dem Aerosol entfernt wurden. Das vorhandene Carbonat dient als Indikator, der durch Ausfall des weißen $\text{Cd}(\text{CO}_3)$ anzeigt, dass sich Cadmium in der Lösung befindet. Wurde auch in der zweiten Waschflasche ein Niederschlag beobachtet, wurde dadurch angezeigt, dass das gelöste Carbonat in der ersten Waschflasche nicht mehr ausreichte, um das Cadmium zu binden, und die Lösungen erneuert werden mussten. Mit Hilfe dieses Aufbaus kann nun Cadmiumiodid in gleicher Weise wie Kaliumchlorid untersucht werden, ohne dass gesundheitliche Risiken bestehen.

3.4 Überprüfung der Kalibrierung des Electrostatic Classifiers

Die Kalibrierung des Electrostatic Classifiers kann mit Hilfe eines Standards überprüft werden. Der verwendete Standard bestand aus einer wässrigen Emulsion von Polystyrol-Partikeln einer bekannten, definierten Größe von $(105 \pm 6) \text{ nm}$ (Lot: PS-ST-B1056, 2% w/v wässrige Suspension). Die geringe Breite der Größenverteilung der Partikel ist dadurch begründet, dass sich keine Comonomere in der Lösung befinden. Eine weitere wichtige Eigenschaft dieser Standard-Partikel ist, dass sie eine sehr geringe Wasseraufnahme besitzen. Somit werden keine Aerosolcluster mit Wassermolekülen gebildet, wodurch in der Gasphase nur monodisperse Polystyrol-Moleküle vorhanden sind. Dies sollte zu einem scharfen Peak in der gemessenen Größenverteilung führen.

Sowohl Wasser als auch Polystyrol-Partikel gelangten durch einen Atomizer in das Trägergas (N_2). Der Atomizer selbst besteht aus einem Glasgefäß, das mit destilliertem Wasser und wenigen Tropfen der Standardsuspension gefüllt ist. Durch dieses

wurde das Trägergas geleitet, wodurch ein Aerosol entsteht. Dabei ist zu beachten, dass bei dieser Art der Aerosolerzeugung ein erhöhter Gasfluss von mindestens 3000 mL/min benötigt wird.

Das so entstandene Aerosol wurde anschließend durch eine dünne Kapillare in einen angeschlossenen Aerosoltrockner geführt, um das im Gas befindliche Wasser zu entfernen. Dieser wiederum wurde durch ein Rohr gebildet, in dessen Mittelpunkt sich ein perforiertes Metallröhrchen befand. Der Zwischenraum der beiden Rohre war mit Silicagel gefüllt. Anschließend floss das nun getrocknete Aerosol durch den Impactor in den EC und konnte dort vermessen werden.

Sofern die Größe der Standard-Partikel durch den EC bestätigt wird, ist die Richtigkeit der Kalibrierung gegeben. Andernfalls muss diese manuell nachreguliert werden.

3.5 Druckverhältnisse

Zur Konstruktion einer aerodynamischen Linse sind die Druckverhältnisse vor dem Eingang und hinter dem Ausgang der Linse von Interesse, da das Design der Linse an diese Verhältnisse angepasst werden muss. Die größere Bedeutung hat dabei der Druck vor der Linse, da sich dieser enorm auf die Dimensionen der Linse auswirkt. Durch die Leihgabe einer bereits gebauten aerodynamischen Linse [Fie08] ergab sich die Möglichkeit, die Druckverhältnisse in einem ähnlichen experimentellen System zu ermitteln (Abb.3.3). Diese Linse hat eine Gesamtlänge von etwa 30 cm und wird durch 5 Blenden gebildet, deren innerer Durchmesser von 4.5 mm auf 3.5 mm abnimmt. Der Durchmesser des Linsenausgangs beträgt 3 mm. Diese Linse wurde zu diesem Zweck zwischen zwei Vakuumkammern geschaltet, an denen sich jeweils eine Vorpumpe befand. Der vorhandene Druck wurde durch angeschlossene Manometer angezeigt. Über ein Kapillarsystem wurde eine definierte Menge an Stickstoff durch die Linse geleitet, wobei die Kapillare im ersten Vakuumkreuz endete. Die Distanz, die zwischen dem Ende der Kapillare und dem Eingang der Linse bestand, wird durch den Parameter L bezeichnet. Ein Teil des Gases wurde bereits durch die erste Vorpumpe entfernt; der Rest des Gases wurde hinter der Linse durch die zweite

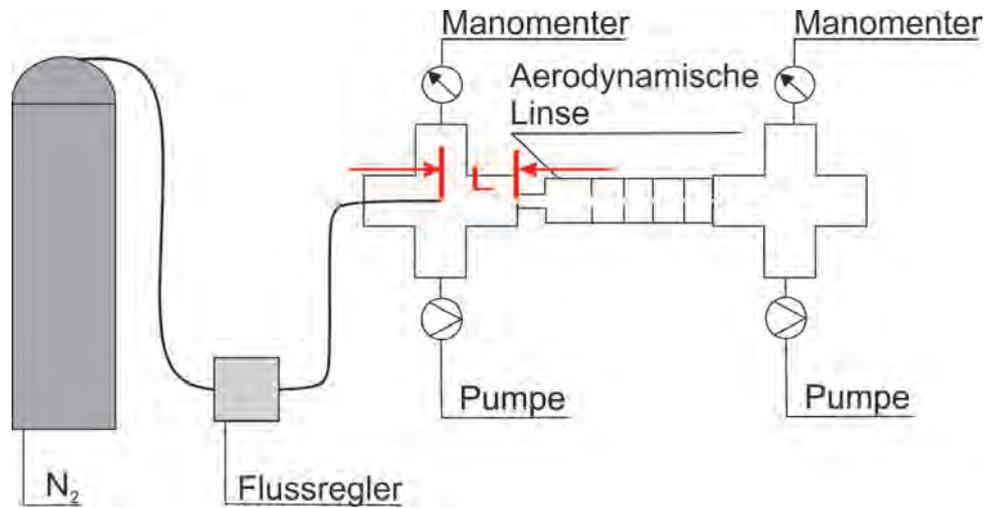


Abbildung 3.3: Aufbau des Drucktests mit ähnlicher aerodynamischer Linse. Das Trägergas wird jeweils vor und hinter der Linse mittels Vorpumpen abgepumpt. Der Parameter L beschreibt den Abstand zwischen dem Ende der Kapillare und dem Eingang der Linse.

Vorpumpe abgepumpt. Der Unterschied zum TRIGA-SPEC-Experiment besteht darin, dass als zweite Pumpe eine Vorpumpe statt einer Turbo-Pumpe verwendet wurde. Da - wie bereits erwähnt - der Druck vor der Linse von deutlich größerer Bedeutung ist als derjenige hinter der Linse, hat diese Tatsache keinen signifikanten Einfluss auf die Untersuchungen. Durch Variation des Gasflusses und des Abstands L konnte somit der Einfluss dieser Parameter auf den vorhandenen Druck ermittelt werden.

3.6 Sammlungen von Spaltprodukten

Der Aufbau des TRIGA-SPEC-Experiments hat den bedeutenden Vorteil mit radioaktiven Spaltprodukten zu arbeiten, die sich mittels γ -Spektroskopie unkompliziert detektieren lassen. Dazu werden diese zunächst auf Glasfaserfiltern oder Aluminium-Folien gesammelt, d.h. sogenannte Catches gemacht. Die Dauer einer Sammlung und der darauf folgenden Abklingzeit richtet sich im Allgemeinen nach der Menge und der Halbwertszeit der vorhandenen Aktivität. Der Filter bzw. die Folie wird aus der Halterung ausgebaut, auf einem Träger befestigt und anschließend in einem Germanium-Halbleiterdetektor γ -spektroskopisch vermessen.

Im experimentellen Aufbau bieten sich verschiedene Positionen zur Sammlung von Spaltprodukten an (Abb. 3.4).

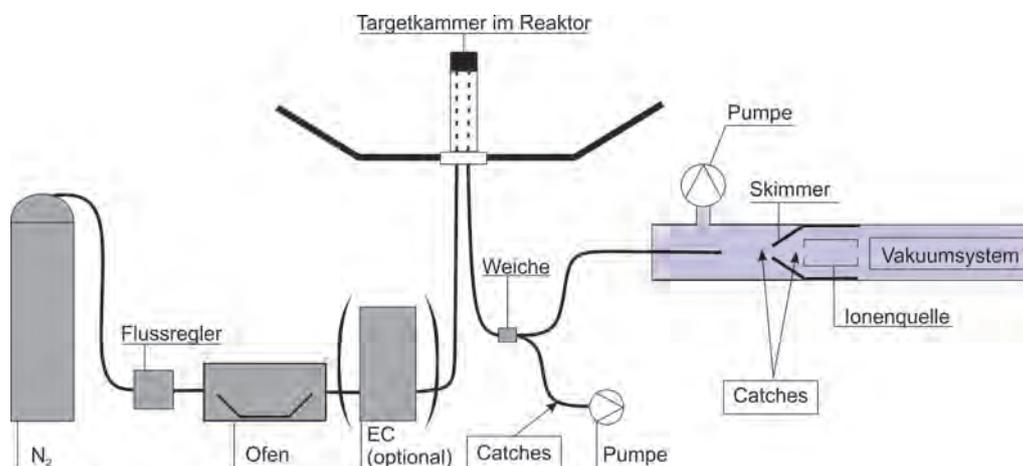


Abbildung 3.4: Positionen der Catches. An drei verschiedenen Positionen des TRIGA-SPEC-Experiments können Sammlungen gemacht werden, durch die schließlich verschiedene Transporteffizienzen erhalten werden können. Optional kann ein EC als Größenfilter verwendet werden. Dieser wird direkt hinter dem Ofen eingebaut, um monodisperse Partikel in die Targetkammer zu leiten.

Zunächst kann über eine Weiche in der Apparatur der Aerosolfluss so umgeleitet werden, dass er hinter der Targetkammer nicht weiter in den angeschlossenen Versuchsaufbau gelangt. Stattdessen wird das Aerosol durch einen Filter geleitet, der die Aerosolcluster auffängt, und das Trägergas anschließend abpumpt. Da diese Position leicht zugänglich ist, wurden hier die meisten Sammlungen gemacht. Der Filter konnte innerhalb einer Minute ausgebaut und auf dem Träger präpariert werden, sodass die γ -Messung bereits nach zwei Minuten gestartet werden konnte. Dies hat den Vorteil, dass auch kurzlebige Spaltprodukte erfasst werden können. Typisch sind 10 min Sammlung, 2 min Abklingdauer und 10 min Messung.

Um die Spaltprodukte zu sammeln, die bis vor den Skimmer transportiert werden, wird der Filter entsprechend vor dem Skimmereingang angebracht. Dazu muss die Apparatur, d.h. die Vakuumkammer, allerdings geöffnet werden, wodurch ein erheblicher zeitlicher Aufwand entsteht. Die Abklingzeit des Catches ist dadurch zwangsläufig erhöht, weshalb es nicht möglich ist, direkt nach wenigen Minuten mit der Messung zu beginnen. Um dennoch eine hinreichend große Aktivität zu erhalten, wurde entsprechend die Dauer der Sammlung ausgedehnt: Die Sammlung erstreckte meist sich über 30 min; nach einer Abklingzeit von 20 min wurde der Catch für 30

min vermessen. Die gleiche Prozedur kann verwendet werden, um die Spaltprodukte zu sammeln, die den Skimmer durchqueren: Der Filter wird nun lediglich hinter dem Ausgang des Skimmer angebracht.

Durch Auswertung der so erhaltenen Daten bzw. dem Vergleich der einzelnen Catches, kann so die Transporteffizienz der Aerosolcluster oder die Skimmer-Effizienz erhalten werden.

Eine weitere Möglichkeit ergab sich aus der Kombination des Electrostatic Classifiers mit der Sammlung von Spaltprodukten: Der EC wurde dazu direkt hinter den Ofen eingebaut, in dem das Aerosol erzeugt wird (Abb. 3.4) und als Größenfilter verwendet. Somit konnte genau bestimmt werden, welche Größe die Partikel besitzen, die in die Targetkammer geleitet werden. Anschließend wurden die transportierten Spaltprodukte auf einem Filter gesammelt und vermessen. Durch Variation der am EC angelegten Spannung konnte somit untersucht werden, ob die Größe der Aerosolpartikel die Transporteffizienz der Spaltprodukte beeinflusst oder ob der entscheidende Beitrag zum Transport lediglich durch die Konzentration dieser Partikel gegeben ist.

Bei den verschiedenen Messungen wurde dabei stets der selbe Detektor und die selbe Messposition verwendet, da dadurch die äußeren Bedingungen der Messungen konstant gehalten wurden. Dies hat den Vorteil, dass Fehler verringert werden und die Proben untereinander besser zu vergleichen sind. Zur Auswertung der γ -Spektren wurde anschließend das Programm „Genie 2000“ (Version 3.2.1) von Canberra-Eurysis GmbH verwendet.

Kapitel 4

Resultate

4.1 Kalibrierung der Ofentemperatur

Zu Beginn der Gas-Jet-Charakterisierungen ist es von großer Bedeutung, die einzelnen Komponenten des Laboraufbaus zu verifizieren, um sicherzustellen, dass die erhaltenen Werte auch den tatsächlichen Gegebenheiten am TRIGA-SPEC-Experiment entsprechen. Aus diesem Grund wurden zunächst die Temperaturcontroller der Öfen im Labor und im Experiment überprüft und miteinander verglichen. Dazu wurden verschiedene Ofentemperaturen eingestellt und der Temperaturregler, der beim TRIGA-SPEC-Gas-Jet eingesetzt wird, als Temperaturanzeige eingesetzt. So kann die im Labor eingestellte Temperatur T_{Labor} mit der Temperatur des Ofens in der Reaktorhalle T_{Halle} verglichen werden. Die Temperaturbereiche wurden so gewählt, dass sie etwa 100°C unterhalb der Schmelzpunkte von Cadmiumiodid bzw. Kaliumchlorid beginnen und einen weiten Temperaturbereich abdecken. Die erhaltenen Daten und die sich daraus ergebende Abweichung beider Werte voneinander ΔT sind in Tab. 4.1 zu sehen. Im niedrigeren Temperaturbereich stimmen die Werte annähernd überein. Dies wird durch die Auftragung der Temperaturdifferenz gegen die Temperatur (Abb. 4.1) deutlich. Der angegebene Fehler beträgt $\pm 3^{\circ}\text{C}$ und schätzt ab, wie genau die analoge Skala der Temperaturanzeige beider Messgeräte abgelesen werden kann. Er ist entsprechend systematischer Natur. Aus der Differenz der an beiden Geräten angezeigten Werte, ergibt sich im niedrigen Temperaturbereich ein Mittelwert von $(-3 \pm 6)^{\circ}\text{C}$. Der angegebene Fehler wird aus dem statistischen Fehler des Mittelwerts

Tabelle 4.1: Temperaturanzeige der verschiedenen Temperaturcontroller

$T_{Labor} / ^\circ\text{C}$	T_{Halle} / K	$\Delta T / ^\circ\text{C}$
272	280	-8
280	285	-5
290	295	-5
300	300	0
310	310	0
320	320	0
630	610	20
640	615	25
650	625	25
660	630	30
670	640	30
680	650	30
690	665	25
700	670	30
710	685	25

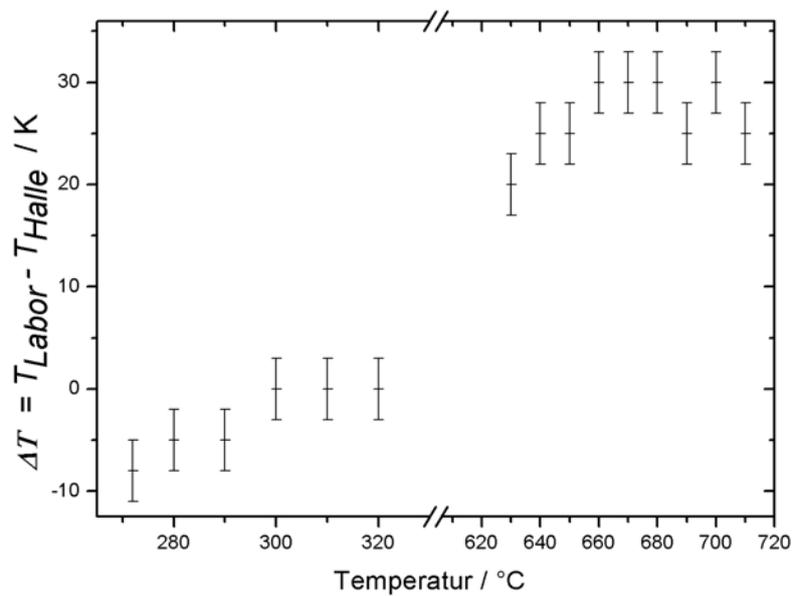


Abbildung 4.1: Abweichung der Temperaturanzeige des Laboraufbaus T_{Labor} zur Anzeige des TRIGA-SPEC-Temperaturcontrollers. Der niedrigere Temperaturbereich betrifft spätere Messungen mit Cadmiumiodid; die höheren Temperaturen liegen im Bereich der Kaliumchlorid-Messungen. Die Fehler ergeben sich aus dem systematischen Ablesefehler der Temperaturskala ($\pm 3^\circ\text{C}$).

gebildet, zu dem das Quadrat des systematischen Fehlers addiert wird. Wird die Temperatur höher, so wird auch die Abweichung beider Werte voneinander größer. Entsprechend liegt der Mittelwert des zweiten Temperaturintervalls bei $(27 \pm 6)^\circ\text{C}$. Um die Messungen an beiden Apparaturen vergleichen zu können und somit übereinstimmende Ergebnisse mit dem tatsächlichen Experiment am TRIGA-Reaktor zu erhalten, wird die abgelesene Temperatur des Ofens im Labor bei höheren Temperaturen entsprechend um 27°C nach unten korrigiert und somit an den Ofen des TRIGA-SPEC-Aufbaus angepasst. Da die Abweichung bei niedrigeren Temperaturen im Rahmen des Fehlers liegt und nur bei höheren Temperaturen signifikant wird, betrifft diese Korrektur lediglich die mit Kaliumchlorid durchgeführten Messungen. Die in den folgenden Abschnitten angegebenen Temperaturen sind bereits auf den Ofen des TRIGA-SPEC-Experiments korrigiert.

Weiterhin muss die Temperaturänderung im Ofeninneren bei erhöhten Gasflüssen betrachtet werden. Messungen von R. Günther [Gün93] ergaben jedoch bereits, dass sich die Temperatur am Ort des Keramik-Schiffchens selbst bei einem sehr hohen Gasfluss von 2000 mL/min nicht signifikant ändert. Aus diesem Grund wurde auf eine weitere Messreihe verzichtet.

4.2 Kalibrierung des Electrostatic Classifiers

Bevor mit der Charakterisierung von Kaliumchlorid- und Cadmiumiodid-Aerosolen begonnen werden kann, muss eine Kalibrierungskurve des Electrostatic Classifiers berechnet werden. Diese ergibt sich aus der Kombination von Gl. 2.21 und Gl. 2.22 und ist für einen Gasfluss von 1000 mL/min in Abb. 4.2 dargestellt. Die Kalibrierungskurve ist sowohl von der Art des verwendeten Trägergases als auch dem eingestellten Gasfluss sowie von der Ladung der Partikel abhängig und ermöglicht die Umrechnung der am Kollektor angelegten Spannung in die entsprechende Partikelgröße, die schließlich in den CPC geleitet und analysiert wird. Die dargestellte Kalibrierkurve gilt nur für einfach geladene Partikel. Bei den später aufgenommenen Kurven wird entsprechend angenommen, dass die betrachteten Partikel nicht mehr als einfach geladen sind.

Um diese Kalibrierung mit Hilfe des Polystyrolstandards zu überprüfen (Ab-

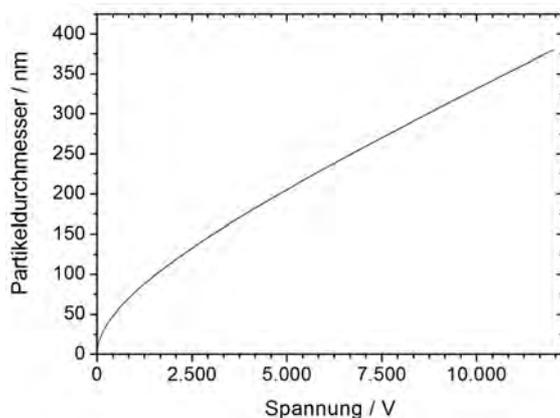


Abbildung 4.2: Kalibrierung des Electrostatic Classifiers für einen Gasfluss von 1000 mL/min und Stickstoff als Trägergas für einfach geladene Cluster.

schnitt 3.4), muss zunächst der Untergrund bestimmt werden, der durch das Wasser und Trägergas bzw. durch im Trägergas vorhandene Verunreinigungen gebildet wird.

