γ-Spektroskopische Untersuchungen der Reinheit verwendeter Materialien im Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO

Diplomarbeit
von
Thomas Riedel

Garching, den 1. Dezember 1999

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden verschiedene Materialien auf ihre radioaktiven Verunreinigungen hinsichtlich ihrer Verwendung für das Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO untersucht. Zu diesem Zweck wurden unterschiedliche Analysemethoden angewandt.

In Kapitel 1 wird kurz auf die Physik der solaren Neutrinoerzeugung eingegangen und das von den bisherigen Experimenten beobachtete Defizit an beobachteten solaren Neutrinos beschrieben. Es werden Lösungsansätze für dieses Defizit und neue Experimente vorgestellt.

Eines dieser neuen Experimente, BOREXINO, befindet sich momentan im Aufbau. Es werden in Kapitel 2 das Nachweisprinzip und Detektorkonzept erläutert, und die Anforderungen an die radioaktive Reinheit der verschiedenen Detektorkomponenten diskutiert.

Die in dieser Arbeit verwendeten untergrundarmen Germaniumdetektoren werden mit ihren Abschirmkonfigurationen im neu errichteten Untergrundlabor des Instituts in Kapitel 3 vorgestellt. Low-Level-γ-Spektroskopie wurde in dieser Arbeit für verschiedenste Materialien eingesetzt.

Zur Verbesserung der Sensitivität wurde Neutronenaktivierungsanalyse angewendet. Das Verfahren und Messergebnisse von verschiedenen Nylonproben mit und ohne chemische Aufbereitung werden in Kapitel 4 beschrieben.

Ein NaI-Kristall wurde als Anticompton-Detektor für den großen p-typ Germaniumdetektor installiert. Kapitel 5 charakterisiert den Detektor, stellt die Möglichkeiten seiner Anwendung und erste Messergebnisse dar, und zeigt neue Optionen auf.

Monte-Carlo-Simulationen wurden zur Ermittlung von Detektoreffizienzen benutzt. Kapitel 6 stellt das verwendete Programm vor, zeigt Simulationsergebnisse, geht aber auch auf die Problematiken der Simulation ein.

Kapitel 7 schließlich fasst das Gesamtergebnis der verschiedenen untersuchten Proben zusammen und gestattet einen Ausblick auf künftige Verbesserungsmöglichkeiten.

Inhaltsverzeichnis

Kapitel 1

Das solare Neutrino-Rätsel

1.1 Das Standard-Sonnenmodell

Die Sonne als Hauptreihenstern erzeugt ihre Energie nach dem Standardsonnenmodell (SSM) durch exotherme Kernfusion [Gam38]. Dies geschieht in der Sonne, als relativ leichtem Hauptreihenstern, hauptsächlich über den pp-Prozess, d. h. die Fusion von Wasserstoff zu Helium [Bet39][Wei37].

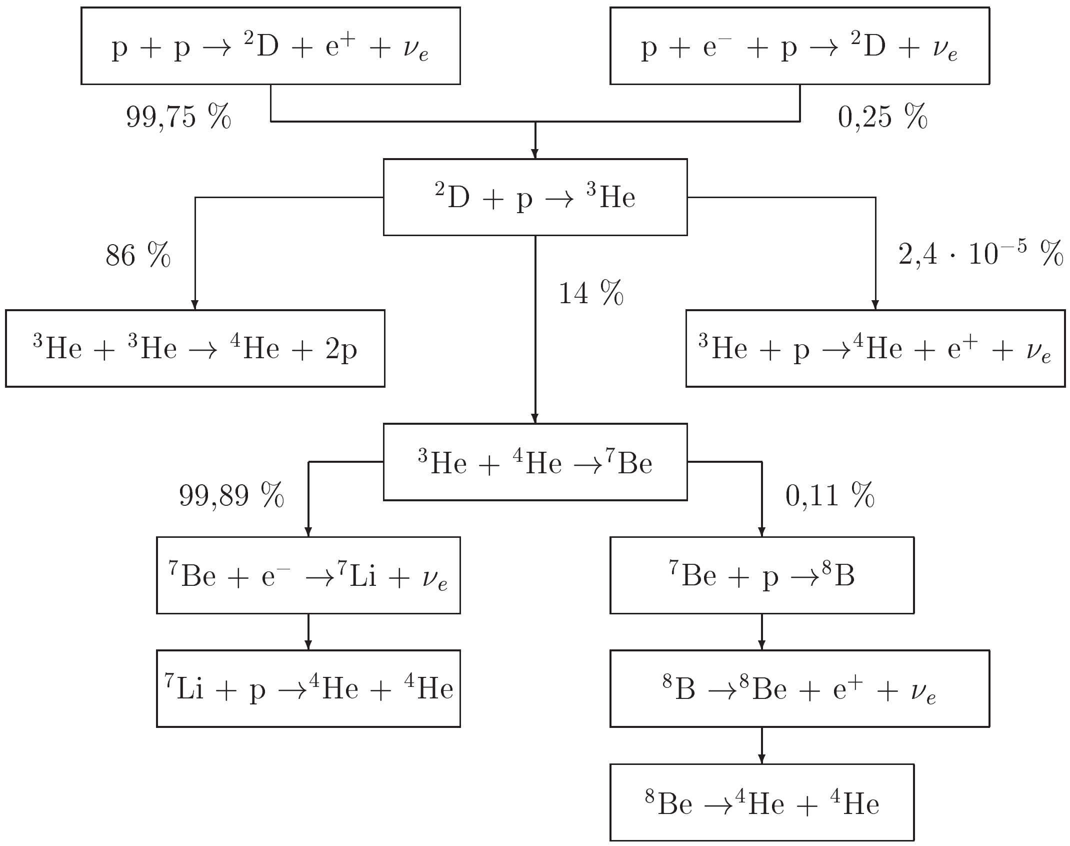

Abbildung 1.1: *Fusion von Wasserstoff zu Helium über den pp-Zyklus [Gam38].*

Im exothermen thermonuklearen Fusionsprozess läuft die Reaktion

$$4p \rightarrow {}^{4}He + 2e^{+} + 2\nu_e$$

ab. Da die beiden Positronen anschließend mit zwei Elektronen annihilieren, lautet die Nettobilanzgleichung schließlich:

$$2e^{-} + 4p \rightarrow {}^{4}He + 2\nu_e + 26,73 MeV$$

Der CNO-Zyklus trägt aufgrund der niedrigen Zentraltemperatur (T_c = 1,56 · 10^7 K) nur zu 1,6 % bei.
Die dabei entstehenden Elektronneutrinos werden nach dem Reaktionszweig der pp-Kette, in dem sie erzeugt werden, benannt. So wird in der Reaktion ^{7}Be + e^- $\rightarrow$ ^{7}Li + ν_e das sogenannte ^{7}Be-Neutrino mit einer diskreten Linienenergie von 860 keV (90 %) oder 380 keV (10 %) erzeugt. In Standardsonnenmodellrechnungen wird nun versucht mit den Grundgleichun-

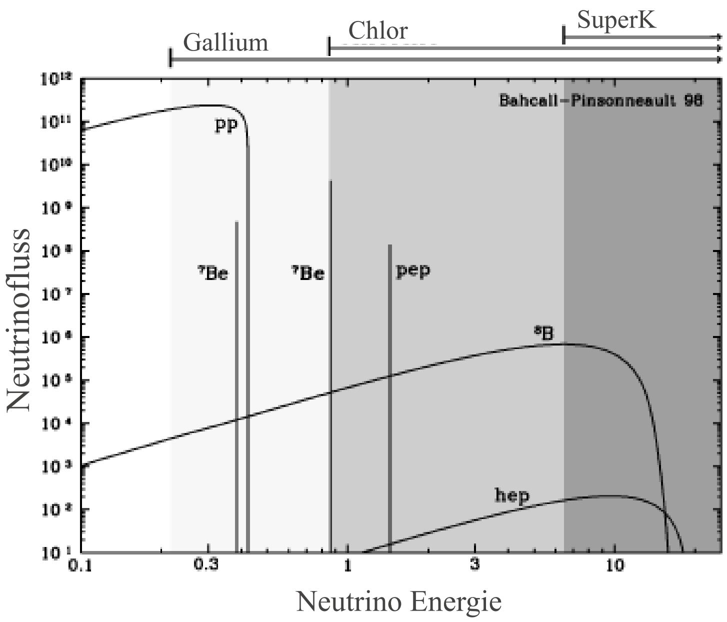

Abbildung 1.2: *Neutrinospektrum, welches nach dem Standardsonnenmodell auf der Erde zu erwarten ist. Kontinuierliche Spektren sind in $MeV^{-1}cm^{-2}s^{-1}$ aufgetragen, Linienspektren in $cm^{-2}s^{-1}$. Oben sind die Bereiche dargestellt, für die die jeweiligen Experimente sensitiv sind. Aus [Bah99].*

gen für hydro- und thermodynamisches Gleichgewicht, sowie der Energietransportgleichung, ein mit der experimentellen Beobachtung konsistentes Bild der Sonne zu zeichnen. Als Parameter für solche Berechnungen gehen Größen wie Radius, Leuchtkraft, Alter der Sonne, ursprüngliche chemische Zusammensetzung, aber auch die Wirkungsquerschnitte (S-Faktoren) für die einzelnen in der Sonne ablaufenden Kernreaktionen ein. Diese Berechnungen liefern unter anderem Vorhersagen über den auf der Erde zu erwartenden Neutrinofluss der einzelnen Reaktionszweige der pp-Kette (siehe Abbildung 1.2), während aus Luminosität und

Stationarität der Sonne nur der Gesamtneutrinofluss hervorgeht. In Tabelle 1.1 sind die Neutrinoflüsse der einzelnen Prozesse dargestellt.

	[Bah98]	[Tur93]	[Cas99]	[Shi94]	[Dar96]
pp [10^{10} $cm^{-2}s^{-1}$]	5.94 ± 0.06	6.0	6.0	6.1	6.1
^{7}Be [10^9 $cm^{-2}s^{-1}$]	4.80 ± 0.432	4.33	4.81 ± 1.05	3.9	3.7
^{8}B [10^6 $cm^{-2}s^{-1}$]	$5.15^{+0.978}_{-0.721}$	4.4 ± 1	5.96 ± 2.44	3.0	2.49
pep [10^8 $cm^{-2}s^{-1}$]	1.39 ± 0.013	-	-	-	1.43

Tabelle 1.1: *Die Neutrinoflüsse der einzelnen Reaktionen des pp-Zyklus in verschiedenen Sonnenmodellrechnungen (entnommen aus [Hen99]).*

1.2 Sonnenneutrinoexperimente und Ergebnisse

Neutrinos lassen sich durch unterschiedliche Nachweismethoden detektieren. Die bisher durchgeführten und derzeit laufenden Experimente kann man in radiochemische und Echtzeit-Experimente einteilen. Die radiochemischen Experimente nutzen den inversen Betazerfall (ν_e-Einfang, ν_e-Absorption durch einen Targetkern). Dabei ist man natürlich nur auf die Elektronneutrinos sensitiv. Die Einfangrate bestimmt man über die Beobachtung des Rückzerfalls, der durch Elektroneneinfang des instabilen Tochterkerns stattfindet. Da Neutrinos nur schwach wechselwirken, verwendet man massive Detektoren mit mehreren Tonnen Targetmaterial. Die gemessenen Ereignisraten gibt man in SNU[1] an. Bei dieser Art von Nachweis verliert man allerdings die Information über Einfallszeit[2], Energie (mit Ausnahme der Nachweisschwelle) und Richtung der Neutrinos.

Echtzeit-Experimente, die als Wasser-Cherenkov-Detektoren aufgebaut sind, nutzen hauptsächlich die Neutrino-Elektron-Streuung. Das dabei entstehende Cherenkovlicht ist dabei eng mit der Richtung und Energie des einfallenden Neutrinos korreliert. Andere Echtzeit-Experimente, wie z. B. SNO und BOREXINO verwenden auch andere Detektionstechniken (siehe Kapitel 1.4.1 bzw. Kapitel 2). Experimente, welche die elastische Neutrinostreuung an Elektronen zum Nachweis ausnutzen, sind im Gegensatz zu radiochemischen Experimenten auch auf die anderen Neutrinoflavours sensitiv, wenn auch aufgrund des verringerten Wirkungsquerschnittes in vermindertem Ausmaß.

Zur Unterdrückung des kosmogenen Untergrundes werden solche Experimente unter Tage durchgeführt. Nachfolgend werden einige Experimente vorgestellt, welche die oben beschriebenen Detektionsmethoden verwenden und auf dem Gebiet des Nachweises der solaren Neutrinos Pionierarbeit geleistet haben.

[1] 1 SNU = 10^{-36} Einfänge pro Targetatom und Sekunde.

[2] Man hat je nach Halbwertszeit der gebildeten instabilen Nuklide auch für diese Art von Experimenten eine gewisse Zeitauflösung, die von der Expositionsdauer bzw. der Halbwertszeit der Nuklide abhängt. Saisonale Schwankungen, wie z.B. Korrelationen mit der Sonnenfleckenhäufigkeit der Sonne, ließen sich auch damit nachweisen.

1.2.1 Das Chlor-Experiment

Das erste Experiment zum Nachweis der solaren Neutrinos war das Chlor-Experiment von R. Davis, das seit 1968 betrieben wird. Aufgebaut in der Homestake-Goldmine in South-Dakota mit einer Abschirmtiefe von 4100 mwe[3] nutzt es als Target 615 t Perchlorethylen (C_2Cl_4) und die Nachweisreaktion:

$$^{37}Cl + \nu_e \rightarrow^{37} Ar + e^-$$

In untergrundarmen Proportionalzählrohren wird dann der Rückzerfall des aus dem Detektortank extrahierten ^{37}Ar mit einer Halbwertszeit von 35 Tagen nachgewiesen. Aufgrund der Schwellenenergie E_S von 814 keV für den Neutrinoeinfang werden überwiegend ^{7}Be- (15 %) und ^{8}B-Neutrinos (78 %) beobachtet [Bah98].

Während das Standardsonnenmodell nach Bahcall eine Einfangrate von $(7.7^{+1.2}_{-1.0})$ SNU [Bah98] vorhersagt, wurden im Experiment im Mittel nur eine Zählrate von (2.55±0.25) SNU [Dav98] gemessen.

1.2.2 Die Gallium-Experimente GALLEX, SAGE und GNO

Die Gallium-Experimente GALLEX und SAGE benutzen zur Detektion ebenfalls das radiochemische Nachweisprinzip. Dabei verwenden sie die Reaktion

$$^{71}Ga + \nu_e \rightarrow {}^{71}Ge + e^- \qquad .$$

Aufgrund der niedrigen Energieschwelle von 233 keV konnten mit diesen Experimenten erstmals die pp-Neutrinos direkt nachgewiesen werden.
GALLEX im Gran-Sasso-Untergrundlaboratorium, in einer Tiefe von 3500 mwe gelegen, verwendete als Targetmasse 30.3 t Gallium in Form einer stark salzsauren (HCl) Galliumchlorid ($GaCl_3$)-Lösung (101 t). Der Nachweis des in Abständen von 3–4 Wochen extrahierten ^{71}Ge erfolgte wie beim Chlor-Experiment in miniaturisierten Proportionalzählern [Alt96].

Das SAGE-Experiment (**S**oviet **A**merican **G**allium **E**xperiment) im Baksan-Neutrino-Observatorium (Tunnel) im Nord-Kaukasus mit einer Abschirmtiefe von 4700 mwe benutzt als Target 60 t flüssiges, metallisches Gallium.

Das Standardsonnenmodell sagt für die Galliumexperimente eine Messrate von $(129 \pm^{8}_{6})$ SNU voraus, wozu die pp-Neutrinos einen Anteil von 54 % beitragen sollten, die ^{7}Be-Neutrinos weitere 26 % und etwa 11 % die ^{8}B-Neutrinos. Im Gegensatz dazu bestimmten die Experimente eine Rate von

$$\begin{array}{rll} (77.5 \pm 7.7) & \text{SNU} & \text{für GALLEX [GAL99] und} \\ (69 \pm 12) & \text{SNU} & \text{für SAGE [SAG95].} \end{array}$$

[3] Um wegen der unterschiedlichen geologischen Zusammensetzung der Deckenschichten für die unterschiedlichen Experimente eine vergleichbare Größe für die Abschirmtiefe angeben zu können, wird die Standorttiefe in Meter Wasseräquivalent (1 mwe = 1 Hektogramm/cm^2) angegeben.

Beide Experimente stimmen in ihrer gemessenen Rate sehr gut überein und wurden jeweils mit künstlichen Neutrinoquellen überprüft.
Das GALLEX-Experiment wird derzeit in Form des GNO(Gallium Neutrino Observatorium)-Experimentes fortgesetzt, wobei dieses in seiner endgültigen Ausbaustufe eine Targetmasse von 100 t Gallium enthalten soll. Darüber hinaus wird zur Steigerung der Effizienz eine Auslese mit kryogenen Detektoren erwogen.

1.2.3 Das Kamiokande- und Superkamiokande-Experiment

Das Kamiokande-Experiment (Kamioka Nucleon Decay Experiment) ist im Gegensatz zu den bisher vorgestellten Experimenten ein Vertreter für ein Echtzeitexperiment. Ursprünglich wurde es in der Kamioka-Mine mit einer Abschirmtiefe von 2700 mwe zur Suche nach dem Protonzerfall gebaut. Als Wasser-Cherenkov-Zähler verwendete es von den 30 kt Wasser die inneren 680 t als Target. Damit konnte aufgrund der Energieschwelle von 7.5 MeV erstmals das ^{8}B Spektrum zeit- und richtungsaufgelöst vermessen werden. Die Richtungsinformation wurde zugleich auch zur Reduktion des Untergrundes verwendet. Während die gemessene ν_e-Verteilung in ihrer Form mit der Verteilung, die nach dem SSM zu erwarten war, sehr gut übereinstimmte, ergab der gemessene Fluss mit

$$\Phi_{exp} = (2.89^{+0.22}_{-0.21} \pm 0.35) \cdot 10^6 cm^{-2} s^{-1}$$

im Vergleich zu den im SSM vorhergesagtem Fluss von $(6.6^{+0.9}_{-1.1}) \cdot 10^6 cm^{-2} s^{-1}$ [Bah95] nur etwa 54 %.
Seit dem Ende von Kamiokande wird die Neutrinodetektion der solaren und atmosphärischen Neutrinos mit einem vergrößerten und verbesserten Detektor in Form des Superkamiokande-Experiments fortgeführt. Von den 50 kt Wasser dienen die inneren 11 kt als Target. Auch die Schwellenenergie wurde auf 5 MeV abgesenkt. Superkamiokande misst seit dem 1. April 1996. Nach 504 Tagen Messzeit beträgt auch das von Superkamiokande gemessene Verhältnis aus gemessenem zu berechnetem Fluss nur rund $\Phi_{exp}/\Phi_{Bah98} = 0.47 \pm 0.020$ [Fuk99] [Bah98], in Übereinstimmung mit dem Ergebnis von Kamiokande.

1.3 Lösungsansätze für das solare Neutrino-Rätsel

Alle bisherigen Experimente zeigen ein deutliches Defizit an beobachteten solaren Neutrinos gegenüber den Vorhersagen von Standardsonnenmodellrechnungen. Es wurden daher verschiedene Ansätze vorgeschlagen diese Diskrepanz zu erklären.

1.3.1 Astrophysikalischer Lösungsansatz

Die Stärke der verschiedenen Neutrinoflüsse hängt in unterschiedlichem Maße von der Zentraltemperatur der Sonne ab. Nach [Bah89] gilt näherungsweise

$$\Phi(\mathrm{pp}) \propto \mathrm{T}_c^{-1.2}, \quad \Phi(^7\mathrm{Be}) \propto \mathrm{T}_c^{8}, \quad \Phi(^8\mathrm{B}) \propto \mathrm{T}_c^{18} \qquad .$$

Dadurch könnte, durch in den Standardsonnenmodellen nicht berücksichtigte Effekte, wie z. B. Turbulenzen, Rotation des Sonnenkerns, Magnetfelder, etc., die Zentraltemperatur T_c

gesenkt und damit auch der Neutrinofluss entsprechend der Temperaturabhängigkeit erniedrigt werden. Allerdings stimmen Ergebnisse aus der Helioseismologie gut mit den Vorhersagen gängiger Versionen des SSM überein[4]. So kann die Zentraltemperatur mit $T_c = 1.58 \cdot (1 \pm 0.014) \cdot 10^7$ K angegeben werden [Cas99].
Darüber hinaus würde eine Verringerung der Zentraltemperatur die Raten der ^{8}B-Neutrinos stärker beeinflussen als die der ^{7}Be-Neutrinos. Dies würde zu einer stärker verminderten Rate für das Kamiokande-Experiment im Gegensatz zu dem Chlor-Experiment führen, aufgrund der unterschiedlichen Beiträge der einzelnen Neutrinoflüsse zur Gesamtrate. Experimentell wurde jedoch das Gegenteil beobachtet: Nämlich eine größere Verminderung für das Chlor-Experiment Homestake als für Kamiokande.
Noch ein weiteres Resultat spricht gegen eine astrophysikalische Lösung. Senkt man, um für das Kamiokande-Experiment eine Übereinstimmung zwischen Experiment und Vorhersage zu erreichen, den ^{8}B-Fluss auf ungefähr die Hälfte des Wertes des SSM ab, so würde man mit dem verbleibenden Anteil noch immer eine Rate für das Chlor-Experiment erwarten, die über der gemessenen liegt. Damit bliebe für die ^{7}Be-Neutrinos kein Beitrag zur Rate mehr übrig. Auch bei den Gallium-Experimenten bliebe nach Addition der Flüsse von pp-Neutrinos und ^{8}B-Neutrinos kein Platz mehr für ^{7}Be-Neutrinos (vgl. u. a. [Kir95]). Da andererseits ^{8}B aus einer Reaktion mit ^{7}Be entsteht, müssen zwangsläufig auch ^{7}Be-Neutrinos vorhanden sein.
Eine astrophysikalische Lösung des Problems der solaren Neutrinos wird heute weitgehend ausgeschlossen.

1.3.2 Kernphysikalischer Lösungsansatz

Ein weiterer Ansatzpunkt zur Klärung des Problems bietet sich durch die teilweise nur ungenau bekannten Wirkungsquerschnitte der verschiedenen Kernreaktionen an. Da die thermische Energie im Sonneninneren im Bereich von einigen keV, die Coulomb-Barrieren aber im Bereich von einigen MeV liegen, geschieht die Fusion geladener Teilchen maßgeblich über den Prozess des quantenmechanischen Tunnelns. Üblicherweise wird der Wirkungsquerschnitt in der Form

$$\sigma_{ij}(E) = \frac{S_{ij}(E)}{E} exp(-2\pi\eta)$$

geschrieben. η ist der sogenannte Sommerfeldparameter, gegeben durch $\eta = \mathrm{Z_1 Z_2 e^2}/\hbar \mathrm{v}$, wobei v die Relativgeschwindigkeit der beiden an der Reaktion beteiligten Teilchen ist. Die Indizes beziehen sich auf die Kernladungszahlen der beteiligten Kerne im pp-Zyklus. So bedeutet σ_{17} z. B. die Reaktion p + ^{7}Be $\rightarrow$ ^{8}B. Dabei ist der astrophysikalische S-Faktor als der Anteil des Wirkungsquerschnittes definiert, bei dem die quantenmechanische 1/E-Abhängigkeit und die Tunnelwahrscheinlichkeit, ausgedrückt durch den Gamowschen Tunnelfaktor im Exponentialterm, herausgezogen sind. Dieser S-Faktor ist im Vergleich zum Wirkungsquerschnitt als Funktion der Energie nur schwach energieabhängig. Da für die Wirkungsquerschnitte zumeist keine Messwerte bei solch niedrigen Energien existieren, werden sie von Werten bei höher-

[4]Druckschwankungen in der Sonne, die sich als Schallwellen ausbreiten und stehende Wellen zwischen der Sonnenoberfläche und dem Sonneninneren bilden, lassen sich über die Beobachtung der Vibration der Sonnenoberfläche durch z. B. periodische Dopplerverschiebung von Absorptionslinien oder kleine periodische Intensitätsschwankungen beobachten. Dadurch lassen sich Informationen über das Sonneninnere, u. a. Druck p(r), Dichte ρ(r) und auch Temperatur T(r) gewinnen [Sch97].

en Energien aus Beschleunigerexperimenten in den relevanten Energiebereich extrapoliert. Möglicherweise auftretende Resonanzen im Wechselwirkungsquerschnitt werden dabei nicht berücksichtigt. Zur Erklärung müssten sich die Fusionswirkungsquerschnitte σ_{33}, σ_{34} und σ_{17} signifikant von den extrapolierten unterscheiden, d. h. entweder müsste S_{33} sehr viel höher sein als in den Rechnungen des SSM angenommen, oder S_{34} stark erniedrigt und gleichzeitig S_{17} signifikant verstärkt sein. Allerdings zeigen neuere Messungen insbesondere des LUNA-Experimentes am Gran Sasso, die σ_{33} messen und bis hinunter zu 20.7 keV gehen, was dem Maximum des Gamow-Peaks[5] entspricht, keine deutliche Abweichung von den extrapolierten Werten [Lun99]. Damit erscheint auch dieser Ansatz als unbrauchbar zur Lösung des solaren Neutrinoproblems.

1.3.3 Teilchenphysikalischer Lösungsansatz

Der wohl vielversprechendste Erklärungsversuch stammt aus dem Bereich der Teilchenphysik. Auch das im Kamiokande- und Superkamiokande-Experiment beobachtete anomale ν_μ/ν_e-Verhältnis der atmosphärischen Neutrinos legt eine Erklärung des Neutrinodefizits unabhängig von der solaren Neutrinoerzeugung nahe.
Eine mögliche Erklärung wäre die Umwandlung des Neutrinoflavours auf dem Weg von der Erzeugung bis zum Detektor. Notwendige Bedingungen dafür sind:

- Mindestens zwei Neutrinomasseneigenzustände müssen unterschiedliche Masse haben;
- Die Neutrinoarten müssen untereinander mischen, d. h. die Leptonflavourzahlen L_α sind nicht streng erhalten;
- Es gilt CPT-Erhaltung.

Nimmt man an, dass die Neutrinos massebehaftete Teilchen sind, so lassen sich die Flavoureigenzustände $|\nu_\alpha\rangle$, d. h. die Eigenzustände der schwachen Wechselwirkung, in Analogie zum Quarksektor[6] allgemein als Linearkombination der Masseneigenzustände $|\nu_i\rangle$ schreiben:

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_{i=1}^{3} U_{\alpha i}|\nu_i\rangle$$

Da die Masseneigenzustände $|\nu_i\rangle$ im Ort mit unterschiedlicher Geschwindigkeit propagieren, hat dies zur Folge, dass ein am Anfang reiner Flavourzustand $|\nu_\alpha\rangle$ eine ortsabhängige Mischung der verschiedenen Flavoureigenzustände wird. Im Experiment lässt sich also mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit ein anderer Flavoureigenzustand $|\nu_\beta\rangle$ nachweisen. Man bezeichnet dieses Phänomen als Neutrinooszillationen. Da diese Annahmen dem Standardmodell der

[5] Bei sehr niedrigen Energien ergibt sich der günstigste Energiebereich für Kernreaktionen zwischen geladenen Teilchen aus der Faltung zweier gegenläufiger Effekte: Zum einen der Maxwell-Boltzmann-Verteilung mit einem Maximum bei kT, welche eine exponentiell abfallende Teilchenanzahl zu hohen Energien bedeutet, zum anderen der mit wachsender Energie steigenden quantenmechanischen Tunnelwahrscheinlichkeit. Das Maximum der Faltung beider Effekte – der Gamow-Peak – liegt bei einer Energie E_0, die sehr viel größer sein kann als kT.

[6] Die Cabibbo-Kobayashi-Maskawa-Matrix beschreibt die Mischung zwischen den einzelnen Quarkfamilien.

Teilchenphysik in der derzeitigen Form widersprechen[7], andererseits keinem fundamentalen physikalischen Prinzip entgegenstehen, erklärt sich das große Interesse der Teilchenphysiker am experimentellen Nachweis solcher Oszillationen. Pontecorvo hat als erster auf die mögliche Existenz solcher ν-Oszillationen hingewiesen [Pon57].
Mit dieser Erweiterung des Standardmodells könnte das solare Neutrinorätsel gelöst werden: Auf dem Weg von der Erzeugung in der Sonne bis zum Detektor auf der Erde könnten die produzierten Elektron-Neutrinos ν_e in andere Flavoureigenzustände oszillieren, die dann experimentell nicht mehr oder nur mit geringerer Wahrscheinlichkeit nachgewiesen werden können.
Nimmt man zur Vereinfachung der Betrachtung nur die Mischung zwischen zwei Flavourzuständen an, so schreibt sich die unitäre Transformation mit dem Mischungswinkel Θ wie folgt:

$$\begin{pmatrix} \nu_e \\ \nu_x \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} cos\Theta & sin\Theta \\ -sin\Theta & cos\Theta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \nu_{m1} \\ \nu_{m2} \end{pmatrix}$$

Damit läst sich die Oszillationswahrscheinlichkeit für die Umwandlung von $|\nu_e\rangle$ in einen anderen Flavoureigenzustand $|\nu_x\rangle$ angeben durch:

$$P_{\nu_e \to \nu_x}(x) = \frac{1}{2}(sin^2 2\Theta)\left(1 - cos(\frac{2\pi x}{L^{osc}})\right)$$

mit der Oszillationslänge $\mathrm{L}^{osc} = 4\pi\hbar\mathrm{cE}/\Delta\mathrm{m}^2 = 2.480 \cdot \frac{(E/MeV)}{(\Delta m^2/eV^2)} m$
($\Delta m^2 = m_1^2 - m_2^2$ ist die Differenz der Massenquadrate der beiden Masseneigenzustände).
Solare Neutrinos besitzen, wie aus Abbildung 1.2 ersichtlich ist, Energien bis zu mehreren MeV. Damit wären die Neutrinoexperimente bei einem Abstand von ca. $1.5 \cdot 10^11$ km für Massedifferenzen bis $\Delta\mathrm{m}^2_{exp} \geq 10^{-11}\mathrm{eV}^2$ sensitiv.
Die obigen Betrachtungen gelten für Oszillationen im Vakuum. Durch die Wechselwirkung mit den Elektronen bei Fortbewegung in Materie kann die Wahrscheinlichkeit für Flavourübergänge sogar maximal verstärkt werden, auch wenn im Vakuum der Mischungswinkel und damit die Übergangswahrscheinlichkeiten klein sind. Dieser Resonanzeffekt, der sogenannte MSW-Effekt (nach seinen Entdeckern **M**ikheyev-**S**mirnov-**W**olfenstein benannt), kann beim Durchqueren der Neutrinos von Materiegebieten mit variabler Elektronendichte auftreten [Wol78] [Mik86]. Solare Neutrinos werden im Inneren der Sonne bei hoher Dichte $\rho \sim 150$ g/cm^3 erzeugt. Auf dem Weg der Neutrinos vom Sonneninneren zum Sonnenrand könnten die Elektronneutrinos durch ein Gebiet gelangen, deren Elektronendichte N_e(r)
(r = Abstand vom Sonnenzentrum) die Resonanzbedingung für eine maximale Umwandlung erfüllt. Die Daten der Experimente lassen momentan vier Lösungen zu:

Die beste Beschreibung der Experimente gelingt durch die Erklärung mit Vakuumoszillationen mit einem Parametersatz von:

$$sin^2(2\Theta) = 0.75, \Delta m^2 = 6.5 \cdot 10^{-11} eV^2 \text{[Bah98]}$$

[7] Im Standardmodell der Teilchenphysik sind die Neutrinos masselose Spin-$\frac{1}{2}$-Teilchen ohne magnetisches und elektrisches Moment, eingeteilt in drei Leptonfamilien, deren Leptonfamilienzahl streng erhalten ist.

Die Lösungen des MSW-Effekt werden in die „Small Mixing Angle“-Lösung (SMA), die „Large Mixing Angle“-Lösung (LMA) und die sogenannte „Low“-Lösung eingeteilt:

$$\begin{aligned} sin^2(2\Theta) &= 6.0 \cdot 10^{-3}, & \Delta m^2 &= 5.4 \cdot 10^{-6} eV^2 && \text{(SMA)} \\ sin^2(2\Theta) &= 0.76, & \Delta m^2 &= 1.8 \cdot 10^{-5} eV^2 && \text{(LMA)} \\ sin^2(2\Theta) &= 0.96, & \Delta m^2 &= 7.9 \cdot 10^{-8} eV^2 && \text{(LOW)} \end{aligned}$$

1.4 Zukünftige Sonnenneutrinoexperimente

Zukünftige und bereits laufende Experimente versuchen vor allem Verformungen im Spektrum der Neutrinos (Super-Kamiokande im ^{8}B-Spektrum) oder die Neutrinoflavours getrennt nachzuweisen (z. B. SNO), um Hinweise auf eine mögliche Oszillation der solaren Neutrinos aufzudecken. Zu den bereits laufenden Experimenten zählen unter anderem GNO und Superkamiokande, welche schon im Kapitel 1.2 beschrieben wurden, aber auch SNO, welches seit April 1999 Daten nimmt. Bei den zukünftigen Experimenten soll hier nur kurz auf das im Bau befindliche Experimente KamLAND, sowie die sich im Planungs- bzw. Konzeptstadium befindlichen Projekte LENS, ICARUS, HELLAZ und HERON eingegangen werden. Das BOREXINO-Experiment wird im nächsten Kapitel ausführlich besprochen.

