Für Michaela

Inhaltsverzeichnis

Übersicht **vi**

I Solare Neutrinos und BOREXINO 1

1 Das solare Neutrinorätsel 3

1.1 Das solare Neutrinospektrum 3

1.2 Solare Neutrinoexperimente 6

1.2.1 Homestake-Experiment 6

1.2.2 Kamiokande-Experiment 7

1.2.3 Gallium-Experimente 7

1.3 Lösungsansätze zum solaren Neutrinorätsel 9

1.3.1 Astrophysikalische Lösungsansätze 9

1.3.2 Kernphysikalische Lösungsansätze 10

1.3.3 Teilchenphysikalische Lösungsansätze 12

2 BOREXINO - ein solares Neutrino-experiment der nächsten Generation 17

2.1 Das Konzept des BOREXINO - Experimentes 17

2.2 Aufbau des BOREXINO-Detektors 21

2.3 Der Beitrag von BOREXINO zum solaren Neutrinorätsel 23

II Untergrund in BOREXINO und die CTF 27

3 Untergrund in BOREXINO 29

3.1 Natürliche Radionuklide 29

3.1.1 ^{40}K 29

3.1.2 ^{238}U - Kette 30
3.1.3 Thoriumkette 32
3.1.4 Weitere natürliche Radionuklide 32
3.1.5 Anforderungen an die anderen Detektorkomponenten für natürliche Radionuklide 34
3.2 Kosmogene Radionuklide 35
3.2.1 ^{14}C 35
3.2.2 ^{7}Be 35
3.3 Myoninduzierter Untergrund 36
3.4 Anthropogene Radionuklide 36

4 Die Testapparatur (CTF) 38
4.1 Ziele der CTF 38
4.2 Aufbau der CTF 39
4.2.1 Szintillator 40
4.2.2 Szintillator - Reinigungsanlage 40
4.2.3 Wasser - Reinigungsanlage 41
4.2.4 Elektronik und Datenaufnahme 41
4.3 Allgemeine Eigenschaften des Detektors 42

5 Ergebnisse der CTF zum Untergrund in BOREXINO 43
5.1 Ergebnisse für ^{14}C, ^{222}Rn und ^{228}Th 43
5.1.1 ^{14}C 43
5.1.2 ^{222}Rn 44
5.1.3 ^{228}Th 46
5.2 Effizienz der Reinigungsanlage 47
5.2.1 ^{210}Po 47
5.2.2 ^{85}Kr 48
5.2.3 Ereignisrate im Neutrinofenster 48
5.3 Zusammenfassung 49

III NAA für BOREXINO 51

6 Aspekte der NAA für BOREXINO 53
6.1 NAA im Überblick 53

6.2 Relevanz der NAA für die Bestimmung des Untergrundniveaus in BOREXINO 55
6.3 Wichtige Faktoren für eine sensitive NAA 56
6.3.1 Überblick 56
6.3.2 Probenmatrix 56
6.3.3 Probenvorbereitung 57
6.3.4 Bestrahlung 58
6.3.5 Probenpräparation nach der Bestrahlung 64
6.3.6 Meßtechnik 65

7 NAA von Nylon für den Szintillatorbehälter 73
7.1 Ergebnisse der Rohrpostbestrahlungen 73
7.2 Sensitive Nylonanalysen 75
7.2.1 INAA mit Koinzidenztechniken 75
7.2.2 RNAA von Nylongranulat 76
7.2.3 Trockenveraschung von Nylonfolie 77

8 NAA von Flüssigszintillatoren und Tests möglicher Reinigungsmethoden 80
8.1 Radiochemische NAA großvolumiger Flüssigszintillatorproben 80
8.1.1 Probenvorbereitung und Bestrahlung 80
8.1.2 Probenpräparation nach Bestrahlung 81
8.1.3 Effizienz und Diskussion des Verfahrens 84
8.1.4 Sensitivität des Verfahrens 88
8.2 Reinheit kommerzieller Flüssigszintillatorkomponenten 90
8.2.1 Wellenlängenschieber 90
8.2.2 Lösungsmittel 92
8.3 Tests von Reinigungsverfahren 93
8.3.1 Wasserextraktion 94
8.3.2 Säulenreinigung 95
8.4 Analysen von CTF-Proben 97

9 Bestrahlungskolben aus einkristallinem Silizium **100**

9.1 Blindwerte durch synthetisches Quarz 100

9.2 Silizium als hochreines Behältermaterial 102

9.3 Erste Ergebnisse 105

10 Zusammenfassung und Ausblick **107**

Literaturverzeichnis **110**

Abbildungsverzeichnis **114**

Tabellenverzeichnis **118**

Abkürzungsverzeichnis **121**

Danksagung **122**

Übersicht

„Ein Hauch von Nichts“ lautet die Überschrift eines populärwissenschaftlichen Artikels, der die Sensitivität der empfindlichsten Analysemethoden an Hand des berühmten Zuckerwürfels veranschaulicht, der im Bodensee aufgelöst wird und trotzdem noch von hochsensitiven Analysemethoden aufgespürt werden kann.
Auf der Jagd nach dem „Nichts“ wurden im Rahmen dieser Arbeit bestehende, bereits sehr sensitive Methoden weiterentwickelt, wodurch die Nachweisgrenzen teilweise um zwei bis drei Größenordnungen gesenkt werden konnten. Die Motivation für diese Entwicklung liegt in den hohen Reinheitsanforderungen des im Bau befindlichen solaren Neutrinoexperimentes BOREXINO begründet.

Die vorliegende Arbeit ist in drei große Teile gegliedert.

Der erste Teil befaßt sich mit dem physikalischen Hintergrund, vor dem die experimentelle Arbeit durchgeführt wurde. Dazu wird im 1. Kapitel das solare Neutrinospektrum nach den Vorhersagen der verschiedenen Standard-Sonnenmodelle diskutiert und mit den Ergebnissen der bisher durchgeführten solaren Neutrinoexperimente verglichen. Die verschiedenen diskutierten Lösungsansätze des dabei auftretenden Defizits an gemessenen Neutrinos werden zum Schluß des Kapitels vorgestellt.
Im 2. Kapitel wird das BOREXINO-Experiment behandelt. Nach der Erläuterung des Konzeptes folgt eine Beschreibung des Detektoraufbaus und abschließend eine Diskussion der Beiträge, die dieses Experiment zur Lösung des solaren Neutrinoproblems leisten kann.

Der zweite Teil der Arbeit befaßt sich mit dem Untergrund in BOREXINO und der Testapparatur CTF dieses Experiments. Dazu werden im 3. Kapitel die verschiedenen Untergrundquellen aufgeführt, wobei der Schwerpunkt auf den natürlichen Radionukliden und ^{14}C liegt. Ihre ausführliche Diskussion ist für das Verständnis der weiteren Ausführungen zur CTF und zur Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) im dritten Teil notwendig.
Das 4. Kapitel stellt die Testapparatur CTF mit ihren Zielen, dem Aufbau sowie den Eigenschaften des Detektors vor. Der zweite Teil schließt mit dem 5. Kapitel, in dem die Ergebnisse der CTF aufgeführt und diskutiert werden.

Der dritte und letzte Teil der Dissertation beinhaltet die Arbeiten zur Entwicklung und Anwendung von NAA - Methoden für BOREXINO und die CTF. Dazu werden im 6. Kapitel die Grundzüge der NAA kurz beschrieben, anschließend die Relevanz dieser Analysemethode für BOREXINO diskutiert und schließlich die verschiedenen eingesetzten Faktoren zur Steigerung der Sensitivität aufgeführt, so daß sich die Lektüre dieses Kapitels für das Verständnis der weiteren empfiehlt.
Das 7. Kapitel beinhaltet die Analysen von Nylon, das als Behältermaterial im BOREXINO - Detektor vorgesehen ist.
Das 8. Kapitel kann als Herzstück dieser Dissertation angesehen werden. Die höchsten Reinheitsanforderungen in BOREXINO werden an den Flüssigszintillator gestellt, in dem die Neutrinos über ν-e^--Streuung nachgewiesen werden sollen. Dementsprechend aufwendig war die Entwicklung einer NAA - Methode zur sensitiven Analyse von Flüssigszintillatoren. Sie wird am Anfang des Kapitels vorgestellt. Es schließen sich die Ergebnisse von Analysen kommerziell erhältlicher Szintillatorkomponenten an, wobei die Ausgangs-

situation in BOREXINO bezüglich der Reinheit des Szintillators deutlich wird. Im dritten Abschnitt des Kapitels werden Experimente zur Bestimmung der Effizienz verschiedener Reinigungsverfahren vorgestellt und im letzten Abschnitt die Analysen von CTF-Szintillatoren. Diese Abschnitte sind für die Beurteilung der Machbarkeit von BOREXINO äußerst relevant.
Das letzte und 9. Kapitel befaßt sich mit einem neuen Bestrahlungsgefäß aus einkristallinem Silizium. Dabei werden zunächst Reinstwasseranalysen vorgestellt, mit denen der Einfluß des bisher als Material für Bestrahlungsgefäße verwendeten synthetischen Quarzes auf die Blindwerte untersucht wurde. Im nächsten Abschnitt wird eine Analyse von Silizium beschrieben, durch die der Unterschied in den Reinheiten von Silizium und synthetischem Quarz offensichtlich wird. Zum Abschluß des Kapitels werden erste Ergebnisse von Reinstwasserbestrahlungen mit einem Siliziumkolben präsentiert.

In der gesamten Arbeit werden einige Abkürzungen verwendet, die im Abkürzungsverzeichnis erklärt werden.

Teil I

Solare Neutrinos und BOREXINO

Kapitel 1

Das solare Neutrinorätsel

1.1 Das solare Neutrinospektrum

Nach dem heutigen Stand der Wissenschaft wird im Inneren unserer Sonne Energie durch Fusion von Wasserstoff zu Helium freigesetzt [Bah89]. Diese Energie benötigt ca. 10^5 Jahre um als Strahlung zur Sonnenoberfläche zu diffundieren, wo sie vor allem in Form von sichtbarem Licht abgestrahlt wird.

Der Q-Wert der Nettoreaktion $4p \rightarrow {}^4He + 2e^+ + 2\nu_e$ beträgt ungefähr 26 MeV, wobei die beiden Positronen annihilieren und 2-3% der freigesetzten Energie von den beiden Neutrinos fortgetragen werden [Kim93]. Da unsere Sonne ein leichterer Hauptreihenstern ist, erfolgt der weit überwiegende Anteil dieser Fusion über den pp-Zyklus [Bet38], während der CNO-Zyklus [Bet39], der in schwereren Hauptreihensternen mit höherer Zentraltemperatur dominiert, nur ca. 1.5% zur Luminosität der Sonne beiträgt [Bah89]. Der pp-Zyklus mit seinen verschiedenen Teilketten ist in Abb. 1.1 dargestellt. Insgesamt gibt es fünf verschiedene Reaktionen im pp-Zyklus, bei denen ein Neutrino emittiert wird. Je nachdem, welche Kerne auf der linken Seite der Reaktion beteiligt sind, bezeichnet man die Neutrinos als pp-, pep-, hep-, ^{7}Be- oder ^{8}B-Neutrinos. Sie unterscheiden sich sowohl in ihrer Energie als auch in ihrer spektralen Form. Die pep- und die ^{7}Be-Neutrinos sind durch Linienspektren charakterisiert, die übrigen weisen kontinuierliche Spektren auf.

Für die Stärke der einzelnen Neutrinoflüsse sind die Verzweigungsverhältnisse im pp-Zyklus relevant. Die in Abb. 1.1 eingetragenen Werte entsprechen den Vorhersagen des Standard-Sonnenmodells (SSM) von Bahcall [Bah95], spiegeln jedoch die Tendenz aller gegenwärtigen Standard-Sonnenmodelle wider.
Das daraus resultierende Neutrinospektrum der Sonne am Ort der Erde ist in Abb. 1.2 dargestellt. Ebenfalls eingezeichnet sind die Spektren der zwei stärksten Neutrinoflüsse aus dem CNO-Zyklus. Die hep-Neutrinos wurden vernachlässigt. In Tab. 1.1 sind die Vorhersagen verschiedener SSM für die sechs stärksten Neutrinoflüsse aufgeführt.

Wie man der Tabelle entnehmen kann, stimmen die Vorhersagen für den pp-Fluß sehr gut überein. Dies folgt aus der Tatsache, daß dieser Fluß eng mit der gut bekannten Luminosität der Sonne korreliert ist. Die Angaben für die anderen Flüsse schwanken stärker

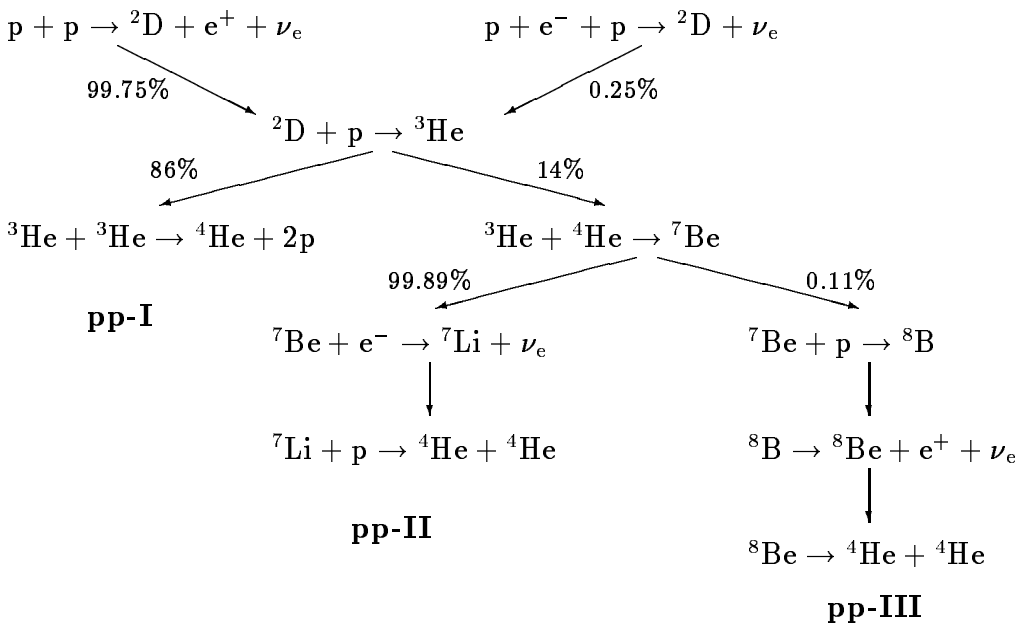

Abbildung 1.1: *Die drei wichtigsten Zweige des pp-Zyklus in der Sonne. Bei vier Reaktionen werden Neutrinos emittiert, die nach den auf der linken Seite der Reaktion beteiligten Kernen als pp-, pep-, ^{7}Be- und ^{8}B-Neutrinos bezeichnet werden.*

Tabelle 1.1: *Zusammenstellung der von verschiedenen SSM vorhergesagten Neutrinoflüsse.*

	BP 95[1]	TCL 93[2]	CDF 94[3]	SS 93[4]	DS 95[5]
pp $[10^{10}\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	5.9	6.0	6.0	6.1	6.1
^{7}Be $[10^9\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	5.2	4.3	4.8	3.9	3.7
^{8}B $[10^6\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	$6.6\,^{+0.9}_{-1.1}$	4.4 ± 1	5.6	3.0	2.49
pep $[10^8\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	$1.40\,^{+0.9}_{-1.1}$	4.4 ± 1	5.6	3.0	1.43
^{13}N $[10^8\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	6.18	0.382	0.47		3.82
^{15}O $[10^8\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	5.45	0.318	0.40		3.74

[1]Ref:[Bah95], [2]Ref: [Tur93], [3]Ref: [Cas94], [4]Ref: [Shi94], [5]Ref: [Dar96]

und sind vor allem im Fall des ^{8}B-Flusses selbst im Rahmen der teilweise angegebenen Fehler nicht mehr vereinbar. Diese Abweichungen liegen u.a. in den unterschiedlichen Eingangsparametern der Modelle begründet. Eine besondere Rolle spielen dabei die Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen des pp-Zyklus, wie in Abschnitt 1.3.2 näher erläutert wird. Die Modelle SS 93 und DS 95 werden von verschiedenen Autoren nicht zu den SSM gerechnet, sondern als Niederfluß-Modelle bezeichnet, weil sie relativ zu den anderen SSM einen deutlich niedrigeren ^{8}B-Fluß vorhersagen (z.B. [Ber96b])[6]. Da jedoch auch diese Modelle den Kriterien für ein SSM entsprechen, ist es besser keine künstliche Trennung zu vollziehen und damit die Unsicherheit von SSM-Rechnungen bezüglich der

[6]Zur Diskussion der dabei vorgenommenen, umstrittenen Veränderung der Eingangsparameter s. auch [Dar94, Bah94].

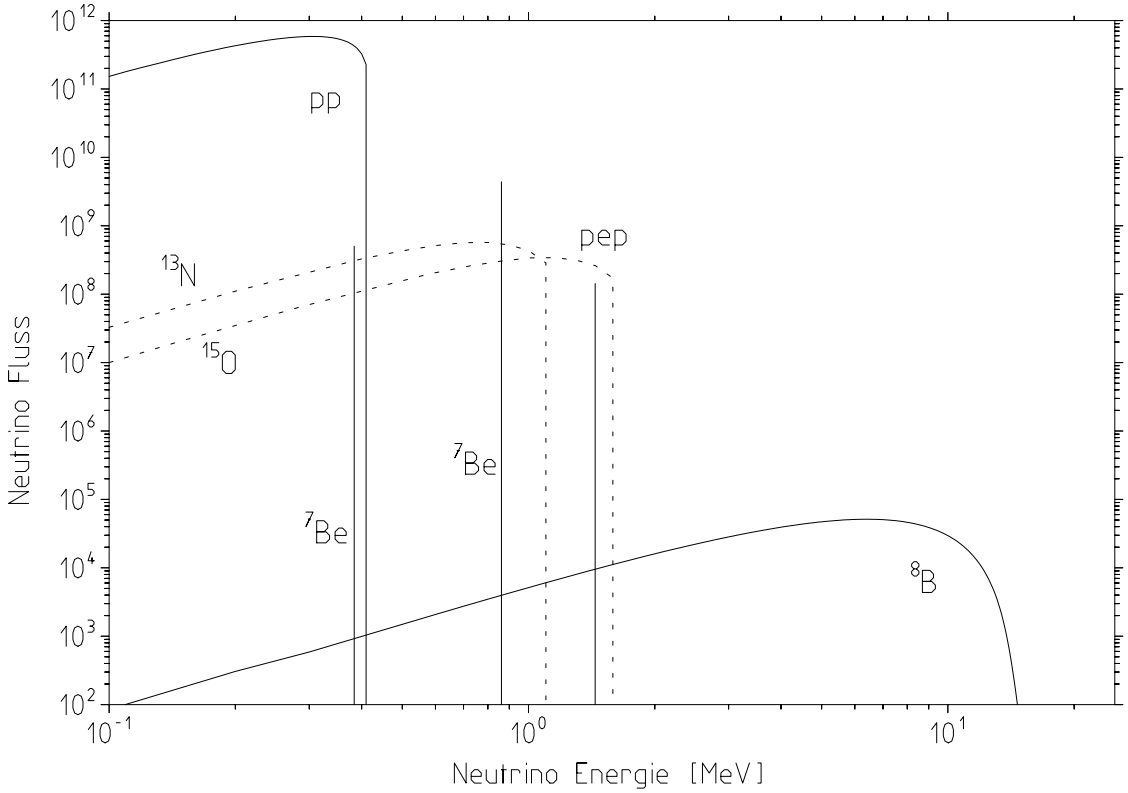

Abbildung 1.2: *Das solare Neutrinospektrum nach Bahcall [Bah92]. Gezeigt sind die Neutrinoflüsse am Ort der Erde als Funktion der Neutrino-Energie. Die wichtigsten Neutrinozweige aus dem CNO-Zyklus sind gestrichelt gezeichnet. Bei kontinuierlichen Spektren ist der Fluß in* $MeV^{-1}cm^{-2}s^{-1}$ *angegeben, bei Linienspektren in* $cm^{-2}s^{-1}$.

Vorhersagen für die Neutrinoflüsse zu verdeutlichen. Im folgenden werden diese Modelle als Niederfluß-SSM bezeichnet.

Auch die unterschiedliche Abhängigkeit der Neutrinoflüsse von der Zentraltemperatur der Sonne, die als Ergebnis der SSM-Rechnungen zwar nicht beliebig variierbar ist, aber doch von gewissen Annahmen abhängt, spiegelt die Unsicherheit wider, mit der die Flußvorhersagen behaftet sind. Nach Bahcall [Bah96a] gelten näherungsweise folgende Potenzgesetze für die dominanten Neutrinoflüsse der Sonne.

$$\Phi(\mathrm{pp})\ \alpha\ \mathrm{T_c^{-1.1}} \qquad \Phi(^7\mathrm{Be})\ \alpha\ \mathrm{T_c^{10}} \qquad \Phi(^8\mathrm{B})\ \alpha \mathrm{T_c^{24}}$$

Die Neutrinos der Sonne bieten eine fast einzigartige Möglichkeit, unsere Vorstellungen vom Inneren der Sonne und damit von Hauptreihensternen zu testen. Während der dominante Anteil der im Inneren der Sonne freigesetzten Energie ca. 10^5 Jahre benötigt, um an die Sonnenoberfläche zu diffundieren, und keine Information über die Vorgänge im Inneren der Sonne trägt, erreichen uns die Neutrinos wenige Minuten nach ihrer Entstehung auf der Erde und besitzen mit ihrer Energie und Häufigkeit die Information über ihren Produktionsprozeß. Wie in den nächsten Abschnitten deutlich wird, hat sich der Blickwinkel der solaren Neutrinophysik im Laufe der Zeit geändert. Ursprünglich gedacht als Instrument zum Test unserer Sonnenphysik, dient nun die Sonne umgekehrt auch als

Neutrinoquelle und liefert somit Information über die Natur dieser Elementarteilchen. Mit solaren Neutrinoexperimenten könnte erstmals der Nachweis massiver Neutrinos und damit der Existenz von Physik jenseits des Standardmodells der elektroschwachen Wechselwirkung gelingen. Massive Neutrinos wären auch eine Erklärung für die postulierte dunkle Materie in unserem Universium.

1.2 Solare Neutrinoexperimente

In diesem Abschnitt werden die vier bisher durchgeführten solaren Neutrinoexperimente und ihre Ergebnisse vorgestellt. Zur besseren Übersicht sind alle Ergebnisse bereits in Tab. 1.2 dargestellt, wobei die beiden Gallium-Experimente GALLEX und SAGE zusammengefaßt wurden. Für jedes Experiment ist zusätzlich der Bereich eingetragen, in dem die SSM den Anteil der einzelnen Neutrinozweige zum Gesamtsignal vorhersagen.

Tabelle 1.2: *Ergebnisse der bisher durchgeführten solaren Neutrinoexperimente und der Bereich der SSM-Vorhersagen für diese Experimente. Zusätzlich sind die theoretischen Beiträge der einzelnen Neutrinozweige zum Signal der Experimente eingetragen.*

	Gallium	Homestake	Kamiokande
pp	51 - 61%	-	-
^{7}Be	24 - 28%	13 - 25%	-
^{8}B	5 - 12 %	70 - 83%	100%
Daten	69 ± 8 SNU	2.56 ± 0.22 SNU	$(2.8 \pm 0.38) \cdot 10^6 \mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$
Theorie	115 - 137 SNU	4.2 - 9.3 SNU	$(2.5 - 6.6) \cdot 10^6 \mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$

1.2.1 Homestake-Experiment

Das erste solare Neutrinoexperiment wurde im Jahre 1968 in der Homestake-Mine in South Dakota/USA in Betrieb genommen [Dav96, Cle95]. Der nach dem radiochemischen Prinzip arbeitende Detektor verwendet als Target für die Neutrinos 615t flüssiges C_2Cl_4. Der Nachweis der Neutrinos erfolgt über die Reaktion $^{37}\mathrm{Cl} + \nu_\mathrm{e} \rightarrow ^{37}\mathrm{Ar} + \mathrm{e}^-$. Die produzierten instabilen Ar-Atome werden alle zwei Monate mit Helium ausgetrieben und ihr Rückzerfall zu ^{37}Cl in miniaturisierten untergrundarmen Proportionalzählern gemessen.

Die Schwelle für die Nachweisreaktion beträgt 814 keV, so daß die niederenergetischen pp-Neutrinos nicht nachgewiesen werden können. Nach den Vorhersagen der SSM tragen die hochenergetischen ^{8}B-Neutrinos zwischen 73% und 80%, die ^{7}Be-Neutrinos zwischen 13% und 25% zum Signal bei. Die Höhe des vorhergesagten Signals schwankt zwischen 4.2 SNU und $9.3^{+1.2}_{-1.4}$ SNU[7].

[7] 1 SNU bedeutet 1 Neutrinoeinfang pro Sekunde und 10^{36} Targetatome

Der über 25 Jahre gemittelte Meßwert [Dav96] liegt mit (2.55 ± 0.25) SNU deutlich unter den Vorhersagen aller SSM. Diese Diskrepanz ist das ursprüngliche solare Neutrinorätsel, das in seiner grundlegenden Form schon seit 25 Jahren besteht. Da das Homestake-Experiment im wesentlichen auf ^{8}B-Neutrinos sensitiv ist, ist dieses solare Neutrinorätsel ein Problem der ^{8}B-Neutrinos.

1.2.2 Kamiokande-Experiment

Das zweite solare Neutrinoexperiment KAMIOKANDE, das seit Mitte der achtziger Jahre in der Kamioka-Mine in Japan betrieben wird, weist die Neutrinos über ν-e^--Streuung in 680 t Leichtwasser durch Beobachtung des vom Elektron ausgesandten Ĉerenkov-Lichtes nach [Kam96]. Dieser Nachweis erfolgt im Gegensatz zu radiochemischen Experimenten in Echtzeit und richtungsauflösend, wodurch gezeigt werden konnte, daß das gemessene Signal tatsächlich von Neutrinos aus der Sonne stammt. Außerdem führt die rein leptonische Nachweisreaktion zu einer geringen Unsicherheit bezüglich des Wirkungsquerschnittes, dessen Abschätzung bei radiochemischen Experimenten ein Problem darstellt.

Wegen des zu niederen Energien hin stark ansteigenden Untergrundes wurde die Schwelle des Detektors auf 7.5 MeV gesetzt, so daß nur die hochenergetischen ^{8}B-Neutrinos zum Signal beitragen.

Der gemessene Wert von $(2.75 \pm 0.19 \pm 0.41) \cdot 10^6 \mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$ [Kam96] für den mittleren ^{8}B-Neutrino-Fluß auf der Erde stimmt mit den Vorhersagen der Niederfluß-SSM überein, die jedoch gelegentlich als ergebnisorientiert kritisiert werden [Bah96c]. Im Vergleich zu den Vorhersagen der anderen SSM bestätigt sich die vom Homestake-Experiment gefundene Diskrepanz. Unabhängig von der modellabhängigen Aussage bezüglich der ^{8}B-Neutrinos folgt aus der Kombination der Resultate beider Experimente eine Verschärfung des solaren Neutrinorätsels. Zieht man den aus dem KAMIOKANDE Ergebnis gemessenen Beitrag der ^{8}B-Neutrinos von den Vorhersagen der SSM für das Homestake-Experiment ab, so ergibt sich bei allen SSM ein deutliches Defizit an ^{7}Be-Neutrinos, deren Fluß nach den SSM mit wesentlich besserer Genauigkeit vorhergesagt wird als der der ^{8}B-Neutrinos.

1.2.3 Gallium-Experimente

Seit Anfang der neunziger Jahre sind zwei radiochemische Experimente GALLEX [Gal92, Gal95, Gal96] und SAGE [Sag96a] in Betrieb, die für den Neutrinonachweis Gallium als Targetmaterial verwenden. Die bereits 1966 von Kuzmin [Kuz66] vorgeschlagene Reaktion $^{71}\mathrm{Ga} + \nu_\mathrm{e} \rightarrow ^{71}\mathrm{Ge} + \mathrm{e}^-$ besitzt eine Energieschwelle von 233 keV, wodurch diese Experimente auch auf die niederenergetischen pp-Neutrinos sensitiv sind. Da in radiochemischen Experimenten die Information über die Energie der nachgewiesenen Neutrinos verloren geht, können die Gallium-Experimente aber nur eine Aussage über den integralen Neutrinofluß der Sonne oberhalb der Energieschwelle machen.

SAGE verwendet 60 t Gallium in metallischer Form. Ungefähr jedes Monat werden die produzierten Ge-Atome extrahiert. Nach mehreren Prozessen wird GeH_4 in miniaturisierte Proportionalzähler gefüllt und der Rückzerfall des ^{71}Ge zu ^{71}Ga gemessen.

Bei GALLEX liegen 30 t Gallium als $GaCl_3$ in salzsaurer Lösung vor. Die produzierten Ge-Atome werden als $GeCl_4$ in der Regel alle 3 bis 4 Wochen mit Hilfe von N_2 extrahiert. Der weitere Prozeß ist ähnlich wie bei SAGE.

Für beide Experimente konnte im Gegensatz zum Homestake-Experiment mit Neutrinoquellen bekannter Aktivität gezeigt werden, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit keine unverstandenen systematischen Fehler auftreten [Sag96b], [Gal95].

Die Resultate von etwa 70 SNU liegen wie bei den anderen Experimenten deutlich niedriger als die Vorhersagen der SSM (vgl. Tab. 1.2).

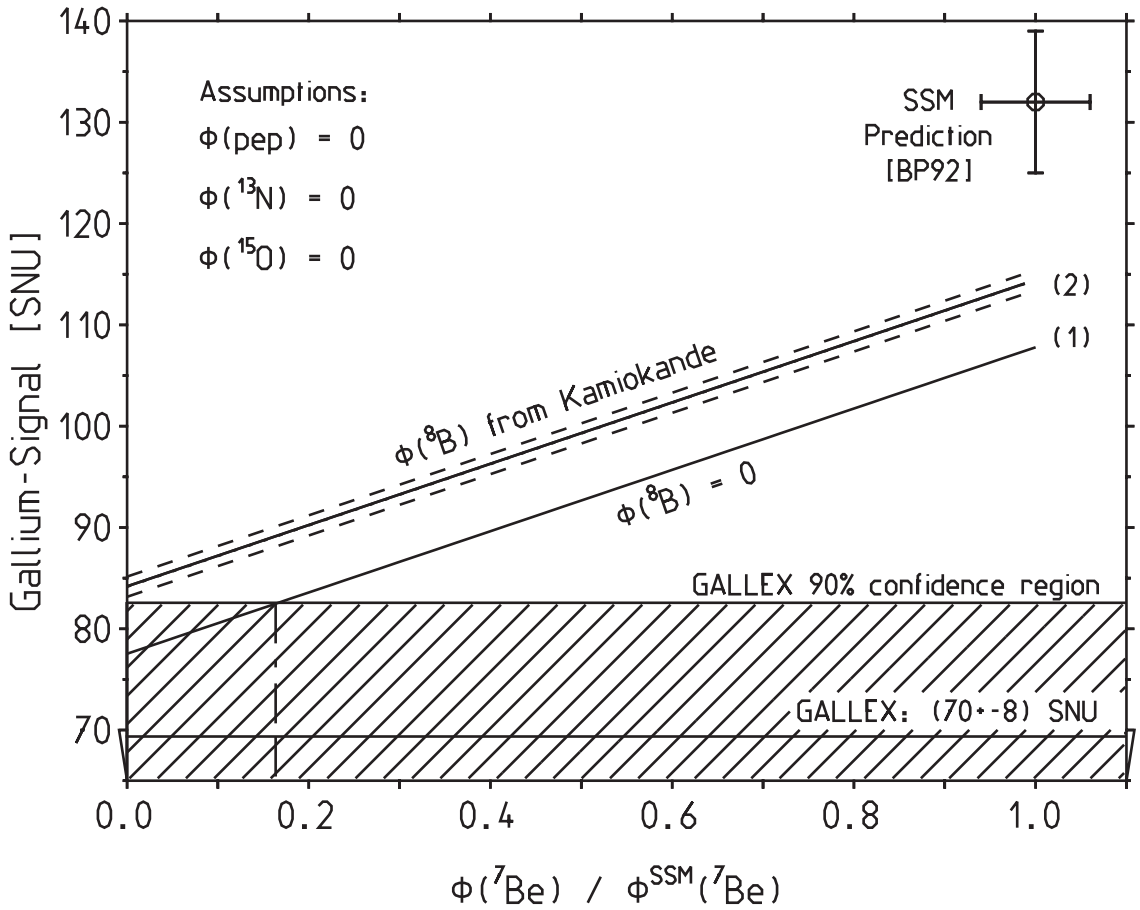

Abbildung 1.3: *Entnommen aus [Alt96]. Das erwartete Signal in* GALLEX *in Abhängigkeit des ^{7}Be-Flusses bei Annahme eines minimalen Sonnenmodells. Dieses setzt nur den pp-Zyklus als Prozeß der Energiefreisetzung, die im Wesentlichen durch die Luminosität der Sonne bestimmte Energiefreisetzungsrate und Gleichgewicht in der Sonne voraus. Die mit den Daten von* GALLEX *bei 90% Konfidenzlimit noch vereinbare Obergrenze für den ^{7}Be-Fluß von ungefähr $2 \cdot 10^9 cm^{-2} s^{-1}$ liegt unterhalb den Vorhersagen aller SSM.*

Aus diesen Resultaten allein läßt sich bereits eine wichtige Aussage über den ^{7}Be-Fluß der Sonne angeben, der weitgehend modellunabhängig ist [Alt96]. Dazu fordert man lediglich, daß sich die Sonne im Gleichgewicht befindet und die Energiefreisetzung im Inneren

der Sonne über den pp-Zyklus erfolgt. Trägt man für dieses Modell das erwartete Signal in den Gallium-Experimenten über dem ^{7}Be-Fluß auf, wie in Abb. 1.3 veranschaulicht, erhält man durch das von den Gallium-Experimenten erlaubte 90% Konfidenzintervall eine Obergrenze für den ^{7}Be–Fluß, die mit $2.0 \cdot 10^9 \mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$ deutlich unter den Vorhersagen aller SSM liegt.
Aus der Kurve folgt aber auch, daß die grundsätzliche Vorstellung einer Energiefreisetzung in der Sonne über den pp-Zyklus nicht aufgegeben werden muß, ohne gleichzeitig Eigenschaften der Neutrinos jenseits des Standardmodells der elektroschwachen Wechselwirkung zu postulieren.

Die Diskrepanz für den ^{7}Be–Fluß, die bereits in den Ergebnissen der anderen Experimente deutlich wurde, stellt neben dem gegenüber den ^{8}B-Neutrinos stärkeren Defizit an ^{7}Be-Neutrinos den wichtigsten Aspekt des solaren Neutrinorätsel in seiner heutigen Form dar. Selbst wenn eines der Experimente falsch wäre, würde sich nichts an seiner Aussage ändern. Welche Lösungsansätze zu dem solaren Neutrinorätsel existieren, wird im folgenden beschrieben.

1.3 Lösungsansätze zum solaren Neutrinorätsel

1.3.1 Astrophysikalische Lösungsansätze

Eine Möglichkeit für die Diskrepanz zwischen den gemessenen und theoretisch vorhergesagten Neutrinoflüssen der Sonne könnte darin begründet sein, daß die im Inneren der Sonne ablaufenden Prozesse in den SSM nicht richtig abgebildet werden, oder die verwendeten Eingangsparameter falsch sind. Dabei soll die Frage der Wirkungsquerschnitte der Fusionsreaktionen ausgeklammert werden; sie wird im nächsten Abschnitt behandelt.
Bereits innerhalb der SSM unterscheiden sich einige Eingangsparameter (z.B. Häufigkeit schwerer Elemente) und die Beschreibung bestimmter Prozesse (z.B. Plasma-Screening) [Ber96b]. Wie bereits im letzten Kapitel erläutert, können zwar die Niederfluß-SSM den von KAMIOKANDE gemessenen ^{8}B-Fluß reproduzieren, aber die Diskrepanz für den ^{7}Be-Fluß besteht für alle SSM.
In den sogenannten Nicht-SSM werden nun mehr oder weniger ad-hoc Annahmen gemacht, um die gemessenen Neutrinoflüsse zu erklären [Bah89]. Diese Annahmen sind z.B. die Existenz von hypothetischen WIMP's[8] in der Sonne, ein erhöhter Wirkungsquerschnitt für die pp-Reaktion, eine sehr erniedrigte Häufigkeit schwerer Elemente oder Opazität. Es wurde gezeigt, daß fast alle Modelle auf eine Erniedrigung der Zentraltemperatur der Sonne hinauslaufen und durch diesen Parameter charakterisiert werden können [Hat94]. Aufgrund der in Kap. 1.1 beschriebenen Temperaturabhängigkeit der dominanten solaren Neutrinoflüsse bedeutet dies jedoch immer, daß der ^{8}B-Fluß im Gegensatz zur experimentellen Situation stärker unterdrückt wird als der ^{7}Be-Fluß (s. Abb. 1.4). Eine astrophysikalische Erklärung des solaren Neutrinorätsels scheidet somit zum gegenwärtigen Zeitpunkt aus.

[8] Diese Abkürzung steht für Weakly Interacting Massive Particle.

Abbildung 1.4: *Entnommen aus [Hat94]. Dargestellt ist der erlaubte Bereich für den $\Phi(^7Be)$ und den $\Phi(^8B)$, normiert auf die vorhergesagten Flüsse nach Bahcall, für den gemeinsamen Fit der vier bisher durchgeführten solaren Neutrinoexperimente bei 90, 95 und 99% C.L.. Weiter sind einige Nicht-SSM eingezeichnet, die jedoch wie das SSM nach Bahcall (rechts oben) ebenfalls keine Lösung der experimentellen Situation darstellen (s. Text).*

1.3.2 Kernphysikalische Lösungsansätze

Die Verzweigungsverhältnisse im pp-Zyklus hängen von den Wirkungsquerschnitten der Fusionsreaktionen ab. Dabei ist es üblich, nicht die stark energieabhängigen Wirkungsquerschnitte selbst, sondern die sogenannten S-Faktoren anzugeben, die nur mehr schwach von der Energie abhängen und für den Wert bei E=0 angegeben werden [Hat96].

$$\sigma(\mathrm{E}) = \frac{\mathrm{S(E)}}{\mathrm{E}} \mathrm{e}^{(-\mathrm{E_G}/\mathrm{E})^{1/2}} \tag{1.1}$$

$E_G = 2(\pi\alpha Z_1 Z_2)^2 \mu c^2$, Z_1 und Z_2 sind die Ladungszahlen der Stoßpartner, μ ihre reduzierte Masse und E die Energie im Schwerpunktsystem. Wie bereits in Kap. 1.1 angedeutet, ist die Messung dieser Größen bei den für die Sonne relevanten Energien von einigen keV experimentell schwer zugänglich, so daß sie durch Extrapolation der bei höheren Energien gemessenen Werte gewonnen werden müssen oder im Fall der pp-Reaktion ausschließlich berechnet werden.

Im Hinblick auf die Diskrepanz zwischen experimentellen Daten und den Vorhersagen der SSM kann man nun versuchen, unter Berücksichtigung der gegebenen Luminosität der Sonne an den experimentell nicht endgültig verifizierten Wirkungsquerschnitten zu drehen, um die Diskrepanz zu beseitigen. Die experimentellen Daten fordern dabei eine relativ zu den Vorhersagen stärkere Unterdrückung des ^{7}Be-Flusses gegenüber dem ^{8}B-Fluß. Ein

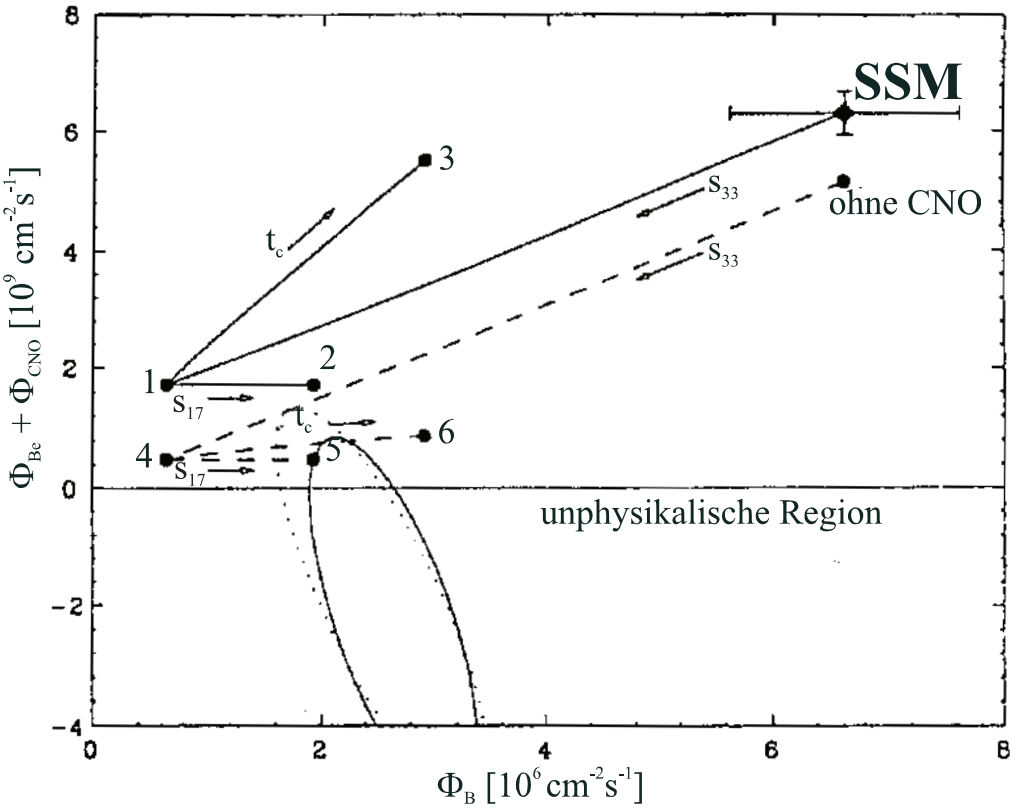

Abbildung 1.5: *Entnommen aus [Ber96a]. Es ist dargestellt, wie man durch willkürliche Änderung der S-Faktoren und der Temperatur versuchen kann, die Vorhersagen des SSM von Bahcall an die gemessenen Daten anzupassen. Dies funktioniert nur bei Vernachlässigung des CNO-Zyklus und bei gleichzeitiger Anpassung des S_{17}- und des S_{33}-Faktors.*

Blick auf den in Abb.1.1 dargestellten pp-Zyklus weist dabei qualitativ den Weg. Durch eine starke Erhöhung des S_{33}-Faktors, die z.B. in einer hypothetischen Resonanz begründet liegt, wird das Gleichgewicht zwischen ppI- und ppII-Kette so weit zugunsten der ppI-Kette verschoben, daß der niedrige ^{7}Be-Fluß der ppII-Kette erklärt wird (vgl. Abb. 1.5 ,

Punkt 1 u. 4). Die anschließend nötige Erhöhung des ^{8}B-Flusses kann man auf zwei Wege erreichen, erstens durch eine leichte Erhöhung der Zentraltemperatur (Punkt 3 u. 6) oder zweitens durch eine Erhöhung des S_{17}-Faktors (Punkt 2 u. 5), was völlig diametral zur Tendenz wäre, das solare Neutrinoproblem über eine Erniedrigung dieser Größe zu erreichen. Es sei darauf hingewiesen, daß durch den unveränderten S_{11}-Faktor die Zentraltemperatur durch die genannten Änderungen nur unwesentlich geändert wird. Genauere Rechnungen zeigen, daß die skizzierten Lösungsansätze für das SSM von Bahcall unter Berücksichtigung der CNO-Neutrinos nicht zum Ziel führen und bei vernachlässigbarem Fluß dieser Neutrinos nur die Erhöhung des S_{17}-Faktors um einen Faktor drei bei starker Erhöhung des S_{33}-Faktors [Ber96a]. So willkürlich die zur Lösung des solaren Neutrinorätsels getroffenen Annahmen auch erscheinen mögen, ihre endgültige Ablehnung kann nur durch eine Messung der Wirkungsquerschnitte im relevanten Energiebereich erfolgen. Die LUNA-Kollaboration [Lun96] führt gegenwärtig Experimente zur Messung der Wirkungsquerschnitte im Untergrundlabor am Gran Sasso mit dem Ziel durch, bis in den relevanten Energiebereich vorzustoßen. Die äußerst niedrigen Raten erfordern dabei die Abschirmung gegen kosmische Höhenstrahlung. Erste Messungen zum S_{33}-Faktor zeigen keine Ansätze für eine Resonanz, wobei ungefähr die Hälfte des entscheidenden Energiebereichs abgedeckt wurde.

1.3.3 Teilchenphysikalische Lösungsansätze

Da die beiden vorgestellten Lösungsansätze gegenwärtig keinen schlüssigen Weg aufzeigen, wie sich das Defizit in den Resultaten der solaren Neutrinoexperimente erklären läßt, erscheint es fast unumgänglich, den Grund bei den Neutrinos selber zu suchen, wenn man einmal die Annahme, daß zwei der drei Experimenttypen, darunter die Galliumexperimente, deutlich größere systematische Fehler aufweisen, als reine Spekulation beiseite läßt.

Dazu muß man etwas ausholen. Im Quarksektor sind die Masse-Eigenzustände der Quarks nicht identisch mit den Flavour-Eigenzuständen, die zur Beschreibung von Prozessen der schwachen Wechselwirkung entscheidend sind. Der Masse-Eigenzustand eines bestimmten Quarks kann also durch eine Linearkombination von Flavour-Eigenzuständen beschrieben werden. Den allgemeinen Zusammenhang gibt die Cabbibo - Kobayashi - Maskawa Mischungsmatrix wieder (s. z.B. [Pov95]).
Ein analoges Verhalten im Leptonensektor tritt im Rahmen des minimalen Standardmodells der Teilchenphysik nicht auf, da die Neutrinos in diesem Modell masselos sind. Es wird jedoch nach einer fundamentaleren Theorie gesucht, die eine gemeinsame Beschreibung von elektroschwacher und starker Wechselwirkung erlaubt. In nahezu allen dieser Theorien der sogenannten „Großen Vereinheitlichung“ (s. z.B. [Gro89], [Nil90]) werden auch Neutrinos als massive, mischende Teilchen beschrieben. Die Masse-Eigenzustände ν_i der Neutrinos lassen sich dann als Linearkombination der Flavour-Eigenzustände ν_α beschreiben und umgekehrt [Kim93].

$$\nu_\alpha = \sum_{i=1}^{3} U_{\alpha i} \cdot \nu_i \qquad (\alpha = e, \mu, \tau) \tag{1.2}$$

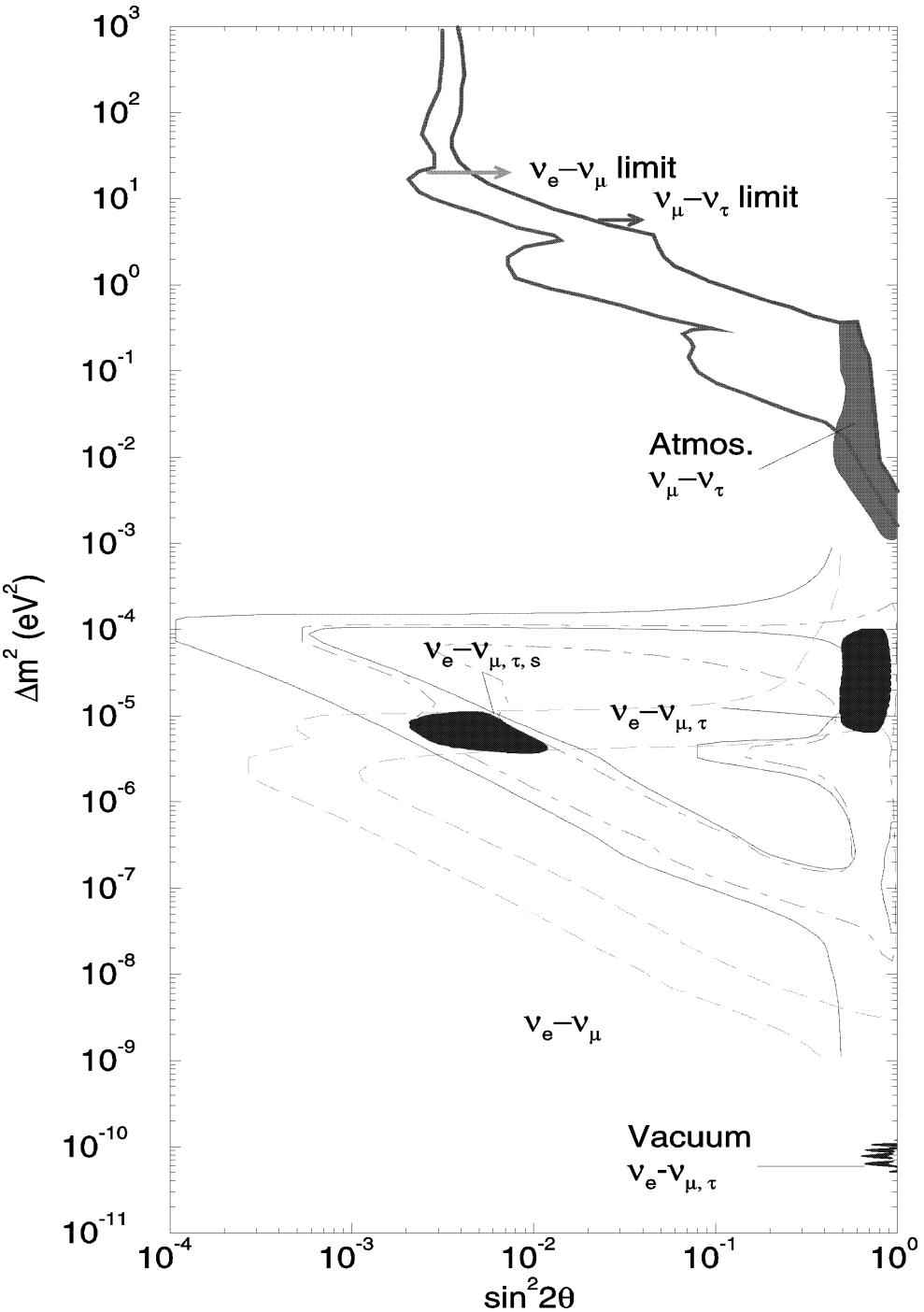

Abbildung 1.6: *Eingezeichnet sind die drei Parameterbereiche, die das solare Neutrinorätsel erklären und der Parameterbereich, durch den sich die atmosphärische Neutrinoanomalie auf Neutrinoeigenschaften zurückführen läßt. Die drei Parameterbereiche des solaren Neutrinorätsels lassen sich in die Vakuum- oder „Just so“ -Lösung bei $\Delta m^2 \approx 10^{-10}$ und in die beiden MSW-Lösungen bei $\Delta m^2 \approx 10^{-5}$ unterteilen. Im oberen Bereich sind die Grenzen abgebildet, die durch terrestrische Oszillationsexperimente gewonnen werden konnten.*

Kehren wir nun zur Sonne zurück und betrachten die Auswirkungen massiver und mischender Neutrinos. Bei den Fusionsreaktionen in der Sonne entstehen Neutrinos in Prozessen der schwachen Wechselwirkung und liegen nach ihrer Entstehung im reinen Flavour-Eigenzustand ν_e vor. Für ihre Propagation im Raum sind jedoch die Masse-Eigenzustände das relevante Basissystem, so daß sich das propagierende Neutrino als eine Linearkombination verschiedener Wellen, genauer Wellenpakete beschreiben läßt. Sind die Massen m_i verschieden, ändern sich die Phasen der einzelnen Wellenpakete unterschiedlich schnell. Bildet man nach einer bestimmten Strecke der Propagation eine erneute Projektion auf den Flavour-Eigenzustand, so stellt man fest, daß man mit einer gewissen Wahrscheinlickkeit auch andere Flavour-Eigenzustände erhält und diese Wahrscheinlichkeit vom Ort abhängt. Dieses Phänomen bezeichnet man als Neutrino-Oszillationen (s. z.B. [Obe92]). Für relativistische Neutrinos mit ($m_i \ll E$) läßt sich die Oszillationswahrscheinlichkeit schreiben als [Kim93]:

$$\begin{aligned} P_{\nu_\alpha \to \nu_\beta}(x) &= |\langle \nu_\alpha | \nu_\beta(x,t) \rangle|^2 = \Big| \sum_{i=1}^{3} U^*_{\alpha i} U_{\beta i} e^{-i \frac{m_i^2}{2E} x} \Big|^2 = \\ &= \sum_{i=1}^{3} |U_{\alpha i}|^2 |U_{\beta i}|^2 + 2 \sum_{\substack{i,j=1 \\ j<i}}^{3} U^*_{\alpha i} U_{\alpha j} U^*_{\beta j} U_{\beta i} \cos\left(\frac{2\pi x}{L^{osc}_{ij}}\right) \end{aligned} \tag{1.3}$$

wobei $L^{osc}_{ij} = 4\pi E / \Delta m^2_{ij}$ mit $\Delta m^2_{ij} = |m_i^2 - m_j^2|$ als Oszillationslänge bezeichnet wird.