Bei einer ersten Messung wird lediglich Gas durch die gesamte Apparatur geleitet. Es zeigt sich, dass sich keine Partikel im Trägergas bzw. im System befinden und somit keine Untergrundkorrektur stattfinden muss.

Anschließend wird der Atomizer mit destilliertem Wasser gefüllt und die Größenverteilung der entstehenden Aerosolpartikel aufgenommen (Abb. 4.3). Es zeigt sich,

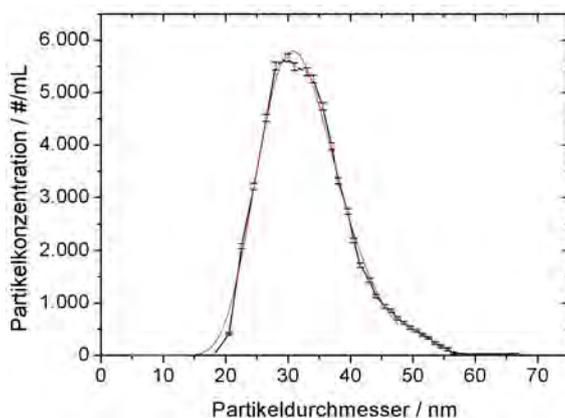


Abbildung 4.3: Größenverteilung von Wasser-Clustern. Der Fehler der einzelnen Messwerte ergibt sich aus \sqrt{N} . Die rote Kurve entspricht dem Fit einer Log-Normalverteilung, durch den das Maximum bei (32 ± 1) nm erhalten wird.

dass reines Wasser Aerosolpartikel einer breiten Größenverteilung bildet; der Durch-

messer erstreckt sich zwischen 20 – 55 nm, wobei sich das Maximum bei (32 ± 1) nm befindet. Da die Polystyrolstandardpartikel eine Größe von (105 ± 6) nm besitzen, ist der signifikante Peak dieser Partikel in der Größenverteilung unabhängig von vorhandenen Wasserpartikeln. Anschließend wurde eine Polystyrolstandardlösung angesetzt und die Messung wiederholt (Abb. 4.4). Im Bereich von 20 – 55 nm ist

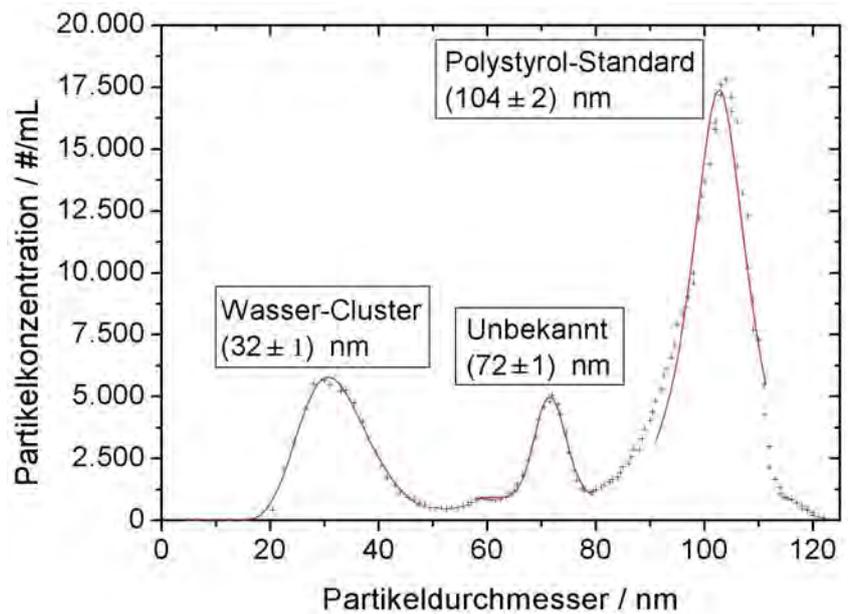


Abbildung 4.4: Größenverteilung der Standardlösung aus Polystyrol und destilliertem Wasser. Die erhaltenen Peaks wurden mit einer Log-Normalverteilung gefittet.

ein breiter Peak zu sehen, der durch die vorherige Messung bereits charakterisiert wurde. Er zeigt folglich die Größenverteilung der Wasser-Aerosolpartikel. Der mit Abstand größte Peak hat sein Maximum bei (104 ± 2) nm und wird vom Polystyrolstandard gebildet. Dies stimmt im Rahmen der Fehler mit dem mit der angegebenen Größe der Polystyrolpartikel überein. Die Gültigkeit der Kalibrierung des Classifiers ist somit bestätigt. Der kleinere Peak bei 72 nm konnte nicht identifiziert werden. Vermutlich handelt es sich hierbei um mehrfach geladene Polystyrolpartikel oder Verunreinigungen in der Standardlösung, da dieser Peak bei der Messung mit reinem Wasser nicht zu sehen war.

4.3 Untersuchungen mit KCl

Zu Anfang der Charakterisierung von Kaliumchlorid-Aerosolen wurde der in Abb. 3.2 dargestellte Aufbau verwendet. Als Trägergas wurde 99.998 Vol.% Stickstoff eingesetzt.

Um den Einfluss der Temperatur auf Partikelanzahl und -größe zu erhalten, wurde die Temperatur in einem Bereich von 603 – 683°C in Schritten von je 10°C variiert. Der Beginn dieser Messreihe liegt somit unterhalb der üblicherweise beim Gas-Jet des TRIGA-SPEC-Experiments verwendeten Temperatur. Die obere Grenze des Temperaturintervalls liegt 90°C unterhalb des Schmelzpunktes, um ein partielles Aufschmelzen des Salzes zu verhindern. Um gleichzeitig zu ermitteln, auf welche Weise das Aerosol durch den Gasfluss beeinflusst wird, wurde dieser sukzessive von 1000 mL/min auf 200 mL/min reduziert. Die angelegte Spannung wurde in Schritten von 50 V von 0 auf 4000 V erhöht.

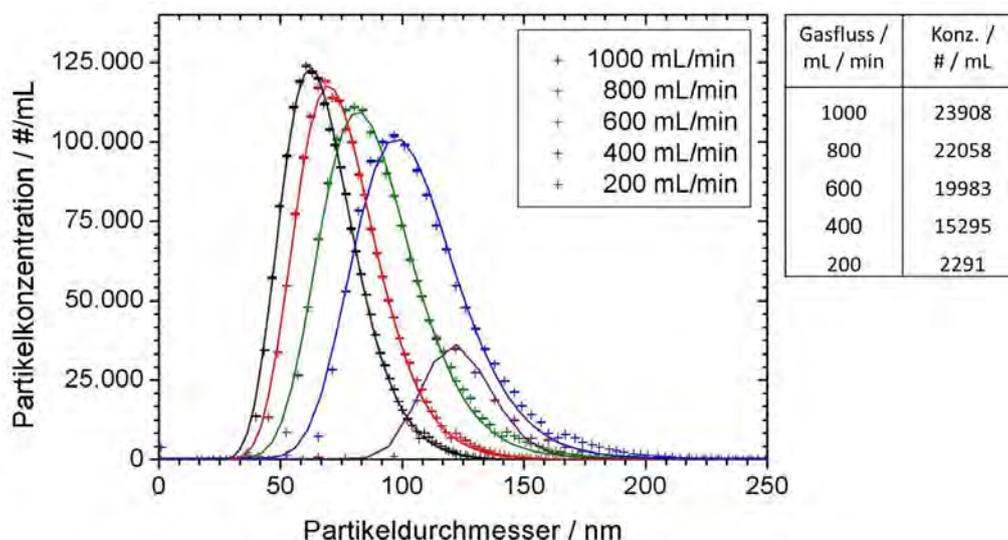


Abbildung 4.5: Typische Größenverteilung von KCl-Aerosolpartikeln. Die Daten wurden bei einer Ofentemperatur von 613°C bei verschiedenen Gasflüssen aufgenommen. Der Fehler der Partikelkonzentration ergibt sich aus \sqrt{N} . Die dargestellten Kurven entsprechen dem jeweiligen Fit einer Log-Normalverteilung.

In Abb. 4.5 sind die aufgenommenen Größenverteilungen bei einer Ofentemperatur von 613°C für verschiedene Gasflüsse mit dem jeweiligen Fit einer Log-Normalverteilung aufgetragen.

Die Größe der Kaliumchlorid-Aerosolpartikel bewegt sich somit allgemein in einem Bereich von 40 – 200 nm. Es ist zusätzlich zu sehen, dass sich zum einen das Maximum der Verteilungen mit sinkendem Gasfluss zu größeren Durchmessern verschiebt. Parallel dazu wird die Verteilung breiter. Während die Halbwertsbreite bei einem Fluss von 1000 mL/min bei lediglich 36.5 nm liegt, erhöht sich diese bei nur noch 400 mL/min auf 45.7 nm. Gleichzeitig nimmt die Menge der produzierten Partikel ab. Auffällig ist zudem, dass die Partikelkonzentration bei einem Gasfluss von 200 mL/min deutlich niedriger ist als bei höheren Gasflüssen; sie beträgt im Vergleich zu einem Fluss von 1000 mL/min nur 30%.

Wird nun die transportierte Masse der Aerosolpartikel betrachtet, so ändern sich diese Verteilungen (Abb. 4.6). Die mit Abstand größte Masse wird bei einem

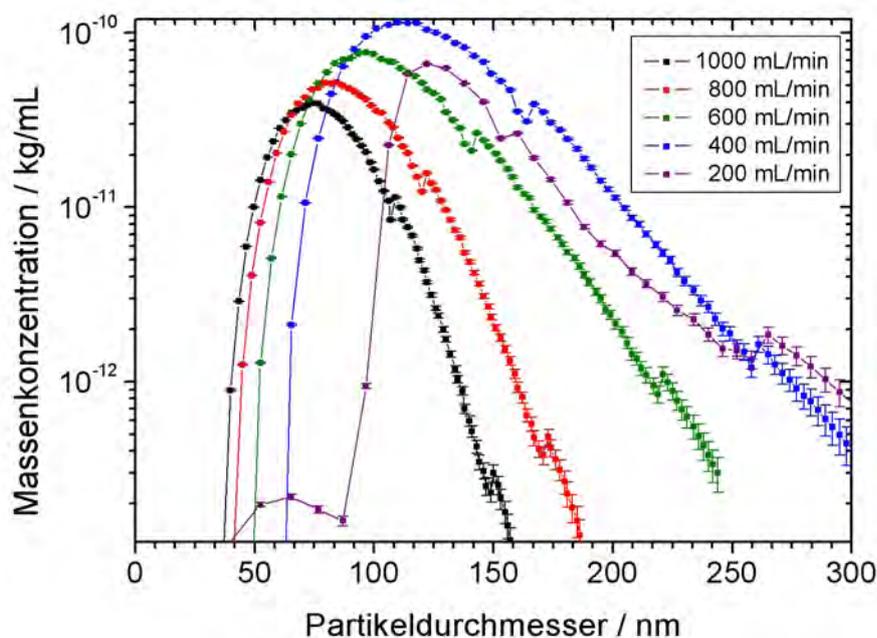


Abbildung 4.6: Typische Massenverteilung von KCl-Aerosolpartikeln. Zur Berechnung der Kurven wurden die Daten verwendet, die durch die Messung bei einer konstanten Ofentemperatur von 613°C und verschiedenen Gasflüssen erhalten wurden. Es wird dabei angenommen, dass die Partikel sphärisch und von homogener Dichte sind. Es muss beachtet werden, dass bei diesen Kurven sowie bei nachfolgenden Messungen ein Einbruch in der Konzentration zu sehen ist, sobald diese von größeren Werten auf 1000 /mL absinkt. Dies liegt daran, dass im CPC ein Wechsel der Detektionsmethode stattfindet. Bei Konzentrationen < 1000 /mL werden im Photodetektor einzelne Pulse detektiert, während bei Werten von > 1000 /mL eine Amplitudenmessung stattfindet.

Gasfluss von 400 mL/min transportiert. Die Anzahl der Partikel ist zwar geringer

als bei höheren Flüssen, im Mittel sind diese jedoch größer. Da das Volumen von sphärischen Teilchen mit $(d/2)^3$ ansteigt, erhöht sich dadurch ihre Masse deutlich. Dies führt dazu, dass selbst bei einem sehr geringen Gasfluss von 200 mL/min die transportierte Masse höher ist, als bei einem Fluss von 1000 mL/min.

Für jede eingestellte Ofentemperatur wurde der Gasfluss variiert und jeweils die Partikelkonzentration in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser aufgenommen. Die Auftragung der Anzahl an transportierten Partikeln gegen den Gasfluss ist in Abb. 4.7 zu sehen. Die Partikelzahl wächst mit steigendem Gasfluss und höherer Tempera-

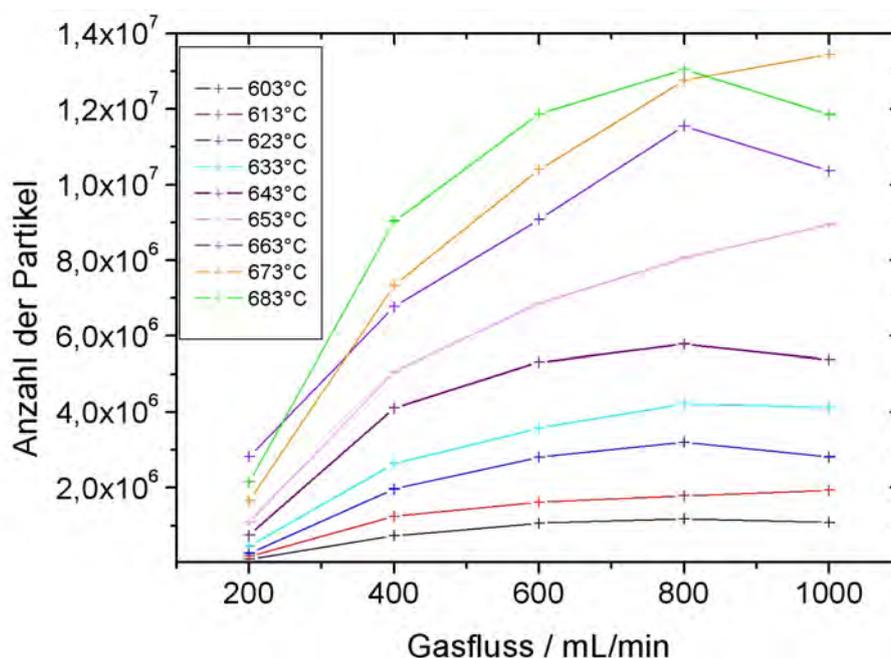


Abbildung 4.7: Abhängigkeit der Anzahl an transportierten KCl-Partikel vom Stickstoff-Fluss bei verschiedenen Ofentemperaturen. Die Anzahl der Partikel entspricht der Fläche der unter den verschiedenen Bedingungen aufgenommenen Größenverteilungen. Die Fehler der erhaltenen Werte ergeben sich aus \sqrt{N} .

tur. Zwar wird die Partikelmenge bei einem Anstieg des Gasflusses von 200 mL/min auf 1000 mL/min bei allen Temperaturen um durchschnittlich den Faktor 2.8 erhöht; die Gestalt der Kurven unterscheidet sich dennoch. Bei niedrigeren Temperaturen steigt die Anzahl an Partikeln annähernd linear an. Ab einer Temperatur von 653°C wird der Einfluss des Gasflusses deutlicher. Es entsteht ein Maximum, das bei einem Fluss von 800 mL/min liegt. Im Vergleich zu 200 mL/min wird hier bereits eine

um den Faktor 2.7 erhöhte Anzahl an produzierten und transportierten Partikeln erhalten.

Abb. 4.8 zeigt die Anzahl der transportierten Partikel als Funktion der Temperatur. Durch diese Art der Auftragung wird deutlich, dass sich die Anzahl der transpor-

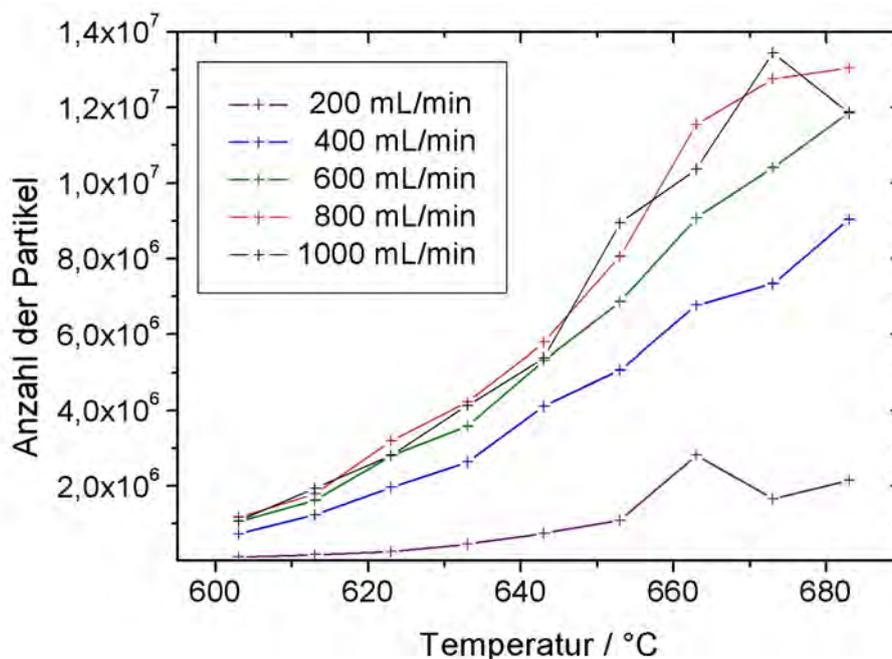


Abbildung 4.8: Abhängigkeit der Anzahl an transportierten KCl-Partikel von der Temperatur. Die Anzahl der Partikel entspricht der Fläche der unter den verschiedenen Bedingungen aufgenommenen Größenverteilungen. Auffallend ist die geringe Partikelanzahl bei einem Gasfluss von 200 mL/min.

tierten Partikel unabhängig vom Gasfluss mit steigender Temperatur erhöht. Dies ist in Abb.(4.7) bereits zu sehen. Ein Anstieg von 90°C erzeugt eine durchschnittlich um einen Faktor 3.5 vergrößerte Anzahl an Partikeln. Gleichzeitig wird durch diese Auftragung deutlich, dass bei einem Gasfluss von lediglich 200 mL/min die Anzahl der erzeugten Aerosolcluster um ein Vielfaches geringer ist. Bei höheren Flüssen unterscheidet sich diese Menge nur geringfügig.