1.4.1 Das SNO-Experiment

Das Sudbury Neutrino Observatory (SNO) benutzt als Wasser-Cherenkov-Detektor im Gegensatz zu Super-Kamiokande schweres Wasser (D_2O). Damit lassen sich neben der νe-Streuung die beiden Reaktionen $\nu_e + {}^2\mathrm{D} \rightarrow \mathrm{e}^- + \mathrm{p} + \mathrm{p}$, mit einer Schwellenenergie von 1.42 MeV und Nachweis des Elektrons, sowie $\nu_x + {}^2\mathrm{D} \rightarrow \nu_x + \mathrm{p} + \mathrm{n}$, mit Nachweis des Neutrons, zum Neutrinonachweis ausnutzen. Durch Vergleich der gemessenen Raten in beiden Reaktionen lassen sich die Beiträge von ν_e und anderer Neutrinoflavours getrennt bestimmen. Durch Vergleich der gemessenen Neutrinoflüsse in beiden Reaktionen lässt sich direkt auf eventuelle Oszillationen schließen.
Das SNO-Experiment befindet sich in einer Nickelmine bei Sudbury (Kanada). Der Detektor selbst besteht aus 1000 t D_2O mit einer Anreicherung von 99,85 % in einer Acrylkugel. Diese wiederum befindet sich zur Untergrundabschirmung in 7300 t hochreinem Wasser.
SNO ist seit April dieses Jahres fertiggestellt und nimmt nach einigen Testläufen seitdem Daten.

1.4.2 KamLAND

Das KamLAND(**Kam**ioka **L**iquid scintillator **A**nti-**N**eutrino **D**etektor)-Experiment wird derzeit in der Kamioka-Mine am Standort des ehemaligen Kamiokande-Experimentes aufgebaut und soll – ebenso wie BOREXINO – im Jahr 2001 fertiggestellt sein. Der Aufbau des Detektors besteht ähnlich zu BOREXINO aus einem Flüssigszintillator in einem sphärischen Ballon, umgeben von einer Abschirmflüssigkeit und Wasser zur Untergrundreduktion.

KamLAND soll vor allem Reaktor-Antineutrinos der umgebenden Kernreaktoren auf Hinweise nach möglichen Neutrinooszillationen untersuchen, aber auch das solare Neutrinospektrum ab einer niedrigen Schwelle (ab ^{7}Be) vermessen.

1.4.3 LENS

Das LENS(Low Energy Neutrino Spectroscopy)-Experiment wurde von R. Raghavan [Rag97] [Rag99] vorgeschlagen, um den niederenergetischen Teil des solaren Neutrinospektrums zeit- und energieaufgelöst zu messen. Dies soll über die Anregung eines isomeren Zustandes durch Einfang eines Elektronneutrinos geschehen und wäre damit über die geladene schwache Wechselwirkung nur für diese sensitiv. Der isomere Zustand zerfällt über Emission von einem oder mehreren Photonen. Mit der zeitlichen und örtlichen Korrelation des beim Einfang erzeugten Elektrons und der emittierten Photonen können zudem signifikant Neutrinoereignisse von Untergrundereignissen getrennt werden. LENS befindet sich momentan noch im Diskussionsstadium. Als mögliche Targetmaterialien kommen ^{176}Yb, ^{160}Gd und ^{82}Se in Frage, deren Schwellenenergie für die Neutrinoeinfangsreaktion alle unterhalb der Endpunktsenergie der pp-Neutrinos liegen. Während BOREXINO, wie später beschrieben wird, den gesamten Neutrinofluss aller Neutrinosorten misst, die an der schwachen Wechselwirkung teilnehmen, würde LENS vom Linienspektrum der ^{7}Be-Neutrinos nur den Anteil der Elektronneutrinos registrieren. Damit könnte man den Anteil der verschiedenen Neutrinoflavours am Fluss der Be-Neutrinos entfalten und die Auswirkungen der Resultate auf die verschiedenen Lösungsansätze überprüfen. LENS und BOREXINO in Kombination würden für den niederenergetischen Teil des Neutrinospektrums das leisten, was SNO für den hochenergetischen Teil des ^{8}B-Spektrums leistet.

1.4.4 ICARUS, HELLAZ, HERON

Für das ICARUS-Experiment (**I**maging **C**osmic **A**nd **R**are **U**nderground **S**ignals) ist eine Flüssig-Argon-Driftkammer mit einer Targetmasse von 5 kt flüssigem Argon vorgesehen, welche solare Neutrinos über die elastische νe-Streuung, als auch die Reaktion

$$\nu_e + {}^{40}Ar \rightarrow e^- + {}^{40}K^*$$

mit einer Schwellenenergie von 5.9 MeV detektiert. Das angeregte Kalium geht unter Gamma-Emission wieder in den Grundzustand über. Durch Vergleich der gemessenen Flüsse von ν_e einerseits und ν_μ und ν_τ andererseits soll ICARUS wie SNO eine Trennung der Anteile des hochenergetischen Spektrums der solaren ^{8}B-Neutrinos erreichen. Der Aufbau eines 600 t-Moduls im Gran Sasso-Untergrundlabor soll nächstes Jahr beginnen [ICA99].

Das HELLAZ-Experiment (**Hel**ium at **L**iquid **Az**ote) soll als Hochdruck-Helium-Zeitprojektionskammer das Energiespektrum der pp- und ^{7}Be-Neutrinos mit Hilfe der νe-Streuung messen. Dazu sollen 12 t Helium bei einem Druck von 5 bar und bei einer Temperatur von 77 K (Siedepunkt des Stickstoffs) in einer zylindrischen Kammer gelagert werden. Ein Aufbau im Gran Sasso-Untergrundlabor ist geplant. Damit wäre HELLAZ das erste Echtzeit-Experiment für pp-Neutrinos [HEL99].

Das HERON-Projekt will ebenso wie HELLAZ als Target flüssiges Helium und als Nachweisprinzip die νe-Streuung benutzen. Allerdings soll hier der Nachweis über die Detektion der durch den Elektron-Rückstoß erzeugten Phononen und Photonen im UV-Bereich durch kalorimetrische Sensoren (supraleitende Iridium-Gold-Übergangsthermometer) erfolgen. HERON befindet sich im Planungsstadium [HER99].

Kapitel 2

Das BOREXINO-Experiment

2.1 Zielsetzung und Konzept des Detektors

Wie im Kapitel 1.3.1 gezeigt, manifestiert sich das Problem der solaren Neutrinos in dem Fehlen der ^{7}Be-Neutrinos. Das BOREXINO-Experiment hat nun als primäres Ziel den ^{7}Be-Fluss zeitaufgelöst zu messen, um zu klären, inwieweit der Fluss der ^{7}Be-Neutrinos wirklich unterdrückt ist oder ob der Ansatz einer Lösung bei teilchenphysikalischen Modellen zu suchen ist. Zum Nachweis verwendet BOREXINO die elastische Neutrino-Elektron-Streuung in

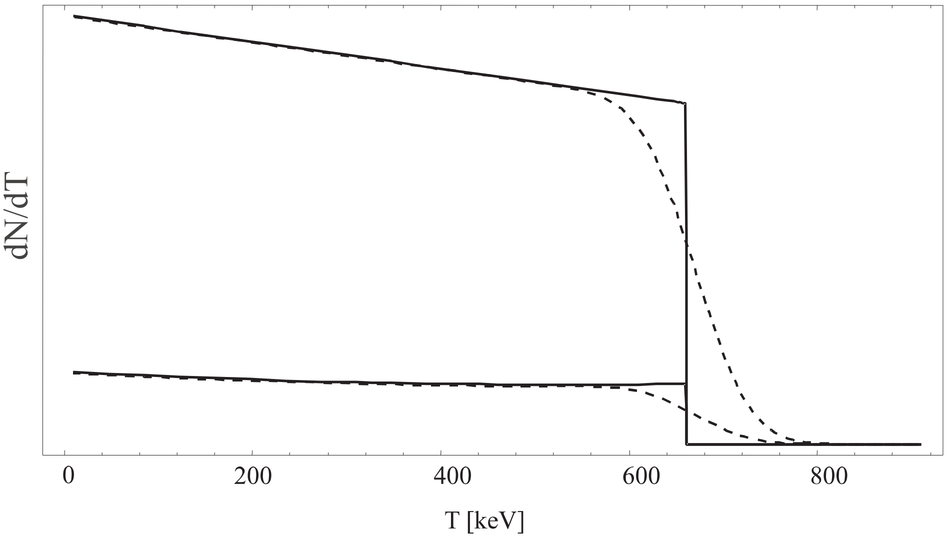

Abbildung 2.1: *Das Rückstoßspektrum für ^{7}Be-Neutrinos bei elastischer νe-Streuung. Die obere Linie gilt für ν_e, die sowohl über den geladenen als auch den ungeladenen Strom der schwachen Wechselwirkung an dem Prozess teilnehmen, die untere Linie gilt für ν_μ und ν_τ. Faltet man diese Linien zusätzlich mit der Energieauflösung des Detektors, so ergibt sich die gestrichelte Linie.*

einem Flüssigszintillator. Für diesen rein leptonischen Prozess sind die Wirkungsquerschnitte nach der Theorie der schwachen Wechselwirkung sehr genau bekannt. Da die Neutrinos mit den Elektronen des Targetmaterials sowohl über den geladenen Strom ($W^{\pm}$-Bosonen), als auch über den neutralen Strom (Z^0-Bosonen) wechselwirken können, ist das Experiment, wenn auch mit geringerer Wahrscheinlichkeit, ebenso für ν_μ und ν_τ sensitiv, die nur über den neutralen Strom wechselwirken. Dabei lässt sich der Energieübertrag T auf das Elektron für Rückwärtsstreuung von Neutrinos der Energie E_ν zu

$$T_{max} = \frac{2E_\nu^2}{m_e c^2 + 2E_\nu}$$

angeben. Dies bedeutet für ^{7}Be-Neutrinos eine Maximalenergie von 665 keV, für pep-Neutrinos von 1.225 MeV, die auf das Elektron übertragen wird. In Abbildung 2.1 ist Energieverteilung der gestreuten Elektronen dargestellt.

Die auf das Elektron übertragene Energie wird teilweise in Szintillationslicht umgewandelt, welches von Photovervielfachern registriert wird. Aufgrund der isotropen Emission des Szintillationslichtes verliert man durch diese Nachweismethode allerdings die Richtungsinformation des ν's.

Mit der Messung der Energie des Rückstoßelektrons ab einer Schwellenenergie von 250 keV, welches einer Energie der solaren Neutrinos von 450 keV entspricht, soll der Fluss der monoenergetischen ^{7}Be-Linie bei 862 keV bestimmt werden. Dabei weist man die deponierte Energie in dem als „Neutrinofenster“ bezeichneten Energieintervall von 250 keV bis 800 keV nach. Unter Zugrundelegung des Standardmodells erwartet man bei einer Detektormasse von

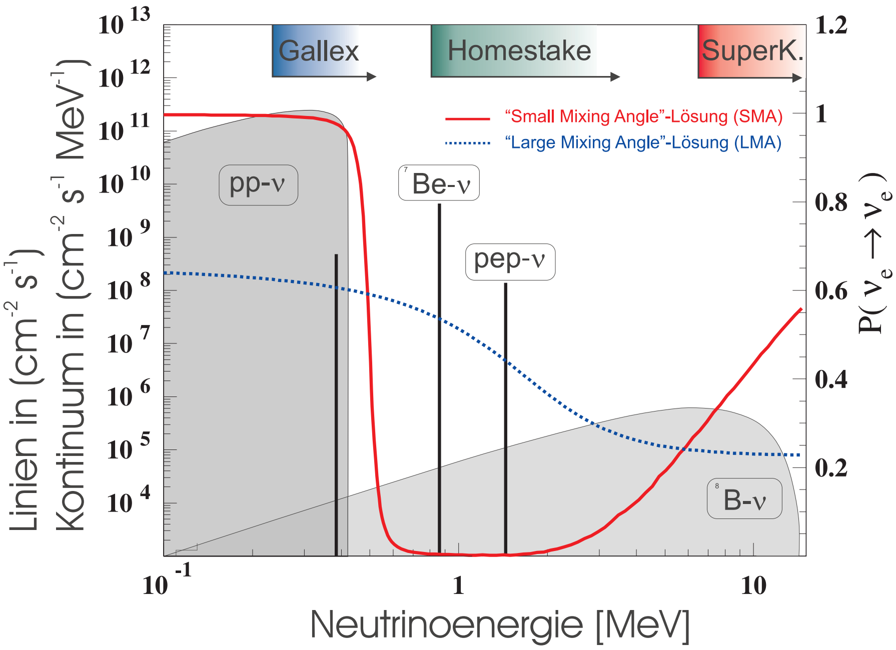

Abbildung 2.2: *Darstellung der einzelnen Neutrinobeiträge zum Spektrum. Gezeigt ist der Einfluss der MSW-Lösungen auf das Flussspektrum der Neutrinos. Oben angedeutet ist zudem die Energieschwelle, ab der die schon vorgestellten Experimente messen. Entnommen aus [Hag99].*

100 t etwa (47 ± 3.3) ^{7}Be-Neutrinos pro Tag [Hen99]. Falls die Elektronneutrinos allerdings

vollständig in Myonneutrinos oszillieren, würde man nur noch eine Rate von etwa 10 Ereignissen pro Tag beobachten.
BOREXINO bietet damit bei einer zeitaufgelösten Messung der ^{7}Be-Neutrinos mit hoher Statistik und Signifikanz die Möglichkeit, über den Nachweis von täglichen und jahreszeitlichen Schwankungen Aussagen bezüglich der Lösungsbereiche der Vakuumoszillationen und der MSW-Lösungen zu machen. In Abbildung 2.2 ist die Unterdrückung des ^{7}Be-Flusses für die MSW-Lösungen „Small Mixing Angle“ und „Large Mixing Angle“ gezeigt.
Zur Abschirmung von Untergrund der kosmischen Strahlung wird der BOREXINO-Detektor im Gran Sasso-Untergrundlabor in einer Abschirmtiefe von 3600 mwe installiert. Der Detektor besteht aus 300 t hochreinem Flüssigszintillator welcher sich im Inneren einer Nylonkugel („inner vessel“) befindet, die durch Nylonfäden in Position gehalten wird. Die Nylonkugel selbst befindet sich in einer Stahlkugel (Radius 7 m), an deren Innenseite 2000 Photovervielfacher angebracht sind, die das Szintillationslicht auffangen. Durch Konzentratoren, die die einfallenden Lichtstrahlen durch Reflexion auf die Photokathode lenken, wird die Lichtausbeute erhöht. Durch eine Ortsrekonstruktion des Ereignisses aufgrund der Laufzeitunterschiede des Szintillationslichts werden nur die innersten 100 t des Szintillators als aktives Volumen („fiducial volume“) für die Messungen definiert. Die äußeren 200 t dienen als Abschirmvolumen. Der Raum zwischen dem Nylonballon und der Stahlkugel ist mit einer Abschirmflüssigkeit gefüllt, die aus Auftriebsgründen der Dichte der Szintillatorflüssigkeit angepasst sein muss. Um die Konvektion von Radon durch die Zwischenschicht der Abschirmflüssigkeit zu unterbinden, wird eine weitere Nylonhülle als Konvektionssperre eingebaut.
Die gesamte Stahlkugel befindet sich in einem Stahltank von 18 m Höhe und 18 m Durchmesser, der mit hochreinem, deionisiertem Wasser gefüllt ist, um γ-Strahlung von der äußeren Tankwand oder aus dem umgebenden Gestein abzuschirmen. Da trotz der massiven Abschirmung des Gran Sasso-Massivs immer noch ein Myonenfluss von 1.16 $\mathrm{m}^{-2}\mathrm{h}^{-1}$ existiert, der zu einer Ereignisrate von einigen hundert Ereignissen pro Tag im relevanten Energiebereich führen würde, wird der Detektor zusätzlich mit einem Myonveto ausgestattet. Dazu werden auf der Außenseite der Stahlkugel 200 Photovervielfacher installiert, die nach außen zeigen und das beim Durchqueren der Myonen in der Wasserabschirmung erzeugte Cherenkovlicht detektieren. Zudem verursachen Myonen beim Durchqueren der inneren Abschirmflüssigkeit und des Szintillators unterschiedliche Zeitcharakteristika in den beobachtenden Photovervielfachern mit und ohne Konzentratoren. Diese Ereignisse können durch Software von den eigentlichen Neutrinoereignissen diskriminiert werden. Dadurch lässt sich dieser Untergrundbeitrag auf weniger als ein Ereignis pro Tag reduzieren.

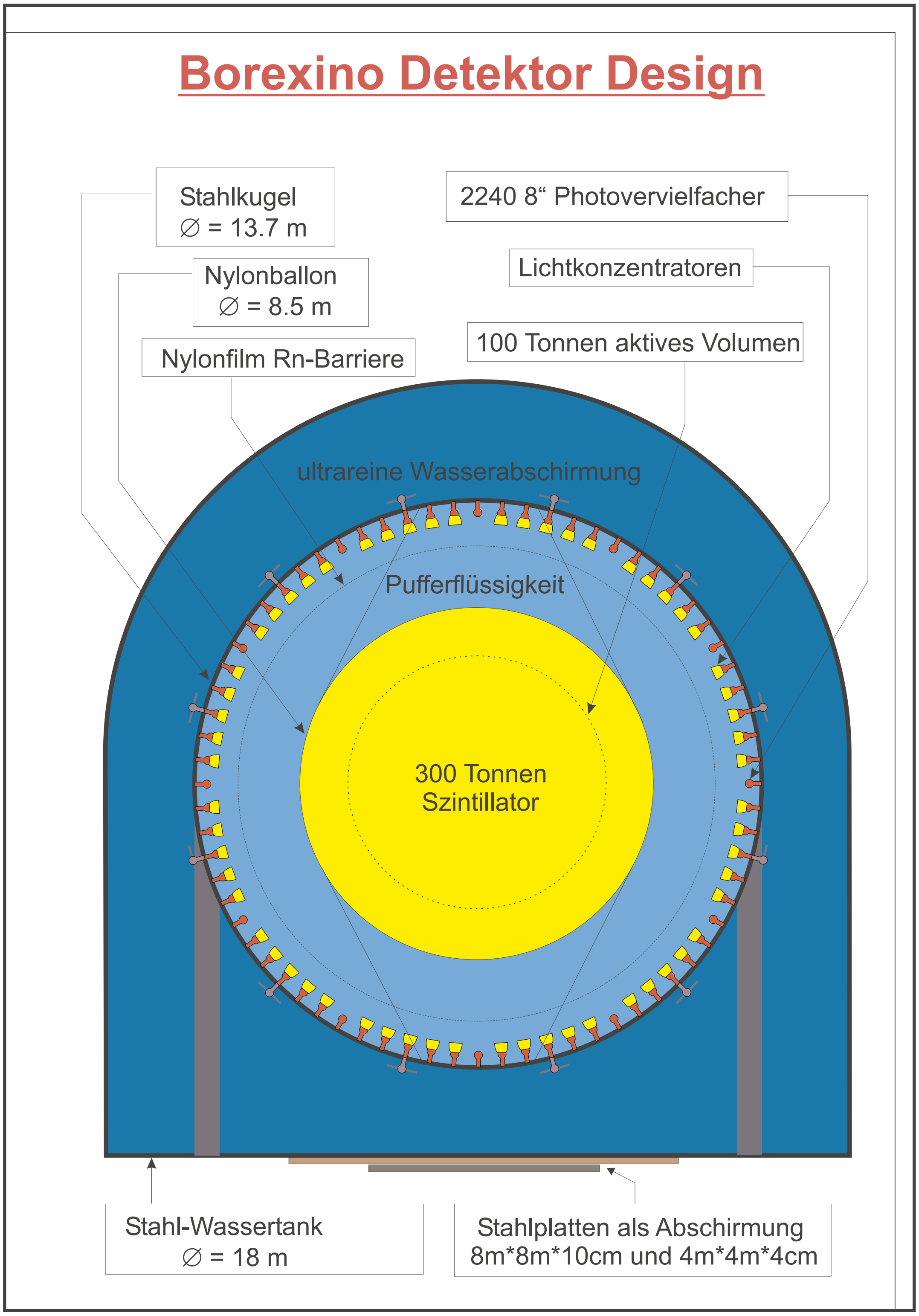

Abbildung 2.3: *Schematische Darstellung des BOREXINO-Detektors. Entnommen aus [Hag99].*

2.2 Untergrund in BOREXINO

In ihrer Signatur lässt sich die νe-Streuung allerdings nicht von Ereignissen unterscheiden, die aus β^--Zerfällen oder durch γ-Strahlung induzierten Photo-oder Comptonereignissen stammen. Die α-Zerfälle im Szintillator können teilweise über ihre unterschiedliche Pulsform diskriminiert werden [Nef96]. Dadurch ergeben sich restriktive Forderungen an die Reinheit der Detektorkomponenten und die Abschirmung gegen externen Untergrund. Auf die erforderlichen Reinheiten wird in Abschnitt 2.2.4 eingegangen.

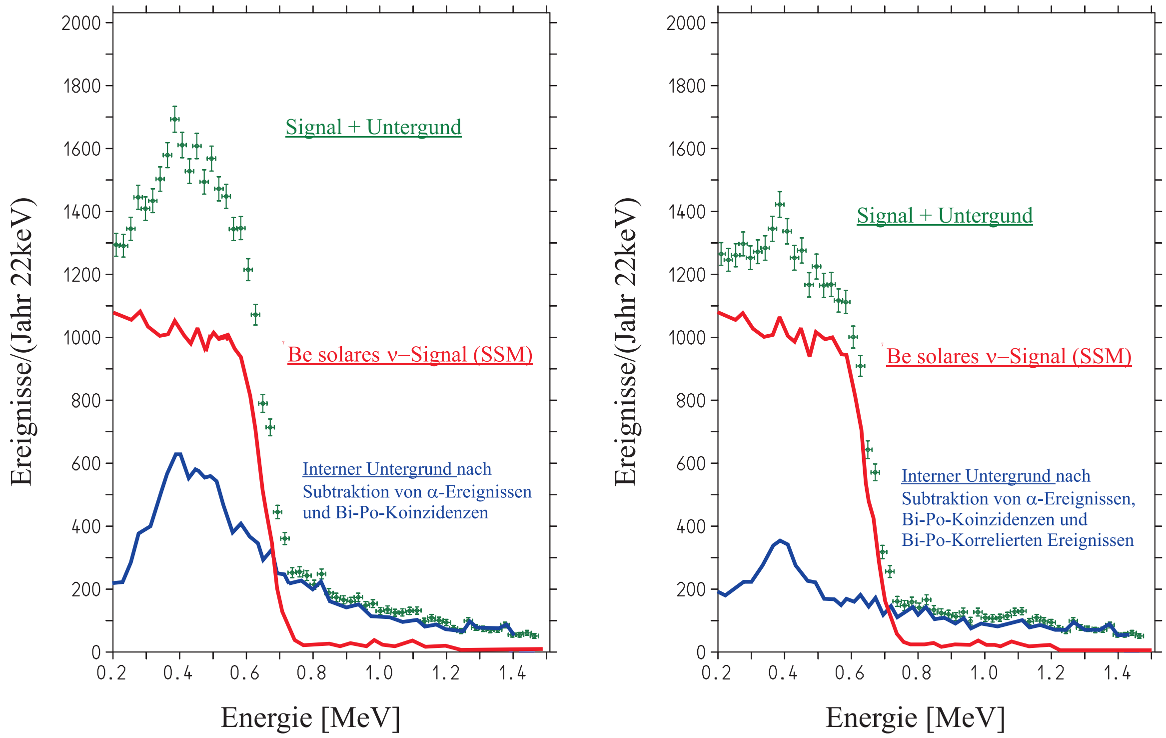

Abbildung 2.4: *Berechneter interner Untergrund und Neutrinosignal des BOREXINO-Detektors. Dabei wurde eine Konzentration für Uran und Thorium von 10^{-16} und für Kalium von 10^{-14} zugrundegelegt [Nef96].*

2.2.1 Natürliche Radionuklide

Eine Gruppe für die Untergrundbetrachtungen in BOREXINO bilden natürliche Radionuklide, die als Verunreinigungen im Szintillator und anderen Detektorkomponenten, sowie der Umgebung des Detektors vorkommen. Hierzu zählen die Radionuklide ^{40}K, ^{87}Rb, ^{113}Cd, ^{115}In, ^{118}La und ^{176}Lu, sowie Uran und Thorium mit ihren Zerfallsreihen. Die Actinium-Zerfallsreihe mit dem Mutternuklid ^{235}U spielt aufgrund des mit 0,76 % geringen natürlichen Isotopenanteils und den Zerfallscharakteristika der Nuklide in der Kette nur eine geringe Rolle. Im Szintillator selbst können α-, β- und γ-Strahlung zum Untergrund im Neutrinofenster beitragen, während von äußeren Komponenten nur hochenergetische γ-Quanten, die bis in den Szintillator gelangen, von Bedeutung sind. In dieser Hinsicht sind die natürlichen Zerfallsreihen besonders kritisch, da sich am Ende der Thorium-Reihe mit dem Nuklid ^{208}Tl ein Tochterkern mit einem 2,614 MeV-γ-Quant und in der Uran-Reihe mit dem Nuklid ^{214}Bi mit einem 2,204 MeV-γ-Quant hochenergetische γ-Emitter befinden. Besondere Beachtung verdienen in beiden Zerfallsreihen auch die beiden Radionuklide ^{222}Rn und ^{220}Rn. Als Edelgase zeigen diese Nuklide die Tendenz, von Materialien, die Radium enthalten, emaniert zu werden. Während die Wahrscheinlichkeit für ^{220}Rn zu emanieren aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 55,6 s relativ gering ist, hat ^{222}Rn aus der Uran-Reihe mit einer Halbwertszeit von 3,825 Tagen eine ausreichend hohe Wahrscheinlichkeit, die z. B. durch Emanation aus den Wänden im Gran Sasso Tunnel zu einer Aktivität in den Experimentierhallen von 300 Bq/m^3 führt [Bor95].

2.2.2 Kosmogene Radionuklide

Eine weitere Untergrundquelle stellen radioaktive Nuklide dar, die durch Reaktionen mit der kosmischen Strahlung entstanden sind. Dazu sollen auch myonproduzierte Nuklide gezählt werden.
Für den organischen Szintillator sind vor allem ^{14}C und ^{7}Be kritisch, besonders da Kohlenstoff einer der Hauptbestandteile ist. ^{14}C entsteht in der Atmosphäre über den Prozess ^{14}N(n,p)^{14}C. Obwohl der Endpunkt des β^--Zerfalles mit 156.5 keV unterhalb des Neutrinofensters liegt, sollte aufgrund der begrenzten Energie- und Zeitauflösung bezüglich pile-up Effekten ein ^{14}C/^{12}C-Verhältnis von 10^{-18} (entspricht einer ^{14}C-Aktivität in 300 t Szintillator von ca. 100 Bq) nicht überschritten werden. Eine chemische Separation von ^{12}C ist nicht möglich. Mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahren dürfte die Konzentration in frisch gefördertem Rohöl, welches die Ausgangsbasis zur Herstellung der verschiedenen organischen Materialien ist, jedoch wesentlich geringer sein.
^{7}Be entsteht über die Reaktionen ^{12}C(n,αnn)^{7}Be und ^{12}C(p,npα)^{7}Be. Neutronen und Protonen stammen an der Erdoberfläche überwiegend aus der hadronischen Komponente der kosmischen Strahlung, während sie im Untergrundlabor des Gran Sasso über Myonenreaktionen gebildet werden. ^{7}Be zerfällt mit einer Halbwertszeit von 53.3 Tagen durch Elektroneinfang und emittiert dabei in 10 % der Zerfälle ein 478 keV-γ. Durch Lagerung des Szintillators im Gran Sasso-Untergrundlabor lässt sich die Aktivität auf einen verträglichen Wert von weniger als ein Ereignis pro Tag reduzieren.
Natürlich muss man für das Experiment auch myoninduzierte Radionuklide im Szintillator berücksichtigen, deren Zerfälle sich aufgrund der langen Halbwertszeit nicht mehr durch das Myonveto unterdrücken lassen. Dazu sind im wesentlichen ^{7}Be ($T_{1/2}$ = 53.3 d) und ^{11}C ($T_{1/2}$ = 20.38 m) von Bedeutung für BOREXINO. In 100 t Szintillator werden durch Myonen täglich 4.2 $\pm$ 0.5 ^{7}Be-Kerne und 16.98 $\pm$ 1.64 ^{11}C-Kerne gebildet. 10 % der Zerfälle von ^{7}Be werden in dem Bereich von 250 keV bis 800 keV gemessen. Die über β^+-Emission zerfallenden ^{11}C-Kerne sind in erster Linie für den Energiebereich der pep-Neutrinos von 800 bis 1400 keV von Belang. Auf diesen Bereich entfallen 8.59 $\pm$ 0.83 Ereignisse täglich (Daten entnommen von [Hag99a]).

2.2.3 Anthropogene Radionuklide

Zuletzt soll noch auf anthropogene Nuklide, wie ^{137}Cs, ^{60}Co und ^{85}Kr eingegangen werden. ^{85}Kr gelangt als Spaltprodukt aus Kernkraftwerken und Aufbereitungsanlagen in die Atmosphäre. Wegen des Q-Wertes seines β^--Zerfalls von 687 keV kann es durch Verunreinigung des Szintillators bei Luftkontakt desselben, z. B. bei der Herstellung oder dem Transport, ein Signal im Neutrinofenster erzeugen. Als Edelgas kann es jedoch mit Stickstoff aus dem Flüssigszintillator ausgetrieben werden, wie in der „Counting Test Facility“ (CTF) gezeigt werden konnte.
Cs und Co spielen wegen des Vorhandenseins in Werkstoffen (wie Rohre), die in Kontakt mit dem Szintillator kommen, eine Rolle. ^{137}Cs zerfällt in 93.5 % über einen metastabilen Zustand von ^{137}Ba unter Emission eines 661.7 keV γ-Quants, welches genau im Neutrinofenster liegt. ^{60}Co ist in unterschiedlicher Konzentration in Stahl enthalten und kann damit durch Verunreinigung der Stahlkugel mit den beim Zerfall emittierten hochenergetischen γ's mit Energien von 1333.5 keV und 1172.3 keV zum Untergrund beitragen, sofern sich diese nicht vollständig in der Abschirmflüssigkeit absorbieren lassen.

2.2.4 Reinheit der Detektorkomponenten in BOREXINO

Der BOREXINO-Detektor ist so geplant, dass die Reinheitsanforderungen von aussen nach innen zunehmen. Dementsprechend gelten die restriktivsten Grenzen für den

- **Flüssigszintillator**. In Tabelle 2.1 sind Konzentrationsgrenzen der verschiedenen Nuklide angegeben unter der Annahme, dass innerhalb eines Detektionsvolumen von 100 t nur ein Ereignis täglich aus dem Zerfalls des entsprechenden Nuklid stammen soll. Zusätzlich wurde eine α-Identifikationswahrscheinlichkeit von 95 % angenommen und berücksichtigt, dass bei erkannter Bi-Po-Koinzidenz (siehe Kapitel 2.3) die mit diesen Nukliden im Gleichgewicht stehenden Zerfälle statistisch subtrahiert werden können.

Element	Konzentration [g/g]
U	$2{,}27 \cdot 10^{-17}$
Th	$5{,}77 \cdot 10^{-16}$
Lu	$3{,}68 \cdot 10^{-15}$
K	$7{,}75 \cdot 10^{-15}$
Rb	$3{,}23 \cdot 10^{-14}$
La	$1{,}17 \cdot 10^{-12}$
In	$2{,}37 \cdot 10^{-12}$
Cd	$2{,}79 \cdot 10^{-9}$

Tabelle 2.1: *Grenzkonzentrationen verschiedener Radionuklide für den verwendeten Flüssigszintillator. [Nef96] entnommen.*

Die Grenzen für Kalium sind zwar nicht so restriktiv wie die für Uran und Thorium, jedoch ist Kalium in der Umwelt wesentlich häufiger und damit die Verunreinigungsgefahr größer. Die nächstrestriktiven Grenzen ergeben sich für

- **Nylon**. Nimmt man für den gesamten Nylonballon mit einem Radius von 4,25 m eine Masse von 100 kg an, so ergeben sich für Uran und Thorium Grenzwerte von $1 \cdot 10^{-10}$ g/g. Wird noch die mögliche Emanation von Radon der Zerfallsreihen berücksichtigt, so kommt man auf die Grenzwerte von Tabelle 2.2. Dabei ist der tolerierbare Gehalt an Radon stark von der Diffusionskonstanten des Nylons abängig. Diese ändert sich bei Nylon, das längere Zeit mit Wasser in Kontakt ist und dadurch aufgeweicht wird, um bis zu einem Faktor 100 [Rau99].
- Die **restlichen Detektorkomponenten** sind insofern für radioaktive Verunreinigungen von Bedeutung, als hochenergetische γ's die Abschirmung durchdringen und im aktiven Volumen wechselwirken können.

In Tabelle 2.2 sind die Grenzwerte in g/g für die Detektorkomponenten außerhalb des Szintillators angegeben, allerdings nur für die Elemente Uran, Thorium und Kalium. Für diese Elemente gelten die restriktivsten Grenzen. Die Grenzen für die anderen natürlichen Radionuklide wie La, Lu, Rb, In und Cd sind weniger restriktiv, da sie keine hohen γ-Quanten emittieren, eine niedrige Endpunktenergie des β-Zerfalls oder nur einen geringen Isotopenanteil aufweisen und mit kleiner Häufigkeit in der Erdkruste vertreten sind.