Nimmt man an, daß in Analogie zum Quarksektor eine Familie dominant an eine andere koppelt (s. z.B. [Kim93],[Pov95]), genügt die Betrachtung von zwei Familien und man erhält eine einfachere und übersichtlichere Darstellung. Die Mischungsmatrix U kann durch einen Mischungswinkel θ parametrisiert werden und hat folgende Gestalt:

$$U = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \tag{1.4}$$

Setzt man die Matrixelemente in eine 1.3 für zwei Familien entsprechende Formel ein, erhält man die Oszillationswahrscheinlichkeit für die Zwei-Neutrino-Mischung:

$$P_{\nu_\alpha \to \nu_\beta}(x) = \delta_{\alpha\beta} + \frac{(1 - 2\delta_{\alpha\beta})}{2} \sin^2 2\theta \Big(1 - \cos\left(\frac{2\pi x}{L^{osc}}\right)\Big) \tag{1.5}$$

Der Term $\sin^2 2\theta$ beschreibt die Stärke der Oszillation und L^{osc} die Länge, nach der die Wahrscheinlichkeit den ursprünglichen Flavourzustand zu erhalten wieder 1 ist.

In die Oszillationslänge gehen die Energie der Neutrinos und die Differenz der Massenquadrate ein. Für die solaren Neutrinoexperimente, die Neutrinos ungefähr zwischen 230 keV und 15 MeV nachweisen, bedeutet dies, daß bei dem gegebenen Abstand zwischen Erde und Sonne von ca. $1.5 \cdot 10^8$km Differenzen in den Massenquadraten Δm^2 von ca. 10^{-10} bis 10^{-12}eV^2 zu meßbar reduzierten Neutrinoflüssen führen würden.
Das gemessene Defizit an solaren Neutrinos läßt sich tatsächlich auch durch Vakuumoszillationen erklären. Legt man das SSM nach Bahcall zugrunde, ergeben sich erlaubte

Parameterkombinationen für $\Delta m^2 - \sin^2 2\theta$, wie sie im unteren Bereich der Abb.1.6 eingezeichnet sind. Für den besten Fit mit $\chi^2 = 2.5$ erhält man $\Delta m = 6 \cdot 10^{-11} eV^2$ und $\sin^2 2\theta = 0.96$ [Bah96b].

Neben den Vakuumoszillationen kann aber auch eine materieinduzierte Oszillation der Neutrinos (MSW-Effekt) auftreten [Wol78],[Mik86]. Ihre Ursache liegt darin, daß ν_e's in Materie über den geladenen und den neutralen Strom, die Neutrinos anderer Flavour jedoch nur über den neutralen Strom wechselwirken können. Das führt dazu, daß die ν_e's bei der Propagation durch Materie durch kohärente Vorwärtsstreuung ein anderes effektives Potential V sehen als die Neutrinos anderer Flavours. Dieses effektive Potential verändert die Dispersionsrelation $E_\nu^2 = p^2 + m_\nu^2$ und läßt sich für $|V| \ll p$ schreiben als $E_\nu^2 = p^2 + (m_\nu^2 + 2pV) + ...$, wobei der Term in Klammern als effektives Neutrinomassenquadrat aufgefaßt werden kann [Kim93]. Da wir uns noch in der Basis der Flavoureigenzustände befinden, setzt man diese veränderten Massen in die Bewegungsgleichung dieser Zustände ein. Die Diagonalisierung der dabei auftretenden nichtdiagonalen Matrix führt zu den Masseneigenzuständen. In Materie mit ortsunabhängiger Dichte erhält man dadurch eine geänderte Oszillationslänge entsprechend der neuen Masseeigenzustände.
Komplizierter wird die Beschreibung der Propagation in Materie mit ortsabhängiger Dichte. Die Bewegungsgleichung ist, wenn man einmal von Spezialfällen absieht, analytisch nicht zu lösen, da die Masseneigenzustände ortsabhängig sind. Ein zusätzlicher Effekt tritt auf, wenn die Neutrinos bei der Propagation in einen Bereich kommen, in dem die Dichte so groß ist, daß die beiden Masseneigenzustände ungefähr gleich sind. Dann kann es zu einer resonanten Konversion der Flavoureigenzustände kommen und ein im Inneren der Sonne erzeugtes ν_e verläßt selbst bei kleinem Vakuummischungswinkel mit großer Wahrscheinlichkeit die Sonne als Neutrino anderer Flavour.

Für materieinduzierte Oszillationen gibt es zwei Parameterbereiche für Δm^2 und $\sin^2 2\theta$, die die Diskrepanz zwischen den experimentellen Daten und den theoretischen Vorhersagen erklären können. Wie im mittleren Bereich der Abb. 1.6 zu sehen ist, existiert die sogenannte „kleine Mischungswinkel-“ Lösung mit Δm^2 zwischen $4 \cdot 10^{-6} eV^2$ und $1 \cdot 10^{-5} eV^2$ und $\sin^2 2\theta$ zwischen $10^{-3} - 10^{-2}$ und die sog. „große Mischungswinkel-“ Lösung mit Δm^2 zwischen $7 \cdot 10^{-6} - 1 \cdot 10^{-4} eV^2$ und $\sin^2 2\theta$ zwischen 0.5 und 0.9 [Ber95]. Die „kleine Mischungswinkel-“ Lösung ergibt einen guten Fit für alle SSM, wobei der wahrscheinlichste Wert für $\sin^2 2\theta$ für das SSM von Bahcall bei $8 \cdot 10^{-3}$ und für die Niederfluß-SSM bei $1 \cdot 10^{-3}$ liegt [Ber95]. Auch für mögliche Oszillationen der solaren Neutrinos in sterile Neutrinos, die auch nicht über den neutralen Strom wechselwirken, stellt dieser Parameterbereich eine Lösung dar [Cal96]. Der für die „kleine Mischungswinkel-“ Lösung typische Verlauf der MSW-Kurve ist in Abb. 1.7 dargestellt. Sie gibt die energieabhängige Wahrscheinlichkeit an, mit der ein im Inneren der Sonne emittiertes ν_e die Sonne als ν_e verläßt. Wie man sieht, kann dadurch die experimentelle Situation gut erklärt werden. Das Tal der Kurve liegt in dem Energiebereich der ^{7}Be-Linie, die fast vollständig unterdrückt ist. Die pp- Neutrinos verlassen die Sonne fast ohne Konversion und die Unterdrückung der ^{8}B- Neutrinos hängt vom Mischungswinkel und damit vom zugrundegelegten SSM ab, wie oben bereits erwähnt wurde. Für die Niederfluß-SSM verläuft die Kurve schon ab einigen MeV wieder nahe bei 1, da der gemessene ^8B-Fluß mit dem vorhergesagten übereinstimmt. Für die anderen SSM ist die Unterdrückung der ^{8}B-Neutrinos auch ab einigen

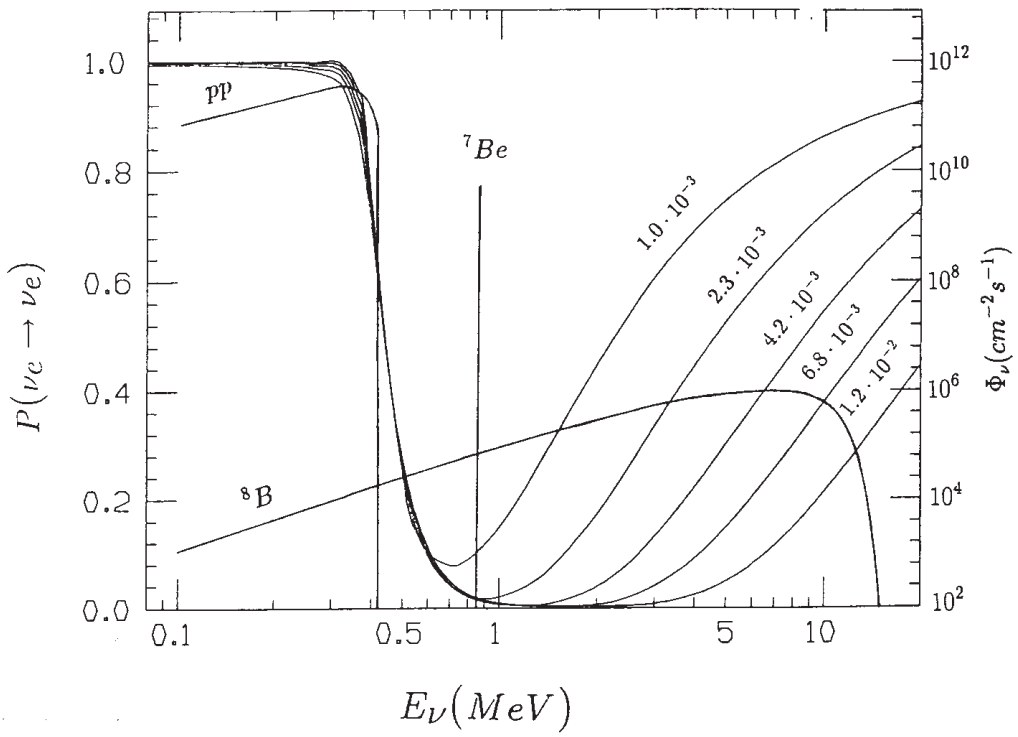

Abbildung 1.7: *Entnommen aus [Ber96b]. Dargestellt ist das solare Neutrinospektrum und der energieabhängige Verlauf der MSW-Unterdrückungskurve für ν_e's. Für die Niederfluß-SSM ist die Kurve mit $1 \cdot 10^{-3}$ relevant. Diese Kurve kehrt nach ihrem Minimum schneller gegen den Wert 1 zurück und beeinflußt die ^{8}-Neutrinos ab 5 MeV kaum. Für das SSM von Bahcall erklärt ein Mischungswinkel von ca. $8 \cdot 10^{-3}$ die Daten am besten. Diese Kurve führt zu einer deutlichen Unterdrückung der ^8B-Neutrinos und zu einer signifikanten Verformung des Spektrums. Man sieht deutlich wie die experimentellen Daten durch den Verlauf der Kurven erklärt werden.*

MeV noch signifikant und beträgt ungefähr 0.5.

Die „große Mischungswinkel-“ Lösung hingegen ergibt für das SSM von Bahcall noch ein akzeptables χ^2 von 2.5, ist aber für die Niederfluß-SSM oder allgemein für sterile Neutrinos keine gute Lösung, d.h. χ^2 ist größer 7 [Ber95],[Cal96].

Neutrinooszillationen können, wie diskutiert wurde, das Defizit an gemessenen solaren Neutrinos erklären. Um jedoch eine endgültige Aussage über das solare Neutrinoproblem treffen zu können und dadurch vielleicht einen ersten Beweis für die Existenz von Physik jenseits des Standardmodells der elektroschwachen Wechselwirkung zu liefern, müssen weitere solare Neutrinoexperimente durchgeführt werden. Abschließend soll noch eine Bemerkung zu dem Bereich der Massenquadrate gemacht werden, in dem die solaren Neutrinoexperimente sensitiv sind. Kosmologisch favorisiert sind Neutrinomassen im Bereich von eV. Insofern ist die Sonne eine ungünstige Neutrinoquelle. Auf der anderen Seite führt ein quadratischer see-saw-Mechanismus bei einer zum Quarksektor analogen Massenhierarchie in den Bereich der MSW-Lösungen, wenn die ν_τ's Massen im eV-Bereich besitzen und die solaren ν_e's in ν_μ's oszillieren [Ber96c].

Kapitel 2

BOREXINO - ein solares Neutrino-experiment der nächsten Generation

2.1 Das Konzept des BOREXINO - Experimentes

Der Nachweis der solaren Neutrinos soll in BOREXINO über ν-e^--Streuung in ca. 100 t Flüssigszintillator erfolgen [Bor91]. Dieses Konzept hat folgende Besonderheiten:

- Der Wirkungsquerschnitt dieser rein leptonischen Nachweisreaktion läßt sich mit der Theorie der elektroschwachen Wechselwirkung sehr exakt berechnen. Dies ist ein Vorteil gegenüber radiochemischen Experimenten, bei denen der systematische Fehler für den Wirkungsquerschnitt des inversen $\beta-$Zerfalls nicht vernachlässigbar ist und dessen Abschätzung Probleme bereitet. Ein weiterer Vorteil der Nachweisreaktion ist, daß die Neutrinos in Echtzeit gemessen werden, während die gegenwärtigen radiochemischen Experimente mit einer Expositionsdauer von mehreren Wochen zum Beispiel nicht auf die zeitliche Variation des Tag-Nacht-Effektes sensitiv sind. Dieser Effekt tritt auf, wenn sich die in der Sonne konvertierten Neutrinos bei ihrer Propagation durch die Erde wieder zu ν_e's umwandeln. Weil dieser Effekt nur in der Nacht auftreten kann, ergibt sich eine Tag-Nacht-Abhängigkeit der Signalhöhe.

- Die Energieschwelle für die gestreuten Elektronen kann im Vergleich zu den Wasser-Ĉerenkov-Detektoren wegen der wesentlich höheren Lichtausbeute des Flüssigszintillators sehr tief gesetzt werden. Eine Schwelle von einigen 10 keV wäre möglich, aber aus Gründen des Untergrundes, der im nächsten Kapitel besprochen wird, wird sie ungefähr bei 250 keV Elektronenenergie gesetzt, so daß Neutrinos ab einer Energie von 450 keV nachgewiesen werden können. Im Gegensatz zu radiochemischen Detektoren ist eine Spektroskopie der solaren Neutrinos möglich, weil die verschiedenen Zweige des solaren Neutrinospektrums Rückstreuspektren der Elektronen in verschiedenen Energiebereichen erzeugen. Das erwartete Spektrum nach den Vorhersagen des SSM von Bahcall, das Spektrum bei vollständiger Konversion in Neutrinos anderer Flavour und ein Untergrundspektrum sind in Abb. 2.1 dargestellt. Das Signal/Untergrund-Verhältnis für die ^{7}Be-Neutrinos ist bei dem mindestens

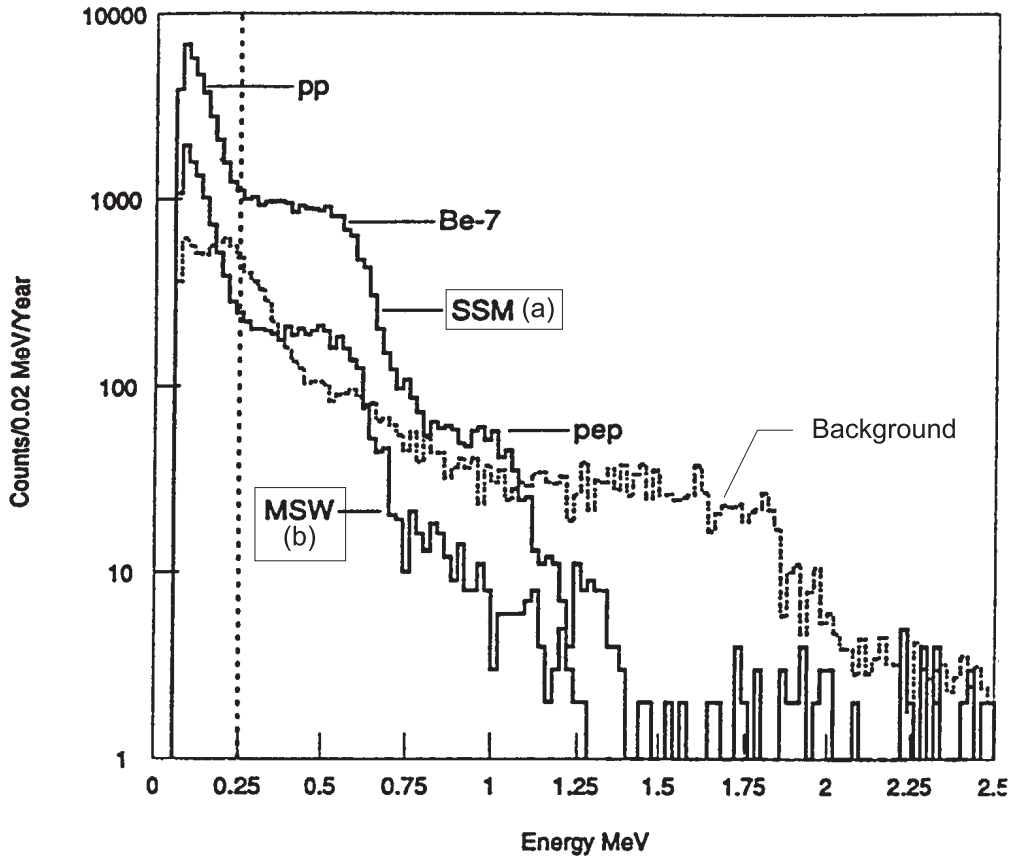

Abbildung 2.1: *Dargestellt ist das erwartete Signal der solaren Neutrinos im* BOREXINO*-Detektor nach den Vorhersagen des SSM von Bahcall, das Signal bei vollständiger Konversion und der Untergrund bei einem U- und Th- Gehalt von* $10^{-16} g/g$ *und einem K-Gehalt von* $10^{-14} g/g$ *im Szintillator.*

angestrebten Untergrundniveau selbst für vollständige Konversion deutlich größer eins. Demgegenüber hängt die Möglichkeit des Nachweises der monoenergetischen pep- Neutrinos bei 1.44 MeV davon ab, ob das in der Abb. 2.1 zugrunde gelegte Untergrundniveau unterschritten werden kann, und wie stark die Unterdrückung dieses Neutrinozweiges ist. Für die ^{8}B-Neutrinos ist oberhalb einer Schwelle von ca. 3 MeV ein ausreichendes Signal/Untergrund-Verhältnis zu erwarten. Der Fluß der pp-Neutrinos ist dagegen wegen des zu hohen Untergrundes unterhalb 250 keV nicht meßbar.

- BOREXINO ist sensitiv auf Neutrinos aller Flavours. Während ν_μ's und ν_τ's nur über den neutralen Strom wechselwirken können, tragen für ν_e's auch geladene Stromreaktionen zum Wirkungsquerschnitt bei. Die Wirkungsquerschnitte lassen sich mit folgenden Formeln berechnen, wobei T und q die kinetischen Energien des Elektrons

bzw. des Neutrinos sind, x=T/q und $\sin^2\theta_W = 0.23$ gesetzt wurde [Ben96]:

$$\sigma(q,T) = 101.0 \cdot 10^{-46} \cdot [1 - 0.18x + 0.090(1 - \frac{1.62}{T})x^2] \quad (\nu_e) \tag{2.1}$$

und

$$\sigma(q,T) = 21.7 \cdot 10^{-46} \cdot [1 - 0.84x + 0.42(1 + \frac{0.60}{T})x^2] \quad (\nu_{\mu,\tau}) \tag{2.2}$$

Das Verhältnis der integralen Wirkungsquerschnitte für ν_e's und $\nu_{\mu,\tau}$'s beträgt 4.53 für die ^{7}Be-Neutrinos und 4.93 für die pep-Neutrinos [Bah97]. Für die ^{7}Be-Neutrinos sind die aus den differentiellen Wirkungsquerschnitten resultierenden Rückstreuspektren der Elektronen bei unendlich guter Energieauflösung (durchgezogene Linie) in Abb. 2.2 dargestellt. Wie aus der Abbildung ersichtlich, verursachen monoenergetische Neutrinos eine comptonähnliche Stufe und liefern dadurch eine

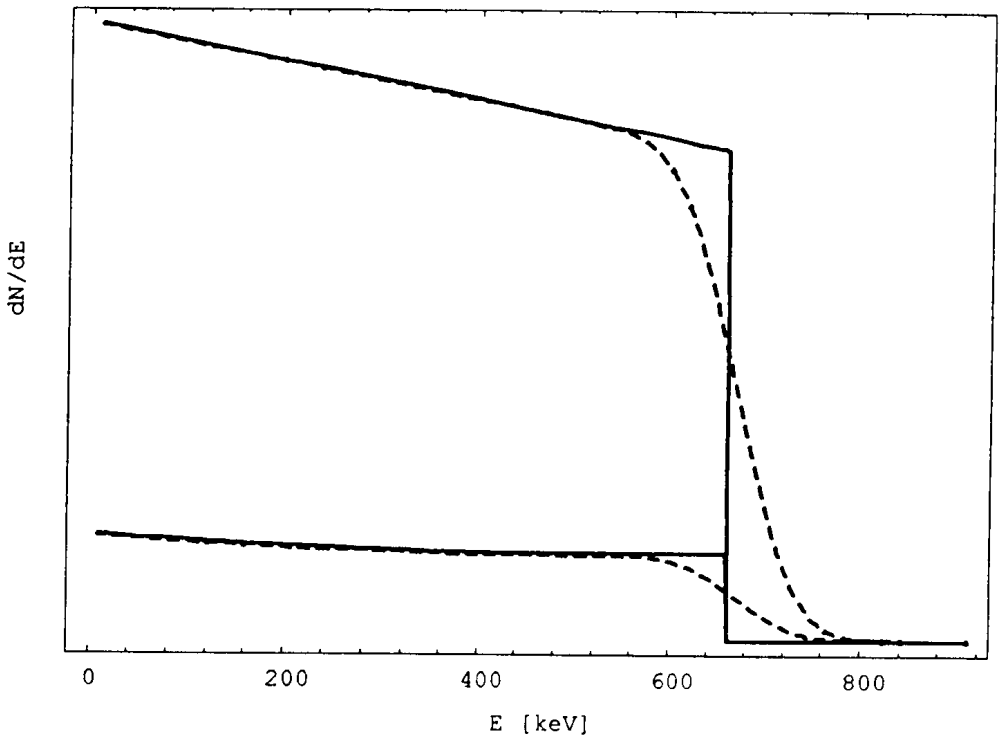

Abbildung 2.2: *Entnommen aus [Hen96]. Die aus den differentiellen Wirkungsquerschnitten für ^{7}Be-Neutrinos bei 862 keV resultierenden Rückstreuspektren der Elektronen für ν_e's (obere Kurve) und ν_μ's bzw. ν_τ's (untere Kurve) bei unendlich guter Energieauflösung (durchgezogene Kurven) und erwarteter Energieauflösung in* BOREXINO *(gestrichelte Kurven).*

relativ gute Signatur, obwohl die einzelnen Neutrinoereignisse keine Signatur besitzen. Für die ^7Be–Neutrinos bei 862 keV liegt diese Stufe bei 665 keV. Die unterschiedliche Steigung der differentiellen Wirkungsquerschnitte für ν_e's und $\nu_{\mu,\tau}$'s könnte prinzipiell dazu verwendet werden, den Anteil des neutralen Stroms am gesamten Signal zu ermitteln. Würde dieser signifikant mehr sein als im Fall von ν_e's

wäre damit ein von den SSM unabhängiger Nachweis möglich, daß Neutrinos oszillieren und damit Masse besitzen. Mit den gegenwärtig als realistisch erscheinenden Untergrundraten ist diese Möglichkeit jedoch als unpraktikabel einzustufen.

- Unter Zugrundelegung von nicht oszillierenden Neutrinos beträgt die nach dem SSM von Bahcall zu erwartende Signalrate für die ^{7}Be-Neutrinos 50 Ereignisse pro Tag, für die pep-Neutrinos ca. 3 Ereignisse pro Tag und für die ^{8}B-Neutrinos ca. 1 Ereignis pro Tag. Die relativ hohe Statistik in Vergleich zu den bisherigen Experimenten ist eine wichtige Voraussetzung für den Nachweis zeitabhängiger Phänomene, wie den Tag-Nacht- Effekt, jährliche Schwankungen des Neutrinosignals oder Schwankungen bei Vakuumoszillationen der Neutrinos, sowie für eine genaue Bestimmung des ^{7}Be-Flusses. Die jahreszeitliche Schwankung des Neutrinosignals durch die Exzentrizität der Erdbahn um die Sonne ist neben den charakteristischen Stufen im Rückstreuspektrum bei monoenergetischen Neutrinos die zweite wichtige Signatur, die verwendet werden kann, um ein solares Neutrinosignal in BOREXINO zu erkennen. Die dabei erwartete Signifikanz ist in Abb. 2.3 dargestellt.

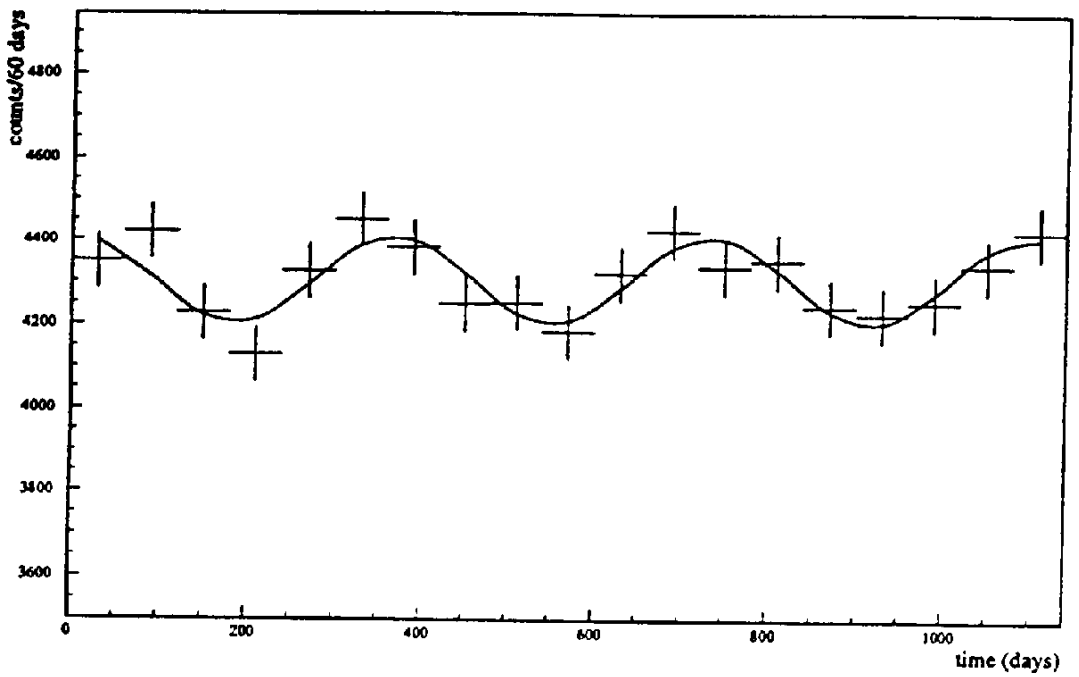

Abbildung 2.3: *Diese Simulation ist entnommen aus [Ben96]. Signifikanz mit der die jahreszeitliche Variation des Neutrinosignals durch die Exzentrizität der Erdbahn um die Sonne in* BOREXINO *meßbar ist, wenn der angestrebte U- und Th-Gehalt von* $10^{-16}g/g$ *im Szintillator erreicht wird. Es ist darauf hinzuweisen, daß die y-Achse abgeschnitten dargestellt ist.*

- Im Gegensatz zu Ĉerenkov-Detektoren geht die Information über die Richtung des einfallenden Neutrinos verloren, weil das vom Szintillator emittierte Licht isotrop abgestrahlt wird, und es können mit der Richtung verbundene Schnitte wie in Kamiokande oder SuperKamiokande nicht angewendet werden, um das Signal/Untergrund-

Verhältnis zu verbessern. Aus diesem Grund und wegen der niedrigen Energieschwelle sind die Anforderungen an die Reinheit der Detektorkomponenten bezüglich radioaktiver Isotope sehr hoch. Dies gilt besonders für den Szintillator, für den ein Uran- und Thoriumgehalt von höchstens 10^{-16}g/g und ein Kaliumgehalt von höchstens 10^{-14}g/g toleriert werden kann. Auf der anderen Seite sollte ein organischer Szintillator besonders für die geforderte Reinheit geeignet sein, da das Lösungsmittel über fraktionierte Destillation von Erdöl gewonnen wird und dadurch bereits einen niedrigen Gehalt an metallischen Verunreinigungen wie K, Th oder U aufweisen sollte. Durch die im Vergleich zu Wasser wesentlich niedrigere Polarität ist die Löslichkeit dieser metallischen Verunreinigungen im Lösungsmittel sehr klein und eine Rekontamination nach der Produktion durch Kontakt des Szintillators mit den Behälterwänden bei der Lagerung oder dem Transport viel geringfügiger als zum Beispiel bei Reinstwasser.

2.2 Aufbau des BOREXINO-Detektors

Zur Abschirmung gegen die kosmische Höhenstrahlung wird der BOREXINO-Detektor gegenwärtig im Gran Sasso Labor aufgebaut. Das Untergrundlabor befindet sich im Abruzzenmassiv in Mittelitalien und bietet eine Abschirmung von ca. 3300 m Wasseräquivalent. Eine schematische Skizze des Detektors ist in Abb. 2.4 dargestellt. Das Herzstück des Detektors sind 300 t hochreiner Flüssigszintillator. Dieser Szintillator befindet sich in einem kugelförmigen Nylonbehälter mit 8.5 m Durchmesser. Das nach einer Energiedeposition von Neutrinos oder Untergrundereignissen vom Szintillator emittierte Licht wird von ca. 2000 Photovervielfachern nachgewiesen, die konzentrisch um den Szintillator an einer inneren Stahlkugel mit einem Radius von ca. 7 m angebracht sind. Die innere Stahlkugel befindet sich wiederum in einem Stahltank mit einem Radius von ca. 9 m und einer maximalen Höhe von 16.9 m. Der äußere Tank ist mit reinem Wasser gefüllt, um den Szintillator vor allem von der $\gamma-$Strahlung des umgebenden Gesteins abzuschirmen. Die Füllung der inneren Stahlkugel hängt von der Dichte des im Experiment verwendeten Szintillators ab. Um einen zu hohen Auftrieb und die damit verbundenen Kräfte auf den Nylonbehälter zu vermeiden, wird die Dichte dieser Flüssigkeit der des Szintillators angepaßt. Wird in BOREXINO ein Szintillator auf PC-Basis verwendet, wird PC ($\rho = 0.88\,\mathrm{g/cm^3}$) auch als Füllung der inneren Kugel verwendet, bei einem Szintillator auf PXE-Basis (ρ=0.98 g/cm^3) Reinstwasser. Diese Flüssigkeit dient in jedem Fall der Abschirmung der γ-Strahlung aus dem Stahl, den Photomultipliern und anderen Detektorkomponenten. Da die Aktivität dieser Flüssigkeit im Fall von Reinstwasser und die Aktivität des Nylonbehälters einen zu hohen Untergrund liefern würden, dienen die äußeren 200 t des Szintillators als aktive Abschirmung gegen diesen Untergrundbeitrag. Die dazu nötige Ortsauflösung gewinnt man über die Zeitverteilung der angesprochenen Photovervielfacher, denn je nach Ort des Ereignisses sind die Laufzeiten der Photonen zu den einzelnen Photovervielfachern unterschiedlich. Von großer Bedeutung für den Untergrund ist auch die Tatsache, daß im Inneren der Kugel nachgewiesene Ereignisse ihre Energie mit hoher Wahrscheinlichkeit vollständig deponieren, so daß das Signal der von außen kommenden, schwer abzuschirmenden hochenergetischen γ's im Spektrum überhalb des

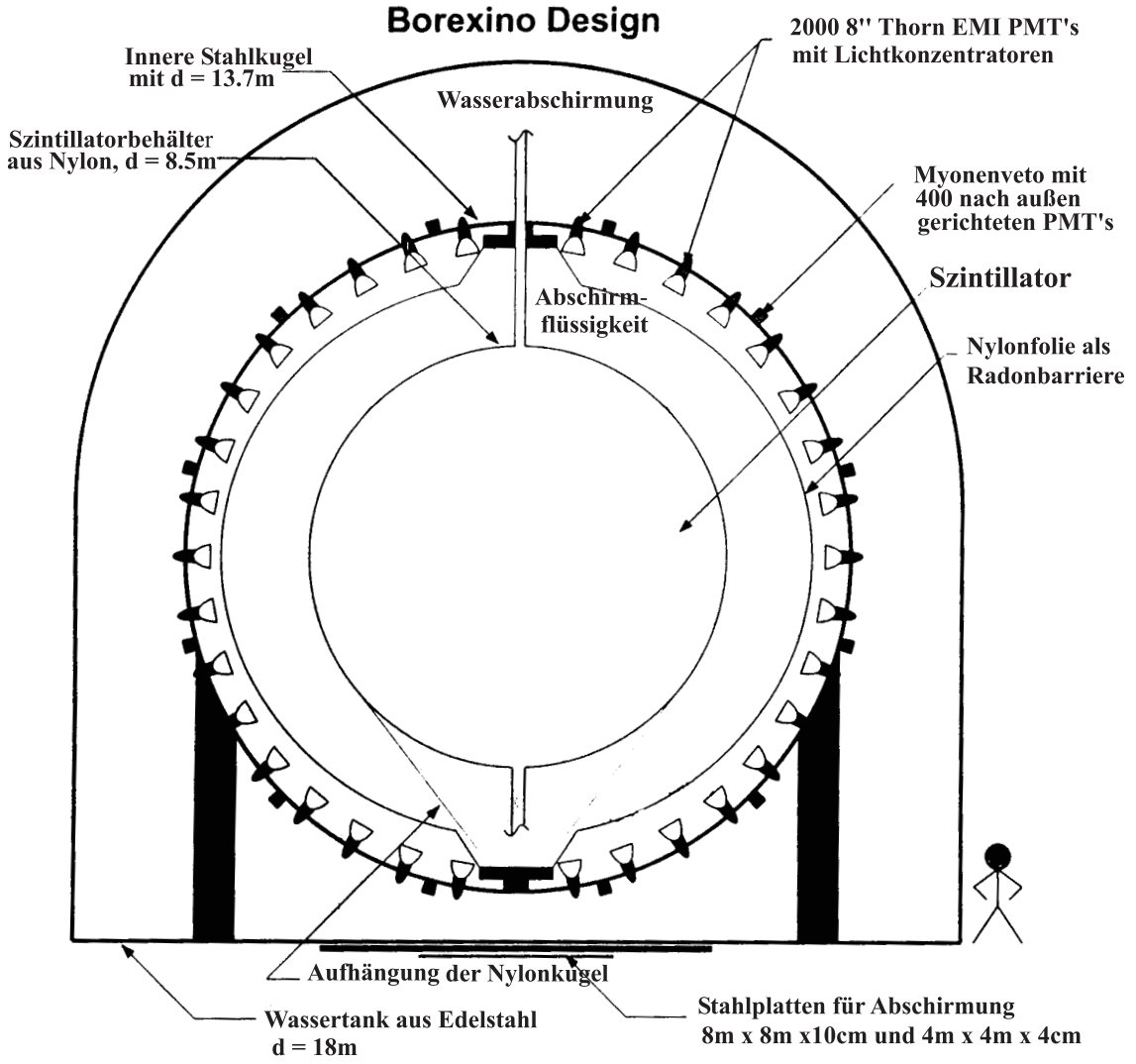

Abbildung 2.4: *Entnommen aus [Ben96]. Schematische Skizze des* BOREXINO*-Detektors.*

für die ^{7}Be-Neutrinos relevanten Bereiches liegt.
Um einen Untergrundbeitrag durch den stark reduzierten, aber noch nicht vernachlässigbaren Myonenfluß im Untergrundlabor zu unterdrücken, werden auf der Außenseite der inneren Stahlkugel ca. 400 Photovervielfacher angebracht. Dringen die Myonen in das Wasser des äußeren Tanks ein, wird Čerenkov-Licht emittiert und die äußeren Photovervielfacher liefern ein Vetosignal.

2.3 Der Beitrag von BOREXINO zum solaren Neutrinorätsel

Das Hauptziel des BOREXINO-Experimentes ist die erstmalige, direkte Bestimmung des solaren ^{7}Be-Neutrinoflusses, der nach den Vorhersagen der SSM der zweitstärkste solare Neutrinozweig ist. Den ^{7}Be-Neutrinos kommt bei der Lösung des solaren Neutrinorätsels eine zentrale Rolle zu.
Zunächst sagen die Daten der bisherigen Experimente einen stark erniedrigten Fluß voraus, wenn diese Neutrinos nicht oszillieren. Allerdings gibt es in der Literatur noch skeptische Stimmen, die selbst diese Aussage anzweifeln, weil sie systematische Fehler in den Experimenten annehmen, die in den Daten nicht berücksichtigt sind, und das solare Neutrinorätsel als gar nicht existent betrachten [Dar96]. So willkürlich diese Annahmen auch sein mögen, eine direkte Bestimmung des ^{7}Be-Flusses ist notwendig, um keinen Raum für solche Spekulationen zu lassen.
Legt man die Vorhersagen der SSM zugrunde, um über den Vergleich zwischen Theorie und Experiment Aussagen über Neutrinoeigenschaften zu machen, sind die ^{7}Be-Neutrinos beim gegenwärtigen Stand des SNP dafür am besten geeignet.
Im Gegensatz zu den ^{8}B-Neutrinos ist ihr Fluß wesentlich genauer vorhergesagt. Die pp-Neutrinos wären aus dieser Sicht noch besser geeignet, aber gegenwärtig gibt es nur erste Vorschläge, wie ein direkter Nachweis dieses Neutrinozweiges möglich wäre. Außerdem wäre ihr Fluß bei der „kleinen Mischungswinkel-“ Lösung fast nicht unterdrückt, so daß für dieses Szenario die pp-Neutrinos zum Nachweis oszillierender Neutrinos ungeeignet sind.
Die absolute Bestimmung des ^{8}B-Flusses allein ist, wie bereits angesprochen, aufgrund der stark unterschiedlichen Vorhersagen der SSM relativ ungeeignet, die Existenz oszillierender Neutrinos zu beweisen. Legt man die Vorhersagen der Niederfluß-SSM zugrunde, gibt es kein Defizit in den Daten der Experimente für diesen Neutrinozweig.
Trotzdem besteht für die Experimente Superkamiokande [Tak93] und SNO (Sudbury Neutrino Observatory) [Che85] die Möglichkeit, nur über die Messung der ^{8}B-Neutrinos die Existenz von Neutrinooszillationen unabhängig von den SSM zu beweisen.
SuperKamiokande ist das Nachfolgeexperiment von Kamiokande und wurde im Frühjahr 1996 in Betrieb genommen. Mit einer 30 mal höheren Targetmasse von 20.000 t Leichtwasser mißt es mit hoher Statistik das Spektrum der von ^{8}B-Neutrinos gestreuten Elektronen. Dieses wäre im Fall der „kleinen Mischungswinkel-“ Lösung durch die MSW- Kurve stark verformt, wie aus Abb. 1.7 deutlich wird. Eine solche Verformung des nach der Theorie des $\beta-$Zerfalls genau vorhergesagten Spektrums ist unabhängig von den Annahmen der SSM und ließe sich nur durch den MSW-Effekt erklären. Im Fall der „großen Mischungswinkel-“ Lösung ergibt sich auch eine Verformung durch den Tag-Nacht-Effekt im hochenergetischen Teil des Spektrums, und bei Vakuumoszillationen durch die unterschiedliche Oszillationslänge in Abhängigkeit von der Energie der ^{8}B-Neutrinos.
In SNO werden die Neutrinos ebenfalls über den Čerenkov-Effekt nachgewiesen, jedoch werden als Target 1000 t Schwerwasser verwendet, wodurch die getrennte Bestimmung der Ereignisraten durch den geladenen und den neutralen Strom möglich ist. ν_e's werden durch die Reaktion $^2D + \nu_e \rightarrow p + p + e^-$ über den geladenen Strom nachgewiesen und

Neutrinos aller Flavours durch die Reaktion ${}^2D + \nu_x \rightarrow p + n + \nu_x$ über den neutralen Strom. Die letzte Reaktion erfordert den Nachweis des Neutrons zum Beispiel über in den Detektor eingebrachte ^{3}He-Proportionalzähler. Stimmt das Verhältnis der beiden Reaktionsraten nicht mit dem überein, das man für ν_e's erwartet, ist ebenfalls ein von den SSM unabhängiger Beweis von Neutrinooszillationen erbracht. Ob beide Experimente, die nur knapp über ihrer Schwelle von jeweils ca. 5 MeV messen, ihre Anforderungen an den Untergrund erfüllen können, wird sich in den nächsten Jahren zeigen. Allerdings hängt die Relevanz dieser Experimente für das solare Neutrinoproblem, wie bereits erwähnt, von der Gültigkeit der SSM ab, die einen hohen ^{8}B-Fluß vorhersagen.

Im Gegensatz zu den ^{8}B-Neutrinos ist die Übereinstimmung der Vorhersagen der SSM

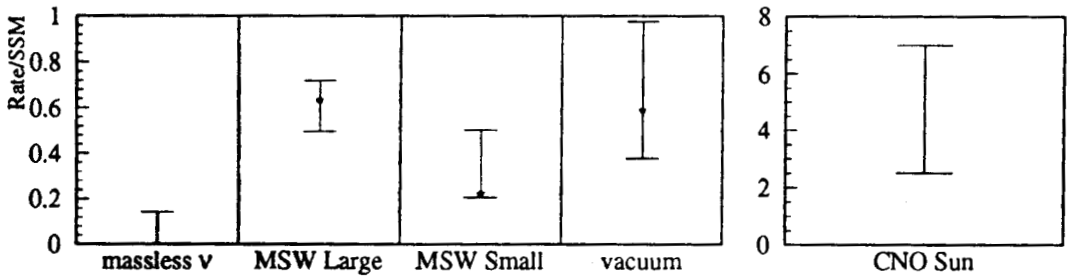

Abbildung 2.5: *Das erwartete ^{7}Be-Signal in* BOREXINO *in Abhängigkeit verschiedener Szenarien, ausgedrückt als Bruchteil des nach dem SSM von Bahcall vorhergesagten Signals. Entnommen aus [Ben96].*

zum ^{7}Be-Fluß sehr viel besser und die absolute Bestimmung dieser Größe läßt bereits Aussagen zu, welche möglichen Oszillationslösungen zutreffen. In Abb. 2.5 ist dargestellt, welchen Bruchteil des vom SSM nach Bahcall vorhergesagten ^{7}Be-Flusses BOREXINO in Abhängigkeit der zugrunde gelegten Oszillationslösung messen wird. Ebenfalls eingezeichnet ist das erwartete Signal für eine hypothetische „CNO- Lösung" des solaren Neutrinorätsels, bei der statt dem pp-Zyklus der CNO-Zyklus in der Sonne für die Energiefreisetzung dominieren würde. Die Bereiche der „großen Mischungswinkel-" Lösung und der Vakuumoszillationen überlappen sich zwar vollständig, aber Vakuumoszillationen sollten in BOREXINO über die zeitlichen Schwankungen des Signals nachgewiesen werden können, da durch die Exzentrizität der Erdbahn um die Sonne die Oszillationskurve im Raum abgefahren wird. Der monoenergetische Charakter der ^{7}Be-Neutrinos ist dafür eine ideale Voraussetzung.

Sollte mit BOREXINO auch die Bestimmung des pep-Flusses oder einer relevanten Obergrenze gelingen, könnten ebenfalls wichtige Aussagen getroffen werden. Die Reduktion des pep-Flusses gegenüber den Vorhersagen der SSM hängt in ähnlicher Weise von der Oszillationslösung ab, wie die des ^{7}Be-Flusses. Am wichtigsten ist allerdings, daß der pep-Fluß von den SSM mit größerer Genauigkeit vorhergesagt wird als der ^{7}Be-Fluß und auch stabiler gegenüber Spekulationen sein dürfte, die mögliche nicht in den SSM berücksichtigte systematische Fehler annehmen und so das solare Neutrinorätsel erklären wollen. Konkret sind von den Spekulationen die S_{33} und S_{34} Faktoren betroffen, die teilweise noch nicht im entscheidenden Energiebereich vermessen worden sind und auf Extrapolationen beruhen,

oder die ^{3}He-Konzentration im Inneren der Sonne [Cum96].
Die letzten Ausführungen weisen auf einen kritischen Punkt der solaren Neutrinophysik hin. Da die Sonne als Neutrinoquelle nur teilweise unabhängig untersucht werden kann, wie zum Beispiel durch Helioseismologie, die die Vorhersagen der SSM über Dichte etc. bis weit ins Innere der Sonne bestätigen, ist es für die Ableitung von wichtigen Aussagen aus den Daten der solaren Neutrinoexperimente, wie zum Beispiel die Existenz von Neutrinooszillationen, essentiell, möglichst von der Sonnenphysik unabhängig zu sein. In diesem Sinn sind die Aussagen aus einer von BOREXINO gemessenen Reduktion des ^{7}Be-Flusses kritisch zu betrachten, da der Raum für noch so unwahrscheinliche Spekulationen nie völlig geschlossen werden kann. Um eine von der Sonnenphysik unabhängige Aussage machen zu können, wäre zusätzlich zu BOREXINO ein Experiment nötig, das ebenfalls besonders auf die ^{7}Be-Neutrinos sensitiv ist und Neutrinos nur über den geladenen Strom nachweisen kann. Das im Bau befindliche Iod-Experiment [Cle94] oder das seit langem vorgeschlagene Indium-Experiment [Rag76] wären dazu geeignet. Da diese den inversen $\beta-$Zerfall verwendenden, nicht energieauflösenden Experimente auch auf ^{8}B-Neutrinos sensitiv sind, wäre für die Bestimmung des ^{7}Be-Signals die Rate der geladenen Stromwechselwirkungen aus dem SNO-Experiment erforderlich, um zusammen mit dem BOREXINO-Ergebnis eine Aussage über die Konversion der ^{7}Be-Neutrinos zu machen. Es ist allerdings fraglich, ob die Wirkungsquerschnitte der Nachweisreaktionen beider Experimente so genau bestimmt werden können, daß eine signifikante Aussage möglich ist.
Zusammenfassend soll festgehalten werden, daß die erstmalige direkte Bestimmung des ^{7}Be-Flusses ein wichtiger Schritt ist, um das solare Neutrinorätsel zu lösen und unser Verständnis vom Inneren der Sonne zu überprüfen.

Teil II

Untergrund in BOREXINO und die CTF

Kapitel 3

Untergrund in BOREXINO

Der Neutrinonachweis erfolgt in BOREXINO über ν-e^--Streuung in einem Flüssigszintillator. Dadurch tragen β-, EC- und α-Zerfälle im Szintillator zum Untergrund bei. Zwar liegen die bei α-Zerfällen auftretenden Energien typischerweise bei einigen MeV, so daß diese Zerfälle keinen Untergrund für den Nachweis der ^{7}Be-Neutrinos liefern würden, aber durch das in Flüssigszintillatoren auftretende α-quenching[1] fallen viele der in den Uran- und Thoriumketten auftretenden α-Zerfälle in den Energiebereich der durch ^{7}Be-Neutrinos gestreuten Elektronen, der im folgenden als Neutrinofenster bezeichnet wird. Allerdings kann man die α-Zerfälle teilweise durch ihre gegenüber Elektronen unterschiedliche Pulsform identifizieren und somit ihren Untergrundbeitrag reduzieren.
Außer diesen Zerfällen tragen γ's zum Untergrund bei, die außerhalb des Szintillators nach $\beta-$Zerfällen oder anderen Ereignissen emittiert werden, in den Szintillator gelangen und dort über Photo-, Compton- oder Paarbildungseffekt ihre Energie teilweise oder ganz deponieren. Trotz der in der Regel mehreren Wechselwirkungspunkte im Szintillator ist eine Unterscheidung zu Neutrinoereignissen, bei denen nur ein Elektron beteiligt ist, nicht möglich.
In den folgenden Abschnitten werden die wichtigsten Quellen für den Untergrund in BOREXINO behandelt.

3.1 Natürliche Radionuklide

Viele der natürlich vorkommenden Radionuklide können zum Untergrund in BOREXINO beitragen.

3.1.1 ^{40}K

^{40}K hat eine Halbwertszeit von $1.3 \cdot 10^9$a. Zu 90% erfolgt ein β^--Zerfall auf ^{40}Ca mit einem Endpunkt von 1.3 MeV, zu 10% ein Elektroneinfang auf ^{40}Ar, wobei ein γ mit 1.46 MeV

[1] Durch die gegenüber Elektronen höhere Ionisierungsdichte der α-Teilchen steigt die Wahrscheinlichkeit für nichtradiative Abregungsprozesse, so daß bei gleicher Energie des primären Teilchens weniger Energie in Photonen umgewandelt wird.

emittiert wird (Abb. 3.1). Durch das häufige Vorkommen von Kalium in der Umwelt ist ^{40}K ein Radionuklid, das für den Untergrund in BOREXINO eine besondere Rolle spielt.

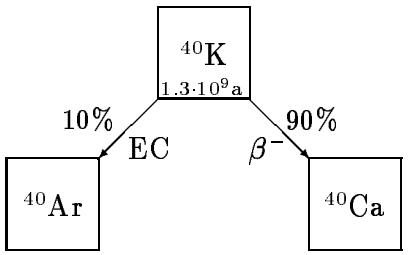

Abbildung 3.1: *Zerfallsschema von ^{40}K*

3.1.2 ^{238}U - Kette

^{238}U zerfällt zu ^{206}Pb über 8 α- und 6 β-Zerfälle, wobei letztere zum Teil durch hochenergetische γ's begleitet werden (s. Abb. 3.2) [Pfe95]. Durch die in der Kette auftretenden langlebigen Nuklide ^{234}U, ^{226}Ra und ^{210}Pb kann das Gleichgewicht in dieser Kette nach einer Störung desselben für die Dauer des Experimentes nachhaltig gebrochen sein. Besonders für den Szintillator, dessen Komponenten durch chemische Prozesse gewonnen werden und die vor dem Einsatz in BOREXINO weitere Reinigungsverfahren durchlaufen, ist anzunehmen, daß nicht alle Nuklide in gleicher Weise von den einzelnen Schritten betroffen sind und damit kein Gleichgewicht vorliegen wird. Die gleiche Argumentation trifft auf Reinstwasser zu. Es wird aus Grundwasser gewonnen, das durch mehrere Prozesse um viele Größenordnungen gereinigt wird.