Durch Auswertung der erhaltenen Größenverteilungen kann der Count Median Diameter jeder Messung erhalten werden.¹ Abb.4.9 zeigt die Auftragung des mitt-

¹Im folgenden Text wird der Count Median Diameter als mittlerer Durchmesser bezeichnet, da er dem geometrischen Mittelwert der Partikelgröße entspricht.

leren Durchmessers gegen den Gasfluss, während dieser Durchmesser in Abb.(4.10) gegen die Temperatur aufgetragen ist. Bei zunehmender Temperatur steigt der mitt-

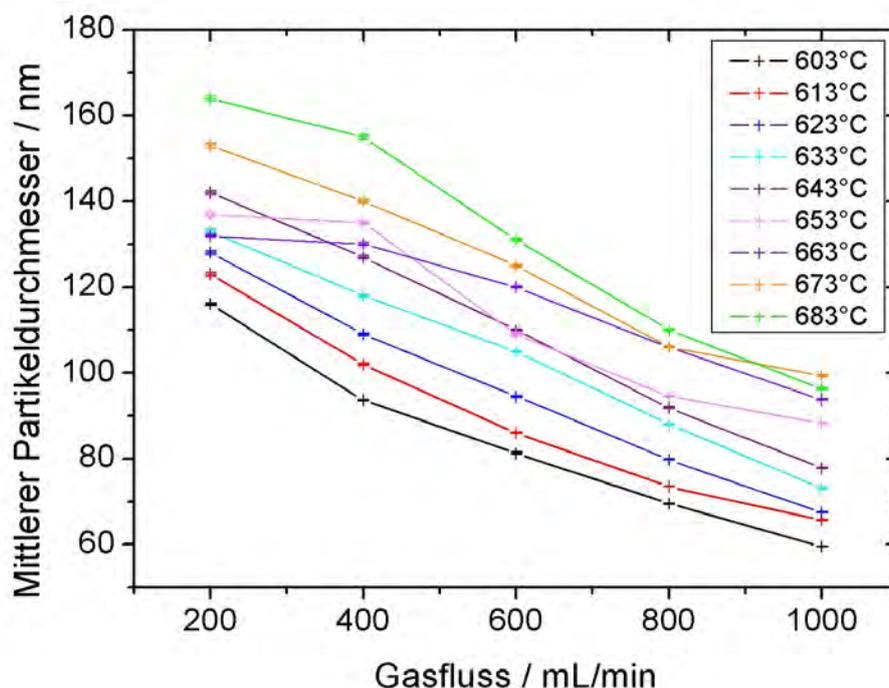


Abbildung 4.9: Mittlerer Durchmesser der KCl-Aerosolpartikel in Abhängigkeit des Gasflusses bei verschiedenen Temperaturen.

lere Durchmesser etwa linear mit einer mittleren Steigung von (0.5 ± 0.2) nm/K. Dieses Verhalten ist unabhängig vom eingestellten Gasfluss. Mit abnehmendem Gasfluss werden größere Partikel erhalten. Eine Minderung des Gasflusses um 100 mL/min führt zu einer Verschiebung des Durchmessers um (7 ± 1) nm. Diese Entwicklung ist für alle untersuchten Temperaturen zu beobachten. Im Vergleich zu einem Fluss von 1000 mL/min ist der Durchmesser der Partikel bei 200 mL/min um durchschnittlich (56.3 ± 8.2) nm vergrößert.

4.4 Untersuchungen mit CdI_2

Da Cadmiumiodid ebenfalls als Aerosolmaterial im Gas-Jet des TRIGA-SPEC-Experiments eingesetzt wird, wurde dieses ebenfalls systematisch auf seine Eigenschaften

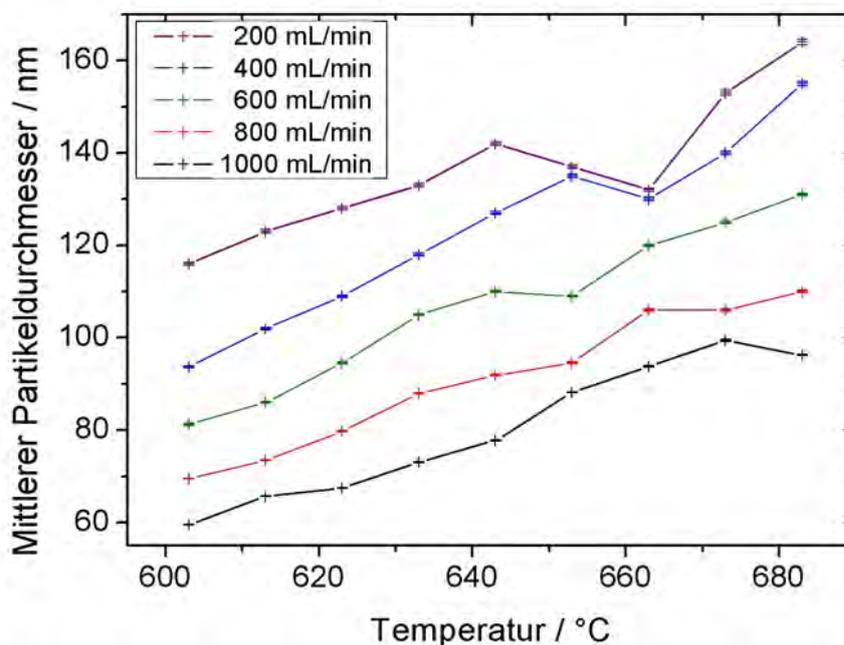


Abbildung 4.10: Mittlerer Durchmesser der KCl-Aerosolpartikel in Abhängigkeit der Temperatur. Die Kurven sind für verschiedene Gasflüsse aufgetragen.

untersucht. Es wurde dabei in der gleichen Weise wie bei Kaliumchlorid vorgegangen. Ein Unterschied bestand jedoch darin, dass der Laboraufbau aus Sicherheitsgründen, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, um mehrere Waschflaschen erweitert wurden. Der Schmelzpunkt von Cadmiumiodid liegt bei 387°C . Entsprechend wurden die Untersuchungen in einem Temperaturbereich von $270 - 370^{\circ}\text{C}$ durchgeführt. Der eingestellte Gasfluss wurde - wie bei KCl - zwischen $200 - 1000 \text{ mL/min}$ variiert. Typische Größenverteilung der Aerosolpartikel in Abhängigkeit des Gasflusses sind in Abb. 4.11 zu sehen. Wie bereits bei Kaliumchlorid handelt es sich hierbei ebenfalls um Log-Normalverteilungen. In dieser Abbildung wird deutlich, dass sich, ähnlich wie bei KCl, das Maximum der Verteilung bei sinkendem Gasfluss zu größeren Partikeldurchmessern verschiebt. Gleichzeitig werden die Kurven merklich breiter; die Halbwertsbreite steigt von etwa 30.5 nm (1000 mL/min) auf 100 nm (200 mL/min) an. Des Weiteren nimmt die Anzahl der produzierten und transportierten Aerosolcluster mit vermindertem Gasfluss signifikant zu.

Abb. 4.12 zeigt die Massenverteilung der Cadmiumiodid-Aerosolcluster. Bei Variation des Gasflusses unterscheidet sich die Menge der transportierten Masse signifi-

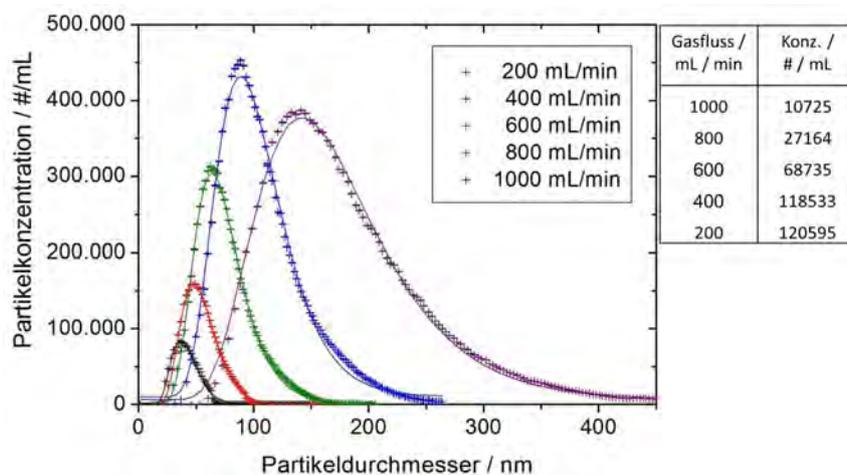


Abbildung 4.11: Typische Größenverteilungen von Cadmiumiodid-Aerosolpartikeln. Die gezeigten Daten wurden bei 350°C und verschiedenen Gasflüssen aufgenommen. Für jede betrachtete Temperatur wurde diese Messreihe entsprechend wiederholt. Die dargestellten Kurven entsprechen dem jeweiligen Fit einer Log-Normalverteilung.

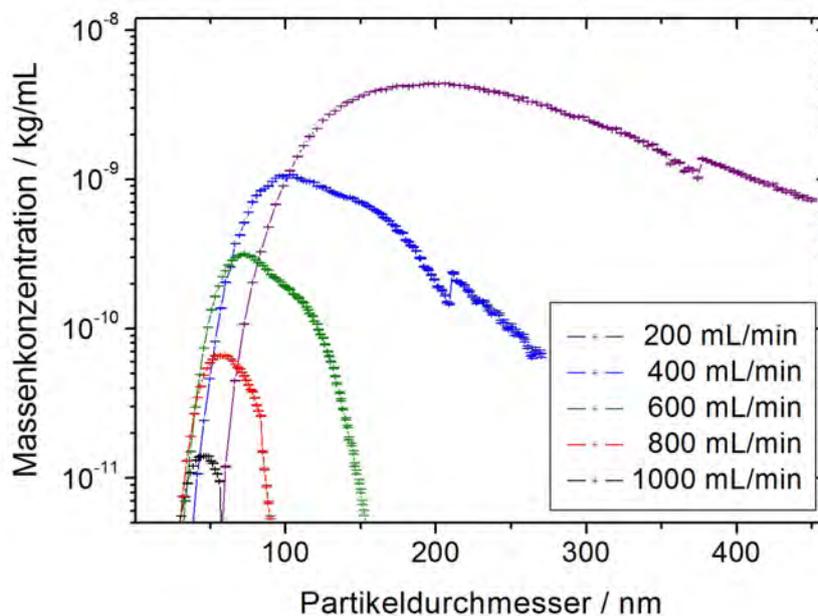


Abbildung 4.12: Typische Massenverteilung von Cadmiumiodid-Partikeln. Die Kurven wurden aus den erhaltenen Größenverteilungen bei 350°C erhalten. Es wurde dabei angenommen, dass die Partikel sphärisch und von homogener Dichte sind.

kant. Durch die erhöhte Anzahl an erzeugten Aerosolclustern bei kleinen Gasflüssen wird bei diesen Bedingungen die Massenkonzentration entsprechend gesteigert. Dies führt auch dazu, dass die größte Masse bei einem Gasfluss von 200 mL/min erhalten wird, obwohl dort weniger Partikel erzeugt werden, als bei einem Fluss von 400 mL/min.

Wird die Anzahl der erhaltenen Partikel gegen den Gasfluss (Abb. 4.13) bzw. gegen die Temperatur (Abb. 4.14) aufgetragen, so wird deutlich, dass die Partikelkonzentration mit steigendem Gasfluss drastisch sinkt. Dieser Trend ist bei allen Temperaturen zu erkennen, obwohl er unterschiedlich stark ausgeprägt ist. Dieses Verhalten ist anders als bei KCl (vgl. Abb. 4.7). Bei einem Anstieg von 200 mL/min auf 1000 mL/min sinkt bei höheren Temperaturen die Anzahl der Partikel auf $< 10\%$. Bei Temperaturen unterhalb von 290°C werden bei 800 - 1000 mL/min annähernd keine Partikel mehr erhalten. Dies wird durch Abb (4.14) bestätigt: Bei erhöhten Temperaturen werden mehr Partikel erzeugt bzw. transportiert. Dieser Anstieg erstreckt sich über mehrere Größenordnungen. Auch bei dieser Betrachtung ist diese Entwicklung bei allen Gasflüssen zu erkennen. Sinkt die Temperatur unter 300°C ist bei 800 mL/min bzw. 1000 mL/min zusätzlich ein rapider Abfall in der Partikelzahl zu sehen. Da die Größenverteilungen wie bei den Messungen von Kaliumchlorid Log-Normalverteilungen gleichen, wird als Maximum der Verteilung der Count Median Diameter erhalten. Abb. 4.15 zeigt die Auftragung des erhaltenen mittleren Durchmessers gegen den Gasfluss bei verschiedenen Temperaturen. Wie bereits in der Größenverteilung (Abb. 4.11) zu sehen, entstehen bei reduziertem Gasfluss größere Partikel. Durchschnittlich erhöht sich der Durchmesser der Partikel um 26% sofern der Gasfluss von 1000 mL/min auf 200 mL/min vermindert wird. Bei einer Temperatur von 340°C können dadurch Partikel mit einem Durchmesser von (214 ± 0.7) nm erhalten werden. Interessant ist auch die Auftragung des mittleren Durchmessers gegen die Temperatur (Abb. 4.16). Bei Gasflüssen die kleiner sind als 400 mL/min steigt die Partikelgröße mit erhöhter Temperatur annähernd linear an. Bei 400 mL/min und 600 mL/min steigt der mittlere Durchmesser zwar auch parallel zur Temperatur, es ist zudem jedoch ein deutliches Maximum zu sehen, das bei einer Temperatur von 340°C liegt. Unter diesen Bedingungen bildet Cadmiumiodid somit die mit Abstand größten Aerosolcluster.

Es muss allerdings beachtet werden, dass am Gas-Jet des TRIGA-SPEC-Experiments

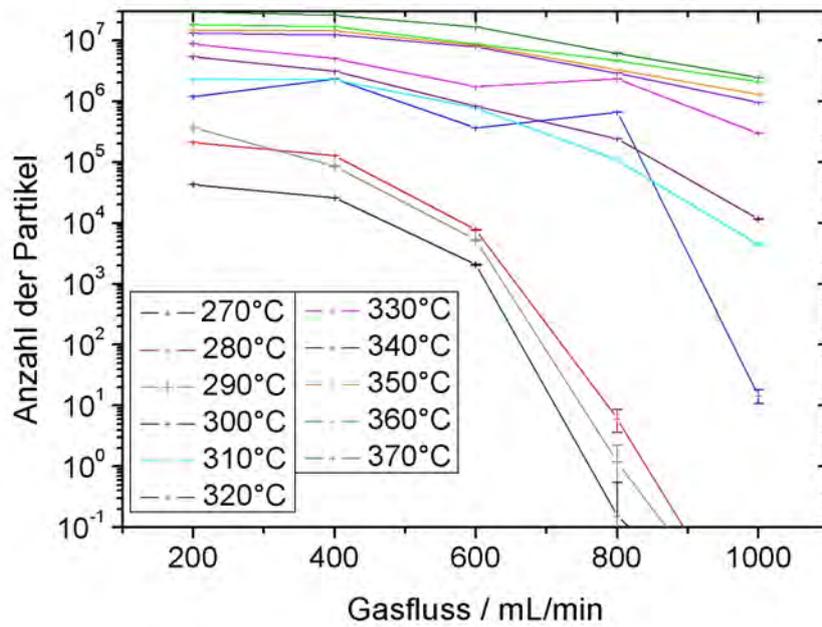


Abbildung 4.13: Anzahl der transportierten Cadmiumiodid-Aerosolpartikel in Abhängigkeit des Trägergasflusses. Die Kurven sind für alle gemessenen Temperaturen dargestellt.

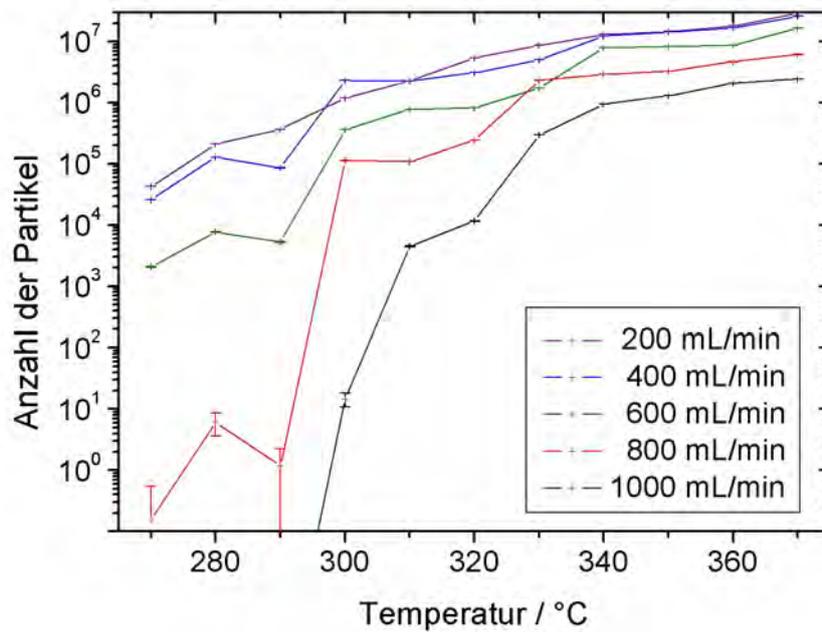


Abbildung 4.14: Anzahl der transportierten Cadmiumiodid-Aerosolpartikel in Abhängigkeit der Temperatur. Die dargestellten Werte entsprechen der Fläche der Größenverteilung bei den jeweiligen unterschiedlichen Bedingungen.

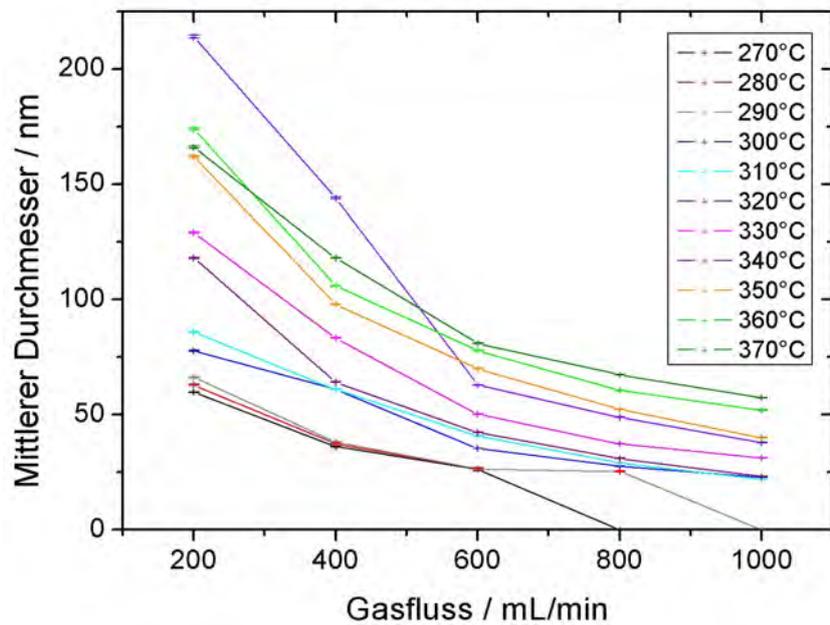


Abbildung 4.15: Mittlerer Durchmesser der Aerosolpartikel in Abhängigkeit des Gasflusses. Dies ergibt sich mitsamt dazugehörigem Fehler aus dem Maximum der jeweiligen Messung.

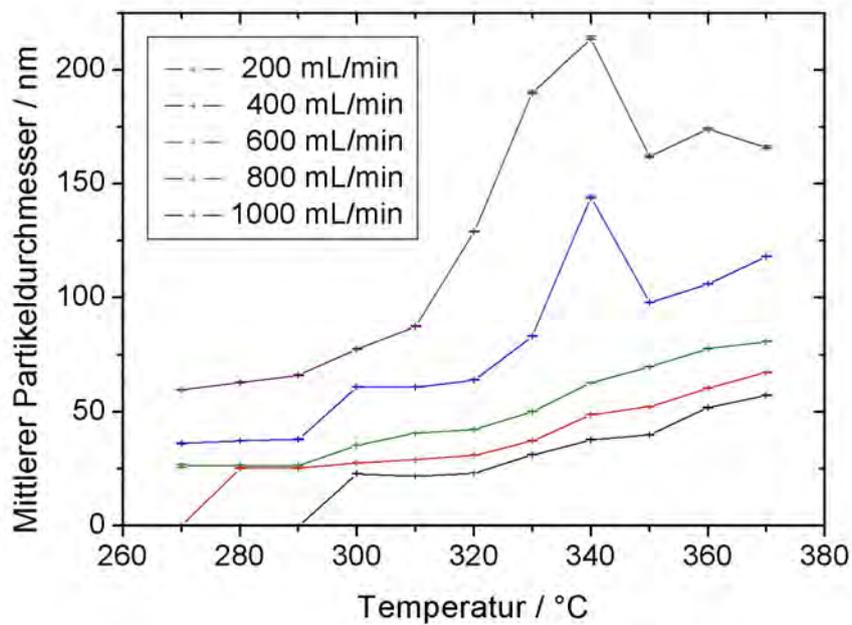


Abbildung 4.16: Mittlerer Durchmesser der Aerosolpartikel in Abhängigkeit der Temperatur für verschiedene Gasflüsse. Bei niedrigen Gasflüssen entsteht ein Maximum, das bei 340°C liegt.

bei der Verwendung von Cadmiumiodid als Aerosolmaterial eine maximale Temperatur von 300°C eingestellt wird. Bei höheren Temperaturen setzen sich die Kapillaren schnell zu, sodass die Transporteffizienz stark abnimmt. Empirische Studien ergaben, dass die Effizienz des Gas-Jets bei einer Temperatur von 290°C gute Ergebnisse erzielt und gleichzeitig über mehrere Wochen konstant bleibt.