Komponente	Uran [g/g]	Thorium [g/g]	Kalium [g/g]
Nylon	$1 \cdot 10^{-12}$	$1 \cdot 10^{-11}$	$1 \cdot 10^{-6}$
Abschirmflüssigkeit	$1 \cdot 10^{-13}$	$1 \cdot 10^{-13}$	$1 \cdot 10^{-10}$
2000 Konzentratoren aus Aluminium	$6.7 \cdot 10^{-9}$	$5.9 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-6}$
2240 Photomultiplier	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-5}$
Stahlkugel	$2 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-5}$

Tabelle 2.2: *Grenzwerte für die Verunreinigung verschiedener Detektorkomponenten mit radioaktiven Nukliden.*

2.3 Ergebnisse der CTF1 und Status der CTF2

Um zu untersuchen, ob es möglich ist die erforderlichen Reinheiten für ein solches Experiment zu erreichen, wurde eine verkleinerte Version des geplanten BOREXINO-Experimentes, ein Testdetektor, die sogenannte „Counting Test Facility“ (CTF), gebaut.
Dieser bestand aus einer Nylonkugel von 2 m Durchmesser, in der sich ca. 5 t Flüssigszintillator befanden, die von 100 Photovervielfachern beobachtet wurden. Die Photovervielfacher waren mit Lichtkonzentratoren zur Erhöhung der Lichtausbeute versehen und an einem Stahlgerüst montiert. Durch das zeitlich unterschiedliche Ansprechverhalten der einzelnen Photovervielfacher konnte eine dreidimensionale Ortsauflösung erreicht werden. Zur Abschirmung gegen äußere Strahlung befindet sich die gesamte Anordnung in einem Stahltank von 10 m Höhe und 11 m Durchmesser, der mit 1 kt Reinstwasser gefüllt ist.
Mit der CTF sollte vor allem die Reinheit des verwendeten Flüssigszintillators und die Effizienz verschiedener Reinigungsschritte gemessen werden. Es wurden zwei verschiedene Szintillatorflüssigkeiten untersucht:

1. PC (Pseudocumol, 1,2,4-Trimethylbenzol $C_6H_3(CH_3)_3$) mit PPO (Diphenyl-Oxazol, $C_{15}H_{11}NO$) als Wellenlängenschieber, sowie
2. PXE (Phenyl-ortho-Xylylethan, $C_{16}H_{18}$) mit pTP (para-Terphenyl, $C_{18}H_{14}$) als primärem und bis-MSB (1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol) als sekundärem Wellenlängenschieber.

Diese wurden auf ihre Reinheit bezüglich ihrer Verunreinigungen mit ^{238}U, ^{232}Th und ^{14}C vermessen. Für Uran und Thorium erfolgte die Bestimmung über die Ausnutzung von verzögerten Koinzidenzen in ihren Zerfallsketten. Für die Thorium-Zerfallskette wurde die verzögerte Koinzidenz

$$^{212}Bi \quad \longrightarrow \quad ^{212}Po \quad \stackrel{T_{1/2}=300ns}{\longrightarrow} \quad ^{208}Pb$$

benutzt, für die Uran-Zerfallsreihe die verzögerte Koinzidenz

$$^{214}Bi \quad \longrightarrow \quad ^{214}Po \quad \stackrel{T_{1/2}=162\mu s}{\longrightarrow} \quad ^{210}Pb$$

verwendet. Nimmt man an, dass sich beide Zerfallsketten im Gleichgewicht befinden, so lassen sich aus den gemessenen Aktivitäten die Verunreinigungskonzentrationen der jeweiligen Mutternuklide berechnen. Bei der Urankette muss man noch die Bi-Po-Aktivität durch Verunreinigung mit Radon nach einem Luftkontakt berücksichtigen. Diese klingt jedoch mit einer Halbwertszeit von 3.83 Tagen ab, während die vom Uran herrührende Aktivität konstant bleibt. ^{14}C zerfällt über einen β^--Zerfall mit einer Endpunktenergie von 156 keV. Durch einen Fit an die Form des gemessenen Spektrums im Energiebereich zwischen 50 keV und 100 keV wurde der Gehalt an ^{14}C bestimmt.
In Tabelle 2.3 sind die Ergebnisse der Messungen für beide Szintillatoren gezeigt. Mit der CTF konnten damit erstmals Szintillatoren auf einem Reinheitsniveau, wie es für BOREXINO erforderlich ist, gemessen werden.

	PC-Flüssigszintillator	PXE-Flüssigszintillator
Uran [g/g]	$(3.5 \pm 1.3) \cdot 10^{-16}$	$(1.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-15}$
Thorium [g/g]	$< 3.6 \cdot 10^{-16}$	$(2.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-15}$
$^{14}C/^{12}C$	$(1.94 \pm 0.09) \cdot 10^{-18}$	$(9.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-18}$

Tabelle 2.3: *Konzentrationen radioaktiver Spurenelemente für die in der CTF gemessenen Flüssigszintillatoren. Für Uran und Thorium wurde dabei Zerfallsgleichgewicht in den jeweiligen Zerfallsreihen zugrundegelegt.*

Die Verwendung der Szintillatorflüssigkeit PXE[1] in BOREXINO würde mehrere Vorteile bieten: Durch die größere Dichte (PXE: 0.98 g/cm^3, PC: 0.89 g/cm^3) erhöht sich in dem

[1] Für PXE konnten nicht alle Reinigungsschritte mit der CTF getestet werden, da diese zu einer Revision außer Betrieb genommen wurde. Mit den Einrichtungen der CTF wurden allerdings weitere Reinigungsschritte durchgeführt und mit Neutronenaktivierungsanalyse vermessen. Damit konnte gezeigt werden, dass mit verschiedenen Reinigungsschritten eine Reinheit für Uran von $< 1 \cdot 10^{-17}$ g/g und für Thorium von $< 2 \cdot 10^{-16}$ g/g erreicht werden kann. Für eine detailliertere Beschreibung wird auf [Hen99] verwiesen.

verwendeten Volumen die Detektormasse, was sich günstig auf die Nachweiswahrscheinlichkeit der ^{7}Be-Neutrinos auswirkt. Die Dichte von PXE erlaubt zudem die Verwendung von Reinstwasser als Abschirmflüssigkeit in der Stahlkugel, was die Handhabung des Experimentes vereinfachen würde. Bei der Verwendung von PC, welches geringfügig bessere optische Eigenschaften aufweist, müsste man aus Auftriebsgründen als Abschirmflüssigkeit in der inneren Stahlkugel ebenfalls PC verwenden.

Neben den Reinheiten der Szintillatorflüssigkeiten konnten auch optische Eigenschaften und Diskriminationstechniken zur Identifikation von α- und β-Ereignissen studiert werden. Der Untergrund in Abbildung 2.4 wurde mit den aus der CTF gewonnenen Daten unter realistischen Annahmen der radioaktiven Kontamination und Berücksichtigung der optischen Eigenschaften simuliert. Zudem wurde die Notwendigkeit eines aktiven Myonvetos trotz der hervorragenden Abschirmung durch das Gran Sasso-Massiv erkannt. Nächstes Jahr im Februar wird die CTF in einer verbesserten Version als CTF II wiederum für Messungen zur Verfügung stehen.

Da die Messergebnisse der CTF I für die beiden gemessenen Szintillatorflüssigkeiten Werte ergab, die nicht die notwendigen Anforderungen erfüllten, wird es ein Hauptziel der CTF II sein beide Flüssigkeiten nach verschiedenen Reinigungsschritten erneut auf intrinsische Reinheit zu vermessen. Vor allem soll diesmal auch der Flüssigszintillator PXE erstmals nach verschiedenen Reinigungsverfahren in der CTF vermessen werden. Darüber hinaus soll die CTF bei Beginn des BOREXINO-Experimentes als Vortank dienen, in dem die Reinheit des Szintillators überprüft wird, bevor sie in den BOREXINO-Detektor eingefüllt wird und danach weiterhin als Ausweichtank zur Verfügung stehen.

Kapitel 3

Untergrundarme γ-Spektroskopie

3.1 Aufbau der HPGe-Detektoren

Zur Untersuchung der Reinheit der verschiedenen Komponenten bezüglich natürlicher radioaktiver Nuklide wurde im Rahmen dieser Arbeit γ-Spektroskopie unter Verwendung untergrundarmer Germanium-Detektoren verwendet. Bei dieser Methode weist man die beim Zerfall der instabilen Nuklide emittierten Photonen nach. Beim Übergang instabiler Nuklide

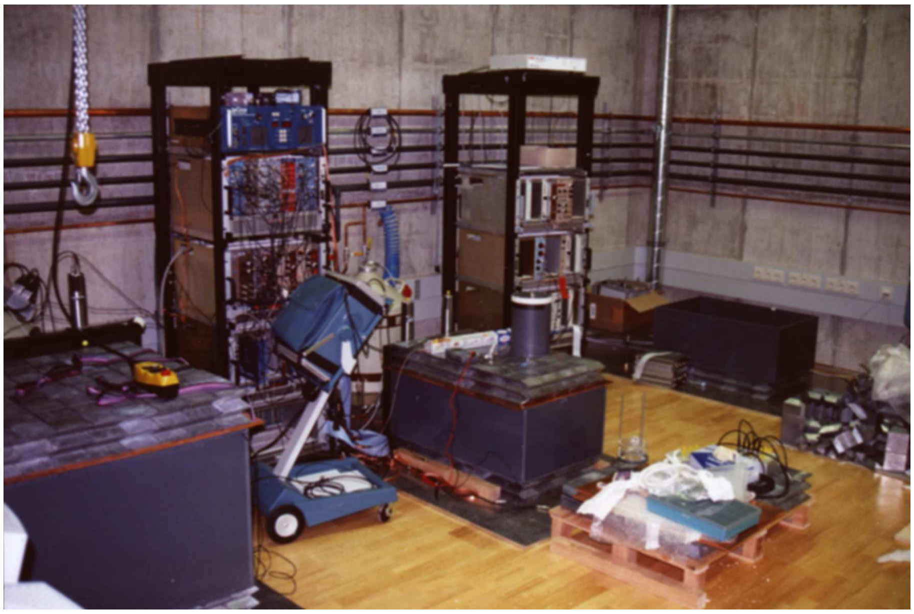

Abbildung 3.1: *Blick in das neu errichtete Untergrundlabor. Zu sehen sind von links nach rechts die Boxen für den großen p-typ Ge-Detektor, für die n-typ Detektoren Loax1 und ganz rechts den Loax2, der bei dieser Aufnahme gerade zur Reparatur war.*

durch α- oder β-Zerfall befinden sich viele Tochterkerne nicht direkt im Grundzustand, sondern können sich in einem angeregten Niveau befinden. Die Abregung in den Grundzustand kann dann über die Entsendung von einem oder mehreren aufeinanderfolgenden γ-Quanten erfolgen, oder durch die Emission von Konversionselektronen. Konversionselektronen, sowie

die ursprünglichen α- oder β-Teilchen werden jedoch sehr effektiv im Quellmedium selbst, dem Probenbehälter oder dem Eintrittsfenster der Germanium-Detektoren abgestoppt, so dass in der hier verwendeten Konfiguration nur die emittierten Photonen zum Nachweis verwendet werden. Die Energie der emittierten Photonen ist für die verschiedenen Radionuklide charakteristisch.
Die Verunreinigungen mit primordialen, kosmogenen und auch anthropogenen Radionukliden misst man zumeist in dem gleichen Energiebereich, in dem auch der intrinsische Untergrund der Detekoren, sowie der umgebenden Materialien liegt. Daher muss man hohe Ansprüche an den Aufbau stellen. Für die Messungen wurden hochauflösende und untergrundarme p-Typ und n-Typ (LoAx) Ge-Detektoren verwendet. Der p-Typ Detektor zeichnet sich aufgrund seines großen aktiven Volumens von 622 cm^3 (Masse des Germanium-Kristalls von 3282 g) durch hohe Effizienz bei hohen und mittleren Energien aus (150 % verglichen mit einem 3"×3" NaI-Kristall in 250 mm Abstand für die ^{60}Co-Linie bei 1332.5 keV). Demgegenüber

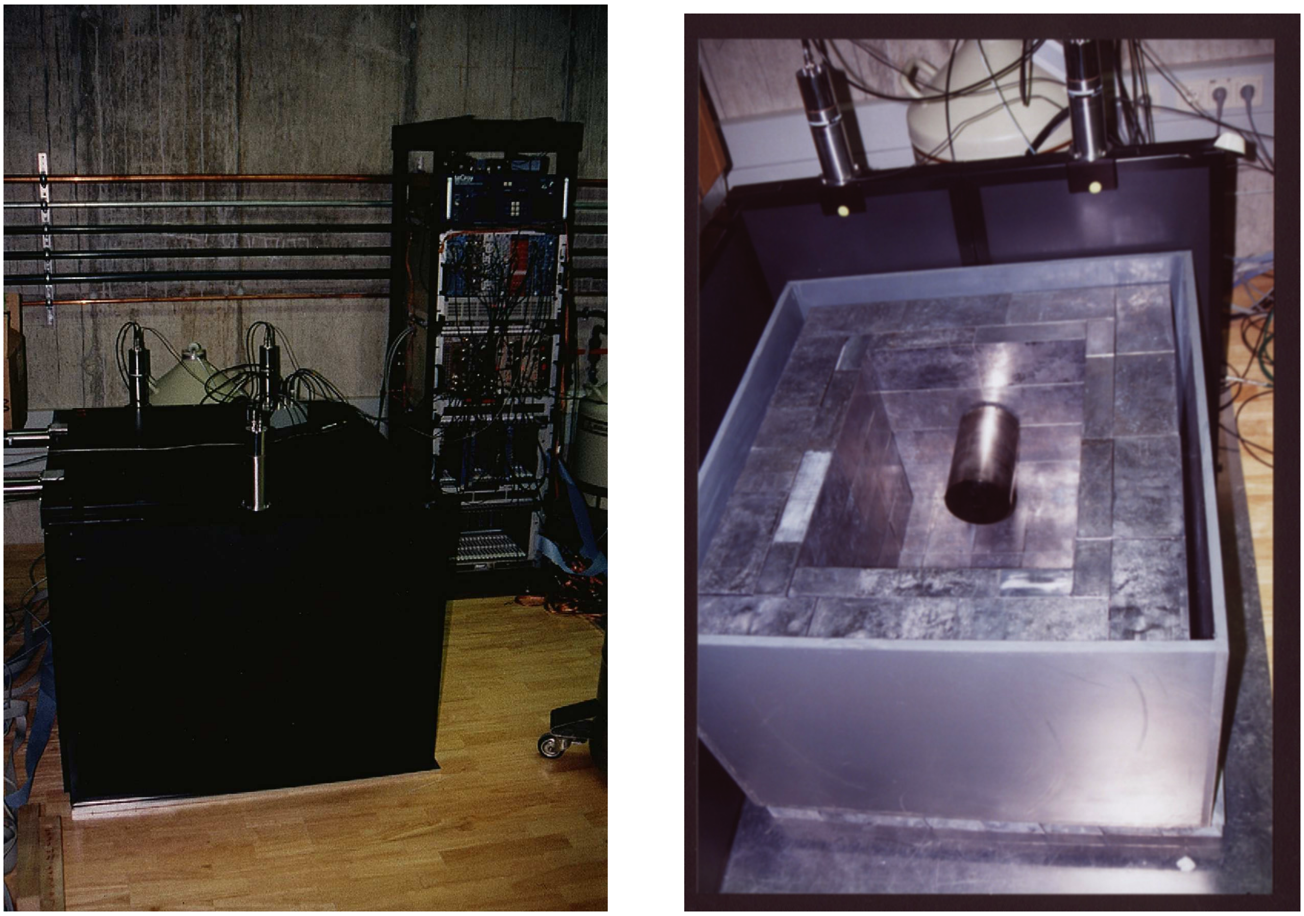

Abbildung 3.2: *Der große p-Typ Ge-Detektor mit dem Myonveto (linkes Bild) und offen (rechtes Bild).*

bieten die beiden LoAx-Detektoren mit wesentlich geringeren aktiven Volumina (113 cm^3 und 118 cm^3) aufgrund ihrer geringeren Totschicht vor allem bei geringeren Energien bis 200 keV höhere Effizienz (siehe Kapitel 6.2).
Die Detektoren sind von einer 150 mm dicken antimongehärteten Bleischicht umgeben. Die

inneren 50 mm der Abschirmung sind dabei aus aktivitätsarmem Blei gestaltet, dessen ^{210}Pb-Konzentration über die Messung der α-Aktivität des Tochterisotops ^{210}Po zu (23.2 ± 2.3) Bq/kg bestimmt wurde [PTB97]. Der gesamte Aufbau befindet sich in einer Kunststoffbox, die mit dem abdampfenden Stickstoff aus den Dewars zur Kühlung der Germaniumkristalle geflutet werden, um so die Radonaktivität der Raumluft aus dem Messbereich zu verdrängen. Darüber hinaus kann man den gesamten Aufbau mit einem Myonveto aus 50 mm dicken Plastikszintillatoren von 5 Seiten, mit Ausnahme der Detektorunterseite, umgeben. Beim Durchgang eines Myons wird für das Datenaufnahmesystem ein Antikoinzidenzfenster von 50 μs Dauer geöffnet. Bei einer Rate von 200 s^{-1} bedeutet dies eine Totzeit für die Datenaufnahme von 1 %. Die Detektionseffizienz der Myonen wurde für den p-Typ Detektor zu 98.8 % und für die Loax-Detektoren zu 96.3 % bestimmt. Alle Messplätze sind zur Abschirmung der Komponenten der kosmischen Strahlung in einem neu geschaffenen Labor mit einer Erdüberdeckung von ca. 5–6 m, was etwa 1500 g/cm^2 (15 mwe) entspricht, errichtet.

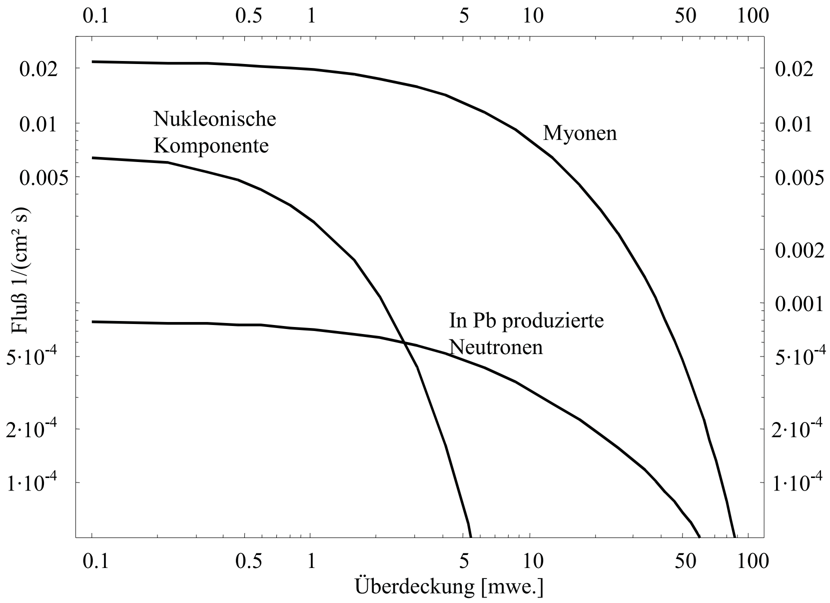

Abbildung 3.3: *Abhängigkeit der nukleonischen Untergrundkomponente und der Myonen aus der kosmischen Strahlung in Ge-Detektoren von der Dicke der Überdeckung. Die Kurve der in Blei produzierten Neutronen gibt die Flussabhängigkeit der durch die ursprüngliche kosmische Strahlung erzeugten sekundären Neutronen an. Aus [Heu96].*

In Abbildung 3.3 ist die Wirksamkeit der Abschirmdicke auf verschiedene Komponenten der Höhenstrahlung gezeigt. Neutronen können in der Abschirmung durch verschiedene Prozesse, wie

- Spallation von Pb durch Protonen und schwerere Nuklide der hadronischen Komponente,
- Photoproduktion aus Pb durch Photonen und Elektronen, oder
- Einfang von Myonen

erzeugt werden. Bei einer Abschirmtiefe von ca. 15 mwe wird die hadronische Komponente der Höhenstrahlung fast komplett unterdrückt, sodass für die Erzeugung der Neutronen letzterer Punkt entscheidend wird.
Für den Untergrund im Labor spielen demnach nur noch Myonen und in Blei durch Myonen produzierte Neutronen eine wesentliche Rolle. In [NCR87] wird ein saisonal schwankender Fluss von 190 $s^{-1}m^{-2}$ für Myonen angegeben, der bei dieser Tiefe um einen Faktor 2-3 reduziert wird. Die produzierte Neutronenkomponente trägt vor allem über (n,n')-, bzw. (n,γ)-Reaktionen zum Untergrund bei. In Abbildung 3.3 sieht man deutlich, dass bei aktiver Unterdrückung der Myonen die Untergrundkomponente durch Neutronen dominiert.
In Abbildung 3.4 und 3.5 sind die Untergrundspektren des großen p-typ Ge-Detektors und des n-typ Detektors Loax1 dargestellt. Bei den Loax-Detektoren erfolgte die Datenaufnahme mit einer neuen Analysesoftware. Für eine detaillierte Beschreibung der Untergrundspektren wird auf [Hen99] verwiesen.

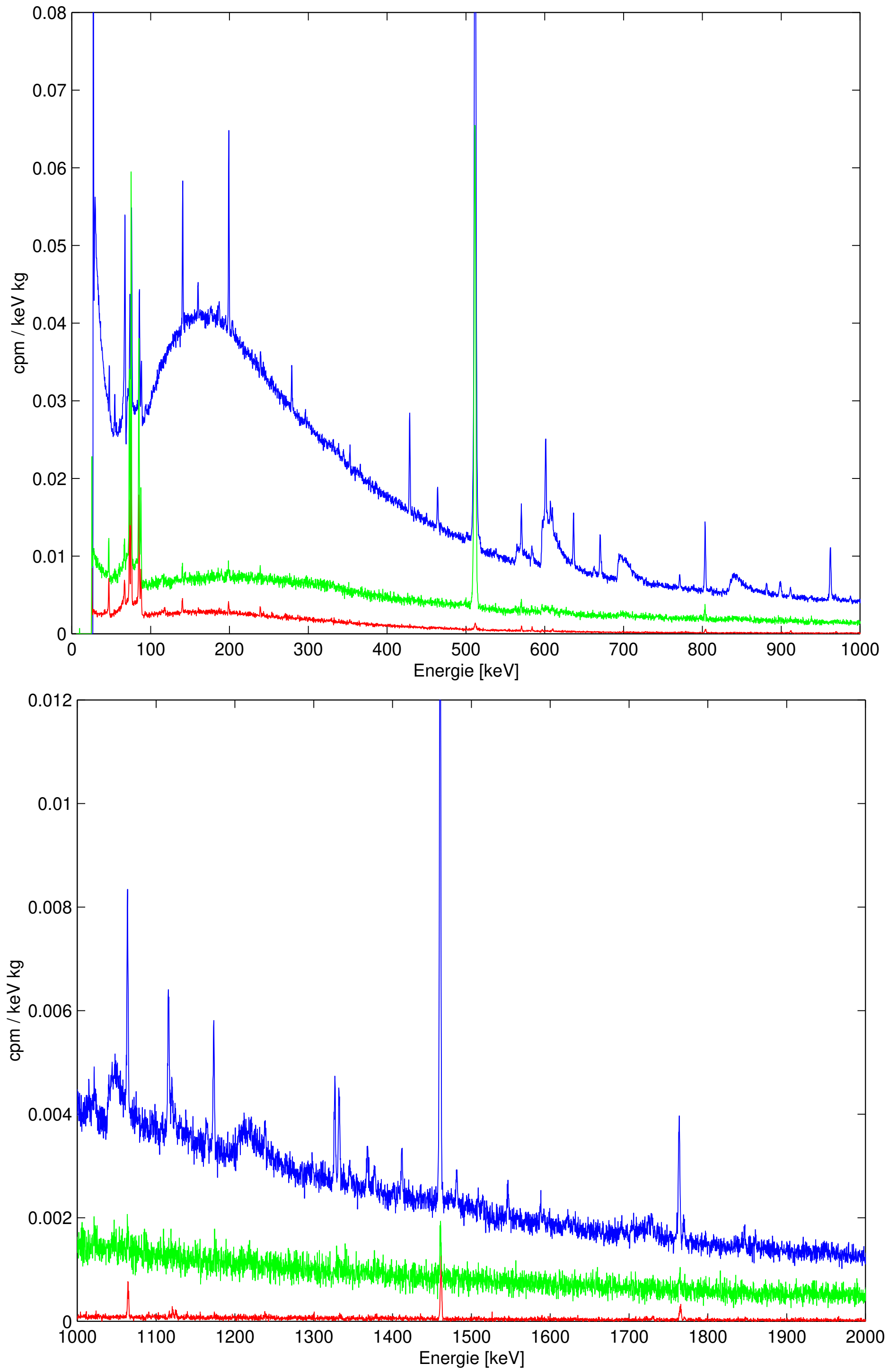

Abbildung 3.4: *Untergrundspektren des großen p-Typ Germaniumdetektors 150 % relativer Effizienz nach 20 Tagen Messzeit. Die obere Kurve zeigt den Untergrund im alten Labor, die mittlere den im neuen Untergrundlabor mit verbesserter Abschirmung und die untere mit zusätzlichem aktivem Myonveto.*

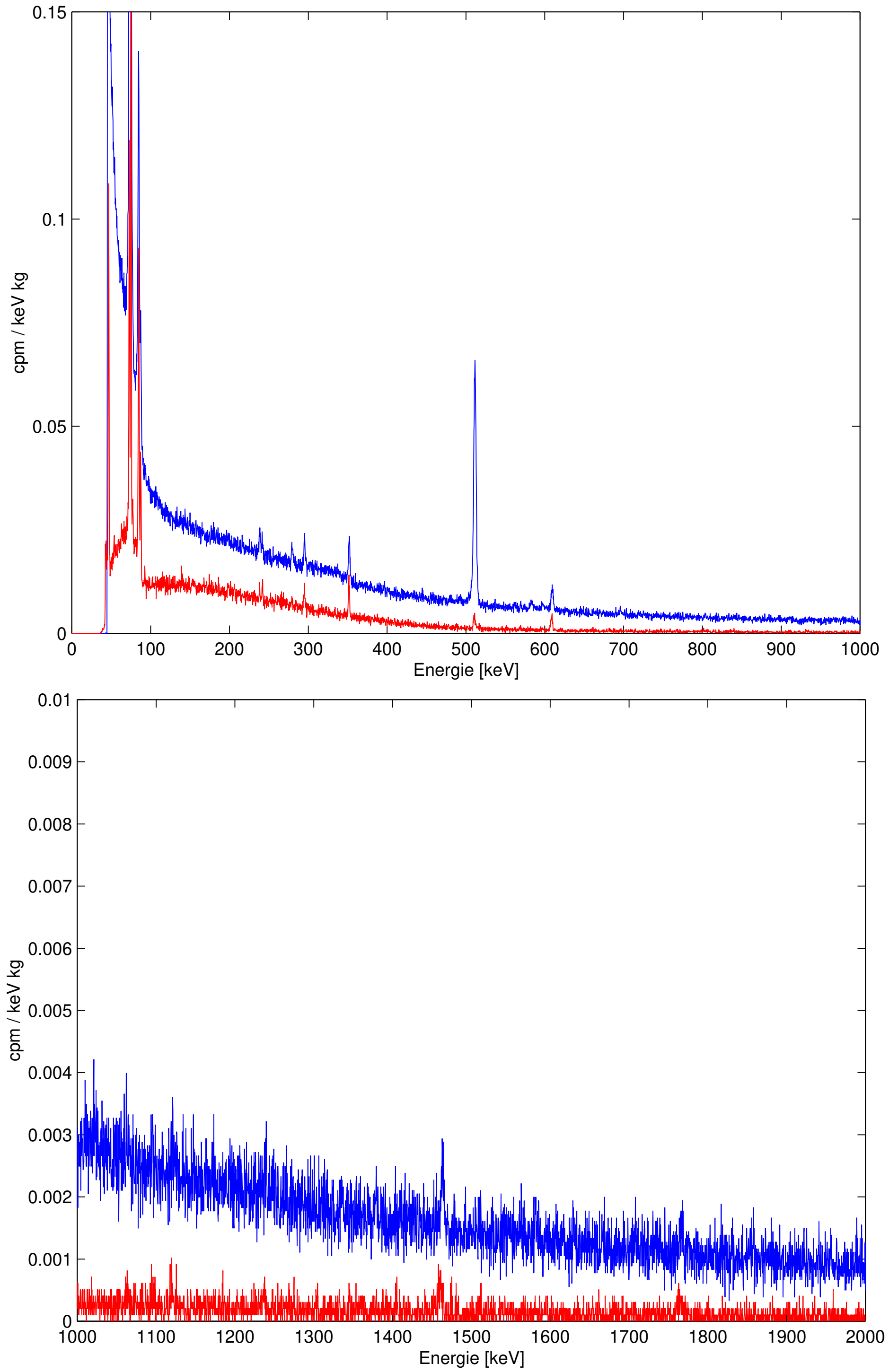

Abbildung 3.5: *Untergrundspektren des n-Typ Germaniumdetektors Loax1 nach 20 Tagen Messzeit. Die obere Kurve zeigt den Untergrund im neuen Untergrundlabor mit verbesserter Abschirmung und die untere mit zusätzlichem aktivem Myonveto.*

3.2 Prinzip der γ-Spektroskopie-Analyse

Die aufgenommenen Spektren wurden mit einem Analyseprogramm oder manuell nach den Linien „angefittet“ und die gefundenen Linien dann den zugehörigen Linien der radioaktiven Nuklide zugeordnet.
Für die einzelnen Nuklide lässt sich dann deren Aktivität aus der Anzahl der Zerfälle in der Linie berechnen:

$$A = \frac{Zerfälle}{t_m} \cdot \frac{1}{\epsilon \cdot \omega} \tag{3.1}$$

wobei t_m die Messzeit der Probe, ϵ die Detektoreffizienz und ω die Übergangswahrscheinlichkeit der γ-Linie bedeuten. Dabei ist jedoch zu berücksichtigen, dass man die Zahl der Zerfälle in der Linie, die dem Untergrund der Umgebungsaktivität und des Detektors selber zuzurechnen sind und im gleichen Energiebereich registriert werden, abzuziehen hat, was in jedem Fall die statistische Unsicherheit der Messung erhöht.
Mit der berechneten Aktivität A kann man dann die Masse m des Nuklids berechnen.

$$\begin{aligned} m &= A \cdot \frac{1}{\lambda} \cdot A_r u \\ &= A \cdot \frac{T_{1/2}}{ln(2)} \cdot A_r u \end{aligned} \tag{3.2}$$

Dabei bezeichnet A_r die relative Atommasse des betreffenden Nuklids und u die atomare Masseneinheit. Teilt man die ermittelte Masse noch durch die gemessene Probenmasse, so erhält man den Anteil des Nuklids in g/g.

$$c = \frac{m}{m_{Probe}} \tag{3.3}$$

Bei Zerfallsreihen kann man im Falle eines Zerfallsgleichgewichtes die Aktivitäten von Tochter- und Mutternuklid gleichsetzen und somit die Konzentration des Mutternuklids berechnen. Die Annahme, dass Tochter- und Mutternuklid im Zerfallsgleichgewicht stehen, ist dann gerechtfertigt, wenn die Halbwertszeit des Mutternuklids wesentlich größer ist als die des Tochternuklids. Im Falle eines sehr langlebigen Mutternuklids (wie die Mutternuklide der drei angesprochenen Zerfallsreihen) bleibt die Aktivität der Muttersubstanz während der Messzeit konstant, sodass eine konstante Produktion des Tochternuklids vorliegt und sich das Gleichgewicht mit der Zeitkonstante des Tochternuklids nach einem Bruch, d. h. einer selektiven An- oder Abreicherung eines Nuklids in der Zerfallsreihe, wiedereinstellt [Sto96].
Wenn man die Thorium- und die Uranzerfallsketten genauer betrachtet (Abbildungen 3.6 und 3.7 auf der nächsten Seite), stellt man fest, dass in der Thoriumkette die Nuklide vom Th^{232} bis zum Ac^{228}, sowie die Nuklide vom Th^{228} bis zum Pb^{208} im Gleichgewicht stehen, und in der Urankette die Nuklide vom U^{238} bis zum Pa^{234}, als auch die Nuklide vom U^{234} bis zum Bi^{210}. Dieses Gleichgewicht gilt so lange wie in der Kette kein Bruch des Gleichgewichts, z. B. durch Entweichen von Radon oder durch selektive Abtrennung eines anderen Elementes, entsteht. Durch γ-Spektroskopie lassen sich die Gleichgewichtsaktivitäten der jeweiligen Mutternuklide der im Gleichgewicht stehenden Teilketten für die Thorium-Reihe durch Messung der Aktivitäten von ^{232}Th und ^{228}Ac, bzw. von ^{212}Pb und ^{208}Tl angeben. Bei der Uran-Reihe ist man auf die Aktivitäten der Nuklide ^{234}Th und ^{234}Pa, bzw. ^{226}Ra, ^{214}Pb

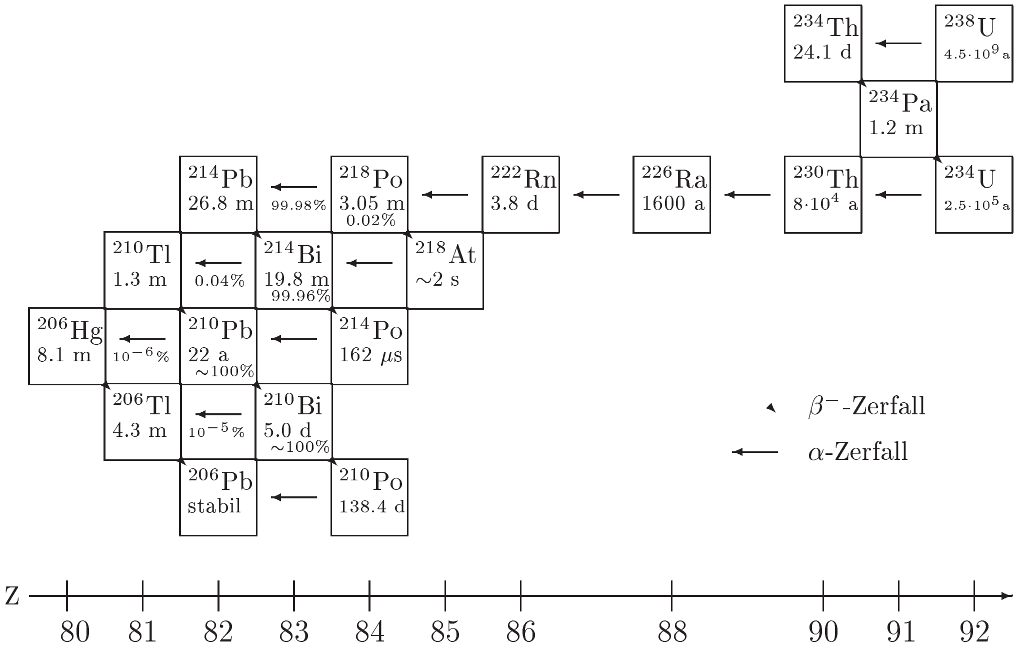

Abbildung 3.6: *Uran-Zerfallsreihe. Unter dem Nuklid steht die Halbwertszeit und in der Leiste unterhalb der Zerfallsreihe ist die Ordungszahl aufgetragen.*

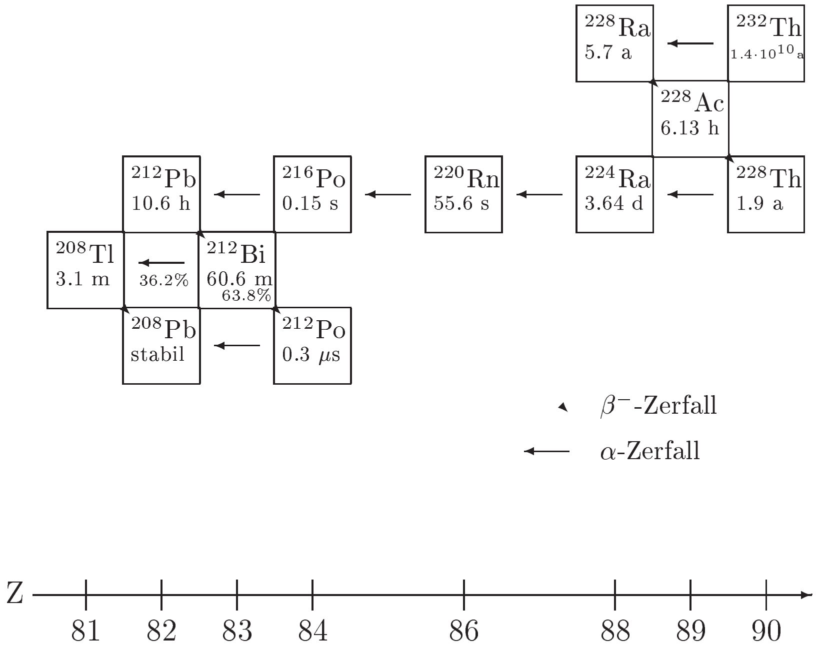

Abbildung 3.7: *Thorium-Zerfallsreihe. Unter dem Nuklid steht die Halbwertszeit und in der Leiste unterhalb der Zerfallsreihe ist die Ordungszahl aufgetragen.*

und ^{214}Bi sensitiv. Im Anhang sind die wichtigsten γ-Linien der drei natürlichen Zerfallsreihen aufgelistet.