Ein weiterer möglicher Grund für die Störung des Gleichgewichtes ist ^{222}Rn mit einer Halbwertszeit von 3.8 d, das als Edelgas sehr beweglich ist und in zweifacher Hinsicht Probleme bereitet.
Zum einen findet man ^{222}Rn normalerweise in der Luft. Die daraus resultierende Aktivität ist von der Umgebung abhängig und liegt für die Halle C des Gran Sasso Labors typischerweise bei 40Bq/m^3. Gelangt Luft bei der Vorbereitung des Experimentes in den Szintillator, so zerfällt das Radon in wenigen Tagen zu ^{210}Pb mit einer Halbwertszeit von 22.3 a, welches sich dadurch im Szintillator anreichern kann und somit in einer weit höheren Konzentration im Szintillator vorliegt, als es nach dem Gehalt an ^{238}U oder ^{226}Ra unter Annahme einer im Gleichgewicht stehenden Kette zu erwarten wäre. Wegen der fehlenden γ's bei den Zerfällen von ^{210}Pb und seinen Töchtern ist der Luftkontakt für die anderen Detektorkomponenten nicht kritisch, mit Ausnahme der Innenseite des Szintillatorbehälters, da die dort deponierten langlebigen Radontöchter in den Szintillator gelangen können.
Zum anderen kann die Emanation von ^{222}Rn aus Detektorkomponenten ein Problem darstellen. Besonders kritisch wäre eine nennenswerte Emanation von ^{222}Rn aus dem Szintillatorbehälter in den Szintillator. Aber auch die Emanation aus Detektorkomponenten in die Abschirmflüssigkeit der inneren Stahlkugel kann ein Problem darstellen. Gelangt

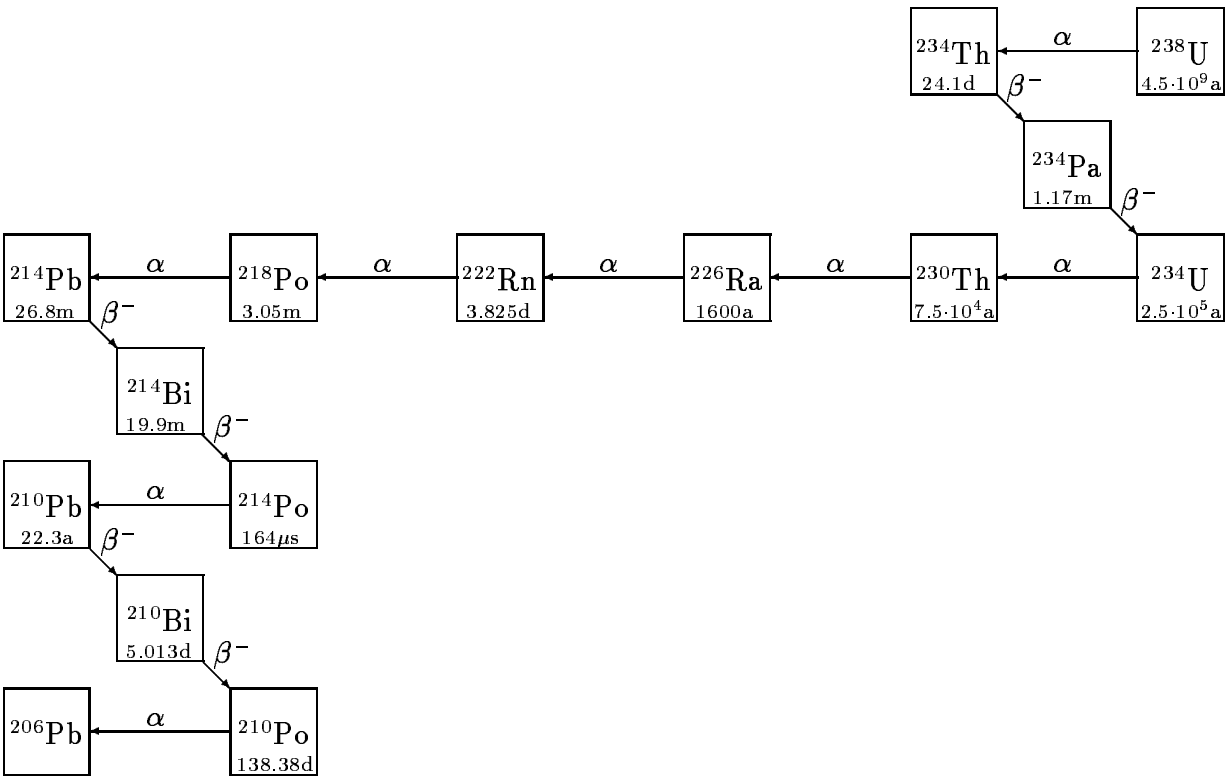

Abbildung 3.2: *Zerfallskette von* ^{238}U

das ^{222}Rn durch Konvektion in die Nähe des Szintillatorbehälters, kann die für die Abschirmflüssigkeit tolerierte Aktivität überschritten werden, obwohl die intrinsische Reinheit ausreichend ist. Um dieses Problem in jedem Fall zu vermeiden, kann eine zweite transparente Hülle konzentrisch um den Szintillator angebracht werden, die als Barriere für die radonreichere Flüssigkeit der äußeren Bereiche dient.

Die kurze Halbwertszeit des beim ^{214}Bi-Zerfall entstehenden ^{214}Po von 164μsec kann für eine verzögerte Koinzidenz genutzt werden, die eine einfache und sensitive Bestimmung des ^{222}Rn-Gehaltes im Szintillator ermöglicht. Ein Rückschluß auf den Gehalt an ^{238}U ist wegen der oben genannten Gründe fraglich.

In Tab. 3.1 ist angegeben, welche Konzentration der einzelnen im Gleichgewicht stehenden Nuklidgruppen der Urankette im Szintillator tolerierbar ist, wenn man festlegt, daß jede Nuklidgruppe 5 Ereignisse pro Tag in 100 t verursachen kann und damit im Fall der vollständigen Konversion der ^{7}Be-Neutrinos zu einem Signal/Untergrund-Verhältnis von 2 führt. Die Konzentrationen sind in Uranäquivalent angegeben, d.h. die Menge an ^{238}U, die die gleiche Aktivität besitzt wie ein Nuklid der jeweils betrachteten Nuklidgruppe. Die Konzentrationen sind für verschiedene Schritte zur Untergrundsreduktion tabelliert. Im ersten Schritt sind die oben angesprochenen, eindeutig identifizierbaren verzögerten BiPo-Koinzidenzen subtrahiert. Im nächsten Schritt wird eine α/β-Diskrimination von 95% angenommen, wodurch die α- Ereignisse größtenteils unterdrückt sind. Schließlich kann noch eine statistische Subtraktion der ^{226}Ra-^{214}Po-Gruppe durchgeführt werden, da

Tabelle 3.1: *Grenzen für die verschiedenen Nuklide der Urankette in Abhängigkeit verschiedener Untergrundssubtraktionen, falls* **5 Zerfälle pro Tag und Gruppe im ^{7}Be-Neutrinofenster** *erlaubt sind. Die Mengen sind in Gramm Uranäquivalent pro Gramm Szintillator angegeben. Entnommen aus [Nef96].*

Nuklidgruppe	^{238}U-^{234}Pa	^{234}U	^{230}Th	^{226}Ra-^{214}Po	^{210}Pb-^{210}Po	^{238}U-^{210}Po
keine Information zur Untergrundsreduktion verwendet						
Grenze [g/g]	$3.4 \cdot 10^{-17}$	$4.6 \cdot 10^{-17}$	$4.5 \cdot 10^{-17}$	$1.0 \cdot 10^{-17}$	$2.6 \cdot 10^{-17}$	$5.1 \cdot 10^{-18}$
Bi-Po-214-Koinzidenz erkannt und subtrahiert						
Grenze [g/g]	$3.4 \cdot 10^{-17}$	$4.6 \cdot 10^{-17}$	$4.5 \cdot 10^{-17}$	$1.1 \cdot 10^{-17}$	$2.6 \cdot 10^{-17}$	$5.1 \cdot 10^{-18}$
95% der α's erkannt und subtrahiert						
Grenze [g/g]	$1.1 \cdot 10^{-16}$	$9.1 \cdot 10^{-16}$	$9.0 \cdot 10^{-16}$	$4.3 \cdot 10^{-17}$	$6.3 \cdot 10^{-17}$	$2.1 \cdot 10^{-17}$
statistische Subtraktion von^{226}Ra bis ^{214}Po						
Grenze [g/g]	$1.1 \cdot 10^{-16}$	$9.1 \cdot 10^{-16}$	$9.0 \cdot 10^{-16}$	—	$6.3 \cdot 10^{-17}$	$4.0 \cdot 10^{-17}$

über die Messung der verzögerten Koinzidenzen deren Aktivität bekannt ist.

Eine separate Abhandlung über ^{235}U ist nicht nötig. Mit einer Isotopenhäufigkeit von 0.7% und einer ungefähr sechsmal kürzeren Lebensdauer als ^{238}U ist der Untergrundbeitrag ca. 20 mal kleiner als der der ^{238}U- Kette. Da beide U-Isotope als chemisch identisch betrachtet werden dürfen, ist auch keine Störung der natürlichen Isotopenhäufigkeit zu erwarten.

3.1.3 Thoriumkette

^{232}Th zerfällt zu ^{208}Pb über 6 α- und 4 β-Zerfälle (Abb. 3.3) [Pfe95]. Bei ^{228}Ra und ^{228}Th kann auch in dieser Kette das Gleichgewicht gebrochen sein. Allerdings sind die Lebensdauern dieser Nuklide von einigen Jahren im Bereich der Laufzeit des Experiments, so daß sich starke Konzentrationsunterschiede mit der Zeit angleichen, sofern keine erneute Störung des Gleichgewichts auftritt. Das in dieser Kette auftretende ^{220}Rn verursacht wegen seiner gegenüber ^{222}Rn wesentlich kürzeren Halbwertszeit von 55.6 s keine großen Probleme, da die für die Emanation verantwortliche Schicht der Oberflächen und damit die entsprechende emanierte Aktivität viel kleiner ist. Die Reichweite durch einen Transport in der Luft ist durch die kurze Halbwertszeit ebenfalls sehr eingeschränkt. Auch in dieser Kette kann mit ^{212}Bi$\rightarrow^{212}$Po(300nsec)$\rightarrow^{208}$Pb eine leicht zu identifizierende verzögerte Koinzidenz ausgenützt werden, um die Aktivität des unteren Teils der Kette bis ^{228}Th zu bestimmen. Analog zu den Ausführungen der Urankette sind in Tab. 3.2 die erlaubten Konzentrationen der Nuklidgruppen der Thoriumkette angegeben.

3.1.4 Weitere natürliche Radionuklide

Neben ^{40}K und den Nukliden der Uran- und Thoriumketten existieren weitere natürlich vorkommende Radionuklide [Pfe95], wobei die weiteren α-Emitter mit Energien zwischen

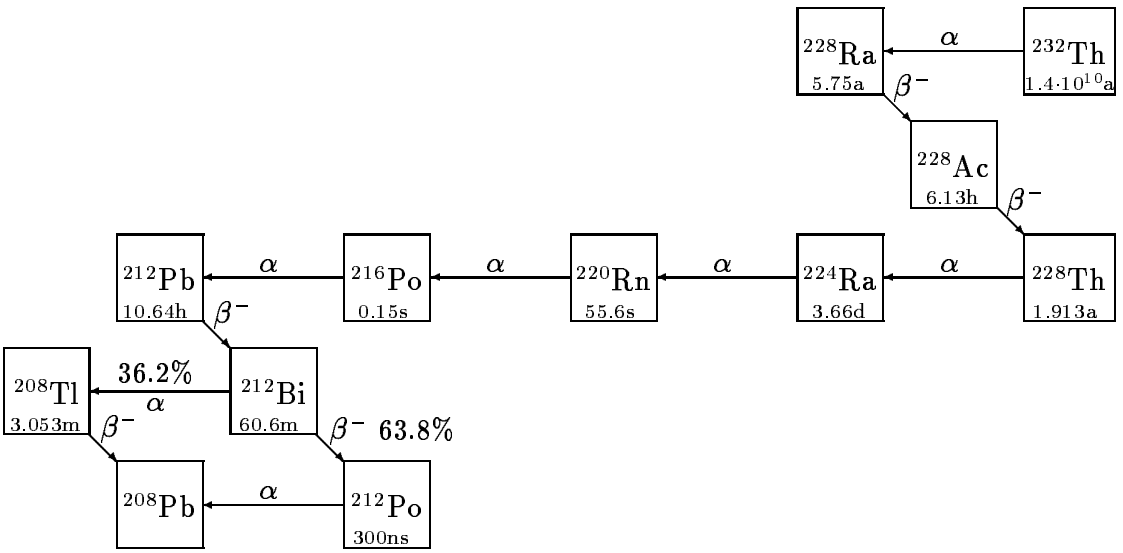

Abbildung 3.3: *Zerfallskette von ^{232}Th*

Tabelle 3.2: *Grenzen für die verschiedenen Nuklide der Thoriumkette, falls* **5 Zerfälle pro Tag und Nuklidgruppe im ^{7}Be-Neutrinofenster** *erlaubt sind. Die Mengen sind in Gramm Thoriumäquivalent pro Gramm Szintillator angegeben. Entnommen aus [Nef96].*

Nuklidgruppe	^{232}Th	^{228}Ra-^{228}Ac	^{228}Th-^{212}Po bzw. ^{208}Tl	^{232}Th-^{212}Po bzw. ^{208}Tl
keine Information zur Untergrundsreduktion verwendet				
Grenze [g/g]	$1.4 \cdot 10^{-16}$	$1.3 \cdot 10^{-15}$	$2.6 \cdot 10^{-17}$	$2.2 \cdot 10^{-17}$
Bi-Po-212-Koinzidenz erkannt und subtrahiert				
Grenze [g/g]	$1.4 \cdot 10^{-16}$	$1.3 \cdot 10^{-15}$	$2.7 \cdot 10^{-17}$	$2.3 \cdot 10^{-17}$
95% der α's erkannt und subtrahiert				
Grenze [g/g]	$2.9 \cdot 10^{-15}$	$1.3 \cdot 10^{-15}$	$1.3 \cdot 10^{-16}$	$1.2 \cdot 10^{-16}$
statistische Subtraktion von ^{228}Th bis ^{212}Po bzw. ^{208}Tl				
Grenze [g/g]	$2.9 \cdot 10^{-15}$	$1.3 \cdot 10^{-15}$	—	$0.9 \cdot 10^{-15}$

2 und 3.5 MeV wegen den für diese Energien zu erwartenden α-quenching Faktoren unterhalb der Schwelle von BOREXINO liegen und deshalb nicht berücksichtigt werden müssen. Wegen ihrer langen Halbwertszeit und den damit niedrigen Anforderungen an die Konzentration im Szintillator wird auch auf die $\beta\beta$-instabilen Kerne nicht näher eingegangen. Mit Halbwertszeiten von 10^{15}a und kürzer können vor allem die β-Emitter ^{87}Rb, ^{113}Cd, ^{115}In, ^{138}La und ^{176}Lu zum Untergrund beitragen. Da ihre Zerfälle bis auf den von ^{138}La nicht mit nennenswerter Wahrscheinlichkeit von γ's mit Energien größer 1 MeV begleitet werden, sind sie vor allem als Verunreinigung im Szintillator relevant. In Tab. 3.3 sind die natürlich vorkommenden Radionuklide aufgeführt, die nicht in der Uran- oder Thoriumkette auftreten und als Verunreinigung im Szintillator zum Untergrund in BOREXINO beitragen können. Die Grenze in [g/g] gibt wieder die Konzentration an, die für das je-

Tabelle 3.3: *Grenzen für einige langlebige natürliche Radionuklide, falls 5 Ereignisse pro Tag in 100 t im Energiebereich von 250 - 800 keV erlaubt sind. Die angegebenen Grenzen beziehen sich auf das jeweilige Element, nicht nur auf das angegebene Isotop. Entnommen aus [Nef96].*

Nuklid	Häufigkeit	Zerfall	$T_{1/2}$	Energie	Ereignisse 250 - 800 keV	Grenze [g/g]
^{40}K	0.0117%	90% β^- 10%,EC+γ	$1.3 \cdot 10^9$ a	1.31 MeV 1.46 MeV	54.9% <0.01%	$3.9 \cdot 10^{-14}$
^{87}Rb	27.835%	β^-	$4.7 \cdot 10^{10}$ a	273 keV	0.4%	$1.6 \cdot 10^{-14}$
^{113}Cd	12.22%	β^-	$9.3 \cdot 10^{15}$ a	322 keV	2.7%	$1.4 \cdot 10^{-8}$
^{115}In	95.8%	β^-	$4.4 \cdot 10^{14}$ a	495 keV	19.5%	$1.2 \cdot 10^{-11}$
^{138}La	0.09%	32% $\beta^-+\gamma$ 68%,EC+γ	$1.1 \cdot 10^{11}$ a	205 keV+789 keV 1.44 MeV	12.0% <0.01%	$5.9 \cdot 10^{-11}$
^{176}Lu	2.59%	$\beta^- + \gamma$	$3.8 \cdot 10^{10}$ a	565 keV+597 keV	61.4%	$1.8 \cdot 10^{-14}$

weilige Element zu 5 Ereignissen im Neutrinofenster pro Tag in 100 t führt.

3.1.5 Anforderungen an die anderen Detektorkomponenten für natürliche Radionuklide

In den äußeren Detektorkomponenten spielen vor allem ^{40}K und die Nuklide der Uran- und Thoriumkette, die hochenergetische γ's emittieren, eine Rolle. Für ^{138}La, das ein γ mit ähnlicher Energie wie ^{40}K emittiert, sind aufgrund der Lebensdauer, Isotopenhäufigkeit und Übergangswahrscheinlichkeit bezogen auf das Element in etwa die gleichen Konzentrationen tolerierbar wie bei Kalium. In Tab. 3.4 sind zum Abschluß des Abschnittes die Anforderungen an diese Detektorkomponenten aufgeführt, wobei die entscheidenden Nuklide der Uran- und Thoriumkette, ^{214}Bi und ^{208}Tl, in Uran- bzw. Thoriumäquivalent angegeben sind.

Tabelle 3.4: *Angenomme Konzentrationen an U, Th und K in verschiedenen Detektorkomponenten in [g/g] und die damit verbundenen Beiträge zum Untergrund im ^{7}Be-Neutrinofenster in Ereignissen pro Tag in den inneren 100 t des Szintillators. Entnommen aus [Ben96] und mit veränderten Werten skaliert.*

Detektorkomponente	^{238}U-Kette	^{232}Th-Kette	K (La)	Untergrundbeitrag
Innere Stahlkugel	$2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-7}$	≤ 0.007
2000 Photovervielfacher	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-5}$	≤ 0.3
Abschirmflüssigkeit	$1 \cdot 10^{-13}$	$1 \cdot 10^{-13}$	$1 \cdot 10^{-10}$	≤ 0.8
Szintillatorbehälter aus 250 kg Nylon	$4 \cdot 10^{-11}$	$1 \cdot 10^{-10}$	$6 \cdot 10^{-6}$	≤ 1

3.2 Kosmogene Radionuklide

Eine weitere Quelle zum Untergrund in BOREXINO stellen Radionuklide dar, die durch kosmische Strahlung produziert werden. Die wichtigsten werden hier kurz diskutiert.

3.2.1 ^{14}C

Der Szintillator in BOREXINO besteht aus Kohlenwasserstoffverbindungen. Dadurch liefert das mit einer Halbwertszeit von 5700 a β^--instabile ^{14}C einen Beitrag zum Untergrund. ^{14}C entsteht in der Atmosphäre durch die Reaktion ^{14}N(n,p) und kommt in biologischen Materialien zu $^{14}C/^{12}C = 1.2 \cdot 10^{-12}$ vor, was zu einer Rate von ca. $3 \cdot 10^7 s^{-1}$ in BOREXINO führen würde. Mit einem Endpunkt von 156 keV liegt das β^--Spektrum weit unterhalb der von den ^{7}Be-Neutrinos resultierenden Kante im Rückstreuspektrum. Um die comptonähnliche Kante der ^{7}Be-Neutrinos jedoch klar erkennen zu können und um nicht zu viel von der Signalrate durch eine zu hohe Schwelle zu verlieren, muß das bereits erwähnte Neutrinofenster von ungefähr 250 - 800 keV gesetzt werden. Durch pile-up Effekte und wegen der begrenzten Energieauflösung kann ^{14}C dabei einen Beitrag zum Untergrund liefern, so daß im Szintillator das Verhältnis von $^{14}C/^{12}C \leq 10^{-18}$g/g nicht wesentlich übersteigen darf.

Da die Szintillatorkomponenten jedoch aus Erdöl gewonnen werden, sollte das atmosphärisch produzierte ^{14}C darin keine Rolle spielen, da die Lagerstätten weit mehr als eine Million Jahre alt sind und damit dieses ^{14}C bis auf eine zu vernachlässigende Restaktivität zerfallen ist. Allerdings kann unterirdisch ^{14}C durch Neutroneinfang aus ^{13}C gebildet werden. In den typischen Tiefen der Erdölvorkommen dominiert der Neutronenfluß durch (α, n)–Reaktionen oder aus spontaner Spaltung, wobei die α's aus den Zerfällen der Uran- und Thoriumketten stammen. Grobe Abschätzungen der daraus resultierenden ^{14}C-Konzentration ergeben eine Isotopenverhältnis von $10^{-20} - 10^{-21}$. Dies wäre für den Nachweis der ^{7}Be-Neutrinos mehr als ausreichend. Für den Nachweis der pp-Neutrinos, der aufgrund der niedrigen Energieschwelle von ca. 20 keV im Szintillator prinzipiell möglich wäre, stellt dies ein fundamentales Problem dar, da organisch gebundenes ^{14}C aus Kohlenwasserstoffen nicht mit chemischen Methoden entfernt werden kann und andere Methoden, wie zum Beispiel die Trennung der unterschiedlichen Massen durch Ultrazentrifugieren, für die benötigten Mengen unrealistisch erscheinen.
Die Kenntnis des ^{14}C-Gehaltes im Szintillator ist in jedem Fall gegenüber anderen Verunreinigungen von fundamentalerer Bedeutung.

3.2.2 ^{7}Be

^{7}Be zerfällt durch Elektroneneinfang mit einer Halbwertszeit von 53 d, wobei in 10% der Zerfälle ein γ mit 478 keV emittiert wird. ^{7}Be entsteht u.a. durch die Reaktionen ^{12}C(n,αnn)^{7}Be und ^{12}C(p,αnp)^{7}Be. Ist der Szintillator nach seiner Produktion der kosmischen Höhenstrahlung in Meereshöhe exponiert, läßt sich eine Gleichgewichtsaktivität von ca. $10^5\gamma$'s/d abschätzen [Bor92]. Selbst nach einem Tag Exposition beträgt die Aktivität

bereits ca. 2000 γ's/d und erfordert ungefähr ein Jahr Abklingzeit im Untergrundlabor, damit sie auf die für BOREXINO geforderte Untergrundrate zurückgegangen ist. Eine andere Möglichkeit ist die Reinigung des Szintillators von ^{7}Be im Untergrundlabor, so daß keine so lange Abklingzeit benötigt wird.

3.3 Myoninduzierter Untergrund

Obwohl auch Myonen Bestandteil der kosmischen Höhenstrahlung sind, werden sie in einem eigenen Abschnitt behandelt. Ihre Besonderheit liegt darin, daß sie als einzige für den Untergrund in BOREXINO relevante Komponente der kosmischen Höhenstrahlung noch im Untergrundlabor am Gran Sasso nennenswert vorhanden ist [2]
Man erwartet etwa 3500 Myonen/d, die den BOREXINO-Detektor durchqueren. Dabei können verschiedene Reaktionen an den ^{12}C-Kernen auftreten, die in der Regel zu instabilen Kernen mit einer Lebensdauer kleiner 1 s führen. Diese Ereignisse sind leicht durch ihre Zeitkorrelation mit dem vorangegangenen Myon zu unterdrücken.
Problematischer ist die Produktion von ^{11}C, das mit einer Halbwertszeit von 20.4 min aus Totzeitgründen nicht durch die Zeitkorrelation mit dem vorangegangenen Myon identifiziert werden kann. Der Zerfall des β^+−instabilen Nuklids mit einem Endpunkt von 0.96 MeV führt wegen der Annihilation des Positrons zu Signalen zwischen 1 und 2 MeV und kann mit einer erwarteten Rate von 2 Ereignissen/d zu einem Problem für den Nachweis der pep-Neutrinos werden.

Neben den Myonen, die den Szintillator direkt durchqueren und zu einem hohen Signal führen, stellen auch solche Myonen ein Problem dar, die nur die Abschirmungsflüssigkeit des Detektors durchqueren und dabei Neutronen oder andere niederenergetische Sekundärteilchen produzieren, die dann in den Szintillator gelangen können. Aber auch das von den Myonen erzeugte Čerenkov-Licht kann durch direkten Nachweis in den Photomultipliern und durch Anregung der äußeren Szintillatorschicht Ereignisse simulieren, die nicht von Neutrinosignalen unterscheidbar sind. Wenn die Wahrscheinlichkeit auch sehr gering ist, daß solche Ereignisse nicht von den Schnitten der Software-Analyse erfaßt werden, ist es in BOREXINO unvermeidbar, ein effizientes Myonenveto zu installieren.

3.4 Anthropogene Radionuklide

Als letzte Gruppe der Untergrundquellen werden kurz einige Radionuklide diskutiert, deren Vorkommen in der Umwelt dominant vom Menschen verursacht ist.

Da sich der Szintillator in BOREXINO aus Erdölprodukten zusammensetzt, sollte Tritium in BOREXINO keine Rolle spielen. Mit einem Endpunkt von 18.6 keV, der unterhalb der Triggerschwelle für ein Ereingnis liegt, führt eine Tritiumaktivität in BOREXINO zu einem Anstieg der Triggerrate der einzelnen Photovervielfacher. Bei einer erwarteten Tritiumaktivität von $\leq 10^5$Bq ist dieser Anstieg geringfügig.

[2] Eine ausführlichere Darstellung zun den Myonen in BOREXINO ist in [Bor96a], S.24ff zu finden.

^{60}Co kann als Verunreinigung auch in den äußeren Detektorkomponenten zum Untergrund beitragen, da beim Zerfall von ^{60}Co zwei relativ hochenergetische γ's mit 1.17 MeV und 1.33 MeV emittiert werden. Besonders in Stählen ist oft eine nennenswerte ^{60}Co-Aktivität zu finden, so daß bei der Wahl des Materials für die innere Stahlkugel darauf zu achten ist. ^{137}Cs emittiert beim Zerfall ein 661.7 keV γ, dessen Reichweite deutlich kleiner ist. Deshalb ist ^{137}Cs als Verunreinigung vor allem im Szintillator kritisch.
Für die äußeren Komponenten lassen sich die Anforderungen durch direkte γ-Messung überprüfen, für die inneren Komponenten wie Abschirmungsflüssigkeit, Szintillatorbehälter oder Szintillator gibt es bisher keine Analysemethoden, die sensitiv genug sind. Hier ist darauf zu achten, eine Kontamination von vorneherein zu vermeiden und effiziente Reinigungsverfahren zu testen.

Das Edelgas ^{85}Kr, das von Kernkraftwerken freigesetzt wird, ist wegen seiner Mobilität problematisch, da bei Luftkontakt des Szintillators bereits ein Eintrag in den Szintillator erfolgt. Im Vergleich zu ^{222}Rn ist es allerdings wegen der fehlenden Töchternuklide und Emanation aus Oberflächen weniger kritisch.

Kapitel 4

Die Testapparatur (CTF)

4.1 Ziele der CTF

Im letzten Kapitel wurden die Anforderungen an die Reinheit der Detektorkomponenten bezüglich radioaktiver Nuklide diskutiert. Während die Reinheit der äußeren Detektorkomponenten bezüglich relevanter Radionuklide durch verschiedene Analysemethoden wie Massenspektroskopie, Neutronenaktivierungsanalyse oder direkte Aktivitätsmessung mit untergrundarmen Germanium-Detektoren im erforderlichen Bereich getestet werden kann, liegen die Anforderungen für die meisten der im Szintillator relevanten Nuklide jenseits der Nachweisgrenzen der besten, zur Zeit verfügbaren Analysemethoden. Um dennoch zu zeigen, daß diese Anforderungen prinzipiell erfüllt werden können, wurde eine Testapparatur CTF in der Halle C des Gran Sasso Labors gebaut, die für drei Untergrundquellen die erforderliche Sensitivität besitzt und dadurch eine Aussage über die Machbarkeit von BOREXINO erlaubt. Die CTF wurde nicht gebaut, um zu zeigen, daß der Szintillator im Neutrinofenster eine Aktivität besitzt, die einem in BOREXINO geforderten Signal/Untergrund-Verhältnis entspricht, da so ein Detektor wegen der erforderlichen Selbstabschirmung im Szintillator eine dem BOREXINO Detektor vergleichbare Größe haben müßte.
Die drei angesprochenen Untergrundquellen sind ^{14}C, sowie die Abschnitte der Uran- und Thoriumkette, in denen die im letzten Kapitel erläuterten verzögerten Koinzidenzen auftreten. ^{14}C kann in der CTF mit der geforderten Sensitivität gemessen werden, auch wenn die Ereignisrate über der von BOREXINO liegt, da es in BOREXINO nur über pile-up Effekte zum Untergrund beiträgt und damit bei der zugelassenen Grenzkonzentration von 10^{-18}g/g eine wesentlich höhere Aktivität besitzt als die im Neutrinofenster zugelassene. Auch die Messung der verzögerten Koinzidenzen mit der für BOREXINO geforderten Sensitivität ist bei höherem Untergrund wegen der guten Signatur möglich.

Was die Ereignisrate im Neutrinofenster betrifft, so kann die CTF, wie bereits oben angesprochen, den Beweis für die Machbarkeit von BOREXINO nicht liefern, auf der anderen Seite sollte die gemessene interne Ereignisrate des Szintillators so gering wie möglich und mit Null verträglich sein. Ein positiver Wert würde für BOREXINO bedeuten, daß das geforderte Signal/Untergrund- Verhältnis viel zu schlecht wäre.

Neben diesen grundlegenden Zielen dient die CTF auch dazu, verschiedene Reinigungsver-

fahren für den Szintillator zu testen, optische Eigenschaften des Szintillators zu messen, Erfahrung mit potentiellen Detektormaterialien für BOREXINO zu gewinnen und technische Fragestellungen zu beantworten.

4.2 Aufbau der CTF

Um die oben aufgeführten Ziele zu erreichen, wurde die CTF ähnlich dem geplanten Design von BOREXINO gebaut[1]. Eine schematische Skizze der CTF ist in Abb. 4.1 dargestellt. Das Konzept der abgestuften Reinheitsgrade von innen nach aussen gleicht dem in BOREXINO und soll hier nicht wiederholt werden. Im Unterschied zu BOREXINO beträgt das Szintillatorvolumen 4.7 m^3 und die Anzahl der Photovervielfacher 100. Diese Anordnung befindet sich in 1000 t Reinstwasser. Der Szintillator und die für den Betrieb der CTF wichtigen Installationen sollen im folgenden näher erläutert werden.

Abbildung 4.1: *Schematische Skizze der CTF. 4.7m^3 Szintillator im Zentrum werden von 100 konzentrisch angebrachten Photovervielfachern beobachtet. Die Anordnung befindet sich in 1000 t Reinstwasser zur Abschirmung des Szintillators vor äußerer γ-Strahlung.*

[1]Eine Veröffentlichung der Kollaboration über die technischen Details der CTF ist derzeit in Vorbereitung.

4.2.1 Szintillator

Von Anfang 1995 bis Mitte 1996 wurde mit der CTF ein Szintillator bestehend aus Pseudocumol (PC) als Lösungsmittel und Diphenyloxazol (PPO) als Wellenlängenschieber getestet. Die Konzentration von PPO in PC betrug 1.5 g/l. Das Pseudocumol wurde von einer Raffinerie in Sardinien direkt von der Produktion in $1m^3$ Teflоncontainer gefüllt und in 1-2 Tagen in das Untergrundlabor am Gran Sasso gebracht. Durch das direkte Abfüllen in vorher selbst gereinigte Teflоncontainer sollte vermieden werden, daß das PC nach der Destillation im Produktionsprozeß, von der ein deutlicher Reinigungseffekt zu erwarten ist, durch Kontakt mit Standardbehältern rekontaminiert wird. Durch die geringe Expositionsdauer von 1-2 Tagen wurde der Aufbau von ^{7}Be so gering wie möglich gehalten.
Das PPO wurde ohne besondere Einflußnahme auf den Produktions- und Verpackungsprozeß von der Firma Fluka bezogen. Um das PPO vor seiner Verwendung in der CTF zu reinigen, wurde eine zweimalige Wasserextraktion mit einer konzentrierten PC/PPO-Lösung (ca. 120 g/l) in einem 20l PE-Behälter durchgeführt (vgl. dazu Kap. 8.3.1). Dazu wurden jeweils ca. 5l konzentrierte PC/PPO-Lösung angerührt, 5l radonarmes Reinstwasser zugegeben und der PE-Behälter für ca. 10min geschüttelt, nachdem die Flüssigkeiten noch mit Stickstoff gespült worden waren, um den Radongehalt zu reduzieren. Nach ca. 1h waren beide Phasen getrennt und das Wasser wurde abgelassen. Die konzentrierte PC/PPO-Lösung wurde vor dem Füllen des Szintillatorbehälters in der CTF mit dem restlichen PC gemischt.

4.2.2 Szintillator - Reinigungsanlage

Aus mehreren Gründen wird es in BOREXINO nötig sein, eine Reinigungsanlage für den Szintillator im Untergrundlabor zu installieren. Wie in Kap. 8.2.1 ausführlich beschrieben wird, besitzen die Komponenten des Szintillators nach der Produktion zumindest teilweise die erforderliche Reinheit nicht. Außerdem ist es nie ganz auszuschließen, daß nach der Produktion eine Kontamination eintritt, wobei vor allem das Edelgas ^{222}Rn und seine Töchter ein Problem darstellen. Schließlich gibt es die unvermeidliche Aktivierung der Szintillatorkomponenten durch die kosmische Höhenstrahlung.

Im Rahmen der CTF wurde deswegen eine Reinigungsanlage gebaut, um mehrere mögliche Reinigungsverfahren zu testen.
Dabei handelt es sich zum einen um eine Wasserextraktionseinheit, die vor allem für ionische Verunreinigungen geeignet ist, da diese eine viel größere Löslichkeit im polaren Wasser als im fast unpolaren Szintillator besitzen.
Weiter wurde eine Vakuumdestillationseinheit getestet, bei der der Szintillator über heiße Oberflächen nach unten fließt und dabei verdampft. Dadurch wird ein Sieden des Szintillators verhindert, das zu Aerosolbildung und damit zu einer Verschlechterung der Reinigungseffizienz führt. Durch Abstimmung des Drucks und der Temperatur konnte eine simultane Destillation der beiden Szintillatorkomponenten PC und PPO erreicht werden, die bei Normaldruck unterschiedliche Siedepunkte besitzen. Im Gegensatz zur Wasserextraktion stellt dieses Verfahren auf die unterschiedlichen Dampfdrücke des Szintillators und der Verunreinigungen ab, wobei das Fehlen einer fraktionierten Destillation dazu

führt, daß leichter siedende Verunreinigungen nicht entfernt werden.
Zur Reinigung des Szintillators von gelösten gasförmigen Radionukliden dient eine N_2-Spüleinheit, die mit abgedampften N_2 betrieben wird. Um mögliche Partikel zu entfernen, wird der Szintillator gefiltert, wobei die kleinste Porengröße der Filter 0.05μm beträgt.

4.2.3 Wasser - Reinigungsanlage

Im Gegensatz zur Szintillator - Reinigungsanlage konnte eine kommerziell erhältliche Reinigungsanlage für das Wasser eingesetzt werden, das in der CTF als Abschirmungsflüssigkeit dient. Die Anlage besteht aus mehreren Einheiten, einer Mischbett-Ionentauschereinheit, einem Deionisierer, einer Ultrafiltrationseinheit und einer N_2-Spüleinheit, um den Radongehalt des Wassers zu reduzieren. Die Reinigungseffizienz der Anlage beträgt für Uran und Thorium 10^4 und für ^{222}Rn 10^6. Mit 10^{-14}g/g für Uran und Thorium und 10^{-11}g/g für Kalium im gereinigten Wasser erreicht die Anlage die für die CTF gestellten Anforderungen.

4.2.4 Elektronik und Datenaufnahme

Für die 100 Photovervielfacher (PMT) stehen 64 elektronische Kanäle zur Verfügung, so daß 72 PMT's paarweise zusammengefaßt sind. Jeder elektronische Kanal beinhaltet einen Constant Fraction Diskriminator (CFD), einen Analog to Digital Converter (ADC) und einen Time to Digital Converter (TDC). Die Schwellen der CFD's sind so niedrig eingestellt, daß sie beim Signal eines Photoelektrons ansprechen. Spricht eine festgesetzte Anzahl an CFD's innerhalb 30 nsec an, wird ein Trigger ausgelöst und für jeden Kanal das ADC-Signal und das TDC-Signal über CAMAC in eine $\mu-$VAX ausgelesen, wobei der Start des TDC durch den ersten angesprochenen CFD ausgelöst wird, der Stop durch den CFD des jeweiligen Kanals. Über diese Zeitinformation läßt sich bei der Datenanalyse der Ort des Ereignisses rekonstruieren, da sich je nach Ort des Ereignisses unterschiedliche Laufzeiten der Photonen zu den verschiedenen PMT's ergeben.
Die einzelnen Signale der PMT's werden daneben komplett zusammengefaßt. Mit zwei ADC's wird einmal die gesamte Ladung des Pulses gemessen und einmal die Ladung, die im hinteren Teil des Pulses steckt, d.h. das Gate beginnt ca. 30 nsec später als das des ersten ADC. Aus dem Verhältnis der beiden Ladungen läßt sich dadurch eine Größe für die α/β-Diskrimination finden, da die Pulse von α-Ereignissen eine längere Abklingzeit aufweisen.
Nachdem ein Trigger ausgelöst worden ist, vergehen ca. 8 ms bis die Elektronik ausgelesen wird und für das nächste Ereignis wieder bereit ist. Um die in der CTF wichtigen verzögerten Koinzidenzen der Uran- und Thoriumkette messen zu können, ist die Elektronik in zweifacher Ausführung vorhanden. Während also die erste Gruppe der Elektronik nach einem Ereignis 8 ms für die Aufnahme weiterer Ereignisse ausfällt, steht dafür die zweite Gruppe zur Verfügung, wobei die Zeitdifferenz zwischen dem Trigger der ersten und der zweiten Gruppe mit drei TDC's mit unterschiedlichem Zeitbereich gemessen wird. Ein vollständiges Ereignis setzt sich in der CTF somit aus den Daten des ersten Ereignisses,

den Daten des zweiten Ereignisses und der Zeitdifferenz zwischen beiden zusammen. Für Einzelereignisse sind natürlich nur die Daten der ersten Gruppe ungleich Null.

4.3 Allgemeine Eigenschaften des Detektors

Eine ausführlichere Darstellung zu den Punkten in Kap. 4.2 und 4.3 findet man in [Bor96b]. Eine Veröffentlichung der Kollaboration dazu ist derzeit in Vorbereitung. Für den Szintillator bestehend aus PC/PPO (1.5 g/l) wurde eine Lichtausbeute von 260 Photoelektronen/MeV gemessen, was in der gegebenen Konfiguration einer Anzahl von 10.000 emittierten Photonen/MeV entspricht. Für die Triggerbedingung von 6 feuernden PMT's innerhalb von 30 nsec entspricht das einer Energieschwelle von 25 keV.

Für die zur Bestimmung der Energieauflösung nötigen Energieeichung wurde die verzögerte Koinzidenz der Urankette ^{214}Bi$\rightarrow^{214}$Po$\rightarrow^{210}$Pb verwendet. Durch die nach der Füllung des Detektors mit Szintillator hohe ^{222}Rn-Aktivität konnten die Spektren der verzögerten Koinzidenz mit guter Statistik aufgenommen werden. Durch die Position der α-Linie von ^{214}Po und der charakteristischen Form des β- und γ-Spektrums von ^{214}Bi wurde eine Eichkurve gewonnen, wobei zusätzlich der im Labor gemessene $\alpha-$quenching - Faktor verwendet wurde. Die später gemessene Linie von ^{85}Kr und die Linie bei 2.2 MeV durch den Einfang von Neutronen in Wasserstoff bestätigten im wesentlichen die Richtigkeit der Eichung.

Für die Bestimmung der Energieauflösung wurde zunächst die Breite der ^{214}Po-Linie verwendet. Sie beträgt bei 825 keV 9% (1σ). Die vermutete $\sqrt{N}$-Abhängigkeit wurde näherungsweise bestätigt; dabei ist N die Anzahl der Photoelektronen. Die Breiten der α-Linien von ^{222}Rn und seiner Tochter sind konsistent mit der abgeleiteten Kurve.

Zur Messung der Ortsauflösung wurde eine kleine Quarzampulle mit ^{222}Rn beladenem Szintillator in die Szintillatorkugel eingebracht. Durch den Vergleich der rekonstruierten und der nominalen Position der Ampulle konnte die energieabhängige Ortsauflösung bestimmt werden. Sie beträgt bei 300 keV 15 cm (1σ) und bei 1 MeV 10 cm (1σ) entlang einer Achse.

Wie im Kap. 3 beschrieben wurde, ist die α/β-Diskrimination ein wichtige Methode, um den Untergrund in BOREXINO zu reduzieren. Aufgrund der längeren Abfallszeit von α-induzierten Szintillationspulsen ist eine Separation von β- Ereignissen möglich, deren Effizienz allerdings u.a. von der Ausdehnung des Szintillatorvolumens abhängt.
Über die α-Linien von ^{210}Po, ^{218}Po und ^{222}Rn wurde mit der in Kap. 4.2.4 beschriebenen Technik für den PC/PPO-Szintillator und die CTF-Geometrie für den Energiebereich von 300-600 keV eine α-Unterdrückungseffizienz von 89% ermittelt, wenn dabei eine β-Fehlidentifikation von ca. 7% toleriert wird. Bei 825 keV verbessern sich diese Werte auf 95% bzw. 2.5%. Die in Tab. 3.1 und Tab. 3.2 angenommenen Effizienzen sind damit im wesentlichen gerechtfertigt.

Kapitel 5

Ergebnisse der CTF zum Untergrund in BOREXINO

5.1 Ergebnisse für ^{14}C, ^{222}Rn und ^{228}Th

Wie in Kap. 4.1 erläutert wurde, besteht das Hauptziel der CTF darin, zu zeigen, daß die Anforderungen in BOREXINO für diese Nuklide erreichbar sind.

5.1.1 ^{14}C

Die Konzentration von ^{14}C im Szintillator wurde durch einen Vergleich des gemessenen Spektrums in der CTF zwischen 50 keV und 200 keV und einem simulierten Spektrum des ^{14}C-Zerfalls bestimmt, bei dem das theoretische Spektrum mit der Energieauflösung gefaltet wird. Beide auf einen Tag und Tonne normierten Spektren sind in Abb. 5.1 dargestellt, wobei das simulierte Spektrum im Bereich von 50-100 keV der Rate des gemessenen Spektrum angepaßt wurde. Wie man sieht, ist die Übereinstimmung beider Spektren exzellent, außer im niederenergetischen Bereich unterhalb 40 keV, in dem Ĉerenkovereignisse im Wasser zu einem starken Anstieg des Untergrundes führen. Die ermittelte Konzentration an ^{14}C ist somit mit hoher Wahrscheinlichkeit als Wert und nicht als obere Grenze anzusehen. Sie berechnet sich zu

$$\frac{^{14}C}{^{12}C} = (1.8 \pm 0.1) \cdot 10^{-18}$$

Mit der in der CTF gemessenen Energieauflösung läßt sich bei dieser Konzentration ein Untergrundbeitrag über 250 keV von ≤ 0.1 Ereignis/Tag in BOREXINO abschätzen.
Die gemessene Rate blieb während des betrachteten Zeitraums von über einem Jahr konstant und änderte sich auch nicht, als die PPO-Konzentration reduziert wurde, so daß das ^{14}C nicht dominant durch den Wellenlängenschieber eingebracht worden ist. Ob die bei den Reinigungschritten durchgeführte N_2-Spülung eventuell gelöstes CO_2 meßbar aus dem Szintillator entfernt haben müßte, ist noch nicht geklärt. Daher kann nicht ausgeschlossen werden, daß das ^{14}C in Form von CO_2 durch Luftkontakt oder durch Diffusion aus dem

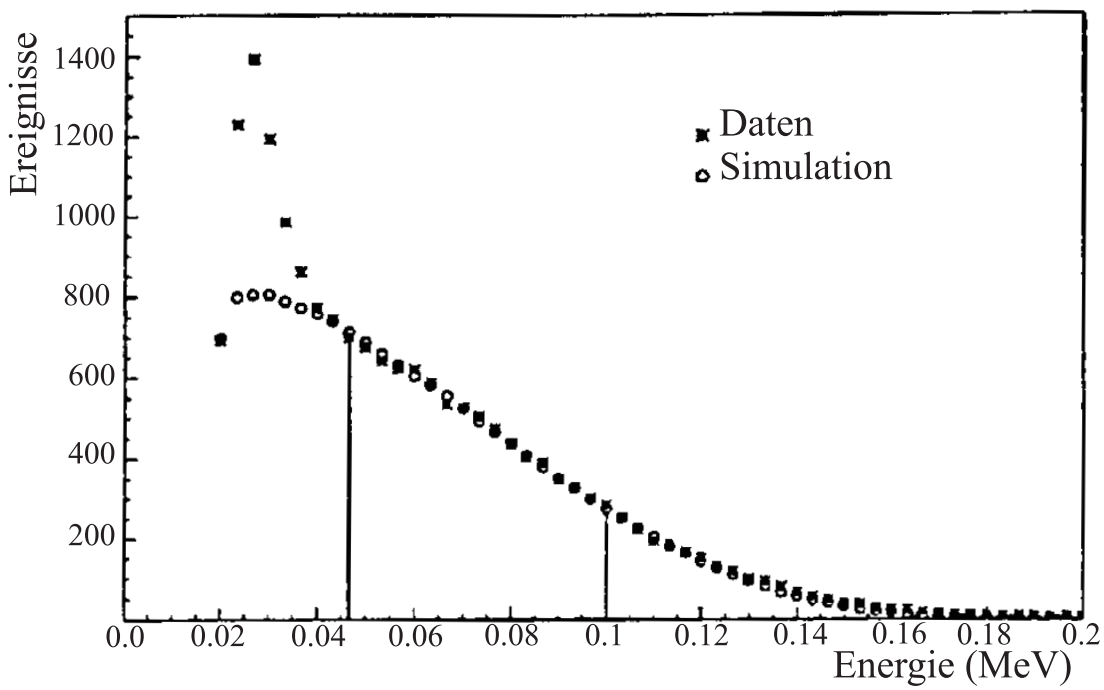

Abbildung 5.1: *Anpassung eines simulierten ^{14}C-Spektrums an das gemessene Spektrum der CTF, so daß die Flächen zwischen 47-100 keV identisch sind. Die gute Übereinstimmung läßt den Schluß zu, daß wirklich eine ^{14}C-Aktivität vorliegt, die einem $^{14}C/^{12}C$-Verhältnis von $(1.8 \pm 0.1) \cdot 10^{-18}$ entspricht. Entnommen aus [Bor96b].*

Wasser der CTF in den Szintillator gelangt ist, und somit nicht organisch gebundenes ^{14}C für die Konzentration verantwortlich ist.
Zum Abschluß dieses Abschnittes soll noch die Einmaligkeit dieser Messung unterstrichen werden. Auf diesem Niveau gibt es keine Analysemethode, die ohne Vorkonzentration eine solche Empfindlichkeit für ^{14}C erreicht, wobei die der CTF deutlich unter 10^{-18} anzusetzen ist, wie aus Abb. 5.1 ersichtlich.

5.1.2 ^{222}Rn

Bei der Vorbereitung und Füllung des Szintillators im Frühjahr 1995 gelangte eine relativ hohe Aktivität an ^{222}Rn in den Szintillator. Nach einer längeren Abklingzeit bis Juni 1995 konnte der zeitunabhängige Anteil der ^{222}Rn-Aktivität gemessen werden. Wegen der noch immer dominierenden Rate des eingebrachten Radon, wurde die intrinsische Aktivität durch einen Fit des zeitlichen Zerfalls der Radonaktivität bestimmt. Wie bereits im Kap. 4.1 beschrieben wurde, wird dazu nicht der Zerfall des ^{222}Rn selbst verwendet, sondern wegen ihrer guten Signatur die im Gleichgewicht befindliche verzögerte Bi-Po-Koinzidenz.

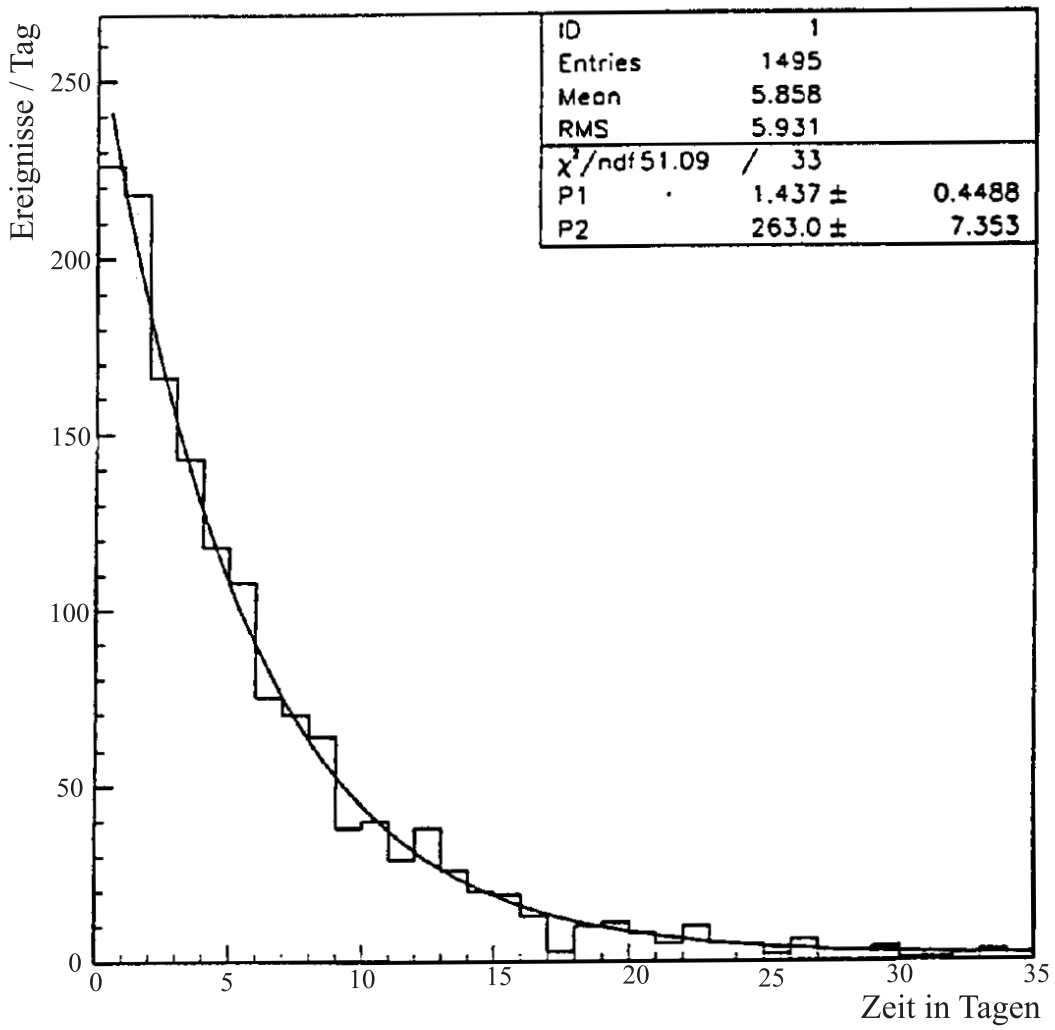

Abbildung 5.2: *Zerfallskurve des bei der Füllung des Szintillatorbehälters eingebrachten ^{222}Rn. Neben einer exponentiellen Kurve ist ein konstanter Anteil angefittet, um den ^{226}Ra-Gehalt oder die ^{222}Rn-Emanation des Szintillatorbehälters zu bestimmen. Entnommen aus [Bor96b].*

In Abb. 5.2 ist die Zerfallskurve dargestellt. Die für 35 Tage angefittete Kurve setzt sich aus einem exponentiellen Zerfall und einem konstanten Anteil zusammen, wobei für die Halbwerstzeit der theoretische Wert von 3.9 d verwendet wurde. Dieser konnte allerdings mit einem getrennt durchgeführten Fit der Daten hervorragend reproduziert werden. Für den konstanten Anteil ergibt sich ein Wert von 1.44 ± 0.44 Ereignissen/Tag. Dies entspricht einer ^{222}Rn-Konzentration, ausgedrückt in Uranäquivalent, von

$$(4.2 \pm 2.0) \cdot 10^{-16} g/g$$

Ein Fit der letzten 16 von den 35 Tagen mit der gleichen Kurve, sowie eine Maximum-Likelihood-Analyse bestätigen diesen Wert.
Bis jetzt wurde ausdrücklich von ^{222}Rn gesprochen, da nicht auszuschließen ist, daß Ema-

nation von Radon aus dem Szintillatorbehälter oder Diffusion von Radon aus dem Wasser durch den Szintillatorbehälter für die Aktivität verantwortlich ist. Ist dies nicht der Fall, gilt der obige Wert auch für den ^{226}Ra-Gehalt. Ein Rückschluß auf den ^{238}U-Gehalt ist nur unter der fragwürdigen Annahme einer im Gleichgewicht stehenden Kette möglich.
Ein paar abschließende Bemerkungen sind nötig. Ein weiteres Abklingen der Radonaktivität wurde durch den Start der Reingungsanlage im Juli 1995 verhindert, die durch den Betrieb ein höheres Radonniveau verursachte, als es bereits erreicht worden war. Unabhängig von den einzelnen Gründen dieser erneuten Kontamination zeigt dies, welches Problem ^{222}Rn für BOREXINO darstellt. Die auf die Reinigungszyklen folgenden Abklingzeiten waren entweder zu kurz, um die am Anfang erzielte Sensitivität zu reproduzieren, oder die konstante Aktivität war sogar höher als die ursprünglich gemessene. Die erhöhten Werte der ^{222}Rn-Aktivität korrelieren allerdings mit einer erhöhten ^{222}Rn-Aktivität des Reinstwassers. Es erscheint daher plausibel, daß die erhöhte ^{222}Rn-Aktivität im Szintillator durch Diffusion von Radon aus dem umgebenden Reinstwasser dominiert wurde. Auf der anderen Seite muß betont werden, daß der Wert für die ursprüngliche ^{222}Rn-Aktivität bereits ohne Reinigung des PC und mit einer relativ einfachen Wasserextraktion des PPO erreicht wurde.