4.5 Sammlungen von transportierten Spaltprodukten mit monodispersen Aerosol

Zu Beginn dieser Messreihe wurde überprüft, ob die Größenverteilung der Aerosolpartikel des TRIGA-SPEC-Gas-Jets dem entspricht, was im Labor bereits gemessen wurde. Zu diesem Zweck wurde mit Hilfe des Electrostatic Classifiers und des Condensation Particle Counters die Verteilung direkt hinter dem Ofen und hinter der Targetkammer aufgenommen. Abb. 4.17 vergleicht die Größenverteilung von KCl bei einem Gasfluss von 400 mL/min, die im Labor bei 633°C erhalten wurde, mit der Größenverteilung, die am TRIGA-SPEC-Experiment direkt hinter dem Ofen aufgenommen wurde. Die im Labor erhaltene Größenverteilung weist bei (118 ± 3) nm ein Maximum auf. Die am TRIGA-SPEC-Experiment erhaltene Verteilung besitzt bei gleichen Bedingungen ein Maximum bei (124 ± 3) nm. Die Differenz ist folglich im Rahmen der Fehler nicht signifikant. Es kann daher angenommen werden, dass die Ergebnisse des Gas-Jets im Labormaßstab auch auf das TRIGA-SPEC-Experiment angewendet werden können. Es fällt allerdings auf, dass die erhaltene Partikelkonzentration im Labor doppelt so groß ist wie beim Experiment, obwohl die Transportwege beim TRIGA-SPEC-Experiment mit 6 ± 4 m erheblich kürzer sind als im Labor (22 m).

Abb. 4.18 zeigt die erhaltenen Größenverteilungen vor und hinter der Targetkammer des TRIGA-SPEC-Experiments. Beide Messungen wurden mit KCl als Aerosolmaterial bei einer Temperatur von 630°C und einem Gasfluss von 400 mL/min aufgenommen, während der Reaktor nicht in Betrieb war. Die Anzahl der Partikel unterscheidet sich bei diesen beiden Messungen deutlich; vor der Targetkammer wird eine um den Faktor 13 erhöhte Menge an Aerosolclustern erhalten. Die Verteilung selbst ändert sich sonst allerdings nicht signifikant. Der mittlere Durchmesser liegt

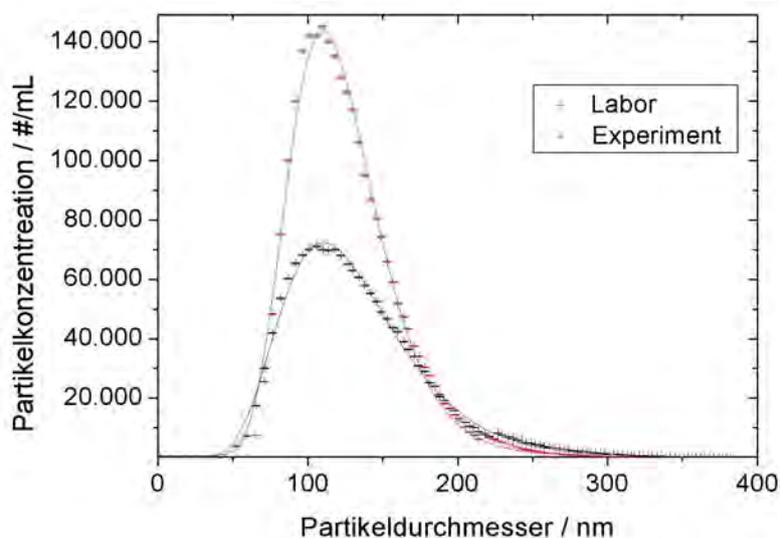


Abbildung 4.17: Größenverteilungen der KCl-Aerosolpartikel im Labor und im Gas-Jet des TRIGA-SPEC-Experiments. Die dargestellten Kurven sind die aus diesen Daten gefitteten Log-Normalverteilungen. Diese ergeben, dass im Labor erhaltene Verteilung ein Maximum bei (118 ± 3) nm aufweist, während das Maximum im Experiment bei (124 ± 3) nm liegt. Die im Labor erhaltene Konzentration an Partikeln ist etwa doppelt so groß wie beim Experiment.

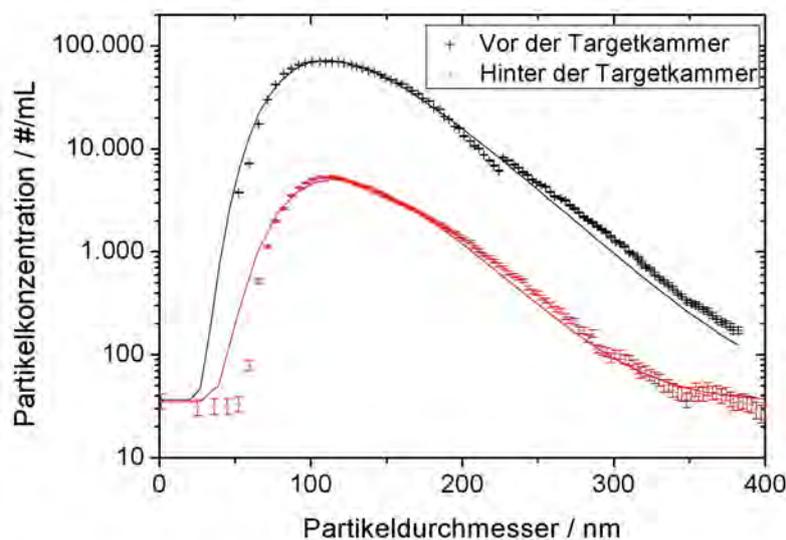


Abbildung 4.18: Größenverteilungen der KCl-Aerosolpartikel vor und hinter der Targetkammer bei einer Temperatur von 630°C und einem Gasfluss von 400 mL/min . Der Unterschied beider Kurven besteht lediglich in der Anzahl der Partikel; die Gestalt ist bei beiden Verteilungen gleich. Die Partikelkonzentration beträgt vor der Targetkammer 11072 Partikel/mL , während sie hinter der Targetkammer auf 1572 Partikel/mL absinkt.

bei (124 ± 3) nm (vor der Targetkammer) bzw. bei (128 ± 3) nm (hinter der Targetkammer). Anschließend wurde der Reaktor in Betrieb genommen und der CPC aus dem Aufbau entfernt. Durch Einbau des ECs und Variation der am Kollektor angelegten Spannung in einem Bereich von 150 – 2000 V konnte somit die Größe der Aerosolpartikel eingestellt werden, die durch die Targetkammer geleitet werden. Die angelegte Spannung entspricht unter diesen Bedingungen einem Größenbereich von 1 – 201 nm. Die transportierten Aerosolpartikel mit adsorbierten Spaltprodukten wurden auf Filtern gesammelt und in einem γ -Detektor vermessen. Abb. 4.19 zeigt ein typisches γ -Spektrum, das auf diese Weise erhalten wurde. Die Sammlungen wur-

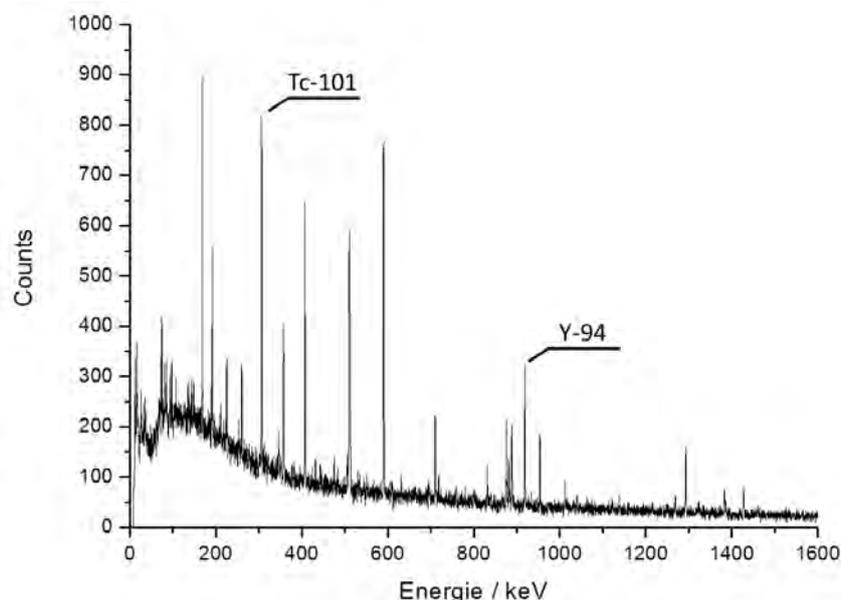


Abbildung 4.19: Gammaspektrum eines Catches von transportierten Spaltprodukten. Das hier gezeigte Spektrum wurde bei einer Temperatur von 630°C , einem Gasfluss von 400 mL/min, KCl als Aerosolmaterial und einer angelegten Spannung von 1000 V aufgenommen. Diese Spannung entspricht einem Partikeldurchmesser von 130 nm. Die Dauer der Sammlung belief sich auf 10 min. Die Abklingzeit betrug 2 min mit einer anschließenden 10 minütigen Messung im γ -Detektor.

den stets im gleichen Messintervall gesammelt und an der gleichen Detektorposition vermessen. Die Totzeit der Real-Time-Messungen lag stets unter 4%, weshalb auf eine Totzeitkorrektur verzichtet werden kann.

Zur Auswertung werden die Nettopeakflächen der γ -Linien von ^{101}Tc und ^{94}Y betrachtet. Ihre Energien liegen bei 307 keV (^{101}Tc) und 919 keV (^{94}Y) [Mag06]. Das Technetium-Isotop hat eine Halbwertszeit von 14.22 min. Diese Halbwertszeit

eignet sich für Messungen, die sich über einen Zeitraum von wenigen Minuten erstrecken. Selbst nach einer Abklingzeit von zwei Minuten ist noch ausreichend Technetium vorhanden, sodass dieses einen der größten Peaks im Spektrum bildet, der sich deutlich vom Untergrund abhebt. Die große Zählrate führt zu einem geringem statistischen Fehler der γ -Messung, weshalb dieses Nuklid für die Auswertung einer γ -Messreihe prädestiniert. Die Halbwertszeit des Yttrium-Isotops beträgt 18.7 min und liegt damit in der gleichen Größenordnung wie ^{101}Tc ; die Zählrate ist allerdings deutlich kleiner. ^{94}Y wird dennoch zur Auswertung verwendet, da sich dadurch die Möglichkeit ergibt, auch die Effizienz der Ionenquelle des TRIGA-SPEC-Experiments zu ermitteln. Weder ^{94}Y noch ^{101}Tc werden aufgrund ihrer hohen Ionisationspotentiale (^{94}Y : 6.38 eV / ^{101}Tc : 7.28 eV [Hay12]) in der Ionenquelle ionisiert, wodurch eine direkte Detektion dieser hinter der Ionenquelle erschwert wird. Im Gegensatz dazu besitzen allerdings Rubidium und Strontium, die ebenfalls Spaltfragmente des ^{235}U sind, ein niedriges Ionisationspotential, d.h. sie werden in der Ionenquelle ionisiert und können anschließend gesammelt werden. Beim Zerfall des ^{94}Rb wird ^{94}Y gebildet, welches durch eine γ -Messung detektiert werden kann:



Durch den Vergleich der Zählraten vor und hinter der Ionenquelle kann somit deren Effizienz für ^{94}Rb bestimmt werden. Dabei muss allerdings berücksichtigt werden, dass zwar hauptsächlich Rb aufgrund des niedrigeren Ionisationspotentials ionisiert wird, aber auch Sr zu einem geringen Anteil in der Ionenquelle ionisiert werden kann. Abb. 4.20 zeigt die Auftragung der Peakfläche beider Nuklide gegen den Durchmesser der in die Targetkammer geleiteten Partikel. Der Verlauf ist bei beiden Nukliden ähnlich, wobei die Verteilung bei ^{94}Y breiter und flacher ist. Die Peakfläche wird bei beiden Nukliden bei einer Partikelgröße von (135 ± 5) nm maximal. Trotz unterschiedlich breiter Verteilungen sind die Maxima identisch. Um die relative Transporteffizienz der einzelnen Partikelfractionen zu erhalten, wurde die erhaltene Peakfläche auf die Anzahl der Partikel normiert. Zusätzlich wurde auf die Zählrate normiert, um beide betrachteten Nuklide qualitativ miteinander vergleichen zu können (Abb. 4.21). Die relative Transporteffizienz nimmt bei beiden ausgewählten Nukliden mit

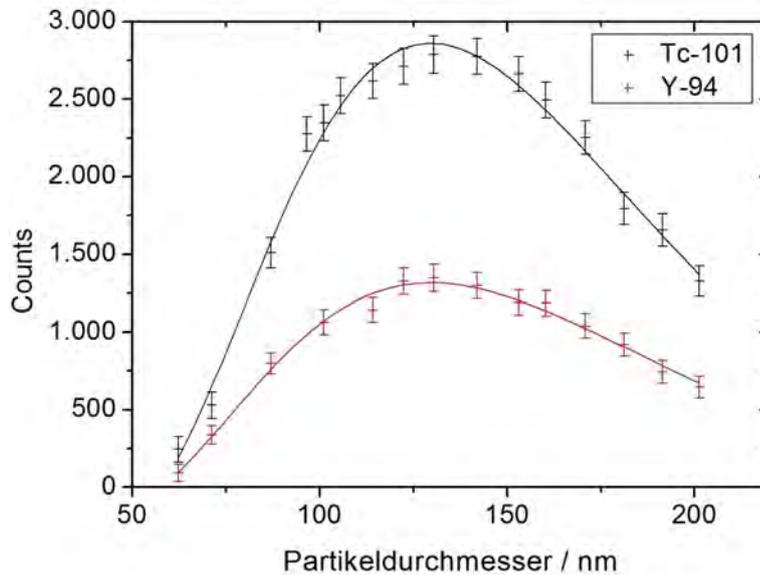


Abbildung 4.20: Anzahl an detektierten γ -Quanten bei verschiedenen Größenfraktionen der Aerosolpartikel, die durch Variation der am Kollektor des ECs angelegten Spannung eingestellt wurden.

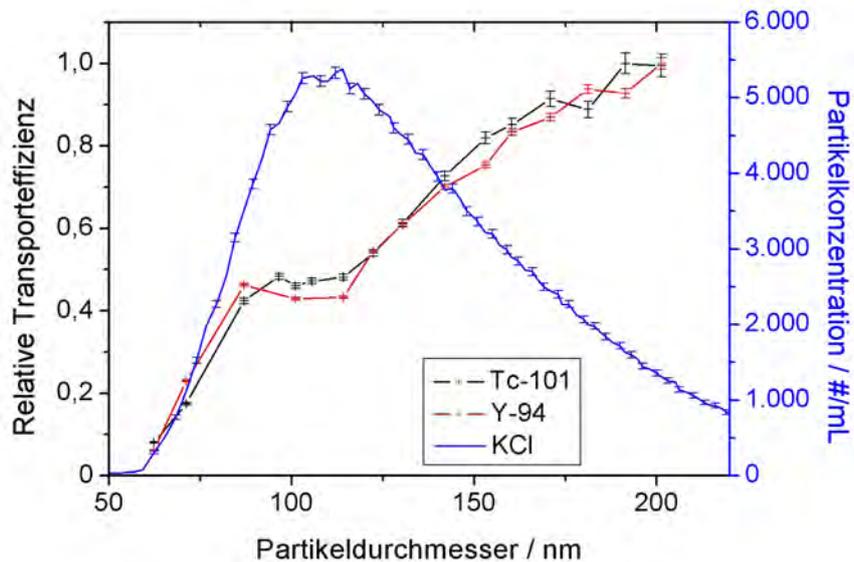


Abbildung 4.21: Relative Transporteffizienz für ^{101}Tc und ^{94}Y in Abhängigkeit der Partikelgröße. Die erhaltenen Counts wurden auf die jeweilige Anzahl der Aerosolpartikel normiert, die in der blauen Kurve zu sehen sind. Sowohl ^{101}Tc als auch ^{94}Y werden durch größere Partikel effizienter transportiert.

steigender Partikelgröße annähernd linear zu. Partikel eines Durchmessers von 200 nm transportieren die Spaltprodukte entsprechend doppelt so effektiv wie Partikel mit einem Durchmesser von nur 100 nm.

Wird die relative Transporteffizienz auf die Masse eines Partikels statt auf die Anzahl der Partikel normiert, ergibt sich für ^{101}Tc Abb. 4.22. Die größte, relative

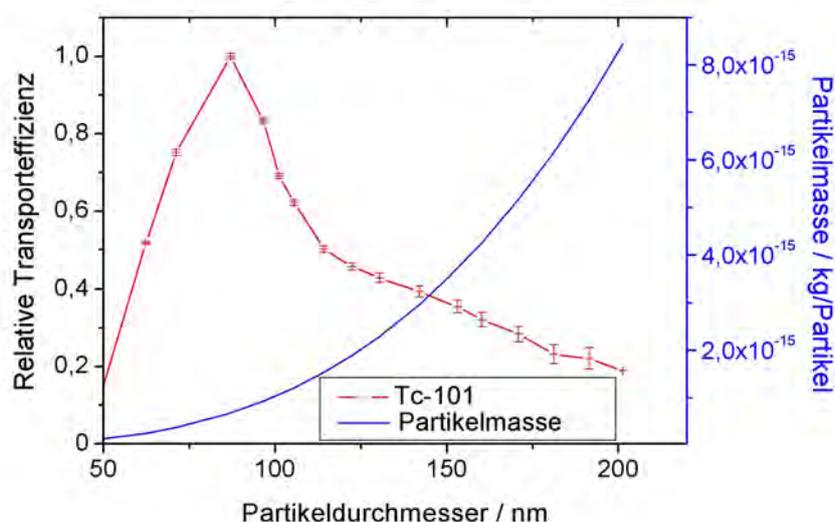


Abbildung 4.22: Relative Transporteffizienz für ^{101}Tc Abhängigkeit der Partikelgröße. Die erhaltenen Counts wurden auf die Masse eines der Aerosolpartikels normiert, die in der blauen Kurve zu sehen ist. Das Maximum der Kurve liegt bei 87 ± 3 nm.

Transporteffizienz wird bei einem Partikeldurchmesser von (87 ± 3) nm erhalten. Dies ist dann von Bedeutung, wenn die deponierte Masse an Aerosolmaterial innerhalb des Experiments minimiert werden soll und dennoch ein ausreichend hoher Transport von Spaltprodukten erfolgen soll.