3.3 Fehler und Nachweisgrenzen

Systematische Fehler

Wie an Formel 3.3 zu sehen ist, gehen verschiedene Parameter in die Konzentrationsbestimmung ein, die mit systematischen Fehlern behaftet sind. Dabei können die Fehler der Messzeit, der Halbwertszeiten der Nuklide, der Übergangswahrscheinlichkeiten und der Probenmasse als kleiner 1 % angeben werden. Der Hauptbeitrag der systematischen Unsicherheit stammt aus der Detektoreffizienz. Bei den simulierten Effizienzen der Aluminiumproben wird in Kapitel 6.3 genauer auf den systematischen Fehler eingegangen, bei den anderen mit γ-Spektroskopie durchgeführten Analysen beträgt der Fehler der Effizienz 5 %.

Statistische Unsicherheiten

Sowohl der Untergrund als auch das gemessene Signal unterliegt statistischen Schwankungen. Daher besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit α, eine Schwankung im Untergrund irrtümlich als Signal zu deuten, oder umgekehrt eine Wahrscheinlickeit β, ein Signal als Untergrund zu interpretieren. Die Nachweisgrenze L_D gibt die Anzahl der Ereignisse an, ab der sich ein Signal zuverlässig vom Untergrund trennen lässt.
In praktischen Fällen lassen sich die beiden Verteilungen von Untergrund und Signal über die Standardabweichung des Untergrundes charakterisieren. Die Nachweisgrenze kann dann direkt aus der Höhe des Untergrundes bestimmt werden. Nimmt man vereinfachend eine Normalverteilung der Messwerte und des Untergrundes an, so ergibt sich für die Anzahl N der Ereignisse für den Fall α=β=5 % bei einem Vertrauensniveau von 90 %:

$$N \approx \frac{4\sqrt{N_{FWHM}}}{0.76} \tag{3.4}$$

N_{FWHM} Anzahl der Untergrundereignisse innerhalb einer Halbwertsbreite der gesuchten Linie

Der Faktor 0.76 berücksichtigt den Anteil der Ereignisse in einer Linienhalbwertsbreite. Die Grenzen wurden bei sämtlichen Ergebnisberechnungen mit obiger Formel berechnet.
Für eine detailliertere Beschreibung der statistischen Verteilungen siehe [Hen96],[Cur68] oder [Kir94].

3.4 Materialanalysen

3.4.1 Aluminiumproben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Aluminiumproben untersucht, welche als Material für die Konzentratoren der Photovervielfacher des äußeren Myonvetos zur Diskussion standen. Es sollte überprüft werden, ob bei Verwendung von Aluminium, welches sich in der Fertigung wesentlich einfacher und folglich auch preisgünstiger herstellen lässt, dieses den geforderten Reinheitsansprüchen genügt. Dazu wurden die Aluminiumproben mit dem 150 % p-Typ HPGe-Detektor im Untergrundlabor des Insituts ca. 7–9 Tage gemessen. Der Detektor war dabei zur Untergrundreduktion während der Messung mit dem aktiven Myonveto umgeben. Die Aluminiumproben in Form von Aluminiumplatten waren zuvor in 5 cm×5 cm grosse Scheiben geschnitten und vor der Messung mit Isopropanol abgewischt worden, um etwaige Verunreinigungen durch Staub zu beseitigen. Diese Vorbehandlung ist insofern gerechtfertigt, als das Aluminium bei der Herstellung der Konzentratoren letztendlich auch keiner anderen Vorbehandlung unterzogen wird, und somit die gemessenen radioaktiven Verunreinigungen repräsentativ sein dürften.
Danach wurden sie zur Messung in Quaderform aufeinandergereiht, mit einem Tesastreifen auf einer Halterung zentrisch fixiert und sodann dicht an den Ge-Detektor geschoben.
Die Aluminiumproben stammten von verschiedenen Firmen und waren in unterschiedlichen

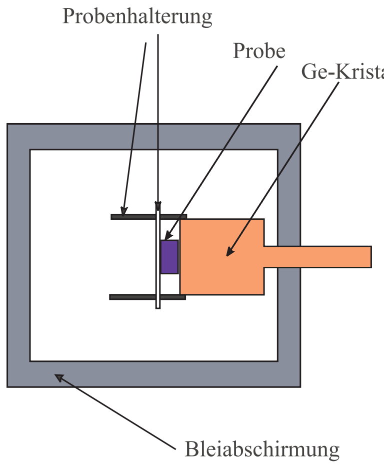

Abbildung 3.8: *Skizze des Messaufbaus zur γ-Spektroskopie der Aluminiumproben.*

Reinheitsgraden vorhanden. Über deren Vorbehandlung und Herstellungsart lagen leider keine weiteren Informationen vor. Die Unsicherheit bei der Gewichtsmessung betrug jeweils 0,01 g.
Bei den Messungen konnten die Linien eindeutig den verschiedenen radioaktiven Nukliden der einzelnen Zerfallsreihen zugeordnet werden. Es zeigte sich nun aber bei den Berechnungen ein Bruch des Gleichgewichts in den Zerfallsreihen bei den Elementen unterhalb des Radiums, was auf eine selektive Trennung des Radiums bei der Herstellung von Aluminium deutet. Dieser Effekt wurde auch von der SNO-Gruppe beobachtet, die Aluminium auf radioaktive Verunreinigungen hin gemessen hat.

Probe	Aluminiumanteil [%]	Bezeichnung	Abmessungen [mm]	Gewicht [g]
A	99,9	045/OES	13 x 50 x 50	77,61
B	99,92	894/ES	20 x 50 x 50	128,12
C	99,93 - 99,95	440/ES	41 x 50 x 50	243,00
D	keine Angabe	631/EB	48 x 50 x 50	320,00

Tabelle 3.1: *Probenparameter der gemessenen Aluminiumproben.*

Auch SNO sieht einen Bruch im Gleichgewicht der Zerfallskette beim Radium [Obe99a].

γ-Spektroskopie-Ergebnisse					
		Konzentration in [g/g]			
Nuklid	Energie [keV]	Probe A	Probe B	Probe C	Probe D
Uran-Zerfallsreihe					
^{234}Th	63	$(1.45 \pm 0.20) \cdot 10^{-6}$	$(1.39 \pm 0.17) \cdot 10^{-6}$	$(1.29 \pm 0.14) \cdot 10^{-6}$	$(1.36 \pm 0.10) \cdot 10^{-6}$
	93	$(1.35 \pm 0.25) \cdot 10^{-6}$	$(1.28 \pm 0.04) \cdot 10^{-6}$	$(1.38 \pm 0.04) \cdot 10^{-6}$	$(1.34 \pm 0.04) \cdot 10^{-6}$
^{234}Pa	766	—	$(1.25 \pm 0.25) \cdot 10^{-6}$	$(1.49 \pm 0.16) \cdot 10^{-6}$	$(1.43 \pm 0.18) \cdot 10^{-9}$
	1001	$(1.18 \pm 0.09) \cdot 10^{-6}$	$(1.19 \pm 0.08) \cdot 10^{-6}$	$(1.26 \pm 0.07) \cdot 10^{-6}$	$(1.23 \pm 0.07) \cdot 10^{-9}$
^{214}Pb	295	$(21.46 \pm 6.19) \cdot 10^{-9}$	$(15.18 \pm 3.94) \cdot 10^{-9}$	$(8.86 \pm 2.78) \cdot 10^{-9}$	$(14.11 \pm 3.89) \cdot 10^{-9}$
	352	$(14.92 \pm 5.10) \cdot 10^{-9}$	$(11.15 \pm 3.80) \cdot 10^{-9}$	$(12.36 \pm 3.45) \cdot 10^{-9}$	$(10.77 \pm 2.93) \cdot 10^{-9}$
^{214}Bi	609	$(10.40 \pm 2.66) \cdot 10^{-9}$	$(6.57 \pm 1.91) \cdot 10^{-9}$	$(6.68 \pm 1.60) \cdot 10^{-9}$	$(9.20 \pm 1.67) \cdot 10^{-9}$
	1120	—	—	$(5.53 \pm 3.20) \cdot 10^{-9}$	—
	1764	$< 19.54 \cdot 10^{-9}$	$(6.03 \pm 4.79) \cdot 10^{-9}$	$< 1.04 \cdot 10^{-8}$	$(11.13 \pm 3.68) \cdot 10^{-9}$
Thorium-Zerfallsreihe					
^{228}Ac	338	—	—	$(56.50 \pm 12.52) \cdot 10^{-9}$	$(60.79 \pm 15.85) \cdot 10^{-9}$
	911	$(31.74 \pm 12.72) \cdot 10^{-9}$	$< 1.06 \cdot 10^{-8}$	$(23.16 \pm 6.95) \cdot 10^{-9}$	$(30.43 \pm 7.10) \cdot 10^{-9}$
	969	—	—	$(25.12 \pm 5.88) \cdot 10^{-9}$	$(36.25 \pm 6.71) \cdot 10^{-9}$
^{212}Pb	238	$(134.95 \pm 13.32) \cdot 10^{-9}$	$(319.69 \pm 11.80) \cdot 10^{-9}$	$(59.19 \pm 8.68) \cdot 10^{-9}$	$(58.65 \pm 8.66) \cdot 10^{-9}$
^{208}Tl	583	$(97.31 \pm 12.71) \cdot 10^{-9}$	$(208.76 \pm 11.57) \cdot 10^{-9}$	$(44.12 \pm 8.51) \cdot 10^{-9}$	$(15.11 \pm 0.79) \cdot 10^{-9}$
	861	—	$(191.82 \pm 36.22) \cdot 10^{-9}$	—	—
Actinium-Zerfallsreihe					
^{235}U	143	—	$(13.47 \pm 1.69) \cdot 10^{-9}$	$(11.03 \pm 1.20) \cdot 10^{-9}$	$(12.13 \pm 1.64) \cdot 10^{-9}$
	163	—	—	$(14.07 \pm 2.42) \cdot 10^{-9}$	$(11.12 \pm 2.58) \cdot 10^{-9}$
	186	$(10.06 \pm 0.45) \cdot 10^{-9}$	$(11.18 \pm 0.37) \cdot 10^{-9}$	$(11.92 \pm 0.30) \cdot 10^{-9}$	$(11.38 \pm 0.36) \cdot 10^{-9}$
	205	—	—	$(14.49 \pm 2.55) \cdot 10^{-9}$	$(10.58 \pm 2.14) \cdot 10^{-9}$
Sonstige primordiale Radionuklide					
^{40}K	1460	$< 9.3 \cdot 10^{-6}$	$< 5.25 \cdot 10^{-6}$	$< 6.18 \cdot 10^{-6}$	$(3.38 \pm 2.87) \cdot 10^{-9}$

Tabelle 3.2: *Ergebnisse der Aluminium-Messungen. Die Fehler berücksichtigen den statistischen Fehler (1σ). Die Konzentrationen sind auf das jeweilige Mutternuklid der Zerfallsreihe umgerechnet.*

In der Tabelle 3.2 sind die Konzentrationen der einzelnen Nuklide jeweils auf die Konzentration des Mutternuklids umgerechnet.
Aus der Tabelle mit den Messergebnissen lassen sich mehrere Resultate ableiten. Die berechneten Ergebnisse stimmen für die einzelnen Nuklide innerhalb der Fehlergrenzen überein. Deutlich zu sehen ist bei den Zerfallsreihen von ^{238}U und ^{232}Th der oben erwähnte Einbruch in der Konzentration bei den Nukliden, die nach dem Radium in der Zerfallskette auftauchen. Dabei ändert sich die Konzentration um den Faktor 100–1000. Bei der Thoriumreihe kann man nur Linien von Nukliden, die nach Radium in der Zerfallsreihe auftauchen, detekieren. Daher werden nur die Konzetrationen nach dem Bruch bestimmt. Die Verunreinigung mit Thorium dürfte sich jedoch in derselben Größenordnung wie Uran, bzw. eine Größenord-

nung kleiner bewegen [Obe99a]. Darüber hinaus fällt auf, dass der Wert für Kalium bis auf die Probe D nur Obergrenzen sind. Dieses Ergebnis lässt sich möglicherweise dahingehend erklären, als die Probe D eine Legierung mit einem Anteil von 99 % Aluminium und 1 % Magnesium darstellt. Die Kaliumverunreinigung könnte durch den Legierungsprozess erhöht worden sein. Allerdings ist der Kaliumwert der Probe D aufgrund des großen relativen Fehlers ebenfalls nicht sehr signifikant.
Berücksichtigt man den Bruch des Gleichgewichts beim Radium in beiden Zerfallsreihen, so läßt sich das Ergebnis der Messungen wie folgt zusammenfassen:

	Probe A	Probe B	Probe C	Probe D
^{228}Th	$(135 \pm 13) \cdot 10^{-09}$	$(320 \pm 12) \cdot 10^{-09}$	$(59.2 \pm 8.7) \cdot 10^{-09}$	$(59 \pm 9) \cdot 10^{-09}$
^{228}Ra	$(32 \pm 13) \cdot 10^{-09}$	$< 1.06 \cdot 10^{-09}$	$(25 \pm 6) \cdot 10^{-09}$	$(36 \pm 7) \cdot 10^{-09}$
^{238}U	$(1.35 \pm 0.25) \cdot 10^{-06}$	$(1.25 \pm 0.25) \cdot 10^{-06}$	$(1.38 \pm 0.04) \cdot 10^{-06}$	$(1.36 \pm 0.10) \cdot 10^{-06}$
^{214}Bi	$(8.36 \pm 9.58) \cdot 10^{-09}$	$(11.2 \pm 3.8) \cdot 10^{-09}$	$(6.68 \pm 1.60) \cdot 10^{-09}$	$(11.1 \pm 3.7) \cdot 10^{-09}$
^{40}K	$< 9.3 \cdot 10^{-06}$	$< 5.26 \cdot 10^{-06}$	$< 6.2 \cdot 10^{-06}$	$(3.4 \pm 2.9) \cdot 10^{-06}$

Tabelle 3.3: *Zusammengefasstes Ergebnis der Messungen von Aluminiumproben. Die Konzentrationen sind in g/g angegeben. Die statistische Unsicherheit (1σ) ist berücksichtigt.*

Die Konzentrationsangaben von ^{214}Bi dienen nur der Illustration des erwähnten Bruchs der Konzentrationen in der Uranzerfallskette.
Wie schon erwähnt stellt sich bei allen vier Proben ein Bruch des Zerfallsgleichgewichtes bei den Elementen unterhalb des Radiums heraus. Der Bruch zeigt sich in allen Zerfallsketten. Bei der Herstellung des Aluminiums aus Bauxit wird zunächst reine Tonerde (Al_2O_3) gewonnen und dieses dann zu Al reduziert. Bei diesem Reduktionsschritt wird Radium abgetrennt. Für BOREXINO interessant sind nun die Auswirkungen dieser Verunreinigungen. Besonders störend wirken sich radioaktive Verunreinigungen mit hohen γ-Energien aus, da solche γ-Quanten im Detektorvolumen eine grössere Reichweite besitzen und dadurch in das sog. „fiducial volume“ gelangen können. Diese tragen dann zum Untergrund des Detektors bei. Betrachtet man die Zerfallsreihen von Uran und Thorium erkennt man, dass sich der Umstand, dass die Zerfallsreihen beim Nuklid Radium gebrochen sind und die in der Zerfallskette nachfolgenden Nuklide dadurch mit einem Faktor 100–1000 geringer vertreten sind, günstig auf obige Forderung auswirkt. Hohe γ-Energien kommen in beiden Zerfallsreihen mit einer signifikanten Übergangswahrscheinlichkeit erst bei den Nukliden unterhalb des Radiums, wie z.B. ^{214}Bi mit 2.204 MeV in der Uran-Zerfallsreihe und ^{208}Tl mit 2.615 MeV in der Thorium-Zerfallsreihe. Vor allem die 2.615 MeV-Linie des ^{208}Tl wird dadurch signifikant unterdrückt. Für die äußeren Komponenten des BOREXINO-Experimentes, d. h. außerhalb des Szintillators, sind es besonders diese hochenergetischen γ-Quanten in den Zerfallsreihen, die sich restriktiv auf die tolerierbare Konzentration der radioaktiven Verunreinigungen von Uran und Thorium (im Falle eines Gleichgewichtes) auswirken. Deshalb bewirkt die oben geschilderte Verringerung der Konzentrationen von Nukliden der Zerfallsreihen unterhalb des Radiums, dass die gemessenen Verunreinigungen noch akzeptabel sind, obwohl z. B. die Konzentration für ^{238}U mit einigen 10^{-6} g/g angegeben werden kann. Für die beste der gemessenen Aluminiumproben, der Probe C, erfüllen sowohl die Konzentrationen von ^{228}Th, als auch die von ^{214}Bi die notwendigen Limits von Tabelle 2.2. Für diese konnte mit den Ergebnissen der Tabelle 3.3 unter Berücksichtigung der Konfiguration der Konzentratoren in einem Radius

von < 300 cm vom Mittelpunkt der Szintillatorkugel aus nach simulierten 10 Tagen Zerfall im Energiebereich von 0.2–0.8 MeV nur 1 Ereignis und im Energiebereich von 0.8–1.5 MeV nur 2 Ereignisse nachgewiesen werden. Für einen Radius < 325 cm betrug die Anzahl der detektierten Ereignisse für den ersten Energiebereich auch nur 2, für den zweiten Energiebereich jedoch schon 22 [Obe99].
Da sich das Aktivitätsgleichgewicht, wie oben beschrieben, mit der Halbwertszeit des Tochternuklids, im Fall der Uran-Reihe also des Radiumisotops ^{226}Ra mit einer Halbwertszeit von 1600 Jahren, wieder einstellt, sieht man bei einem Blick auf Abbildung 3.6, dass die Uranverunreinigung der gemessenen Aluminiumproben für die geplante Laufzeit von BOREXINO (1 Sonnenzyklus, d. h. 11 Jahre) keine Gefahr darstellt. Bei der Thorium-Kette werden die Verhältnisse etwas komplexer, da sich Radium mit zwei unterschiedlichen Isotopen, nämlich ^{228}Ra und ^{224}Ra, in der Zerfallsreihe befinden. Aufgrund der geringen Halbwertszeit des ^{224}Ra von 3.6 Tagen wird sich der untere Teil der Kette sehr bald nach der Produktion von Aluminium wieder im Gleichgewicht mit ^{228}Th befinden. Dies wurde auch für die Berechnung der Konzentration des ^{228}Th in Tabelle 3.3 ausgenutzt. In Abbildung 3.9 ist das Verhalten der Aktivitäten von ^{232}Th, ^{228}Ra und ^{228}Th gegen die Zeit in Jahren bei einer willkürlich gewählten Anfangsaktivität des ^{232}Th und einer angenommenen Reduktion der Aktivität von ^{228}Ra um einen Faktor 100 durch eine selektive Separation von Radium zum Zeitpunkt 0 dargestellt. Die Kurven von ^{228}Ra und ^{228}Th in der Abbildung ändern sich bei Reduktionsfaktoren von 10 oder 1000 nur geringfügig, sodass die Aussagen anhand dieser Grafik durchaus signifikant sind.

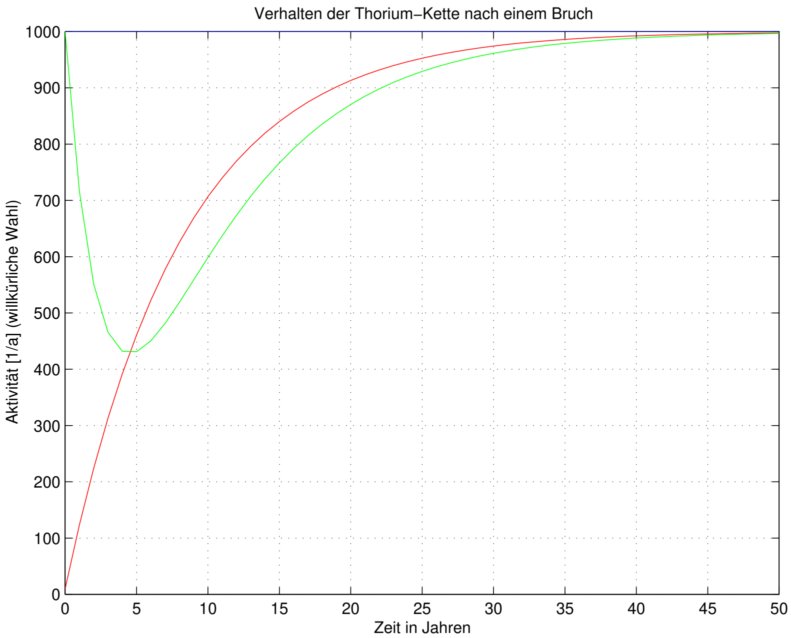

Abbildung 3.9: *Verhalten der Nuklide ^{232}Th (blaue Kurve), ^{228}Ra (rote Kurve) und ^{228}Th (grüne Kurve) nach einem Bruch des Gleichgewichts beim Radium.*

Deutlich zu sehen ist, dass die Aktivität von ^{232}Th (blaue Kurve) aufgrund der großen Halbwertszeit über den hier dargestellten Zeitraum von 50 Jahren nicht abnimmt. Die Aktivität von ^{228}Ra (rote Kurve) dagegen baut sich mit der Halbwertszeit von 5.7 Jahren wieder auf. Interessant sind nun die Auswirkungen auf das Isotop ^{228}Th, da dieses aufgrund seiner Halbwertszeit von 1.9 Jahren und den kürzeren Halbwertszeiten darauf folgender Nuklide die Aktivität dieser wesentlich beeinflusst. Man erkennt deutlich an Abbildung 3.9, dass durch die starke Reduktion an Mutternukliden des ^{228}Ra die Aktivität des ^{228}Th zunächst rasch mit der Halbwertszeit abnimmt und sich dann der von ^{228}Ra annähert. Nimmt man einmal an, dass die untersuchten Aluminiumproben nicht älter als 2 Jahre waren, erkennt man aus der Kurve von ^{228}Th, dass das beste Aluminum ca. 10–15 Jahren tolerante Aktivitäten aufweist. Damit würde das Experiment eine „Halbwertszeit“ besitzen, innerhalb der die Verunreinigungen des Aluminiums im notwendigen Rahmen lägen.

3.4.2 Mineralöl

Im Zusammenhang mit den Photovervielfachern des Myonvetos für BOREXINO wurde auch Mineralöl gemessen, das als Füllmaterial zwischen Kapselung und Vervielfacher eingesetzt wird. 8.83 g Mineralöl wurden 7 Tage lang auf dem n-typ Detektor mit aktivem Myonveto gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.4 aufgelistet. Für die Konzentrationen der Nuklide in den Zerfallsreihen von Thorium und Uran konnten nur Obergrenzen angegeben werden.

Thorium-Zerfallsreihe			**Uran-Zerfallsreihe**		
Nuklid	Energie *[keV]*	*Konzentration in [g/g]*	*Nuklid*	Energie *[keV]*	*Konzentration in [g/g]*
^{228}Ac	338.32	$< 65.64 \cdot 10^{-08}$	^{234}Th	63.29	$< 24.10 \cdot 10^{-08}$
	911.21	$< 41.91 \cdot 10^{-08}$		92.38	$< 34.32 \cdot 10^{-08}$
	968.97	$< 70.01 \cdot 10^{-08}$	^{234}Pa	1001.03	$< 4.44 \cdot 10^{-06}$
^{212}Pb	238.63	$< 8.29 \cdot 10^{-08}$	^{214}Bi	609.54	$< 10.27 \cdot 10^{-08}$
				1764.49	$< 34.15 \cdot 10^{-08}$

Tabelle 3.4: *Ergebnisse der γ-Spektroskopie von Mineralöl für Uran und Thorium. Die Ergebnisse beinhalten die statistische Unsicherheit (1σ). Die Konzentrationen sind auf das jeweilige Mutternuklid umgerechnet.*

Nimmt man an, dass beide Zerfallsreihen im Gleichgewicht stehen, so ergeben sich für die Verunreinigungen aus den Werten der Tabelle 3.4 folgende Konzentrationen:

$$
\begin{aligned}
{}^{238}U &< 1.03 \cdot 10^{-07} g/g \\
{}^{232}Th &< 8.29 \cdot 10^{-08} g/g
\end{aligned}
$$

Für die Füllung der Photovervielfacher des äußeren Myonvetos sind diese Konzentrationsgrenzen tolerierbar [Obe99]. Für eine Ausstattung der inneren Photovervielfacher benötigt man jedoch geringere Grenzen.

3.4.3 Reinigungsmittel

Der Flüssigszintillator wird im Gran Sasso-Untergrundlabor nach dem Transport bis zur Füllung des BOREXINO-Detektors gelagert, um durch kosmogene Strahlung erzeugte radioaktive Verunreinigungen wie ^{7}Be abklingen zu lassen. Die dafür vorgesehenen Lagertanks in der Nähe des Detektors werden mit einer Reinigungsflüssigkeit gesäubert, um Oberflächenkontaminationen an der Innenseite zu beseitigen. Nimmt man an, dass dem Reinstwasser zur Reinigung das Reinigungsmittel in einem Verhältnis 1:100 zugesetzt wird und man beim nachträglichen Durchspülen der Tanks mit Reinstwasser eine weitere Verdünnung um einen Faktor 1000 erreicht, so kann man für das Mittel bezüglich der Verunreinigungen mit den radioaktiven Nukliden Thorium, Uran und Kalium noch Werte tolerieren, die um fünf Größenordnungen das Limit für den eigentlichen Szintillator übersteigen. Da der Szintillator vor den ganzen Reinigungsschritten, die dem Experiment vorangehen, Werte für Uran und Thorium von 10^{-14} - 10^{-15} g/g, und für Kalium von 10^{-10} - 10^{-12} g/g aufweist, bedeutet dies tolerierbare Grenzen für das Reinigungsmittel von 10^{-09} - 10^{-10} g/g für Uran und Thorium und 10^{-05} - 10^{-7} g/g für Kalium.
In Tabelle 3.5 sind die Ergebnisse der γ-Spektroskopie des Reinigungsmittels Ecoclean 2000 für Uran und Thorium aufgegliedert.

Thorium-Zerfallsreihe			**Uran-Zerfallsreihe**		
Nuklid	Energie *[keV]*	*Konzentration in [g/g]*	*Nuklid*	Energie *[keV]*	*Konzentration in [g/g]*
^{228}Ac	338.32	$< 34.21 \cdot 10^{-08}$	^{234}Th	63.29	$< 39.18 \cdot 10^{-08}$
	911.21	$< 21.27 \cdot 10^{-08}$		92.38	$< 82.80 \cdot 10^{-08}$
	968.97	$< 35.81 \cdot 10^{-08}$	^{234}Pa	1001.03	$< 2.32 \cdot 10^{-06}$
^{212}Pb	238.63	$< 6.52 \cdot 10^{-08}$	^{214}Bi	609.54	$< 3.41 \cdot 10^{-08}$
^{208}Tl	583.19	$< 5.49 \cdot 10^{-08}$		1764.49	$< 17.50 \cdot 10^{-08}$
	860.56	$< 44.83 \cdot 10^{-08}$			

Tabelle 3.5: *Ergebnisse der γ-Spektroskopie von Reinigungsmittel für Uran und Thorium. Die Ergebnisse beinhalten die statistische Unsicherheit (1σ). Die Konzentrationen sind auf das jeweilige Mutternuklid umgerechnet.*

Nimmt man wiederum Gleichgewicht der Zerfallsreihen an, so ergeben sich hier folgende Grenzen aus den Werten der Tabelle 3.5:

$$\begin{aligned} ^{238}U &< 3.41 \cdot 10^{-08} g/g \\ ^{232}Th &< 5.49 \cdot 10^{-08} g/g \\ ^{40}K &< 1.76 \cdot 10^{-08} g/g \end{aligned}$$

Die mit der γ-Spektroskopie erhaltenen Grenzen erfüllen mit den oben getroffenen Annahmen für keine der drei Nuklide die notwendigen Grenzen.

Kapitel 4

Neutronenaktivierungsanalyse

Da mit der direkten γ-Spektroskopie der natürlichen Radionuklide für die Empfindlichkeit der Messungen mit dem im Untergrundlabor und den Abschirmeinrichtungen gegebenem Untergrund eine Grenze bei 10^{-9} g/g für Uran und Thorium liegt – welche für einige Materialien, wie z. B. das Stahl für den inneren Stahltank, ausreicht – , wurde, um die Reinheitsanforderungen für die Nylonproben zu erreichen, Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) angewandt.

4.1 Prinzip der Neutronenaktivierungsanalyse

Bei der Neutronenaktivierungsanalyse handelt es sich um ein nuklidspezifisches Analyseverfahren. Man nutzt dabei die Tatsache, dass sich stabile Nuklide, wenn sie einem Neutronenfeld ausgesetzt sind, zumeist durch Neutronenanlagerung[1] in instabile Nuklide umwandeln. Dies geschieht unabhängig vom jeweiligen chemischen Bindungszustand der Nuklide. Beim Rückzerfall in stabile Nuklide lassen sich durch die Beobachtung der dabei emittierten charakteristischen Strahlung die Nuklide identifizieren[2]. Dabei ist für die Konzentrationsbestimmung natürlicher Radionuklide besonders von Vorteil, dass die Energie dieser γ-Strahlung unterschiedlich zur Linienenergie der natürlichen Zerfälle ist, da die Unsicherheit des Beitrages der Untergrundradioaktivität in der jeweiligen Linie wegfällt. Durch die Kenntnis der Aktivierungsparameter und der anschließenden Detektion lassen sich Aussagen über die Elementkonzentration der untersuchten Probe machen.
Nach der Bestrahlungszeit t_b und der Abklingzeit t_d eines Nuklids mit der Zerfallskonstanten λ lässt sich die Aktivität A zu

$$A = Ne^{-\lambda t_d} \cdot (1 - e^{-\lambda t_b}) \int_0^{4MeV} \Phi(E) \cdot \sigma(E) dE \tag{4.1}$$

berechnen. Dabei bezeichnet N die Anzahl der aktivierbaren Kerne des jeweiligen Nuklids, Φ(E) und σ(E) den differentiellen Neutronenfluss und Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit

[1] Auch andere Prozesse, wie z. B. induzierte Spaltung oder zweifache Neutronenanlagerung, sind denkbar.