5.1.3 ^{228}Th

Analog zu ^{222}Rn wurde die Konzentration von ^{228}Th über eine verzögerte Bi-Po-Koinzidenz bestimmt, die im unteren Teil der Thoriumkette auftritt, aber aufgrund der relevanten Halbwertszeiten im Gleichgewicht mit der ^{228}Th-Aktivität steht (vgl. Kap. 3.1.3). Die Halbwertszeit von ^{212}Po ist mit 300 nsec wesentlich kürzer als von ^{214}Po in der Uran-Kette. Als Untergrund für die verzögerten Ereignisse der Thorium-Kette waren deshalb verzögerte Bi-Po-Koinzidenzen nach den ^{222}Rn-Zerfällen in den Maximum-Likelihood-Analysen zu berücksichtigen. Für zwei Perioden ergaben sich folgende in Thoriumäquivalent ausgedrückte Werte:

$$2.5^{+1.3}_{-1.0} \cdot 10^{-16}\mathrm{g/g}\ (40\,\mathrm{d}) - \text{Juni 1995 : Vor Start der Reinigungsanlage}$$

$$\leq 3 \cdot 10^{-16}\mathrm{g/g}\ (20\,\mathrm{d}) - \text{Dezember 1995 : Nach Destillation}$$

Die relativ großen Fehler resultieren aus der kleinen Ereignisrate von ca. 7 Ereignissen in 40 Tagen, die die Sensitivität des CTF-Detektors veranschaulicht.
Die Werte konnten durch die Analyse einer weiteren in der Thorium-Kette auftretenden verzögerten Koinzidenz bestätigt werden: ^{220}Rn$\rightarrow^{216}$Po($T_{1/2}$=150ms). Da es sich im Gegensatz zu den oben erwähnten Bi-Po-Koinzidenzen um eine α-α-Koizidenz und nicht um eine β-α-Koinzidenz handelt, ist die Sensitivität, die man bei Verwendung dieser Koinzidenz erhält, trotz der sehr viel längeren Halbwertszeit vergleichbar, da die zufällige Koinzidenzrate wegen des zusätzlich möglichen α-cuts beim ersten Ereignis und der definierten Energie dieses α's wesentlich geringer ist. Die resultierende Obergrenze von $3 \cdot 10^{-16}$g/g ist identisch mit dem Wert der ersten Analysemethode.
Der mit der CTF gemessene Wert für ^{228}Th liegt unter dem festgesetzten Ziel von

$5 \cdot 10^{-16}$g/g. Weiter ist festzuhalten, daß dieser Wert ebenfalls ohne die Reinigungsanlage der CTF erzielt wurde.

5.2 Effizienz der Reinigungsanlage

5.2.1 ^{210}Po

Durch die relativ hohe ^{222}Rn-Aktivität, die bei der Vorbereitung und Füllung in den Szintillator eingebracht worden ist, wurde eine ^{210}Pb-Aktivität ($T_{1/2}$=22 Jahre) aufgebaut. Die α-Linie des Tochternuklids ^{210}Po ist im Spektrum vor dem Start der Reinigungsanlage deutlich sichtbar (vgl. Abb. 5.3). Die Identifikation beruht dabei vor allem auf

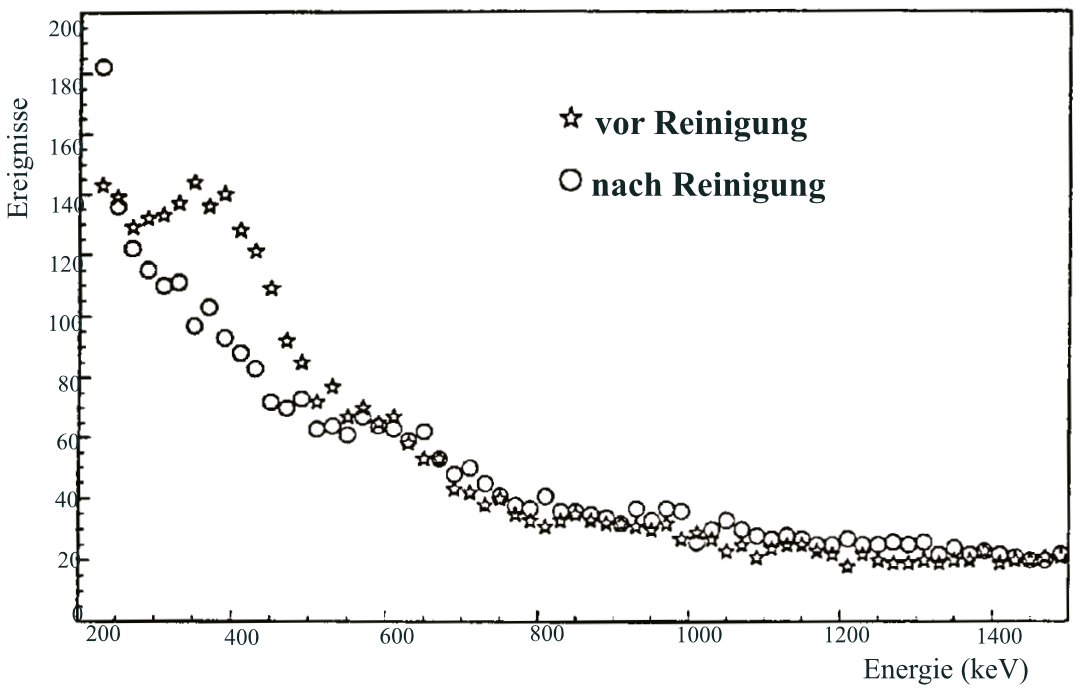

Abbildung 5.3: *Dargestellt ist das Spektrum der Einzelereignisse vor und nach den Reinigungsschritten (Wasserextraktion und Destillation). Man sieht deutlich, daß der Peak von ^{210}Po im Spektrum nach der Reinigung verschwunden ist. Entnommen aus [Ben96].*

der rekonstruierten Energie, die mit der erwarteten in guter Übereinstimmung ist. Nach den Reinigungsperioden verschwindet diese Linie aus dem Spektrum, womit demonstriert wurde, daß dieses langlebige Tochternuklid von ^{222}Rn aus dem Szintillator entfernt werden kann. Laborexperimente, die an der TU München durchgeführt wurden, geben noch einen detaillierteren Überblick über die Effizienz der einzelnen Verfahren, auch für ^{210}Pb [Nef96].

5.2.2 ^{85}Kr

Wie das Radon gelangte auch ^{85}Kr über Luftkontakt in den Szintillator. Mit einer angenommenen Aktivität von 1 Bq pro m^3 Luft genügen einige Liter Luft, um die gemessene Anfangsaktivität von 300 ± 50 Ereignissen pro Tag zu erklären. Die Bestimmung erfolgt dabei über die Bevölkerung eines isomeren Niveaus des Tochternuklids ^{85}Rb, was eine verzögerte β-γ-Koinzidenz ermöglicht. Die geringe Wahrscheinlichkeit für diesen Prozeß von 0.43% pro Zerfall begrenzt allerdings die Sensitivität für dieses Nuklid. Nach einer N_2-Spülung des Szintillators konnte die Rate auf (50 ± 50)/d reduziert werden.

5.2.3 Ereignisrate im Neutrinofenster

Von besonderer Aussagekraft für die Machbarkeit von BOREXINO ist die Ereignisrate im Neutrinofenster von 250-800 keV. Problematisch für die Bestimmung der internen Aktivität war dabei die höher als erwartete ^{222}Rn-Aktivität des Reinstwassers, die wahrscheinlich durch Emanation aus der Beschichtung des Tanks oder durch Diffusion von Luft in den Tank resultierte und einen hohen externen Untergrund verursachte. Mit einer absichtlich durchgeführten vorübergehenden Erhöhung der ^{222}Rn-Konzentration im Reinstwasser wurde die radiale Verteilung dieses externen Untergrundbeitrages studiert.

Für die Analyse der Daten aus den Perioden vor dem Start der Reinigungsanlage und nach den Reingungsschritten wurde die gemessene radiale Verteilung mit einer Funktion gefittet, die sich aus drei Kurven zusammensetzt: die Kurve des externen Rn, der interne Untergrund, der homogen über das Szintillatorvolumen verteilt sein muß, und eine Aktivität an der Oberfläche des Szintillatorbehälters, dessen radiale Verteilung aufgrund der Ortsauflösung als gaussförmig angenommen wurde. Auf die Daten wurden zuvor noch einige Schnitte angewendet, auf die hier nicht näher eingegangen wird.
In Tab. 5.1 sind die ermittelten Beiträge der verschiedenen Quellen zur Ereignisrate dar-

Tabelle 5.1: *Beiträge verschiedener Quellen zur Gesamtrate im Neutrinofenster zwischen 250-800 keV vor und nach Betrieb der Reinigungsanlage. Entnommen aus [Bor96b].*

	vor Reinigung	nach Wasserextrakt. und Destillation
χ^2	1.02	0.9
Mittelwert der Oberflächenverteilung (m)	1.04 ± 0.03	1.07 ± 0.02
σ der Oberflächenverteilung (m)	0.12 ± 0.03	0.11 ± 0.03
Externe Untergrund (Ereignisse/Tag)	1700 ± 270	2050 ± 100
Untergrund von der Oberfläche (Ereignisse/Tag)	350 ± 190	170 ± 60
Interne Untergrund (Ereignisse/Tag)	470 ± 90	21 ± 47
Erwarteter Untergrund durch internes ^{222}Rn	—	30 ± 7

gestellt. Als Ergebnis dieser Analyse kann festgehalten werden:

- Der interne Untergrund konnte durch die Reinigungsschritte von (470 ± 90)/d auf eine mit Null verträgliche Rate von (21 ± 49)/d reduziert werden, wobei aus Rn-Zerfällen allein eine Rate von (30 ± 7)/d zu erwarten waren.

- Ein Beitrag zur Einzelereignisrate im Neutrinofenster resultiert von einer Aktivität im Szintillatorbehälter oder an seiner Oberfläche. Innerhalb der Fehler ist keine Abnahme der Oberflächenaktivität zu erkennen. Ein wahrscheinlicher Kandidat für diese Aktivität ist ^{210}Pb mit seinen Töchtern, da der Szintillatorbehälter bei seiner Fabrikation nicht völlig vor Kontakt mit radonhaltiger Luft geschützt werden konnte. Die in der Luft entstehenden Radontöchter lagern sich an der Kunststoffoberfläche an und werden durch weitere Zerfälle sogar in das Nylon implantiert, so daß anschließende Reinigungen der Oberfläche zum Beispiel mit Reinstwasser oder leichter Säure nur bedingt effizient sind. Genauere Untersuchungen zu diesem Problem werden in der nächsten Zeit mit Oberflächen durchgeführt, die absichtlich einer hohen Radonaktivität ausgesetzt werden.

- Der externe Beitrag zur Ereignisrate durch eine hohe ^{222}Rn-Aktivität im Reinstwasser ist dominant und ungefähr in beiden Perioden gleich hoch. Es ist geplant, bei einer Aufrüstung der CTF Vorkehrungen zu treffen, daß radonreiches Reinstwasser nicht zu nahe an den Szintillator gelangen kann und so die Sensitivität der CTF für die Einzelereignisrate im Neutrinofenster gesteigert wird.

5.3 Zusammenfassung

Die Ergebnisse der CTF haben die gesteckten Ziele erreicht. Es konnte gezeigt werden, daß die Anforderungen des BOREXINO-Experimentes an den Untergrund erreichbar sein sollten. Die bereits ohne Vorreingung des PC erreichten Werte bestätigen die Strategie des BOREXINO-Experimentes, nach der aus fraktionierter Destillation gewonnene Erdölprodukte von Anfang an eine hohe Reinheit an metallischen Spuren besitzen sollten und durch ihren schwach polaren oder unpolaren Charakter eine Rekontamination von Behälterwänden sehr begrenzt ist, da die normalerweise in ionischer Form vorliegenden metallischen Verunreinigungen in unpolaren Medium sehr schlecht löslich sind.
Mit einer Ereignisrate von kleiner $1 \cdot 10^{-3}$ Ereignissen/Tag/keV/kg für Energien größer 250 keV ist der CTF-Detektor der derzeit untergrundärmste Detektor in diesem Energiebereich und auch deutlich besser als die Germaniumdetektoren der $\beta\beta$-Experimente.

Teil III

NAA für BOREXINO

Kapitel 6

Aspekte der NAA für BOREXINO

6.1 NAA im Überblick

Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) ist eine Analysemethode, die auf Elemente sensitiv ist[1]. Bei diesem Verfahren wird die zu untersuchende Probe einem Neutronenfeld ausgesetzt, wofür in der Regel ein Reaktor verwendet wird. Durch die dabei mit den Neutronen auftretenden Reaktionen werden die Kerne in der Probe teilweise in instabile umgewandelt. Am häufigsten und wichtigsten unter den Reaktionen ist der Neutroneneinfang, durch den prinzipiell für jedes Element ein instabiles Isotop produziert werden kann und der in der Regel die größten Wirkungsquerschnitte aufweist.
Nach einer bestimmten Bestrahlungs- und Abklingzeit, die u.a. in Abhängigkeit von der Halbwertszeit der interessierenden Isotope gewählt werden, wird der Zerfall der aktivierten Isotope nachgewiesen. Normalerweise handelt es sich um β-Zerfälle, und der Nachweis erfolgt über die Detektion der dabei in der Regel emittierten und wegen ihrer Energie charakteristischen γ-Strahlung mit Germanium-Detektoren.
Besonders für feste Proben ist die NAA vorteilhaft gegenüber anderen Analyseverfahren, wie ICP-MS (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry) [Bro94], weil ein Aufschluß der Probe nicht nötig ist. Der Probenaufschluß ist einerseits nicht für alle Stoffe ohne weiteres möglich und andererseits besteht besonders für reine Proben die Gefahr, daß durch den Verunreinigungsgrad der für den Aufschluß nötigen Chemikalien oder durch eine Kontamination im Prozeß die Sensitivität der Analyse begrenzt wird. Bei der NAA fester Proben kann hingegen eine vor der Bestrahlung auftretende Kontamination an der Oberfläche der Probe nach der Bestrahlung durch Spülen oder Ätzen entfernt werden. Kontaminationen der Probenoberfläche nach der Bestrahlung sind unbedeutend, weil die Konzentration der aktivierten Isotope in Laborgegenständen oder im Staub der Luft vernachlässigbar klein ist, wenn man von einer möglichen Kontamination des Labors mit radioaktiven Spuren absieht.
Ein weiterer, allgemeiner Vorteil der NAA ist, daß es sich dabei um eine absolute Analysemethode handelt. Die Aktivität eines bestimmten Isotops nach Bestrahlungsende be-

[1] Eine ausführlichere Beschreibung findet man z.B. in [Alf94], S.253-304.

rechnet sich zu[2]:

$$A = N\Phi\sigma(1 - e^{-\lambda t_b}) \tag{6.1}$$

Dabei ist N die Zahl der in der Probe vorhandenen Kerne, die durch die Reaktion in das instabile Nuklid umgewandelt werden können, Φ der Neutronenfluß, σ der Wirkungsquerschnitt der Reaktion und t_b die Bestrahlungsdauer. Wird die Probe nach einer Abklingzeit t_d für eine Zeit t_m gemessen, und ist ϵ die Effizienz des Detektors für die Energie der γ-Linie des Isotops, die mit einer Wahrscheinlichkeit w pro Zerfall emittiert wird, errechnet sich die Anzahl der Ereignisse im Peak Z zu:

$$Z = \frac{w\epsilon N\Phi\sigma}{\lambda} e^{-\lambda t_d}(1 - e^{-\lambda t_m})(1 - e^{-\lambda t_b}) \tag{6.2}$$

Gesucht ist meistens jedoch die Konzentration des Elements in der Probe, ausgedrückt in Gramm des Elements pro Gramm Probenmasse [g/g]. Dazu muß man N schreiben als $N = \frac{h \cdot c \cdot m \cdot L}{M}$, wobei h die Isotopenhäufigkeit ist, c die gesuchte Konzentration, m die gesamte Probenmasse, L die Loschmidtsche Zahl und M die Molmasse des Elements. Löst man nach c auf, erhält man:

$$c = \frac{\lambda M Z}{Lmhw\epsilon\sigma\Phi e^{-\lambda t_d}(1 - e^{-\lambda t_m})(1 - e^{-\lambda t_b})} \tag{6.3}$$

Bis jetzt wurde allerdings nicht berücksichtigt, daß Φ und σ energieabhängig sind und statt $\Phi\sigma$ vielmehr $\int \sigma(E)\Phi'(E)dE$ geschrieben werden muß, wobei Φ' ein differentieller Fluß ist. Die spezifische Form des Neutronenspektrums von Reaktoren und die 1/v-Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes bei niedrigen Energien erlaubt jedoch die Umformung des Intergrals in:

$$\int_0^{1\,MeV} \Phi'(E)\sigma(E)dE = (\sigma_{th}\Phi_{th} + \sigma_{epi}\Phi_{epi}) \tag{6.4}$$

Der Index th bezieht sich auf den thermischen Bereich, der zwischen 0 und ca. 0.55 eV definiert ist, und epi auf den epithermischen Bereich zwischen ca. 0.55 eV und 1 MeV. Die Größen Φ_{th} und Φ_{epi} kann man als effektive Flüsse für den jeweiligen Energiebereich bezeichnen. Sie hängen vom Reaktor und auch von der Bestrahlungsposition im jeweiligen Reaktor ab. Oft wird statt den beiden Größen nur der thermische Fluß und das Verhältnis beider Größen $f = \frac{\Phi_{epi}}{\Phi_{th}}$ angegeben. Sind diese Größen für eine Bestrahlungsposition gemessen, kann mit den tabellierten Wirkungsquerschnitten [Erd79, Cor86], eine absolute Multielementanalyse der Probe durchgeführt werden.
Da alle in der Formel (6.3) auftauchenden Größen zum Teil mit nicht vernachlässigbaren Fehlern behaftet sein können, kann man durch eine relative Methode die Genauigkeit einer Analyse erhöhen. Man präpariert dazu einen Standard, der die interessierenden Isotope in bekannter Konzentration enthält, möglichst die gleiche Geometrie wie die Probe besitzt und sich bei der gleichzeitigen Bestrahlung und der anschließenden Messung möglichst an derselben Position befindet. Dadurch kürzen sich bei der Berechnung der Konzentration in der Probe einige Größen wie der Wirkungsquerschnitt, der Fluß, die Effizienz des

[2]Die Extremfälle, in denen der Abbrand des stabilen oder produzierten instabilen Nuklids eine Rolle spielt, sind hier vernachlässigt.

Detektors und die Übergangswahrscheinlichkeit heraus, die in der Regel den Fehler der Analyse dominieren. Die für eine Multielementanalyse aufwendige Standardpräparation macht diese Methode nur für spezielle Analysen mit einigen wenigen interessierenden Elementen oder bei hoher geforderter Genauigkeit sinnvoll.
Ein Mittelweg ist die k_0-Methode. Hier verwendet man einen sogenannten Komparator, in der Regel Gold, der mit der Probe bestrahlt wird. Mit der Messung des Komparators und der Probe läßt sich die Konzentration für ein Element folgendermaßen berechnen:

$$c = c' \frac{Z\epsilon' m' \lambda e^{\lambda t_d}(1-e^{-\lambda' t'_m})(1-e^{-\lambda' t'_b})}{Z'\epsilon m \lambda' e^{\lambda' t'_d}(1-e^{-\lambda t_m})(1-e^{-\lambda t_b})} \cdot \frac{f^{-1}+\alpha'}{f^{-1}+\alpha} \cdot \frac{\sigma'_{th} w' M h'}{\sigma_{th} w M' h} \tag{6.5}$$

Die gestrichenen Größen beziehen sich auf den Komparator, die anderen Größen auf das zu bestimmende Element. Der letzte Term wird k_0-Faktor genannt. Durch mehrere Messungen an verschiedenen Reaktoren ist dieser Wert empirisch mit relativ guter Genauigkeit bekannt und tabelliert [Cor86]. Der zweite Term beinhaltet das Flußverhältnis, das nicht für jede Messung bestimmt wird und sich während einer Reaktorperiode nicht stark ändert, und das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte $\alpha = \frac{\sigma_{epi}}{\sigma_{th}}$. Dieses ist für viele Elemente wesentlich kleiner als f^{-1}, und dadurch kürzt sich auch das Flußverhältnis näherungsweise heraus. Die restlichen Größen sind bis auf die Effizienz in der Regel einfach und genau bestimmbar.
Da für diese Dissertation weniger die Genauigkeit der Analysen als vielmehr die Sensitivität im Vordergrund stand, und im absoluten Spurenbereich größere Schwankungen schon bei den Blindwerten auftreten, wurde in der Regel die absolute Methode verwendet. Der dabei auftretende Fehler durch die Unsicherheit über den Fluß, der auch nicht für jede Bestrahlung separat gemessen wurde und teilweise von der Bestrahlungsgruppe für bestimmte Bestrahlungspositionen übernommen wurde, beläuft sich auf ungefähr 15-25%.

6.2 Relevanz der NAA für die Bestimmung des Untergrundniveaus in BOREXINO

Im Gegensatz zur direkten γ-Spektroskopie von radioaktiven Isotopen, die bei der Aktivität selbst ansetzt, erfolgt der Nachweis dieser Isotope bei der NAA indirekt. Zum einen kann das für den Nachweis erforderliche Isotop des dazugehörigen Elements verschieden von dem radioaktiven Isotop sein. Als Beispiel sei ^{40}K erwähnt, dessen Konzentration in der Probe über ^{41}K und unter der Annahme einer natürlichen Isotopenhäufigkeit in der Probe bestimmt wird. Diese Annahme dürfte allerdings nur in den seltensten Fällen verletzt sein. Zum anderen kann damit die Sensitivität für Nuklide, die mit gleicher Aktivität in der Probe auftreten, aber unterschiedliche Halbwertszeiten besitzen, sehr verschieden sein. Da die Sensitivität proportional zur Anzahl der aktivierbaren Kerne ist, ist sie wegen $N = \frac{1}{ln2} A T_{1/2}$ bei gegebener Aktivität A auch proportional zur Halbwertszeit des jeweiligen Nuklids.
Für die in Kapitel 3 aufgeführten radioaktiven Nuklide eignet sich die NAA deshalb besonders für die quasistabilen Nuklide wie ^{238}U, ^{232}Th, ^{176}Lu, ^{138}La, ^{115}In, ^{113}Cd, ^{87}Rb und ^{40}K. Damit ist die NAA prinzipiell komplementär zur CTF, die von den natürlichen

radioaktiven Isotopen nur auf ^{226}Ra bzw. ^{222}Rn und ^{228}Th über die verzögerten Koinzidenzen in dem für BOREXINO relevanten Bereich sensitiv ist. Durch diese verzögerten Koinzidenzen kann auf der anderen Seite in BOREXINO eine direkte Unterdrückung dieser Ereignisse und eine statistische Subtraktion für die mit der Koinzidenz sicher im Gleichgewicht stehenden Isotope erfolgen, so daß die Anforderungen für diese Teile der Uran- und Thoriumkette deutlich niedriger sind als für die anderen (s. Tab. 3.1 und Tab. 3.2). Da mit ^{232}Th ein α- Emitter vorliegt, nach dem das Gleichgewicht in der Kette unmittelbar gestört sein kann, liegen die Anforderungen an die NAA deutlich niedriger als für ^{238}U. ^{238}U steht mit dem β-Emitter ^{234}Pa im Gleichgewicht, das durch seinen hohen Endpunkt mit 36% aller Zerfälle in das ^{7}Be-Neutrinofenster und mit 39% in das pep-Neutrinofenster fällt.
Erreicht die NAA eine für BOREXINO relevante Sensitivität, kann in der Vorbereitungsphase die Reinheit des Szintillators überprüft und während des Betriebes von BOREXINO eine statistische Subtraktion von Untergrundbeiträgen zum Signal durchgeführt werden. Der letzte Punkt stellt eine noch größere Anforderung an die NAA, weil neben der Sensitivität auch die Genauigkeit der Messung relevant wird.

Neben dem Szintillator eignet sich die NAA aufgrund ihrer hohen Sensitivität und wegen der schlechten Aktivierbarkeit der jeweiligen Matrices (s. nächsten Abschnitt) aber auch für Analysen der Abschirmungsflüssigkeit und des Szintillatorbehältermaterials, die nicht nur für BOREXINO relevant sein werden, sondern bereits für den Aufbau der CTF von Bedeutung waren. Um in der CTF eine möglichst hohe Sensitivität für die interne Einzelereignisrate des Szintillators zu erreichen, wurden die Materialien entsprechend den Anforderungen in BOREXINO selektiert.

Für die äußeren Detektorkomponenten, wie zum Beispiel dem Stahl, ist einerseits die Matrix nicht so gut für die NAA geeignet, und andererseits reicht die Sensitivität der direkten γ-Spektroskopie bereits aus, um diese Materialien im relevanten Bereich zu testen.

6.3 Wichtige Faktoren für eine sensitive NAA

6.3.1 Überblick

Nachdem im letzten Abschnitt die Einsatzmöglichkeiten der NAA in BOREXINO erläutert wurden, wird in diesem Kapitel beschrieben, wie die vor allem für den Szintillator enormen Anforderungen an die Sensitivität erreicht worden sind. Um die bestmöglichen Grenzen zu erzielen, müssen offensichtlich möglichst viele Faktoren optimiert werden, die für die Sensitivität relevant sind. In Abb. 6.1 sind diese im Überblick dargestellt und werden im folgenden einzeln erläutert.

6.3.2 Probenmatrix

Proben sind für sensitive NAA besonders gut geeignet, wenn die Wirkungsquerschnitte der Matrixelemente für Neutroneneinfang sehr klein sind, wenn bei der Bestrahlung der Matrixelemente instabile Isotope produziert werden, deren Halbwertszeiten wesentlich kürzer

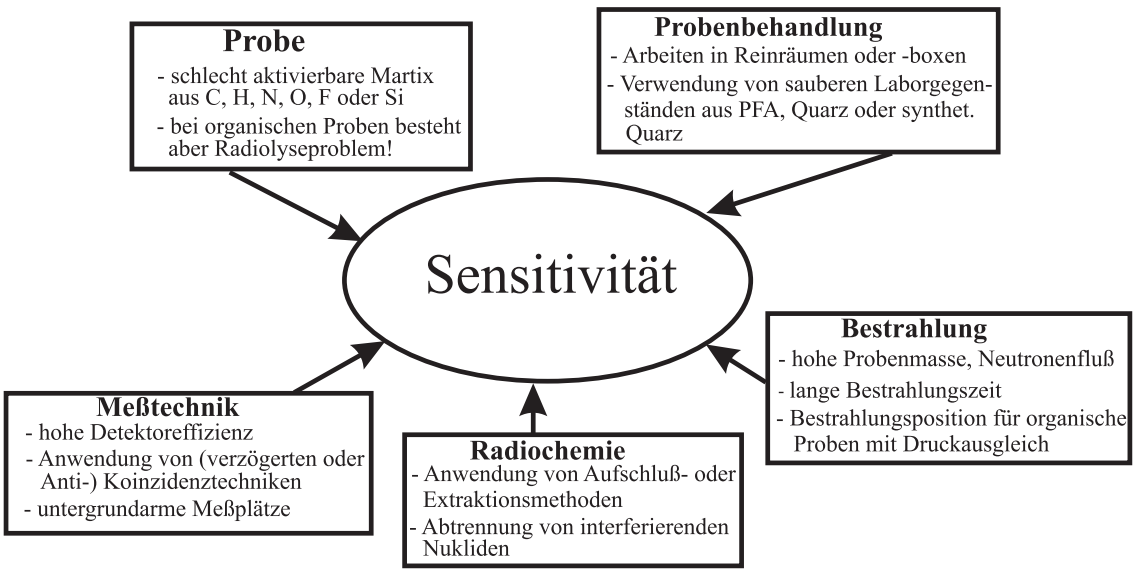

Abbildung 6.1: *Übersicht der für die Sensitivität der NAA relevanten Faktoren. Nur eine kombinierte Optimierung dieser Faktoren führt zu den besten Nachweisgrenzen.*

oder sehr viel länger sind als die der interessierenden Isotope, oder wenn beim Zerfall der aus den Matrixelementen produzierten Isotope die Verzweigungsverhältnisse auf angeregte Zustände mit anschließender $\gamma-$Emission sehr klein sind. H, C, N, O, Si und F sind Elemente, die diese Anforderungen für den Nachweis vieler anderer Elemente und auch für die in BOREXINO relevanten radioaktiven Elemente erfüllen. Daher können Materialien wie Wasser, Kohlenwasserstoffverbindungen, die auch Stickstoff und Sauerstoff enthalten können, Quarz, Silizium und Teflon sensitiv mit NAA untersucht werden. Speziell für BOREXINO bedeutet dies, wie bereits im letzten Abschnitt angesprochen wurde, daß die NAA besonders für den Szintillator, den Szintillatorbehälter, der sehr wahrscheinlich aus Nylon gefertigt wird, und für die Abschirmflüssigkeit, die entweder Reinstwasser oder ein organisches Lösungsmittel sein wird, geeignet ist.
Allerdings tritt bei Wasser und organischen Materialien das Problem auf, daß bei der Bestrahlung durch Radiolyse Gase freigesetzt werden, die in einem geschlossenen Bestrahlungsgefäß zu einem Druckaufbau führen und damit die Bestrahlungszeit limitieren.

6.3.3 Probenvorbereitung

Wie bereits am Anfang des Kapitels erwähnt wurde, bietet die NAA fester Proben den Vorteil eines reduzierten Blindwertproblems. Bei der Analyse von Flüssigproben besteht jedoch auch bei der NAA das Problem, daß vor oder während der Bestrahlung auftretende Kontaminationen die Analyse verfälschen oder die Blindwerte erhöhen. Um dies zu vermeiden, wurde im Rahmen dieser Dissertation für die Probenpräparation vor der Bestrahlung eine chemietaugliche Reinbox installiert, wie sie in Abb. 6.2 dargestellt ist[3]. Die

[3]Eine gute Übersicht über die nötigen Einrichtungen eines Labors für den Umgang mit hochreinen Chemikalien findet man z.B. in [Mur76].

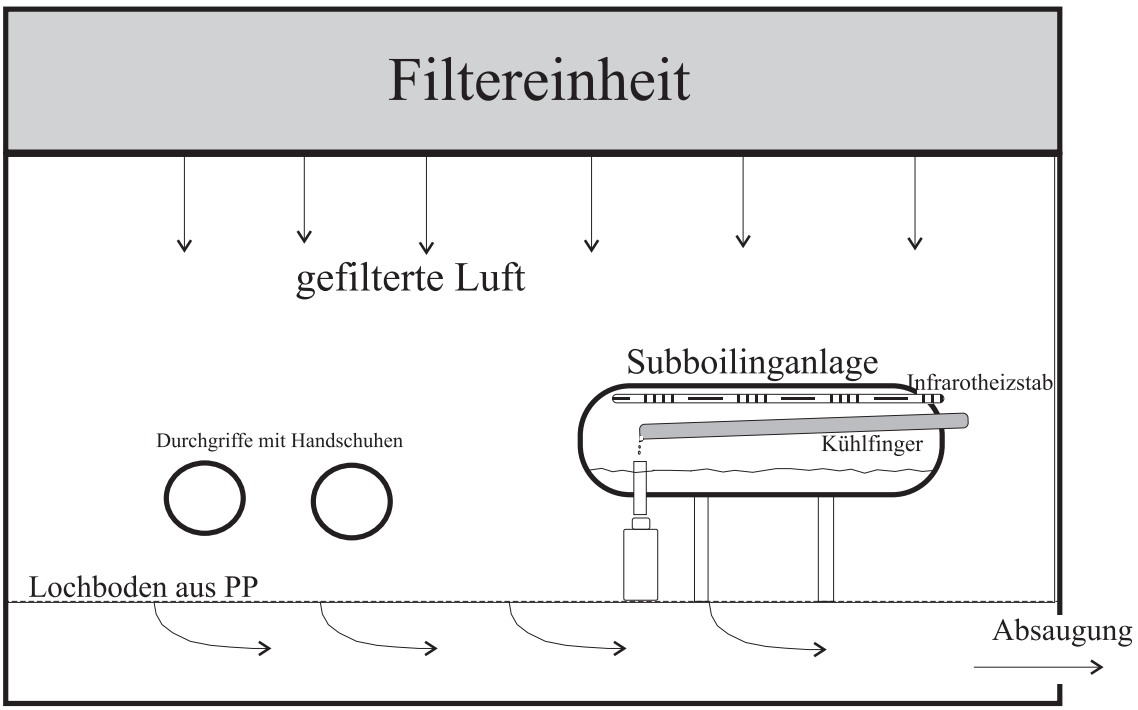

Abbildung 6.2: *Schematische Skizze unserer chemietauglichen Reinbox. Die Vorderseite der Box ist mit einer Plexiglasplatte versehen. Für Manipulationen in der Box sind zwei Handschuhpaare an der Platte angebracht.*

gefilterte Luft strömt von oben in die Box, wird unten aktiv abgesaugt und der Abluft zugeführt, wodurch ein Arbeiten mit größeren Mengen Lösungsmittel oder Säure auch in staubfreier Umgebung möglich ist. Knapp überhalb der Absaugung befindet sich eine kleine Öffnung. Dadurch kann die Box mit leichtem Unterdruck betrieben werden, ohne daß eine Kontaminierung der Box durch die von außen einströmende staubhaltige Luft stattfindet. Bei Inbetriebnahme der Reinbox wurde eine Staubklasse von 1 bestimmt. Es ist jedoch wahrscheinlich, daß diese enorm gute Staubklasse während der späteren Versuche nicht mehr erreicht werden konnte und etwas höher lag.
Zur Herstellung von hochreinem Wasser und sauberen Säuren wird in der Reinbox eine Subboiling-Anlage betrieben. Dabei werden Flüssigkeiten destilliert, ohne daß ein Sieden und damit ein Austrag von Aerosolen stattfindet, der die Reinigungseffizienz der Destillation beeinträchtigt. Die Reagenzien sind u.a. nötig, um die Bestrahlungsgefäße und andere Gegenstände der Probenvorbereitung zu reinigen. Soweit wie möglich wurden diese Gegenstände aus PFA oder Quarz gewählt, die wegen ihrer Oberflächenqualität und Reinheit gut für die Spurenanalytik geeignet sind [Toe94].

6.3.4 Bestrahlung

Weitere wichtige Faktoren für die Sensitivität der NAA sind die Bestrahlungszeit, die Probenmasse und der Neutronenfluß, die möglichst groß sein sollen, wie leicht aus der Formel 6.3 zu ersehen ist. Im folgenden werden die Bestrahlungspositionen des Forschungs-

reaktors in Garching (FRM I) und die damit verbundenen Möglichkeiten beschrieben, wobei vor allem die für diese Arbeit wichtige Flüssigkeitsbestrahlungsvorrichtung ausführlich beschrieben wird.

Rohrpost

Mit der Rohrpost ist die Bestrahlung von Probenmassen in der Größenordnung von 1 g für maximal 1 - 2 h bei einem thermischen Fluß von ca. $1 \cdot 10^{13} cm^{-2} s^{-1}$ möglich. Die Proben werden dazu in Polyethylen (PE) verschweißt und in ein sogenanntes Rabbit aus PE gesteckt, welches über Druckluft zum Reaktorkern und wieder zurück geschossen werden kann. Ein Vorteil dieser Position ist die kurze, im Minutenbereich liegende Abklingzeit, nach der die Proben wieder verfügbar sind.

Flüssigkeitsbestrahlungsvorrichtung

Eine Besonderheit des FRM I ist die Bestrahlungsvorrichtung für Flüssigkeiten, die für Probenvolumina von 250 ml konzipiert ist [Kim80]. Die vor dieser Dissertation nur für Wasser oder schwache Säuren verwendete Position wurde im Rahmen dieser Arbeit nach einigen Vorversuchen erstmals auch für die Bestrahlung von Lösungsmitteln genützt. Die Bestrahlungszeiten betrugen dabei bis zu 120 h, aber auch längere Bestrahlungen sind prinzipiell möglich. Ein Vergleich mit den Daten für die Rohrpost macht deutlich, um wieviel höher das bei dieser Position erreichbare Aktivierungspotential liegt. In Abb. 6.3 ist eine Skizze der Bestrahlungsvorrichtung dargestellt. Für die Bestrahlung wird ein Kolben mit der Probenflüssigkeit in einen Köcher eingesetzt, der im wesentlichen aus Aluminium gefertigt ist. Über den langen Hals des Kolbens ist eine Kappe gestülpt, die ein Eindringen von Poolwasser des Reaktors in die Probe verhindert. Andererseits kann das bei der Bestrahlung durch Radiolyse in der Probe entstehende Gas bei dieser taucherglockenähnlichen Anordnung entweichen, und es findet kein Druckaufbau statt, der die Bestrahlungszeit begrenzen würde.
Die Flußbestimmung für diese Bestrahlungsposition kann über Flußdrähte erfolgen, die mittels einer Quarzkapillare in der Mitte des Kolbens eingebracht werden. Um die Genauigkeit dieser Methode zu testen, wurde der Kolben bei einer Bestrahlung mit Zr-Lösung gefüllt, und die Kapillare mit einem Zr- und Au-Draht versehen. Zirkon eignet sich besonders für die kritische Bestimmung des Flußverhältnisses, da es zwei aktivierbare Isotope mit stark unterschiedlichem Verhältnis σ_{th}/σ_{epi} besitzt. Die Energien der γ-Linien beider Zerfälle liegen eng beieinander, so daß ein Fehler in der Detektoreffizienz keine wesentliche Rolle spielt. In Tab. 6.1 sind die Ergebnisse aufgeführt. Man sieht die gute Übereinstimmung der Werte innerhalb der Fehler. Trotz der voluminösen Probe weicht der über die Flußdrähte bestimmte Fluß weniger als 10% von dem tatsächlichen Fluß in der gesamten Probe ab. Da aber die Genauigkeit bei den Analysen schon angesichts der fluktuierenden Blindwerte nicht im Vordergrund stand, wurde der Fluß nur ein- bis zweimal während einer Reaktorperiode gemessen. Er lag bei $5\text{-}8 \cdot 10^{12} cm^{-2} s^{-1}$.

Es werden Kolben aus Quarz verwendet, dessen Matrixaktivität mit einer Halbwertszeit von 2.6 h relativ schnell zerfällt und die Handhabung des Kolbens nach ca. 2 Tagen Ab-

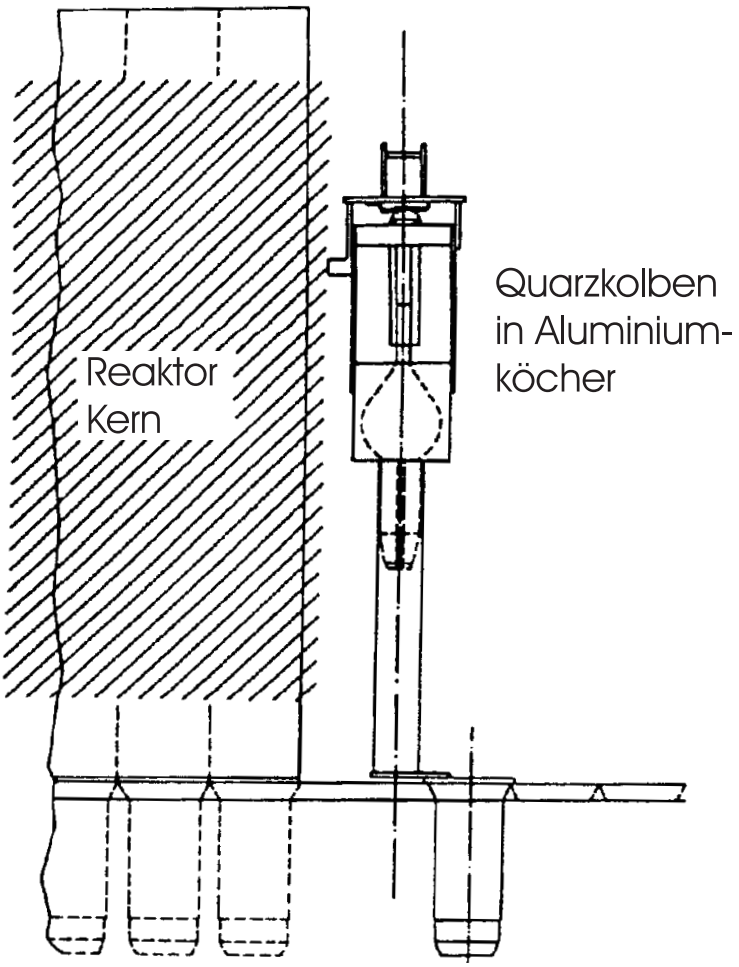

Abbildung 6.3: *Schematische Skizze der Flüssigkeitsbestrahlungsvorrichtung am FRM I. Ein 250 ml Quarzkolben wird in einem Köcher aus Aluminium am Kernrand positioniert. Über den Hals des Kolbens ist eine Kappe gestülpt, die das Eindringen von Poolwasser in die Probe verhindert, aber durch Radiolyse entstehendes Gas entweichen läßt. Entnommen aus [Kim80].*

Tabelle 6.1: *Bestimmung des thermischen Neutronenflusses und des Flußverhältnisses für Flüssigbestrahlungskolben aus Quarz. Die Übereinstimmung zeigt, daß die Größen über Flußdrähte, die mittels einer Kapillare zentrisch eingebracht werden, ohne größeren systematischen Fehler gemessen werden können.*

Standard	Φ_{th} $[\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}]$	Flußverhältnis
Zr-Lösung	$(5.5 \pm 0.3) \cdot 10^{12}$	0.010 ± 0.001
Zr-Draht	$(5.2 \pm 0.3) \cdot 10^{12}$	0.011 ± 0.001
Au-Draht	$(5.5 \pm 0.5) \cdot 10^{12}$	-

klingzeit erlaubt. Außerdem steht mit synthetischem Quarz ein Material zur Verfügung, das äußerst rein hergestellt werden kann. In Tab. 6.2 sind gemessene Verunreinigungskon-

Tabelle 6.2: *Verunreinigungskonzentrationen in [g/g] in zwei der für die Flüssigkeitsbestrahlungen verwendeten Quarzkolben aus Suprasil.*

Element	Konzentr.	Konzentr.	Element	Konzentr.	Konzentr.
Ag	$3{\cdot}10^{-10}$	—	Mo	$4{\cdot}10^{-9}$	$6{\cdot}10^{-9}$
Au	$7{\cdot}10^{-12}$	$3{\cdot}10^{-11}$	Na	$6{\cdot}10^{-8}$	$2{\cdot}10^{-7}$
Ce	$2{\cdot}10^{-9}$	$2{\cdot}10^{-8}$	Sb	$8{\cdot}10^{-11}$	$1{\cdot}10^{-10}$
Cr	$3{\cdot}10^{-10}$	$3{\cdot}10^{-9}$	Sm	$3{\cdot}10^{-11}$	$9{\cdot}10^{-11}$
Fe	$6{\cdot}10^{-8}$	$1{\cdot}10^{-7}$	Th	$2{\cdot}10^{-11}$	$6{\cdot}10^{-11}$
Ir	$1{\cdot}10^{-10}$	$1{\cdot}10^{-9}$	W	$8{\cdot}10^{-11}$	$7{\cdot}10^{-11}$
K	$4{\cdot}10^{-8}$	$7{\cdot}10^{-7}$	Zn	$9{\cdot}10^{-9}$	$9{\cdot}10^{-8}$
La	$2{\cdot}10^{-10}$	$7{\cdot}10^{-10}$	–	—	—

zentrationen in zwei der verwendeten Kolben aus synthetischem Quarz der Firma Heraeus aufgeführt. Die für synthetisches Quarz zum Teil relativ hohen Werte [Toe94, Kim87] lassen auf eine Kontamination während des Herstellungsprozesses der Kolben oder auf minderwertiges Ausgangsmaterial schließen.
Die zahlreichen im Rahmen der Doktorarbeit durchgeführten Analysen mit unterschiedlichen Flüssigkeiten, die für viele Elemente relativ ähnliche Elementkonzentrationen aufweisen, lassen die Vermutung zu, daß die Ergebnisse größtenteils Blindwerte sind. Neben dem Eintrag von Staub bei der Probenvorbereitung könnten diese Blindwerte auch durch den Eintrag von Verunreinigungen aus den Bestrahlungskolben verursacht worden sein.
Einen Hinweis zu dieser Fragestellung erhält man aus dem Abtrag der inneren Oberflächen der Kolben, die nach den ersten Analysen durchgeführt wurden. Mit einer Mischung von 48%iger Flußsäure und 65%iger HNO_3 wurden die Kolben nach einer Bestrahlung für einige Minuten unter ständigem Drehen geätzt, wobei der Abtrag pro Ätzschritt ungefähr 5μm betrug. Die Ergebnisse der insgesamt 5 Ätzschritte sind für einen der in der Regel verwendeten Kolben sind in Tab. 6.3 aufgelistet. Wie man der Tab. 6.3 entnehmen kann, erreicht man für viele Elemente durch die Ätzungen eine deutliche Abnahme der Verunreinigungskonzentrationen in der äußersten Oberflächenschicht der Kolbeninnenseite. Diese Reduktion ist besonders für Ce, La, Sb und Zn deutlich. Die Werte für Na und K hingegen bleiben in den Ätzschritten weitgehend konstant. Werden nach einer weiteren Bestrahlung die Ätzungen wiederholt, erhält man für den ersten Ätzschritt ungefähr die Werte, die im letzten Ätzschritt der ersten Ätzreihe gefunden wurden. Dies läßt darauf schließen, daß die Kontamination der Oberfläche nicht bei der Prozedur vor oder nach jeder Bestrahlung stattfindet, sondern wahrscheinlich bei der Herstellung verursacht wurde. Schätzt man die Diffusionskonstante von Elementen in Quarz oder die Reichweite von Nukliden nach einer Reaktion mit schnellen Neutronen ab, kommt man auch bei konservativen Abschätzungen zu dem Ergebnis, daß die Verunreinigungskonzentrationen der ersten 5μm der inneren Kolbenoberfläche für eine eventuelle Kontamination der Probe während der Bestrahlungs- und Abklingzeit verantwortlich sein muß. Dementsprechend müßte man eine deutliche Abnahme von z.B. Ce-, La- oder Zn-Werten in den nach den

Tabelle 6.3: *Elementgehalt der verschiedenen abgeätzten Schichten eines Bestrahlungskolbens in g. Bei jedem Schritt wurden ungefähr 5µm Quarz abgetragen.*

Ätzschritt	1	2	3	4	5
Au	$5{\cdot}10^{-10}$	$2{\cdot}10^{-10}$	$6{\cdot}10^{-11}$	$3{\cdot}10^{-11}$	$2{\cdot}10^{-11}$
Ce	$3{\cdot}10^{-7}$	$3{\cdot}10^{-8}$	$3{\cdot}10^{-9}$	$8{\cdot}10^{-10}$	—
Cr	$3{\cdot}10^{-9}$	—	—	—	—
Fe	$3{\cdot}10^{-6}$	$7{\cdot}10^{-7}$	$3{\cdot}10^{-7}$	$\leq 7{\cdot}10^{-8}$	—
Ir	$2{\cdot}10^{-9}$	$2{\cdot}10^{-10}$	$\leq 8{\cdot}10^{-11}$	$\leq 5{\cdot}10^{-11}$	—
K	$4{\cdot}10^{-7}$	$2{\cdot}10^{-7}$	$1{\cdot}10^{-7}$	$9{\cdot}10^{-8}$	$8{\cdot}10^{-8}$
La	$2{\cdot}10^{-9}$	$3{\cdot}10^{-10}$	$5{\cdot}10^{-11}$	$1{\cdot}10^{-11}$	—
Na	$2{\cdot}10^{-7}$	$8{\cdot}10^{-8}$	$8{\cdot}10^{-8}$	$8{\cdot}10^{-8}$	$9{\cdot}10^{-8}$
Sb	$8{\cdot}10^{-9}$	$1{\cdot}10^{-9}$	$2{\cdot}10^{-10}$	$7{\cdot}10^{-11}$	$4{\cdot}10^{-11}$
Sm	$2{\cdot}10^{-10}$	$3{\cdot}10^{-11}$	$\leq 2{\cdot}10^{-11}$	$\leq 7{\cdot}10^{-12}$	—
W	$4{\cdot}10^{-9}$	$3{\cdot}10^{-10}$	$\leq 2{\cdot}10^{-10}$	$\leq 1{\cdot}10^{-10}$	—
Zn	$6{\cdot}10^{-6}$	$7{\cdot}10^{-7}$	$8{\cdot}10^{-8}$	$3{\cdot}10^{-8}$	—

Ätzungen bestrahlten Proben sehen. Dies ist jedoch nur teilweise der Fall. Da allerdings vor und nach der Ätzung verschiedene Proben analysiert wurden, und höhere Werte für Ce, La und Zn in einigen Proben nach der Ätzung durchaus von Verunreinigungen dieser Proben stammen können, ist eine endgültige Aussage nicht möglich. Einige der Daten deuten aber daraufhin, daß zumindest für Ce und Zn Effekte zu sehen sind. Eine systematischere Untersuchung dieser Problemstellung wurde gegen Ende der Doktorarbeit durchgeführt; sie wird in Kap. 9 vorgestellt.
Um eine Vorstellung über die wahrscheinlichen Blindwerte und damit über die bei den Kolbenbestrahlungen mindestens erreichbare Sensitivität zu geben, sind abschließend in Tab. 6.4 die Bereiche der Elementkonzentrationen aufgelistet, die bei den drei reinsten Proben gemessen wurden. Es wird ausdrücklich darauf hingewiesen, daß es sich nicht um Blindwerte handeln muß, und daß die Blindwerte nicht nur von Kolben verursacht werden können.