4.6 Abhängigkeit der Transporteffizienz von Temperatur und Gasfluss

Bei den vorherigen Messreihen wurde der Einfluss von Temperatur und Gasfluss auf die Größe und die Anzahl der Aerosolpartikel analysiert. Als logische Konsequenz ergibt sich daraus, auch den Einfluss dieser beiden Parameter auf den Transport von Spaltprodukten zu ermitteln. Diese Untersuchung wurde sowohl mit Kaliumchlorid

als auch Cadmiumiodid durchgeführt und dabei der Aufbau aus Abb 3.4(ohne EC) verwendet. Bei den einzelnen Messreihen wurden nacheinander die Temperatur oder der Gasfluss sukzessive erhöht. Der Temperaturbereich für beide Aerosolmaterialien erstreckt sich über 40°C . Die Intervalle beginnen $10 - 20^\circ\text{C}$ unterhalb der üblicherweise im TRIGA-SPEC-Experiment eingesetzten Temperaturen (KCl: 640°C / CdI_2 : 290°C) und überschreiten diese um $10 - 30^\circ\text{C}$. Eine höhere Ofentemperatur führt erfahrungsgemäß zu einem schnellen Verstopfen der Kapillaren, weshalb die Temperaturintervalle derart begrenzt sind. Der Gasfluss wurde bei Cadmiumiodid auf einen Bereich von $200 - 800$ mL/min festgesetzt, bei Kaliumchlorid war dieses Intervall auf $200 - 600$ mL/min beschränkt. Bei diesen Messungen wurde die Temperatur konstant gehalten. Diese betrug bei KCl 630°C und bei CdI_2 290°C . Bei den gegebenen Bedingungen wurden die aus dem Target austretenden Spaltprodukte durch den Gas-Jet zu einem Filter transportiert und dort gesammelt. Ein Messintervall bestand dabei aus 10 min Sammlung, 2 min Abklingzeit und 10 min Messung im γ -Detektor. Zur Auswertung wurden, wie in Abschnitt 4.5 beschrieben, die Nuklide ^{101}Tc und ^{94}Y verwendet. Abb. 4.23(a) zeigt für KCl die Anzahl der Counts, die über

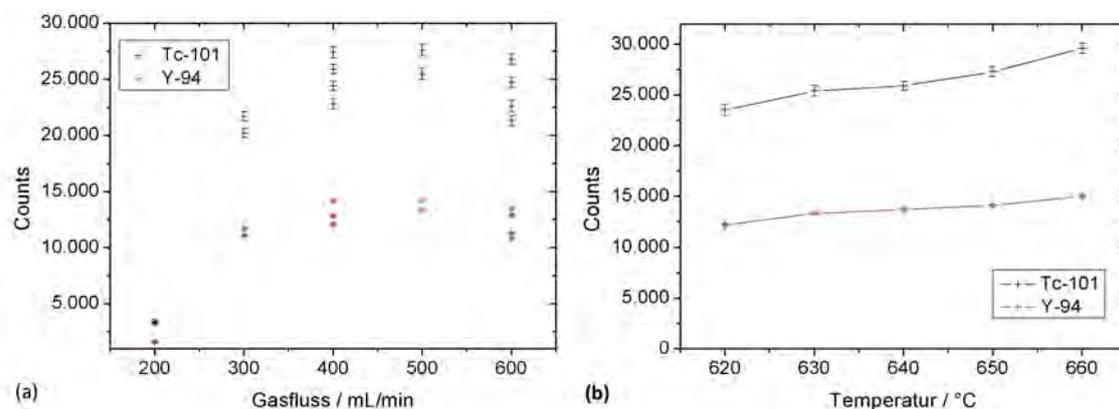


Abbildung 4.23: Abhängigkeit der Zählrate der Nuklide ^{101}Tc und ^{94}Y von Gasfluss und Ofentemperatur. Als Aerosolmaterial wurde Kaliumchlorid eingesetzt. (a) zeigt den Verlauf bei Variation des Gasflusses, während die Temperatur konstant auf 640°C gehalten wird. (b) zeigt die Zählrate bei verschiedenen Temperaturen und einem konstanten Gasfluss von 400 mL/min. Die dargestellten Fehler ergeben sich aus der Größe der Nettopeakfläche und dem vorhandenen Untergrund.

die Nettopeakfläche der Peaks von ^{101}Tc und ^{94}Y erhalten wurden, in Abhängigkeit vom Gasfluss. Bei dieser Messreihe wurden mehrere Sammlungen bei den gleichen Bedingungen gemacht, um eine bessere Statistik zu erhalten. Die Anzahl der Counts

ist bei Gasflüssen von 400–600 mL/min annähernd konstant. Ein deutlicher Verlust ist jedoch bei einem Gasfluss von < 300 mL/min zu sehen. Bei 200 mL/min werden nur 3% der maximal transportierten Menge an Spaltprodukten erhalten. Im Gegensatz dazu ist in Abb. 4.23(b) der Einfluss der Temperatur zu sehen. Bei ^{94}Y wird bei ein Temperaturanstieg annähernd keine Veränderung in der Spaltproduktausbeute beobachtet. Der Verlauf der Kurve von ^{101}Tc zeigt bei erhöhter Temperatur einen geringen Anstieg in der Zählrate. Wird jedoch Abb. 4.23(a) hinzugezogen, so wird deutlich, dass dieser Anstieg lediglich im Rahmen der Streuung der einzelnen Messungen liegt. Es kann folglich angenommen werden, dass die Temperatur keinen signifikanten Einfluss auf den Transport von Spaltprodukten besitzt.

In Abb. 4.24 ist der Einfluss einer Temperatur- oder Gasflussvariation auf den Transport von Spaltprodukten durch CdI_2 -Partikel aufgetragen. Wird zunächst der

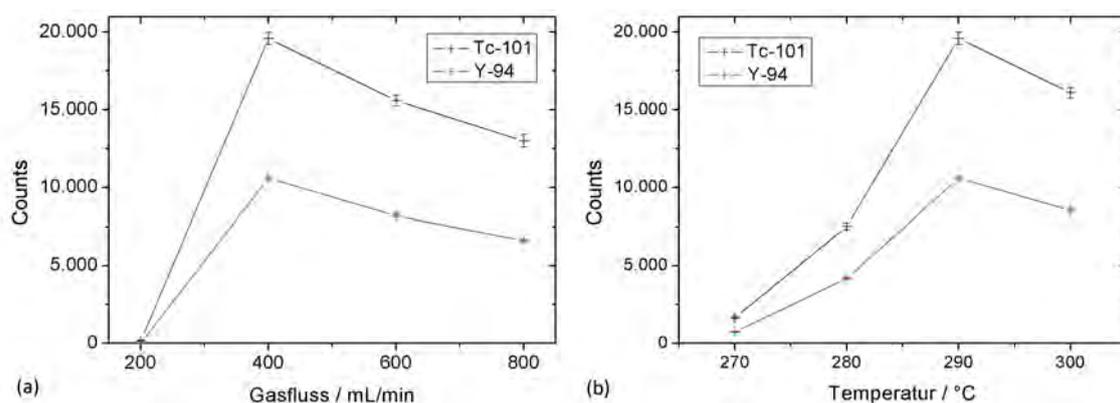


Abbildung 4.24: Abhängigkeit der Zählrate der Nuklide ^{101}Tc und ^{94}Y von Gasfluss und Ofentemperatur. Als Aerosolmaterial wurde Cadmiumiodid verwendet. (a) zeigt den Verlauf bei Variation des Gasflusses, während die Temperatur konstant auf 290°C gehalten wird. (b) zeigt die Ergebnisse für einen konstanten Gasfluss von 400 mL/min bei Variation der Temperatur. Die dargestellten Fehler der einzelnen Messpunkte ergeben sich aus der Größe der Nettopeakfläche und dem vorhandenen Untergrund.

Einfluss des Gasflusses betrachtet, so ist zu erkennen, dass die Kurve ein deutliches Maximum bei 400 mL/min aufweist. Unterhalb dieses Flusses sinkt die Ausbeute rapide und ist dadurch bei 200 mL/min bereits bei $< 1\%$ der maximal erhaltenen Anzahl an Counts. Bei höheren Gasflüssen ist der Abfall der Kurve weniger drastisch. Der Einfluss der Temperatur äußert sich bei Cadmiumiodid deutlicher als bei Kaliumchlorid: In Abb. 4.24(b) ist ein scharfes Maximum in den detektierten Counts

bei einer Temperatur von 290°C zu erkennen. Unterhalb dieser sinkt die Anzahl der Counts und folglich die Menge der transportierten Spaltprodukte stark ab. Im Vergleich zum Maximum reduziert sich die Ausbeute bei 270°C auf lediglich 8.5% (^{101}Tc) bzw. 7.0% (^{94}Y).

4.7 Druckabschätzung

Neben Partikeldurchmesser und Gasfluss spielt auch der Druck bei der Konstruktion einer aerodynamischen Linse eine signifikante Rolle. Um den herrschenden Druck vor und hinter einer Linse zu ermitteln, wurde der Aufbau, der in Abb. 3.3 beschrieben ist, verwendet und Stickstoff durch diesen geleitet. Es wurde sowohl der Druck vor als auch hinter der Linse aufgenommen, während der Gasfluss variiert wurde.

Abb. 4.25 zeigt die so erhaltene Abhängigkeit. Ohne eingeleitetes Gas liegt der

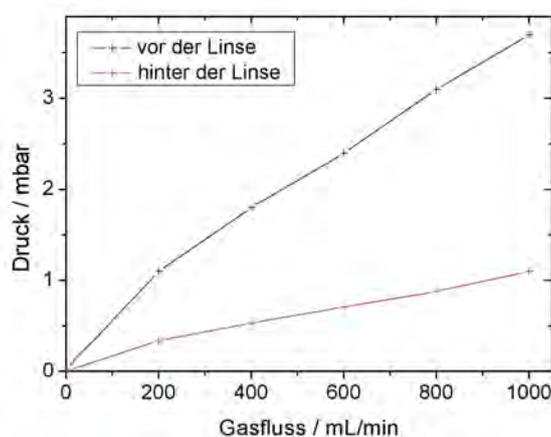


Abbildung 4.25: Gemessener Druck vor und hinter der aerodynamischen Linse bei verschiedenen Gasflüssen. Der Abstand von Kapillare und Linse betrug dabei 4.3 cm.

Druck an beiden Positionen unterhalb von 0.03 mbar. Wird Stickstoff durch die Apparatur geleitet, steigt der Druck sowohl vor als auch hinter der Linse an. In beiden Fällen zeigt sich ein linearer Zusammenhang. Ein Anstieg des Gasflusses um 200 mL/min führt im Mittel zu einer Erhöhung des Drucks um den Faktor 1.4. Einen deutlichen Unterschied zwischen beiden Kurven gibt es jedoch: Der Druck vor der Linse ist durchschnittlich um den Faktor 3.4 höher als hinter dem Ausgang. Des Weiteren wurde untersucht, inwieweit die Position der Kapillare vor der Linse das

Tabelle 4.2: Druck vor und hinter der Linse bei verschiedenen Abständen zwischen Kapillarende und Eingang der Linse.

Gasfluss / mL/min	Abstand L / cm	$p_{Eingang}$ / mbar	$p_{Ausgang}$ / mbar
0	3.0	0.025	0.006
	3.7	0.13	0.026
	4.3	0.14	0.025
200	3.0	1.1	0.340
	3.7	1.1	0.310
	4.3	1.1	0.290
400	3.0	1.8	0.530
	3.7	1.7	0.500
	4.3	1.9	0.500
600	3.0	2.4	0.710
	3.7	2.4	0.710
	4.3	2.6	0.670
800	3.0	3.1	0.880
	3.7	3.1	0.890
	4.3	3.4	0.830
1000	3.0	3.7	1.100
	3.7	3.7	1.100
	4.3	4.1	0.980

Verhalten des Drucks beeinflusst. Dazu wurde die Distanz zwischen dem Ende der Kapillare und dem Einlass der Linse L (Abb. 3.3) auf 3.0 / 3.7 / 4.3 cm eingestellt, sodass die Kapillare je einmal vor und einmal hinter der Mitte des Vakuumkreuzes endet und sich einmal genau in dessen Mitte befindet. Es wurde wiederum der Druck vor ($p_{Eingang}$) und hinter der Linse ($p_{Ausgang}$) bei Variation des Gasflusses aufgenommen (Tab.4.2). Die Position der Kapillare beeinflusst den in den Vakuumkreuzen vorhanden Druck nur in geringem Maße. Vor dem Eingang der Linse ist bei einer Distanz von 3.0 cm und 3.7 cm annähernd kein Unterschied zu erkennen. Endet die Kapillare jedoch weiter entfernt vom Eingang der Linse, so erhöht sich der Druck in der voranstehenden Kammer. Der Druck hinter der Linse verringert sich geringfügig, wenn die Kapillare weiter entfernt vom Eingang der aerodynamischen Linse endet.

Kapitel 5

Diskussion

Wie bereits in Kapitel 2.5.1 beschrieben, ist der Raum für die zu konstruierende aerodynamische Linse stark begrenzt. Es muss daher ermittelt werden, in welchem Ausmaß der Gasfluss bei diesem Experiment vermindert werden kann, ohne dass die Transporteffizienz der Spaltprodukte dadurch sinkt. Gleichzeitig muss untersucht werden, in welchem Maß dieser Transport durch eine Variation der Temperatur gegebenenfalls noch optimiert werden kann.

Entsprechend dieser Fragestellung wurden die in Kapitel 4 beschriebenen Messreihen durchgeführt.

5.1 Einfluss des Gasflusses

Damit sichergestellt ist, dass die Daten korrekt sind, wurde sowohl die Ofentemperatur kalibriert, als auch die Kalibrierung des Electrostatic Classifiers überprüft. Die aufgenommene Verteilung des Polystyrolstandards (Abb. 4.4) zeigt einen Peak bei (104 ± 2) nm. Dieser stimmt im Rahmen der Fehler mit dem Erwartungswert (105 ± 6) nm überein und bestätigt somit, dass die Kalibrierung des Electrostatic Classifiers korrekt ist.

Die anschließenden Untersuchungen konzentrierten sich zunächst auf den Einfluss des Gasflusses auf die Konzentration und die Größe der Aerosolpartikel, wobei festgestellt wurde, dass die Anzahl an produzierten Aerosolpartikeln mit abnehmendem Gasfluss sinkt (Abb. 4.5). Eine Reduzierung des Gasflusses von 800 mL/min

auf kleinere Werte – was für die Konstruktion einer ausreichend kurzen aerodynamischen Linse essentiell ist – hat somit zunächst negative Auswirkungen auf die Partikelkonzentration. Bei einem Fluss von 200 mL/min wird stets eine deutlich geringere Menge an Partikeln erhalten als bei höheren Gasflüssen. Die maximale Menge an Partikeln wird bei 800 – 1000 mL/min erhalten.

Dies ist darin begründet, dass bei kleineren Gasflüssen durchschnittlich größere Partikel entstehen. Der Zusammenhang zwischen mittlerem Partikeldurchmesser und eingestelltem Gasfluss ist in Abb. 4.9 dargestellt. Bei einer Reduktion des Gasflusses von 1000 ml/min auf 400 mL/min steigt der mittlere Durchmesser um durchschnittlich (32.3 ± 0.7) nm; bei einer Reduktion auf 200 mL/min sogar um (43.2 ± 0.8) nm. Mit wachsendem Partikeldurchmesser werden gleichzeitig die Größenverteilungen der produzierten Aerosolpartikel breiter. Die Halbwertsbreite steigt mit einem von 1000 mL/min auf 400 mL/min sinkendem Gasfluss um etwa 10 nm an. Die Verschiebung zu größeren Partikeldurchmessern bei geringeren Gasflüssen liegt vermutlich daran, dass die Geschwindigkeit des Trägergases durch den erniedrigten Fluss stark verlangsamt wird. Entsprechend werden die im Ofen entstehenden Aerosolpartikel langsamer von der heißen Zone, in der sie in das Trägergas gelangen, in kältere Regionen des Ofens bzw. aus dem Ofen heraus transportiert. Das Trägergas wird dadurch stärker mit Salzpartikeln angereichert. Sobald diese in kältere Bereiche geleitet werden, kühlt das Trägergas ab und es kommt zu einer Übersättigung. Als Folge kondensieren die Partikel zu größeren Clustern. Eine erhöhte Konzentration an Partikeln erhöht gleichzeitig die Wahrscheinlichkeit eines Zusammentreffens mehrerer Partikel, wodurch sich entsprechend mehrere kleine Aerosolpartikel zu größeren Clustern zusammenfügen. Dadurch steigt die Partikelgröße, während die Partikelanzahl sinkt. Die beschriebenen Effekte führen gleichzeitig zu einer Verbreiterung der Größenverteilungen.

Wird die transportierte Masse dieser Aerosolpartikel betrachtet (Abb. 4.6), so wird ein gegenteiliger Trend beobachtet. Es wird deutlich, dass trotz der geringen Partikelanzahl bei niedrigen Gasflüssen eine erheblich größere Masse transportiert wird. Dies ist darin begründet, dass bei niedrigeren Gasflüssen größere Partikel gebildet werden, da die Masse eines Partikels proportional zu $(\frac{d_p}{2})^3$ ist. Bei 400 mL/min wird mit Abstand die größte Masse an Kaliumchlorid erhalten. Selbst bei einem Fluss von 200 mL/min, bei dem mit Abstand am wenigsten Partikel produziert wer-

den, ist die transportierte Masse deutlich größer als bei 1000 mL/min, bei dem die maximale Partikelkonzentration erreicht wird. Dieses Phänomen lässt sich bei allen betrachteten Ofentemperaturen beobachten (Abb. 4.7 /Abb. 4.9).

Eine Reduktion des Gasflusses hat somit verschiedene Auswirkungen: Es werden weniger Partikel erhalten, die allerdings einen erhöhten Durchmesser besitzen.

5.2 Einfluss der Temperatur

Da nun der Einfluss des Gasflusses bekannt ist, stellt sich die Frage, ob Größe und Anzahl der Aerosolpartikel durch die Temperatur weiter zu passenden Dimensionen manipulierbar sind. Frößere Partikel sind effizienter zu kollimieren, allerdings sollten gleichzeitig genügend Aerosolpartikel vorhanden sein, um einen effizienten Transport von Spaltprodukten zu gewährleisten. Aus diesem Grund wurde der Einfluss der Ofentemperatur untersucht. Durch eine erhöhte Ofentemperatur steigt die Zahl der erhaltenen Partikel stark an (Abb. 4.8), wobei dieser Trend unabhängig vom eingestellten Gasfluss ist. Durchschnittlich wird die produzierte Partikelmenge bei einer Erhöhung der Temperatur um 90°C um den Faktor 3.5 vergrößert. Die Ausbeute wird bei einem Gasfluss von 800 mL/min und 1000 mL/min bei 670°C maximal. Bei den anderen aufgenommenen Kurven ist lediglich eine lineare Abhängigkeit zu beobachten.

Die Energieverteilung der Moleküle im Salz entspricht einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung. Sie beschreibt allgemein die statistische Verteilung der Teilchengeschwindigkeit, deren Quadrat proportional zur kinetischen Energie der Teilchen ist. Wird die Temperatur erhöht, so nimmt die durchschnittliche Teilchengeschwindigkeit zu und die Verteilung wird gleichzeitig breiter. Mit der Geschwindigkeit steigt entsprechend die Energie der Kaliumchloridmoleküle. Ist die Energie schließlich größer als die Gitterenergie der Kristallstruktur, so können die Partikel diese überwinden und sublimieren. Der Anteil an Teilchen, die diese Mindestenergie besitzen, steigt mit erhöhter Temperatur, wodurch die Anzahl an Aerosolpartikeln vergrößert wird. Besonders auffällig ist in Abb. 4.8, dass die Anzahl an Partikeln bei einem Fluss von 200 mL/min bei allen betrachteten Temperaturen erheblich geringer ist als bei höheren Gasflüssen. Dies liegt – wie bereits beschrieben – daran, dass sich durch Koagulati-

on mehrerer Partikel größere Agglomerate bilden, wodurch die Anzahl an Partikeln sinkt. Die Abhängigkeit des mittleren Partikeldurchmessers von der Temperatur ist in Abb. 4.10 dargestellt. Diese bestätigt die Ausbildung von größeren Partikeln bei kleineren Gasflüssen. Gleichzeitig wird auch deutlich, dass die Partikelgröße durch steigende Temperaturen weiter ansteigt. Durch eine erhöhte Temperatur gelangen mehr Partikel durch Sublimation in das Trägergas, da die durchschnittliche Energie der Ionen im Kristallgitter ansteigt. Dies führt zunächst zu einer erhöhten Konzentration an Aerosolpartikeln im Ofen, wodurch die Wahrscheinlichkeit eines Kontaktes zwischen zwei oder mehreren Partikeln ansteigt. Es kommt zu vermehrter Koagulation, wodurch als Resultat größere Aerosolcluster entstehen und gleichzeitig die Anzahl an Partikeln sinkt.

Eine Temperaturerhöhung hat zusätzlich unmittelbare Folgen für die Durchführung des Experiments: Durch die stark erhöhte transportierte Masse kommt es zu partiellem Aufschmelzen des Salzes, wodurch die Oberfläche des Salzes vermindert wird. Dies führt über einen längeren Zeitraum zu einem Verlust bei der Transportausbeute. Gleichzeitig kommt es bei erhöhten Temperaturen verstärkt zu einem Verstopfen der dünnen Kapillaren, die zwischen Ofen, Electrostatic Classifier und Condensation Particle Counter verwendet werden. Folglich werden bevorzugt niedrigere Temperaturen eingesetzt, um dies zu verhindern.