[2] Bei eindeutiger Trennung einer unbekannten Linie vom Rest der Linien und vom Untergrund ließe sich das Nuklid auch über das Abklingen der Aktivität in der Linie mit der für das jeweilige Nuklid charakteristischen Halbwertszeit bestimmen.

von der Energie E. Berücksichtigt man die Form des Neutronenspektrums eines leichtwassermoderierten Reaktors – wozu auch der FRM I[3] zählt –, so lässt sich das Integral durch eine Summe approximieren, die jeweils die Anteile des thermischen (Energiebereich 0 - ca. 1eV, Index th) und des epithermischen (Energiebereich 1 eV - 0.1 MeV, Index epi) Neutronenflusses berücksichtigt.

$$\int_0^{4MeV} \Phi(E) \cdot \sigma(E) dE = (\Phi_{th}\sigma_{th} + \Phi_{epi}\sigma_{epi}) \tag{4.2}$$

Zur Berechnung wird jedoch oft nur der thermische Fluss und das Verhältnis der beiden Flüsse f=$\frac{\Phi_{epi}}{\Phi_{th}}$ angegeben. Nach einer Messzeit t_m in einem Detektor mit der (von der jeweiligen Geometrie der Probenmatrix und der Energie der emittierten γ-Linie abhängigen) Effizienz ϵ misst man die Anzahl der Zerfälle Z

$$Z = \frac{w\epsilon A}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t_m}) \tag{4.3}$$

in der charakteristischen Linie, mit w als Emissionswahrscheinlichkeit dieser Linienenergie je Zerfall. Um auf die interessierende Konzentration c des jeweiligen Elementes in der Probenmatrix mit der Masse m zu schließen, rechnet man in Formel 4.1 die Anzahl N um in N=$\frac{hcmN_A}{M}$. Mit der Avogadro-Konstanten N_A, dem natürlichen Isotopenanteil h und der Molmasse M des Elementes ergibt sich dann die Konzentration c zu:

$$c = \frac{\lambda \cdot M \cdot Z}{N_A \cdot m \cdot h \cdot w \cdot \epsilon \cdot e^{-\lambda t_d} \cdot (1 - e^{-\lambda t_m}) \cdot (1 - e^{-\lambda t_b}) \cdot (\Phi_{th}\sigma_{th} + \Phi_{epi}\sigma_{epi})} \tag{4.4}$$

Sind die Größen auf der rechten Seite der Gleichung bekannt, bzw. gemessen, so gestattet die Neutronenaktivierungsanalyse eine quantitative Mulitelementanalyse.
Da bei der instrumentellen Neutronenaktivierungsanalyse (INAA) eine Probenaufbereitung, z.B. in Form einer chemischen Bearbeitung, entfällt, bietet dieses Verfahren gegenüber anderen Spurenelement-Analyseverfahren den Vorteil einer zerstörungsfreien Analyse. Sie gestattet zudem die Konzentrationsbestimmung über einen großen Bereich. Dieser ist im wesentlichen apparativ beschränkt. Im Fall geringer Aktivität bedingt durch die Eigen- und Umgebungsaktivität des Detektors, im Fall großer Aktivität durch die Zeitauflösung des Detektors und der Aufnahmeelektronik. In einigen Fällen kann jedoch eine radiochemische Aufbereitung der Probe notwendig werden, besonders dann, wenn der durch die Bestrahlung erzeugte Eigenuntergrund durch interferierende Nuklide, wie Brom, Natrium, etc., die Sensitivität der Messung für die zu bestimmenden Nuklide stark einschränkt. Da bei der Bestrahlung der Probenmatrix zwangsweise alle in der Probe enthaltenen Nuklide entsprechend ihren Wirkungsquerschnitten und den Halbwertszeiten der entstehenden instabilen Nuklide aktiviert werden, kann bei geringen Konzentrationen des zu bestimmenden Nuklids und hohen Konzentrationen an leicht aktivierbaren anderen Nukliden der durch Zerfälle dieser Nuklide erzeugte Untergrund die Sensititvität der Messung im interessierenden Energiebereich beeinträchtigen. In diesem Fall müssen die interessierenden Nuklide von der Probe selektiv abgetrennt werden, so dies möglich ist. Geschieht dies nach der Bestrahlung, so vermeidet man darüberhinaus die Verfälschung der Messung durch mögliche Verunreinigung. Dies bezeichnet man als radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA).

[3]Forschungsreaktor München I.

4.2 Spezielle Aspekte der NAA

Für die im Rahmen dieser Arbeit angewandte Neutronenaktivierungsanalyse müssen verschiedene Aspekte bezüglich der Bestrahlungsmöglichkeiten und der jeweiligen Parameter, sowie ihrer systematischen Fehler beachtet werden.

4.2.1 Die Relevanz der verschiedenen Parameter

Für die Sensitivität der Messungen sind verschiedene Parameter von Bedeutung, wie aus Formel 4.4 ersichtlich ist:

- Neutronenfluss
- Probenmasse
- Bestrahlungszeit
- Abklingzeit
- Messzeit
- Detektionseffizienz
- Untergrund

Diese Parameter unterliegen in der Praxis unterschiedlichen Einschränkungen. Parameter wie Halbwertszeit, Verzweigungsverhältnisse, natürliche Isotopenhäufigkeit oder Wirkungsquerschnitte sind zwangsläufig vorgegeben.

Zur Bestimmung geringer Konzentrationen ist eine Bestrahlung mit einem möglichst hohen Neutronenfluss wünschenswert. Der Neutronenfluss war bei der jeweiligen Bestrahlungsvorrichtung durch die Leistung des Reaktors vorgegeben und betrug für die Angelschnurbestrahlung (1-3)$\cdot$ 10^{13} cm^{-2} s^{-1}. Dabei wurde der Fluss durch jeweils mit der Probe bestrahlte Zirkon-Standarddrähte bestimmt.

Der Probenmasse sind ebenfalls aufgrund von eventueller chemischer Nachbearbeitung und Radiolyse, d. h. Zersetzung der Probe, Grenzen gesetzt.

Bestrahlungsdauer, Abklingzeit und Messzeit sind je nach Nuklid zu optimieren. Bei zunehmender Bestrahlungsdauer ist zu berücksichtigen, dass sich die Anzahl der aktivierten Nuklide einem von der jeweiligen Halbwertszeit der aktivierten Nuklide abhängigen Gleichgewichtswert nähert. Dementsprechend ist nach einigen Halbwertszeiten keine Steigerung der Sensitivität durch Erhöhung der Anzahl der aktivierten Nuklide erreichbar. Statt dessen hat man mit zunehmender Bestrahlungszeit die Erzeugung langlebiger Nuklide zu berücksichtigen, die zum Untergrund der Messung beitragen. Bei der Abklingzeit sind mehrere Faktoren entscheidend. Zum einen ist aus bestrahlungstechnischen Gründen beim Angelschnurverfahren eine Mindestabklingzeit von 4 Stunden notwendig. Zum anderen kann aber auch mit längerer Abklingzeit ein Verlust an Sensitivität der zu beobachtenden Nuklide durch eine

Reduktion des mit kurzlebigen Nukliden erzeugten Untergrundes kompensiert werden.

Über die Wahl des Detektors und des Abstandes bei der Messung lässt sich die Detektoreffizienz in einem gewissen Rahmen variieren. Zudem können einige Nuklide durch verschiedene Energielinien beobachtbar sein und damit über die Energieabhängigkeit der Effizienz eine gewisse Optimierung erlauben. Die Erhöhung betrifft jedoch auch den jeweiligen Untergrund.

4.2.2 Unsicherheiten der einzelnen Parameter

Neben den statistischen Unsicherheiten, die schon in Kapitel 3.3 beschrieben wurden, müssen bei den einzelnen Messungen die systematischen Unsicherheiten angegeben werden. Die einzelnen Parameter in der Formel 4.4 sind mit Fehlern behaftet, die zu systematischen Unsicherheiten der Messergebnissen führen. Für die durchgeführten Analysen gelten die in Tabelle 4.1 aufgeführten Grenzen. Fehler, die durch Probenentnahme und -aufbereitung eingehen,

Größe	Tendenz	
$< 15\%$	$\pm$	Wirkungsquerschnitt, Neutronenfluss (in Einzelfällen höher)
$< 5\%$	$\pm$	Detektoreffizienz, Neutroneneinfangsquerschnitt, Verzweigungsverhältnis
$< 1\%$	$\pm$	Bestrahlungszeit, Abklingzeit, Messzeit, Probenmasse, Isotopenhäufigkeit
$< 1\%$	–	Totzeitverluste

Tabelle 4.1: *Systematische Unsicherheiten (1σ) bei der Konzentrationsbestimmung über NAA. Mit der Tendenz + sind Unsicherheiten gekennzeichnet, die zu einer Erhöhung des Ergebnisses führen, – kennzeichnet eine Verminderung.*

lassen sich für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Analysen nur schwer abschätzen. Allerdings wurde die Probenaufbereitung vor der Bestrahlung in einer Reinbox[4] und weitere Aufbereitungen nach der Bestrahlung durchgeführt, sodass sich der Eintrag von Verunreinigung, welcher zu einer Verfälschung der Analysenresultate zu höheren Ergebnissen führen würde, weitgehend ausschließen lässt. Analytverluste durch Adsorption an Behälterwänden, bzw. Analyteinträge aus diesen, lassen sich bei den Nylonproben ausschließen, da diese Proben in fester Form vorlagen.
Bei der Radiochemischen NAA müssen zusätzlich zu den oben aufgeführten Unsicherheiten noch die Fehler der chemischen Bearbeitung berücksichtigt werden. Bei den durchgeführten Arbeiten lag dieser im Rahmen von < 10 %. Die systematische Unsicherheit der Messungen kann daher für die durchgeführten Analysen mit 25 % angegeben werden.

4.2.3 Bestrahlungseinrichtung am FRM I

Als Neutronenquelle für die durchgeführten Bestrahlungen diente der Forschungsreaktor München I (FRM I). Dabei standen unterschiedliche Bestrahlungspositionen zur Verfügung:

[4] Bei der Inbetriebnahme im Jahr 1994 wurde für diese Reinbox eine Staubklasse von 1 bestimmt, die aber inzwischen wohl nicht mehr erreicht wird (siehe [Gol97]).

Rohrpost

Bei Rohrpostbestrahlungen werden die Proben in einer Kunststoffumhüllung – dem sogenannten „Rabbit“ – mit Kohlendioxid an den Reaktorkern geschossen, und nach einer gewissen Aktivierungszeit wieder zurück. Aufgrund der Zersetzung des Rabbits ist die Bestrahlungsdauer auf eine Stunde begrenzt. Dieses Verfahren wurde zur Bestrahlung von Uran- und Thorium-Standards eingesetzt, wobei die Bestrahlungsdauer dafür jeweils nur eine Minute betrug. Der Fluss betrug dabei weniger als $1 \cdot 10^{13}$ cm^{-2} s^{-1}.

Angelschnur

Bei diesem Bestrahlungsverfahren wird die in Polyethylenfolie eingeschweißte Probe zum Kernrand mittels einer „Angelschnur“ hinabgelassen und dort bestrahlt. Auch bei diesem Verfahren ist die Bestrahlungsdauer aufgrund der Zersetzung des „Probenbehälters“ auf eine Stunde beschränkt. Dieses Verfahren wurde generell zur Bestrahlung der Nylonproben mit einer Bestrahlungsdauer von jeweils 45 min eingesetzt.
Von den vier zur Verfügung stehenden Positionen mit der Nr. 29, 39, 49 und 59 wurden immer die beiden mittleren mit der Nr. 39 und 49 verwendet, welche den größten Fluss boten. Das Flussverhältnis und der thermische Fluss wurde bei jeder Bestrahlung mit gleichzeitig bestrahlten Zirkon-Standarddrähten bestimmt. Bei den Bestrahlungen wurden thermische Neutronenflüsse von 1.4–2.4 $\cdot 10^{13}$ cm^{-2} s^{-1} erreicht.

4.2.4 Nachweis der relevanten Nuklide

Wie schon in Kapitel 4.1 erwähnt, weist man die in einer Probenmatrix enthaltenen Elemente über den Zerfall der bei der Bestrahlung mit Neutronen entstehenden instabilen Nuklide nach. Dabei sind für den Nachweis mittels γ-Spektroskopie letztendlich die Charakteristika des Neutroneneinfangs und des Zerfalls entscheidend. Bei vielen Elementen gibt es mehrere stabile Nuklide mit zum Teil sehr unterschiedlichen Wirkungsquerschnitten für Neutroneneinfang. Beim Einfang eines Neutrons kann daher wieder ein stabiles Nuklid entstehen oder ein instabiles. Für einen Nachweis ist entscheidend, dass sich ein stabiles Nuklid mit einem ausreichenden Isotopenanteil findet, dessen Nachbarisotop mit einem zusätzlichem Neutron instabil ist und das leicht aktivierbar ist, d. h. einen großen Wirkungsquerschnitt für den Einfang thermischer Neutronen besitzt.
Bei der Zerfallscharakteristik sind die entscheidenden Aspekte die Halbwertszeit des Zerfalls und die Art des Zerfalls. Zerfällt ein Nuklid ohne Emission eines γ-Quants oder nur mit einer niedrigen Übergangswahrscheinlichkeit für ein solches, so lässt es sich mit γ-Spektroskopie gar nicht oder nur schwer detektieren. Ebenso kann man ein Nuklid, das mit einer sehr kurzen Halbwertszeit zerfällt, nicht nachweisen, da bis zum Beginn der Messung fast alle Nuklide zerfallen sind. In diesem Fall bleibt noch die Möglichkeit, das Nuklid über den nachfolgenden Zerfall des entstehenden Nuklids nachzuweisen, falls dieses auch instabil ist (siehe Nachweis von Thorium und Uran). Ist die Halbwertszeit des Nuklids generell sehr viel größer als die Messzeit, so können in diesem Zeitrahmen zu wenig Nuklide zerfallen, die detektierbar sind. Alle diese Parameter müssen beim Nachweis der Nuklide berücksichtigt werden. Im folgen-

den wird auf den Nachweis der Nuklide Kalium, Thorium und Uran eingegangen, da diese für die nachfolgenden Messungen von besonderer Relevanz sind.

Nachweis von Kalium

Das Element Kalium besitzt zwei stabile Istope: ^{39}K mit einem Isotopenanteil von 93.2581 % und ^{41}K mit einem Isotopenanteil von 6.7302 %. Das Isotop ^{40}K mit einem Isotopenanteil von 0.0117 % ist instabil, hat aber eine sehr große Halbwertszeit von $1.28 \cdot 10^9$ Jahren und kann daher als „quasistabil" betrachtet werden. Das instabile Nuklid ^{40}K wurde schon bei der γ-Spektroskopie ohne vorangehende Aktivierung verwendet. Für die Neutronenaktivierung bleibt man auf den Zerfall des enstehenden instabilen Nuklids ^{42}K beschränkt, das mit einer Halbwertszeit von 12.36 Stunden auf das stabile Nuklid ^{42}Ca zerfällt. Dabei emittiert es mit einer Wahrscheinlichkeit von 17.9 % ein γ-Quant mit einer Linienenergie von 1524.6 keV.

Nachweis von Thorium

Zwar besitzt das Element Thorium kein stabiles Isotop, doch weist das Isotop ^{232}Th mit $1.405 \cdot 10^{10}$ Jahren eine so große Halbwertszeit auf, dass es als quasistabil gelten kann. Allerdings lässt sich aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 22.3 Minuten das bei einem Neutroneneinfang entstehende Isotop ^{233}Th nicht direkt detektieren, sondern verwendet dazu letztendlich den Zerfallsnachweis des darauffolgenden Nuklids ^{233}Pa mit einer Halbwertszeit von 27 Tagen. Dieses emittiert mit einer Wahrscheinlichkeit von 38.6 % ein γ-Quant mit einer Energie von 312 keV. Das Zerfallsschema ist in Abbildung 4.1 dargestellt.

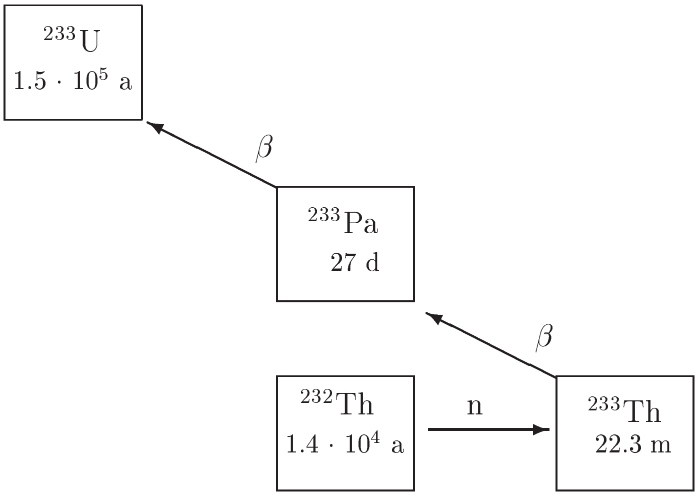

Abbildung 4.1: *Nachweis von ^{232}Th über den Zerfall des Nuklids ^{233}Pa.*

Nachweis von Uran

Ebenso wie Thorium besitzt Uran kein stabiles Isotop, aber aufgrund der langen Halbwertszeiten mit den Nukliden ^{234}U mit einem Isotopenanteil von 0.0055 %, ^{235}U mit einem Isotopenanteil von 0.72 % und dem Nuklid ^{238}U mit einem Isotopenanteil von 99.2745 % mehrere „quasistabile" Isotope. Bei der Neutronenaktivierung verwendet man für den Nachweis von Uran aufgrund des hohen Isotopenanteils allerdings nur das Isotop ^{238}U. Auch hier ist der Zerfall des bei einem Neutroneneinfang entstehenden Isotops ^{239}U wegen der kurzen Halbwertszeit von 23.5 Minuten bei den gemessenen Proben nicht nachweisbar. Es wird hier der Zerfall des darauffolgenden Nuklids ^{239}Np verwendet, das mehrere γ-Quanten mit einer Halbwertszeit von 2.355 Tagen emittiert. In Abbildung 4.2 ist das Zerfallsschema nochmals veranschaulicht.

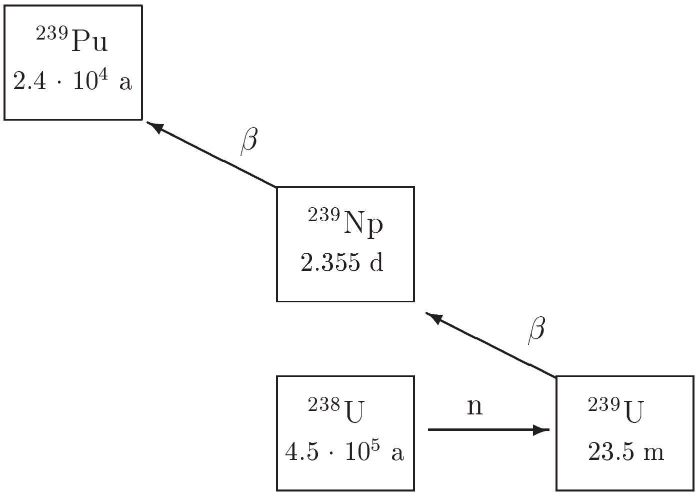

Abbildung 4.2: *Nachweis von ^{238}U über den Zerfall des Nuklids ^{239}Np.*

4.3 Analysen von Nylonproben

Es wurden im Rahmen dieser Arbeit Nylonproben von verschiedenen Herstellern auf ihre Kontamination mit radioaktiven Nukliden untersucht, da Polymere meistens Hilfsstoffe, wie z. B. Stabilisatoren, Antioxidantien, Weichmacher, Füllstoffe und Pigmente enthalten.
Nylon, 1939 von der Firma Du Pont als eingetragenes Warenzeichen auf den Markt gebracht, gehört chemisch zu den Polyamiden, welche in der Hauptgruppe die Amidgruppe -NH-CO- enthalten. Nylon enthält im Strukturelement zwei Grundbausteine:
(-NH-R-NH-CO-R'-CO-). R und R' können dabei aliphatische, cycloaliphatische, aromatische oder heterocyclische Reste sein. Technische Produkte werden häufig ohne weitere Unterscheidung als Nylon bezeichnet und durch Nummern oder Buchstaben voneinander unterschieden. Die Nummern geben die Zahl der Kohlenstoffatome pro aliphatischem Grundbaustein an. Nylon 6 oder Polyamid 6 ist somit Poly(ϵ-caprolactam). Bei der eigentlichen Nylon-Reihe gibt die erste Zahl die Anzahl der Kohlenstoffatome pro Diamin, die zweite

Zahl die der Kohlenstoffatome der Dicarbonsäure an. Nylon 6,6 oder Nylon 66 ist daher Poly(hexamethylendipamid). Buchstaben werden oft zur Kennzeichnung ringförmiger Reste verwendet (aus [Eli81]). Alle diese Polyamide werden durch Polykondensation eines α,ω-Diamins mit einer α,ω-Dicarbonsäure hergestellt. Das bekannteste ist Nylon 66, das ein Copolymer aus 1,6-Hexandiamin und Adipinsäure ist. Das Polymer wird durch Erhitzen eines äquimolaren Gemisches der beiden Monomere bei 10 bar Druck und 270 °C hergestellt. Nylon 6 wird durch Polymerisation von 6-Aminohexansäure hergestellt [Str86].
Nylon ordnet sich dabei in langen dünnen Molekülen parallel zueinander an und kann so lange Fasereinheiten bilden, die über ihre N–H-Gruppen Wasserstoffbrückenbindungen eingehen können [Mor86].
Es wurden insgesamt folgende Nylonproben untersucht:

Nylonname	**Materialart**	**Firma**	**Nylonart**
Sniamid ADS40T	Film + Granulat	Nyltech	Nylon 6
Capron B13ZP	Film + Granulat	Allied Signal	Nylon 6
Selar 10% + Capron 90%	Film	—	Nylon 66

Tabelle 4.2: *Untersuchte Nylonproben.*

4.3.1 Instrumentelle NAA

Die Nylonproben wurden, um eine Kontamination der Proben mit Staub zu vermeiden, in der Reinbox in Polyethylenfolie umverpackt. Mit den jeweiligen Proben wurde zur Bestimmung des thermischen Neutronenflusses ein Zr-Standarddraht verpackt und die Proben dann für 45 Minuten im FRM I nach dem Angelschnurverfahren bestrahlt. Nach der Bestrahlung wurde bei den Nylonfilmen die Schnittkante beseitigt, um Verunreinigungen, die möglicherweise durch den Zuschnitt eingebracht wurden, zu entfernen. Da der Bestrahlung keinerlei Vorbehandlung der Proben in Form einer Reinigung voranging, könnten möglicherweise Oberflächenkontaminationen mit Staub, die bei der Umverpackung bei Erhalt der Proben verursacht wurden, die Werte der Messungen für Uran und Thorium erhöhen. Wie jedoch aus Tabelle 4.3 zu erkennen ist, liefern die Messungen mittels INAA für Uran und Thorium meist nur Obergrenzen.
Es zeigt sich auch, dass, mit Ausnahme von Brom, die Konzentrationswerte der Elementverunreinigungen im Nylonfilm Capron alle höher liegen als im Granulat. Dies ist durch die beim Herstellungsprozess des Nylonfilms aus Granulat als Ausgangsmaterial evtl. eingebrachte zusätzliche Verunreinigung leicht einsichtig. Die erhaltenen Grenzen für Uran liegen für alle gemessenen Proben noch über zwei Größenordnungen von den geforderten Konzentrationsgrenzen entfernt, und auch die Werte für Thorium sind noch über eine Größenordnung zu schlecht. Eine Ausnahme bildet in dieser Hinsicht der Nylonfilm Capron B13ZP, der aufgrund der erhaltenen Thoriumkonzentration von $3.42 \cdot 10^{-10}$ g/g für eine Verwendung ausscheidet. Zwar lassen die Werte für das Nylongranulat von Capron B13ZP eine Aussage über die Verwendungsmöglichkeit aufgrund der Grenzen durchaus noch offen, doch wird in dem BOREXINO-Experiment letztendlich für den Nylonballon ein Nylonfilm verwendet und es ist fraglich, ob bei der Herstellung des Films aus dem Granulat Capron B13ZP gegenüber

Element	Sniamid ADS40T (Film)	Capron B13ZP (Granulat)	Capron B13ZP (Film)
U	$< 1.19 \cdot 10^{-10}$	$< 3.94 \cdot 10^{-10}$	$< 1.59 \cdot 10^{-10}$
Th	$< 4.43 \cdot 10^{-10}$	$< 9.05 \cdot 10^{-11}$	$(3.42 \pm 0.69) \cdot 10^{-10}$
K	$(5.36 \pm 1.65) \cdot 10^{-08}$	$(2.99 \pm 0.97) \cdot 10^{-08}$	$(5.00 \pm 1.42) \cdot 10^{-07}$
Au	$(6.01 \pm 1.83) \cdot 10^{-12}$	$(1.05 \pm 0.13) \cdot 10^{-10}$	$(2.91 \pm 1.33) \cdot 10^{-09}$
Br	$(7.06 \pm 0.79) \cdot 10^{-09}$	$(4.52 \pm 1.71) \cdot 10^{-10}$	$(1.56 \pm 1.04) \cdot 10^{-10}$
Na	$(1.86 \pm 0.43) \cdot 10^{-07}$	$(8.69 \pm 2.44) \cdot 10^{-08}$	$(8.60 \pm 1.74) \cdot 10^{-07}$
Zn	$(1.84 \pm 0.76) \cdot 10^{-08}$	$(4.88 \pm 2.42) \cdot 10^{-09}$	—
Mn	$(2.30 \pm 0.81) \cdot 10^{-08}$	—	—
Cu	$(2.48 \pm 1.20) \cdot 10^{-07}$	—	—
Sb	$(2.75 \pm 0.47) \cdot 10^{-10}$	$(5.82 \pm 1.21) \cdot 10^{-09}$	$(1.41 \pm 0.23) \cdot 10^{-09}$
W	$(2.67 \pm 0.79) \cdot 10^{-10}$	—	$(1.76 \pm 0.54) \cdot 10^{-09}$
As	—	—	$(3.78 \pm 0.99) \cdot 10^{-10}$
Sm	—	—	$(9.23 \pm 3.75) \cdot 10^{-11}$
Co	—	—	$(2.29 \pm 0.82) \cdot 10^{-09}$
Ag	—	—	$(2.77 \pm 0.50) \cdot 10^{-08}$
Fe	—	—	$(1.30 \pm 0.77) \cdot 10^{-06}$
La	—	$(8.90 \pm 5.42) \cdot 10^{-12}$	$(1.49 \pm 0.48) \cdot 10^{-10}$

Tabelle 4.3: *Ergebnisse der Untersuchungen von Nylonproben mit INAA. Die Fehler und Grenzen enthalten die statistische Unsicherheit (1σ).*

dem gemessenen Film eine Verbesserung hinsichtlich der Thoriumverunreinigung um zwei Größenordnungen erreicht werden kann.
Die Werte der Kaliumverunreinigungen aller gemessenen Proben bewegen sich im tolerierbaren Rahmen.

4.3.2 Radiochemische NAA

Wie schon oben erwähnt, konnte auch mit INAA die notwendige Sensitivität für Uran und Thorium nicht erreicht werden. Dies lag vor allem am hohen kontinuierlichen Untergrund durch die Nuklide Brom und Natrium. Daher wurde versucht, eine chemische Separation der interessierenden Nuklide zu erzielen. Für eine selektive Trennung bestimmter Nuklide mit chemischen Verfahren muss man zuvor das Nylon auflösen, um die einzelnen Bestandteile separat vorliegen zu haben. Daher wurde die Löslichkeit von Nylon 6 in Säuren und Basen untersucht. Bei einem Blick in die Literatur ([Boc72], [Bra66]) werden als Lösungsmittel für Polyamide bei Raumtemperatur Schwefelsäure, Ameisensäure und Phosphorsäure genannt. Im Gegensatz dazu zeigten Versuchsreihen eine schlechte und teilweise unvollständige Lösung des Nylons mit Ameisensäure und Schwefelsäure. Vielversprechender waren in diesem Zusammenhang Versuche mit Salpetersäure (HNO_3 100 % bzw. 65 %). In Tabelle 4.4 sind die Ergebnisse einiger Lösungsversuche mit Salpetersäure aufgelistet.
Aus Tabelle 4.4 wird ersichtlich, dass eine Lösung mit Salpetersäure nicht für alle Nylonsorten den gewünschten Erfolg bringt, jedoch für diejenigen mit höherer Priorität (siehe Tabelle

Nylonsorte	**Art**	**Masse [g]**	**Lösungs-mittel**	**Dauer [h]**	**Prozedur**	**Ergebnis**
Sniamid ADS40T	Film	4.0	HNO_3 (65%)	ca. 1	Heizung auf 50°C, Rührer ein	Alles glöst, klare, leicht gelbe Flüssigkeit, leicht zäh
Capron B13ZP	Granulat	7.4	HNO_3 (65%)	ca. 1	Heizung auf 80°C, Rührer ein	Alles gelöst klar, leicht gelbliche Flüsssigkeit
Capron B13ZP	Film	4.7	HNO_3 (65%)	ca. 1	Heizung auf 50°C, Rührer ein	Alles gelöst, klare leicht gelbe, viskose Flüssigkeit
Capron B13ZP	Granulat	10.7	HNO_3 (100%)	1.5	Ohne Heizung, gerührt	gelöst,orange, klare Flüssigkeit
Airtech WC 6500C	Film	10.8	HNO_3 (65%)	1.25	Heizung auf 100°C, Rührer ein	stark gelb bis bernstein-farben, bildet Schaum
Airtech WC 6500C	Film	10.5	HNO_3 (100%)	1	ohne Heizung, mit Folie abgedeckt, gerührt	Alles gelöst
Grilamid TR 55	Granulat	9.7	HNO_3 (65%)	ca. 3	ohne Heizung, nach 2 Std. keine Lösung; mit Heizung 100°C löst sich, schäumt auf	bildet Schaum
Grilamid TR 55	Granulat	10.6	HNO_3 (100%)	2.5	ohne Heizung, mit Folie abgedeckt	vollständig gelöst

Tabelle 4.4: *Ergebnisse von Nylon-Lösungsversuchen mit Salpetersäure.*

4.2) in einem vertretbaren[5] zeitlichem Rahmen von wenigen Stunden durchführbar ist.
Um nun eine selektive Trennung des Actinids Neptunium zu erreichen, wurde der organische Komplexbildner TBP (Tri-n-Butylphosphat) genutzt [Ish60][Zem64][Sur95]. Metallionen zeigen in TBP unterschiedliche Löslichkeit. Dabei lässt sich das Gleichgewicht der Reaktion

$$\text{Metallion} + \text{TBP} \rightleftharpoons \text{Metallorganischer TBP-Komplex}$$

durch den pH-Wert der wässrigen Phase zugunsten der einen oder anderen Seite verschieben. Als Extraktionseffizienz ϵ, welche vom Volumenverhältnis von wässriger zu organischer Phase abhängig ist, ist in diesem Zusammenhang die Effizienz definiert, mit der sich diese Metallionen in die organische Phase des Komplexbildners transferieren lassen.

$$\epsilon = \frac{D}{D + \frac{V_{aqu}}{V_{org}}} \tag{4.5}$$

Dabei bezeichnet D das Löslichkeitsverhältnis, d.h. das Verhältnis der Konzentration des Ions in organischer zur Konzentration in wässriger Phase.

$$D = \frac{c_{org}}{c_{aqu}} \tag{4.6}$$

[5]Es muss dabei bedacht werden, dass dieselbe Prozedur auf die bestrahlten Proben angewandt werden muss. Bei einer Halbwertszeit von ca. 56 Stunden für ^{239}Np und der aus bestrahlungstechnischen Gründen bedingten Abklingzeit ist es daher notwendig, ein chemisches Verfahren zu haben, das nicht mehrere Tage in Anspruch nimmt, um nicht zu viel Aktivität abklingen zu lassen.

Mit einer Tracer-Messung wurde dieses Löslichkeitsverhältnis für die 65 %ige Salpetersäure mit einer Stoffmengenkonzentration von 22 bestimmt. Aufgrund der hohen Stoffmengenkonzentration der Säure konnte nur ein niedriger Wert von 1.31 für Neptunium ermittelt werden. Dies deckt sich auch mit ermittelten Kurven in der Literatur, die sich aus verschiedenen Werten von D bei unterschiedlichen Stoffmengenkonzentrationen der Salpetersäure ergeben. Dort finden sich Maximalwerte für D bei Stoffmengenkonzentrationen von 7-9. Wegen des geringen Löslichkeitsverhältnisses D mit der 22 molaren Salpetersäure konnten damit nur Abtrennungseffizienzen für das Neptunium von 13–23% erreicht werden.

Nuklid	Löslichkeitsverhältnis D
^{239}Np	1.31 ± 0.07
^{82}Br	0.85 ± 0.14
^{24}Na	0.29 ± 0.10

Tabelle 4.5: *Ermittelte Löslichkeitsverhältnisse für verschiedene Nuklide.*

Die durch chemische Aufbereitung der bestrahlten Proben erzielten Ergebnisse für die Urankonzentration sind in Tabelle 4.6 aufgelistet. Es zeigte sich, dass durch die geringe Extraktionseffizienz der Gewinn an Sensitivität gegenüber den Messungen mit INAA nur gering war (vgl. Tabelle 4.3).

	Sniamid ADS40T (Film)	Capron B13ZP (Granulat)	Capron B13ZP (Film)
Uran	$< 6.28 \cdot 10^{-11}$	$< 1.74 \cdot 10^{-10}$	$(1.15 \pm 0.16) \cdot 10^{-10}$

Tabelle 4.6: *Ergebnisse der Urankonzentration der untersuchten Nylonproben mittels RNAA. Die Fehler und Grenzen enthalten die statistische Unsicherheit (1σ).*

Allerdings lässt sich hier für den Nylonfilm CapronB13ZP eine Uranverunreinigung in der selben Größenordnung wie die bei der INAA gemessenen Thoriumkonzentration feststellen.