Klappzelle

Als letzte Bestrahlungsposition wird kurz die Klappzellenvorrichtung beschrieben. Bei einem Fluß von ca. $2 \cdot 10^{13}\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$ können Proben sehr lange bestrahlt werden. Der Innenraum einer Klappzelle mißt ca. $120mm \times 35mm \times 18mm$. Normalerweise werden bis zu drei in Quarzröhrchen eingeschmolzene Proben bestrahlt, die wiederum in Aluminiumröhrchen verpackt werden. Um neben der Bestrahlung von 250 ml Flüssigkeit auch kleinere Volumina für lange Zeit bestrahlen zu können, wurden Miniaturkolben aus synthetischem Quarz für Probenmengen von 10 ml konzipiert, die in die Klappzelle eingesetzt werden können. Eine schematische Skizze ist in Abb. 6.4 dargestellt. Wie bei den großen Kolben verhindert das Taucherglockenprinzip einen durch die Radiolyse verursachten Druckauf-

Tabelle 6.4: *Bereich der gemessenen Werte bzw. Obergrenzen für Elementkonzentrationen in den auf das jeweilige Element bezogen drei reinsten Proben. Diese Bereiche sind daher als Obergrenze für die Blindwerte der Analysen anzusehen, die mit den in der Regel verwendeten Bestrahlungskolben durchgeführt worden sind.*

Element	Konzentration [g/g]	Element	Konzentration [g/g]
Ag	$\leq 3 - 4{\cdot}10^{-13}$	La	$6 - 10{\cdot}10^{-15}$
Au	$7 - 30{\cdot}10^{-16}$	Mo	$\leq 4 - 5{\cdot}10^{-13}$
Ca	$\leq 1 - 7{\cdot}10^{-10}$	Na	$1 - 30{\cdot}10^{-12}$
Ce	$\leq 1 - 3{\cdot}10^{-13}$	Sb	$2 - 8{\cdot}10^{-14}$
Co	$2 - 10{\cdot}10^{-14}$	Sm	$6 - 30{\cdot}10^{-15}$
Cr	$5 - 40{\cdot}10^{-13}$	W	$2- \leq 6{\cdot}10^{-14}$
K	$3 - 20{\cdot}10^{-12}$	Zn	$3 - 30{\cdot}10^{-12}$

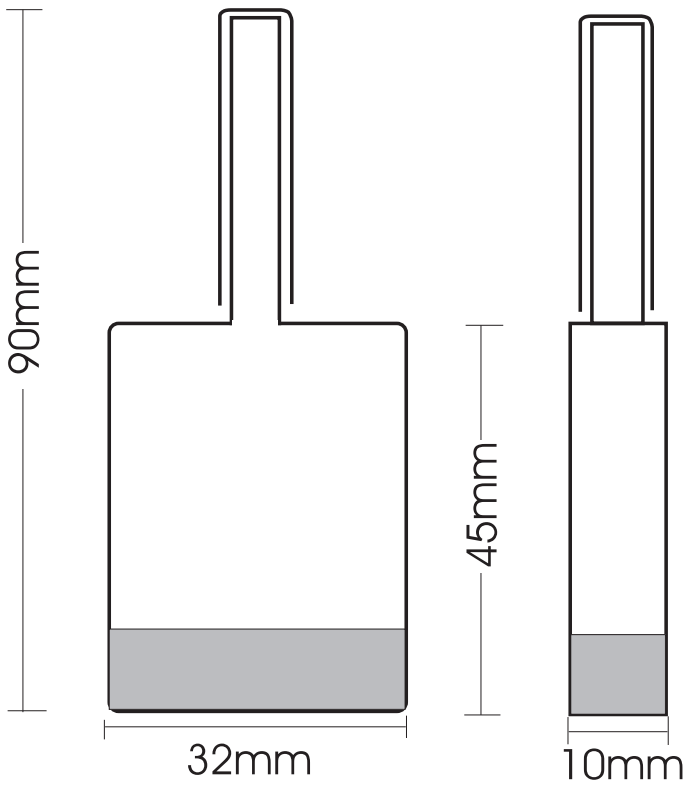

Abbildung 6.4: *Schematische Skizze von Miniaturkolben aus synthetischem Quarz, die in die Klappzellen eingeladen werden können und wie die 250 ml Kolben für lange Bestrahlungen von Flüssigkeiten geeignet sind.*

bau. Mit den Miniaturkolben wurde ein große Probenkapazität für kleine Probenmengen geschaffen, während die große Flüssigkeitsbestrahlungsposition in der Regel nur einmal pro Woche benützt werden kann. Kleine Probenmengen sind zum Beispiel auch dann von Vorteil, wenn die Probe vor der Bestrahlung aufgeschlossen wird und nur der aufgelöste Rückstand bestrahlt wird.

6.3.5 Probenpräparation nach der Bestrahlung

Ein weiterer wichtiger Faktor für die Sensitivität der NAA ist die Probenbehandlung nach der Bestrahlung. Für viele Proben beschränkt sich dieser Schritt auf das Umpacken der Proben, weil die gute Energieauflösung der Germanium-Detektoren eine Multielementanalyse auch ohne weitere Probenpräparation zuläßt. Diese Form der NAA wird instrumentelle NAA (INAA) genannt. Wenn jedoch der Compton-Untergrund der interferierenden Nuklide die Sensitivität für die gesuchten Elemente begrenzt, oder Koinzidenztechniken mit β's oder Konversionselektronen zur Verbesserung der Nachweisgrenze verwendet werden müssen, ist die Anwendung radiochemischer Methoden notwendig. Diese NAA wird auch als radiochemische NAA (RNAA) bezeichnet. Im folgenden werden kurz die Verfahren beschrieben, die bei den Analysen relativ häufig eingesetzt wurden.

Aufschlußverfahren und Extraktion

Für den Aufschluß organischer Proben wurde in der Regel der druckfreie Naßaufschluß mit Schwefel- und Salpetersäure gewählt [Boc72, Baj83], der für Probenmengen bis zu einigen Gramm geeignet ist. Bei diesem Verfahren wird die Probe in einigen ml 98%iger Schwefelsäure langsam erhitzt, wobei die organische Matrix bis auf den Kohlenstoff zerstört wird. Bei einer Temperatur von ca. 250°C wird tropfenweise rauchende Salpetersäure zugegeben. Durch die weit überhalb des Siedepunktes der Salpetersäure liegende Temperatur erreicht man eine wesentliche höhere Oxidationswirkung der Salpetersäure, die zur völligen Entfernung des Kohlenstoffes führt. Allerdings ist darauf zu achten, daß die Temperatur durch die zugegebene Salpetersäure nicht zu stark absinkt und die Wirkung beeinträchtigt. Vor der erneuten Zugabe ist stets das Abdampfen der alten Salpetersäure und das erneute Aufheizen der Probe abzuwarten. Die Schwefelsäure dampft ebenfalls etwas ab, kondensiert aber wegen der deutlich höheren Siedetemperatur bei 338°C wieder im oberen Teil des in der Regel verwendeten Rundkolbens und wäscht dadurch auch kontinuierlich die bei der HNO_3-Zugabe weggespritzten Probenteile zurück in die Probe am Kolbenboden. Wenn sich eine klare Flüssigkeit im Kolben befindet, wird die Schwefelsäure bei einer höheren Temperatur abgedampft. Der verbleibende anorganische Rückstand wurde in der Regel mit 7 molarer Salpetersäure für weitere Schritte aufgenommen. Neben der Zerstörung der organischen Matrix erfolgt durch den Naßaufschluß auch eine trennende Wirkung für das in organischen Proben oft interferierende Brom.

Will man größere Mengen organischer Flüssigkeiten von metallischen Spuren trennen, kommt der Naßaufschluß vor allem aus Sicherheitsgründen nicht in Frage. Hier bietet sich die Extraktion mit Säure an. Viele normalerweise in ionischer Form vorliegende Elemente können durch die höhere Löslichkeit in der polaren Säure aus der in der Regel schwach bis unpolaren organischen Phase entfernt werden. Allerdings ist die Effizienz dieser Methode im Einzelfall für jedes Element genau zu prüfen, da auch metallorganische Komplexe auftreten können, die relativ stabil sind [Sch96]. Die Verwendung von Säure statt Wasser erhöht die Löslichkeit für einige Elemente. Eine genauere Beschreibung der Säureextraktion wird in Kap. 8.1.2 gegeben.

Trennverfahren

Um ^{239}Np und ^{233}Pa von interferierenden Nuklide abzutrennen, wurde in der Regel die Extraktion einer salpetersauren Lösung mit tri-Buthylphosphat (TBP) angewendet. Dabei nützt man die unterschiedliche Löslichkeit von Elementen in organischen Komplexbildnern aus, die wegen der Abhängigkeit vom pH-Wert teilweise noch von der einen Seite auf die andere verschoben werden kann. TBP ist eine gut untersuchte Organophosphorverbindung, für die in der Literatur das Löslichkeitsverhältnis $D = \frac{c_{org}}{c_{aqu}}$ bei Salpeter- und Salzsäure für fast alle Elemente in Abhängigkeit von der Molarität angegeben ist [Ish60a, Ish60b]. Das Löslichkeitsverhältnis ist durch das Verhältnis der Konzentration des Elementes in organischer zu der in wäßriger Phase definiert und steigt bei gegebener Molarität mit der Valenz des Ions, so daß sich vor allem Alkalimetalle kaum in die organische Phase transferieren lassen. Bei der in der Regel gewählten Molarität der salpetersauren Lösung von 7 wird bei der Extraktion mit TBP von den interessierenden natürlichen Radionukliden neben Np und Pa auch Lu überwiegend in die organische Phase gebracht. Während Pa und Lu fast zu 100% transferiert werden, ergibt sich für Np nur ein Löslichkeitsverhältnis D von 3. Diese Zahl könnte durch Oxidation des Np deutlich gesteigert werden, aber für die durchgeführten Analysen wurde auf eine Optimierung dieses Punktes verzichtet. K, Rb, La, Cd und In bleiben nach der Extraktion zu einem hohen Prozentsatz in der wäßrigen Phase. Bei den meisten Proben findet sich nur Au als stärker interferierendes Nuklid im TBP, während außer dem Alkalimetall Na noch viele weitere interferierende Elemente, wie Cr, La, Zn, Co oder W in der wäßrigen Phase bleiben und dadurch die Sensitivität für Np, Pa und Lu deutlich erhöht wird.

Während interferierendes ^{24}Na für den Nachweis von Np, Pa und Lu durch eine TBP-Extraktion abgetrennt werden kann, ist die Sensitivität für Kalium mit dieser Methode nicht zu verbessern. Kalium und Natrium kommen relativ häufig in der Umwelt mit vergleichbarer Konzentration vor, aber Na besitzt eine wesentlich bessere Aktivierbarkeit und mit 15 h eine etwas längere Halbwertszeit als K mit 12.36 h, so daß auch kein Zerfall des Na abgewartet werden kann. Das oft den Untergrund dominierende Na mit seinen bis 2.754 keV reichenden γ's läßt sich allerdings durch hydratisiertes Antimon(V)oxid HAP aus 6-12 molarer HCl abtrennen [Gir68], wobei eine Vielzahl von Elementen mit quantitativer Ausbeute in der Probe bleiben. Eine solche HAP-Extraktion wurde bei einigen Proben durchgeführt. Dazu wurde die in HCl vorliegende Probe durch eine ca. 3 cm hohe mit HAP gefüllte Säule geschickt, deren Durchmesser ungefähr 0.5 cm betrug. Die Elutionsrate wurde auf ca. 1 ml/min eingestellt.

6.3.6 Meßtechnik

Der letzte Faktor, der für die Sensitivität der NAA wichtig ist, ist die Messung der Proben. Ganz allgemein muß hier das Signal/Untergrund-Verhältnis optimiert werden. Dies erreicht man durch auf das interessierende Nuklid abgestimmte Abkling- und Meßzeiten, hohe Effizienz der Detektoren und (Anti-)Koinzidenztechniken. Auf den ersten Punkt wird nicht näher eingegangen, einige Ausführungen dazu findet man in [Gol93]. Die beiden anderen Punkte werden in den nächsten Abschnitten behandelt.

Aufbau der Meßplätze

Für die Messung der Proben standen ein großer Germanium-Detektor mit einer Effizienz von 150% und ein großflächiger LOAx-Germanium-Detektor zur Verfügung, wobei beide Detektoren in low-background Ausführung gefertigt sind. Der große Germaniumdetektor eignet sich vor allem für den Nachweis hochenergetischer γ-Linien, wie zum Beispiel die 1524.6 keV-Linie beim Zerfall von ^{42}K, besitzt jedoch noch bei Energien von etwa 100 keV eine etwas bessere Effizienz als der LOAx-Germaniumdetektor, der durch seinen großflächigen, aber relativ dünnen Kristall besonders für den Nachweis niederenergetischer γ's geeignet ist. Die Auflösung des großen Detektors liegt bei 100 keV mit ca. 1 keV allerdings etwas unter der des LOAx-Germaniumdetektors, die ca. 800 eV beträgt. Beide Detektoren sind mit 10 cm Blei umgeben. Eine innere Schicht von 5 mm Kupfer verhindert bei aktiven Proben eine zu hohe Zählrate durch Fluoreszenz-Röntgenquaten aus dem Blei. Durch die fehlende Abschirmung gegen kosmische Höhenstrahlung und Radon im Innenraum der Meßplätze beträgt der Untergrund für beide Detektoren zwei bis fünf Ereignisse/sec im Energiebereich von 50 bis 2000 keV. Um den Beitrag durch Radon zu verringern wurde teilweise der aus den Dewars der Detektoren abdampfende Stickstoff in die Abschirmung geleitet, wodurch die Untergrundrate allerdings nur geringfügig reduziert werden konnte. Für einige Proben war trotz der starken Aktivierung der externe Untergrund der dominante Anteil und damit der limitierende Faktor für die Sensitivität.

Koinzidenztechniken

Die Schaltung von (Anti-)Koinzidenzen ist eine weitere Möglichkeit, das Signal/Untergrund-Verhältnis zu verbessern. Übliche Koinzidenzen sind γ-γ-Koinzidenzen, β-γ-Koinzidenzen oder Antikoinzidenzen mit einem Anticomptonsystem. Bei den γ-γ-Koinzidenzen kann allerdings das Problem bestehen, daß das theoretische Signal/Untergrund-Verhältnis zwar enorm gesteigert wird, aber durch die wesentlich schlechtere Effizienz das erwartete Signal auch bei optimaler Meßzeit in der Größenordnung ein Ereignis oder darunter liegt. Außerdem ist natürlich der Aufwand mit zwei Germanium- Detektoren beträchtlich. Bei den im Kap. 7 beschriebenen Nylonanalysen wird die Anwendung einer solchen Koinzidenz beschrieben, die auch den Vorteil eines nicht notwendigen Probenaufschlusses besitzt.
Für die Szintillatoranalysen kam dagegen in der Regel eine β-γ-Koinzidenz zur Anwendung, die allerdings einen Probenaufschluß verlangt. In Abb. 6.5 ist der Aufbau für diese Koinzidenz schematisch dargestellt. Der Szintillator mit den interessierenden aktivierten Probennukliden befindet sich in einer Dose aus PTFE. Über eine Quarzglasscheibe ist ein Photovervielfacher an die Dose angekoppelt. Durch das weiße PTFE ist die Lichtausbeute optimiert und bei sorgfältiger Abschirmung der Photovervielfacherbase gegen elektronische Störungen ist eine Energieschwelle für das β-Signal von ca. 10 keV erreichbar. Da die Endpunkte der meisten β- Zerfälle deutlich höher sind, liegt die Effizienz der Koinzidenz nur unwesentlich unter der des reinen γ-Nachweises mit dem Germaniumdetektor. Allerdings nützt diese Koinzidenz wenig, um internen Untergrund durch interferierende Nuklide signifikant zu reduzieren. Dies würde deutlich verschiedene Endpunkte der Nuklide voraussetzen. Der externe Untergrund kann jedoch bei beiden Meßplätzen um mehr

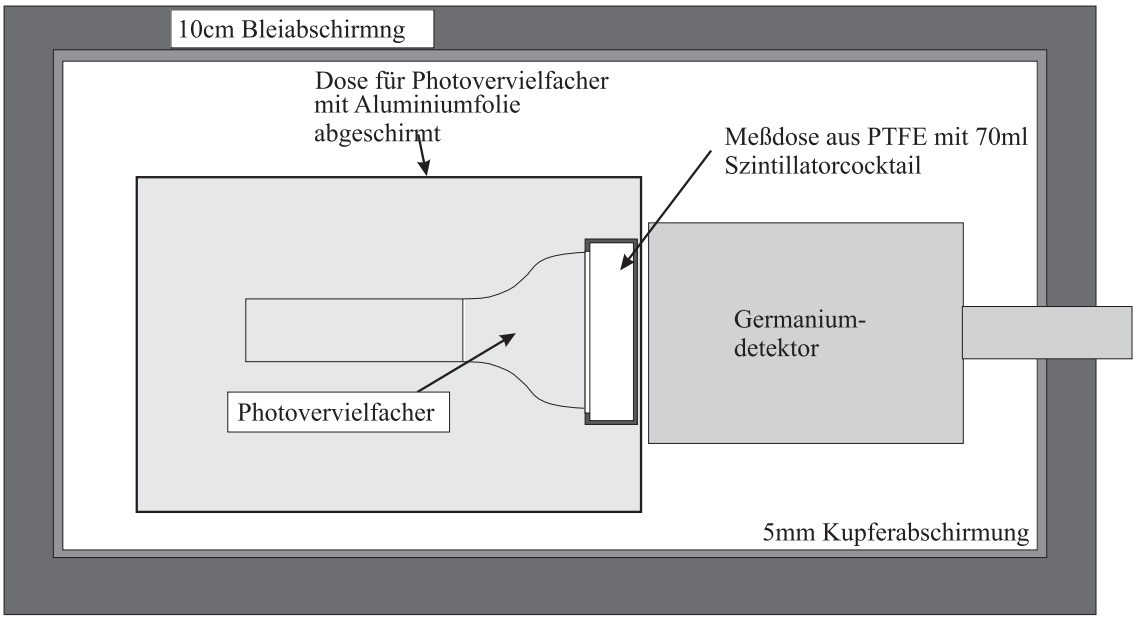

Abbildung 6.5: *Aufbau der Meßplätze für Koinzidenzmessungen.*

als einen Faktor 10 verringert werden, wenn ein Photovervielfacher in low-background Ausführung verwendet wird.

ISAN für den sensitiven Nachweis von ^{239}Np

Eine besonders effektive verzögerte Koinzidenz kann für den Nachweis von ^{239}Np eingesetzt werden, da beim Zerfall dieses Nuklids u.a. ein isomerer Zustand von ^{239}Pu bevölkert wird. Sie wurde von R.Raghavan vorgeschlagen [Rag88] und in Verallgemeinerung für andere Nuklide mit ähnlicher Signatur ISAN (**I**somer **S**pectroscopy of **A**ctivated **N**uclei) genannt. Abb. 6.6 zeigt den relevanten Ausschnitt des Zerfallsschemas von ^{239}Np. Da neben γ's mit relativ hoher Wahrscheinlichkeit Konversionselektronen emittiert werden, bietet sich neben einer verzögerten β-γ-Koinzidenz die Möglichkeit, eine verzögerte β-e^-- oder sogar eine verzögerte β-e^--γ- Koinzidenz zu schalten. Eine verzögerte β-e^--Koinzidenz ist wegen der hohen Effizienz sehr attraktiv. Die für die Analysen eingesetzten radiochemischen Trennverfahren sind jedoch zu wenig selektiv auf Np, wodurch die interferierenden Nuklide wegen der relativ schlechten Signatur dieser Koinzidenz die Sensitivität wesentlich stärker beeinträchtigen als bei den anderen Koinzidenzen.
Ob eine verzögerte β-e^--γ-Koinzidenz oder eine verzögerte β-γ-Koinzidenz angewendet werden sollte, hängt von dem verwendeten Germanium- Detektor ab. Ist die Zeitauflösung des Germaniumdetektors gut, eignet sich eine verzögerte β-γ-Koinzidenz wegen der besseren Effizienz, da ein Konversionselektron nur mit einer Wahrscheinlichkeit von ca. 65% zusätzlich emittiert wird. Gute Zeitauflösung besitzen jedoch oft kleine Detektoren mit schlechter Effizienz. Der große Germanium- Detektor und der LOAx-Germaniumdetektor besitzen eine sehr gute Effizienz im Bereich von 100 keV, allerdings ist die Zeitauflösung gerade bei diesen niedrigen Energien so schlecht, daß eine verzögerte β-γ-Koinzidenz kei-

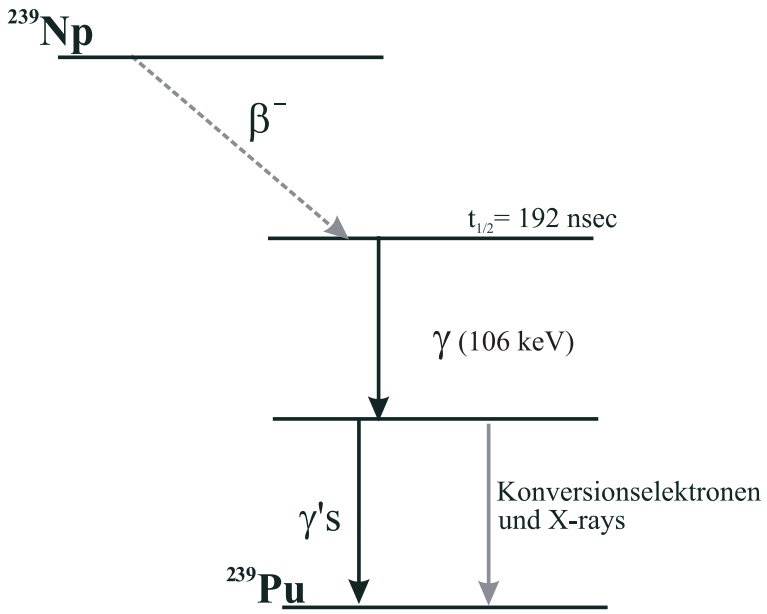

Abbildung 6.6: *Termschema des ^{239}Np-Zerfalls. Bei ca. 36% der β-Zerfälle wird ein isomerer Zustand mit $T_{1/2} = 192$ nsec bevölkert, der sich über Emission von γ's und innerer Konversion abregt.*

ne besonders gute Untergrundsunterdrückung liefert. Bei einer Halbwertszeit des isomeren Zustandes von 192 nsec sollte die FWHM und auch die FWTM deutlich darunter liegen. In Abb. 6.7 sind die gemessenen Zeitauflösungen der beiden Detektoren in verschiedenen Energiebereichen dargestellt. Man sieht deutlich, daß in ein um ca. 192nsec verzögertes Fenster für die verzögerten Ereignisse noch ein relativ hoher Anteil prompter Ereignisse fällt. Durch die Schaltung einer verzögerten β-e^--γ-Koinzidenz kann dieses Problem durch die gute Zeitauflösung des Flüssigszintillators beseitigt werden, weil dann das Konversionselektron für die Zeitinformation der verzögerten Ereignisse verwendet werden kann. Das β löst ein verzögertes Fenster von ca. 800 nsec Länge aus. Damit die abfallende Flanke des β-Signals nur für große Pulse ein Konversionselektron simulieren kann, wird die Verzögerungszeit auf ca. 150 nsec eingestellt. Trifft in dem verzögerten Fenster ein weiterer Puls aus dem Szintillator ein, wird ein Fenster für den Germaniumdetektor aufgemacht. Die Länge dieses Fensters wird abhängig von der Zeitauflösung des verwendeten Germaniumdetektors zwischen 500 nsec bis 1000 nsec gewählt. Fällt ein Ereignis des Germaniumdetektors in dieses Fenster, werden ein Master-Gate ausgelöst und die Eingangsdiskriminatoren gesperrt, um ein Überschreiben der ADC-Signale durch weitere Ereignisse zu verhindern, die vor dem Auslesen des Ereignisses stattfinden. Fällt kein Ereignis des Germaniumdetektors in das vom verzögerten Szintillatorpuls geöffnete Fenster, werden die ADC-Kanäle des β- und des verzögerten Ereignisses gelöscht, für deren Konversion nicht auf das Master-Gate gewartet wird, um die Szintillatorsignale nicht zu lange verzögern zu müssen. Bei einem typischen Untergrundereignis, das von der elektronischen Schaltung nicht diskriminiert wird, ist die Energie des β's sehr groß. Die lange abfallende Flanke des großen β-Pulses simuliert ein verzögertes Konversionselektron und das zum β simultan emittierte γ fällt wegen der schlechten Zeitauflösung des Germaniumdetektors

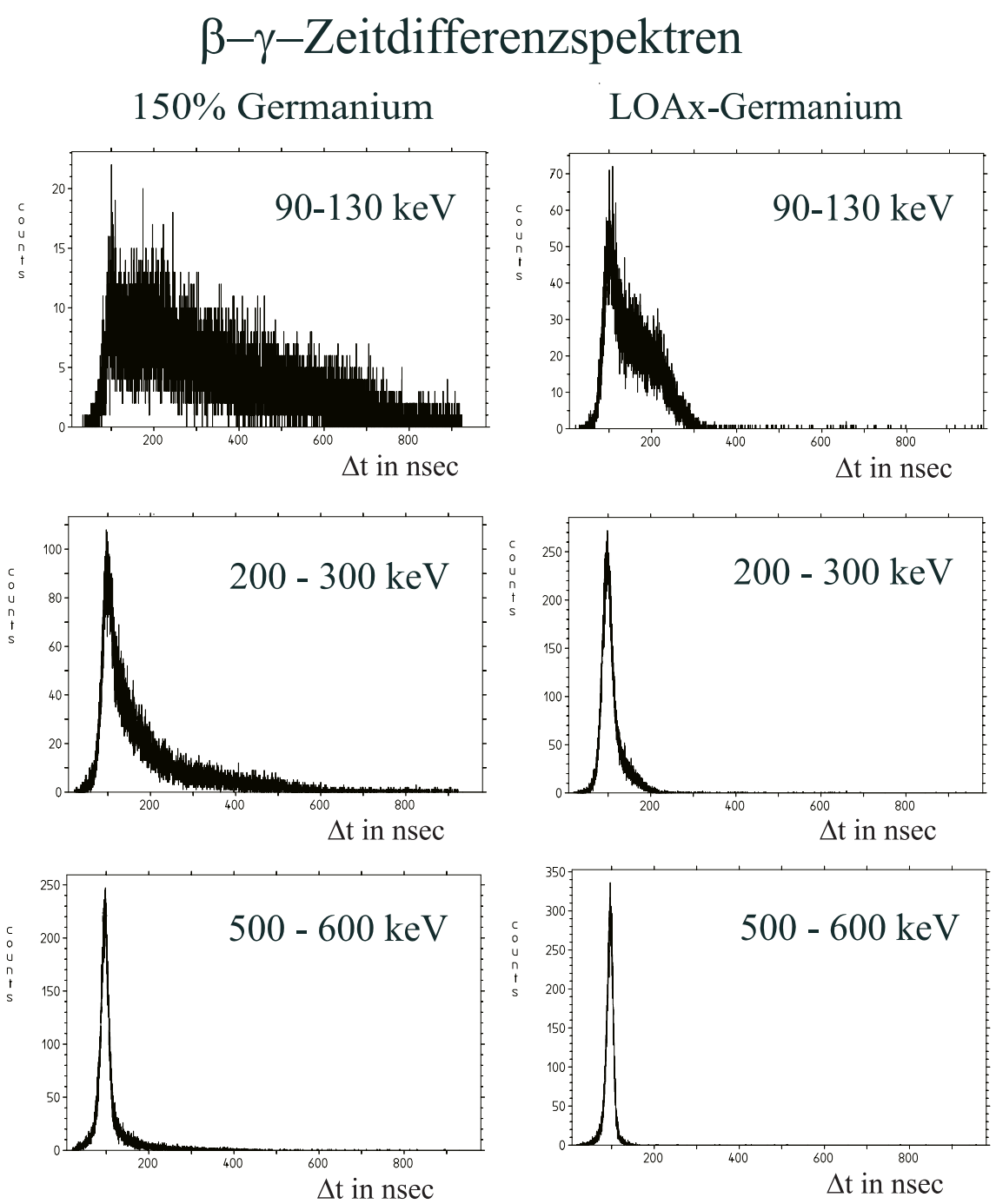

Abbildung 6.7: *Gemessene Zeitauflösung eines großen Germaniumdetektors (150%) und eines LOAx-Germaniumdetektors mit einem Kristalldurchmesser von ca. 70 mm in verschiedenen Energiebereichen.*

zumindest teilweise in das vom verzögerten Puls geöffnete Fenster. Derartige Ereignisse lassen sich allerdings bei der Datenauswertung durch ein Fenster auf die β-Energie sehr gut unterdrücken, da der relevante Endpunkt des ^{239}Np-Zerfalls knapp über 300 keV liegt und die beschriebenen Untergrundereignisse wesentlich höhere Energien besitzen. Die den

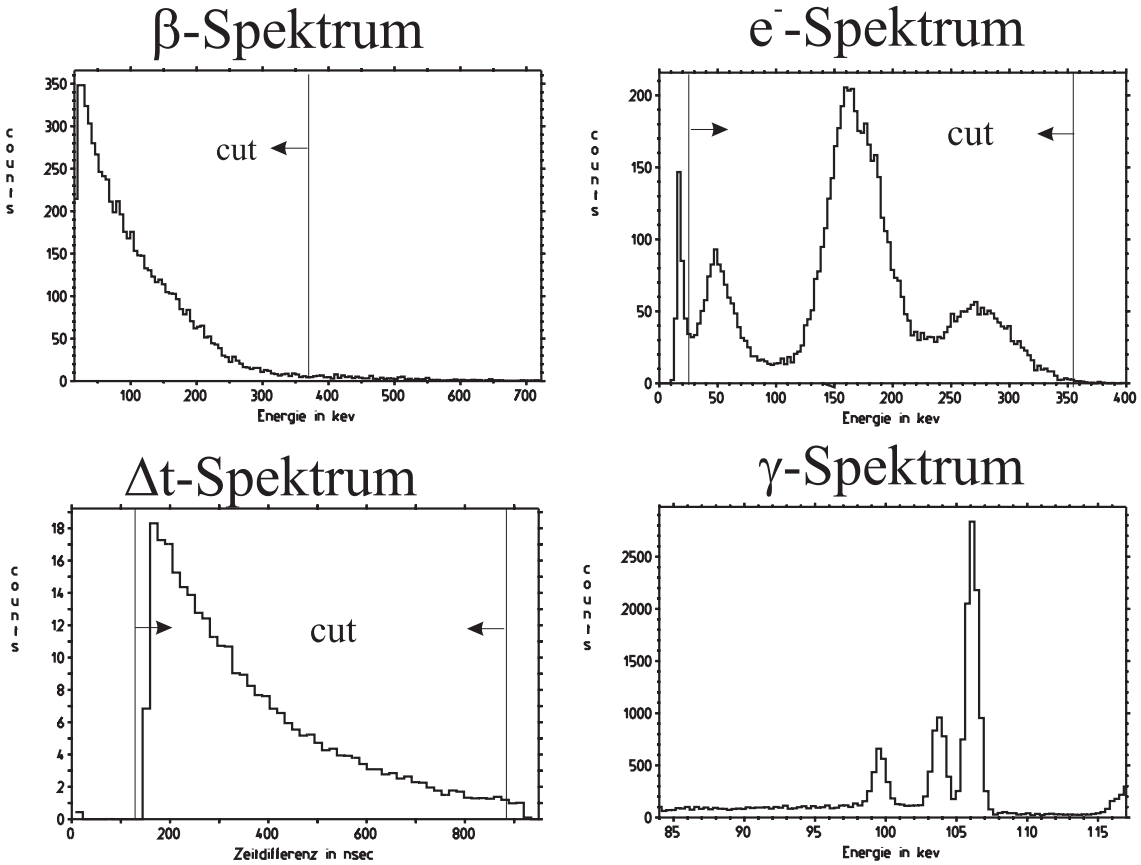

Abbildung 6.8: *Dargestellt sind die verschiedenen Spektren der Parameter des ^{239}Np-Zerfalls, die bei einer verzögerten β-e$^-$-γ-Koinzidenz aufgezeichnet werden. Nach den eingezeichneten Schnitten im β-, Δt- und e$^-$-Spektrum erhält man das endgültige γ-Spektrum, an Hand dem aus der Höhe der 106 keV Linie der Urangehalt der Probe abgeleitet wird.*

verzögerten ^{239}Np-Zerfall charakterisierenden Spektren und die dadurch anzuwendenden Schnitte bei der Datenauswertung sind in Abb. 6.8 dargestellt.

Die Effizienz dieser verzögerten Koinzidenzschaltung ist in Abb. 6.9 veranschaulicht. Das Spektrum nach den Schnitten ist bis auf einen Kanal mit zwei Ereignissen nicht zu sehen. Die Ereignisdichte im Bereich der 106 keV-Linie von ^{239}Np beträgt 0.02 pro Kanal, so daß der Untergrund in diesem Bereich um ca. 10^4 unterdrückt wird. Mit den Effizienzen der Schnitte wird dadurch eine Verbesserung der Nachweisgrenze um ungefähr 60 erreicht, da der Untergrund nur mit der Wurzel in die Berechnung eingeht. Die Bestimmung der Nachweisgrenze bei einem Untergrund von wenigen Ereignissen erfordert allerdings die Verwendung der Poissonstatistik an Stelle der üblicherweise verwendeten Normalverteilung, wobei die Definition aber beibehalten werden kann. Das heißt, man sucht die Signalrate, die nur mit einer vorgegebenen Wahrscheinlichkeit fälschlicherweise als Untergrund identifiziert wird. Die Grenze von Signal zu Untergrund wird wiederum so gewählt, daß Fluktuationen des Untergrundes mit weniger als einer bestimmten Wahrscheinlichkeit fälschlicherweise als Signal identifiziert werden. Für ausführlichere Darstellungen dieser Definition sei auf die Literatur verwiesen. Für die Ableitung der Nachweisgrenzen wurden

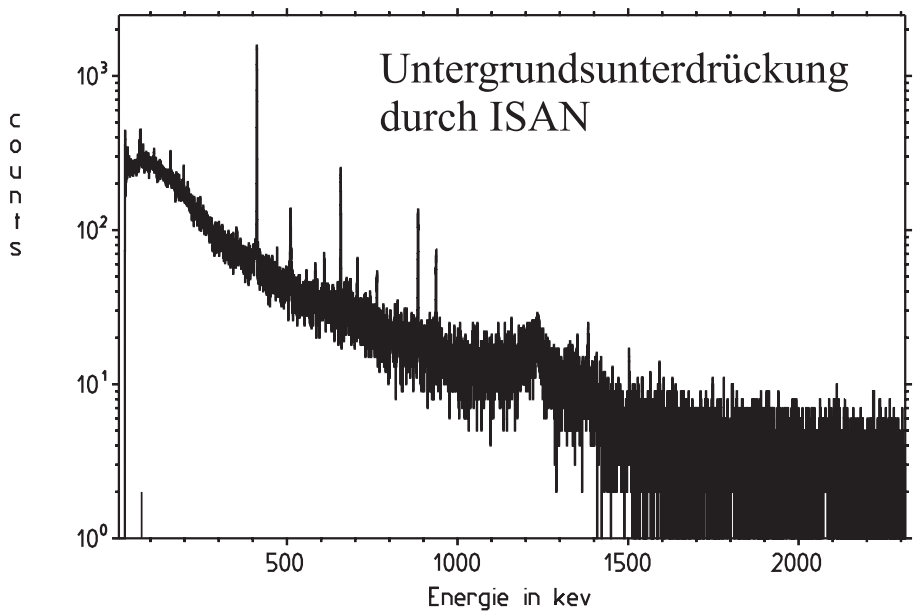

Abbildung 6.9: *Abgebildet ist ein Spektrum, bei dem nur eine β-γ-Koinzidenz angewendet wurde, und ein Spektrum nach Anwendung von ISAN. Wegen der hohen Effizienz dieser Koinzidenztechnik ist von diesem Spektrum nur noch ein Kanal mit zwei Ereignissen zu sehen, während vereinzelte Kanäle mit einem Ereignis wegen der logarithmischen Darstellung nicht zu sehen sind. Die Untergrundsunterdrückung im Bereich der 106KeV-Linie von ^{239}Np beträgt ca.* 10^4.

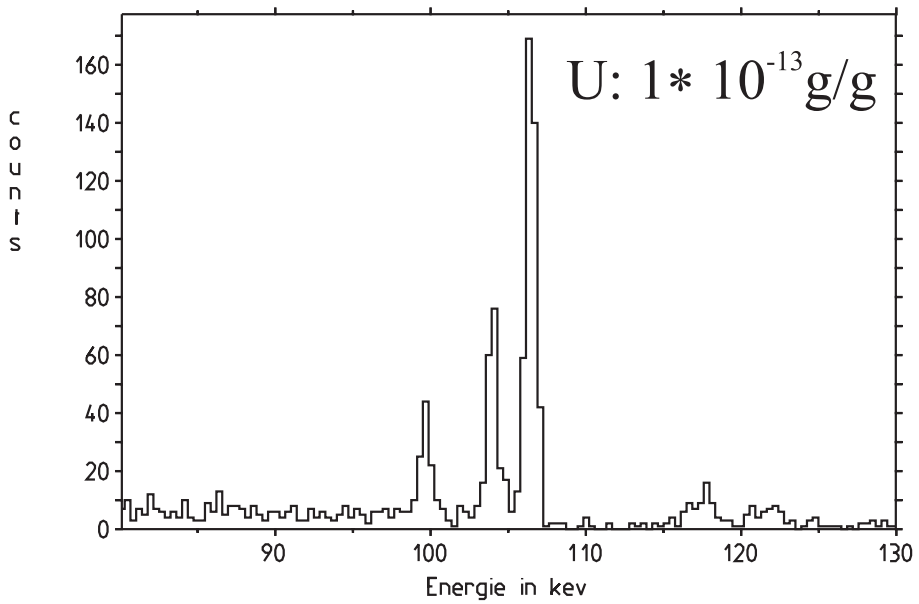

Abbildung 6.10: *Dieses Spektrum stammt von einer Probe mit einem Urangehalt von* $1 \cdot 10^{-13} g/g$*, bei deren Messung ISAN angewendet wurde. Außer den typischen Linien des ^{239}Np-Zerfalls sind keine andere Linien zu sehen. Die hohe Statistik des Signals verdeutlicht die Sensitivität der Methode.*

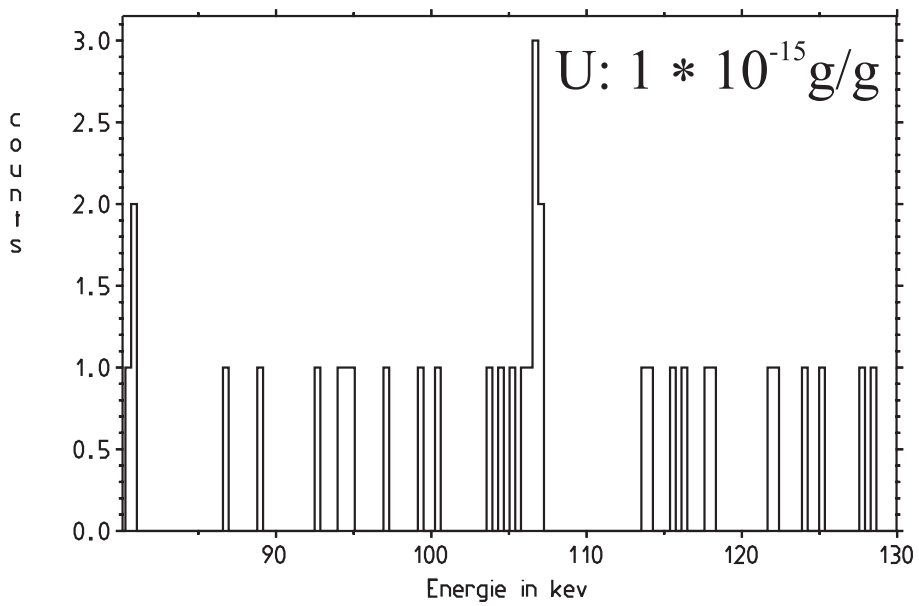

Abbildung 6.11: *Dieses Spektrum stammt von einer Probe mit einem Urangehalt von* $1.4 \cdot 10^{-15} g/g$*, bei deren Messung ISAN angewendet wurde. Die 106 keV-Linie des* ^{239}*Np-Zerfalls hebt sich selbst bei dieser niedrigen Konzentration noch deutlich vom Untergrund ab.*

die beiden Fehler zu 10% festgesetzt.
In den Abb. 6.10 und 6.11 sind Spektren von echten Proben dargestellt, die unter Anwendung von ISAN gewonnen wurden. Bei dem oberen Spektrum beträgt der Urangehalt der Probe $1 \cdot 10^{-13}$g/g. Das Fehlen von fremden Linien und die hohe Statistik verdeutlichen die Effizienz von ISAN. Bei dem unteren Spektrum beträgt der Urangehalt der Probe nur noch $1.4 \cdot 10^{-15}$g/g und die 106 keV-Linie hebt sich noch deutlich vom Untergrund ab.

Abschließend ist noch zu bemerken, daß als einziges Interferenznuklid, bei dem ISAN nicht sehr gut funktioniert, ^{187}W gefunden wurde. Dieses Nuklid besitzt ebenfalls einen isomeren Zustand mit ähnlicher Halbwertszeit und γ-Linien im Bereich von 100 keV. Würde dieses Nuklid die Nachweisgrenze für Np limitieren, ist vorher eine radiochemische Separation durchzuführen.

Kapitel 7

NAA von Nylon für den Szintillatorbehälter

Als Material für den Szintillatorbehälter im BOREXINO-Detektor ist Nylon vorgesehen. Nylon ist einerseits im relevanten Wellenlängenbereich sehr transparent und andererseits auch gegen PC oder PXE chemisch resistent. Je nach Wahl des Szintillators und der Abschirmungsflüssigkeit treten mehr oder weniger starke Dichteunterschiede auf, die zu Auftriebskräften an dem gefüllten Szintillatorbehälter führen. Nylon besitzt zwar eine relativ hohe mechanische Zugfestigkeit, aber die Wahl PC/PPO und Wasser dürfte mit Nylon nicht realisierbar sein, so daß für PC/PPO als Szintillator nur PC oder Mineralöl mit etwa gleicher Dichte als Abschirmungsflüssigkeit in Frage kommen. Bei PXE/PT wäre Wasser als Abschirmungsflüssigkeit möglich, allerdings muß dann die Dicke der Nylonfolie größer sein und ungefähr 1 mm betragen. Für die weiteren Ausführungen über die Eignung von Nylon bezüglich seiner Reinheit an natürlichen Radionukliden wird von einer benötigten Dicke von 1 mm ausgegangen.
In Kap. 3.1.5 wurden bereits die geforderten Obergrenzen für K, La, Th und U bei dieser Dicke aufgeführt. Es sei nochmals darauf hingewiesen, daß die NAA bezüglich der U- und Th-Kette nur dann relevante Aussagen treffen kann, wenn die Ketten im Gleichgewicht sind, da die γ's vor allem im unteren Teil der Ketten emittiert werden (s. Kap. 3.1).

7.1 Ergebnisse der Rohrpostbestrahlungen

In [Gol93] wurde bereits ausführlich beschrieben, wie durch Rohrpostbestrahlungen K in Nylon nachgewiesen werden kann. In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse weiterer Analysen von Rohrpostbestrahlungen diskutiert, in denen neben K andere Nuklide untersucht wurden, die für die weiteren Abschnitte dieses Kapitels relevant sind. Insbesondere wurde die Nylonsorte C38F von Bayer eingehender untersucht, die für den Szintillatorbehälter der CTF verwendet wurde.
Die Folie wird aus Granulat hergestellt, das als Vorprodukt für Kunststoffprodukte üblich ist. Von dem Granulat gibt es wiederum zwei Proben aus dem Produktionsablauf. Die erste stammt direkt vom Anfang und wird „from box“ genannt, die zweite ist bereits einer

Tabelle 7.1: *Ergebnisse von Rohrpostbestrahlungen verschiedener Proben der Nylonsorte C38F von BAYER in [g/g]. Die Proben „from box " und „after dryer" bezeichnen Granulat aus verschiedenen Stufen des Produktionsprozesses. Die Fehler der angegebenen Werte belaufen sich auf ca. 20%.*

	from box	after dryer	Folie 1	Folie 2	Folie 3
Br	$8{\cdot}10^{-9}$	$1.2{\cdot}10^{-8}$	$1.1{\cdot}10^{-8}$	—	—
Cr	$5{\cdot}10^{-8}$	$4{\cdot}10^{-8}$	$7{\cdot}10^{-8}$	$4.5{\cdot}10^{-8}$	$7.3{\cdot}10^{-8}$
Co	$7{\cdot}10^{-8}$	—	$7{\cdot}10^{-8}$	—	$8.4{\cdot}10^{-8}$
Fe	—	$2.3{\cdot}10^{-7}$	—	—	—
K	$2.8{\cdot}10^{-8}$	$2.2{\cdot}10^{-8}$	$5.5{\cdot}10^{-8}$	$3.6{\cdot}10^{-8}$	$1{\cdot}10^{-7}$
La	—	—	—	$2.9{\cdot}10^{-11}$	$6{\cdot}10^{-11}$
Na	$1.1{\cdot}10^{-7}$	$1.3{\cdot}10^{-7}$	$1.0{\cdot}10^{-7}$	$2.0{\cdot}10^{-7}$	$1.7{\cdot}10^{-7}$
W	$8{\cdot}10^{-9}$	$8{\cdot}10^{-9}$	$2.7{\cdot}10^{-8}$	$1.8{\cdot}10^{-8}$	$2.2{\cdot}10^{-8}$
Zn	$3{\cdot}10^{-8}$	$2{\cdot}10^{-8}$	$1{\cdot}10^{-6}$	$1.8{\cdot}10^{-7}$	$3{\cdot}10^{-7}$

Prozedur unterzogen worden und wird „after dryer" bezeichnet. In Tab. 7.1 sind die Ergebnisse der einzelnen Analysen aufgeführt. Die Ergebnisse zeigen:

- Der Gehalt an K und La in dieser Nylonsorte liegt in allen Proben deutlich unterhalb der tolerierbaren Obergrenze. Für den Nachweis der pep-Neutrinos ist der K-Wert jedoch kritisch, da die damit verbundene Untergrundrate im pep-Neutrinofenster von 800-1500 keV bereits ungefähr so groß ist wie die Signalrate.

- Die beiden Granulatproben zeigen ähnliche Verunreinigungsgrade, die drei Folienanalysen weisen für fast alle Elemente etwas höhere Verunreinigungsgrade auf, für Zn sogar gut eine Größenordnung mehr. Dies deutet auf eine Kontamination während des Produktionsprozesses der Folie hin.

- Die Ergebnisse für die drei Folienanalysen schwanken für K, Na und Zn mehr als durch die Fehler der einzelnen Messungen erklärt werden kann. Dies kann vor allem daher kommen, daß die Proben nach der Bestrahlung gereinigt wurden, aber nicht jedes Mal in der gleichen Weise. Weitere Versuche haben gezeigt, daß bei bestrahlten Granulatproben durch verschiedene Reinigungsschritte mit Methanol, Wasser und leichter Säure, die zum Teil im Ultraschallbad durchgeführt wurden, der K-Gehalt halbiert und Zn um mehr als einen Faktor 4 reduziert werden kann. Der Effekt fällt für die anderen Elemente nicht so deutlich aus. Eine mehrere Wochen vor der Bestrahlung in Wasser eingelegte Folie zeigte ebenfalls einen deutlich reduzierten K- und Na-Gehalt, wie sie im Granulat gemessen wurden. Die beim Produktionsprozeß der Folie zusätzlich eingebrachten Verunreinigungen können also zumindest teilweise wieder entfernt werden.

7.2 Sensitive Nylonanalysen

Die mit den Rohrpostbestrahlungen erzielbare Sensitivität reicht nicht aus, um auch U und Th in den für BOREXINO relevanten Spurenbereichen zu messen. Es wurden daher verschiedene andere Methoden getestet, mit denen die Sensitivität erhöht werden kann.

7.2.1 INAA mit Koinzidenztechniken

Wenn keine radiochemischen Methoden angewendet werden, erreicht man eine Verbesserung der Nachweisgrenzen u.a. durch Erhöhung der Bestrahlungszeit und der Probenmenge. Der bei längeren Bestrahlungen von organischen Proben auftretende Druckaufbau durch Radiolyse verbietet die Bestrahlung in geschlossenen Behältern. Deswegen wurde die Wasserbestrahlungsvorrichtung des FRM I benutzt, um Nylonproben mit maximal 70 g bis zu 16 h zu bestrahlen. Für Nylongranulat ist diese Methode relativ gut geeignet, während Nylonfolien in viele kleine Stücke geschnitten werden müssen, um die Bestrahlungskolben aus Quarz beladen zu können. Dies erfordert eine sorgfältige Arbeitweise mit gereinigten Geräten und Reinraumbedingungen. Um den Eintritt von Beckenwasser des Reaktors während der Bestrahlung zu verhindern, wurden die mit Nylonproben beladenen Bestrahlungskolben mit Reinstwasser aufgefüllt.
Nach der Bestrahlung wurden die Proben in zylindrische Meßdosen umgefüllt und mit dem Anticompton-Spektrometer des Institutes für Radiochemie der TU München gemessen. Neben der Anticompton-Vorrichtung bietet der Meßplatz noch die Möglichkeit, zusätzlich γ-γ-Koinzidenzen zu messen, um das Signal/Untergrund-Verhältnis weiter zu verbessern. Der schematische Aufbau des Meßplatzes ist in Abb. 7.1 dargestellt. Die Signatur des ^{239}Np-Zerfalls (s. Kap. 6.3.6) eignet sich für eine γ- γ-Koinzidenz, da sich der angeregte ^{239}Pu-Kern nach der Emission eines 106 keV-γ mit relativ hoher Wahrscheinlichkeit über innere Konversion abregt, wobei Röntgenquanten emittiert werden, deren häufigste Energie 99 und 103 keV beträgt. Eine normale Anticompton-Schaltung wäre daher auch nicht sinnvoll, da diese Röntgenquanten die 106 keV-Linie unterdrücken. Da der Meßplatz nicht mit einer Einzelereignisauslese ausgestattet ist, wurde eine hardware-Koinzidenz geschaltet. Wegen der dadurch eingeschränkten Energieauflösung wurde für den oberen Detektor der NaI- Stöpsel verwendet und ein Fenster zwischen 90 und 115 keV gesetzt. Der NaI-Ringkristall diente als Anticompton-Veto. Die Effizienz der Schaltung wurde mit einer bekannten ^{239}Np-Aktivität ermittelt. Das endgültige Spektrum wurde mit dem LOAx-Detektor ermittelt.
Für den Nachweis von ^{233}Pa wurde ebenfallsder LOAx-Germaniumdetektor verwendet, wobei diesmal der NaI-Stöpsel und der NaI-Ring als Anticompton-Veto dienten.