5.3 Einfluss verschiedener Parameter auf den Transport von Spaltprodukten

Nachdem der Einfluss von Gasfluss und Temperatur auf die Bildung von Kaliumchloridpartikeln charakterisiert wurde, muss nun der Einfluss dieser Aerosoleigenschaften auf den Transport von Spaltprodukten untersucht werden. Abb. 4.20 zeigt die Anzahl der detektierten Counts von ^{101}Tc als auch ^{94}Y in Abhängigkeit der Aerosolpartikelgröße, bei einer Temperatur von 630°C und einem Gasfluss von 400 mL/min . Bei beiden Nukliden ist die Zählrate bei einer Partikelgröße von $135 \pm 5\text{ nm}$ maximal. Um zu überprüfen, welcher Parameter der entscheidende Faktor für den Transport ist, wurden die Zählraten beider Nuklide auf die Anzahl der erhaltenen Aerosolpartikel normiert (Abb. 4.21). Es ergibt sich eine annähernd lineare Abhängigkeit der relati-

ven Transporteffizienz vom Partikeldurchmesser. Größere KCl-Partikel sind folglich besser zum Transport von Spaltprodukten geeignet als kleinere. Das Plateau im Bereich eines Partikeldurchmessers von 86 – 114 nm liegt etwa beim Maximum der Partikelkonzentration. Dies lässt entsprechend auf einen Sättigungseffekt schließen: Ist eine genügend große Anzahl an Partikeln vorhanden, so wird die gesamte Menge an Spaltprodukten bereits transportiert, sodass es den Anschein macht, als wäre die relative Transporteffizienz gering. Die Masse der Aerosolpartikel hat keinen Einfluss auf diese Sättigung; sie wird lediglich durch die erhöhte Konzentration verursacht. Neben der Abhängigkeit der Transporteffizienz vom Partikeldurchmesser wurde auch der Einfluss von Gasfluss und Temperatur ermittelt (Abb. 4.23). Es zeigt sich, dass die Ofentemperatur einen vernachlässigbaren Einfluss auf das Transportverhalten der Aerosolpartikel ausübt. Die Wahl der Ofentemperatur hat bei Kaliumchlorid daher nur eine geringe Bedeutung. Im Gegensatz dazu wirkt sich eine Variation des Gasflusses signifikanter aus. Die erhaltenen Zählraten von ^{101}Tc und ^{94}Y befinden sich bei Gasflüssen von 400 – 600 mL/min in der gleichen Größenordnung. Somit wird bei einer Reduktion des Gasflusses auf 400 mL/min keine Transportminderung erhalten; bei 300 mL/min ist schon ein leichter Abfall in der Zählrate zu erkennen. Allerdings wird erst bei einem Gasfluss von 200 mL/min deutlich, dass ein Einbruch der Ausbeute stattfindet. Bei diesem Fluss werden annähernd keine Spaltprodukte transportiert. Da bereits festgestellt wurde, dass größere Partikel tendenziell eine höhere relative Transportausbeute besitzen, muss dieser mangelnde Transport an der äußerst niedrigen Partikelzahl liegen. Eine zusätzliche Minderung kann auch durch erhebliche Partikelverluste innerhalb des Gas-Jet-Systems begründet sein. In Abb. 2.3 ist dieser Effekt bereits vorausgesagt. Bei einer Partikelgröße von 20 – 200 nm sind signifikante Verluste durch Diffusion zu erwarten. Diese wirken sich besonders stark bei geringen Gasflüssen aus: Bei einem Gasfluss von 200 mL/min ist Transporteffizienz im Vergleich zu 1000 mL/min je nach Partikeldurchmesser um 10 – 30% niedriger.

5.4 Ergebnis

Durch die eingehenden Untersuchungen bezüglich des Einflusses von Gasfluss und Temperatur auf die KCl-Aerosolpartikel sowie auf die Effizienz eines Transports von Spaltprodukten im Gas-Jet können die äußeren Bedingungen des Experiments in Hinblick auf eine aerodynamische Linse optimiert werden. Bereits in der Einleitung dieses Kapitels wurde festgestellt, dass die kritischste Variable beim Design einer aerodynamischen Linse die Länge der Spacer ist. Entsprechend muss ein möglichst niedriger Gasfluss gewählt werden, um die Gesamtlänge der Linse unter 40 cm zu halten. Durch die durchgeführten Untersuchungen wird deutlich, dass dieser nicht beliebig reduziert werden kann. Es ist bereits in der Größenverteilung der KCl-Aerosolpartikel zu sehen, dass die Menge an erhaltenen Partikeln unterhalb eines Gasflusses von 400 mL/min auf 30% der bei 1000 mL/min erhaltenen Partikel absteigt, während jedoch gleichzeitig die transportierte Masse steigt. Die erhaltene Transporteffizienz zeigt, dass große Partikel mit einer entsprechend größeren Masse tendenziell eine höhere relative Transporteffizienz besitzen als kleine Partikel. Um die Effizienz des Gas-Jets zu optimieren, sollten daher bevorzugt größere Aerosolpartikel eingesetzt werden. Diese ergeben sich durch geringe Gasflüsse und hohe Temperaturen, wobei bei einem Gasfluss von 400 mL/min die mit Abstand größte Masse transportiert wird. Eine weitere Reduktion des Gasflusses ist nicht möglich, da bei einem Gasfluss von 200 mL/min annähernd keine Spaltprodukte transportiert werden. Durch den Vergleich der Transportausbeute der Spaltfragmente wird aufgezeigt, dass ein niedrigerer Gasfluss von 400 mL/min im Gegensatz zu den vorher verwendeten, größeren Gasflussraten keine Nachteile mit sich bringt.

Die Ofentemperatur wird auf 650°C festgelegt, obwohl bei höheren Temperaturen größere Partikel entstehen und gleichzeitig die Konzentration dieser steigt. Sie liegt damit nur 10°C über der vorher bei TRIGA-SPEC verwendeten Temperatur. Dies liegt darin begründet, dass sich die Kapillaren des Gas-Jets bei diesen höheren Temperaturen schnell zusetzen, wodurch kein Transport mehr stattfinden kann. Bei 650°C passiert dies erfahrungsgemäß nicht. Der mittlere Durchmesser der Aerosolcluster beträgt bei dieser Temperatur und dem gewählten Gasfluss (135 ± 3) nm (Abb. 5.1). In Abschnitt 4.5 wurde die größte Zählrate der Nuklide ^{101}Tc und ^{94}Y bei einem Partikeldurchmesser von (135 ± 5) nm detektiert. Damit liegt der unter den

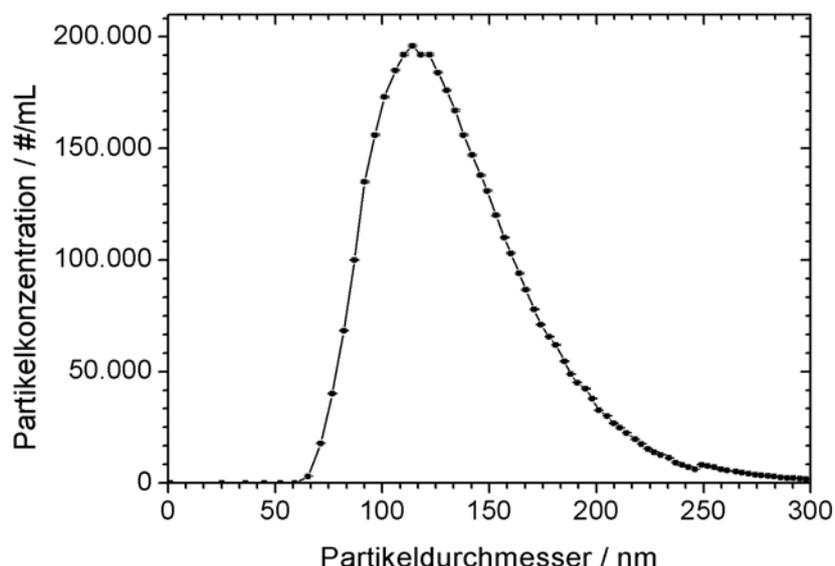


Abbildung 5.1: Größenverteilung der KCl-Aerosolpartikel bei einem Gasfluss von 400 mL/min und einer Temperatur von 653°C. Der mittlere Durchmesser liegt bei (135 ± 3) nm. Die Partikelkonzentration beträgt 62540 Partikel/mL.

gewählten Bedingungen erhaltene mittlere Durchmesser der KCl-Partikel in diesem Maximum. Die relative Transporteffizienz bei etwa 65% (vgl. Abb. 4.21). Die gewählten Bedingungen führen entsprechend zu einer ausreichend hohen Konzentration an Partikeln, während gleichzeitig – bedingt durch den vergrößerten Partikeldurchmesser – hohe Transporteffizienzen erwartet werden können. Die Reduktion des Gasflusses und die Erhöhung der Temperatur liefern somit optimale Versuchsbedingungen und ermöglichen gleichzeitig die Konstruktion einer kürzeren aerodynamischen Linse.

Die Druckverhältnisse ergeben sich als Folge der gewählten Bedingungen und können Tab. 4.2 entnommen werden: Vor der Linse wird ein Druck von 1.8 mbar gemessen, während sich dieser hinter der Linse auf 0.53 mbar reduziert. Wie bereits beschrieben, hat der Abstand der Kapillare vom Eingang der Linse annähernd keinen Einfluss auf diese Druckverhältnisse.

Die so erhaltenen Randbedingungen sind in Tab. 5.1 zusammengefasst. Da vor dem Skimmer des TRIGA-SPEC-Experiments nur begrenzt Raum für eine Linse ist, wird der Größenbereich der zu kollimierenden Partikel auf 75 – 175 nm beschränkt.

Diese Einschränkung bewirkt zum einen, dass die aerodynamische Linse Partikel

Tabelle 5.1: Optimierte Bedingungen zur Konstruktion der aerodynamischen Linse

Gasfluss	400 mL/min
Temperatur	650°C
Partikeldurchmesser	75 – 175 nm
Druck vor der Linse	1.8 mbar

dieser Größe optimal fokussiert, und zum anderen, dass eine verminderte Anzahl an Linsensegmenten benötigt wird. Ein breiteres Größenintervall führt unumgänglich dazu, dass mehr Linsensegmente eingesetzt werden müssen, um alle Partikelgrößen möglichst stark zu kollimieren. Dadurch resultiert zwangsläufig eine Verlängerung dieses Linsensystems. Partikel, deren Durchmesser im ausgesuchten Intervall liegen, sind in der Größenverteilung am zahlreichsten vorhanden und liefern eine hohe Transporteffizienz. Das Intervall umschließt 84% aller produzierten Partikel, wobei auch die restlichen Partikel kollimiert werden und Partikelverluste dadurch minimiert werden.

5.5 Vergleich von KCl und CdI₂

Als alternatives Aerosolmaterial wurde Cadmiumiodid untersucht. Wie Kaliumchlorid handelt es sich hierbei um ein anorganisches Salz, dessen Schmelzpunkt allerdings bei 387°C liegt; gute Aerosolausbeuten werden bei Ofentemperaturen von 290°C erwartet [?]. Höhere Temperaturen sind für den längeren Betrieb eines Gas-Jets von Nachteil, da die Kapillaren sehr schnell verstopfen und die Transportausbeuten entsprechend schnell absinken. Der niedrigere Schmelzpunkt hat den Vorteil, dass die Aerosolpartikel – im Vergleich zum KCl – zu einem größeren Teil in der Ionenquelle verdampft und somit die transportierten Spaltprodukte vermutlich effizienter freigesetzt werden.

Bei der Charakterisierung des CdI₂ wurde die gleiche Vorgehensweise wie bereits beim KCl verwendet. Zunächst wurde die Größenverteilung dieses Salzes bei verschiedenen Gasflüssen aufgenommen. Hier zeigt sich bereits der erste Unterschied zwischen beiden Substanzen (Abb. 5.2): Während die Partikelkonzentration bei Kaliumchlorid mit steigendem Gasfluss zunimmt, so ist bei Cadmiumiodid ein gegenteiliger Trend zu beobachten, was im Moment nicht verstanden ist. Die mit Abstand

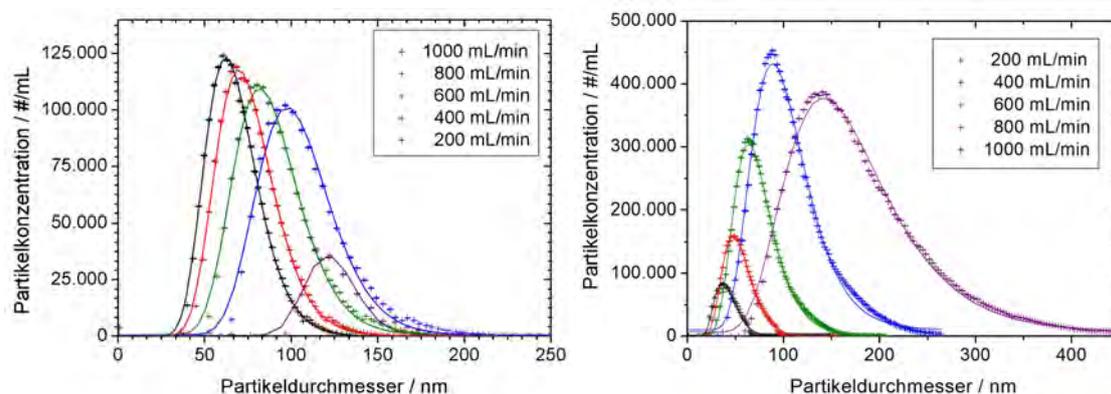


Abbildung 5.2: Links: Größenverteilung von KCl bei 613°C. Rechts: Größenverteilung von CdI₂ bei 340°C.

kleinste Anzahl an Partikeln wird hier bei 1000 mL/min erhalten. Mit abnehmendem Gasfluss wird die Verteilung deutlich höher und breiter. Die Zunahme der Halbwertsbreite bei sinkendem Gasfluss gleicht damit dem Verhalten von Kaliumchlorid. Die Gründe dafür sollten entsprechend übereinstimmen. Bei beiden Salzen verschieben sich die Verteilungen mit sinkendem Gasfluss zu größeren Werten. Die Partikelgröße steigt folglich. Die Gründe für diesen Effekt wurden bereits diskutiert (Abschnitt 4.3). Während eine Reduzierung des Gasflusses von 1000 mL/min zu 200 mL/min bei KCl einen absoluten Unterschied von 57 nm bewirkt, so beträgt dieser bei Cadmiumiodid 122 nm. Diese absoluten Werte sind zwar bei CdI₂ größer, es muss jedoch berücksichtigt werden, dass der Durchmesser der betrachteten Partikel bei Cadmiumiodid generell größer ist. Wird stattdessen die relative Zunahme des Durchmessers berechnet, so zeigt sich, dass die Zunahme bei CdI₂ im Mittel 26% beträgt, während der Partikeldurchmesser bei KCl um durchschnittlich 59% wächst.

Werden nun die Massenverteilungen des Cadmiumiodids in Abhängigkeit vom Gasfluss betrachtet (Abb. 4.12), so fällt zunächst auf, dass sich diese über mehrere Größenordnungen erstrecken. Während sich diese bei Kaliumiodid – außer bei 400 mL/min – in der gleichen Größenordnung befinden, so ist der Unterschied bei Cadmiumiodid um einiges signifikanter. Dies wird dadurch verursacht, dass die Partikelkonzentration bei sinkendem Gasfluss steigt, statt wie bei KCl zu sinken. Der Massenunterschied wird zusätzlich dadurch verstärkt, dass die Dichte des CdI₂ etwa dreimal so groß ist wie bei KCl. Durch das Zusammenspiel beider Effekte wird somit

die transportierte Masse des Cadmiumiodids bei einer Reduktion des Gasflusses um bis drei Größenordnungen erhöht.

Die Variation des Gasflusses wurde auch bei Cadmiumiodid bei verschiedenen Temperaturen in einem Bereich von 200 – 1000 mL/min variiert und die Größenverteilungen aufgenommen. Es zeigt sich, dass die Partikelkonzentration bei großen Gasflüssen stark abfällt. Bei niedrigen Temperaturen werden ab einem Gasfluss von 800 mL/min annähernd keine Partikel mehr erhalten. Dies liegt daran, dass der erhöhte Gasfluss die Temperatur im Ofen mindert, wodurch weniger Partikel eine ausreichend große Energie besitzen, um die Gitterenthalpie zu überwinden. Ein Vergleich mit Kaliumchlorid zeigt, dass bei optimalen Bedingungen etwa die gleiche Menge an Partikeln produziert wird. Bei der Betrachtung des mittleren Partikeldurchmessers bei verschiedenen Gasflüssen wird die Tendenz zu größeren Partikeln bei geringeren Gasflüssen bestätigt (Abb. 4.11). Bei Flüssen von 600 – 1000 mL/min besteht eine schwache, lineare Abhängigkeit des Partikeldurchmessers, wobei sich der mittlere Durchmesser der Aerosolpartikel nur geringfügig ändert (Abb. 4.15). Bei einem noch kleineren Gasfluss wird die Abhängigkeit deutlich stärker. Ein Unterschied im Gasfluss um 200 mL/min bewirkt einen Anstieg der Partikelgröße um bis zu 80 nm. Des Weiteren wurden auch die Auswirkungen einer Temperaturvariation untersucht. Wie bei KCl lässt sich eine Zunahme in der Konzentration feststellen, deren Steigung mit höheren Temperaturen weiter zunimmt (Abb. 4.16). Im Gegensatz zu Kaliumchlorid wird bei Cadmiumiodid nicht beobachtet, dass die Konzentration stark einsinkt, sobald der Gasfluss einen bestimmten Wert erreicht. Der Einbruch bei 800 bzw. 1000 mL/min wird lediglich durch die zu geringe Temperatur verursacht.

Wird die Abhängigkeit des mittleren Durchmessers von der Temperatur betrachtet, so fällt auf, dass es bei den geringen Gasflüssen von 200 und 400 mL/min jeweils ein Maximum bei einer Temperatur von 340°C gibt. Dieses Verhalten wurde bei Kaliumchlorid nicht beobachtet. Die die Messungen mit Cadmiumiodid nur jeweils einmal durchgeführt wurden, ist die Reproduzierbarkeit dieser Maxima nicht sichergestellt. Allerdings ergaben wiederholte Messungen mit Kaliumchlorid, dass die erhaltenen Größenverteilungen auch dann identisch sind, wenn eine Messung bei gleichen Versuchsparametern an verschiedenen Tagen wiederholt wird, sofern die Apparatur bereits mindestens 50 min in Betrieb ist. Der Fehler der Messreihen sollte entsprechend nicht signifikant sein.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass bei Cadmiumiodid durch Variation von Temperatur und Gasfluss ein Größenbereich von 26 – 214 nm zur Verfügung steht. Bei KCl beschränkt sich dieser Bereich auf 60 – 164 nm.