Kapitel 5

Anticompton-Spektrometer

5.1 Charakterisierung des Detektors

Ein wesentlicher Untergrundbeitrag bei den γ-Messungen rührt von gestreuten Photonen her. Durch Compton-Streuung aus dem bzw. in den Detektor wird nur ein Teil der Linienenergie des beim Zerfall erzeugten Photons registriert. Diese Teildeposition führt zum sogenannten Compton-Untergrund, der sich vor allem beim Nachweis von Photonen mit kleineren Energien störend auswirkt.
Umgibt man den Gemaniumdetektor mit einem weiteren Detektor, welcher diese gestreuten Photonen nachweist, so kann man über eine Antikoinzidenzschaltung diesen Untergrund aktiv unterdrücken. Aus diesem Grund wurde für den großen p-Typ Ge-Detektor ein

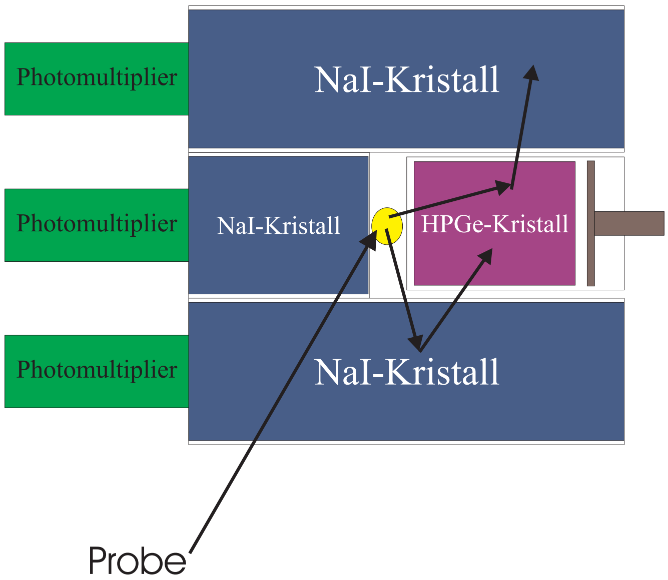

Abbildung 5.1: *Konfigurationsskizze der Detektoren. Die Pfeile zeigen zwei mögliche Varianten der Compton-Streuung (in den Ge-Kristall und aus dem Ge-Kristall heraus).*

NaI-Detektor angefertigt, in welchem der Ge-Detektor passgenau eingefügt ist. Der NaI-

Detektor besteht aus zwei Hohlzylinderhälften, jeweils segmentiert in drei Teile, welche separat über Photovervielfacher ausgelesen werden können. Der NaI-Kristall des Zylinders besitzt einen Außendurchmesser von 305 mm, einen Innendurchmesser von 132 mm und eine Länge von 300 mm. Auf der dem Ge-Detektor gegenüberliegenden Seite kann man einen weiteren NaI-Detektor plazieren, sodass die Probe in einer 4π-Geometrie umgeben ist. Allerdings steht in dieser Konfiguration für die Plazierung der Probe nur mehr ein Platz von 2.8 cm Breite zur Verfügung. Um die Absorption von Photonen in Totschichten, wie sie z. B. die Eintrittsfen-

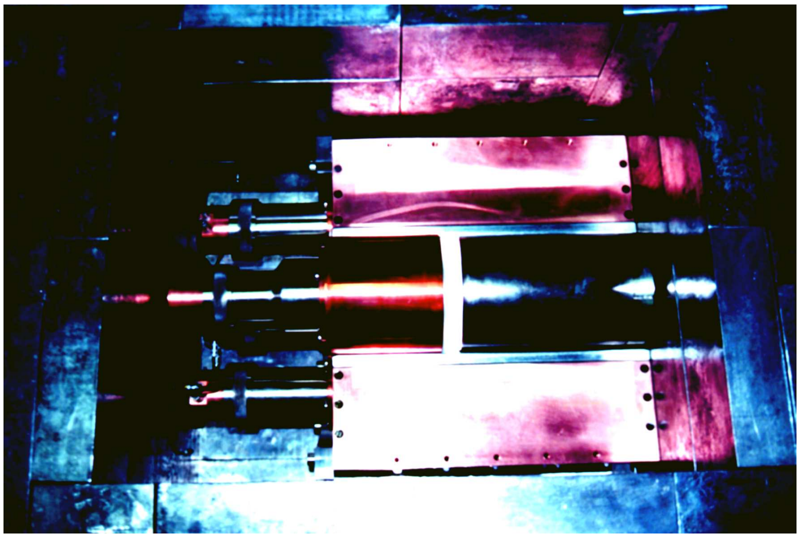

Abbildung 5.2: *Der Anti-Compton-Detektor geöffnet.*

ster der Detektoren darstellen, möglichst gering zu halten, wurden im Kompromiss mit der mechanischen Stabilität die Eintrittsfenster des Anticompton-Detektors aus 0.8 mm dünnem Reinstaluminium gefertigt. Ebenso wie der Vermeidung von unnötigen Totschichten galt der Eigenaktivität der verwendeten Materialien besondere Aufmerksamkeit. Wie schon erwähnt wurden die Eintrittsfenster aus klunterfreiem Reinstaluminium hergestellt. Die Aussenhülle ist aus Elektrolytkupfer gefertigt. Die elektronische Auslese erfolgt über aktivitätsarme Photovervielfacher, die optisch über einen Lichtleiter aus Quarz an die NaI-Kristalle gekoppelt sind. Allerdings führt die Umhüllung des Ge-Detektors mit dem Anticompton-Detektor zu einem erhöhten Linienuntergrund gegenüber der Untergrundmessung in der Konfiguration mit aktivem Myonveto und ohne NaI-Detektor.
Wie in Abbildung 5.3 deutlich zu erkennen ist, führt die Messung des Untergrundes mit dem Anticomptondetektor zu einem verringerten kontinuierlichen Untergrund im Energiebereich von 50 - 500 keV. Auch die Röntgenlinien (70 - 90 keV) sind stark unterdrückt. Die Annihilationslinie bei 511 keV ist bei beiden Messungen etwa gleich stark ausgeprägt, was darauf hindeutet, dass sowohl die Plastikszintillatoren als auch der Anticomptondetektor als Myonveto genauso effizient sind. Im Gegensatz zum kontinuierlichen Untergrund ist allerdings der Untergrund einiger diskreter Linien stark erhöht, wie in Abbildung 5.3 zu erkennen ist. Besonders γ-Linien von ^{40}K (1461 keV), ^{214}Bi (1120, 1377 und 1764 keV) und ^{214}Pb (241, 295 und 352 keV) sind stark erhöht. Diese Erhöhung liegt an der intrinsischen Verunreinigung des NaI-Detektors.

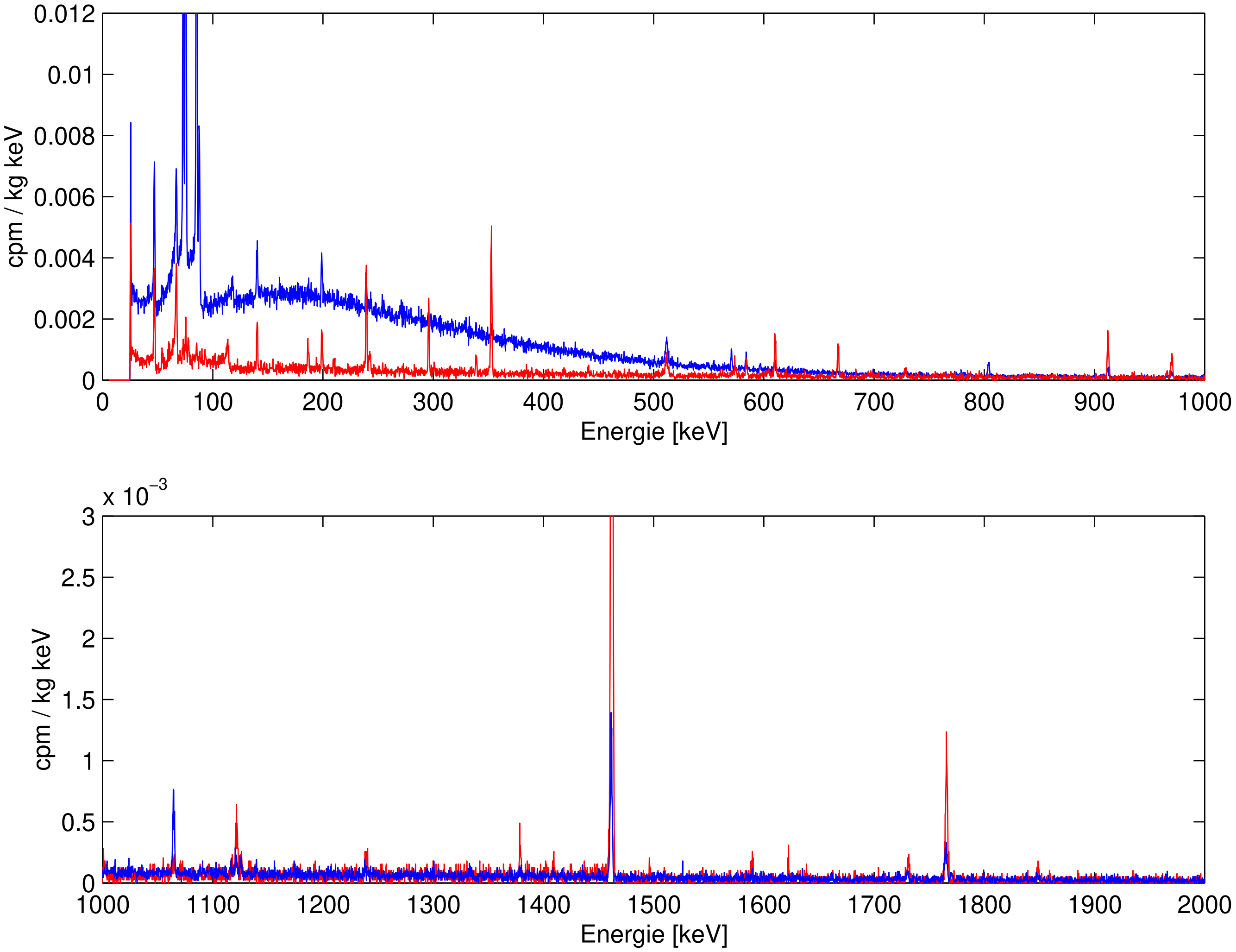

Abbildung 5.3: *Der Untergrund des großen p-Typ Ge-Detektors umgeben vom Anticompton-Detektor (rote Kurve) und ohne Anticompton, aber mit Myonveto (blaue Kurve).*

5.2 Möglichkeiten neuer Koinzidenztechniken

Wie schon in Kapitel 5.1 beschrieben, können die einzelnen Segmente der Hohlzylinderhälften, sowie der NaI-Stöpsel separat ausgelesen werden. Dabei wurden die verschiedenen Detektoren in drei Gruppen zusammengefasst: Der NaI-Hohlzylinder als Ring, der NaI-Stöpsel und der Ge-Detektor. Diese lassen sich dann in unterschiedlichen Modi auslesen:

1. Germaniumdetektor, Ringdetektor und NaI-Stöpsel in Antikoinzidenz.
2. Germaniumdetektor, Ringdetektor in Antikoinzidenz, Stöpsel in Koinzidenz.
3. Germaniumdetektor, Ringdetektor und NaI-Stöpsel in Koinzidenz.

Für die zuerst und zuletzt genannten Auslesemodi wurde jeweils mit einer Cobaltquelle ein Spektrum aufgenommen.

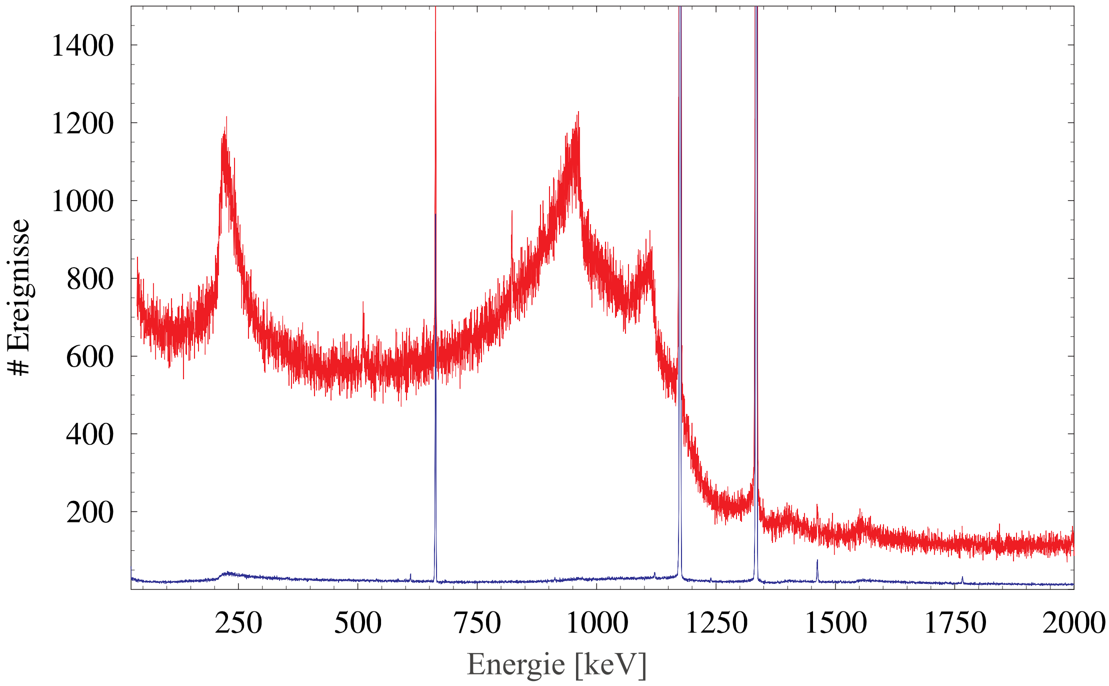

Abbildung 5.4: *Spektrum einer ^{60}Co-Quelle mit dem großen p-Typ Ge-Detektor und dem Anticompton-Detektor in Antikoinzidenz und ohne Koinzidenz. Die Spektren wurden jeweils auf dieselbe Messzeit normiert.*

Deutlich zu sehen sind die beiden ^{60}Co-Linien bei 1172.3 keV und 1333.5 keV und der von ihnen erzeugte Comptonuntergrund (rote Kurve in Abbildung 5.4). Der Effekt des in Antikoinzidenz zum Ge-Detektor geschalteten NaI-Detektors zeigt sich eindrucksvoll in dem reduzierten Untergrund (blaue Kurve). Damit wurde im Bereich von 0.2 - 1 MeV eine Unterdrückung des Untergrundes um einen Faktor 30 - 50 erreicht. Natürlich wird bei dieser aktiven Unterdrückung aber auch die Linienintensität selbst unterdrückt, besonders bei Nukliden, die simultan mehrere Linien mit hoher Übergangswahrscheinlichkeit emittieren. Dieser Effekt kann bei störenden Nukliden, wie z. B. ^{82}Br, durchaus erwünscht sein, muss aber bei Konzentrationsberechnungen von interessierenden Nukliden berücksichtigt werden. Deutlich erkennbar in den Spektren in Abbildung 5.4 ist auch eine Linie bei 661.7 keV, welche durch eine Cs-Verunreinigung der Quelle zustande kam.
Wie schon erwähnt bietet der NaI-Detektor neben der Möglichkeit einer Koinzidenzschaltung zum Ge-Detektor die Option einer Einzelauslese der verschiedenen Ereignisse in den jeweiligen separaten Detektoren. Auch dies wurde mit einer ^{60}Co-Quelle getestet. In den Abbildungen 5.5 und 5.6 wurden der Germanium-Detektor und der gesamte Anticompton-Detektor, d.h. NaI-Ring und NaI-Stöpsel zusammengeschaltet, getrennt ausgelesen, während in Abildungen 5.7 und 5.8 NaI-Ring und NaI-Stöpsel ebenfalls getrennt ausgelesen wurden. Abbildung 5.5 und Abbildung 5.7 zeigen dabei das von den jeweiligen Detektoren aufgenommene Spektrum. Dabei muss beachtet werden, dass bei Einzelauslese des kompletten NaI-Detektors und des Ge-Detektors beide durch einen Ortec-ADC[1] mit 8192 Kanälen aus-

[1]ADC steht für Analog-Digital-Wandler.

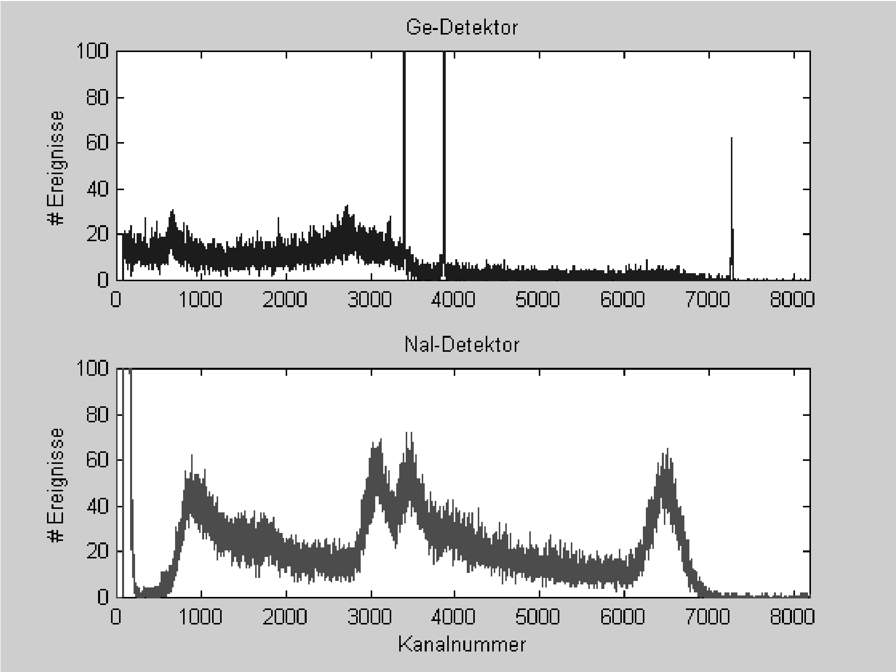

Abbildung 5.5: *Einzelauslese des Ge-Detektors und des kompletten NaI-Detektors. Deutlich zu sehen sind die beiden* ^{60}*Co-Linien in beiden Spektren und die wesentlich bessere Auflösung des Ge-Detektors.*

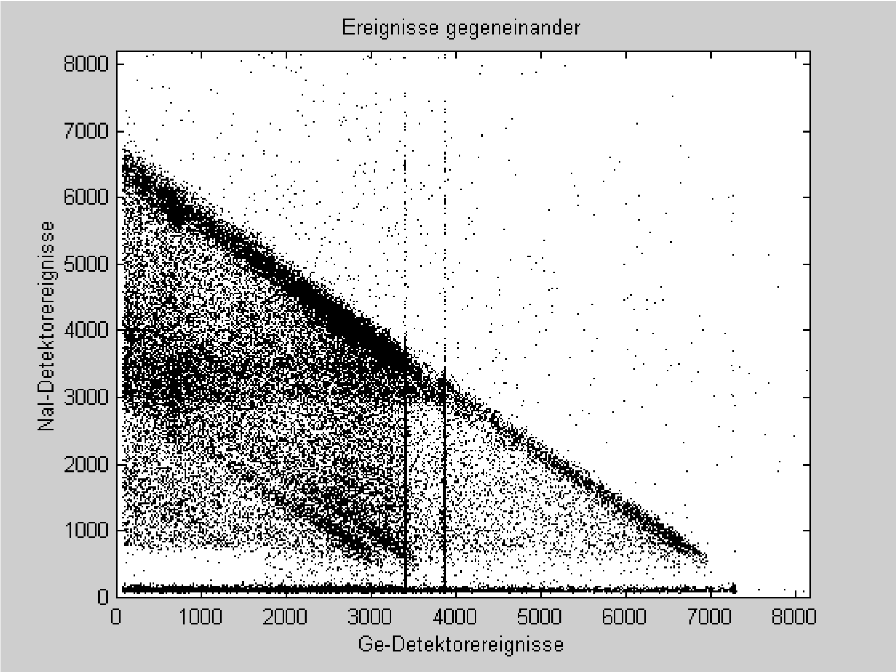

Abbildung 5.6: *Die Einzelereignisse in den beiden Detektoren gegeneinander aufgetragen.*

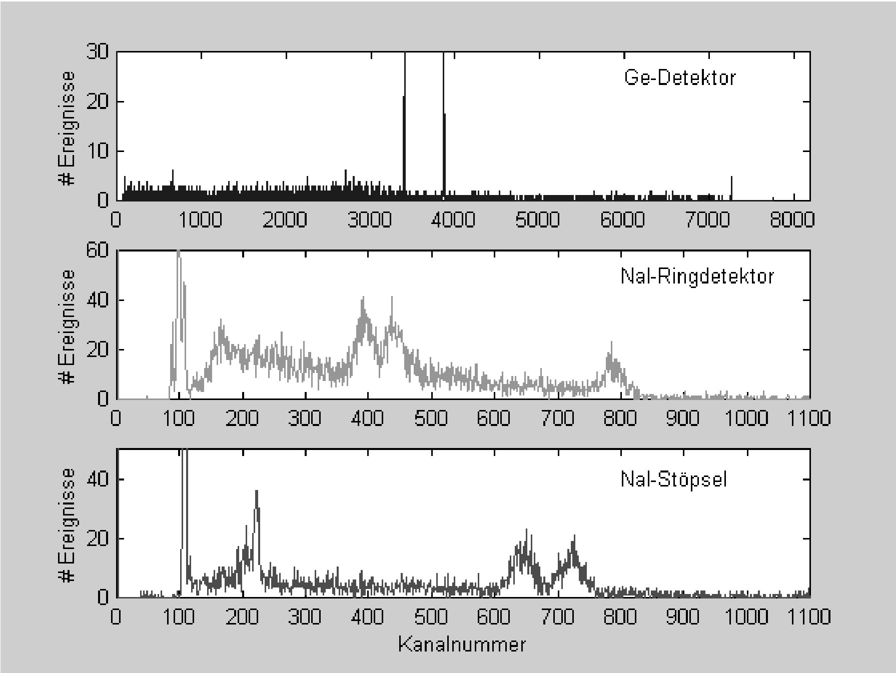

Abbildung 5.7: *Einzelauslese des Ge-Detektors, des NaI-Ringdetektors und des NaI-Stöpsels. In allen drei Spektren sind die beiden ^{60}Co-Peaks deutlich erkennbar.*

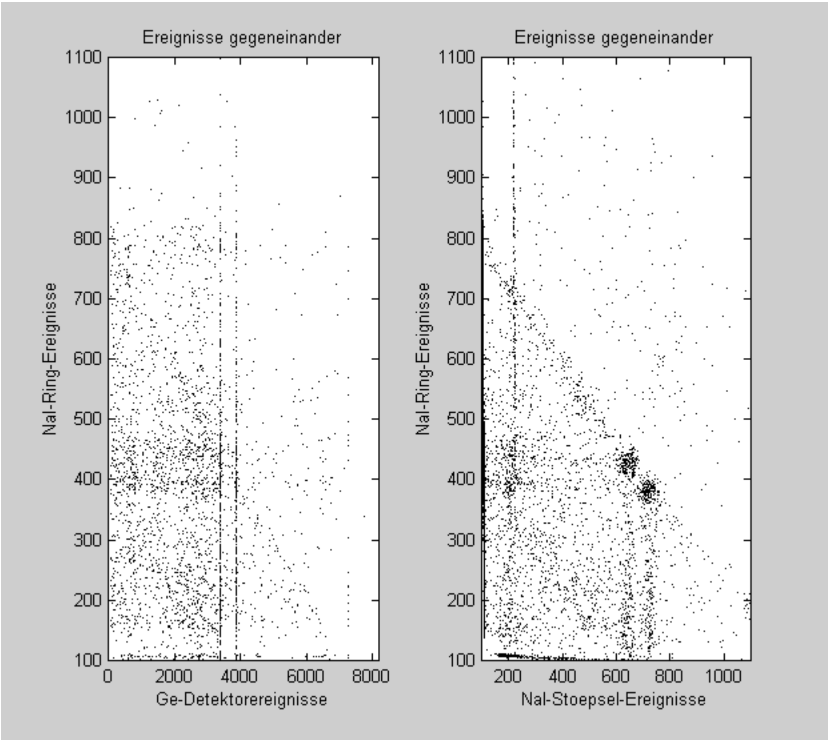

Abbildung 5.8: *Einzelereignisse der Detektoren gegeneinander aufgetragen.*

gelesen wurden, während bei Abbildung 5.7 die beiden separaten NaI-Detektoren mit einem LeCroy-ADC mit je 1024 Kanälen ausgelesen wurden.
In den aufgenommenen Spektren sind jeweils die beiden ^{60}Co-Linien und, so es denn die jeweilige Verstärkung zulässt, die Summenlinie zu erkennen. Dabei ist die deutlich bessere Energieauflösung des Ge-Detektors gegenüber dem NaI-Detektor offensichtlich.
In Abbildung 5.6 und Abbildung 5.8 sind die einzelnen Ereignisse der Detektoren in einem sogenannten „Scatter-Plot“ gegeneinander aufgezeichnet.
Im Scatter-Plot der Abbildung 5.6 sind ebenfalls klar die beiden Linien in den separat ausgelesenen Detektoren zu erkennen. Auch hier sind die Linien im Ge-Detektor wesentlich schmäler. Die diagonale Verbindung der jeweiligen Linien kennzeichnen den Fall, dass die Linienenergie zwischen beiden Detekoren durch Comptonstreuung aufgeteilt wird. Demgegenüber stellt die diagonale Grenzgerade den Fall dar, in dem die Summe der Linienenergien zwischen beiden Detektoren aufgeteilt wird. Ereignisse oberhalb dieser Diagonalen stammen von Untergrundereignissen, wie z. B. myoninduzierten Ereignissen oder zufälligen Koinzidenzen. Beim Zerfall des ^{60}Co gelangen beide Linien verglichen mit der Zeitauflösung der beiden Detektoren gleichzeitig mit fast 100 % Übergangswahrscheinlichkeit in die einzelnen Detektoren. Die größere Wahrscheinlichkeit einer Energiedeposition im NaI-Detektor aus Raumwinkelgründen und wegen der wesentlich größeren Detektormasse erkennt man an der Häufung der Ereignisse auf der Grenzdiagonalen zu niedrigeren Energien des Ge-Detektors.
Im linken Teilbild der Abbildung 5.8 sind die Ereignisse des Ge-Detektors gegen die Ereignisse des NaI-Ringdetektors aufgetragen, im rechten Teilbild dagegen die beiden separat ausgelesenen NaI-Detektoren. Prinzipiell lassen sich auch hier die oben beschriebenen Sachverhalte erkennen, allerdings wegen der geringeren Messzeit und dadurch verminderten Anzahl an Datenpunkten nur schwach ausgeprägt. Beim Plot der beiden NaI-Detektoren gegeneinander ist beim NaI-Stöpsel auch eine schmale starke Linie bei Kanalnummer 200 zu erkennen, die auf eine Störung der elektronischen Datenaufnahme zurückzuführen ist.
Details zur elektronischen Auslese der Ereignisse finden sich im nächsten Abschnitt.

5.3 Erste Messungen

Der erste Aspekt bei Messungen von bestrahlten Proben mit dem Anticompton-Detektor galt der erreichbaren Unterdrückung im Bereich der γ-Linien von Neptunium und Protactinium. Dabei ist zu beachten, dass bei bestrahlten Proben durch die vielen kurzlebigen Nuklide, welche für den Hauptanteil des kontinuierlichen Untergrundes verantwortlich sind, die erreichbare Unterdrückung am Anfang größer ist als nach einer längeren Abklingzeit. Der Anticompton-Detektor unterdrückt den Comptonuntergrund auf einen Untergrund, der immer vorhanden ist. Dieser Untergrund ist nur wenig abhängig von der Aktivität der bestrahlten Probe. Bei starker Aktivität der bestrahlten Probe durch viele kurzlebige Nuklide und einem dementsprechend hohem Comptonuntergrund ist der Faktor der Unterdrückung auf dieses Untergrundniveau höher als bei schwächer ausgeprägtem Comptonuntergrund.
In Abbildung 5.9 ist ein gemessenes Nylonspektrum aufgeplottet, bei dem die Datenaufnahme parallel mit und ohne Anticompton-Veto erfolgte.

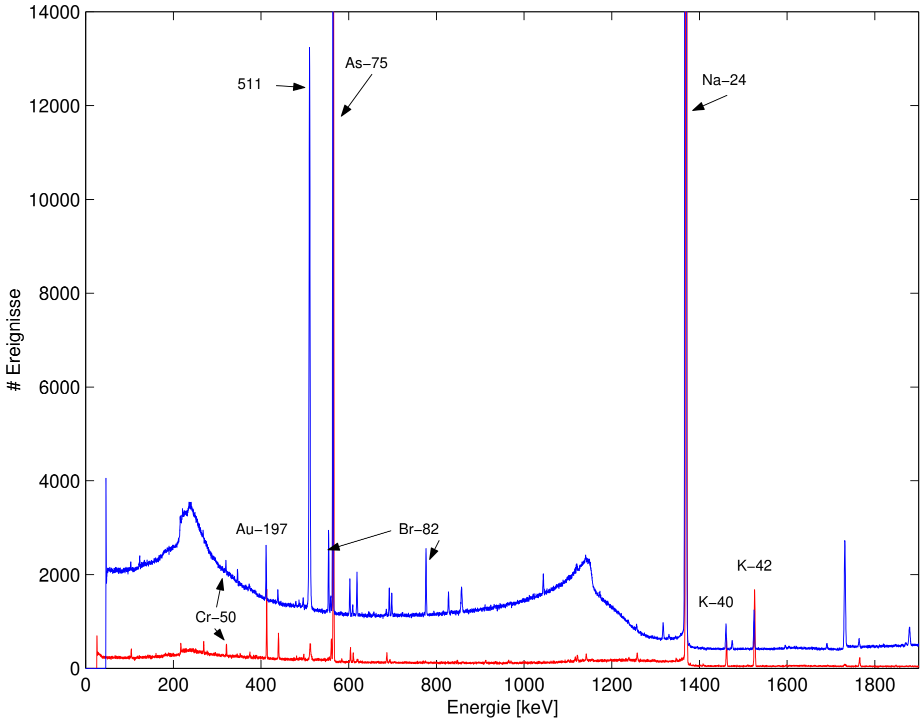

Abbildung 5.9: *Messung einer Nylonprobe ohne und mit dem NaI-Detektor in Antikoinzidenz.*

Hauptverantwortlich für den Untergrund sind hierbei die Nuklide Natrium und Arsen, aber auch die 511 keV-Linie stellt einen größen Beitrag dar. Deutlich sichtbar ist bei der Messung ohne Anticompton-Veto die von diesen Nukliden erzeugte Compton-Kante, die der maximalen Energiedeposition des Photons bei Rückwärtsstreuung entspricht. Bei der Messung mit dem NaI-Detektor in Antikoinzidenz (rote Kurve in Abbildung 5.9) sind diese Compton-Kanten und der sonstige kontinuierliche Comptonuntergrund stark unterdrückt. Auch einige Linien, wie die von Brom und Natrium, sind entweder ganz verschwunden oder zumindest

stark unterdrückt. Dies gilt auch für die Annihilationslinie bei 511 keV, an der man schon in Abbildung 5.3 die Effizienz des NaI-Detektors als Myonveto sehen konnte. Andere Linien dagegen, wie die von Gold, Chrom oder Kalium dagegen sind nur gering bzw. gar nicht unterdrückt. Diese Eigenschaften lassen sich für Messungen mit dem NaI-Detektor in Antikoinzidenz ausnutzen (siehe Nachfolgendes). Bei Messungen konnte für die Nylonproben im Bereich der Np-Linien eine maximale Unterdrückung um einen Faktor 16.9, im Bereich der Pa-Linie maximal um einen Faktor 13.3 bestimmt werden.
Der nächste Aspekt, den es zu berücksichtigen galt, war die durch die Antikoinzidenz des NaI-Detektors verursachte Selbstunterdrückung der einzelnen γ-Linien.