Das Ergebnis für das Nylongranulat „ from box“ lautet: $(3\pm1)\cdot10^{-12}$g/g für U und $(6\pm2)\cdot10^{-12}$g/g für Th. Dies bedeutet, daß die analysierte Nylonsorte zumindest für das Granulat die Anforderungen neben K auch für diese beiden Elemente erfüllt. Die Nachweisgrenze dieser Methode für Uran könnte weiter gesenkt werden, wenn eine Einzelereignisauslese erfolgt, und bei Verwendung eines Germaniumdetektors statt des NaI-Stöpsels die gute Energieauflösung ausgenützt würde.
Bei den Bestrahlungen des Granulates „after dryer“ und der Folie stand der Anticompton-

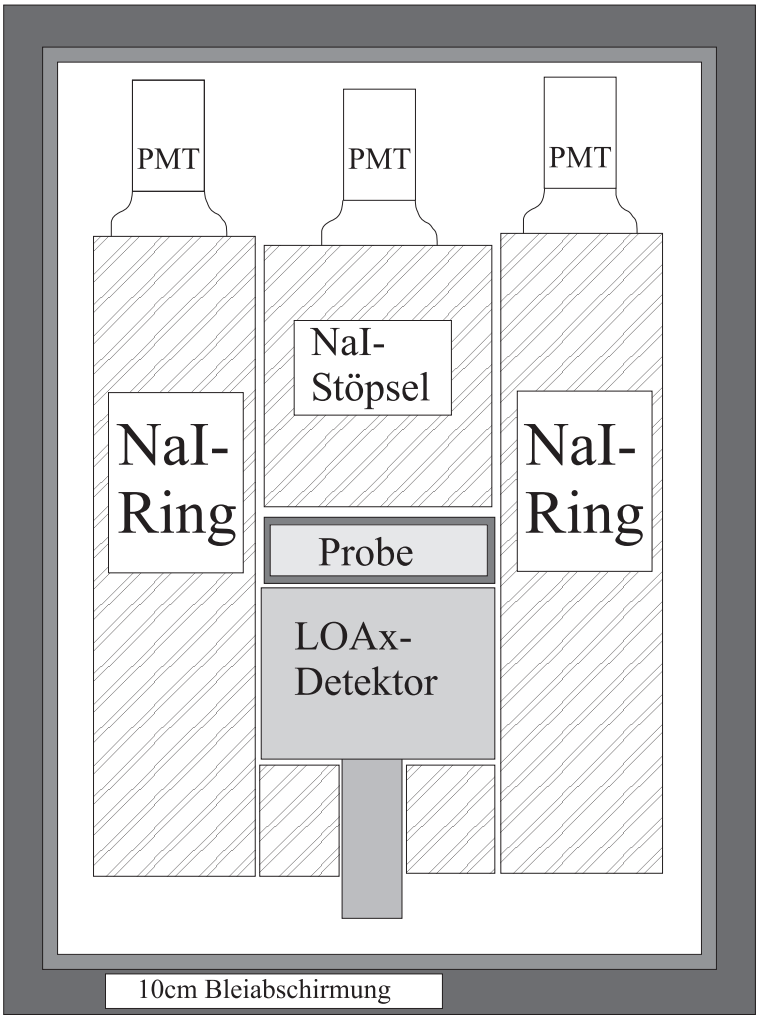

Abbildung 7.1: *Schematische Darstellung des Anticompton-Spektrometers des Instituts für Radiochemie der TU München.*

Meßplatz nicht mehr zur Verfügung und es wurde der große Germaniumdetektor mit einem 4" NaI-Detektor in Koinzidenz geschalten. Durch die schlechtere Energieauflösung des großen Germaniumdetektors und das fehlende Anticompton-Veto verschlechterte sich die Nachweisgrenze trotz der besseren Effizienz des Systems. Die Ergebnisse für U lauten $(11 \pm 5) \cdot 10^{-12} g/g$ für das Granulat und $(18 \pm 9) \cdot 10^{-12} g/g$ für die Folie. Dies bedeutet, daß auch die Nylonfolie die Anforderungen bezüglich U erfüllt. Die Werte für Th wurden wegen der schlechteren Sensitivität nicht bestimmt.

7.2.2 RNAA von Nylongranulat

Es wurde im letzten Abschnitt deutlich, daß die Verbesserung des Signal/Untergrund-Verhältnisses durch Koinzidenztechniken sehr aufwendig sein kann und hohe Anforderungen an die Ausstattung des Meßplatzes stellt. Es ist daher naheliegend, eine RNAA anzuwenden, um die in der Nylonsorte vor allem interferierenden Elemente Co und W von

Tabelle 7.2: *Ergebnisse für Nylongranulat „after dryer", das mit INAA (Rohrpost) und RNAA (Miniaturkolben in Klappzelle) analysiert wurde. Die in beiden Analysen gefundenen Elemente zeigen bis auf Eisen sehr gute Übereinstimmung innerhalb der Fehler, die ungefähr 20% betragen.*

Element	RNAA	Rohrpost	Element	RNAA	Rohrpost
Au	$9.3{\cdot}10^{-13}$	—	Na	$1.1{\cdot}10^{-7}$	$1.3{\cdot}10^{-7}$
Cr	$3.5{\cdot}10^{-8}$	$4{\cdot}10^{-8}$	U	$4.5{\cdot}10^{-12}$	—
Co	$4.1{\cdot}10^{-8}$	—	Th	$8{\cdot}10^{-12}$	—
Fe	$3.7{\cdot}10^{-7}$	$2.3{\cdot}10^{-7}$	W	$7.7{\cdot}10^{-9}$	$8{\cdot}10^{-9}$
La	$1.7{\cdot}10^{-11}$	—	Zn	$2.3{\cdot}10^{-8}$	$2{\cdot}10^{-8}$

Np und Pa abzutrennen, und dadurch die Sensitivität zu erhöhen. Für den dafür notwendigen Aufschluß der Probe wurde eine Naßveraschung vorgenommen, die gegenüber der Trockenveraschung bei hohen Temperaturen für einige Elemente wie K und Na bessere Rückhalteeffizienzen aufweist. Allerdings ist, wie in Kap. 8.1.2 ausführlicher angesprochen wird, die Naßveraschung größerer Proben problematisch. Um dennoch eine ähnliche Aktivierung des Nylons wie bei den Koinzidenzmessungen zu erreichen, wurden die neu eingeführten Miniaturkolben verwendet. Durch den wie bei den 250 ml Kolben möglichen Druckausgleich wurden Bestrahlungen mit bis zu 96 h Dauer durchgeführt. Die für die Naßveraschung noch geeignete Füllung von 1-3 g Nylon ist zwar deutlich geringer als die der großen Kolben, aber neben der längeren Bestrahlungszeit wird dies auch durch den 4 mal höheren Neutronenfluß ausgeglichen. Allerdings ist die Befüllung der Miniaturkolben nur mit dem Granulat relativ einfach, während die Folie in kleine Stücke geschnitten werden müßte. Deswegen wurde dieses Verfahren nur für das Granulat getestet.
Nach der Naßveraschung (s. Kap. 6.3.5) der bestrahlten Probe wurde eine TBP- Extraktion durchgeführt, um Np und Pa von Co und W, aber auch von anderen interferierenden Nukliden abzutrennen. Beide Phasen wurden ohne Koinzidenztechniken gezählt. In Tab. 7.2 sind die Ergebnisse zusammen mit den Werten der Rohrpostbestrahlung für Nylon „ after dryer" aufgelistet. Die Ergebnisse zeigen für die mit beiden Methoden gemessenen Elemente eine gute Übereinstimmung. Die Werte für U und Th liegen in den Bereichen, die für das Nylongranulat „from box" gemessen wurden. Die Sensitivität dieser Methode liegt für U bei Anwendung von ISAN deutlich unter 10^{-12}g/g, für Th bei ungefähr 10^{-12}g/g. Damit ist diese Methode der sensitiven Nylonanalyse für BOREXINO sehr geeignet. Ein modifizierter Miniaturkolben mit größerer Öffnung wäre allerdings für die Analyse von Folie von Vorteil, um Kontaminationen vor der Bestrahlung durch das Kleinschneiden zu vermeiden.

7.2.3 Trockenveraschung von Nylonfolie

Als letzte Methode zur sensitiven Analyse von Nylon wurde die Trockenveraschung vor der Bestrahlung getestet. Dabei werden die Vorteile einer großen Probenmasse mit denen eines hohen Flusses und einer langen Bestrahlungszeit kombiniert.
Die Anordnung für die Veraschung ist in Abb. 7.2 dargestellt. Probenmassen bis 100 g

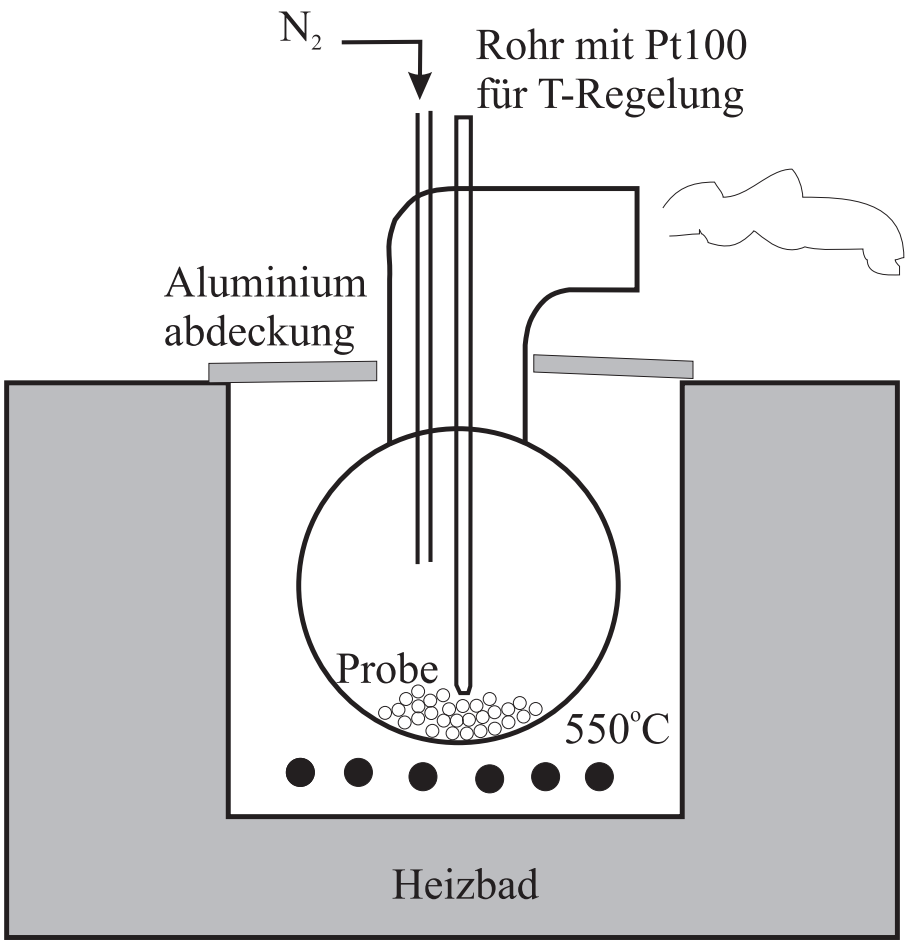

Abbildung 7.2: *Aufbau für Trockenveraschung von Nylon. Ein Quarzkolben mit der Probe wird in ein Heizbad eingesetzt. Der abgewinkelte Aufsatz reduziert den Eintrag von Staub.*

können in den vorher gereinigten Rundkoben aus Quarz geladen werden, der anschließend in ein Heizbad eingesetzt wird. Die Temperatur läßt sich über einen Pt-100 Widerstand regeln, der über ein Rohr in den Kolben eingebracht wird. Im Gegensatz zur üblichen Trockenveraschung, bei der die Probe durch die Zufuhr von Sauerstoff oxidiert wird, kann bei Nylon eine andere, schnellere Methode angewendet werden. Wird Nylon unter Luftkontakt verascht, darf zunächst eine Temperatur von ungefähr 350^0C nicht überschritten werden, um Explosionen zu vermeiden. Der nach einiger Zeit zurückbleibende kohlenstoffartige Rest kann dann bei ca. 550^0C weiterverascht werden. Da dieser Anteil relativ groß ist, dauert der letzte Schritt relativ lange. Wird jedoch die Nylonprobe unter Stickstoffatmosphäre auf ca. $550\,^0$C erhitzt, kann eine Explosion verhindert werden[1] und zugleich findet ein schnelles Abdampfen der Probe statt. Insgesamt dauert die Veraschung von 50 g Nylon mit dieser Methode weniger als 90 min. Sowohl die Luft als auch der Stickstoff werden durch einen Filter mit 0.2μm Porengröße vorgereinigt. Der Durchsatz an Stickstoff beträgt ca. 4 l/min.

Die Ergebnisse von drei Veraschungen und die eines Blindwertversuches sind in Tab. 7.3

[1] Ein ähnliches Verfahren wurde von der SNO Kollaboration für Acrylglas angewendet [Mil94].

Tabelle 7.3: *Ergebnisse von Nylonanalysen, bei denen die Folie vor der Bestrahlung trockenverascht und der Rückstand in Säure aufgelöst im Miniaturkolben bestrahlt wurde. Der systematische Fehler durch den Fluß und die Detektoreffizienz liegt bei ungefähr 20%. Zur Diskussion der systematischen Fehler durch die Veraschungsprozedur siehe Text.*

Element	Verasch. 9 g [g/g]	Verasch. 21 g [g/g]	Verasch. 45 g [g/g]	Blindwert [g]
U	$3.5 \cdot 10^{-11}$	$2.7 \cdot 10^{-11}$	$9.3 \cdot 10^{-12}$	$1.7 \cdot 10^{-10}$
Th	$2.3 \cdot 10^{-11}$	$8 \cdot 10^{-12}$	$6.4 \cdot 10^{-12}$	$2.7 \cdot 10^{-10}$
W	$7.7 \cdot 10^{-9}$	$8.1 \cdot 10^{-9}$	$3.7 \cdot 10^{-9}$	$1.4 \cdot 10^{-11}$

aufgelistet. Die Ergebnisse zeigen zunächst, daß die Werte für U und Th der verschiedenen Veraschungen auch unter Berücksichtigung der Fehler voneinander abweichen und mit steigender Probenmenge abnehmen. Die Blindwerte dividiert durch die Probenmasse geben dafür eine Erklärung. Sie liegen für die Bestrahlung der 9 g Probe im Bereich der gemessenen Werte, d.h. die U- und Th-Werte dieser Messung werden von den Blindwerten dominiert. Bei der 45 g Probe trägt der Blindwert für U rein rechnerisch nicht dominant zum Signal bei. Allerdings stellt sich neben dem Problem reproduzierbarer Blindwerte auch die Frage in die umgekehrte Richtung, nämlich nach den Verlusten bei der Veraschung. Es wäre naheliegend, für eine Reihe von Elementen, die auch mit den Rohrpostbestrahlungen nachweisbar sind, die Rückhalteeffizienzen zu untersuchen, aber für leichtere Elemente wie K, Na, Fe und Cr wurde auch bei der Trockenveraschung von Szintillatoren festgestellt, daß die Rückhalteeffizienzen sehr gering sind, während die von Np über 85% und die von Pa zwischen 50-85% und darüber liegen. Deswegen ist in Tab. 7.3 nur W zusätzlich aufgelistet. Vergleicht man die Werte der Veraschungsexperimente mit denen der Rohrpostbestrahlungen, stellt man fest, daß die ersteren ungefähr 2-6 mal geringer sind. Nimmt man nun die Werte der 45 g Probe, zieht den errechneten Blindwertanteil ab, und setzt für die Ausbeute als optimistische Obergrenze 85% für Np und 50% für Th und für die pessimistische Untergrenze 16% für beide Elemente an, so ergibt sich als Bereich für den U-Gehalt 7-36$\cdot 10^{-12}$g/g und für den Th-Gehalt 12-38$\cdot 10^{-12}$g/g. Zunächst bedeutet dies für U eine Bestätigung des Ergebnisses der Koinzidenzmessung und daß, die Nylonfolie der Sorte C38F von BAYER auch bezüglich Th für BOREXINO geeignet ist. Berücksichtigt man allerdings zusätzlich den Untergrundbeitrag im pep-Neutrinofenster liegt die Rate für die pessimistsiche Untergrenze der Ausbeute nur etwa einen Faktor 3 unter der Rate, die nach den SSM-Vorhersagen von den pep-Neutrinos zu erwarten ist.
Für die Methode der Trockenveraschung ist abschließend zu sagen, daß der Blindwert durch Verwendung eines Kolbens aus synthetischem Quarz verringert werden müßte, um eine weitere signifikante Erhöhung der Probenmenge zu vermeiden. Außerdem sind weitere Untersuchungen zur Effizienz nötig, wobei die Analyse einer Probe mit der RNAA und der Trockenveraschung Aufschluß geben würde. Auch wenn die Blindwerte weiter gesenkt werden könnten, zeigt sich die Schwierigkeit einer Probenbehandlung vor der Bestrahlung.

Kapitel 8

NAA von Flüssigszintillatoren und Tests möglicher Reinigungsmethoden

8.1 Radiochemische NAA großvolumiger Flüssigszintillatorproben

8.1.1 Probenvorbereitung und Bestrahlung

Wie bereits in Kapitel 6 ausgeführt, wurde im Rahmen dieser Dissertation die Bestrahlung von organischen Flüssigkeiten an der Flüssigbestrahlungsposition des FRM I etabliert. Für diese Bestrahlungen werden die organischen Szintillatorproben in die vorgereinigten Bestrahlungskolben aus synthetischem Quarz gefüllt (s. Kap. 6.3.4). Da die Szintillatorproben in der Regel Luftkontakt hatten, kann Argon durch die relativ hohe Löslichkeit von Edelgasen in schwach polaren Flüssigkeiten in einer Konzentration von einigen ppm oder mehr gelöst sein. Dieses Argon bereitet in zweifacher Hinsicht Probleme. Zum einen entweicht es während der Bestrahlung mit den durch die Radiolyse entstehenden Gasblasen in das Poolwasser des Reaktors (s. Kap. 6.3.4) und kann nach dem Aufsteigen an die Oberfläche des Reaktorbeckens zu einem Ansprechen der Überwachungssensoren führen. Zum anderen kann durch eine doppelte Aktivierung aus ^{40}Ar ^{42}K produziert werden und damit die Sensitivität für den Kaliumnachweis besonders für lange Bestrahlungszeiten begrenzt werden[Ang97]. Um die Argonkonzentration zu reduzieren, wurden die Proben deshalb ca. 15 min mit gefiltertem Helium gespült. Während das erste Problem dadurch beseitigt wird, ist noch nicht ausreichend geklärt, ob die verbleibende Argonkonzentration für die gemessenen Kaliumwerte verantwortlich ist.
Nach dem Spülen mit Helium werden die Proben möglichst schnell in ein mit Reinstwasser gefülltes Transportgefäß getaucht, das zur Beladung des Köchers der Flüssigbestrahlungsposition im Poolwasser des Reaktors versenkt wird. Neben dem erneuten Luftkontakt der Probe wird dadurch auch eine mögliche Kontamination der Probe durch Staub vermieden, die nach dem Verpacken in der chemietauglichen Reinbox bis zur Bestrahlung nicht mehr

in Kontakt mit Luft kommt.
Während der Bestrahlung wird von der Probe ca. 1 Gasblase pro Minute freigesetzt. Mit einem geschätzten Gasblasenvolumen von $1\,cm^3$ entspricht das einem Gesamtvolumen von ungefähr 6l, welches bei einer 100 h Bestrahlung entweicht. Die eher konservative Abschätzung macht deutlich, welcher Druckaufbau in einem geschlossenen Gefäß zu erwarten wäre. Mit der starken Gasentwicklung verbunden ist eine deutliche Strahlenschädigung des Szintillators durch die am Reaktorkern herrschende Neutronen- und γ-Strahlung. Nach einer mehrtägigen Bestrahlung besitzen die Szintillatorproben eine tiefbraune Färbung und eine stark erhöhte Viskosität, die sehr wahrscheinlich durch die Vernetzung der Moleküle bei der Bestrahlung verursacht wird.

8.1.2 Probenpräparation nach Bestrahlung

Da die Szintillatorproben durch die Bestrahlung ihre Szintillationseigenschaft völlig verlieren, ist die zunächst naheliegende direkte Verwendung der bestrahlten Szintillatorproben für Koinzidenztechniken zur Sensitivitätssteigerung unmöglich. Es sind daher radiochemische Methoden nach der Bestrahlung nötig, um die interessierenden Nuklide von der organischen Matrix zu trennen. Dies ist auch deswegen unumgänglich, weil zum Beispiel der Brom- und Schwefelgehalt in organischen Flüssigkeiten relativ hoch ist und die damit verbundene β- und γ-Aktivität nach der Bestrahlung die Sensitivität für andere Elemente limitiert.
Zu diesem Zweck wurden drei Methoden getestet,

- Destillation mit anschließender Trockenveraschung des Destillationsrückstandes
- Destillation mit anschließender Naßveraschung des Destillationsrückstandes
- Säureextraktion.

Bei der Destillation der bestrahlten Szintillatorproben bleibt je nach Bestrahlungsdauer ein sehr viskoser, schwarzer Rückstand von 30 bis 70 ml zurück, der auch bei Temperaturen um 200°C nicht siedet. Zum Aufschluß dieses Destillationsrückstandes, in dem sich auch die interessierenden Elementspuren befinden, wurde zunächst Trockenveraschung angewendet. Bei diesem bereits im letzten Kapitel beschriebenen Verfahren wird der Rückstand in einem Quarzkolben mit Hilfe eines Heizbades über mehrere Stunden langsam auf ca. 650°C erhitzt und für einige Stunden dieser Temperatur ausgesetzt, bis der zuletzt kohleartige Rückstand durch Oxidation mit Sauerstoff völlig verschwunden ist. Dabei ist darauf zu achten, daß man beim Hochheizen ab einer Temperatur von ca. 320°C die jeweils stark einsetzende Rauchentwicklung abklingen läßt, bevor eine weitere Temperaturerhöhung vorgenommen wird, da sonst Verpuffungen auftreten können, die einen quantitativen Austrag der Probe bewirken. Die durch Tracerexperimente ermittelte Effizienz dieses Verfahrens ergab jedoch besonders für ^{42}K einen inakzeptablen Wert von ca. 1%, der eine quantitative Analyse unmöglich macht. Mit über 85% für Np und 50-85% für Pa wäre Trockenveraschung für diese Nuklide durchaus geeignet. Es sind auch Verbesserungen der getesteten Methode denkbar, wie zum Beispiel ein Abdampfen des

Rückstandes bei ca. 550°C unter Stickstoffatmosphäre, wie es für Nylonanalysen eingesetzt wurde (s. Kap. 7.2.3). Jedoch hat sich die im Moment eingesetzte Säureextraktion bewährt, so daß keine weiteren Untersuchungen durchgeführt wurden.

Vor der Anwendung der Säureextraktion wurde jedoch noch getestet, ob sich der Destillationsrückstand mit Naßveraschung (s. Kap. 6.3.5) aufschließen läßt. Durch vorsichtige Zugabe von ca. 30 ml Schwefelsäure läßt sich ein Teil des Rückstandes bereits oxidieren, während der verbleibende Kohlenstoffrest durch tropfenweise Zugabe von ca. 500 ml HNO_3 aufgeschlossen werden kann. Der verbleibende, weißlich bis gelbe Veraschungsrückstand ist einerseits nicht gut in Wasser oder Mineralsäuren löslich und andererseits könnte es sich dabei um Pikrinsäure handeln, die bei höheren Temperaturen explosiv ist. Deswegen wurde dieses Verfahren für den Aufschluß der relativ großen Destillationsrückstandsmenge aus sicherheitstechnischen und praktischen Gründen aufgegeben.

Die Methode, die mit Erfolg eingesetzt wurde, ist die Säureextraktion der bestrahlten Szintillatorproben. Sie wird im folgenden ausführlich beschrieben (vgl. auch Abb. 8.1). Nach einer Abklingzeit von 1-3 Tagen werden die mit Aluminiumfolie umwickelten Bestrahlungskolben vorsichtig ausgepackt. Um eine spätere Kontamination der Probe durch Spuren der stark aktiven Aluminiumfolie zu vermeiden, wird die Kolbenaußenseite anschließend sorgfältig abgewischt und die Unterlage des Abzugs erneuert. Der bestrahlte Szintillator wird in einen 1l Scheidetrichter aus PFA umgefüllt. Um die Viskosität der organischen Phase zu reduzieren und für verschiedene Proben anzugleichen werden weitere 200 ml Pseudocumol zugegeben. Die organische Phase wird nun zweimal mit 150 ml 5% iger HNO_3 für jeweils 15 min geschüttelt. Die Verwendung von Säure statt Wasser ist wichtig, weil dadurch einerseits die Bildung von schwerlöslichen Hydroxiden und andererseits die Wandadsorption von Nukliden in der Regel reduziert wird. Für ^{233}Pa zum Beispiel ist der Verlust durch Adsorption an Oberflächen besonders kritisch. Die maximale Adsorption liegt für salpetersaure Lösungen und Gefäße aus Teflon oder Quarz bei pH-Werten um 5, während das Minimum bei einer Konzentration von 6-10 mol/l erreicht wird [Bei]. Die aus diesem Grund favorisierte konzentrierte HNO_3 ist jedoch ungeeignet, da durch ihre oxidierende Wirkung eine schlagartig einsetzende, explosionsartige Reaktion mit der bestrahlten Probe stattfinden kann. Dieses Problem würde bei der Verwendung von HCl als nicht oxidierende Säure entfallen, aber wegen der Gefahr flüchtiger Chloride beim späteren Abdampfen von H_2SO_4 und einer gegenüber HNO_3 schlechteren Extraktionseffizienz von ^{239}Np wurde diese Alternative nicht gewählt. Die Verwendung von Teflon-, Polypropylen- und Quarzgefäßen statt Glasgefäßen ist eine weitere wichtige Maßnahme, um Verluste durch Wandadsorption zu minimieren. Der dadurch erzielte Effekt kann bei ^{60}Co(II)-Ionen und einem Tag Exposition der Gefäßoberfläche in der Größenordnung von 100 liegen [Toe94]. Zur Reduktion von Wandeffekten werden die Gefäße vor ihrem Gebrauch mit Leitungswasser gespült, um die Oberflächen zumindest teilweise abzusättigen. Durch Zugabe von 5 ml Leitungswasser in die HNO_3 werden über die darin gelösten Salze Träger eingebracht.
Die Separation der beiden Phasen vollzieht sich im Gegensatz zu unbestrahlten Proben relativ langsam. Nach ca. 30 min ist eine weitgehende Trennung erreicht und die Säure wird jeweils in einen 500 ml Rundkolben aus Quarz abgelassen. Um eine fast vollständige Trennung nach der zweiten Extraktion zu erreichen wurde in den späteren Analysen

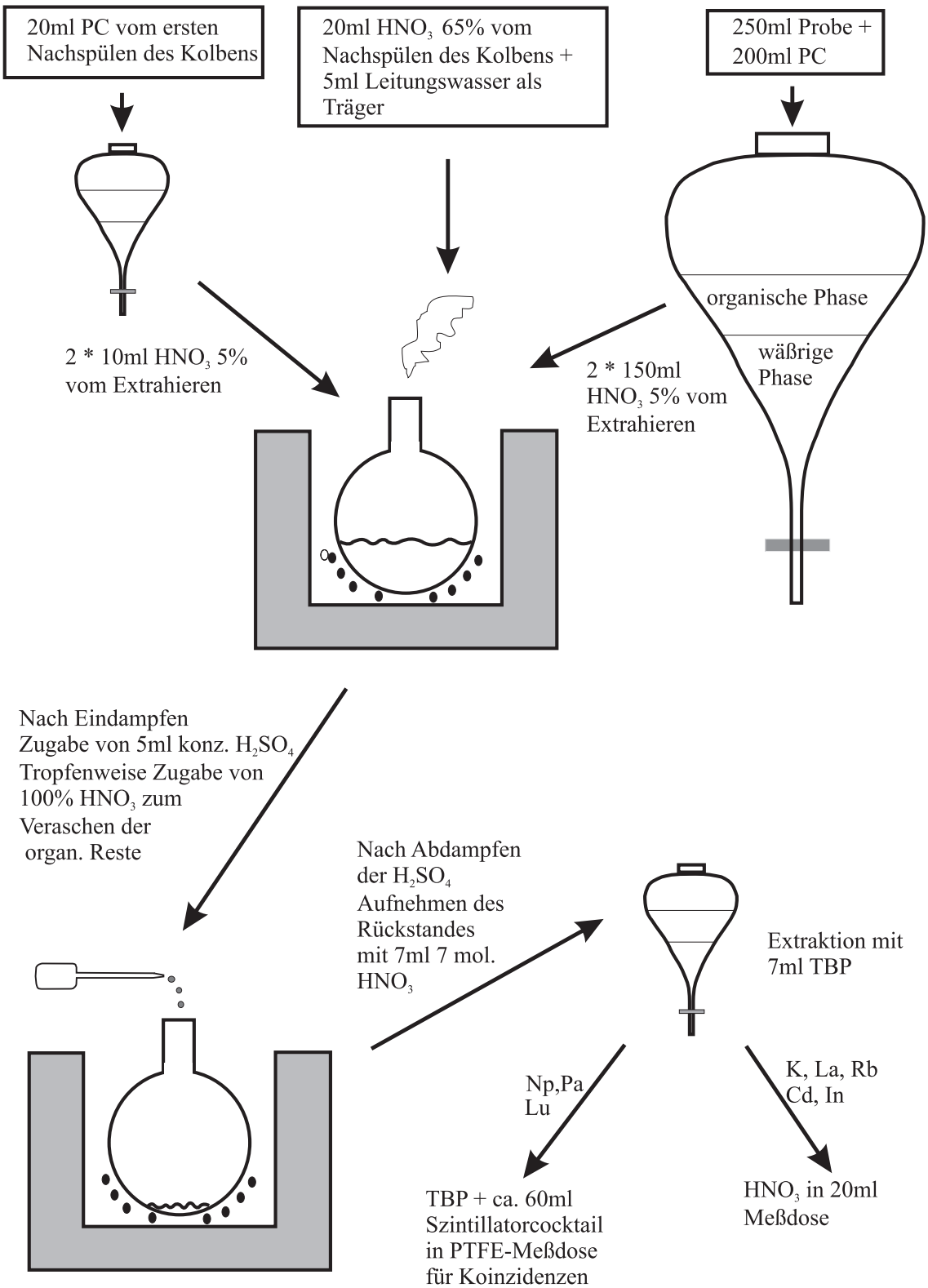

Abbildung 8.1: *Radiochemisches Verfahren für bestrahlte Szintillatorproben.*

die Mischphase in Zentrifugenröhrchen aus Polypropylen (PP) abgefüllt und für einige Minuten zentrifugiert. Die dabei gut abgetrennte saure Phase kann dann ebenfalls in den Quarzkolben pipettiert werden. Der geleerte Bestrahlungskolben wird zweimal mit 10 ml Pseudocumol nachgespült, um die flüssigen organischen Reste herauszuspülen. Dieses Pseudocumol wird in einen 125 ml Scheidetrichter aus PFA abgefüllt und anschließend zweimal mit 10 ml 5%iger HNO_3 extrahiert. Die saure Phase wird in den Quarzkolben zu der übrigen Säure gefüllt.
Wie bei der Beschreibung der Tracermessungen deutlich wird, wird ein beträchtlicher Teil der in der Szintillatorprobe aktivierten Nuklide an der Wand des Bestrahlungskolbens adsorbiert. Deswegen wird der Bestrahlungskolben nach der Spülung mit Pseudocumol zweimal mit 10 ml heißer 65%iger HNO_3 für ca. 1 min geschwenkt, um diese Nuklide von der Wand des Bestrahlungskolbens zu lösen. Diese Säure wird mit der restlichen Säure im Quarzkolben eingedampft. Da bei den Extraktionsschritten unvermeidlich organische Spuren mit der sauren Phase in den Quarzkolben gelangen und sich bei den Bestrahlungen ein fester organischer Rückstand bildet, der nicht mit Pseudocumol gelöst werden kann und deswegen ebenfalls in den Quarzkolben gegeben wird, muß nach der Konzentration der Säure auf ca. 5 ml eine Naßveraschung (s. Kap. 6.3.5) durchgeführt werden. Um die organische Menge nicht unnötig zu erhöhen, empfiehlt es sich, das nach dem Spülen im Bestrahlungskolben verbleibende Pseudocumol durch Erhitzen und Stickstoffspülen zu entfernen, bevor der Bestrahlungskolben mit HNO_3 gespült wird. Für die Naßveraschung werden je nach Menge des organischen Anteils 3-6 ml konz. Schwefelsäure zugegeben und die Flüssigkeit auf über 200^{o}C erhitzt. Mit ungefähr der doppelten Menge rauchender Salpetersäure wird der verbleibende organische Rest durch tropfenweise Zugabe wegoxidiert. Wenn die Flüssigkeit im Quarzkolben klar geworden ist, wird die Schwefelsäure abgedampft.
Der zurückbleibende Salzrückstand wird mit 5 ml 7 molarer HNO_3 aufgenommen, die für eine TBP-Extraktion (s. Kap. 6.3.5) in einen 125 ml Scheidetrichter aus PFA gefüllt wird. Nach der Extraktion wird die saure Phase in eine 20 ml PE-Dose abgelassen und das TBP in eine 70 ml Teflonmeßdose (s. Kap. 6.3.6), die mit dem kommerziellen Szintillatorcocktail Ultima Gold AB der Firma Canberra Packard aufgefüllt wird. Dieser sogar für die Mischung mit Mineralsäuren geeignete Szintillator ist notwendig, weil zum Beispiel ein einfacher Szintillator aus Pseudocumol und PPO als Wellenlängenschieber durch die im TBP gelösten Spuren an HNO_3 nicht funktioniert.
Die 20 ml PE-Dose wird ohne Schaltung einer Koinzidenz mit dem 150% Germaniumdetektor gemessen, die Teflonmeßdose mit dem LOAx- oder 150%-Germaniumdetektor, wobei simultan eine verzögerte β-e^--γ-Koinzidenz für den Nachweis von ^{239}Np und eine β-γ-Koinzidenz für den Nachweis anderer Nuklide, darunter ^{233}Pa, angewendet wird.

8.1.3 Effizienz und Diskussion des Verfahrens

Bei der Verwendung radiochemischer Methoden ist es unabdingbar, die Effizienz des Verfahrens für die interessierenden Elemente zu überprüfen. Am besten wäre es, wenn bei jeder Analyse ein Tracer für jedes interessierende Element zugesetzt würde, mit dem die Effizienz im Einzelfall bestimmt werden könnte. Dies ist jedoch in den seltensten Fällen

Tabelle 8.1: *Ergebnisse der Tracerexperimente für PC. Die erste Spalte gibt an, welcher Prozentsatz von der ursprünglich in die Tracerproben eingesetzten Menge nach der Bestrahlung an der Wand des Bestrahlungskolbens adsorbiert ist. Die zweite und dritte Spalte gibt an, wie sich die restliche Menge der ursprünglich eingesetzten Menge nach der Säureextraktion auf die beiden Phasen verteilt. Die vierte Spalte drückt das Verhältnis der zweiten zur dritten Spalte aus und stellt somit die Effizienz der Säureextraktion dar. Die Gesamtausbeute der letzten Spalte ist die Summe der ersten und zweiten Spalte.*

	Wand	saure Phase	organ. Phase	Extrakt.eff.	Gesamtausbeute
^{239}Np	80%	11%	6%	0.67	$\geq$ 91%
^{233}Pa	75%	21%	$\leq$5%	$\geq$0.8	$\geq$ 96%
^{140}La	93%	4%	2%	0.67	97%
^{177}Lu	$\geq$95%	$\leq$5%		—	$\geq$95%
^{114}In	$\geq$56%	$\leq$44%		—	$\geq$56%
^{99}Mo	25%	50%	25%	0.67	75%
^{24}Na	38%	50%	12%	0.8	88%
^{69}Zn	61%	$\geq$31%	$\leq$8%	$\geq$0.8	$\geq$92%

ohne größeren Aufwand möglich. Außerdem stellt sich bei den bestrahlten Szintillatorproben das prinzipielle Problem, daß die realistische Überprüfung der Extraktionseffizienz mit Tracern unmöglich ist. Die Form, in der die Verunreinigungen im Szintillator vor der Bestrahlung vorliegen, ist unbekannt. Denkbar sind Mikropartikel oder metallorganische Komplexe. Zusätzlich ist es wahrscheinlich, daß durch den Aktivierungsprozeß die aktivierten Nuklide aus den ursprünglichen Molekülen gelöst werden und neue Bindungsformen eingehen, die nur durch die bei der Aktivierung herrschende lokale Energiedichte entstehen können[1]. Die starke Schädigung des Szintillators bei der Bestrahlung läßt auch darauf schließen, daß durch die Strahlungseinwirkung Bindungen in großem Umfang aufgebrochen werden.
Es ist daher kein aussagekräftiges Verfahren, nach der Bestrahlung für die Säureextraktion die Tracer der HNO_3 oder der Szintillatorprobe zuzugeben und über die anschließend bestimmten Verteilungskoeffizienten für die Tracer auf die der aktivierten Nuklide zu schließen.
Aus diesen Gründen wurden zur Überprüfung der Effizienz des Verfahrens separate Tracerexperimente durchgeführt und angenommen, daß die dabei ermittelte Effizienz auf andere Szintillatoranalysen übertragbar ist. Diese Annahme ist in der Regel besonders gut erfüllt, wenn die Effizienzen sehr nahe bei 100% liegen und die Unterschiede in den Elementkonzentrationen bei den Tracerexperimenten und den anderen Analysen keine Rolle spielen. Beispielsweise beginnen Verluste durch Adsorption an Gefäßwänden ungefähr unterhalb einer Konzentration von 10^{-6}mol/l signifikant zu werden [Toe94]. Für die Ermittlung von Verlusten durch Wandadsorption ist es daher wichtig, auch die Konzentration der zugegebenen Tracer möglichst gering zu halten.
Es wurden vier Tracerexperimente mit U, Th, Lu, La, Cd, In, Rb und K durchgeführt, zwei

[1]Diesen Effekt bezeichnet man auch als Szilard-Chalmers-Effekt [Wah51].

für das Lösungsmitel Pseudocumol und zwei für PXE. Dabei wurden die Tracerelemente jeweils einmal in Methanol gelöst und einmal mit TBP komplexiert zugegeben, wobei die Konzentration je nach Nuklid zwischen 10^{-10} und 10^{-6}mol/l lag. Durch die Komplexierung mit TBP sollte eine realistischere Form der Tracerzugabe erreicht werden. Dazu wurden zunächst kommerzielle U-, Th-, Lu-, La-, Cd-, In-, Rb- und K-Standardlösungen auf HNO_3-Basis eingedampft. Der Salzrückstand wurde mit 100μl 65%iger HNO_3 aufgenommen und mit 2 ml TBP extrahiert, welches vorher zweimal mit Reinstwasser und subgeboilter HNO_3 gewaschen wurde, um andere Verunreinigungen zu entfernen. Nach einer Verdünnung des TBP mit 100 ml Pseudocumol wurden 100μl dieser Lösung in die Szintillatorprobe pipettiert. Quantitativ können durch diese Methode allerdings nur U, Th, Lu und La in die Probe gebracht werden, während für In, Rb, Cd und K die Verteilungskoeffizienten zwischen TBP und wässriger Lösung zu gering sind, um einen nennenswerten Anteil in die organische Phase zu bringen.
Die Bestrahlungszeiten der Tracerproben lagen ebenfalls im Bereich von Tagen, wodurch die Eigenschaften der bestrahlten Flüssigkeiten wie Viskosität mit denen der echten Proben identisch waren. Nach der Bestrahlung wurden die Proben in einen 1l-Scheidetrichter aus PFA umgefüllt. Die geleerten Bestrahlungskolben wurden nacheinander mit PC, kalter konz. HNO_3 und heißer HNO_3 gespült, mit konz. HNO_3 ausgekocht und abschließend mit 48%iger HF abgeätzt, wobei nach jedem Schritt die Flüssigkeit in 20 ml Meßdosen abgefüllt wurde. Die organische Phase im Scheidetrichter wurde mit 200 ml PC ergänzt, um die Viskosität herabzusetzen und anschließend zweimal mit 100 ml 5%iger HNO_3 für jeweils 5-10 Minuten extrahiert. Von beiden Phasen wurden 20 ml entnommen und ebenfalls in Meßdosen abgefüllt. Die Ergebnisse der Messungen der einzelnen Proben sind in den Tab. 8.1 und Tab. 8.2 zusammengefaßt. Zu den Tabellen sind einige Bemerkungen zu

Tabelle 8.2: *Ergebnisse der Tracerexperimente für PXE. Zur Erklärung der Spalten siehe Tabelle für PC.*

	Wand	saure Phase	organ. Phase	Extrakt.eff.	Gesamtausbeute
^{239}Np	61-66%	30-33%	$\leq$10%	$\geq$0.75	$\geq$ 91%
^{233}Pa	66%	15-27%	7-19%	0.46-0.8	$\geq$ 81%
^{140}La	88%	4-8%	4-8%	0.33-0.67	$\geq$92%
^{177}Lu	$\geq$84%	$\leq$16%		-	$\geq$84%
^{114}In	$\geq$80%	$\leq$20%		-	$\geq$80%
^{115}Cd	$\geq$83%	$\leq$17%		-	$\geq$83%
^{86}Rb	$\geq$75%	$\leq$25%		-	$\geq$75%
^{42}K	$\geq$79%	$\leq$21%		-	$\geq$79%
^{69}Zn	43%	47%	10%	0.82	90%
^{24}Na	90%	3%	7%	0.3	93%
^{198}Au	20%	10%	70%	0.13	30%
^{122}Sb	45%	11%	44%	0.2	56%

machen:

- Bei PXE und PC wird ein hoher Prozentsatz der aktivierten Nuklide an der Wand des Bestrahlungskolbens adsorbiert. Es ist nicht auszuschließen, daß die hohen Prozentsätze bei anderen Proben nicht vorliegen, aber einerseits ergeben sich ähnlich hohe Prozentsätze auch für Nuklide, die nicht künstlich den Tracerproben zugesetzt wurden, wie z.B. bei Zn oder Mo und andererseits sollten, wie oben bereits angesprochen, besonders metall-organische Komplexe eine sehr realistische Form der Tracerzugabe darstellen. Möglicherweise werden die Nuklide bei dem Aktivierungsprozeß aus ihrer ursprünglichen Bindung entfernt und treiben dann solange in der organischen Phase, bis sie mit den polaren Gruppen der Quarzoberfläche des Bestrahlungskolbens eine energetisch günstige Stelle gefunden haben und dort haften bleiben.

- Um die Nuklide von der Oberfläche zu entfernen, reicht ein zweimaliges Spülen mit heißer HNO_3. Das Auskochen der Bestrahlungskolben ist daher unnötig und erhöht wahrscheinlich auch die Blindwerte, indem verstärkt Verunreinigungen aus der Wand des Bestrahlungskolbens gewaschen werden. Eine alleinige Spülung mit kalter HNO_3 hingegen reicht für ein quantitatives Entfernen der an der Wand adsorbierten Nuklide nicht aus. In dem PC des ersten Spülens befindet sich in der Regel nur ein kleiner Teil der an der Wand haftenden Nuklide, was wegen der Unpolarität des PC zu erwarten ist. In der 48%igen HF vom Abätzen des Kolbens findet man für alle Nuklide weniger als 10%, so daß kein nennenswerter Verlust durch irreversible Adsorption an der Wand auftritt.

- Addiert man die Anteile der Nuklide in den einzelnen Proben zusammen, ergibt sich bis auf einen Fehler von ca. 10% die eingesetzte Menge der Tracernuklide. Die Gesamtausbeute für die Nuklide an der Wand und in der sauren Phase liegt für alle Nuklide bis auf Au und Sb über 75%, teilweise weit über 90%. Betrachtet man jedoch nur die Verteilung der Nuklide in der sauren und der organischen Phase, weil in den eigentlichen Proben die Adsorption wesentlich geringer sein könnte, ergibt sich ein ungünstigeres Bild. Für Th und La liegt die Extraktionseffizienz ungefähr zwischen 33% und 80%. Allerdings wurden die eigentlichen Proben 15 min statt 5-10 min geschüttelt und mit zweimal 150 ml statt zweimal 100 ml extrahiert, so daß zum Beispiel bei den Daten für Th und La in PXE die günstigeren Werte relevant sein dürften, die durch nochmaliges Schütteln der sauren und organischen Phase aus den Meßdosen gewonnen wurden. Für K, Rb, In, Cd liegen allerdings überhaupt keine Angaben über die Extraktionseffizienz vor, da sich diese Nuklide über Komplexierung mit TBP fast nicht in die organische Phase bringen lassen und bei den Tracerexperimenten mit Methanol der Untergrund durch Brom dominiert wurde. Für K und Rb sollte ein ähnliches Verhalten wie für Na vorliegen, da alle drei Elemente Alkalimetalle sind. Für PC ist die Extraktionseffizienz von Na mit 80% zufriedenstellend, für PXE liegt sie allerdings nur bei 30%. Dies deutet auf die Möglichkeit hin, daß dieses Na in Form von Mikropartikeln im PXE vorhanden ist, wodurch eine Verteilung zwischen saurer und organischer Phase nach den Volumenverhältnissen auftritt. Dies deutet auf eine gewisse systematische Unsicherheit des Verfahrens hin. Liegen die Nuklide in Mikropartikeln vor, gelten die oben aufgeführten Effizienzen auch für U, Th, La .. mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht mehr. Um

dieser Unsicherheit gerecht zu werden, wurden deshalb alle Ergebnisse für Nuklide mit hoher Extraktionseffizienz für 100% berechnet und mit 0.75 multipliziert. Bei einem angegebenen Fehler von 50% ist dabei den Fällen einer hohen Wandadsorption und einer Verunreinigung in Form von Mikropartikeln Rechnung getragen. Für Au und Sb werden die gemessenen Effizienzen verwendet, da bei Mikropartikeln die Effizienz ähnlich ist. Für metallische Verunreinigungen wie Fe, Cr, Co, Sc und W wird die gleiche Extraktionseffizienz wie die von Zn angenommen. Sm und Ce sollten ähnliches Verhalten wie Lu aufweisen und werden deshalb genauso behandelt. Für Cd, In und Ag wird ebenfalls zunächst mit 100% gerechnet und dann mit 0.75 korrigiert.

- Für die Effizienzen der Naßveraschung wurde nur für ^{233}Pa mit 30% ein Wert deutlich unter 90% bestimmt, der allerdings reproduzierbar war. Die Verwendung von Tracernukliden, besonders für Pa, ist sicher für zukünftige Analysen nötig, um die Möglichkeit systematischer Fehler zu verringern. Die Übereinstimmung der Werte für den U- und Th-Gehalt eines CTF-Szintillators, der mit NAA und der CTF untersucht wurde (s. Kap. 8.4), ist jedoch ein Hinweis, daß die Effizienzen der NAA-Methode zumindest für diese beiden Elemente richtig bestimmt wurden.

- Die Effizienzen für die TBP-Extraktion wurden ebenfalls mit Tracerexperimenten bestimmt (vgl. Kap.6.3.5).

8.1.4 Sensitivität des Verfahrens

Zum Abschluß des Abschnittes über die RNAA großvolumiger Szintillatorproben wird kurz die Sensitivität dieser Methode diskutiert, die für das Verständnis der weiteren Abschnitte dieses Kapitels hilfreich ist. Mit dem unscharfen Begriff der Sensitivität werden häufig unterschiedliche Kenngrößen bezeichnet. Erstens werden oft instrumentelle Nachweisgrenzen aufgeführt, die unter Vernachlässigung der Blindwertproblematik angeben, ab welcher Konzentration des jeweiligen Elements noch ein Signal mit der Methode zu sehen wäre. Zweitens kann man den Bereich der Blindwerte für das jeweilige Element angeben, der bei dem Verfahren auftritt. Diese Blindwertbereiche sagen naturgemäß wesentlich mehr darüber aus, welche Elementkonzentrationen in den zu analysierenden Materialien eindeutig als positive Werte identifiziert werden können. Bei bekannter Verteilung der Blindwerte ließen sich die Nachweisgrenzen noch durch eine statistische Subtraktion verbessern, aber diese Prozedur ist für den Ultraspurenbereich und wegen des hohen zeitlichen Aufwands für eine Probe bei Verwendung der beschriebenen NAA-Methode schwer realisierbar. Deshalb sind in Tab. 8.3 nur die instrumentellen Nachweisgrenzen und die Blindwertbereiche für verschiedene Elemente angegeben. Zu den Blindwertbereichen ist allerdings, wie in Kap. 6.3.4 bereits ausgeführt, anzumerken, daß sie aus den Elementkonzentrationen der drei reinsten Proben, bezogen auf das jeweilige Element, gewonnen wurden, weil eine aussagekräftige separate Bestimmung der Blindwertbereiche fast unmöglich ist. Bei den angegebenen Werten handelt es sich deshalb genau genommen um Obergrenzen der Blindwertbereiche. Die tabellierten Werte machen deutlich, daß es mit der beschriebenen NAA-Methode für organische Flüssigszintillatoren möglich ist, viele

Tabelle 8.3: *Instrumentelle Nachweisgrenzen und Blindwertbereiche für die NAA-Methode zur Analyse großvolumiger Szintillatorproben in [g/g].*

Element	Nachweis-grenze	Bereich der Blindwerte	Element	Nachweis-grenze	Bereich der Blindwerte
Ag(^{110}Ag)	$3{\cdot}10^{-13}$	$\leq 3-4{\cdot}10^{-13}$	La(^{140}La)	$1{\cdot}10^{-15}$	$6-10{\cdot}10^{-15}$
Au(^{198}Au)	$3{\cdot}10^{-16}$	$\leq (7-10){\cdot}10^{-16}$	Lu(^{177}Lu)	$4{\cdot}10^{-16}$	$\leq (2-6){\cdot}10^{-16}$
Ca(^{47}Ca)	$1{\cdot}10^{-10}$	$\leq 1-7{\cdot}10^{-10}$	Mo(^{99}Mo)	$4{\cdot}10^{-13}$	$\leq 4-5{\cdot}10^{-13}$
Cd(^{115}Cd)	$1{\cdot}10^{-13}$	$\leq (1-8){\cdot}10^{-13}$	Na(^{24}Na)	$3{\cdot}10^{-14}$	$1-30{\cdot}10^{-12}$
Ce(^{141}Ce)	$1{\cdot}10^{-13}$	$\leq 1-3{\cdot}10^{-13}$	Rb(^{86}Rb)	$5{\cdot}10^{-13}$	$\leq (5-15){\cdot}10^{-13}$
Co(^{60}Co)	$2{\cdot}10^{-14}$	$2-10{\cdot}10^{-14}$	Sb(^{122}Sb)	$4{\cdot}10^{-15}$	$2-8{\cdot}10^{-14}$
Cr(^{51}Cr)	$1{\cdot}10^{-13}$	$5-40{\cdot}10^{-13}$	Sm(^{153}Sm)	$1{\cdot}10^{-15}$	$\leq 1-3{\cdot}10^{-15}$
Fe(^{59}Fe)	$1{\cdot}10^{-11}$	$\leq (1-3){\cdot}10^{-11}$	Th(^{233} Pa)	$2{\cdot}10^{-15}$	$\leq (2-5){\cdot}10^{-15}$
In(^{114}In)	$4{\cdot}10^{-13}$	$\leq (4-12){\cdot}10^{-13}$	U (^{239}Np)	$2{\cdot}10^{-16}$	$\leq 2-20{\cdot}10^{-16}$
Ir(^{194}Ir)	$1{\cdot}10^{-14}$	$\leq (1-2){\cdot}10^{-14}$	W (^{187}W)	$1{\cdot}10^{-14}$	$2-\leq 6{\cdot}10^{-14}$
K (^{42}K)	$2{\cdot}10^{-12}$	$3-20{\cdot}10^{-12}$	Zn(^{69}Zn)	$3{\cdot}10^{-13}$	$3-20{\cdot}10^{-12}$

Elementspuren im sub-ppt bis sub-ppq Bereich nachzuweisen. Dem Autor ist kein anderes analytisches Verfahren bekannt, das auch nur annähernd eine ähnlich gute Sensitivität für diese Proben besitzt. Bei der ICP-MS, die für wäßrige Proben als die sensitivste Methode angesehen wird, bereitet die direkte Injektion der organischen Flüssigkeiten Probleme, so daß die Proben vorher säureextrahiert oder aufgeschlossen werden müssen, was die Gefahr einer Erhöhung der Blindwerte in sich birgt.
Aber auch für Reinstwasser ist die NAA durch die Bestrahlung großvolumiger Proben mit anschließender radiochemischer Trennung und Anwendung von Koinzidenztechniken gegenüber den besten ICP-MS Anlagen konkurrenzfähig, wobei der genaue Vergleich für jedes Element einzeln durchgeführt werden müßte [Bro94].
Vergleicht man die Werte für die radioaktiven Elemente Cd, In, K, La, Lu, Rb, Th und U, für die diese Entwicklung durchgeführt wurde, mit den Anforderungen in BOREXINO (s.3.3), so stellt man fest, daß die beschriebene NAA-Methode nur für K und Rb noch keine ausreichende Sensitivität besitzt. Allerdings erfordert vor allem die Erhöhung der Sensitivität für K, das wegen seines häufigeren Vorkommens in der Umwelt kritischer für den Untergrund in BOREXINO sein dürfte als Rb, eine Verbesserung in mehreren Punkten. Erstens müssen die Blindwerte deutlich reduziert werden. Aus systematischen Experimenten mit Reinstwasser, die im nächsten Kapitel vorgestellt werden, geht hervor, daß das synthetische Quarz der verwendeten Bestrahlungskolben mit hoher Wahrscheinlichkeit die Blindwerte mit verursacht hat. Zweitens stellt Ar in den Proben einen weiteren Blindwertfaktor dar, wie in Kap. 6.1.1 dargestellt wurde. Wegen des für den Druckausgleich offenen Bestrahlungssystems (s. Kap. 6.3.4) könnte selbst das Spülen der Probe vor der Bestrahlung irrelevant sein, wenn das Ar des Poolwassers während der Bestrahlung in genügend hohem Maße in die Probe gelangt (vgl. [Ang97]). In diesem Fall ist eine veränderte Konstruktion der Bestrahlungsvorrichtung nötig. Drittens sieht man an Hand

der instrumentellen Nachweisgrenze, daß nicht nur die Blindwerte ein Problem darstellen, sondern auch das zu schlechte Signal/Untergrund-Verhältnis bei der Messung. Eine kürzere Abklingzeit der Proben kann die Situation bis um einen Faktor 16 verbessern, sofern sie aus strahlenschutztechnischen Gründen vertreten werden kann. Für die fehlende Größenordnung ist aber ein wesentlich untergrundärmerer Meßplatz unabdingbar. Mit dem geplanten Untergrundlabor in Garching, in dem ein Germaniummeßplatz mit Myonenveto vorgesehen ist, wird der entscheidende Schritt in diese Richtung getan.