Wie bei Kaliumchlorid wurde auch beim Cadmiumiodid untersucht, welche Parameter den Transport der Spaltprodukte beeinflussen. Dazu wurde eine Messreihe mit verschiedenen Gasflüssen bei 290°C und eine bei verschiedenen Temperaturen und einem Gasfluss von 400 mL/min gemacht. Wird der Einfluss der Temperatur auf die erhaltenen Zählraten der Nuklide ^{101}Tc und ^{94}Y bei beiden Aerosolmaterialien betrachtet (Abb. 4.24(b) / Abb. 4.23(b)), so zeigt sich abermals ein unterschiedliches Bild bei den ausgewählten Salzen. Während der Einfluss der Temperatur bei KCl gering ist und flache Geraden erhalten werden, so ergibt sich bei CdI_2 ein markantes Maximum bei 290°C. Der Abfall zu beiden Seiten dieser Temperatur ist entsprechend stark. Es zeigte sich bereits bei vorangegangenen Untersuchungen, dass die Temperatur bei Cadmiumiodid einen starken Einfluss auf die Anzahl der Partikel und deren Durchmesser besitzt. Bei den gegebenen Bedingungen (290°C, 400 mL/min) wird parallel zu dem Maximum in der Zählrate ein Maximum beim Partikeldurchmesser erhalten. Bei der Abhängigkeit der erhaltenen Menge an Spaltprodukten vom Gasfluss (Abb. 4.24(a)) ist ein deutliches Maximum bei einem Fluss von 400 mL/min zu sehen. Der mittlere Durchmesser der Aerosolpartikel liegt bei diesen Bedingungen bei (38.0 ± 0.3) nm. Bei höheren Gasflüssen nimmt der mittlere Durchmesser der Partikel ab und sie werden dadurch deutlich kleiner. Bei der Transporteffizienz von Kaliumchlorid wurde bereits ermittelt, dass große Partikel Spaltprodukte tendenziell besser transportieren als kleine. Dass bei 400 mL/min bessere Ergebnisse erzielt werden als bei höheren Gasflüssen, könnte entsprechend darin begründet sein. Allerdings werden bei einem Fluss von 200 mL/min Partikel produziert, deren mittlerer Durchmesser (66.1 ± 0.3) nm beträgt und diese somit um 28 nm größer, d.h. annähernd doppelt so groß sind. Die durch KCl erhaltenen Erkenntnisse über die Transporteffizienz würden zu der Erwartung führen, dass diese eine höhere Ausbeute an Spaltprodukten liefern. Die Anzahl der Partikel scheint ebenso eine untergeordnete Rolle zu spielen, da die Partikelmenge bei Cadmiumiodid bei niedrigen Gasflüssen stark erhöht ist. Bei einer Ofentemperatur von 290°C werden bei 400 mL/min nur noch 23% der bei 200 mL/min erhaltenen Partikelanzahl erhalten. Der erhaltene Einbruch in der Spaltproduktausbeute kann dementsprechend nicht allein

Tabelle 5.2: Masse und Größe der verschiedenen Aerosolpartikel

Aerosol-material	Gasfluss / mL/min	Mittlerer Durchmesser / nm	Partikelmasse / g/cm ³
CdI ₂ <i>T</i> = 290°C	200	66.1	8.53·10 ⁻¹⁶
	400	38.0	1.62·10 ⁻¹⁶
KCl <i>T</i> = 650°C	200	115.6	1.6·10 ⁻¹⁵
	400	93.7	8.55·10 ⁻¹⁶

in der Partikelkonzentration begründet sein. Da entsprechend weder Partikelanzahl noch -durchmesser für diesen Einbruch in der Ausbeute verantwortlich sind, müssen weitere Faktoren betrachtet werden. Dieser Einbruch ist bereits bei Kaliumchlorid zu sehen (Abb. 4.23(a)). Bei diesem kommt allerdings erschwerend hinzu, dass bei diesem Gasfluss eine deutlich geringere Anzahl an Partikeln produziert wird. Bei Cadmiumiodid ist dies – wie beschrieben – nicht der Fall. Neben Durchmesser und Anzahl der Partikel muss nun entsprechend deren Masse analysiert werden. Sind Partikel zu schwer und besitzen folglich ein großes Trägheitsmoment, so kann es dadurch bedingt zu verschiedenen Arten von Verlusten kommen. Tab. 5.2 zeigt die erhaltenen Massen für je ein Partikel bei den gegebenen äußeren Bedingungen. Zur Vereinfachung dieser Rechnung wurde angenommen, dass die Partikel sphärisch und von homogener Dichte sind. Bei Kaliumchlorid ist die Masse eines Partikels bei 200 mL/min etwa doppelt so groß wie bei einem Fluss von 400 mL/min. Dennoch wurde ein deutlicher Abfall in der Ausbeute erhalten. Bei Cadmiumiodid ist eine ähnliche Entwicklung bei der Partikelmasse zu beobachten; allerdings vergrößert sich die Masse bei diesem Salz sogar um den Faktor 5. Die Masse eines CdI₂-Partikels bei 200 mL/min entspricht außerdem annähernd exakt der eines KCl-Partikels bei 400 mL/min. Bei KCl liegt die Transporteffizienz dieses Partikels auf halber Höhe der in Abb. 4.21 gezeigten Kurve. Des Weiteren wurden unter diesen Bedingungen im Vergleich zu anderen Gasflüssen oder Temperaturen sehr gute Ausbeuten erhalten. Entsprechend kann der Abfall bei der Ausbeute der Spaltprodukte weder durch den kleinen Partikeldurchmesser noch durch die Masse der Partikel begründet werden. Die stark verminderte Zählrate bei Flüssen unterhalb von 400 mL/min muss folglich allein durch den geringen Gasfluss bedingt sein. Durch die geringe Geschwindigkeit des Trägergases und somit auch der Aerosolpartikel kann es zu starken Sedi-

mentationsverlusten oder zur Impaktion von Partikeln kommen, da die Stokes-Zahl mit kleinerer Geschwindigkeit und steigendem Durchmesser sinkt. Dementsprechend folgen die Aerosolpartikel den Strömungslinien des Trägergases weniger stark und behalten ihre ursprüngliche Bewegungsrichtung bei. Gerade in Kurven der Kapillaren, die durch den Aufbau des Experiments zwangsläufig entstehen, innerhalb der Targetkammer oder bei dem Übergang zwischen verschiedenen Komponenten des Gas-Jets kommt es dadurch zu starken Verlusten. Zusätzlich muss die Konzentration der Partikel durch Diffusion an die Kapillarinnenwände berücksichtigt werden. Abb. 2.3 bestätigt, dass Partikelverluste durch Diffusion und Sedimentation besonders bei geringen Gasflüssen signifikant werden.

Ein weiterer Faktor bei der Entstehung der geringen Zählraten ist der Druck in der Targetkammer. Zum Abbremsen der Spaltprodukte aus dem Target muss ein Überdruck im Inneren dieser vorhanden sein. Dieser ist wiederum abhängig vom eingestellten Gasfluss und wird geringer, umso niedriger der Gasfluss eingestellt wird. So ist bei einem Fluss von 200 mL/min ein Druck von lediglich 1195 mbar in der Kammer zu messen, während dieser bei 400 mL/min bereits 1450 mbar beträgt. Es besteht folglich die Möglichkeit, dass die Spaltfragmente nicht in ausreichendem Ausmaß abgebremst werden und sich entsprechend langsamer und in geringerem Umfang an die Aerosolpartikel anlagern können.

Aus den durchgeführten Untersuchungen ergibt sich, dass die Transporteffizienz von Spaltprodukten stark von den äußeren Bedingungen beeinflusst wird. Weiterhin zeigt sich, dass sich bei beiden untersuchten Aerosolmaterialien die Variation des Gasflusses auf die Anzahl der Partikel auf entgegengesetzte Weise auswirkt, während die Variation der Temperatur in beiden Fällen zu einem Anstieg in der Partikelkonzentration führt. Der mittlere Durchmesser steigt ebenfalls bei beiden Salzen mit steigender Temperatur und sinkendem Gasfluss.

Bei der Konstruktion einer aerodynamischen Linse mit Cadmiumiodid als Aerosolmaterial sollte besonders Abb. 4.24 berücksichtigt werden. Die Spaltausbeute ist bei 400 mL/min und 290°C maximal, obwohl bei diesen Bedingungen weder die Partikel mit dem größten Durchmesser, noch die größte Anzahl an Partikeln produziert wird. Der mittlere Partikeldurchmesser beträgt bei diesen Bedingungen lediglich (38.0 ± 0.24) nm. Die Transporteffizienz bleibt bei dieser Temperatur erfahrungsgemäß über einen längeren Zeitraum konstant, während es bei höheren Tem-

peraturen zu Transportverlusten kommt, da die Kapillaren schnell verstopfen. Eine konstruierte Linse, die auf eine Partikelgröße von 30 – 75 nm ausgelegt ist, würde somit 99.7% aller vorhandenen Partikel kollimieren. Damit ist der Bereich der Partikel deutlich kleiner als bei KCl. Dies sollte die Kollimation erleichtern und die Anzahl an Blenden einschränken.

Kapitel 6

Aerodynamische Linse

6.1 Designstudie

Zur Berechnung der einzelnen Dimensionen der aerodynamischen Linse wurde ein Design Tool verwendet [Wan06]. Dieses Programm ermöglicht die Berechnung der Dimensionen der einzelnen Bestandteile der Linse, ohne aufwändige numerische Rechnungen durchführen zu müssen. Im Design-Modus kann eine Linse für gegebene experimentelle Bedingungen berechnet werden, während im Test-Modus das Verhalten von Partikeln in einer gegebenen Linse simuliert werden kann. Ziel ist eine maximale Kollimation von Partikeln bei gleichzeitig minimalen Partikelverlust. Um dies zu erreichen, gilt es bei gegebenem Gasfluss, Druck und Trägergas, die Anzahl und inneren Durchmesser der Blenden und der Spacer, die Länge der Relaxationskammer sowie Durchmesser der Öffnungen am Ein- und Ausgang der Linse zu optimieren. Das Design Tool ermittelt neben den Dimensionen der Bauteile auch den Arbeitsdruck und das Verhalten des Gasflusses innerhalb der Linse. Zusätzlich schätzt es den Durchmesser des Partikelstrahls in jedem Segment der aerodynamischen Linse ab sowie die Transporteffizienz von Partikeln durch dieses System. Diese gibt Aussagen darüber, welcher Anteil an Partikeln, die anfangs in die Linse eindringen, diese auch wieder verlassen bzw. welcher Anteil an Partikeln verloren geht. Es wird außerdem die finale Geschwindigkeit der Partikel berechnet, mit der diese die Linse verlassen. Bei der Simulation des Verhaltens von Partikeln innerhalb des betrachteten Systems wird berücksichtigt, dass der Partikelstrahl zwar aerodynamisch kollimiert

wird, sich aber gleichzeitig durch Diffusion aufweitet. Es werden drei Mechanismen miteinbezogen, die für den Verlust von Partikeln und entsprechend einer Minderung der Transporteffizienz verantwortlich sind: Diese sind Impaktion an den einzelnen Blenden aufgrund der Trägheit der Partikel, Impaktion an den Innenwänden der Spacer durch Defokussierung der Partikel und Verluste durch Partikeldiffusion. Bei der Berechnung wird angenommen, dass die Aerosolpartikel sphärisch und elektrisch neutral sind. Der Gasfluss muss laminar, subsonisch und kontinuierlich sein. Dies wird dadurch gesichert, dass die Reynolds-Zahl Re (Gl. 2.7) unter 200 liegt. Bei diesen Werten kommt es zu keinen Verwirbelungen bei plötzlich auftretenden Hindernissen. Gleichzeitig darf die Knudsen-Zahl Kn (Gl. 2.4) einen Wert von 0.1 nicht überschreiten, um einen kontinuierlichen Fluss zu gewährleisten. Würde ein freies molekulares Regime bestehen, so wäre aufgrund der Partikelbewegung keine Kollimierung möglich. Weiterhin muss beachtet werden, dass der Partikelverlust mit Zunahme der Stokes-Zahl St ansteigt; bereits bei $St > 10$ wird eine signifikante Menge an Partikel verloren. Dies beeinflusst nach Gl. 2.1 den inneren Durchmesser der Blenden und Spacer. Die gegebenen Bedingungen des Experiments sind in Tab. 5.1 zusammengefasst. Da diese entsprechend feststehen, muss nun zunächst die Anzahl der Blenden bestimmt werden. Die Anzahl dieser korreliert mit der Anzahl der Spacer. Da jeder einzelne Spacer eine gewisse Länge besitzt, kann die Zahl der Blenden nicht beliebig hoch gewählt werden. Simulationen des Design Tools zeigen, dass eine aerodynamische Linse mit zwei Blenden bereits gute Ergebnisse erzielt. Im Design-Modus wurde dadurch eine Linse erhalten, die einen Partikelstrahl aus 50 – 200 nm großen Partikeln erzeugt, dessen Durchmesser abhängig von der Größe der Partikel $5.23 \cdot 10^{-1} - 2.05 \cdot 10^0$ mm beträgt. Die Länge der gesamten Linse beträgt 51.1 cm. Da im Bereich vor dem Skimmer jedoch lediglich 40 cm zur Verfügung stehen, muss dieses vorgeschlagene Design im Test-Modus des Programms angepasst werden. Durch Variation der einzelnen Linsendimensionen wird schließlich eine aerodynamische Linse erhalten, bei der die Gesamtlänge der Spacer lediglich 29 cm beträgt. Die inneren Durchmesser der einzelnen Blenden bzw. auch des Ein- und Ausgangs wurden so angepasst, dass die Durchmesser keinem einheitlichen Trend mehr folgen. Dies ist bei aerodynamischen Linsen ungewöhnlich, da die inneren Durchmesser meist sukzessive kleiner werden. Bei Systemen, bei denen der Druckabfall innerhalb der Linse sehr groß ist, werden die inneren Durchmesser

sukzessive größer. Dennoch werden für die Kollimation der verschiedenen Partikel gute Ergebnisse erwartet. Der simulierte Partikeldurchmesser beträgt in Abhängigkeit der Partikelgröße $7.40 \cdot 10^{-2} - 6.28 \cdot 10^{-1}$ mm. Damit ist der Partikelstrahl insgesamt deutlich kleiner, als bei dem im Design-Modus vorgeschlagenen Design.

Abb. 6.1 zeigt den Durchmesser des Partikelstrahl im Verlauf der aerodynamischen Linse bzw. die Kontraktion des Strahldurchmessers an den einzelnen Blenden.

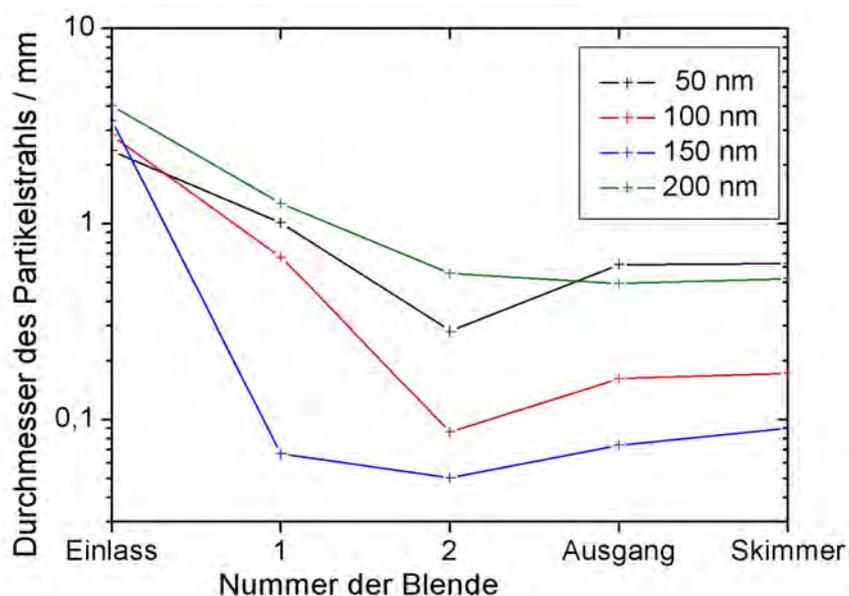


Abbildung 6.1: Simulierter Durchmesser des Partikelstrahls im Verlauf der Linse. Die Kontraktion bzw. Ausweitung des Strahls hinter jedem Linsensegment ist abhängig von der Größe bzw. entsprechend der Masse der Partikel. Folglich sind die Kurven für verschiedene Partikeldurchmesser angegeben. Der Skimmer befindet sich 10 mm hinter dem Ausgang der Linse.

Der angegebene Strahldurchmesser definiert den Durchmesser, der 90% aller Partikel enthält. Beim Eintritt der Partikel in die Linse beträgt der Durchmesser dieses Strahls 2.36 – 4.02 mm. Durch die erste Blende werden Partikel mit einer Größe von 150 nm am stärksten kollimiert. Kleinere Partikel eines Durchmessers von 50 – 100 nm werden durch die zweite Linse fokussiert, während die Ausgangsdüse schließlich dazu führt, dass die größten Partikel kollimiert werden. Der finale Partikelstrahl hat beim Verlassen der Linse einen Durchmesser von 0.07 – 0.62 mm. Dies entspricht einer Kontraktion des Strahls auf 2.97 – 15.42% seines ursprünglichen Durchmessers. Der Öffnungswinkel des Strahls wird dabei ebenfalls reduziert, sodass sich der

Durchmesser des Partikelstrahls nur unbedeutend ändert bis er auf den Eingang des Skimmers in 10 mm Entfernung trifft.

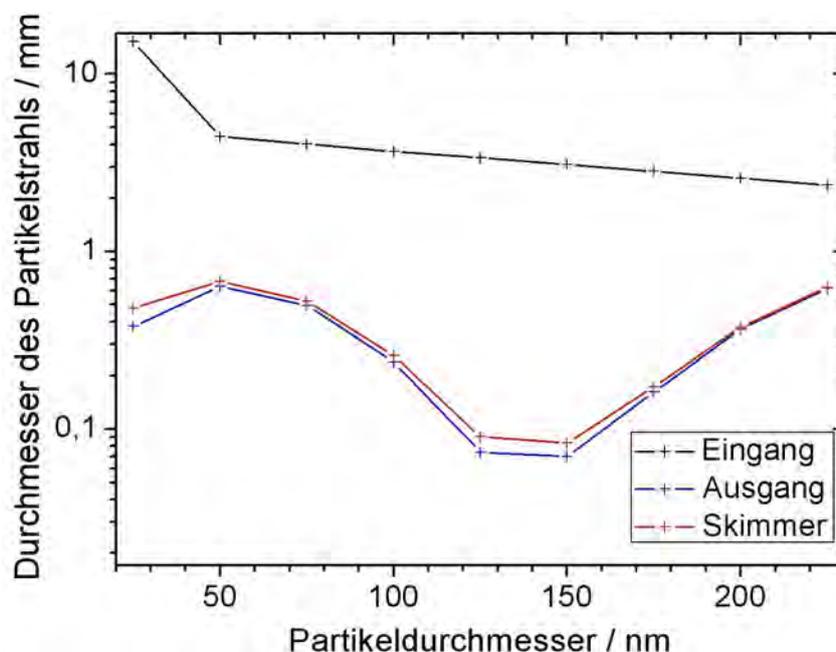


Abbildung 6.2: Abhängigkeit des Durchmessers des Partikelstrahls von der Partikelgröße. Es sind die simulierten Strahldurchmesser vor und hinter der Linse, sowie direkt vor dem Skimmer aufgetragen. Der Skimmer befindet sich 10 mm hinter dem Ausgang der Linse.

Abb. 6.2 zeigt den berechneten Durchmesser des Partikelstrahls in Abhängigkeit des Partikeldurchmessers, der sich in einem Bereich von 25 – 225 nm befindet. Er ist für verschiedene Positionen aufgetragen, um das Ausmaß der Kollimation aufzuzeigen. Vor dem Eingang der Linse ist der Partikelstrahl einige Millimeter breit. Mit der Zunahme der Partikelgröße sinkt der Durchmesser des Partikelstrahls. Dies liegt darin begründet, dass kleinere Partikel einen größeren Diffusionskoeffizienten besitzen und den Strömungslinien des Trägergases gleichzeitig aufgrund ihrer geringen Masse annähernd vollständig folgen. Im Gegensatz dazu tendieren größere, schwere Partikel dazu, ihre ursprüngliche Bewegung beizubehalten. Sie befinden sich entsprechend näher an der horizontalen Achse des Systems. Zwischen dem Strahldurchmesser vor und hinter der Linse ist ein deutlicher Unterschied zu erkennen. Die Kollimation ist bei Partikeln eines Durchmessers von 125 – 150 nm am größten. Der Partikeldurchmesser wird hier um den Faktor 45 reduziert. Aber auch bei anderen

Partikelgrößen ist eine starke Kollimation zu beobachten.

Wird der Durchmesser hinter der Linse mit dem Durchmesser vor dem Skimmereingang verglichen, so wird deutlich, dass sich dieser Strahl nur geringfügig verbreitert. Der größte Teil der Partikel, der bei den ausgesuchten Bedingungen einem Durchmesser von 75 – 200 nm besitzt, bildet einen Strahl, der einen Durchmesser von maximal 0.52 mm bildet. Da die Eingangsöffnung des Skimmers 1.0 mm beträgt, sollte – bei exakter Ausrichtung der Linse auf den Skimmer – die gesamte Menge an Aerosolpartikeln in den Skimmer eindringen, ohne dass große Verluste aufgrund eines zu großen Öffnungswinkels auftreten, wodurch die Skimmereffizienz signifikant gesteigert werden sollte.