Nuklid	**Energie der γ-Linie [keV]**	**Unterdrückungs-faktor**
Uran	99	0.77 ± 0.019
	103.7	0.93 ± 0.023
	106	0.28 ± 0.024
Thorium	312	0.94 ± 0.019

Tabelle 5.1: *Die Unterdrückungskoeffizienten der γ-Linien von Uran und Thorium.*

Betrachtet man den Zerfall des Nuklids ^{233}Pa (Halbwertszeit von 27 Tagen) genauer, so erkennt man, dass die 312 keV-Linie ohne weitere Kaskaden davor direkt auf den Grundzustand von ^{233}U zerfällt. Dies eröffnet die Möglichkeit, die Sensitivität der Thoriumbestimmung durch eine Unterdrückung des kontinuierlichen Untergrundes im Bereich der ^{233}Pa-Linie und bei gleichzeitig minimaler Summenkorrektur zu erreichen. Ähnliches gilt im Prinzip für Kalium.
Beim Zerfall des ^{239}Np gilt es allerdings zu beachten, dass die γ-Linie bei 106 keV in Kaskade mit den Linien 228.18 keV oder 277.60 keV und koinzident mit den beiden Röntgenlinien bei 99 keV und 103.7 keV emittiert wird.
Durch Messungen von Eichaktivitäten wurde die Selbstunterdrückung für Neptunium und Protactinium ermittelt. Die Faktoren mit denen die jeweilige Linie noch zu beobachten ist zeigt Tabelle 5.1. Wie oben beschrieben weist die 106 keV-Linie des ^{239}Np-Zerfalls eine starke Selbstunterdrückung auf, während diese für die beiden Röntgenlinien nicht so sehr ausgeprägt ist. Die 312 keV-Linie des ^{233}Pa-Zerfalls hingegen zeigt nur eine geringe Selbstunterdrückung, verursacht durch Röntgenquanten, die koinzident emittiert werden. Um durch die aktive Reduktion des Compton-Untergrundes die Sensitivität für Protactinium zu steigern, wurden die Nylonproben nach der Bestrahlung und einer entsprechenden Abklingzeit von mehreren Tagen zur Reduktion des Untergrundes kurzlebiger Nuklide jeweils ca. eine Woche lang mit aktivem Anti-Compton-Veto gemessen. Bei Neptunium heben sich der Gewinn an Sensitivität durch Verminderung des Untergrundes und der Verlust aufgrund der Selbstunterdrückung gegenseitig auf.
Die Ergebnisse dieser Messungen finden sich in Tabelle 5.2. Dabei konnten für die gemessenen Proben die notwendigen Grenzen an Thoriumkontamination erreicht werden. Vergleicht man zudem die Werte für Kalium aus Tabelle 4.3 und Tabelle 5.2, so zeigt sich auch hier Übereinstimmung. Auch liegen die Werte für Uran in derselben Größenordnung. Die Werte der restlichen Elementkonzentrationen in Tabelle 5.2 wurden nicht auf Selbstunterdrückung

	Sniamid ADS40T (Folie)	**Capron B13ZP** (Granulat)	**Selar 10 % Capron 90 %** (Folie)	**Sniamid ADS40T** (Granulat)
Th	$< 7.99 \cdot 10^{-12}$	$< 1.11 \cdot 10^{-11}$	$< 1.27 \cdot 10^{-11}$	—
U	$< 1.97 \cdot 10^{-10}$	$< 2.97 \cdot 10^{-10}$	$< 3.15 \cdot 10^{-10}$	$< 4.45 \cdot 10^{-11}$
K	$7.21 \cdot 10^{-08}$	$2.47 \cdot 10^{-08}$	$1.15 \cdot 10^{-08}$	$1.44 \cdot 10^{-08}$
Cr	$2.18 \cdot 10^{-08}$	$3.04 \cdot 10^{-09}$	$8.97 \cdot 10^{-08}$	$1.95 \cdot 10^{-08}$
W	$2.32 \cdot 10^{-10}$	$2.13 \cdot 10^{-11}$	$3.83 \cdot 10^{-10}$	$6.82 \cdot 10^{-11}$
Au	$3.36 \cdot 10^{-11}$	$2.74 \cdot 10^{-12}$	$5.80 \cdot 10^{-11}$	$1.63 \cdot 10^{-12}$
Br	$1.18 \cdot 10^{-10}$	—	$9.71 \cdot 10^{-10}$	$6.21 \cdot 10^{-10}$
Na	$3.60 \cdot 10^{-08}$	$2.71 \cdot 10^{-08}$	$6.45 \cdot 10^{-08}$	$2.63 \cdot 10^{-08}$
Sb	$1.76 \cdot 10^{-09}$	$2.96 \cdot 10^{-09}$	$5.53 \cdot 10^{-09}$	$3.88 \cdot 10^{-10}$
As	$7.49 \cdot 10^{-11}$	$3.37 \cdot 10^{-11}$	$1.81 \cdot 10^{-10}$	$5.13 \cdot 10^{-11}$
Zn	$5.18 \cdot 10^{-08}$	$7.08 \cdot 10^{-09}$	$5.88 \cdot 10^{-08}$	$1.85 \cdot 10^{-08}$
Fe	$7.02 \cdot 10^{-07}$	—	$4.48 \cdot 10^{-07}$	$2.23 \cdot 10^{-07}$
Co	$6.47 \cdot 10^{-10}$	—	$5.28 \cdot 10^{-09}$	$2.05 \cdot 10^{-09}$
Cu	$7.54 \cdot 10^{-07}$	—	$3.41 \cdot 10^{-07}$	$1.84 \cdot 10^{-07}$
Sm	$7.05 \cdot 10^{-12}$	—	$8.53 \cdot 10^{-12}$	—
Mo	—	—	$5.64 \cdot 10^{-09}$	—
In	—	—	$6.73 \cdot 10^{-09}$	—

Tabelle 5.2: *Konzentrationen der einzelnen Elemente in [g/g] aus den Messungen mit dem NaI-Detektor in Antikoinzidenz. Nur die Werte für Kalium, Uran und Thorium sind kaskaden-korrigiert. Die Grenzen beinhalten den statistischen Fehler (1σ).*

korrigiert, da sie für BOREXINO als Verunreinigungen im Nylon geringere Relevanz haben. Aus diesem Grund sind die Konzentrationsangaben von Brom, Natrium und Cobalt, sowie der anderen aufgelisteten Elemente teilweise um Größenordnungen zu niedrig.

Die oben geschilderte Möglichkeit der koinzidenten Einzelauslese der verschiedenen Detektoreinheiten wurde nun dazu verwendet, um mit Hilfe eines selbst geschriebenen Programms gezielt γ-γ-Kaskadenereignisse beim Zerfall des ^{239}Np zur selektiven Reduktion des Untergrundes auszunutzen. Dabei wird bei den beiden NaI-Detektoren, dem NaI-Ring und dem NaI-Stöpsel, auf den Energiebereich von 98-107 keV per Software ein Fenster gesetzt, und bei der späteren Auswertung nur die Ereignisse im Ge-Detektor berücksichtigt, bei denen die koinzidenten Ereignisse im NaI-Detektor in diesem Fenster liegen.
Um die Kanalbereiche der Fenster für die einzelnen NaI-Segmente festzulegen, wurde mit einem Mischnuklid-Standard eine Kalibrationseichung der Einzelauslese durchgeführt. Die damit aufgenommenen Spektren sind auf der linken Seite von Abbildung 5.10 dargestellt.
Die aus der Eichung der jeweiligen Kanäle aus den angefitteten Linien gegen die Energie resultierende lineare Kalibrationsgerade ist jeweils auf der rechten Seite der Abbildung und die damit erhaltenen Ergebnisse unten aufgetragen:

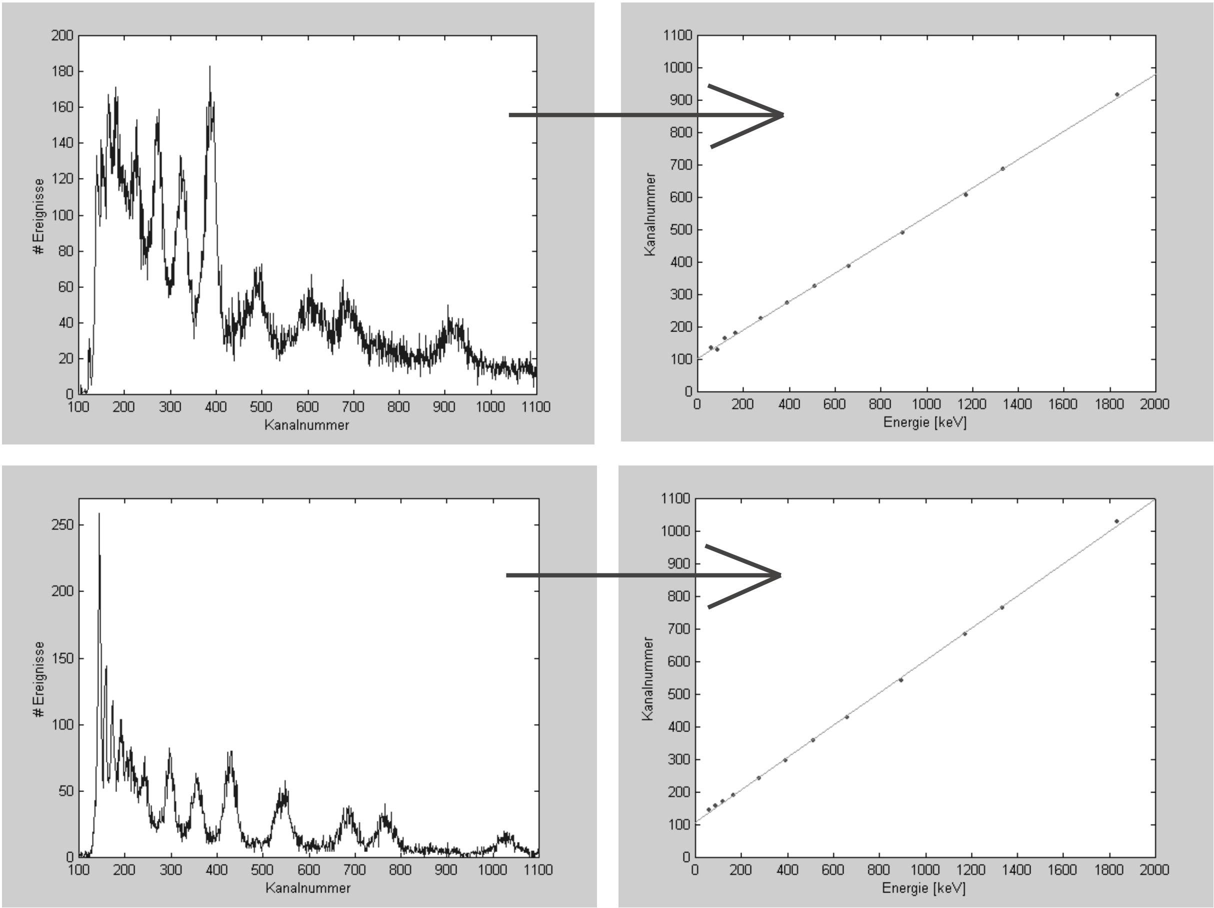

Abbildung 5.10: *Kalibrierung der Einzelauslese mit einem Mischnuklidstandard. Die oberen beiden Bilder zeigen links das über die Einzelauslese des Camac-Moduls aufgenommene Spektrum und rechts die daraus resultierende Eichgerade des NaI-Rings. Die beiden unteren Bilder zeigen das Entsprechende für den NaI-Stöpsel.*

$$
\begin{array}{rlcl}
\textbf{Ring} & \text{Kanal} = 102.46 + \text{Energie (in keV)} \cdot 0.44 & \Longrightarrow & 99\,\text{keV} \equiv \text{Kanal}\,145.86 \\
 & & & 106\,\text{keV} \equiv \text{Kanal}\,148.93 \\
\textbf{Stöpsel} & \text{Kanal} = 107.60 + \text{Energie (in keV)} \cdot 0.50 & \Longrightarrow & 99\,\text{keV} \equiv \text{Kanal}\,156.63 \\
 & & & 106\,\text{keV} \equiv \text{Kanal}\,160.09
\end{array}
$$

Aus einer Kontrollmessung mit einem Neptuniumstandard konnte der Kanalbereich bei dem NaI-Ring zwischen 135 und 165 und bei dem NaI-Stöpsel zwischen 145 und 175 eingeengt werden, in sehr guter Übereinstimmung mit den oben ermittelten Werten. Dieser erweiterte Bereich diente bei der Datenaufnahme als Koinzidenzfenster.
Die Datenaufnahme erfolgte dabei mit LabView, wobei die Daten im ASCII-Textformat in den Speicher des Computers geschrieben wurden. Das aufgenomme Spektrum der drei sepa-

raten Detektoren ließ sich während der Messung an einem erzeugten Histogramm kontrollieren. Bei Eichmessungen mit einem Eichstandard zeigte sich nun, dass die Aufnahmerate des Systems je nach Binning des Histogramms auf maximal 30 Hz beschränkt blieb, sodass die Effizienz der Datenrate stark mit der Aktivität der Probe korrelierte. Die Effizienz der Fenster-Cuts wurde dagegen ratenunabhängig zu etwa (20.22 ± 1.27) % bestimmt.
In Tabelle 5.3 sind Ergebnisse der Urankonzentrationen von Nylonmessungen, die mit dieser Methode untersucht wurden, dargestellt.

Nylonprobe	**Effizienz der Einzel auslese in [%]**	**Urankonzentration [g/g]**
Sniamid ADS40T (Film)	3.43	$< 6.52 \cdot 10^{-11}$
Capron B13ZP (Granulat)	18.43	$< 1.14 \cdot 10^{-11}$

Tabelle 5.3: *Ergebnisse der Urankonzentrationen in [g/g] bei Messungen unter Verwendung der koinzidenten Einzelauslese der Detektoren. Die Grenzen berücksichtigen den statistischen Fehler (1σ).*

Dabei lag die Sensititvität der Methode im Bereich der mit RNAA erhaltenen Ergebnisse.

Kapitel 6

Simulationen der Detektoren

6.1 Das Programm EGS4

Ein problematischer Aspekt bei den γ-Spektroskopie-Messungen besteht in der Unsicherheit der Detektoreffizienz. Diese ist vom Abstand der Quelle zum Detektor, der Geometrie der Anordnung, dem Material der Quelle und der Energie der emittierten γ-Linie abhängig. Eichstandards lassen sich nicht in allen Material- und Geometriekonfigurationen realisieren. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit versucht, Effizienzen aus Monte-Carlo-Simulationen zu bestimmen. Es wurde eine von Dr. Josef Jochum umgeänderte Version des Programmes EGS4 (**E**lektron-**G**amma-**S**chauer) verwendet, welches dem jeweiligen Detektor und dem gewünschten Simulationszweck entsprechend angepasst werden kann.
EGS4 ist eine erweiterte Version des Programmes EGS3, welches 1978 ursprünglich konzipiert wurde, um elektromagnetische Wechselwirkungen in verschiedenen Geometrien und im Energiebereich von einigen tausend GeV bis zu einer Abbruchenergie von 0.1 MeV für Photonen und 1 MeV für Elektronen für die Beschleunigerexperimente am SLAC[1] zu simulieren. Seither wurden die unteren Abbruchenergien bis auf 1 keV für Photonen und 10 keV für Elektronen abgesenkt und EGS3 wurde als Transport-Code für niederenergetische Elektron-Photon-Wechselwirkungen sehr weit verbreitet. In der Version 4 sind einige Korrekturen und Zusätze implementiert.
Der Strahlungstransport erfolgt für Elektronen, Positronen oder Photonen in zufälligen Schrittweiten, wobei jedes Element oder jede Verbindung als Medien benutzt werden können. Die notwendigen Daten dafür werden durch PEGS4[2] mit Tabellen der Wirkungsquerschnitte für alle Elemente bereitgestellt. Dabei berücksichtigt EGS folgende physikalische Prozesse:

1. Für Elektronen/Positronen
   - Bremsstrahlung,
   - Annihilation der Positronen,
   - Vielfach-Molière-Streuung, d.h. Compton-Streuung an Kernen,

[1] Stanford Linear Accelerator, Stanford Linearbeschleuniger.
[2] Pre-Prozessor für EGS.

- Møller(e^-e^-)- und Bhabha(e^+e^-)-Streuung, und
- Kontinuierlicher Energieverlust während diskreter Interaktionen.
  - Die totale Stoppfähigkeit setzt sich aus sanfter Bremsstrahlung und Kollisionsverlusttermen zusammen.
  - Kollisionsverlust wird nach der Bethe-Bloch-Formel berechnet.

2. Und für Photonen
   - Paarproduktion,
   - Compton-Streuung,
   - kohärente Rayleigh-Streuung und
   - Photoelektrischer Effekt.

EGS4 ist ein Programmpaket bestehend aus Subroutinen und Block-Daten mit einem flexiblen Benutzer-Interface. Mit den vom Benutzer geschriebenen Subroutinen „HOWFAR“ und „AUSGAB“ werden dem Programm Geometrie-, Materialangaben und Randbedingungen, wie z. B. elektrisches Feld oder Magnetfeld, der jeweiligen Konfiguration, als auch die gewünschten Ausgabeparameter mitgeteilt. Dadurch wird vermieden, dass der Benutzer zu sehr in den Programm-Code eingreifen muss, wodurch die Wahrscheinlichkeit für eingebrachte Fehler verringert wird, und zugleich eine Benutzung des Programmes gewährleistet wird, ohne allzusehr mit den Einzelheiten der Berechnungen vertraut zu sein. In Abbildung 6.1 ist ein Flussdiagramm des Programms dargestellt. Die Startenergie der Teilchen kann dabei diskret oder kontinuierlich gewählt sein, die Emission der Teilchen isotrop oder gerichtet. Über verschiedene Umstellungen ist es auch möglich Myonen (μ^+ und μ^-) und den Start von zwei Photonen aus einem Pion-Zerfall zu simulieren. Die Daten sind aus [EGS85] entnommen.

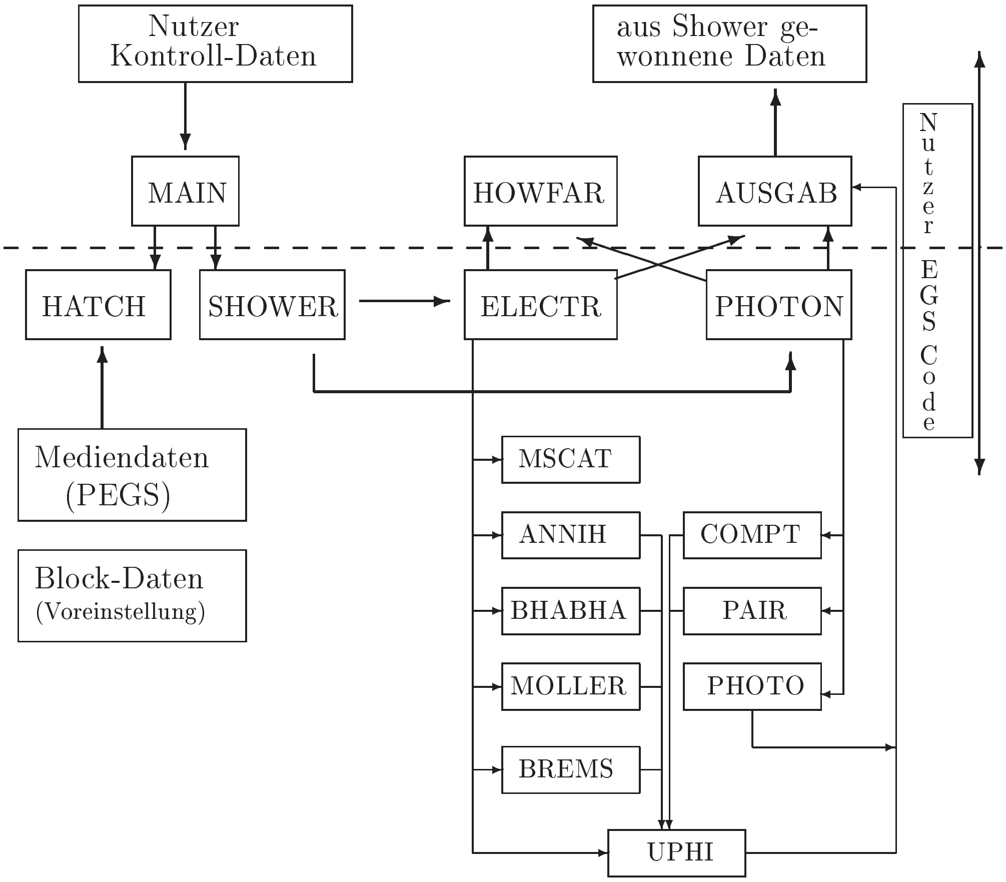

Abbildung 6.1: *Flussdiagramm des Programmes EGS4. Entnommen aus [EGS85].*

6.2 Effizienzmessungen der Detektoren

Um die Simulationen mit den Detektoreffizienzen abgleichen zu können, wurden für alle Detektoren neue Effizienzmessungen durchgeführt. Für diese Messungen wurde ein neu präparierter Mischnuklidstandard benutzt. Dieser Mischnuklidstandard wird durch pipettieren von 200 μl Standardflüssigkeit auf ein Filterpapier von 18 mm Durchmesser und ca. 0.5 mm Dicke hergestellt. Bei Versuchen mit Filterpapieren verschiedener Dicke und Sorte konnte gezeigt werden, dass sich eine 200 μl wässrige Lösung bei dieser Filterpapierstärke gleichmäßig vom Mittelpunkt über die ganze Fläche verteilt. Bei einer Simulation muss diese Flächenausdehnung berücksichtigt werden.
Für die einzelnen Detektoren wurden Effizienzkurven von 0 cm Abstand bis 25 cm Abstand (beim großen p-Typ Ge-Detektor nur bis 20 cm) mit einer Schrittweite von 5 cm aufgenommen, um den Abfall der Effizienz mit dem Abstand bestimmen zu können. In den Abbildungen 6.2 bis 6.4 sind auf der linken Seite die aufgenommenen Effizienzkurven dargestellt. Rechts ist das Abfallverhalten der Effizienz mit dem Abstand für die Linienenergien 121.1 keV, 661.7 keV und 1332.5 keV gezeigt.
Deutlich sichtbar ist der wesentlich stärkere Abfall der Effizienz der Loax-Detektoren mit Zunahme der Energie und die höhere Effizienz bei niedrigen Energien im Bereich von 0–300 keV verglichen mit dem großen p-Typ Ge-Detektor. Bei größeren Abständen relativiert sich dieser Vorteil aus Raumwinkel-, bzw. Detektormassegründen. Die große Detektormasse des p-Typ Ge-Detektors erklärt auch die größeren Effizienzen bei höheren Energien der γ-Quanten.
Betrachtet man die Effizienzkurven bei verschiedenen Energien genauer, so fällt auf, dass bei geringem Abstand, vor allem bei einer Plazierung der Eichquelle direkt vor dem Detektor (Abstand 0 cm), die Effizienzen bei hohen Energien zu niedrig berechnet sind. Man erkennt dies, wenn man die Werte bis 700 keV mit einer Kurve annähert und diese zu hohen Energie extrapoliert (Dies ist in den Abbildungen nicht gezeigt). Die Ursache liegt in den bei der Kalibration verwendeten γ-Linien: Für die Berechnung der Effizienzen wurden bei dem verwendeten Mischnuklidstandard Linienenergien von den γ-Emittern ^{88}Y und ^{60}Co benutzt. Zur Kalibration wurden von den beiden Isotopen jeweils zwei γ-Linien mit Energien von 898 keV und 1836 keV für ^{88}Y und 1172.3 keV und 1332.5 keV für ^{60}Co verwendet. Da diese γ-Linien von den beiden Nukliden allerdings koinzident und isotrop emittiert werden, ist die Wahrscheinlichkeit, dass beide Linien gleichzeitig im Detektor registriert werden und somit in der Fläche der einzelnen Linie fehlen, gerade bei geringem Abstand zum Detektor sehr groß. Dies führt zu einer Selbstunterdrückung, die durch eine Summenkorrektur berücksichtigt werden muss. Bei größeren Abständen nimmt die Wahrscheinlichkeit für eine koinzidente Detektion beider Linien ab und der Effekt verschwindet.
Der Abfall der Effizienzen mit dem Abstand lässt sich jeweils durch eine 1/r^2-Kurve der Form

$$E = C + \frac{A}{(r-B)^2} \tag{6.1}$$

approximieren, wobei in dieser Formel E die Effizienz in Prozent, r der Abstand in cm und A, B und C Faktoren aus der Fit-Prozedur sind. Dieses Verhalten ist in den Abbildungen 6.2 bis 6.4 auf der rechten Seite anhand der gepunkteten Fitkurven dargestellt.

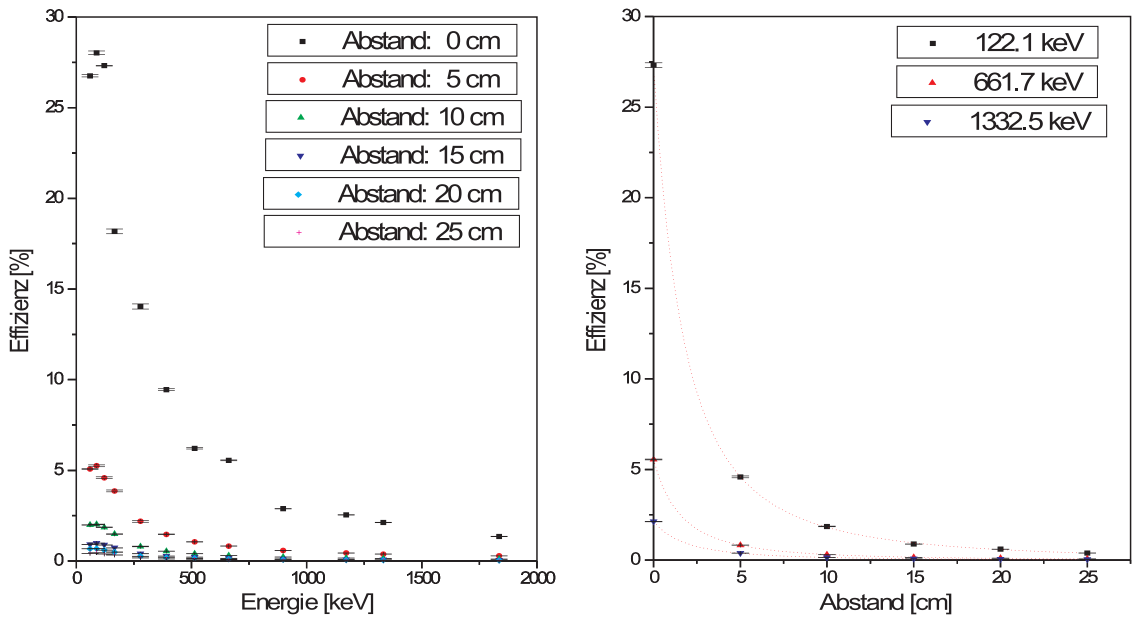

Abbildung 6.2: *Effizienzen des n-typ Ge-Detektors Loax1. Die Fehlerbalken geben den statistischen Fehler (1σ) an.*

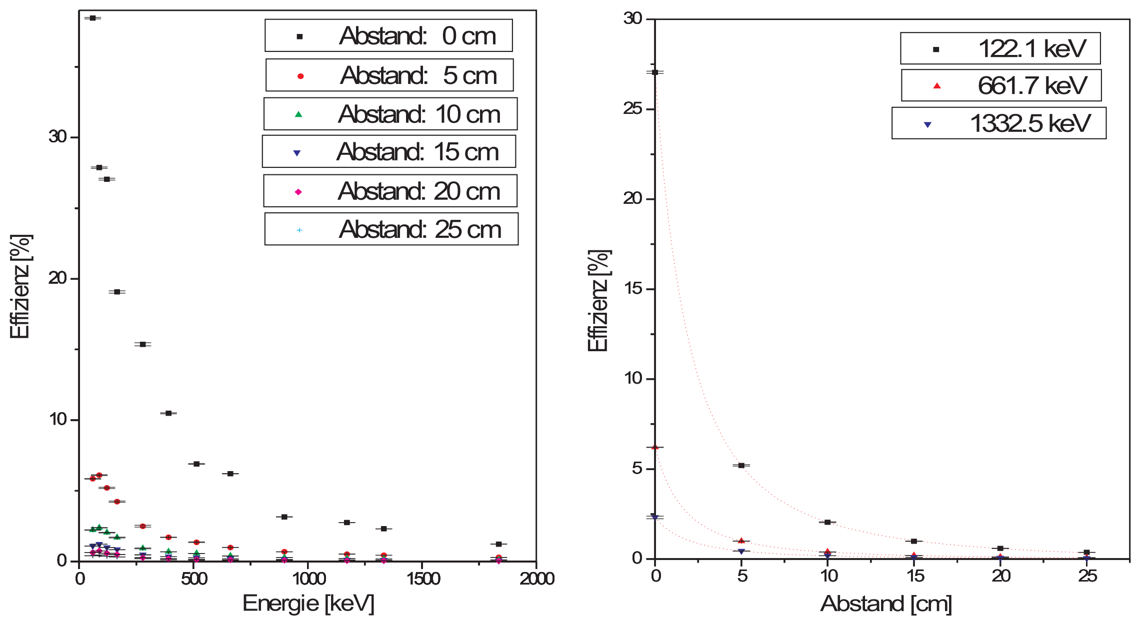

Abbildung 6.3: *Effizienz des n-typ Ge-Detektors Loax2. Die Fehlerbalken geben den statistischen Fehler (1σ) an.*

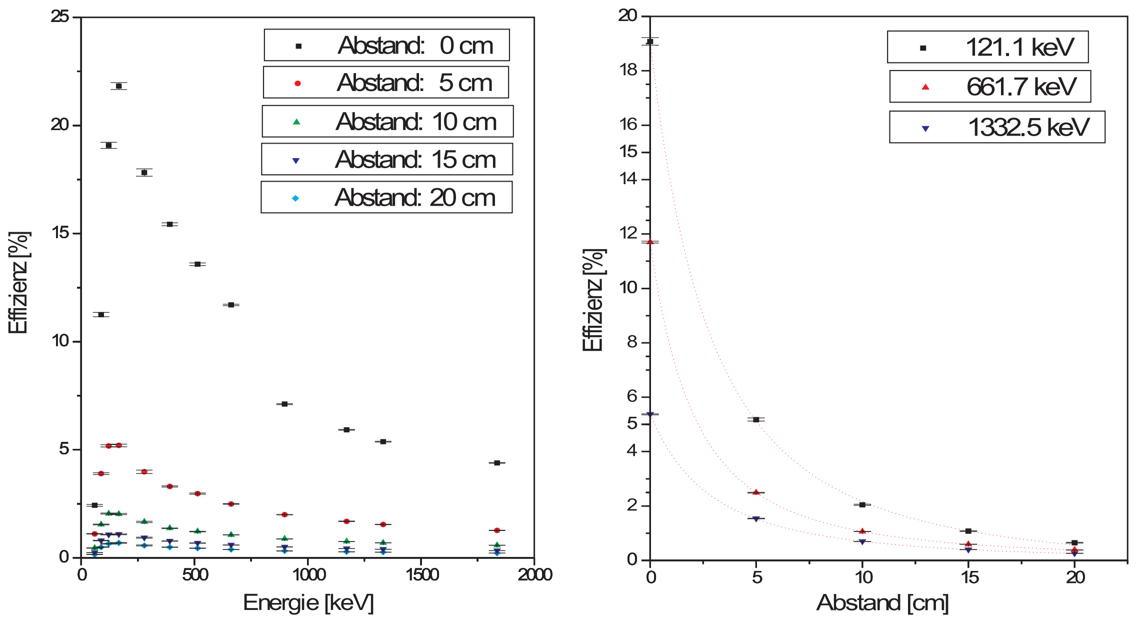

Abbildung 6.4: *Effizienzen des großen p-typ Ge-Detektors. Die Fehlerbalken geben den statistischen Fehler (1σ) an.*

6.3 Simulationsergebnisse und Problematiken

Das Programm wurde dazu verwendet, die Detektoreffizienzen für die gemessenen Aluminiumproben zu bestimmen, für die es keine Referenzquellen gab.
Der Germaniumkristall wurde dazu in Form von Zylindern geometrisch im Programm integriert. Um für spätere Simulationen die korrekte komplette Konfiguration zu besitzen, wurde auch die Bleiabschirmung als rechteckige Volumenbox um den Kristall berücksichtigt. Zuführungen, wie der Kühlfinger des Germaniumkristalls und Details im hinteren Bereich des Germaniumdetektors wurden zur Vereinfachung weggelassen. Die Proben wurden dann je nach Geometrie eingefügt. In Abbildung 6.5 ist eine Skizze der verwendeten Detektorgeometrie des großen p-Typ Ge-Detektors, wie sie für die Simulation integriert wurde, dargestellt. Die Abmessungen sind nicht maßstabsgetreu.
Mit dieser Geometrie wurde die simulierte Effizienz der punktförmigen Geometrie eines Eichstandards angepasst. Bei der Eingabe der geometrischen Parameter in die Simulation gibt es verschiedene Möglichkeiten, Anpassungen vorzunehmen. Zum einen können die Dotierungsbereiche dicker oder dünner sein als in der technischen Zeichnung angegeben. Zum anderen kann es im aktiven Volumen des Germaniumkristalls gerade an den Rändern aufgrund einer geringeren Feldstärke zu einer verschlechterten Sammlung der Ladungsträger kommen. Dies könnte man z. B. durch Veringerung des aktiven Germaniumvolumens am Rand in die Simulation integrieren. Ebenso könnten die Dicken der umgebenden Eintrittsfenster etwas größer oder kleiner sein als angegeben. Durch Veränderung solcher Parameter lassen sich die Simulationsergebnisse abhängig von der Symptomatik der Diskrepanz zwischen Messung und Simulation anpassen.
Allerdings zeigte sich nach erfolgter Anpassung an eine Punktquellengeometrie bei Simula-

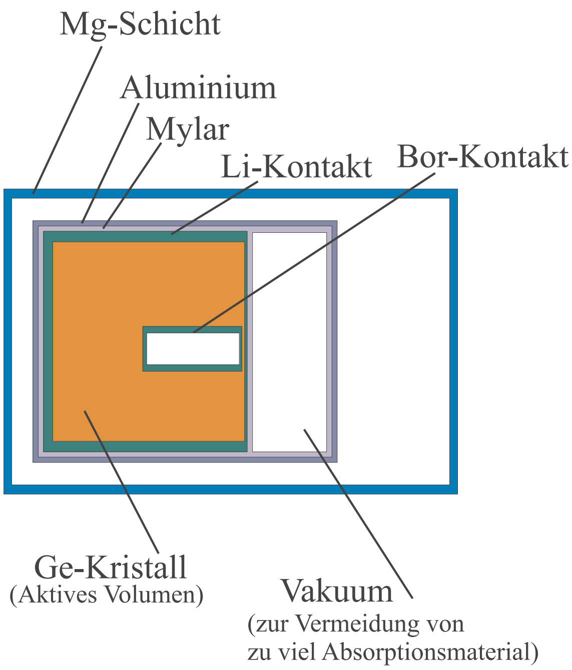

Abbildung 6.5: *Skizze der in der Simulation verwendeten Konfiguration des großen p-Typ Ge-Detketors. Die Abmessungen sind nicht maßstabsgetreu.*

tionen einer Volumengeometrie, wie sie in Form eines flüssigen Standards zur Effizienzkalibrierung der bei Neutronenaktivierungsanalysen verwendeten Geometrien gemessen wurden, und bei Simulationen mit größerem Abstand ziemlich große Diskrepanzen zwischen den simulierten und gemessenen Werten. Die Simulationsergebnisse waren um bis zu 50 % relativem Fehler zu niedrig bei den Volumengeometrien. Veränderungen an Geometrieparametern des Detektors, wie z. B. die Dicke der Dotierungsschicht aus Lithium, welche im Programm als inaktive Germaniumschicht integriert wurde, konnten die Ergebnisse an die Messungen der Volumenquellen zwar annähern, aber nicht völlig reproduzieren.