8.2 Reinheit kommerzieller Flüssigszintillatorkomponenten

Um die erforderliche Effizienz von Reinigungsverfahren für den Szintillator des BOREXINO-Detektors zu ermitteln, wurde die Reinheit kommerziell erhältlicher Szintillatorkomponenten gemessen. Dabei wurden Wellenlängenschieber und Lösungsmittel getrennt untersucht.

8.2.1 Wellenlängenschieber

Für einige Nuklide konnte ein positiver Wert bereits durch eine Rohrpostbestrahlung der Wellenlängenschieber bestimmt werden. Allerdings reicht die bei solchen Bestrahlungen erreichbare Effizienz u.a. für U und Th nicht aus. Deshalb wurden für PPO und p-TP zusätzlich zwei weitere Analysemethoden angewendet, Säureextraktion und Veraschung vor der Bestrahlung. Für die Säureextraktion wird der Wellenlängenschieber in ca. 50 ml sauberem PC gelöst. Während dies für PPO durch seine hohe Löslichkeit in PC bis zu einigen Gramm bei Raumtemperatur möglich ist, kann p-TP nur bis zu knapp einem Gramm gelöst werden, nachdem das PC auf ca. 80^{o}C erhitzt wird. Die organische Phase wird dann mit ca. 10 ml 5%iger subgeboilter HNO_3 extrahiert und die Säure in die Miniaturkolben gefüllt, die dann bis zu einigen Tagen bestrahlt werden.

Bei der Veraschung werden ca. 10-20 g Wellenlängenschieber in den Rundkolben aus Quarz gefüllt, der bereits im Kapitel über Nylon ausführlicher beschrieben wurde. Im Heizbad wird der Kolben langsam über die Schmelztemperatur des Wellenlängenschiebers erhitzt. Wenn sich der Wellenlängenschieber verflüssigt hat, wird die PE-Folie zum Schutz vor Staub im Chemieabzug von der Öffnung des Kolbenaufsatzes entfernt und gleichzeitig die N_2-Zufuhr geöffnet (s. Kap. 7.2.3). Bei ca. 300^{o}C dampft der Wellenlängenschieber in ungefähr 10 min ab. Wenn dieser Prozeß abgeschlossen ist, wird die Temperatur kurz auf 500^{o}C erhöht. Da sich im oberen Bereich des Kolbens Spuren des Wellenlängenschiebers niederschlagen, die beim späteren Auskochen in die Säure und damit in den Miniaturkolben gelangen, wird der Kolben in der Reinbox kurz mit ca. 3 ml HNO_3 ausgekocht, um die organischen Reste abzuwaschen. Anschließend wird der Prozeß im Abzug wiederholt, wobei der Kolben für 20 min auf 520^{o}C erhitzt wird und statt N_2 O_2 zugegeben wird, um kohleartige Rückstände wegzuoxidieren. Nach dem Abkühlen wird der Kolben in der Reinbox zum Aufnehmen des Veraschungsrückstandes mit 10 ml 10%iger HNO_3 ausgekocht, die in einen Miniaturkolben abgefüllt wird.

Tabelle 8.4: *Verunreinigungskonzentrationen in Wellenlängenschiebern, die für* BOREXINO *in Betracht gezogen werden. Die systematischen Fehler durch den Neutronenfluß und die Detektoreffizienz betragen ungefähr 20%. Zu den systematischen Fehlern der durch Trockenveraschung oder Säureextraktion vor der Bestrahlung gewonnen Werte siehe Text. Die davon betroffenen Elemente sind mit einem * gekennzeichnet.*

	PPO Fluka	p-TP Monsanto	p-TP NE	p-TP Aldrich	bis-MSB Fluka	bis-MSB
Br	$2{\cdot}10^{-8}$	$2{\cdot}10^{-8}$	—	$1{\cdot}10^{-7}$	$4{\cdot}10^{-8}$	$4{\cdot}10^{-9}$
Cd*	$\leq 4{\cdot}10^{-10}$	$2{\cdot}10^{-9}$	$\leq 2{\cdot}10^{-9}$	$3{\cdot}10^{-10}$	—	—
Cr	$2{\cdot}10^{-8}$	$1{\cdot}10^{-6}$	$7{\cdot}10^{-8}$	$9{\cdot}10^{-9}$	—	—
Fe	$2{\cdot}10^{-7}$	$7{\cdot}10^{-6}$	$1{\cdot}10^{-6}$	$4{\cdot}10^{-7}$	—	—
In*	$\leq 4{\cdot}10^{-10}$	$\leq 1{\cdot}10^{-9}$	$\leq 2{\cdot}10^{-9}$	$\leq 3{\cdot}10^{-10}$	—	—
K	$2{\cdot}10^{-7}$	$3{\cdot}10^{-6}$	$1{\cdot}10^{-7}$	$3{\cdot}10^{-8}$	$3{\cdot}10^{-7}$	$5{\cdot}10^{-8}$
La*	$1-2{\cdot}10^{-10}$	$8-24{\cdot}10^{-10}$	$7{\cdot}10^{-11}$	$2{\cdot}10^{-11}$	—	—
Lu*	$6-46{\cdot}10^{-13}$	$1-48{\cdot}10^{-12}$	$1{\cdot}10^{-12}$	$\leq 4{\cdot}10^{-13}$	—	—
Mn	$\leq 1{\cdot}10^{-6}$	$1{\cdot}10^{-7}$	$1{\cdot}10^{-8}$	$3{\cdot}10^{-9}$	$7{\cdot}10^{-8}$	$3{\cdot}10^{-8}$
Na	$4{\cdot}10^{-5}$	$1{\cdot}10^{-6}$	$2{\cdot}10^{-7}$	$7{\cdot}10^{-8}$	$1{\cdot}10^{-5}$	$4{\cdot}10^{-7}$
Rb*	$\leq 4{\cdot}10^{-10}$	$\leq 5{\cdot}10^{-9}$	$\leq 3{\cdot}10^{-9}$	$\leq 6{\cdot}10^{-10}$	—	—
U*	$4-9{\cdot}10^{-12}$	$1-21{\cdot}10^{-11}$	$1{\cdot}10^{-11}$	$\leq 7{\cdot}10^{-13}$	—	—
Th*	$1-6{\cdot}10^{-11}$	$2-90{\cdot}10^{-11}$	$2{\cdot}10^{-11}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$	—	—
W	—	$2{\cdot}10^{-9}$	$8{\cdot}10^{-10}$	$1{\cdot}10^{-9}$	—	—
Zn	$6{\cdot}10^{-8}$	$2{\cdot}10^{-6}$	$4{\cdot}10^{-7}$	$8{\cdot}10^{-8}$	$5{\cdot}10^{-6}$	$9{\cdot}10^{-7}$

Die Bestrahlungszeit kann ebenfalls wie bei der Säureextraktion einige Tage betragen. Vergleicht man die Ergebnisse für Nuklide, die bei allen drei Verfahren zu positiven Signalen führen, so stellt man folgendes fest:

Bei der Säureextraktion erhält man für Na und K im Rahmen der Fehler die gleichen Resultate wie bei den Rohrpostbestrahlungen. Das bedeutet, daß die Extraktionseffizienz für diese Nuklide relativ hoch ist. Für andere metallische Verunreinigungen wie Fe, Zn oder Cr liegt das Ergebnis der Säureextraktion ungefähr um einen Faktor 5 niedriger, was daraufhin deuten könnte, daß diese Nuklide vor allem in Form von Staub in den Wellenlängenschiebern vorliegen, da das Volumenverhältnis zwischen organischer und wässriger Phase bei der Extraktion ebenfalls ungefähr 5 beträgt.

Bei den Veraschungsversuchen, die nur für zwei Proben (PPO und p-TP von Monsanto) durchgeführt wurden, stimmen die Ergebnisse für PPO gut mit denen der Rohrpostbestrahlungen überein, während sie für p-TP ca. einen Faktor 3 niedriger liegen. Für PPO ergeben sich bei U und Th ein doppelt bzw. 6 mal so hoher Wert wie bei der Säureextraktion, für p-TP entsprechend ein 7 mal bzw. 15 mal so hoher Wert, der noch mit einem zusätzlichen Faktor 3 korrigiert werden muß, wenn man für U und Th ein ähnliches Verhalten wie bei Fe, Zn und Cr annimmt. Allerdings sind die Ergebnisse nur eine Größenordnung von den gemessenen Blindwerten des Verfahrens entfernt, so daß sie bei

vorsichtiger Interpretation als obere Grenze betrachtet werden müssen.

Die Ergebnisse in der Tab. 8.4 sind soweit wie möglich aus den Messungen der Rohrpostbestrahlungen abgeleitet. Nuklide, die nur über die anderen Verfahren bestimmt werden konnten, sind mit einem Stern gekennzeichnet. Für PPO und p-TP von Monsanto sind die beiden Werte der Säureextraktion und der Veraschung angegeben, wobei im Fall des p-TP die zusätzliche Korrektur mit einem Faktor 3 vorgenommen wurde. Die dadurch resultierenden Bereiche stellen für die betreffenden Nuklide zumindest eine vernünftige Eingrenzung des wirklichen Gehaltes dar. Für die p-TP-Proben von Aldrich und Nuclear Enterprise wird nur der Wert der Säureextraktion angegeben, der als untere Grenze anzusehen ist. Berücksichtigt man, daß die Wellenlängenschieber nur mit einer Konzentration von ca. 1.5-3 g/l in das Lösungsmittel zugegeben werden, besteht eine starke Diskrepanz zwischen geforderter und tatsächlicher bzw. als Obergrenze vorliegender Reinheit für K, Rb, Th und U, deren Gehalt im Wellenlängenschieber zwischen 2 und 5 Größenordnungen reduziert werden muß. Für In bedarf es einer Reinigung von weniger als 2 Größenordnungen, während für La und Cd die Reinheit der kommerziellen Ausgangsprodukte bereits ausreichend ist.

8.2.2 Lösungsmittel

Im Vergleich zu den Wellenlängenschiebern wurde bei den Lösungsmitteln nur PXE untersucht, da im Fall des PC die NAA von organischen Flüssigkeiten noch nicht ausreichend entwickelt war, als reines PC von der Raffinerie in Sardinien zur Verfügung stand. Auf die Analyse von PC, das für den Laborbedarf erhältlich ist, wurde verzichtet, da sowohl die ursprüngliche Herkunft als auch die Schritte bis zum Abfüllen der Laborflaschen völlig unbekannt sind.
Eine PXE-Probe wurde den 2 t -Tanks entnommen, die unter der Aufsicht des Autors in der Raffinerie in Texas befüllt wurden und mit denen das PXE aus USA in das Gran Sasso Labor für einen Test mit der CTF transportiert wurde. Die andere PXE-Probe stammt aus einer eigens für die BOREXINO-Kollaboration in Texas abgefüllten Flasche. Die Ergebnisse beider Analysen sind in Tab. 8.5 aufgeführt.

Wie bei den Wellenlängenschiebern erfüllt besonders der Wert für K die geforderte Reinheit nicht und liegt 4 Größenordnungen über der erforderlichen Konzentration. Für Rb könnte eine Reinigung um bis zu 3 Größenordnungen nötig sein. Wegen dem gegenüber K geringeren Vorkommen in der Umwelt und dem zu K chemisch ähnlichen Verhalten ist der Rb-Gehalt des PXE wahrscheinlich wesentlich weniger problematisch als der K-Gehalt. Der Gehalt an Th und U muß ungefähr zwei Größenordnungen reduziert werden, während für Cd, In, La und Lu kein Bedarf für eine Reinigung besteht.
Vergleicht man die Werte für U und Th mit den Ergebnissen der CTF für das nicht weiter gereinigte PC, mit dem bereits für beide Elemente Werte im Bereich von 10^{-16}g/g gemessen wurden, so ist das PXE in seiner Ausgangsreinheit deutlich ungünstiger als das PC einzustufen, sofern die Proben als repräsentativ anzusehen sind und kein deutliches Ungleichgewicht in den Ketten vorlag.

Tabelle 8.5: *Ergebnisse von zwei PXE-Analysen. Die eine Probe stammt aus einer Glasflasche, die andere wurde aus den 2 t-Edelstahlbehältern entnommen, die für den Transport des PXE aus USA verwendet wurden. Die Fehler betragen ca. 50%; zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.*

Element	PXE (Tank)	PXE (Flasche)	Element	PXE (Tank)	PXE (Flasche)
Ag	$\leq 1.9 \cdot 10^{-12}$	$\leq 4 \cdot 10^{-12}$	La	$2.0 \cdot 10^{-13}$	$6 \cdot 10^{-13}$
As	$2.5 \cdot 10^{-12}$	$2.7 \cdot 10^{-13}$	Lu	$\leq 1.6 \cdot 10^{-15}$	$\leq 5 \cdot 10^{-15}$
Au	$2.0 \cdot 10^{-14}$	$2 \cdot 10^{-14}$	Mo	$1.6 \cdot 10^{-11}$	$2.5 \cdot 10^{-11}$
Ca	$\leq 2 \cdot 10^{-9}$	$\leq 5 \cdot 10^{-9}$	Na	$1.2 \cdot 10^{-9}$	$2.3 \cdot 10^{-9}$
Cd	$\leq 4 \cdot 10^{-12}$	$\leq 6 \cdot 10^{-12}$	Pt	$\leq 9 \cdot 10^{-13}$	$\leq 1.6 \cdot 10^{-13}$
Ce	$\leq 1.1 \cdot 10^{-12}$	$5 \cdot 10^{-12}$	Rb	$\leq 7 \cdot 10^{-12}$	$\leq 2.3 \cdot 10^{-11}$
Co	$8 \cdot 10^{-12}$	$\leq 1.2 \cdot 10^{-12}$	Sb	$1.1 \cdot 10^{-12}$	$4 \cdot 10^{-13}$
Cr	$2.7 \cdot 10^{-10}$	$1.6 \cdot 10^{-11}$	Sc	$\leq 1.3 \cdot 10^{-14}$	$\leq 1.2 \cdot 10^{-14}$
Cs	$\leq 5 \cdot 10^{-12}$	$1.0 \cdot 10^{-11}$	Sm	$2.7 \cdot 10^{-14}$	$1.3 \cdot 10^{-15}$
Fe	$1.9 \cdot 10^{-9}$	$\leq 7 \cdot 10^{-10}$	Th	$2.7 \cdot 10^{-14}$	$\leq 2.7 \cdot 10^{-14}$
In	$\leq 5 \cdot 10^{-12}$	$\leq 1.3 \cdot 10^{-11}$	U	$3.2 \cdot 10^{-14}$	$7 \cdot 10^{-15}$
Ir	$\leq 1.3 \cdot 10^{-13}$	$\leq 1.4 \cdot 10^{-13}$	W	$3.1 \cdot 10^{-12}$	$5 \cdot 10^{-13}$
K	$5 \cdot 10^{-10}$	$6 \cdot 10^{-10}$	Zn	$2.8 \cdot 10^{-10}$	$6 \cdot 10^{-10}$

8.3 Tests von Reinigungsverfahren

Wie aus den Messungen des letzten Abschnittes deutlich wurde, bedarf es für das BOREXINO-Experiment effizienter Reinigungsverfahren besonders für K, Th und U. Mögliche Reinigungsverfahren sind Destillation (über Dampfdruck), Wasserextraktion (über Löslichkeit), Säulenreinigung (ebenfalls über Löslichkeit), Gasspülung (über Dampfdruck) und Filtration. Die Filtration ist unabhängig von der Anwendung anderer Reinigungsmethoden sinnvoll, da, wie im letzten Abschnitt deutlich wurde, ein dominanter Anteil der Verunreinigungen in Form von Partikeln vorliegen kann und außerdem die Kosten für dieses Verfahren vergleichsweise gering sind. Gasspülung ist nur für das Entfernen gasförmiger Verunreinigungen geeignet, was aber wegen der Radonproblematik wichtig ist. Destillation ist sicherlich ein mögliches Verfahren. Wie mit der CTF gezeigt wurde, kann durch geeignete Wahl von Temperatur und Druck eine simultane Destillation von PC und PPO erfolgen. Benötigt man allerdings noch einen weiteren Wellenlängenschieber, wie zum Beispiel bis-MSB, ist es fraglich, ob dieses System ebenfalls noch gleichzeitig gereinigt werden kann, wie es für eine on-line Reinigung wünschenswert wäre. Im Gegensatz zur Destillation sind Wasserextraktion und Säulenreinigung für Mehrkomponentensysteme geeignet, auch wenn sie nicht gleichermaßen für alle Szintillatoren einsetzbar sind. PPO wird zum Beispiel von Kieselgel-Säulen adsorbiert und die relativ hohe Viskosität von PXE erschwert die gute Durchmischung und anschließende Trennung bei der Wasserextraktion. Aus diesen Gründen wurde die Wasserextraktion für PC/PPO getestet und Säulenreinigung für PXE/p-TP.

8.3.1 Wasserextraktion

Für den Test der Wasserextraktion wurde eine konzentrierte Lösung von PPO in PC (100 g/l) hergestellt. Durch die hohe Konzentration an PPO konnte besonders die Reinigungseffizienz für den Wellenlängenschieber getestet werden, da im Vergleich zu normalen Szintillatorproben die Sensitivität für das PPO ca. 60 mal höher lag. Für das PC wurde CTF-Szintillator verwendet, dessen gemessene Reinheit deutlich über der Ausgangsreinheit des PPO lag. Die PC/PPO-Lösung wurde im ersten Versuch zweimal mit 500 ml subgeboiltem Wasser und im zweiten Versuch zweimal mit 300 ml subgeboiltem Wasser in einem 1l-Scheidetrichter aus PFA extrahiert. Anschließend wurden die Proben ohne weitere Vorbehandlung in einen Bestrahlungskolben gefüllt.

Tabelle 8.6: *Ergebisse der Tests zur Wasserextraktion von PC/PPO (ca. 100g/l). Die Werte beziehen sich auf das PPO. In der vierten und sechsten Spalte steht der Reinigungsfaktor für die jeweilige Probe, der sich aus dem Vergleich mit der ungereinigten Probe ergibt. Die Fehler sind mit ca. 50% anzusetzen, zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.*

Element	PPO [g/g]	PC/PPO I [g/g]		PC/PPO II [g/g]	
	(o. Reinigung)	Konzentr.	Rein.fakt.	Konzentr.	Rein.fakt.
Cd	$\leq 4{\cdot}10^{-10}$	$\leq 7{\cdot}10^{-11}$	—	$\leq 7{\cdot}10^{-11}$	—
Cr	$2{\cdot}10^{-8}$	$2.7{\cdot}10^{-9}$	7	$3.3{\cdot}10^{-8}$	0.6
Fe	$2{\cdot}10^{-7}$	$1.3{\cdot}10^{-9}$	15	$2.7{\cdot}10^{-7}$	0.7
In	$\leq 4{\cdot}10^{-10}$	$\leq 7{\cdot}10^{-11}$	—	$9{\cdot}10^{-11}$	—
K	$2{\cdot}10^{-7}$	$5{\cdot}10^{-9}$	$4 \cdot 10^{1}$	$1.9{\cdot}10^{-9}$	$1 \cdot 10^{2}$
La	$1 - 2{\cdot}10^{-10}$	$1.5{\cdot}10^{-12}$	$(7 - 13) \cdot 10^{1}$	$7{\cdot}10^{-12}$	$(1.4 - 2.8) \cdot 10^{1}$
Lu	$4 - 27{\cdot}10^{-13}$	$\leq 1.1{\cdot}10^{-14}$	$\geq 3 \cdot 10^{1}$	$\leq 1.6{\cdot}10^{-14}$	$\geq 2 \cdot 10^{1}$
Na	$4{\cdot}10^{-5}$	$5.3{\cdot}10^{-9}$	$7.5 \cdot 10^{3}$	$4{\cdot}10^{-9}$	$1 \cdot 10^{4}$
Rb	$\leq 4{\cdot}10^{-10}$	$\leq 9{\cdot}10^{-11}$	—	$\leq 1.2{\cdot}10^{-10}$	—
U	$4 - 9{\cdot}10^{-12}$	$4{\cdot}10^{-14}$	$(1 - 2.3) \cdot 10^{2}$	$1.1{\cdot}10^{-12}$	3.6-8
Th	$1 - 6{\cdot}10^{-11}$	$\leq 2.7{\cdot}10^{-13}$	$\geq 4 \cdot 10^{1}$	$6.7{\cdot}10^{-13}$	$(1.5 - 6) \cdot 10^{1}$
W	—	$1.0{\cdot}10^{-10}$	—	$8{\cdot}10^{-11}$	—
Zn	$6{\cdot}10^{-8}$	$4.5{\cdot}10^{-8}$	1.3	$1.5{\cdot}10^{-9}$	$4 \cdot 10^{1}$

Aus den Ergebnissen in Tab. 8.6 sieht man:

- Die Werte für einige Elemente wie Fe, Cr, Zn oder U in den gereinigten Proben PC/PPO I und PC/PPO II schwanken stark. Für Fe und Cr liegen die Reinigungsfaktoren für die Probe PC/PPO II sogar unter 1, was dem gegenteiligen Effekt einer Kontamination entspricht. Da die Proben nicht gefiltert wurden, liegt der Verdacht nahe, daß die Kontamination durch Staub verursacht wurde. Die drei Messungen wurden zu sehr verschiedenen Zeiten durchgeführt, so daß eine Kontamination des PPO zwischen den Analysen nicht auszuschließen ist.

- Die Analyse PC/PPO I wurde zuerst durchgeführt. Hier liegen die Werte des gereinigten PPO für Cd, In, La, Lu, Th und U unter den für BOREXINO geforderten Konzentrationen, wenn man von einer Konzentration des PPO im PC von 1.5 g/l ausgeht. Nur für K und Rb sind weitere Reduktionen um gut zwei bzw. eine Größenordnung nötig, wobei die Extraktionen für beide Proben den K-Gehalt bereits um einen Faktor 40 bzw. 100 reduziert haben. Die damit demonstrierte Effizienz der Wasserreinigung von PPO spiegelt sich auch in den CTF-Ergebnissen wider. Das PPO für die erste Füllung der CTF mit PC/PPO wurde auf ähnliche Weise von Hand gereinigt und die Werte für das U- und Th-Äquivalent lagen für den so präparierten Szintillator bereits im Bereich von 10^{-16}g/g.

- Insofern sind die Ergebnisse der Analyse PC/PPO II, die einen höheren Wert für beide Elemente implizieren, als weniger aussagekräftig einzustufen, da sehr wahrscheinlich eine Kontamination mit Staub stattgefunden hat, für die die Wasserextraktion als Reinigungsmethode nicht sehr geeignet ist. Allerdings führen sie die Notwendigkeit einer Filtration vor Augen.

- Bei den Laborexperimenten wurden zwei Extraktionen für jede Probe durchgeführt. Dies wird wahrscheinlich für den Szintillator in BOREXINO auch wegen der Radontöchter ^{210}Pb und ^{210}Po nicht reichen, die sich bei Luftkontakt des Szintillators dort anreichern und für die der Verteilungskoeffizient im Fall von PXE nur 4-9 beträgt [Nef96], d.h. durch eine Extraktion des Szintillators mit demselben Volumen Wasser reduziert sich die Konzentration dieser Nuklide im Szintillator nur um diese Faktoren. Allerdings ist eine vielstufige Extraktion durch ein Gegenstromverfahren leicht realisierbar, wie es bereits in der CTF angewendet wurde. Obwohl Wasser sehr rein hergestellt werden kann, ist darauf zu achten, daß bei Nukliden mit kleinem Verteilungskoeffizienten die Reinheit des Wassers nicht wesentlich unter der für den Szintillator geforderten liegen darf.

8.3.2 Säulenreinigung

Ein relativ billiges Material für die Säulenchromatographie ist Kieselgel. Für ein Experiment der Größenordnung wie BOREXINO, das für die Reinigung von 300 t Szintillator einige Tonnen Säulenmaterial benötigen könnte, ist es deshalb naheliegend, dieses Material auf seine Reinigungseffizienz hin zu testen. Kieselgel besitzt eine hohe Reaktivität durch eine mit Silanolgruppen besetzte Oberfläche und dadurch ein hohes Adsorptionsvermögen für Ionen und polare Gruppen. Im Gegensatz zu den Kronenethern ist Kieselgel aber nicht so selektiv auf bestimmte Ionen, was in Hinblick auf die breite Palette natürlicher Radionuklide eher ein Vorteil sein dürfte. Für eine genauere Darstellung der Wirkungsweise von Kieselgel und Kronenethern sei auf [Ang97] verwiesen.
Das für die Tests verwendete Kieselgel der Firma Merck weist Korngrößen zwischen 200-500μm und einen pH-Wert um 7 auf. Vor der Verwendung wurde das Kieselgel für einige Stunden bei ca. 150°C im Vakuum konditioniert, um Wasser von der Oberfläche zu entfernen und die Reaktivität des Kieselgels zu erhöhen. Anschließend wurde das Kieselgel in eine Säule mit 1 cm Durchmesser bis zu einer Höhe von ca. 20 cm gefüllt.

Tabelle 8.7: *Ergebnisse der Tests zur Säulenreinigung von PXE/p-TP mit Kieselgel in [g/g]. In der vierten und sechsten Spalte steht der Reinigungsfaktor für die jeweilige Probe, der sich aus dem Vergleich mit der ungereinigten Probe ergibt. Die Fehler sind mit ca. 50% anzugeben; zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.*

Element	PXE/p-TP	PXE/p-TP I		PXE/p-TP II	
	(o. Reinigung)	Konzentr.	Rein.fakt.	Konzentr.	Rein.fakt.
Cd	$4{\cdot}10^{-12}$	$\leq 1.3{\cdot}10^{-12}$	≥ 3	$\leq 1.1{\cdot}10^{-12}$	≥ 4
Cr	$2{\cdot}10^{-9}$	$2.7{\cdot}10^{-12}$	$7 \cdot 10^2$	$1.1{\cdot}10^{-11}$	$2 \cdot 10^2$
Fe	$1.4{\cdot}10^{-8}$	$\leq 4.0{\cdot}10^{-11}$	$\geq 3.5 \cdot 10^2$	$\leq 4.0{\cdot}10^{-11}$	$\geq 3.5 \cdot 10^2$
In	$\leq 4.7{\cdot}10^{-12}$	$\leq 1.6{\cdot}10^{-12}$	—	$\leq 2.3{\cdot}10^{-12}$	—
K	$6{\cdot}10^{-9}$	$5.9{\cdot}10^{-11}$	$1 \cdot 10^2$	$5.9{\cdot}10^{-11}$	$1 \cdot 10^2$
La	$(1.6-5){\cdot}10^{-12}$	$7.7{\cdot}10^{-15}$	$(2-6) \cdot 10^2$	$1.1{\cdot}10^{-14}$	$(1.5-4.5) \cdot 10^2$
Lu	$(1-60){\cdot}10^{-15}$	$\leq 8{\cdot}10^{-16}$	≥ 1.5	$\leq 1.1{\cdot}10^{-15}$	—
Na	$3{\cdot}10^{-9}$	$3.7{\cdot}10^{-11}$	$8 \cdot 10^1$	$5.3{\cdot}10^{-11}$	$6 \cdot 10^1$
Rb	$\leq 7.2{\cdot}10^{-12}$	$\leq 2.0{\cdot}10^{-12}$	-	$\leq 2.7{\cdot}10^{-12}$	-
U	$(5-40){\cdot}10^{-14}$	$5{\cdot}10^{-15}$	$(1-8) \cdot 10^1$	$1.9{\cdot}10^{-15}$	$(3-24) \cdot 10^1$
Th	$(7-200){\cdot}10^{-14}$	$\leq 8{\cdot}10^{-15}$	≥ 8	$\leq 1.3{\cdot}10^{-14}$	≥ 5
W	$7{\cdot}10^{-12}$	$\leq 7.9{\cdot}10^{-14}$	$\geq 9 \cdot 10^1$	$\leq 7.9{\cdot}10^{-14}$	$\geq 9 \cdot 10^1$
Zn	$4{\cdot}10^{-9}$	$1.2{\cdot}10^{-10}$	$3 \cdot 10^1$	$9.3{\cdot}10^{-11}$	$4 \cdot 10^1$

Für die Szintillatorprobe wurden p-TP von Monsanto und PXE von den Transporttanks der CTF verwendet, die Konzentration des p-TP im PXE betrug ca. 2 g/l. Mit einem Druck von 1.5 - 2 bar wurde das PXE/p-TP aus einer PTFE-Flasche mit einer Flußrate von ungefähr 6 ml/min durch die Säule gedrückt. Um Partikel aus der Säule oder dem Szintillator zurückzuhalten, befand sich hinter der Säule ein Teflonfilter mit 0.2 μm Porengröße. Der gereinigte Szintillator wurde direkt in dem Bestrahlungskolben aufgefangen.

Die Ergebnisse der beiden Versuche zeigen:

- Für die meisten Elemente herrscht in beiden gereinigten Proben eine gute Übereinstimmung.
- Die Reinigungsfaktoren liegen im Bereich von zwei Größenordnungen. Ein direkter Vergleich mit der Wasserextraktion ist allerdings irreführend, weil die Säulenreinigung ein vielstufiges Verfahren ist und deshalb nicht mit ein oder zwei Wasserextraktionen verglichen werden kann.
- Trotz der hohen Reinigungsfaktoren reicht die erzielte Reinheit im PXE/p-TP allerdings für K, Th und U nicht aus. Sie liegt für K um ca. 3 und für U und Th um eine Größenordnung zu niedrig. Für Rb könnte eine Reinigung von höchstens zwei Größenordnungen nötig sein, während die erzielten Reinheiten für Cd, In, La und Lu bereits ausreichen. Ob die Verwendung eines reineren p-TP etwas an diesen Aussagen ändert, hängt davon ab, wie hoch der wahre U- und Th-Gehalt des

verwendeten p-TP von Monsanto ist, und ob die für diesen Szintillator ermittelten Reinigungsfaktoren übertragbar sind. Weiterhin bleibt zu prüfen, ob eine zweite Säulenreinigung eine weitere Verbesserung für den untersuchten Szintillator bringt.

- Die Säulenreinigung mit Kieselgel besitzt gegenüber der Wasserextraktion den Nachteil, daß das kommerziell erhältliche Kieselgel hohe U-Konzentrationen im Bereich von 10^{-8}g/g aufweist, die weit über der von typischem Reinstwasser liegen. Die damit verbundene Emanation von ^{222}Rn bereitet ein Problem, weil dieses nicht wesentlich von der Säule zurückgehalten wird, und durch den Zerfall des ^{222}Rn nach der Säule seine Töchter im Szintillator aufgebaut werden. Die resultierende Aktivität hängt davon ab, wie schnell das ^{222}Rn nach der Säule entfernt wird. Falls sie das in BOREXINO geforderte Niveau übersteigt, müßte reineres Kieselgel hergestellt werden, was bereits in kleinem Maßstab erfolgreich getestet wurde [Ang97].

8.4 Analysen von CTF-Proben

Von der CTF wurden insgesamt 4 Szintillatorproben mit ausreichender Sensitivität analysiert. Alle drei PC/PPO - Proben wurden nach der Destillation des Szintillators in der CTF genommen, die erste Probe PC/PPO I im Dezember 1995, die beiden anderen im Sommer 1996. Um die Kontamination der Proben so gering wie möglich zu halten, wurde das Abfüllen in vorgereinigte PFA-Flaschen im Reinraum auf dem Dach des CTF-Tanks durchgeführt, in dem die Reinigungsanlage untergebracht ist.
Die PXE/p-TP - Probe wurde im Herbst 1996 genommen, nachdem der Szintillator mit einer Kieselgel-Säule gereinigt worden war.
Die Ergebnisse für PC/PPO zeigen:

- Die Werte für ein Element streuen zum Teil um fast zwei Größenordnungen. Dabei ist zu bemerken, daß die Analyse PC/PPO I vor der Ätzung der Kolben durchgeführt wurde, die anderen danach. Die starke Reduktion der Werte für Zn und Ce in den Analysen PC/PPO II und III läßt sich dadurch erklären, weil eine ähnlich starke Abnahme in den abgeätzten Schichten der Kolbeninnenfläche beobachtet wurde (s. Kap. 6.3.4). Für den überwiegenden Teil der Elemente ist es wahrscheinlich, daß streuende Blindwerte die Fluktuationen verursachen, was in diesem Ultraspurenbereich nicht außergewöhnlich ist. Die Reproduzierbarkeit der NAA-Methode konnte an anderen Proben mit höheren Verunreinigungsgraden gezeigt werden [Hen96] und wird auch zum Beispiel durch die innerhalb der Fehler verträglichen Werte für Ag in den beiden Analysen PC/PPO II und III deutlich, die signifikant über den für dieses Element üblichen Blindwerten liegen.

- Für Cd, In, La, Lu, Th und U wurde in PC/PPO ein Reinheitsgrad erreicht, der für BOREXINO ausreichend ist. Damit ergänzen die NAA-Daten die Aussagen über die Machbarkeit dieses Experiments, die mit Hilfe der CTF gewonnen wurden, entscheidend.

Tabelle 8.8: *Ergebnisse der Analysen von CTF-Szintillatoren. Die Fehler betragen ca. 50%, zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.*

Element	PC/PPO I	PC/PPO II	PC/PPO III	PXE/PT
Ag	$4.0{\cdot}10^{-12}$	$2.4{\cdot}10^{-11}$	$5.1{\cdot}10^{-11}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$
Au	$2.6{\cdot}10^{-14}$	$1.9{\cdot}10^{-14}$	$7.0{\cdot}10^{-14}$	$2{\cdot}10^{-15}$
Ca	$\leq 9.3{\cdot}10^{-10}$	$\leq 1.6{\cdot}10^{-10}$	$\leq 5.3{\cdot}10^{-10}$	—
Cd	$\leq 1.4{\cdot}10^{-12}$	$\leq 1.1{\cdot}10^{-12}$	$\leq 1.3{\cdot}10^{-12}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$
Ce	$1.4{\cdot}10^{-11}$	$\leq 1.3{\cdot}10^{-13}$	$\leq 6.1{\cdot}10^{-13}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$
Co	$1.4{\cdot}10^{-13}$	$3.2{\cdot}10^{-14}$	$3.1{\cdot}10^{-13}$	$\leq 6{\cdot}10^{-13}$
Cr	$8.7{\cdot}10^{-12}$	$6.9{\cdot}10^{-13}$	$8.9{\cdot}10^{-12}$	$3{\cdot}10^{-11}$
Cs	$7.7{\cdot}10^{-11}$	$\leq 4.3{\cdot}10^{-13}$	$\leq 1.1{\cdot}10^{-13}$	$8{\cdot}10^{-12}$
Fe	$\leq 6.7{\cdot}10^{-11}$	$\leq 1.6{\cdot}10^{-11}$	$8.0{\cdot}10^{-11}$	$\leq 2{\cdot}10^{-10}$
In	$\leq 2.7{\cdot}10^{-12}$	$\leq 5.6{\cdot}10^{-12}$	$\leq 1.7{\cdot}10^{-12}$	$5{\cdot}10^{-12}$
Ir	$\leq 2.0{\cdot}10^{-14}$	$\leq 3.2{\cdot}10^{-14}$	$\leq 4.8{\cdot}10^{-14}$	$\leq 1.3{\cdot}10^{-14}$
K	$9.3{\cdot}10^{-11}$	$4.0{\cdot}10^{-12}$	$5.3{\cdot}10^{-12}$	$5{\cdot}10^{-11}$
La	$4.0{\cdot}10^{-14}$	$1.6{\cdot}10^{-14}$	$4.4{\cdot}10^{-14}$	$\leq 2{\cdot}10^{-14}$
Lu	$\leq 2.3{\cdot}10^{-15}$	$\leq 8{\cdot}10^{-16}$	$\leq 3.1{\cdot}10^{-15}$	$\leq 7{\cdot}10^{-16}$
Mo	$1.4{\cdot}10^{-12}$	$6.0{\cdot}10^{-13}$	$\leq 5.3{\cdot}10^{-13}$	$\leq 7{\cdot}10^{-13}$
Na	$9.3{\cdot}10^{-11}$	$1.7{\cdot}10^{-12}$	$5.3{\cdot}10^{-11}$	$6{\cdot}10^{-11}$
Pt	$\leq 5.3{\cdot}10^{-13}$	$\leq 2.0{\cdot}10^{-13}$	$\leq 1.1{\cdot}10^{-12}$	$\leq 6{\cdot}10^{-13}$
Rb	$\leq 2.7{\cdot}10^{-12}$	$\leq 6.7{\cdot}10^{-13}$	$\leq 4.5{\cdot}10^{-12}$	$\leq 8{\cdot}10^{-12}$
Sb	$7.1{\cdot}10^{-13}$	$3.2{\cdot}10^{-14}$	$2.6{\cdot}10^{-13}$	$3{\cdot}10^{-13}$
Sc	$\leq 2.9{\cdot}10^{-15}$	$\leq 2.7{\cdot}10^{-15}$	$\leq 3.1{\cdot}10^{-15}$	$\leq 2{\cdot}10^{-14}$
Sm	$3.9{\cdot}10^{-15}$	$\leq 1.3{\cdot}10^{-15}$	$\leq 3.1{\cdot}10^{-15}$	$4{\cdot}10^{-15}$
Th	$\leq 3{\cdot}10^{-14}$	$\leq 5{\cdot}10^{-15}$	$\leq 2{\cdot}10^{-15}$	$5{\cdot}10^{-15}$
U	$2{\cdot}10^{-15}$	$\leq 2{\cdot}10^{-16}$	$4{\cdot}10^{-16}$	$1.4{\cdot}10^{-15}$
W	$2.7{\cdot}10^{-13}$	$2.3{\cdot}10^{-14}$	$2.3{\cdot}10^{-13}$	$1{\cdot}10^{-13}$
Zn	$5.1{\cdot}10^{-10}$	$3.9{\cdot}10^{-12}$	$1.1{\cdot}10^{-11}$	$7{\cdot}10^{-11}$

- Die für K gewonnenen Werte sind mit hoher Wahrscheinlichkeit Blindwerte (s. Kap. 8.1.4), so daß nur eine Obergrenze über die in der CTF für PC/PPO erreichte Reinheit angegeben werden kann. Das gleiche gilt für Rb, für das die instrumentelle Nachweisgrenze der NAA-Methode noch um etwa zwei Größenordnungen zu hoch liegt.

Die ersten Ergebnisse für PXE/p-TP zeigen im Vergleich zu PC/PPO:

- Der Wert für U liegt um mindestens einen Faktor 5 höher als bei PC/PPO und genügt den Anforderungen in BOREXINO noch nicht. Von der CTF wurde für ^{226}Ra bzw. ^{222}Rn ein Wert von $(2.8 \pm 0.3) \cdot 10^{-15}$g/g ausgedrückt in Uranäquivalent bestimmt, der innerhalb der Fehler konsistent mit dem NAA-Wert ist.

Der Wert für ^{232}Th ist nach Tab. 3.2 für diesen Teil der Kette ausreichend. Da allerdings mit der CTF auch für ^{228}Th mit $3.5^{+0.6}_{-0.5} \cdot 10^{-15}$g/g ein innerhalb der Fehler konsistenter Wert gemessen wurde, der auf ein Gleichgewicht in der Th-Kette schließen läßt, erfüllt PXE/p-TP auch für die Th-Kette die Anforderungen um etwa eine Größenordnung nicht. Die Tatsache, daß die CTF für Th und U innerhalb der Fehler, wenn auch für andere Teile der Ketten, konsistente Werte mißt, ist eine wichtige Bestätigung der NAA-Methode. Während unterschiedliche Werte für ^{238}U und ^{226}Ra bzw. ^{232}Th und ^{228}Th kein zwingender Hinweis auf unverstandene systematische Fehler der NAA-Methode sind, wäre es ein Zufall wenn übereinstimmende Werte durch Nichtgleichgewicht in den Ketten und unverstandene systematische Fehler kompensiert werden.

- Für die anderen Elemente gelten dieselben Aussagen wie für PC/PPO.

Kapitel 9

Bestrahlungskolben aus einkristallinem Silizium

9.1 Blindwerte durch synthetisches Quarz

Im Gegensatz zu den letzten beiden Kapiteln befaßt sich dieses Kapitel nicht direkt mit Analysen von potentiellen Detektorkomponenten für BOREXINO. Vielmehr wird ein Ausblick gegeben, wie die Sensitivität der Analysen verbessert werden könnte. Wie bereits mehrfach angesprochen wurde (s. Kap. 6.3.4), kam bei den zahlreichen Szintillator- und Wasseranalysen der Verdacht auf, daß für einige Elemente, wie zum Beispiel K und Na, positive Werte durch Blindwerte verursacht werden. Dies ergab sich vor allem aus relativ ähnlichen Ergebnissen für diese Elemente bei sehr unterschiedlichen Proben. Eine mögliche Ursache für Blindwerte in den Analysen ist die Kontamination der Szintillatorproben durch das synthetische Quarz der Bestrahlungskolben. Um diese Hypothese zu überprüfen, wurden systematische Untersuchungen mit doppelt subgeboiltem Reinstwasser durchgeführt, da diese Flüssigkeit in beliebiger Menge unter reproduzierbaren Bedingungen hergestellt werden konnte. Nach der Bestrahlung wurde das Wasser mit einem Oberflächenverdampfer nach Zugabe von ca. 5 ml Leitungswasser auf ca. 10 ml konzentriert und ohne weitere Behandlung gemessen. Die Bestrahlungskolben wurden mit HNO_3 nachgespült, die mit dem Wasser eingedampft wurde.

Neben den für die Szintillatoranalysen verwendeten älteren Quarzkolben standen zusätzlich neuere Quarzkolben zur Verfügung, die in Zusammenarbeit mit der Firma Heraeus unter optimierten Bedingungen hergestellt wurden, um alle potentiellen Quellen für eine Kontamination der Kolben beim Herstellungsprozeß so gering wie möglich zu halten. So wurden die sorgfältige Ätzung der verwendeten Quarzteile vor der Herstellung, das Arbeiten in staubarmer Umgebung, die Verwendung von Quarz- statt Metallbrennern und das Vermeiden von Kontakt der Quarzgefäße mit Atemluft vereinbart. In Tab. 9.1 sind die Spurengehalte eines alten und eines neuen Kolbens gegenübergestellt. Durch die deutlich geringeren Verunreinigungen in den neuen Kolben konnte deshalb eine Korrelation der Ergebnisse mit der Qualität der Kolben untersucht werden. Zusätzlich wurde auch eine Korrelation mit der Bestrahlungszeit untersucht, da dadurch festgestellt werden kann, ob

Tabelle 9.1: *Gegenüberstellung der Spurengehalte eines alten und eines unter optimierten Bedingungen hergestellten Bestrahlungskolben aus synthetischem Quarz. Die systematischen Fehler sind mit ca. 50% anzusetzen.*

Element	alt	neu	Element	alt	neu
Ag	$3{\cdot}10^{-10}$	$2{\cdot}10^{-11}$	K	$6{\cdot}10^{-7}$	$8{\cdot}10^{-9}$
Au	$4{\cdot}10^{-12}$	$2{\cdot}10^{-13}$	La	$4{\cdot}10^{-10}$	$2{\cdot}10^{-11}$
Ca	$1{\cdot}10^{-6}$	$2{\cdot}10^{-7}$	Na	$2{\cdot}10^{-7}$	$2{\cdot}10^{-8}$
Cr	$3{\cdot}10^{-9}$	$7{\cdot}10^{-11}$	Sb	$6{\cdot}10^{-11}$	$8{\cdot}10^{-12}$
Fe	$1{\cdot}10^{-7}$	$4{\cdot}10^{-9}$	W	$1{\cdot}10^{-10}$	$\leq 7{\cdot}10^{-13}$
Ir	$7{\cdot}10^{-10}$	$9{\cdot}10^{-12}$	Zn	$1{\cdot}10^{-7}$	$2{\cdot}10^{-10}$

die mögliche Kontamination durch die Kolben über Diffusion stattfindet, oder ob durch Einfang epithermischer bis schneller Neutronen die Aktivierung im Quarz und der Transport in den Szintillator durch den Kernrückstoß simultan erfolgt. Im letzteren Fall würde keine Korrelation mit der Bestrahlungszeit zu beobachten sein. Allerdings wäre dann auch ein Kontamination der Proben durch Staubpartikel vor der Bestrahlung als Ursache der Blindwerte möglich, bei der ebenfalls keine solche Korrelation auftritt.

In Tab. 9.2 sind die Ergebnisse der Messungen aufgeführt. Aus der Tabelle sieht man, daß

Tabelle 9.2: *Ergebnisse von Analysen eines unter gleichen Bedingungen hergestellten Reinstwassers mit einem alten und neuen Quarzkolben und mit unterschiedlicher Bestrahlungszeit. Die Fehler sind mit ca. 30% anzusetzen.*

Element	neu 1 h	neu 1 h	neu 23 h	alt 0.5 h	altI 96 h	altII 96 h
Ca	$\leq 9{\cdot}10^{-9}$	$\leq 6{\cdot}10^{-9}$	$\leq 2{\cdot}10^{-9}$	$\leq 9{\cdot}10^{-9}$	$3{\cdot}10^{-9}$	—
Fe	—	$\leq 7{\cdot}10^{-10}$	$\leq 3{\cdot}10^{-11}$	$\leq 9{\cdot}10^{-10}$	$2{\cdot}10^{-11}$	—
Ir	$\leq 4{\cdot}10^{-14}$	$\leq 2{\cdot}10^{-14}$	$\leq 5{\cdot}10^{-15}$	$\leq 7{\cdot}10^{-14}$	$1{\cdot}10^{-13}$	—
K	$\leq 7{\cdot}10^{-12}$	$\leq 8{\cdot}10^{-13}$	$3{\cdot}10^{-12}$	$\leq 6{\cdot}10^{-12}$	$8{\cdot}10^{-11}$	$2{\cdot}10^{-10}$
La	$\leq 2{\cdot}10^{-14}$	$\leq 2{\cdot}10^{-14}$	$\leq 4{\cdot}10^{-15}$	$\leq 4{\cdot}10^{-15}$	$5{\cdot}10^{-14}$	$4{\cdot}10^{-14}$
Na	$2{\cdot}10^{-13}$	$1{\cdot}10^{-13}$	$2{\cdot}10^{-12}$	$8{\cdot}10^{13}$	$9{\cdot}10^{-11}$	$9{\cdot}10^{-11}$
Sb	$\leq 1{\cdot}10^{-13}$	$\leq 6{\cdot}10^{-14}$	$7{\cdot}10^{-14}$	$\leq 9{\cdot}10^{-14}$	$3{\cdot}10^{-13}$	$5{\cdot}10^{-13}$
W	$\leq 1{\cdot}10^{-13}$	$\leq 6{\cdot}10^{-14}$	$2{\cdot}10^{-14}$	$\leq 1{\cdot}10^{-13}$	$8{\cdot}10^{-13}$	$5{\cdot}10^{-14}$
Zn	$\leq 2{\cdot}10^{-11}$	$\leq 7{\cdot}10^{-12}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$	$4{\cdot}10^{-12}$	$3{\cdot}10^{-11}$

bei den Analysen mit dem neuen Kolben die Werte für Na und K und bei den Analysen mit dem alten Kolben die Werte für Na, K und Ir bei den langen Bestrahlungszeiten deutlich höher sind. Für die anderen aufgeführten Elemente können diesbezüglich keine Aussagen gemacht werden. Die Ergebnisse der Analysen mit den kurzen Bestrahlungszeiten legen die Obergrenzen für die Blindwerte fest, die aufgrund der Probenbehandlung vor der Bestrahlung verursacht werden. Sie sagen auch aus, daß das subgeboilte Wasser, das für die Reinigung der Bestrahlungskolben bei Szintillatoranalysen und anderer Gefäße

verwendet wird, mindestens diese Reinheit besitzt.
Als Ursache für die höheren Blindwerte bei längeren Bestrahlungszeiten kommt neben der Diffusion von Verunreinigungen aus dem Quarz die Kontamination der Probe durch Poolwasser in Betracht, wobei diese allerdings kontinuierlich ablaufen muß, um die Zeitabhängigkeit zu erklären. Denkbar ist zum Beispiel der Transport von kleinen Wassertröpfchen, aber in [Ang97] wurde gezeigt, daß die Mengen an Poolwasser, die nötig wären, um die hohen Werte der langen Bestrahlungen zu erklären, im Bereich von 5 bis 10 ml liegen müßten, was schwer vorstellbar ist. Außerdem stimmt das Verhältnis von Na und La in den Proben nicht mit dem im Poolwasser überein [Ang97].

Damit rückt die Diffusion von Verunreinigungen in den Mittelpunkt der Überlegungen. Leider liegen mit der 23 h Bestrahlung des neuen Kolbens und den 96 h Bestrahlungen der alten Kolben keine identischen Voraussetzungen bei der Bestrahlungszeit vor. Ein Vergleich der Na-Werte für die kurze und die lange(n) Bestrahlung(en) bei beiden Kolbentypen stützt die Hypothese, daß ein linearer Zeiteffekt vorliegt, auch wenn dafür ein wirklicher Beweis erst erbracht werden muß. Korrigiert man die Werte der 23 h Bestrahlung mit einem Faktor 4, liegen die Werte für Na, K, Ir und W immer noch deutlich unterhalb denen der 96 h Bestrahlungen. Die verbleibende Diskrepanz läßt sich dann nur noch über die unterschiedliche Reinheit der Kolben erklären.
Ein quantitativer Vergleich zwischen den Verhältnissen der Werte in den Wasserproben und denen der Kolben läßt sich mit der Analyse altII durchführen, da die Werte für den alten Kolben in Tab. 9.1 für den bei dieser Messung verwendeten Kolben repräsentativ sind. Während sich für Na und K das Verhältnis der Verunreinigungskonzentrationen des alten und neuen Kolbens in den Ergebnissen der Wasseranalysen im wesentlichen widerspiegelt, liegen die Werte für Sb oder W für die 23 h Bestrahlung zu hoch. Allerdings können für diese Elemente die Blindwerte auch von einer anderen Quelle verursacht worden sein.

Die Diffusion von Verunreinigungen aus dem Quarz ist somit die gegenwärtig plausibelste Erklärung für Blindwerte bei den Szintillatoranalysen. Es ist deshalb davon auszugehen, daß mit den neuen Kolben die Blindwerte für Kalium und auch für einige andere Elemente (s. Tab. 9.1) um ein bis zwei Größenordnungen gesenkt werden können. Mit dem gegenwärtig für K in Szintillatoren erzielten Blindwertbereich von $3 - 20 \cdot 10^{-12}$g/g ist diese Reduktion dennoch zu gering, um eine Konzentration von 10^{-14}g/g nachweisen zu können. Warum die bei organischen Proben erzielten Blindwerte für die gleichen Kolben um etwa eine Größenordnung niedriger liegen als bei den Wasseranalysen, bleibt allerdings eine offene Frage. Die höhere Löslichkeit von Ionen in Wasser wäre eine mögliche Erklärung. Trotz einiger offener Fragen und der Notwendigkeit weiterer Messungen geben die Untersuchungen Anlaß, über eine Alternative zu den Quarzkolben als Bestrahlungsgefäß nachzudenken.