6.2 Design

Aus den erhaltenen Größen konnte schließlich eine aerodynamische Linse konstruiert werden, die an die Bedingungen des TRIGA-SPEC-Experiments angepasst ist. Ein Querschnitt dieses Systems ist in Abb.6.3 zu sehen. Die dazugehörigen Werte der einzelnen Dimensionen sind in Tabelle 6.1 zusammengefasst. Länge L_s und Durch-

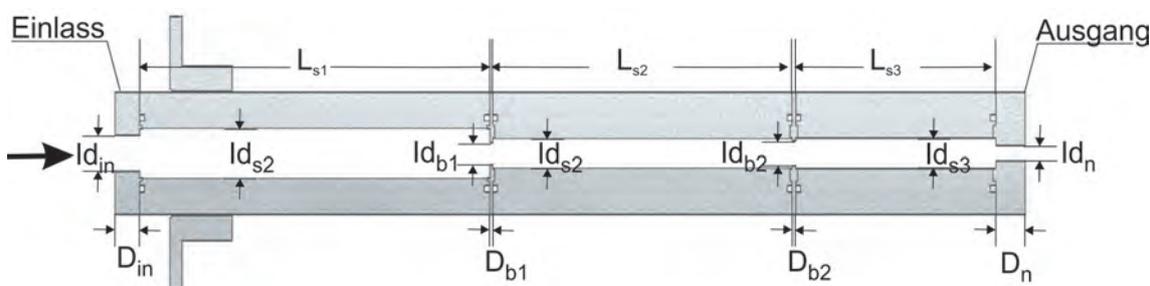


Abbildung 6.3: Querschnitt des entwickelten Linsen-Designs.

messer ID_s der Spacer sowie die inneren Durchmesser der einzelnen Blenden ID_B ergeben sich aus den Simulationen des Design Tools [Wan06]. Die Länge des Einlasses wird auf 10 mm festgelegt [Zha04]. Die Dicke der beiden Blenden D_B ergibt sich durch den inneren Durchmesser ID_B dieser:

$$\frac{D_B}{ID_B} = 0.125 \quad (6.1)$$

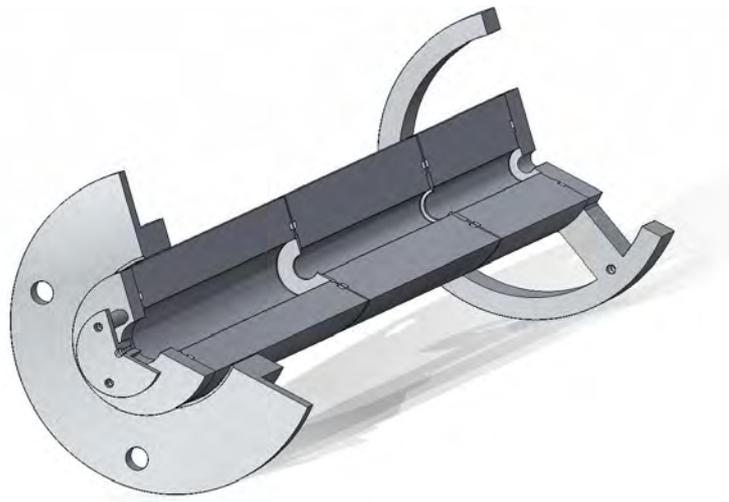
Tabelle 6.1: Dimensionen der aerodynamischen Linse

L_{S1}	100 mm	ID_{S1}	20.0 mm
L_{S2}	120 mm	ID_{S2}	12.0 mm
L_{S3}	80 mm	ID_{S3}	12.0 mm
D_{in}	10.0 mm	ID_{in}	14.6 mm
D_{b1}	1.1 mm	ID_{b1}	8.7 mm
D_{b2}	1.3 mm	ID_{b2}	9.8 mm
D_n	12.0 mm	ID_n	6.0 mm

Ausgangsdüse D_N ergibt sich aus dem inneren Durchmesser des voran stehenden Spacers ID_s (Gl.6.2):

$$D_N \approx ID_s \quad (6.2)$$

Der genaue Einfluss der Dimensionen des Ausgangs auf die Kollimation ist noch nicht vollständig untersucht. Entsprechend ist nicht bekannt, welche Gestalt zu einer maximalen Fokussierung führt. Abb.6.4 zeigt das 3D-Modell einer aus diesen Größen konstruierte Linse. Die Abbildung wurde mithilfe des Programms *Solid Edge* erstellt. Die Gesamtlänge der Linse beträgt 364.4 mm. Vor dem Eingang der Linse ist eine

**Abbildung 6.4:** Solid Edge-3D-Modell der entwickelten aerodynamischen Linse.

Kapillarhalterung befestigt, die gewährleistet, dass der Aerosolstrahl des Gas-Jets zentriert auf die Einlassöffnung der Linse gerichtet ist. Da nicht festgestellt werden

konnte, welcher Abstand zwischen Kapillare und Linse zur höchsten Effizienz führt, sind mehrere Abstandshalter für verschiedene Distanzen vorhanden, die leicht ausgetauscht werden können. Somit kann später festgestellt werden, welche Position der Kapillare sich am wirkungsvollsten erweist. Am Ausgang der Linse befindet sich eine weitere Möglichkeit zur Justage der Linse. Diese kann durch Abstandshalter direkt mit dem Skimmer verbunden werden, sodass der kollimierte Partikelstrahl exakt auf den Skimmereingang gerichtet ist, der einen Durchmesser von lediglich 1 mm besitzt. Auch diese Abstandshalter sind in verschiedenen Längen vorhanden, um den Abstand zwischen Linse und Skimmer zwischen 8 – 12 mm variieren zu können. Die Bestandteile der fertigen Linse sind in Abb. 6.5 zu sehen. Die zusammengebaute Linse ist in Abb. 6.6 gezeigt.

Zwar konnte das System im Rahmen dieser Diplomarbeit noch nicht in den Aufbau des TRIGA-SPEC-Gas-Jets integriert werden; der Einbau ist jedoch für Anfang 2014 geplant. Anschließend wird durch verschiedene Messungen ermittelt werden, in welchem Ausmaß die Effizienz des Skimmers durch die aerodynamische Linse gesteigert werden kann.

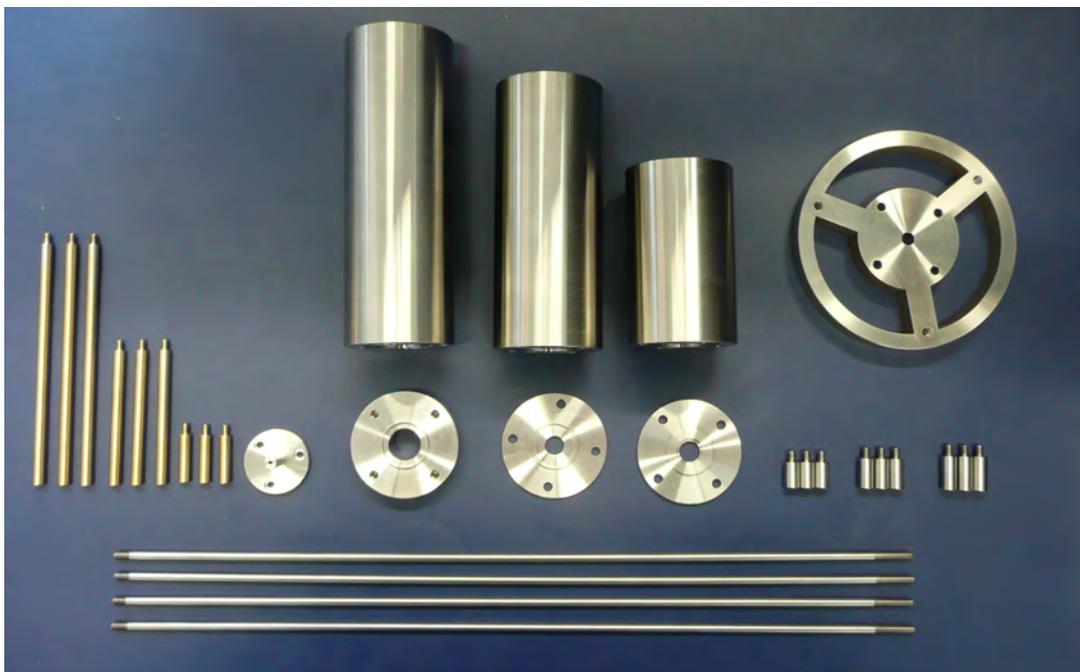


Abbildung 6.5: Bestandteile der aerodynamischen Linse inklusive Abstandshalter verschiedener Längen.

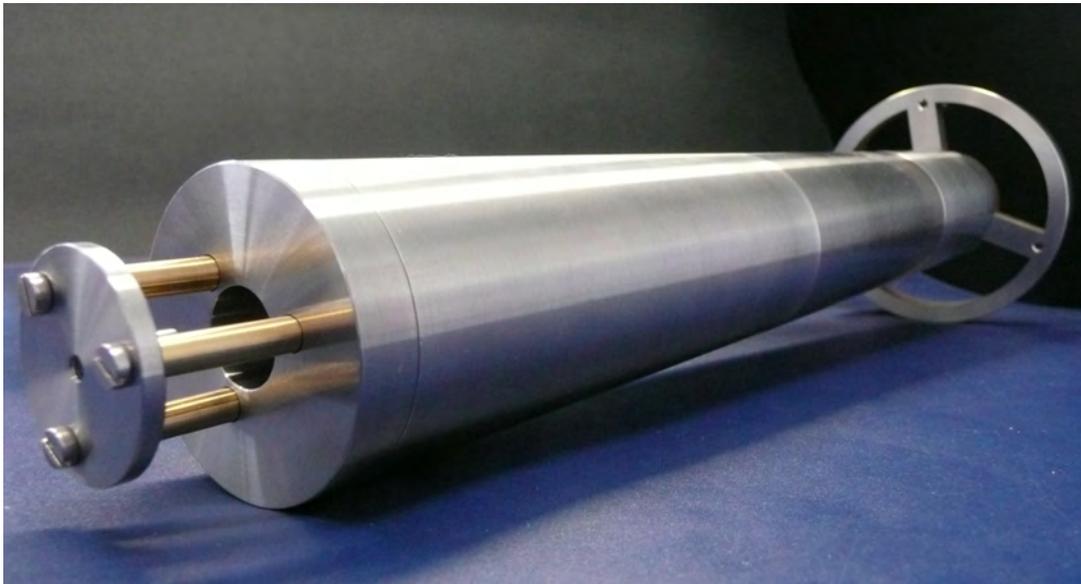


Abbildung 6.6: Zusammengebaute Linse

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Im Hinblick auf das Design einer aerodynamischen Linse für TRIGA-SPEC wurde der Gas-Jet dieses Experiments charakterisiert. Hierbei wurde systematisch der Einfluss von Temperatur und Gasfluss auf die Bildung von Aerosolpartikeln untersucht. Neben Kaliumchlorid wurde als Aerosolmaterial auch Cadmiumiodid verwendet. Es konnte festgestellt werden, dass die Größenverteilung der Aerosolpartikel stark von den experimentellen Bedingungen abhängt. Bei KCl liegt der mittlere Durchmesser zwischen 59.5 – 164 nm während er bei CdI₂ einem Bereich von 25.3 – 214 nm zu finden ist. In Bezug auf den Einfluss der Temperatur verhalten sich beide Salze ähnlich. Eine erhöhte Temperatur führt zu einer vergrößerten Anzahl an produzierten Partikeln, während der Durchmesser der einzelnen Partikel gleichzeitig wächst. Ein niedriger Gasfluss führt bei beiden Salzen zu der Erzeugung von größeren Partikeln. Ein signifikanter Unterschied besteht bei der Menge der produzierten Aerosolpartikel in Abhängigkeit des Gasflusses: Bei niedrigen Gasflüssen werden bei Kaliumchlorid weniger Partikel erzeugt als bei höheren Gasflüssen, während bei Cadmiumiodid ein gegenläufiger Trend zu beobachten ist. Bei Kaliumchlorid wurde zusätzlich beobachtet, dass die Ausbeute an Partikeln unterhalb eines Gasflusses von 400 mL/min stark vermindert ist.

Es wurde durch verschiedene γ -Messungen sowohl die relative Transporteffizienz von Spaltprodukten in Abhängigkeit der Partikelgröße also auch in Abhängigkeit von Gasfluss und Temperatur ermittelt. Aus diesen Messungen wird zunächst deutlich, dass größere Partikel Spaltprodukte besser transportieren als kleinere. Wird jedoch

diese relative Transporteffizienz auf die Masse eines einzelnen Partikels normiert, so wird festgestellt, dass das Maximum der relativen Transporteffizienz bei KCl bei einem Partikeldurchmesser von 87 nm liegt. Die durchgeführten Untersuchungen ergaben weiterhin, dass die Ausbeute an Spaltprodukten mit Kaliumchlorid als Aerosolmaterial bei Flüssen von 400 – 600 mL/min keine signifikanten Unterschiede aufweist. Eine Variation der Temperatur zeigt, dass die Ausbeute geringfügig steigt, sofern die Temperatur erhöht wird. Bei Cadmiumiodid ist ein klares Maximum der Spaltausbeute bei einem Gasfluss von 400 mL/min und einer Temperatur von 290°C zu sehen.

Beide Salze haben gemeinsam, dass unterhalb eines Gasflusses von 300 mL/min annähernd keine Spaltprodukte mehr transportiert werden. Dies liegt an verschiedenen Mechanismen, die zu Partikelverlusten führen und bei niedrigen Gasflüssen an Bedeutung gewinnen. Zu diesen Mechanismen gehört zum einen die Sedimentation, durch die es bei größeren Partikeln ab etwa 200 nm zu Verlusten kommt, und zum anderen die Diffusion, die sich auf kleinere Partikeln bis etwa 200 nm auswirkt. Bei Kaliumchlorid tritt zusätzlich das Problem auf, dass bei sehr kleinen Gasflüssen die Zahl der erzeugten Aerosolpartikel stark abnimmt.

Durch die durchgeführten Untersuchungen und deren Ergebnisse konnten die experimentellen Bedingungen im Hinblick auf das Design einer aerodynamischen Linse für einen Gas-Jet mit Kaliumchlorid angepasst werden. Diese optimierten Bedingungen ermöglichen die Konstruktion einer aerodynamischen Linse. Mithilfe eines Design Tools wurde das Verhalten der Aerosolpartikel innerhalb der Linse simuliert. Aufgrund des mangelnden Raums am Gas-Jet des TRIGA-SPEC-Experiments konnte das durch diese Programm ermittelte Design nicht übernommen werden, da die Länge der Linse den vorhandenen Platz deutlich überschreitet. Es wurden sowohl die Durchmesser der einzelnen Linsen als auch die inneren Durchmesser und die Länge der Spacer verändert. Durch diese Anpassung wurde es möglich, eine aerodynamische Linse zu erhalten, die exakt auf die Bedürfnisse des Experiments zugeschnitten ist und die durch ihre verkürzte Länge in den vorhandenen Raum passt. Durch die notwendigen Anpassungen wurde in Bezug auf die inneren Durchmesser der Blenden ein unkonventionelles Linsendesign erhalten. Das Verhältnis der einzelnen Linsen untereinander bzw. zum inneren Durchmesser der Spacer wurde so konstruiert, dass die Simulationen dennoch eine gute Kollimation voraussagen.

Es wird sogar vorausgesagt, dass die Kontraktion des Partikelstrahls durch dieses unübliche Design verstärkt wird. Durch den Einsatz einer aerodynamischen Linse sollte eine Kontraktion des Partikelstrahls von 2.36 – 4.02 mm auf 0.07 – 0.62 mm erhalten werden. Dies sollte dazu führen, dass die gesamte Anzahl an Partikeln in den Skimmereingang ($\varnothing = 1.0$ mm) eindringt. Dadurch sollte es zu einer deutlichen Erhöhung der Skimmereffizienz kommen, da Partikelverluste durch einen verkleinerten Öffnungswinkel minimiert werden.

Die Konstruktion der Linse ist bereits fertiggestellt. Die für einen Einbau in die TRIGA-SPEC-Apparatur benötigten Bauteile wurden bestellt, wodurch die aerodynamische Linse in naher Zukunft in den vorhandenen Gas-Jet integriert werden kann. Zunächst wird überprüft, wie hoch die Transmission der Linse selbst ist. Anschließend wird durch Sammlungen vor und hinter dem Skimmer überprüft, in welchem Maße die Skimmereffizienz durch Einbau der aerodynamischen Linse gesteigert wird. Die Simulationen versprechen positive Ergebnisse. Des Weiteren wird der Einfluss der Position der Kapillare vor der Linse mithilfe der konstruierten Abstandshalter systematisch untersucht und entsprechend optimiert werden. Zusätzlich kann der Durchmesser des Partikelstrahls vor und hinter der Linse ermittelt werden, indem die an diesen Stellen auf einem Filter gesammelten Spaltprodukte mittels Radiographie vermessen werden. Dadurch kann die genaue Kontraktion des Strahls erhalten werden.

Zusätzlich wird untersucht werden, ob durch den Einsatz von Cadmiumiodid als alternatives Aerosolmaterial die Transporteffizienz bzw. die Effizienz des Skimmers gesteigert werden kann. Es muss experimentell überprüft werden, ob die Linse, die für Kaliumchlorid konstruiert wurde, auch für Cadmiumiodid verwendet werden kann. Ggf. müssen dazu einzelne Segmente der Linse ausgetauscht oder angepasst werden. Dadurch dass das System der Linse aus einzelnen Segmenten besteht, die aufeinander gesteckt werden, ist ein Austausch einzelner Teile möglich.

Literaturverzeichnis

- [Bar93] P. A. Baron, K. Willeke, *Aerosol measurement: principles, techniques, and applications*, John Wiley & Sons (1993).
- [Bey] T. Beyer, *et al.*, An rfq cooler and buncher for the triga-spec experiment, *Applied Physics B*, pages 1–8.
- [Brü83] M. Brügger, *Entwicklung einer Hochtemperaturoberflächenionenquelle für den Heliumjet Massenseparator Helios und Zerfallsstudien an massengetreuen, neutronenreichen Praesodymisotopen*, PhD thesis, Universität Mainz (1983).
- [Ebe00] K. Eberhardt, A. Kronenberg, The research reactor triga mainz: A neutron source for versatile applications in research and education, *Kerntechnik*, **65**, 269 (2000).
- [Eib09] M. Eibach, *Characterization of a carbon aerosol generator in a helium gas-jet for the extraction of fission products from the research reactor TRIGA Mainz*, Master's thesis, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2009).
- [Eib10] M. Eibach, *et al.*, Transport of fission products with a helium gas-jet at triga-spec, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **613**, 226 (2010).
- [Fie08] S. Fies, *Entwicklung einer direkten Flüssigprobeneinbringung für den laser-massenspektrometrischen Nachweis von Uranisotopen*, Master's thesis, Fakultät für Physik und Astronomie Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2008).

- [Ghi74] A. Ghiorso, *et al.*, Element 106, *Physical Review Letters*, **33**, 1490 (1974).
- [Gün93] R. Günther, *Charakterisierung der Eigenschaften der KCl-Aerosolpartikel eines He-Gasjets*, Master's thesis, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (1993).
- [Hay12] W. M. Haynes, D. R. Lide, T. J. Bruno, *CRC Handbook of Chemistry and Physics 2012-2013*, CRC press (2012).
- [Hin12] W. C. Hinds, *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*, John Wiley & Sons (2012).
- [Ins02] P. Instruments. Model 3022a condensation particle counter. Technical report, P/N 1933763, Revision I (2002).
- [Ket08] J. Ketelaer, *et al.*, Triga-spec: A setup for mass spectrometry and laser spectroscopy at the research reactor triga mainz, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **594**, 162 (2008).
- [Mac69] R. Macfarlane, *et al.*, The helium-jet recoil transport method, *Nuclear Instruments and Methods*, **73**, 285 (1969).
- [Mag06] J. Magill, G. Pfennig, J. Galy, *Karlsruher nuklidkarte*, 7th (2006).
- [Maz81] A. Mazumdar, *et al.*, Performance of the on-line isotope separation facility helios at the mainz reactor, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **186**, 131 (1981).
- [Rad90] D. J. Rader, Momentum slip correction factor for small particles in nine common gases, *Journal of aerosol science*, **21**, 161 (1990).
- [Ren13] private communication (2013).
- [Sat13] T. K. Sato, *et al.*, First successful ionization of lr ($z= 103$) by a surface-ionization technique, *Review of Scientific Instruments*, **84**, 023304 (2013).
- [Sto13] G. Stoffdatenbank, Sicherheitsblatt cadmiumiodid (2013).

- [Wan05] X. Wang, *et al.*, Aerodynamic focusing of nanoparticles: Ii. numerical simulation of particle motion through aerodynamic lenses, *Aerosol Science and Technology*, **39**, 624 (2005).
- [Wan06] X. Wang, P. H. McMurry, A design tool for aerodynamic lens systems, *Aerosol Science and Technology*, **40**, 320 (2006).
- [Wie72] K. Wien, Y. Fares, R. Macfarlane, Application of the helium-jet technique for fission fragment transport from spontaneous fission sources, *Nuclear Instruments and Methods*, **103**, 181 (1972).
- [Wor00] A. P. L. Work. Differential mobility particle sizer (aerosol measurements). Technical report, Institute for Atmospheric and Climate Science (2000).
- [Zha04] X. Zhang, *et al.*, Numerical characterization of particle beam collimation: Part ii integrated aerodynamic-lens-nozzle system, *Aerosol Science and Technology*, **38**, 619 (2004).
- [Zud86] F. Zude, *Transportverhalten von Spaltprodukten*, Master's thesis, Universität Mainz (1986).