Ein erster Aspekt galt den Simulationen von Effizienzen der gemessenen Aluminiumproben, da hierfür keine Referenzquellen vorhanden waren. Die Simulation erfolgte hierbei mit der Geometriekonfiguration des Ge-Detektors, welche die Ergebnisse der Volumenquellen bis dato am besten annäherte. Die Aluminiumquelle wurde als rechteckige Volumenbox zentriert direkt vor dem Ge-Detektor definiert, die sich bei den unterschiedlichen Proben jeweils in der Dicke unterschied. Zur Berechnung der Effizienzen der verschiedenen γ-Energien wurden jeweils in der Quelle monoenergetische Photonen der beobachteten γ-Linien der einzelnen Nuklide mit der jeweiligen Energie isotrop emittiert und ihre Energiedeposition im Detektionsvolumen des Germaniumkristalls berechnet. Aus der Anzahl der Photonen, welche die volle Energie im Germaniumkristall deponieren, und der Anzahl der gestarteten Photonen läßt sich dann die Nachweiseffizienz des Detektors für diese Geometrie, Photonenenergie und dieses Quellmaterial erschließen. Zur Reduktion des Fehlers wurden bei den Aluminiumproben jeweils 5 Runs mit je 100.000 Ereignissen berechnet, sodass der relative Fehler < 6 % war (typisch < 3 %). In Abbildung 6.6 sind die simulierten Effizienzen aufgetragen.

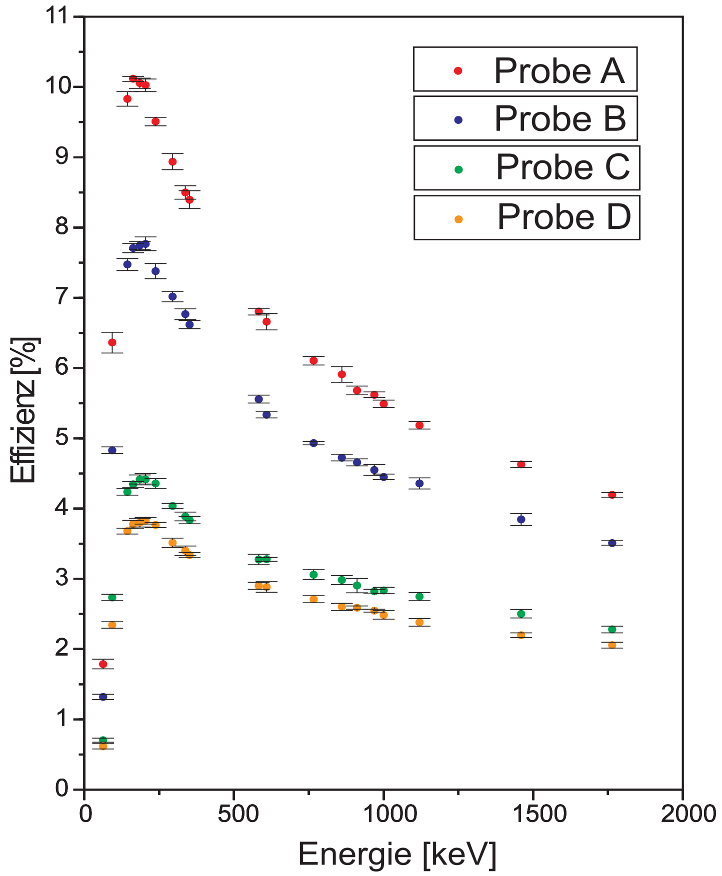

Abbildung 6.6: *Die Effizienzen für die vier gemessenen Aluminiumproben. Die Fehlerbalken berücksichtigen den statistischen Fehler (1σ).*

Deutlich zu sehen ist die Abhängigkeit der Effizienz von der Dicke der Quelle: Je dicker die Quelle, desto kleiner die Effizienz (vgl. Tabelle 3.1). Dieser Effekt läßt sich leicht mit der Selbstabsorption der γ-Quanten im Quellmedium und dem kleineren Raumwinkel für γ-Quanten bei größerem Abstand beschreiben.
Wie schon oben beschrieben, sind die ermittelten Effizienzen wohl tendentiell zu niedrig. Da die Effizienz in Formel 3.1 allerdings reziprok eingeht, führt diese systematische Unsicherheit der Effizienz eher zu geringeren Konzentrationswerten im Aluminium, d. h. die erreichbaren Grenzen werden eher besser.

Bei den Messungen der neutronenaktivierten Nylonfilme ohne weitere chemische Bearbeitung wurden diese für die Messung zusammengerollt in die Polyethylendosen verpackt, sodass die Geometrie eher durch einen Hohlzylinder als ein ausgefülltes Zylindervolumen, wie bei der Effizienzkalibrierung, angenähert werden kann. Es wurde mit Simulation qualitativ untersucht, wie sich dieser geometrische Unterschied auf die Effizienz der Messung auswirkt. Dabei konnte festgestellt werden, dass die Röhrenform tendentiell zu einer Erhöhung der Effizienz führt. Der relative Effekt liegt allerdings nur im Bereich von wenigen Prozent.

Kapitel 7

Resümee und Ausblick

Vom Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO kann man sich nach heutigen Modellen der Teilchenphysik einen großen Beitrag zur Lösung des solaren Neutrinorätsels erwarten. Im Rahmen der vorgelegten Arbeit wurden verschiedene Materialien, die für verschiedene Komponenten des Detektors eingesetzt werden sollen, mit unterschiedlichen Analyseverfahren untersucht. Neben der untergrundarmen γ-Spektroskopie im für diesen Zweck errichteten Untergrundlabor des Intsituts wurde instrumentelle und radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse, zum Teil in Kombination mit einer aktiven Comptonunterdrückung durch einen neu erworbenen NaI-Detektor angewandt.

Dabei konnte gezeigt werden, dass bei den gemessenen Aluminiumproben, welches als Material für die Konzentratoren der Photovervielfacher des äußeren Myonvetos eingesetzt werden soll, die beste Probe sogar den Reinheitsanforderungen der inneren Konzentratoren genügt. Allerdings hat man im Hinblick auf die besondere Situation beim Aluminium durch den festgestellten Bruch des Zerfallsgleichgewichtes beim Radium, insbesondere bei der Thoriumreihe, nur einen begrenzten Zeitrahmen von ca. 10–15 Jahren, innerhalb dem die Konzentrationslimits erfüllt sind. Wie ebenso festgestellt wurde, genügen die Grenzen für das gemessene Mineralöl nicht den an die inneren Photovervielfacher gestellten Ansprüchen, reichen jedoch für die Photovervielfacher des Myonvetos aus.

Da an die Nylonkugel aufgrund der Nähe zum Szintillator sehr restriktive Reinheitsanforderungen gestellt werden, die bei bisherigen Messungen nicht erreicht wurden, war es ein weiteres Ziel dieser Arbeit, die Sensitivität von Nylonanalysen auf den geforderten Level zu steigern. Dazu wurden unterschiedliche Methoden angewandt. Nachdem sich die instrumentelle Neutronenaktivierungsanlayse, abgesehen vom Nuklid ^{40}K, für die Elemente Thorium und Uran als nicht sensitiv genug herausstellte, wurden unterschiedliche Lösungsansätze verfolgt:
Für das Element Thorium wurde die Charakteristik des Zerfalls von ^{233}Pa ausgenutzt, um durch aktive Unterdrückung des Comptonuntergrundes die Sensitivität der gemessenen Grenzen zu steigern. Dabei konnte für die gemessenen Proben gezeigt werden, dass die geforderte Reinheit für Thorium erfüllt wird. Allerdings wurde der Nylonfilm Capron B13ZP mit dieser Methode nicht gemessen.
Beim Element Uran wurden wiederum zwei separate Ansätze untersucht. Zum einen die che-

mische Separation der Nuklide durch Auflösung des Nylons und nuklidspezifische Separation mit Hilfe eines Komplexbildners. Die damit erhaltenen Grenzen für Uran wiesen allerdings gegenüber der Messung mit instrumenteller Neutronenaktivierungsanalyse nur einen geringen oder gar keinen Gewinn an Sensitivität auf. Zum anderen wurde versucht, die Charakteristik des Zerfalls von ^{239}Np durch koinzidente Aufzeichnung der Ereignisse im Germaniumdetektor und Anticomptondetektor auszunutzen, um mit Software den Untergrund der Messung sensitiv zu unterdrücken. Es zeigte sich jedoch auch hier, dass wegen Problemen mit der zu verarbeitenden Datenrate und der Aufnahmekoinzidenz der Gewinn an Sensitivität nicht die erforderlichen Grenzen erreichte.
Obwohl keine der angewandten Methoden zum jetzigen Zeitpunkt die für Uran notwendige Sensitivität von $1 \cdot 10^{-12}$ g/g aufweist, lässt sich dennoch mit den gewonnenen Ergebnissen der Nylonfilm Capron B13ZP von der Verwendung im BOREXINO-Experiment ausschließen, da die erhaltenen Werte für Thorium und Uran eine zu hohe Konzentration aufweisen.

Als Ausblick lässt sich sagen, dass die Sensitivität der Messungen mit RNAA und der koinzidenten Einzelauslese mit dem NaI-Detktor im Rahmen zukünftiger Untersuchungen verbessert werden sollte. Im Falle der RNAA müsste die Lösung der Nylonsorten mit 8 molarer Salpetersäure überprüft werden. Damit ließen sich im Erfolgsfall wesentlich höhere Löslichkeitsverhältnisse und folglich größere Extraktionseffizienzen erwarten. Bei der Einzelauslese limitiert bisher vor allem die Datenspeicherung im ASCII-Format die erreichbare Sensitivität. Durch eine Speicherung der Daten im Binärformat müsste sich die Datenrate steigern lassen. Damit müsste sich die Sensitivität der Konzentrationsmessungen von Uran für beide Methoden durchaus bis unter das geforderte Limit steigern lassen.
Zudem wäre es wünschenswert, wenn man den Nylonfilm Capron B13ZP in Antikoinzidenz zum NaI-Detektor messen würde, um den mit der INAA erhaltenen Wert der Thoriumkonzentration bestätigen zu können. Ebenfalls sollte für die RNAA eine Tracer-Messung für die Extraktionseffizienz von Protactinium vorgenommen werden, um diese Methode auch zur Thoriumbestimmung zu verwenden.
Vor allem aber in den Simulationen steckt noch großes Entwicklungspotential, um repräsentative quantitative Aussagen über Effizienzen und Spektren zuzulassen.

Anhang A

γ-Linien der natürlichen Zerfallsreihen

Tabelle A.1: *Die wichtigsten γ-Linien in der Zerfallsreihe des Isotops ^{238}U*

Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
^{238}U	E2	49.550	0.064
$^{238}\mathrm{U} \rightarrow {}^{234}\mathrm{Th}$			
$Q_\alpha = 4270$			
$t_{\frac{1}{2}} = 4.468 \cdot 10^9$ y			
^{234}Th	E1	63.290	4.800
	M1	92.380	2.810
$^{234}\mathrm{Th} \rightarrow {}^{234}\mathrm{Pa}$	E1	92.800	2.770
$Q_{\beta^-} = 273$			
$t_{\frac{1}{2}} = 24.10$ d			
^{234}Pa	E1	742.810	0.080
	E2	766.380	0.294
$^{234}\mathrm{Pa} \rightarrow {}^{234}\mathrm{U}$	E1	786.270	0.049
$Q_{\beta^-} = 2197$	E1	946.000	0.010
$t_{\frac{1}{2}} = 1.17$ m (99.84%)	E2	1001.030	0.837
oder			
$t_{\frac{1}{2}} = 6.70$ h	E2	152.720	6.000
	–	831.500	4.120
	E2	883.240	9.600
	–	925.000	7.800
	E2	926.720	7.200
	E1	946.000	13.400
^{234}U	E2	53.200	0.123
			. . . Fortsetzung

... *Fortsetzung*			
Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
^{234}U $\rightarrow$ ^{230}Th $Q_\alpha = 4858.5$ $t_{\frac{1}{2}} = 2.455 \cdot 10^5$ y	E2	120.900	0.034
^{226}Ra ^{226}Ra $\rightarrow$ ^{222}Rn $Q_\alpha = 4870.63$ $t_{\frac{1}{2}} = 1600$ y	E2	186.100	3.500
^{222}Rn ^{222}Rn $\rightarrow$ ^{218}Po $Q_\alpha = 5590.3$ $t_{\frac{1}{2}} = 3.8235$ d	–	511.000	0.076
^{214}Pb	M1+E2	53.226	1.110
	M1	241.981	7.500
^{214}Pb $\rightarrow$ ^{214}Bi	M1	258.790	0.550
$Q_{\beta^-} = 1023$	M1+E2	295.213	18.500
$t_{\frac{1}{2}} = 26.8$ m	M1+E2	351.921	35.800
	E1	758.910	0.850
	E1	839.030	0.630
^{214}Bi	E2	609.312	15.360
	M1+E1	768.356	2.800
^{214}Bi $\rightarrow$ ^{214}Po (99.96%)	M1+E2	934.061	3.030
$Q_{\beta^-} = 3272$	M1+E2	1120.287	14.800
$t_{\frac{1}{2}} = 19.9$ m	M1+E2	1238.110	5.860
	M1(+E2)	1280.960	2.040
	E2	1377.669	3.920
	E2	1407.980	2.800
	M1+M2	1509.228	2.120
	E2	1729.595	2.880
	M1	1764.494	15.360
	–	1847.420	2.040
^{210}Pb ^{210}Pb $\rightarrow$ ^{210}Bi ($\sim$ 100%) $Q_{\beta^-} = 63.5$ $t_{\frac{1}{2}} = 22.3$ y	M1	46.539	4.250
			... *Fortsetzung*

... Fortsetzung			
Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
^{210}Bi			
^{210}Bi $\rightarrow$ ^{206}Tl ($1 \cdot 10^{-5}$%)	E2	265.832	50.000
$Q_\alpha = 5036$	M1	304.896	28.000
$t_{\frac{1}{2}} = 3.04 \cdot 10^6$ y	M1	649.420	3.800
oder			
^{210}Bi $\rightarrow$ ^{210}Po ($\sim$ 100%)			

Die Übergänge ^{218}Po $\rightarrow$ ^{214}Pb, ^{218}Po $\rightarrow$ ^{218}At, ^{218}At $\rightarrow$ ^{214}Bi, ^{214}Po $\rightarrow$ ^{210}Pb, ^{214}Bi $\rightarrow$ ^{210}Tl und der Übergang ^{210}Po $\rightarrow$ ^{206}Pb haben zu geringe γ-Intensitäten, um angegeben zu werden. Der Übergang ^{210}Bi $\rightarrow$ ^{210}Po geht zu 100% in den Grundzustand.

Tabelle A.2: *Die wichtigsten γ-Linien in der Zerfallsreihe des Isotops ^{232}Th*

Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
^{232}Th	E2	63.830	0.267
	E2	140.860	0.018
^{232}Th $\rightarrow$ ^{228}Ra			
$Q_\alpha = 4082.8$			
$t_{\frac{1}{2}} = 1.405 \cdot 10^{10}$ y			
^{228}Ac	E1	209.253	3.880
	E1	270.243	3.430
^{228}Ac $\rightarrow$ ^{228}Tl	E1	338.322	11.300
$Q_{\beta^-} = 2127$	M1+E2	794.947	4.340
$t_{\frac{1}{2}} = 6.15$ h	E2	911.205	26.600
	E2	964.770	5.110
	E2	968.971	16.200
^{228}Th	E2	84.373	1.266
	E1	131.613	0.136
^{228}Th $\rightarrow$ ^{224}Ra	E1	215.985	0.263
$Q_\alpha = 5520.12$			
$t_{\frac{1}{2}} = 1.9131$ y			
^{224}Ra	E2	240.987	3.970
			... Fortsetzung

... Fortsetzung			
Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
$^{224}Ra \rightarrow {}^{220}Rn$ $Q_\alpha = 5788.87$ $t_{\frac{1}{2}} = 3.66$ d			
^{220}Rn $^{220}Rn \rightarrow {}^{216}Po$ $Q_\alpha = 6404.67$ $t_{\frac{1}{2}} = 55.6$ s	–	549.730	0.110
^{212}Pb $^{212}Pb \rightarrow {}^{212}Bi$ $Q_{\beta^-} = 573.7$ $t_{\frac{1}{2}} = 10.64$ h	M1 M1	238.632 300.087	43.300 3.280
^{212}Bi $^{212}Bi \rightarrow {}^{212}Po$ (63.8%) $Q_{\beta^-} = 2254.0$ $t_{\frac{1}{2}} = 60.55$ m	E2 M1+E2 M1	727.330 785.370 1620.500	6.580 1.102 1.490
oder			
$^{212}Bi \rightarrow {}^{208}Tl$ (36.2%) $Q_\alpha = 6207.14$ $t_{\frac{1}{2}} = 60.55$ m	M1	39.858	1.091
^{212}Po $^{212}Po \rightarrow {}^{208}Pb$ $Q_\alpha = 8954.13$ $t_{\frac{1}{2}} = 45.1$ s	E2 E3	583.191 2614.533	ca. 2 2.600
^{208}Tl $^{208}Tl \rightarrow {}^{208}Pb$ $Q_{\beta^-} = 5000.9$ $t_{\frac{1}{2}} = 3.053$ m	M1+E2 M1+E2 E2 M1+E2 E3	277.351 510.770 583.191 860.564 2614.533	6.310 22.600 84.500 12.420 99.000

Die Übergänge ^{228}Ra $\rightarrow$ ^{228}Ac und ^{216}Po $\rightarrow$ ^{212}Pb besitzen zu geringe Intensitäten, um angegeben zu werden.

Tabelle A.3: *Die wichtigsten γ-Linien in der Zerfallsreihe des Isotops ^{235}U*

Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
^{235}U	–	109.160	1.540
	E1	143.760	10.960
^{235}U $\rightarrow$ ^{231}Th	–	163.330	5.080
$Q_\alpha = 4678.1$	E1	185.712	57.200
$t_{\frac{1}{2}} = 7.038 \cdot 10^8$ y	E1	205.311	5.010
^{231}Th	E1	25.646	14.500
	E2	58.570	0.480
^{231}Th $\rightarrow$ ^{231}Pa	M1(+E2)	81.227	0.890
$Q_{\beta^-} = 389.5$	M1(+E2)	82.087	0.400
$t_{\frac{1}{2}} = 25.52$h	E2	84.216	6.600
	E1	89.944	0.940
	E1	102.268	0.410
^{231}Pa	E1	27.360	10.300
	E1	283.690	1.700
^{231}Pa $\rightarrow$ ^{227}Ac	M1+E2	300.070	2.470
$Q_\alpha = 5148.9$	E1	302.650	2.200
$t_{\frac{1}{2}} = 32760$ y	M1+E2	330.060	1.396
^{227}Ac	(M1+E2)	69.210	23.500
	–	100.000	ca. 33
^{227}Ac $\rightarrow$ ^{223}Fr (1.2%)	–	106.790	
$Q_\alpha = 5042.19$	–	121.530	
$t_{\frac{1}{2}} = 21.773$ y	–	147.480	
	–	160.260	
	E1	171.900	
	–	241.700	
oder			
^{227}Ac $\rightarrow$ ^{227}Th (98.8%)			
^{227}Th	E1	50.130	8.000
	E2	256.250	7.000
^{227}Th $\rightarrow$ ^{223}Ra	E1	300.000	2.320
$Q_\alpha = 6146.43$	(E1)	329.851	2.700
			. . . Fortsetzung

Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
... Fortsetzung			
$t_{\frac{1}{2}} = 18{,}72$ d			
^{223}Fr	E1	49.890	2.700
	E1	50.130	36.000
^{223}Fr $\rightarrow$ ^{223}Ra	E1	79.720	9.100
$Q_{\beta^-} = 1149.1$	M1	234.810	3.000
$t_{\frac{1}{2}} = 22$ m			
^{223}Ra	M1+E2	122.319	1.192
	M1+E2	144.232	3.220
^{223}Ra $\rightarrow$ ^{219}Rn	M1	154.210	5.620
$Q_{\alpha} = 5979.31$	M1+E2	269.459	13.700
$t_{\frac{1}{2}} = 11.4$ d	M1+E2	323.871	3.930
	M1	338.281	2.790
^{219}Rn	M1+E2	271.230	10.800
	E2	401.810	6.370
^{219}Rn $\rightarrow$ ^{215}Po			
$Q_{\alpha} = 6946.1$			
$t_{\frac{1}{2}} = 3.9$ s			
^{211}Pb	M1+E2	404.853	3.780
	M1+E2	427.088	1.760
^{211}Pb $\rightarrow$ ^{211}Bi	M1+E2	832.010	3.520
$Q_{\beta^-} = 1373$			
$t_{\frac{1}{2}} = 36.1$ m			
^{211}Bi	M1+E2	351.059	12.910
^{211}Bi $\rightarrow$ ^{207}Tl (99.68%)			
$Q_{\alpha} = 6750.5$			
$t_{\frac{1}{2}} = 2.15$ m			
oder			
^{211}Bi $\rightarrow$ ^{211}Po (0.32%)			
^{207}Tl	M1+E2	897.800	0.260
^{207}Tl $\rightarrow$ ^{207}Pb			
$Q_{\beta^-} = 1423$			
			... Fortsetzung

... *Fortsetzung*			
Nuklid	Übergang	Energie [keV]	ω [%]
$t_{\frac{1}{2}} = 4.8$ m			

Die Übergänge ^{215}Po $\rightarrow$ ^{211}Pb und ^{211}Bi $\rightarrow$ ^{211}Po, sowie der anschließende α-Zerfall von Polonium auf ^{207}Pb haben eine zu geringe γ-Intensität, um aufgelistet zu werden.

Abbildungsverzeichnis

Tabellenverzeichnis

Literaturverzeichnis

[Alt96] M. Altmann, Dissertation, Technische Universität München (1996)

[Bah89] J.N. Bahcall, Neutrino Astrophysics, Cambridge University Press (1989)

[Bah95] J.N. Bahcall, M.H. Pinsonneault, „Solar models with helium and heavy element diffusion“, Rev. Mod. Phys., **67**, 781 (1995)

[Bah98] J.N.Bahcall, S. Basu, M.H. Pinsonneault, „How uncertain are solar neutrino predictions?“, Preprint, submitted to Elsevier Preprint

[Bah99] J.N. Bahcall, Homepage, http://www.sns.ias.edu/ jnb/ (1999)

[Bet39] H. Bethe, Phys. Review **55**, 434 (1939)

[Boc72] R. Bock, „Aufschlussmethoden der anorganischen und organischen Chemie“, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (1972)

[Bor95] BOREXINO Coll., Memo on: „BOREXINO Projekt, The Counting Test Facility, its results and the BOREXINO Design (1995)

[Bra66] J. Brandrup, E.H. Immergut, „Polymer Handbook“, John Wiley & Sons, Inc., New York (1966)

[Cas99] V.Castellani et al., Nucl. Phys. B. Proc. Suppl., **70**, 301 (1999)

[Cur68] L.A. Currie, Anal. Chem., **40**, 586 (1968)

[Dar96] A. Dar, G. Shaviv, Nucl. Phys. B Proc. Suppl., **48**, 335 (1996)

[Dav98] R. Davis et. al., Astrophys. J., **495**, (1998)

[EGS85] W.R. Nelson, H. Hirayama und D.W.O. Rogers, „The EGS4 Code System“, Stanford Linear Accelerator Center, Stanford University, Stanford, California (1985)

[Eli81] H.-G. Elias, „Makromoleküle – Struktur- Eigenschaften - Synthesen - Stoffe - Technologien“, 4. völlig umgearb. u. wesntl. erw. Aufl., Hüthig & Wepf. Verlag (1981)

[Fuk99] Y. Fukuda et al., „Measurement of the Solar Neutrino Energy Spectrum Using Neutrino-Electron-Scattering“, Phys. Rev. Lett., **82**, 2430 (1999)

[GAL99] GALLEX Collaboration, Phys. Lett. B, **447**, 127 (1999)

[Gam38] G. Gamow, Phys. Review **53**, 595 (1938)

[Gol97] T. Goldbrunner, Dissertation, Technische Universität München (1997)

[Hag99] T. Hagner, „Status of the solar Neutrino-Experiment BOREXINO and its Muon Identification System“, Proc. of „X. International School on Particles and Cosmology“, 19–25 April (1999)

[Hag99a] T. Hagner et al., „Myon Induced Production of Radio Instable Isotopes in Szintillation Detectors“, eingereicht an Astroparticle Physics

[HEL99] HELLAZ-Homepage, http://sg1.hep.fsu.edu/hellaz, (1999)

[Hen96] R.v. Hentig, Diplomarbeit, TU München (1996)

[Hen99] R.v. Hentig, Dissertation, Technische Universität München (1999)

[HER99] „Status-Report des HERON-Projektes“, aus der HERON-Homepage, http://www.physics.brown.edu/research/heron/overview/overview.html, (1999)

[Heu96] G. Heusser, „Background in Ionizing Radiation Detection Illustrated by Ge-Spectrometry “, Proc. of „3^{rd} International Summer School on Low-Level Measurements of Radioactivity in the Environment“, Huelva, Spanien (1993)

[ICA99] ICARUS-Homepage, http://www.aquila.infn.it/icarus, (1999)

[Ish60] T. Ishimori et al., Bull Chem. Soc. Jap., **33**, 1443 (1960)

[Kir94] C.J. Kirchmer: Limits of detection and accurracy in trace element analysis, in: „Determination of Trace Elements“, edited by Z.B. Alfassi, VCH-Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (1994)

[Kir95] T.A. Kirsten et al., Annals of New York Acad.of Sci. **759**, Proc. of „17th Texas Symp. on Relativistic Astrophysics and Cosmology“, München, Germany, 1994, p. 1, eds H. Böhringer et al., The New York Academy of Sciences, New York (1995)

[Lun99] „The Cross Section of ^{3}He(^{3}He,2p)^{4}He measured at Solar Energies“, (1999)

[Mik86] S. Mikheyev, A. Smirnov, „Resonant Amplification of Neutrino Oscillations in Matter and Solar-Neutrino Spectroscopy“, Nuovo Cimento **9C**, 17 (1986)

[Mor86] R.T. Morrison, R.N. Boyd, „Lehrbuch der organischen Chemie“, 3. überarbeitete Auflage, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (1986)

[NCR87] NCRP Report No. 94, NCRP Publications, Bethesda, MD 20814, USA (1987)

[Nef96] M. Neff, Diplomarbeit, Technische Universität München (1996)

[Obe99] L. Oberauer, private Mitteilung

[Obe99a] L. Oberauer, private Faxmitteilung

[Pon57] B. Pontecorvo, Sov. Phys. JETP **6** (1958) 429; **7** (1958) 172; **26**, 984 (1968)

[PTB97] Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig Bericht, Prüfzeichen 6.13-150/16.97 (1997)

[Rag97] R.S. Raghavan, „New Possibilities for Tagged Real Time Detection of Sub MeV Electron Neutrinos from the Sun“, Proc. of „Fourth International Solar Neutrino Conference“, Heidelberg, April 8-11 (1997)

[Rag99] R.S. Raghavan, LENS, Letter of Intent, unveröffentlicht (1999)

[Rau99] Persönliche Mitteilung von Wolgang Rau

[SAG95] T. Bowles, SAGE Collaboration, „Results on SAGE on Solar Neutrino Detection“, Proc. of „Int. School Particles and Cosmology“, Baksan (1995)

[Shi94] X.Shi, D.N. Schramm, D.S. Dearborn, Phys. Rev. D, **50**, 2414 (1994)

[Sch97] N. Schmitz„„Neutrinophysik“, Teubner-Verlag, Stuttgart (1997)

[Sto96] W. Stolz, „Radioaktivität – Grundlagen, Messungen, Anwendungen“, B.G. Teubner Verlagsgesellschaft Stuttgart (1996)

[Str86] A. Streitwieser, Jr., C.H. Heathcock, „Organische Chemie“, 1. korrigierter Nachdruck, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (1986)

[Sur95] A. Suresh et al., Solvent Extraction and Ion Exchange, **13(3)**, 415-430 (1995)

[Tur93] S.Turck-Chieze, I.Lopez, Astrophys.J., **408**, 347 (1993)

[Wei37] C. F. v. Weizsäcker, Physik Z **38**, 176 (1937)

[Wol78] L. Wolfenstein„„Neutrino Oscillations in Matter“, Phys. Rev. D, **17** (1978) 2369

[Zem64] V.I. Zemlyanukhin, G.P. Savoskina, and M.F. Pushlenkov, „Complex formation of nitrates of transuranium elements with neutral organophosphorus compounds“, übersetzt von Radiokhimiya, Vol 6, No. 6 (1964)

Danke

An dieser Stelle möchte ich mich bei denjenigen bedanken, die mich bei dieser Arbeit unterstützt haben und mich das Jahr über begleitet haben.

Ein besonderer Dank gilt natürlich Herrn Prof. von Feilitzsch, der mir durch dieses Thema ermöglichte, als Teil einer großen Forschungskollaboration auf dem Gebiet der γ-Spektroskopie wertvolle Erfahrung zu sammeln. In dieser Hinsicht richtet sich auch ein Dank an den Sonderforschungsbereich 375, die Deutsche Forschungsgemeinschaft und das Beschleuniger-Laboratorium für deren finanzielle Unterstützung bei der Ausstattung des Untergrundlabors.

Meinem Betreuer Roger von Hentig möchte ich Dank sagen für die vielen Informationen und Erklärungen zur Physik und Elektronik der γ-Spektroskopie und Neutronenaktivierungsanalyse, für die interessante Unterkunft in Heidelberg und die Einführung in das Parkettverlegen.

Natürlich geht auch ein Dank an die restlichen Mitglieder des Instituts:
An Michael Huber als Leidensgenossen in Bezug auf die Diplomarbeit für die vielen Diskussionen und Gespräche über Problematiken mit dieser Arbeit und Zukunftspläne. An Dr. Michael Altmann für die vielen amüsanten Gespräche über Computer, Probleme mit diesen und sonstige Lebenssituationen (vielleicht kommt meine Freundin mal wieder mit Süßigkeiten). An Tanja Hagner für die tatkräftige Hilfe beim Doktorhut-Basteln und viele Bürogespräche. Selbigen möchte ich auch an Caren Hagner richten.
Besonderer Dank gilt auch Herrn Dr. habil. Lothar Oberauer, der mich vor allem durch seine interessante Vorlesung für dieses Fachgebiet begeistern konnte. Nicht zu vergessen der etwas unkonventionelle Prüfungsbeginn der DHP II.
Marianne Neff möchte ich danken, für die Unterstützung in UNIX-Fragen, gerade zur Endphase dieser Arbeit, Herrn Dr. Josef Jochum für seine Geduld bei der Einführung in EGS4 und bei Fehlersuche im Programm (Auch wenn der große Erfolg damit letztendlich ausblieb) und Godehard Angloher für die ironischen Seitenhiebe, die etwas Humor in den Institutsalltag brachten. Hans Schnagl danke ich für die Mithilfe bei der Umgestaltung des LabView-Programmes und Steffi Wänninger für viele Gespräche. Für zahlreiche Gespräche über Studium und Diplomarbeit, welche den Alltag und besonders die Konferenzen auflockerten, möchte ich den sonstigen Mitdiplomanden Hannes Seidl, Tobias Lachenmaier, Jean Lanfranchi und Christian Grieb danken. Vor allem auch für Christians Hilfe bei zahlreichen Origin-Problemen und sonstigen Computerfragen.
Bei Herrn Dr. Stefan Schönert und Frau möchte ich mich für die Übernachtung in Ihrem „Palazzo“ bedanken. Falls wir mal wieder in L'Aquila sein sollten, wird Karin bestimmt wieder auf dem Flügel spielen wollen.

Bei den beiden Institutssekretärinnen Beatrice van Bellen und Alexandra Füldner möchte ich mich für die nette und kompetente Unterstützung bei Anträgen und verwaltungstechnischen Fragen aller Art bedanken.

Der BOREXINO-Kollaboration danke ich für die herzliche Aufnahme in Ihre Reihen.

Den Werkstattmitarbeitern Harald Hess, Erich Seitz und Thomas Richter danke ich für die rasche Umsetzung notwendiger mechanischer Anfertigungen. Auch werden mir die Geschichten aus früheren Zeiten des Physikdepartments von Herrn Eckehard Kellner stets in guter Erinnerung bleiben, ebenso wie die rasanten Fahrten am Gran Sasso im Institutsbus mit Karlheinz Schuhbeck.

Von der Reaktorbestrahlungsgruppe möchte ich Herrn Dr. Gerstenberg, Herrn Oberndorfer und Herrn Behnke für die Durchführung der Bestrahlungen gerade in der schwierigen Übergangsphase des FRM I Dank sagen. Besonders in Erinnerung werden mir die vielen Gespräche mit Herrn Oberndorfer über die momentane Bestrahlungssituation am FRM I und die richtige Handhabung von Proben und Transport bleiben.

Herrn Dr. Henkelmann und Herrn Hoffmann möchte ich für Ihre Bemühungen um das Transportproblem unserer bestrahlten Proben danken. In diesem Zusammenhang seien auch Herr Stiegl und Dr. Heinzl erwähnt.

Für die großzügige finanzielle und seelische Unterstützung gilt ein besonderer Dank meinen Eltern, die mir dieses Studium erst ermöglichten. Für den freizeitlichen Ausgleich neben der Physik danke ich allen meinen Freunden und meinem Bruder.

Ein letzter und besonders herzlicher Dank geht an meine Freundin Karin Wels, die mich auch und gerade in schweren Phasen trotz unserer örtlichen Trennung immer wieder ermutigt und aufgerichtet hat. Für das Alles möchte ich Ihr sagen, dass ich Sie sehr lieb habe.