9.2 Silizium als hochreines Behältermaterial

Als Alternative zu synthetischem Quarz als Behältermaterial bietet sich zonengezogenes einkristallines Silizium an, das bekanntermaßen zu den reinsten Feststoffen zählt, die gegenwärtig verfügbar sind. Bezüglich der Aktivierbarkeit der Matrix ist es naturgemäß

ähnlich gut geeignet wie Quarz.
Das für die Fertigung vorhandene Silizium wurde zur Kontrolle mit NAA untersucht. Durch die schlechte Aktivierbarkeit der Matrix läßt sich Silizium bereits mit INAA sehr sensitiv untersuchen. Bei kleineren Proben im Grammbereich und nicht zu starker Aktivierung macht eine radiochemische Trennung nach der Bestrahlung meistens wenig Sinn, da der externe Untergrund der Messung dominiert. Um jedoch die Möglichkeiten der NAA im Sinn der in Kap. 6.3.1 angesprochenen kombinierten Optimierung der relevanten Faktoren auszuschöpfen, wurden die Proben auch bei einem thermischen Neutronenfluß von $1 \cdot 10^{14}\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1}$ 29 h für kurzlebigere und ca. 450 h für langlebigere Nuklide bestrahlt. Bei diesen starken Aktivierungen würde der interne Untergrund durch die Probe auch bei normal abgeschirmten Meßplätzen deutlich überwiegen. Verantwortlich dafür ist einmal das ^{24}Na, das aus Silizium durch die Reaktion ^{28}Si(n,αp)^{24}Na gebildet wird. Mit seiner Halbwertszeit von 15 h Stunden und den hohen Energien der beim Zerfall emittierten γ's begrenzt ^{24}Na u.a. die Sensitivität beim Nachweis von Kalium, das vor allem in Hinblick auf BOREXINO ein wichtiges Element darstellt. Um bei den Proben für kurzlebige Nuklide wie Kalium nicht durch ^{24}Na begrenzt zu sein, wurden diese Siliziumproben nach der Bestrahlung mit Fluß- und Salpetersäure aufgelöst, die wäßrige Phase eingedampft und anschließend eine HAP-Extraktion des ^{24}Na durchgeführt (s. Kap. 6.3.5). Bei Sili-

Tabelle 9.3: *Ergebnisse der Analyse des zonengezogenen Siliziums in [g/g], das für die Fertigung des Kolbens verwendet wurde. Die mit (*) gekennzeichneten Werte stammen von einer 29 h Bestrahlung, die mit (**) von einer 454 h Bestrahlung und für die Elemente ohne Kennzeichnung wurden die angegebenen Werte mit INAA ermittelt. Die Fehler sind mit einem Faktor 2 anzusetzen.*

Element	Konzentration	Element	Konzentration
Ag (**)	$1{\cdot}10^{-15}$	La	$\leq 3{\cdot}10^{-15}$
Au	$\leq 2{\cdot}10^{-15}$	Lu	$\leq 3{\cdot}10^{-16}$
Ba (**)	$\leq 9{\cdot}10^{-14}$	Mo	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$
Cd	$\leq 5{\cdot}10^{-13}$	Na	$5{\cdot}10^{-10}$
Co (**)	$\leq 3{\cdot}10^{-15}$	Rb (**)	$\leq 3{\cdot}10^{-14}$
Cr	$6{\cdot}10^{-13}$	Sb	$4{\cdot}10^{-14}$
Cs (**)	$\leq 2{\cdot}10^{-15}$	Sc (**)	$1{\cdot}10^{-17}$
Fe (**)	$\leq 2{\cdot}10^{-13}$	U (**)	$\leq 3{\cdot}10^{-17}$
Ga	$\leq 7{\cdot}10^{-14}$	Th (**)	$\leq 3{\cdot}10^{-16}$
In	$\leq 3{\cdot}10^{-13}$	W (*)	$\leq 1{\cdot}10^{-14}$
Ir	$\leq 8{\cdot}10^{-15}$	Zn (**)	$\leq 3{\cdot}10^{-15}$
K (*)	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$	Zr (**)	$\leq 6{\cdot}10^{-14}$

ziumproben für die Analyse langlebiger Nuklide kann der Zerfall des ^{24}Na abgewartet werden, aber durch doppelten Neutroneneinfang am ^{30}Si mit zwischenzeitlichem Zerfall des ^{31}Si wird aus ^{30}Si ^{32}P gebildet, das mit 14.3 d für den Nachweis einiger Nuklide wie ^{233}Pa eine zu lange Halbwertszeit besitzt, um seinen Zerfall abwarten zu können. Obwohl ^{32}P ein reiner β-Emitter ist, reicht die in der Probe erzeugte Bremsstrahlung durch die

starke Aktivierung aus, um den Untergrund eines normal abgeschirmten Meßplatzes zu dominieren. Deswegen wurde die Probe wieder aufgelöst und eingedampft. Mittels einer TBP-Extraktion wurden Np und Pa abgetrennt, und die Phosphoraktivität der wäßrigen Phase wurde durch eine Fällung mit Zirkonphosphat stark reduziert. Das TBP wurde analog zu den Szintillatorproben mit einem kommerziellen Szintillatorcocktail gemischt, um ISAN und eine β-γ-Koinzidenz anwenden zu können. Für eine genauere Beschreibung der radiochemischen Trennschritte und die Ermittlung der Effizienzen siehe [Ang97].

Die Ergebnisse der Siliziumanalyse sind in Tab. 9.3 aufgeführt.

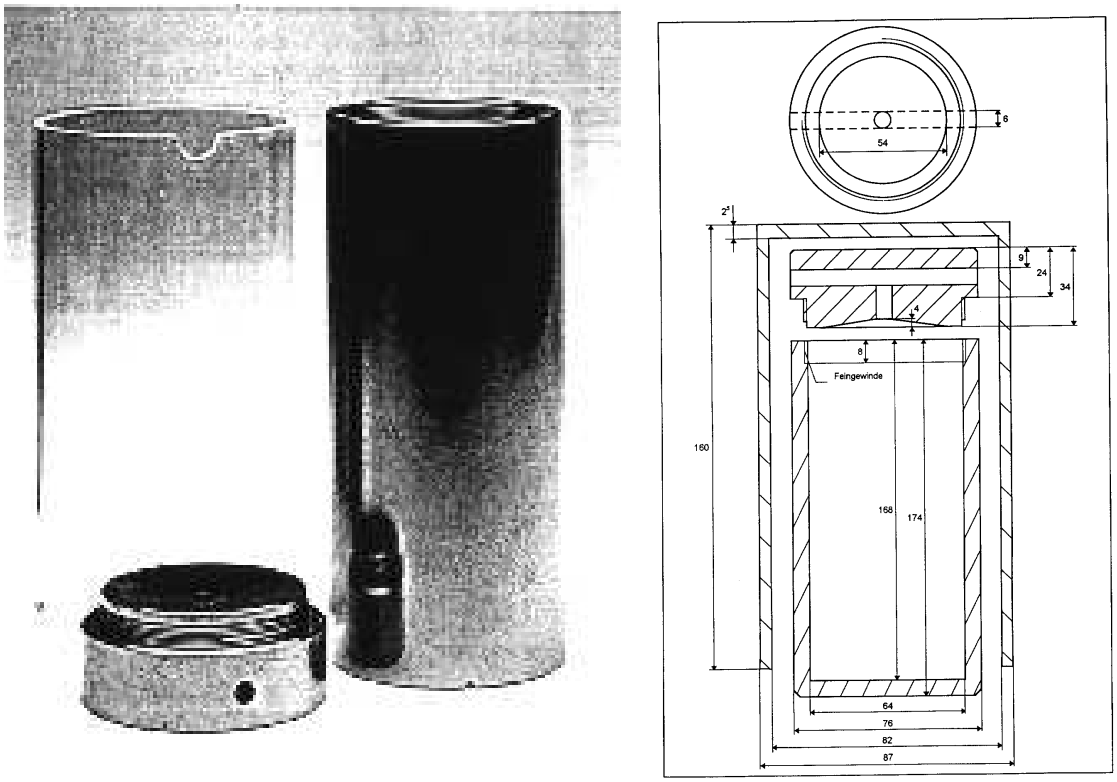

Abbildung 9.1: *Links: Bild des Siliziumkolbens mit Kappe und Quarzbecher, der zur Verdrängung des Poolwassers über den Kolben gestülpt wird. Rechts: Skizze des Kolbens mit Maßen.*

Ein Vergleich mit den Daten für die Quarzkolben zeigt die Attraktivität dieses Materials für ein Bestrahlungsgefäß, wenn man die Kontamination von ultrareinen Flüssigproben durch die Behälterwand so gering wie möglich halten will. Die absoluten Daten für das untersuchte Silizium verdeutlichen die Sensitivität der NAA bei Kombination der relevanten Faktoren. Besonders der Wert für Uran liegt um Größenordnungen unter den Grenzen, die in der Literatur zu finden sind [Alf94].

Eine schematische Skizze des gefertigten Kolbens und ein Bild sind in Abb. 9.1 dargestellt. Auf die für die Fertigung des Kolbens problematischen Materialeigenschaften von Silizium und die Oberflächenätzung des Kolbens nach der Fertigung zur Entfernung eingetragener Verunreinigungen sei auf [Ang97] verwiesen.

9.3 Erste Ergebnisse

Die ersten Bestrahlungen von subgeboilten Reinstwasser mit dem Siliziumkolben zeigten außergewöhnliche Schwankungen der Ergebnisse und unerwartet hohe Werte, die mit hoher Wahrscheinlichkeit durch Kontaminationen der Proben bei der Vorbereitung erklärt werden können. Dazu ist zu bemerken, daß das Design des Siliziumkolbens für die Handhabung vor der Bestrahlung deutlich ungünstiger ist als das der Quarzkolben, deren Geometrie bei der Herstellung allerdings auch wesentlich flexibler gewählt werden kann. Um die letzten Reinigungschritte des Kolbens und die Befüllung mit subgeboiltem Reinstwasser bezüglich Staubfreiheit zu verbessern, wurde der Kolben dann über eine abgeschnittene Pipette aus PE direkt an die Subboilinganlage angeschlossen, so daß der Deckel bei diesen Schritten nicht mehr geöffnet werden mußte. Die Ergebnisse von drei auf diese Weise durchgeführten Analysen sind in Tab. 9.4 aufgeführt. Ein Vergleich mit den Ergebnissen der mit einem neuen Quarzkolben und einer Bestrahlungszeit von 23 h durchgeführten Analyse zeigt, daß sich die Werte für die Elemente Na, K, Sb und W nicht sehr unterscheiden. Bei Sb und W kann nicht ausgeschlossen werden, daß die erzielten Werte die Reinheit des Wassers widerspiegeln, das zur Analyse in die Kolben abgefüllt wurde. Für die einstündige Bestrahlung mit einem neuen Quarzkolben wurde jedoch für Na ein besserer Wert erzielt, während für die anderen aufgeführten Elemente keine Aussage diesbezüglich gemacht werden kann. ^{24}Na nimmt allerdings eine Sonderstellung ein, da es aus Silizium durch schnelle Neutronen produziert wird [Nie77] und durch den Rückstoß bei diesem Prozeß auch in die flüssige Probe gelangen könnte. Da dabei die Bestrahlungszeit keine Rolle spielt, müßte der um etwa eine Größenordnung niedrigere Wert der einstündigen Bestrahlung mit einem neuen Quarzkolben durch den geringeren Siliziumanteil im Quarz und die bessere Oberfläche der Quarzkolben erklärt werden, um die Hypothese aufrecht erhalten zu können.

Tabelle 9.4: *Ergebnisse von drei Bestrahlungen von subgeboiltem Reinstwasser in einem Siliziumkolben. Die Fehler betragen ungefähr 20%.*

Element	1 h	42 h	48 h
As	$\leq 4{\cdot}10^{-14}$	$4{\cdot}10^{-14}$	$2{\cdot}10^{-14}$
Ca	$\leq 4{\cdot}10^{-9}$	$\leq 7{\cdot}10^{-11}$	$\leq 2{\cdot}10^{-10}$
Cr	$\leq 4{\cdot}10^{-12}$	$5{\cdot}10^{-13}$	$1{\cdot}10^{-12}$
Fe	$\leq 2{\cdot}10^{-10}$	$\leq 6{\cdot}10^{-12}$	$\leq 2{\cdot}10^{-11}$
Ir	$\leq 2{\cdot}10^{-14}$	$\leq 4{\cdot}10^{-15}$	$\leq 7{\cdot}10^{-15}$
K	$\leq 3{\cdot}10^{-12}$	$6{\cdot}10^{-12}$	$4{\cdot}10^{-12}$
La	$1{\cdot}10^{-14}$	$2{\cdot}10^{-15}$	$1{\cdot}10^{-14}$
Na	$2{\cdot}10^{-12}$	$2{\cdot}10^{-12}$	$2{\cdot}10^{-12}$
Sb	$\leq 7{\cdot}10^{-14}$	$3{\cdot}10^{-14}$	$6{\cdot}10^{-14}$
W	$\leq 4{\cdot}10^{-14}$	$1{\cdot}10^{-14}$	$1{\cdot}10^{-14}$
Zn	$\leq 6{\cdot}10^{-12}$	$\leq 3{\cdot}10^{-12}$	$\leq 2{\cdot}10^{-12}$

Für K gibt es für die ähnlichen Werte insofern eine Erklärung, als gezeigt wurde, daß durch Ar in der Probe ein Blindwert für K hervorgerufen wird [Ang97]. Dieser Effekt sollte sich naturgemäß für beide Kolbenarten nicht sehr unterscheiden.

In jedem Fall sind weitere Untersuchungen nötig, um herauszufinden, welche Faktoren auf welchem Niveau zu Blindwerten führen. Neben der Beseitigung von Ar als Blindwertfaktor für K wird der Siliziumkolben eine wichtige Voraussetzung sein, in den für BOREXINO relevanten Bereich von 10^{-14}g/g vorzustoßen.

Kapitel 10

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Neutronenaktivierungsanalysen(NAA)-Methoden entwickelt und an der Testapparatur CTF des solaren Neutrinoexperiments BOREXINO mitgewirkt, um zu testen, welche potentiellen Detektorkomponenten die hohen Anforderungen an die Reinheit bezüglich radioaktiver Spuren erfüllen.
BOREXINO soll als erstes Experiment den Fluß der solaren ^{7}Be-Neutrinos direkt bestimmen und dadurch zur Lösung des solaren Neutrinorätsels beitragen. Dieses Rätsel besteht darin, daß die vier bisher durchgeführten Sonnenneutrinoexperimente weniger solare Neutrinos messen, als von den Standard-Sonnenmodellen vorhergesagt wird. Für masselose Neutrinos im Rahmen des Standardmodells der elektroschwachen Wechselwirkung sagen die Daten besonders für den ^{7}Be-Fluß ein starkes Defizit gegenüber den theoretischen Vorhersagen voraus. Gegenwärtig gibt es keine plausiblen Lösungsansätze, die dieses Defizit durch veränderte Abläufe in der Sonne oder Wirkungsquerschnitte der Fusionsreaktionen erklären können. Für die dadurch favorisierten Neutrinooszillationen gibt es drei Bereiche der Oszillationsparameter Δm^2 und $\sin^2 2\Theta$, die die theoretischen Vorhersagen der SSM mit den Daten in Einklang bringen können. Für diese Parameterbereiche ergeben sich unterschiedliche Vorhersagen für die Höhe und die zeitliche Variation des ^{7}Be-Flusses, so daß mit BOREXINO eine Eingrenzung der Lösungen möglich sein wird. Der Nachweis von Neutrinooszillationen würde die Existenz von massiven Neutrinos und damit von Physik jenseits des Standardmodells der elektroschwachen Wechselwirkung bedeuten.

In BOREXINO sollen die Neutrinos über ν-e$^-$-Streuung in einem Flüssigszintillator nachgewiesen werden. Aus der erwarteten Signalrate und der Signatur dieser Ereignisse ergeben sich für den Flüssigszintillator Anforderungen an den U- und Th-Gehalt im Bereich von 10^{-16}g/g und für den K-Gehalt im Bereich von 10^{-14}g/g. Das Verhältnis von ^{14}C/^{12}C im Szintillator darf 10^{-18} nicht wesentlich übersteigen.

Da es keine Analysemethoden mit ausreichender Sensitivität gegeben hat, wurden die CTF gebaut und NAA-Methoden entwickelt, um die Machbarkeit des Experiments zu demonstrieren. Die CTF ist im wesentlichen ein verkleinerter Prototyp des im Aufbau befindlichen BOREXINO-Detektors, in dem statt 300 t 4.5 t Flüssigszintillator verwendet werden. Trotz der kleineren Ausmaße besitzt die CTF eine ausreichende Sensitivität für ^{14}C und durch Ausnützung verzögerter Bi-Po-Koinzidenzen in den Zerfallsketten auch für ^{238}U und ^{232}Th.

Für einen Szintillator bestehend aus Pseudocumol (PC) als Lösungsmittel und Diphenyloxazol (PPO) als primärer Wellenlängenschieber wurden für ^{238}U ein Wert von $(4 \pm 2) \cdot 10^{-16}$g/g und für ^{232}Th ein Wert von $(2.5^{+1.3}_{-1.0}) \cdot 10^{-16}$g/g bestimmt. Für das Verhältnis von $^{14}C/^{12}C$ ergab sich ein Wert von $(1.80 \pm 0.01) \cdot 10^{-18}$. Damit konnte für diesen Szintillator gezeigt werden, daß die Anforderungen in BOREXINO erfüllbar sind, wobei das Lösungsmittel nach der Produktion in der Raffinerie keiner weiteren Reinigung und das PPO lediglich einer einfachen Wasserreinigung unterzogen wurde.

In der CTF kann mit ^{238}U und ^{232}Th nur ein Teil der für den Untergrund in BOREXINO relevanten quasistabilen natürlichen Radionuklide wie ^{40}K, ^{87}Rb, ^{113}Cd, ^{115}In, ^{138}La, ^{177}Lu, ^{232}Th und ^{238}U mit ausreichender Sensitivität bestimmt werden. Für ^{238}U und ^{232}Th gilt der über die verzögerten Koinzidenzen abgeleitete Wert streng genommen nur für ^{226}Ra und ^{228}Th, da sich ^{238}U und ^{232}Th mit diesen Nukliden wegen ihrer langen Halbwertszeit im Nichtgleichgewicht befinden können. Deswegen ist es erforderlich, neben den anderen Radionukliden auch ^{238}U und ^{232}Th zusätzlich zur CTF direkt zu messen. Außerdem muß neben dem Szintillator auch das Material für den Szintillatorbehälter und die den Szintillator umgebende Abschirmflüssigkeit mit hoher, wenn auch nicht mit der für den Szintillator nötigen Sensitivität untersucht werden. Aus diesen Gründen wurden im Rahmen dieser Dissertation NAA-Methoden entwickelt, um diese Aufgaben für BOREXINO zu erfüllen.

Um die außergewöhnliche Sensitivität zu erzielen, wurde eine kombinierte Optimierung der relevanten Faktoren vorgenommen. Dazu zählen die Installation einer Reinbox für die Probenvorbereitung, um eine Kontamination vor der Bestrahlung zu vermeiden, die Ausweitung der vorhandenen Wasserbestrahlungsvorrichtung für organische Flüssigkeiten, um Probenvolumina von 250 ml bis zu einigen Tagen bestrahlen zu können, die Einführung kleiner 10 ml Kolben, in denen neben Flüssigkeiten auch Kunststoffmengen im Grammbereich für einige Tage bestrahlt werden können, die Anwendung radiochemischer Methoden, um den Untergrund interferierender Nuklide zu verringern, und der Einsatz von Koinzidenztechniken bei der Probenmessung, um den verbleibenden Untergrund weiter zu reduzieren.

Für die als Material für den Szintillatorbehälter vorgesehene Nylonsorte C38F von Bayer wurden verschiedene Methoden für den Nachweis von U und Th getestet, wobei die Bestrahlung von Mengen im Grammbereich in den Miniaturkolben für einige Tage mit anschließender Naßveraschung und Extraktion mit Tri-butylphosphat (TBP) die vielversprechendste Methode ist. Mit Werten im Bereich von $7\text{-}36 \cdot 10^{-12}$ für U und $12\text{-}38 \cdot 10^{-12}$ für Th erfüllt die Nylonfolie aus C38F die Anforderungen in BOREXINO.

Als geeignetste Methode für die Abtrennung der interessierenden Nuklide von den bestrahlten Flüssigszintillatoren erwies sich die Säureextraktion mit anschließender Naßveraschung der verbleibenden organischen Reste. Zur Abtrennung von ^{239}Np und ^{233}Pa, die zum Nachweis von ^{238}U und ^{232}Th verwendet werden, von den meisten interferierenden Nukliden wurde als letzter Schritt eine TBP-Extraktion durchgeführt.
Die entwickelte NAA-Methode für Flüssigszintillatoren erreicht für alle quasistabilen natürlichen Radionuklide außer ^{40}K und ^{87}Rb die für BOREXINO erforderliche Sensitivität, die für ^{238}U 10^{-16}g/g beträgt. Durch Anwendung dieser NAA-Methode konnte gezeigt werden, daß mit Wasserextraktion von kommerziell erhältlichem PPO die erfor-

derlichen Reinheiten für alle natürlichen quasistabilen Radionuklide bis auf ^{40}K erreichbar sind. Tests zur Säulenreinigung von Phenyl-Xylylethan (PXE)/para-Terphenyl (p-TP) mit Kieselgel demonstrierten die Reinigungseffizienz dieser Methode für die oben aufgeführten Radionuklide, aber für ^{238}U und ^{232}Th lagen die erzielten Werte im gereinigten PXE/p-TP noch um etwa eine Größenordnung zu hoch. Für den PC/PPO-Szintillator der CTF konnte bis auf ^{40}K und ^{87}Rb gezeigt werden, daß er die Anforderungen für BOREXINO erfüllt.

Systematische Untersuchungen mit Reinstwasser ergaben, daß die für die Bestrahlung von Flüssigszintillatoren verwendeten 250 ml Kolben aus synthetischem Quarz Blindwerte verursachen, die vor allem bei K die für BOREXINO nötige Sensitivität der NAA-Methode beschränken. Zur Verbesserung der Blindwerte wurde ein 500 ml Kolben aus zonengezogenem einkristallinem Silizium getestet. Das verwendete Silizium wurde mit NAA analysiert und besitzt für K und viele andere Elemente gegenüber synthetischem Quarz um mindestens drei bis vier Größenordnungen niedrigere Spurengehalte. Für U wurde zum Beispiel eine Nachweisgrenze von $3 \cdot 10^{-17}$g/g bestimmt. Erste Analysen von Reinstwasser mit diesem Kolben zeigen noch unerwartet hohe Werte für Kalium im Bereich von 10^{-12}g/g, die jedoch wahrscheinlich von Argon in der Probe verursacht wurden.

Zukünftige Untersuchungen müssen zeigen, ob mit der bestehenden Flüssigkeitsbestrahlungsvorrichtung am Forschungsreaktor in Garching die Ar-Konzentration in den Proben ausreichend niedrig gehalten werden kann und ob für diesen Fall die Blindwerte durch die Verwendung des Siliziumkolbens signifikant gesenkt werden können. Neben den Blindwerten muß auch die instrumentelle Nachweisgrenze der NAA-Methode für Kalium verbessert werden. Durch den Bau eines Untergrundlabors in Garching und die Ausstattung der Meßplätze mit einem Myonenveto werden die dafür relevanten Schritte unternommen. Die NAA-Methode für Flüssigszintillatoren muß verfeinert werden. Durch die Verwendung von Tracernukliden für Neptunium und Protactinium, sowie die Bestimmung der chemischen Ausbeute für die anderen natürlichen radioaktiven Elemente kann die Bestimmung der Effizienzen verbessert und der systematische Fehler verringert werden. Höhere Effizienzen sollten durch die Verwendung von Ionentauschersäulen statt der TBP-Extraktion und den Einsatz eines automatisierten Säureextraktors statt der Scheidetrichter erzielt werden. Obwohl für ^{232}Th und ^{238}U die erforderlichen Nachweisgrenzen bereits erreicht worden sind, erfordert die prinzipiell in BOREXINO einsetzbare statistische Subtraktion des von diesen Nukliden verursachten Untergrundes eine weitere Verbesserung der Sensitivität zur Verringerung des statistischen Fehlers. Für ^{238}U kann dazu statt der bisher verwendeten verzögerten β-e$^-$-γ-Koinzidenz eine verzögerte β-e$^-$-Koinzidenz eingesetzt werden. Durch die deutlich höhere Effizienz, mit der diese Koinzidenz nachgewiesen werden kann, sollte eine Nachweisgrenze von 10^{-17} möglich sein. Allerdings ist dafür eine Verbesserung der radiochemischen Methoden, wie sie bereits diskutiert wurde, und wahrscheinlich eine Pulsformanalyse nötig, um Ereignisse durch elektronisches Rauschen zu unterdrücken. Für ^{232}Th ist neben der Verbesserung der radiochemischen Methoden vor allem die Reduktion des äußeren Untergrunds der Meßplätze erforderlich, wie sie durch die oben erwähnten Installationen angestrebt wird.

Literaturverzeichnis

[Alt96] M. Altmann, Proceedings of Ringberg Workshop on Astro-Particle- Physics, Tegernsee, Herausgeber: A.Weiss et al., (1996).

[Ang97] G. Angloher, Untersuchungen zur Reinheit von Komponenten des BOREXINO-Detektors, Diplomarbeit, TU München (1997).

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

[Bah92] J.N. Bahcall and M.H. Pinsonneault, *Rev. Mod. Phys.* **64**, 885 (1992).

[Bah94] J.N. Bahcall et al., Has a Standard Model Solution to the Solar Neutrino Problem Been Found?, unveröffentlicht (1994).

[Bah95] J.N. Bahcall and M.H. Pinsonneault, *Rev. Mod. Phys.* **67**, 781 (1995).

[Bah96a] J.N. Bahcall and A. Ulmer, *Phys. Rev.* D **53(8)**, 4202 (1996).

[Bah96b] J.N. Bahcall and P.I. Krastev, *Phys. Rev.* D **53(8)**, 4211 (1996).

[Bah96c] J.N. Bahcall and M.H. Pinsonneault, Status of Solar Models, Proceedings of Neutrino'96-conference, Helsinki, preprint.

[Bah97] J.N. Bahcall and P.I. Krastev, *Phys. Rev.* C **55**, 929 (1997).

[Baj83] S. Bajo et al., *Analytica Chimica Acta*, **149**, 321 (1983).

[Ben96] J. Benziger et al., A Proposal for the Borexino Solar Neutrino Experiment, Princeton (1996).

[Bet38] H. Bethe and C. Critchfield, Phys. Rev. **54**, 248 und 862 (1938).

[Bet39] H. Bethe, Energy Production in Stars, Phys. Rev. **55**, 434 (1939).

[Ber94] V. Berezinsky et al., *Phys. Lett.* B **341**, 38 (1994).

[Ber95] V. Berezinsky, Solar Neutrino Problem, Preprint LNGS-95/14.

[Ber96a] V. Berezinsky et al., *Phys. Lett.* B **365**, 185 (1996).

[Ber96b] V. Berezinsky, Solar Neutrinos, Proceedings of 'Particles and Cosmology', Baksan Valley, World Scientific (1996).

[Ber96c] V. Berezinsky, Highlights of Astroparticle Physics, Preprint INFN/TH-96/01.

[Boc72] R. Bock, Aufschlußmethoden der Anorganischen und Organischen Chemie, Verlag Chemie, Weinheim (1972).

[Bor91] BOREXINO Coll., Borexino Proposal, INFN Milan (1991).

[Bor92] Borexino - A Real Time Detector For Low Energy Solar Neutrinos, proposal submitted to the National Sience Foundation by Princeton University (1992).

[Bor96a] Adddendum to the Borexino Proposal, INFN Milan (1996).

[Bor96b] Status report of: BOREXINO Project, The Counting Test Facility and its results, from the Italian BOREXINO Collaboration, (1996).

[Bro94] J.A.C. Broekaert, Plasma Optical Emission And Mass Spectrometry, in: Determination of Trace Elements, Editor: Zeev B.Alfassi, Verlag Chemie, Weinheim (1994).

[Cal96] E. Calabresu, *Nucl. Phys.* B *Proc. Suppl.* **48**, 343 (1996).

[Cas94] V. Castellani et al., *Phys. Lett.* B **324**, 425 (1994).

[Che85] H.H. Chen, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1534 (1985).

[Cle94] B.T. Cleveland et al., Proceedings of the 23rd ICRC, Calgary, Alberta, Kanada, July (1994).

[Cle95] B.T. Cleveland, *Nucl. Phys.* B *Proc. Suppl.* **38**, 47 (1995).

[Cor86] F. De Corte et al., INW/KFK Interim Report, A Compilation of k_0, k_{Au} Factors and Related Nuclear Data for 112 Radionuclides of Interest in NAA, (1986).

[Cri95] J. Christensen-Dalsgaard, *Nucl. Phys.* B *Proc. Suppl.* **48**, 325 (1996).

[Cum96] A. Cumming, W.C. Haxton, *Phys. Rev. Lett.* **77(21)**, 4285 (1996).

[Dar94] A. Dar, G. Shaviv, Has a Standard Physics Solution to the Solar Neutrino Problem Been Found? - A response, unveröffentlicht (1994).

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

[Dav96] R. Davis, *Nucl. Phys.* B *Proc. Suppl.* **48**, 284 (1996).

[Erd79] G. Erdtmann, W. Soyka, The Gamma Rays of the Radionuclides, Verlag Chemie, Weinheim (1979).

[Gal92] GALLEX Coll., *Phys. Lett.* B **285**, 367 (1992).

[Gal95] GALLEX Coll., *Phys. Lett.* B **342**, 440 (1995).

[Gal96] GALLEX Coll., *Phys. Lett.* B **388**, 384 (1996).

[Gir68] F. Girardi, E. Sabbioni, *J. Radioanal. Chem.*, **1**, 169 (1968).

[Gme] Gmelin, Handbook of Inorganic Chemistry, Pa Erg.Bd.:2, S. 121ff.

[Gol93] Th. Goldbrunner, Untersuchungen zur Eigenradioaktivität im Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO, Diplomarbeit, Technische Universität München (1993).

[Gol95] Th. Goldbrunner et al., Neutron Activation Analysis of Detector Components for BOREXINO, Proceedings „Ringberg Workshop on Astro-Particle-Physics“, Schloß Ringberg, Tegernsee 6.-10.3.1995, Herausgeber: A. Weiss et al., Eigenverlag (1995), S.11-17.

[Gol97] Th. Goldbrunner, *J. Radioanal. Chem.*, **216(2)**, 293 (1997).

[Gro89] K. Grotz, H. Klapdor, Die schwache Wechselwirkung in Kern-, Teilchen- und Astrophysik, Teubner, Stuttgart (1989).

[Hat94] N. Hata, S. Bludman, P. Langacker, *Phys. Rev.* D **49(7)**, 3622 (1994).

[Hat95] N. Hata, W.C. Haxton, *Phys. Lett.* B **353**, 422 (1995).

[Hat96] W.C. Haxton, *Nucl. Phys.* B *Proc. Suppl.* **48**, 317 (1996).

[Hen96] R. v. Hentig, Neutronenaktivierungsanalysen von Komponenten des Sonnenneutrinoexperimentes BOREXINO, Diplomarbeit, TU München (1996).

[Ish60a] T. Ishimori et al., *Bull. Soc. Jap.*, **33**, 1443 (1960).

[Ish60b] T. Ishimori et al., *Bull. Soc. Jap.*, **33**, 636 (1960).

[Kam96] Kamiokande Coll., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1683 (1996).

[Kim80] J.I. Kim et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **177**, 557 (1980).

[Kim87] J.I. Kim et al., *Fresenius Z Anal Chem*, **327**, 495 (1987).

[Kim93] C.W. Kim, A. Pevsner, Neutrinos in Physics and Astrophysics, harwood academic publisher (1993).

[Kuz66] V. Kuzmin, Sov. Phys. JETP **22**, 1051 (1966).

[Lun96] LUNA Coll., *Phys. Lett.* B **389**, 452 (1996).

[Mik86] S. Mikheyev, A. Smirnov, Nuovo Cimento 9C, 17 (1986).

[Mil94] G.M. Milton, *Appl. Radiat. Isot.*, **45(5)**, 539 (1994).

[Mur76] T.J. Murphy, Accuracy in Trace Analysis: Sampling, Sample Handling, and Analysis, Proceedings of the 7th IMR Symposium, Held Oct. 7-11, 1974, Gaithersburg, Md.(1976).

[Nef96] M. Neff, Untersuchungen zum Untergrund durch Radioaktivität und kosmische Strahlung im Sonnenneutrinoexperiment BOREXINO, Diplomarbeit, Technische Universität München (1996).

[Nil90] H. Nilles, Beyond the Standard Model, Vorlesung bei „ Theoretical Advanced Study Inst. in Elementary Particle Physics ", Univ. of Colorado, Boulder (1990); Preprint TUM-TH-117/90.

[Obe92] L. Oberauer, F.v.Feilitzsch, Rep. Prog. Phys. **55**, 1093 (1992).

[Pfe95] G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius, W. Seelmann-Eggebert †, Karlsruher Nuklidkarte, 6. Auflage, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1995).

[Pov95] B. Povh et al., Teilchen und Kerne, Springer, Berlin et al. (1995).

[Rag76] R. Raghavan, *Phys. Rev. Lett.* **37**, 259 (1976).

[Rag88] R. Raghavan, „Design Concepts for Borex", AT&T Bell Labs Report 11131-880114-02TM.

[Sag96a] SAGE Coll., *Nucl. Phys.* B *Proc. Suppl.* **48**, 299 (1996).

[Sag96b] SAGE Coll., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4708 (1996).

[Sch96] Prof. Schuster, private Mitteilung.

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

[Tak93] M. Takita, in: Frontiers of Neutrino Astrophysics, edited by Y. Suzuki and K. Nakamura, Universal Academy Press, Tokyo (1993).

[Toe94] G. Tölg und P. Tschöpel, Systematic Errors in Trace Analysis, in: Determination of Trace Elements, Editor: Zeev B.Alfassi, Verlag Chemie, Weinheim (1994).

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

[Wah51] A.C. Wahl, N.A. Bonner, Radioactivity applied to chemistry, John Wiley + sons (1951).

[Wol78] L. Wolfenstein, *Phys. Rev.* D **17**, 2369 (1978).

Abbildungsverzeichnis

1.1 *Die drei wichtigsten Zweige des pp-Zyklus in der Sonne. Bei vier Reaktionen werden Neutrinos emittiert, die nach den auf der linken Seite der Reaktion beteiligten Kernen als pp-, pep-, ^{7}Be- und ^{8}B-Neutrinos bezeichnet werden.* 4

1.2 *Das solare Neutrinospektrum nach Bahcall [Bah92]. Gezeigt sind die Neutrinoflüsse am Ort der Erde als Funktion der Neutrino-Energie. Die wichtigsten Neutrinozweige aus dem CNO-Zyklus sind gestrichelt gezeichnet. Bei kontinuierlichen Spektren ist der Fluß in $MeV^{-1}cm^{-2}s^{-1}$ angegeben, bei Linienspektren in $cm^{-2}s^{-1}$.* 5

1.3 *Entnommen aus [Alt96]. Das erwartete Signal in* GALLEX *in Abhängigkeit des ^{7}Be-Flusses bei Annahme eines minimalen Sonnenmodells. Dieses setzt nur den pp-Zyklus als Prozeß der Energiefreisetzung, die im Wesentlichen durch die Luminosität der Sonne bestimmte Energiefreisetzungsrate und Gleichgewicht in der Sonne voraus. Die mit den Daten von* GALLEX *bei 90% Konfidenzlimit noch vereinbare Obergrenze für den ^{7}Be-Fluß von ungefähr $2 \cdot 10^9 cm^{-2}s^{-1}$ liegt unterhalb den Vorhersagen aller SSM.* 8

1.4 *Entnommen aus [Hat94]. Dargestellt ist der erlaubte Bereich für den $\Phi(^7Be)$ und den $\Phi(^8B)$, normiert auf die vorhergesagten Flüsse nach Bahcall, für den gemeinsamen Fit der vier bisher durchgeführten solaren Neutrinoexperimente bei 90, 95 und 99% C.L.. Weiter sind einige Nicht-SSM eingezeichnet, die jedoch wie das SSM nach Bahcall (rechts oben) ebenfalls keine Lösung der experimentellen Situation darstellen (s. Text).* 10

1.5 *Entnommen aus [Ber96a]. Es ist dargestellt, wie man durch willkürliche Änderung der S-Faktoren und der Temperatur versuchen kann, die Vorhersagen des SSM von Bahcall an die gemessenen Daten anzupassen. Dies funktioniert nur bei Vernachlässigung des CNO-Zyklus und bei gleichzeitiger Anpassung des S_{17}- und des S_{33}-Faktors.* 11

1.6 *Eingezeichnet sind die drei Parameterbereiche, die das solare Neutrinorätsel erklären und der Parameterbereich, durch den sich die atmosphärische Neutrinoanomalie auf Neutrinoeigenschaften zurückführen läßt. Die drei Parameterbereiche des solaren Neutrinorätsels lassen sich in die Vakuum- oder „Just so“ -Lösung bei $\Delta m^2 \approx 10^{-10}$ und in die beiden MSW-Lösungen bei $\Delta m^2 \approx 10^{-5}$ unterteilen. Im oberen Bereich sind die Grenzen abgebildet, die durch terrestrische Oszillationsexperimente gewonnen werden konnten.* 13

1.7 *Entnommen aus [Ber96b]. Dargestellt ist das solare Neutrinospektrum und der energieabhängige Verlauf der MSW-Unterdrückungskurve für ν_e's. Für die Niederfluß-SSM ist die Kurve mit $1 \cdot 10^{-3}$ relevant. Diese Kurve kehrt nach ihrem Minimum schneller gegen den Wert 1 zurück und beeinflußt die ^{8}-Neutrinos ab 5 MeV kaum. Für das SSM von Bahcall erklärt ein Mischungswinkel von ca. $8 \cdot 10^{-3}$ die Daten am besten. Diese Kurve führt zu einer deutlichen Unterdrückung der ^{8}B-Neutrinos und zu einer signifikanten Verformung des Spektrums. Man sieht deutlich wie die experimentellen Daten durch den Verlauf der Kurven erklärt werden.* 16

2.1 *Dargestellt ist das erwartete Signal der solaren Neutrinos im* BOREXINO-*Detektor nach den Vorhersagen des SSM von Bahcall, das Signal bei vollständiger Konversion und der Untergrund bei einem U- und Th- Gehalt von $10^{-16}g/g$ und einem K-Gehalt von $10^{-14}g/g$ im Szintillator.* 18

2.2 *Entnommen aus [Hen96]. Die aus den differentiellen Wirkungsquerschnitten für ^{7}Be-Neutrinos bei 862 keV resultierenden Rückstreuspektren der Elektronen für ν_e's (obere Kurve) und ν_μ's bzw. ν_τ's (untere Kurve) bei unendlich guter Energieauflösung (durchgezogene Kurven) und erwarteter Energieauflösung in* BOREXINO *(gestrichelte Kurven).* 19

2.3 *Diese Simulation ist entnommen aus [Ben96]. Signifikanz mit der die jahreszeitliche Variation des Neutrinosignals durch die Exzentrizität der Erdbahn um die Sonne in* BOREXINO *meßbar ist, wenn der angestrebte U- und Th-Gehalt von $10^{-16}g/g$ im Szintillator erreicht wird. Es ist darauf hinzuweisen, daß die y-Achse abgeschnitten dargestellt ist.* 20

2.4 *Entnommen aus [Ben96]. Schematische Skizze des* BOREXINO*-Detektors.* 22

2.5 *Das erwartete ^{7}Be-Signal in* BOREXINO *in Abhängigkeit verschiedener Szenarien, ausgedrückt als Bruchteil des nach dem SSM von Bahcall vorhergesagten Signals. Entnommen aus [Ben96].* 24

3.1 *Zerfallsschema von ^{40}K* 30

3.2 *Zerfallskette von ^{238}U* 31

3.3 *Zerfallskette von ^{232}Th* 33

4.1 *Schematische Skizze der CTF. 4.7m^3 Szintillator im Zentrum werden von 100 konzentrisch angebrachten Photovervielfachern beobachtet. Die Anordnung befindet sich in 1000 t Reinstwasser zur Abschirmung des Szintillators vor äußerer γ-Strahlung.* 39

5.1 *Anpassung eines simulierten ^{14}C-Spektrums an das gemessene Spektrum der CTF, so daß die Flächen zwischen 47-100 keV identisch sind. Die gute Übereinstimmung läßt den Schluß zu, daß wirklich eine ^{14}C-Aktivität vorliegt, die einem $^{14}C/^{12}C$-Verhältnis von $(1.8 \pm 0.1) \cdot 10^{-18}$ entspricht. Entnommen aus [Bor96b].* 44

5.2 *Zerfallskurve des bei der Füllung des Szintillatorbehälters eingebrachten ^{222}Rn. Neben einer exponentiellen Kurve ist ein konstanter Anteil angefittet, um den ^{226}Ra-Gehalt oder die ^{222}Rn-Emanation des Szintillatorbehälters zu bestimmen. Entnommen aus [Bor96b].* 45

5.3 *Dargestellt ist das Spektrum der Einzelereignisse vor und nach den Reinigungsschritten (Wasserextraktion und Destillation). Man sieht deutlich, daß der Peak von ^{210}Po im Spektrum nach der Reinigung verschwunden ist. Entnommen aus [Ben96].* 47

6.1 *Übersicht der für die Sensitivität der NAA relevanten Faktoren. Nur eine kombinierte Optimierung dieser Faktoren führt zu den besten Nachweisgrenzen.* . . . 57

6.2 *Schematische Skizze unserer chemietauglichen Reinbox. Die Vorderseite der Box ist mit einer Plexiglasplatte versehen. Für Manipulationen in der Box sind zwei Handschuhpaare an der Platte angebracht.* 58

6.3 *Schematische Skizze der Flüssigkeitsbestrahlungsvorrichtung am FRM I. Ein 250 ml Quarzkolben wird in einem Köcher aus Aluminium am Kernrand positioniert. Über den Hals des Kolbens ist eine Kappe gestülpt, die das Eindringen von Poolwasser in die Probe verhindert, aber durch Radiolyse entstehendes Gas entweichen läßt. Entnommen aus [Kim80].* 60

6.4 *Schematische Skizze von Miniaturkolben aus synthetischem Quarz, die in die Klappzellen eingeladen werden können und wie die 250 ml Kolben für lange Bestrahlungen von Flüssigkeiten geeignet sind.* 63

6.5 *Aufbau der Meßplätze für Koinzidenzmessungen.* 67

6.6 *Termschema des ^{239}Np-Zerfalls. Bei ca. 36% der β-Zerfälle wird ein isomerer Zustand mit $T_{1/2} = 192\,nsec$ bevölkert, der sich über Emission von γ's und innerer Konversion abregt.* 68

6.7 *Gemessene Zeitauflösung eines großen Germaniumdetektors (150%) und eines LOAx-Germaniumdetektors mit einem Kristalldurchmesser von ca. 70 mm in verschiedenen Energiebereichen.* 69

6.8 *Dargestellt sind die verschiedenen Spektren der Parameter des ^{239}Np-Zerfalls, die bei einer verzögerten β-e^--γ-Koinzidenz aufgezeichnet werden. Nach den eingezeichneten Schnitten im β-, Δt- und e^--Spektrum erhält man das endgültige γ-Spektrum, an Hand dem aus der Höhe der 106 keV Linie der Urangehalt der Probe abgeleitet wird.* 70

6.9 *Abgebildet ist ein Spektrum, bei dem nur eine β-γ-Koinzidenz angewendet wurde, und ein Spektrum nach Anwendung von ISAN. Wegen der hohen Effizienz dieser Koinzidenztechnik ist von diesem Spektrum nur noch ein Kanal mit zwei Ereignissen zu sehen, während vereinzelte Kanäle mit einem Ereignis wegen der logarithmischen Darstellung nicht zu sehen sind. Die Untergrundsunterdrückung im Bereich der 106 KeV-Linie von ^{239}Np beträgt ca. 10^4.* 71

6.10 *Dieses Spektrum stammt von einer Probe mit einem Urangehalt von $1 \cdot 10^{-13} g/g$, bei deren Messung ISAN angewendet wurde. Außer den typischen Linien des ^{239}Np-Zerfalls sind keine andere Linien zu sehen. Die hohe Statistik des Signals verdeutlicht die Sensitivität der Methode.* 71

6.11 *Dieses Spektrum stammt von einer Probe mit einem Urangehalt von $1.4 \cdot 10^{-15} g/g$, bei deren Messung ISAN angewendet wurde. Die 106 keV-Linie des ^{239}Np-Zerfalls hebt sich selbst bei dieser niedrigen Konzentration noch deutlich vom Untergrund ab.* 72

7.1 *Schematische Darstellung des Anticompton-Spektrometers des Instituts für Radiochemie der TU München.* 76

7.2 *Aufbau für Trockenveraschung von Nylon. Ein Quarzkolben mit der Probe wird in ein Heizbad eingesetzt. Der abgewinkelte Aufsatz reduziert den Eintrag von Staub.* 78

8.1 *Radiochemisches Verfahren für bestrahlte Szintillatorproben.* 83

9.1 *Links: Bild des Siliziumkolbens mit Kappe und Quarzbecher, der zur Verdrängung des Poolwassers über den Kolben gestülpt wird. Rechts: Skizze des Kolbens mit Maßen.* 104

Tabellenverzeichnis

1.1 *Zusammenstellung der von verschiedenen SSM vorhergesagten Neutrinoflüsse.* . 4

1.2 *Ergebnisse der bisher durchgeführten solaren Neutrinoexperimente und der Bereich der SSM-Vorhersagen für diese Experimente. Zusätzlich sind die theoretischen Beiträge der einzelnen Neutrinozweige zum Signal der Experimente eingetragen.* 6

3.1 *Grenzen für die verschiedenen Nuklide der Urankette in Abhängigkeit verschiedener Untergrundssubtraktionen, falls* **5 Zerfälle pro Tag und Gruppe im ^{7}Be-Neutrinofenster** *erlaubt sind. Die Mengen sind in Gramm Uranäquivalent pro Gramm Szintillator angegeben. Entnommen aus [Nef96].* 32

3.2 *Grenzen für die verschiedenen Nuklide der Thoriumkette, falls* **5 Zerfälle pro Tag und Nuklidgruppe im ^{7}Be-Neutrinofenster** *erlaubt sind. Die Mengen sind in Gramm Thoriumäquivalent pro Gramm Szintillator angegeben. Entnommen aus [Nef96].* 33

3.3 *Grenzen für einige langlebige natürliche Radionuklide, falls 5 Ereignisse pro Tag in 100 t im Energiebereich von 250 - 800 keV erlaubt sind. Die angegebenen Grenzen beziehen sich auf das jeweilige Element, nicht nur auf das angegebene Isotop. Entnommen aus [Nef96].* 34

3.4 *Angenomme Konzentrationen an U, Th und K in verschiedenen Detektorkomponenten in [g/g] und die damit verbundenen Beiträge zum Untergrund im ^{7}Be-Neutrinofenster in Ereignissen pro Tag in den inneren 100 t des Szintillators. Entnommen aus [Ben96] und mit veränderten Werten skaliert.* 34

5.1 *Beiträge verschiedener Quellen zur Gesamtrate im Neutrinofenster zwischen 250-800 keV vor und nach Betrieb der Reinigungsanlage. Entnommen aus [Bor96b].* . 48

6.1 *Bestimmung des thermischen Neutronenflusses und des Flußverhältnisses für Flüssigbestrahlungskolben aus Quarz. Die Übereinstimmung zeigt, daß die Größen über Flußdrähte, die mittels einer Kapillare zentrisch eingebracht werden, ohne größeren systematischen Fehler gemessen werden können.* 60

6.2 *Verunreinigungskonzentrationen in [g/g] in zwei der für die Flüssigkeitsbestrahlungen verwendeten Quarzkolben aus Suprasil.* 61

6.3 *Elementgehalt der verschiedenen abgeätzten Schichten eines Bestrahlungskolbens in g. Bei jedem Schritt wurden ungefähr 5μm Quarz abgetragen.* 62

6.4 *Bereich der gemessenen Werte bzw. Obergrenzen für Elementkonzentrationen in den auf das jeweilige Element bezogen drei reinsten Proben. Diese Bereiche sind daher als Obergrenze für die Blindwerte der Analysen anzusehen, die mit den in der Regel verwendeten Bestrahlungskolben durchgeführt worden sind.* 63

7.1 *Ergebnisse von Rohrpostbestrahlungen verschiedener Proben der Nylonsorte C38F von BAYER in [g/g]. Die Proben „from box " und „after dryer" bezeichnen Granulat aus verschiedenen Stufen des Produktionsprozesses. Die Fehler der angegebenen Werte belaufen sich auf ca. 20%.* 74

7.2 *Ergebnisse für Nylongranulat „after dryer", das mit INAA (Rohrpost) und RNAA (Miniaturkolben in Klappzelle) analysiert wurde. Die in beiden Analysen gefundenen Elemente zeigen bis auf Eisen sehr gute Übereinstimmung innerhalb der Fehler, die ungefähr 20% betragen.* 77

7.3 *Ergebnisse von Nylonanalysen, bei denen die Folie vor der Bestrahlung trockenverascht und der Rückstand in Säure aufgelöst im Miniaturkolben bestrahlt wurde. Der systematische Fehler durch den Fluß und die Detektoreffizienz liegt bei ungefähr 20%. Zur Diskussion der systematischen Fehler durch die Veraschungsprozedur siehe Text.* 79

8.1 *Ergebnisse der Tracerexperimente für PC. Die erste Spalte gibt an, welcher Prozentsatz von der ursprünglich in die Tracerproben eingesetzten Menge nach der Bestrahlung an der Wand des Bestrahlungskolbens adsorbiert ist. Die zweite und dritte Spalte gibt an, wie sich die restliche Menge der ursprünglich eingesetzten Menge nach der Säureextraktion auf die beiden Phasen verteilt. Die vierte Spalte drückt das Verhältnis der zweiten zur dritten Spalte aus und stellt somit die Effizienz der Säureextraktion dar. Die Gesamtausbeute der letzten Spalte ist die Summe der ersten und zweiten Spalte.* 85

8.2 *Ergebnisse der Tracerexperimente für PXE. Zur Erklärung der Spalten siehe Tabelle für PC.* 86

8.3 *Instrumentelle Nachweisgrenzen und Blindwertbereiche für die NAA-Methode zur Analyse großvolumiger Szintillatorproben in [g/g].* 89

8.4 *Verunreinigungskonzentrationen in Wellenlängenschiebern, die für* BOREXINO *in Betracht gezogen werden. Die systematischen Fehler durch den Neutronenfluß und die Detektoreffizienz betragen ungefähr 20%. Zu den systematischen Fehlern der durch Trockenveraschung oder Säureextraktion vor der Bestrahlung gewonnen Werte siehe Text. Die davon betroffenen Elemente sind mit einem * gekennzeichnet.* 91

8.5 *Ergebnisse von zwei PXE-Analysen. Die eine Probe stammt aus einer Glasflasche, die andere wurde aus den 2 t-Edelstahlbehältern entnommen, die für den Transport des PXE aus USA verwendet wurden. Die Fehler betragen ca. 50%; zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.* 93

8.6 *Ergebisse der Tests zur Wasserextraktion von PC/PPO (ca. 100g/l). Die Werte beziehen sich auf das PPO. In der vierten und sechsten Spalte steht der Reinigungsfaktor für die jeweilige Probe, der sich aus dem Vergleich mit der ungereinigten Probe ergibt. Die Fehler sind mit ca. 50% anzusetzen, zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.* 94

8.7 *Ergebnisse der Tests zur Säulenreinigung von PXE/p-TP mit Kieselgel in [g/g]. In der vierten und sechsten Spalte steht der Reinigungsfaktor für die jeweilige Probe, der sich aus dem Vergleich mit der ungereinigten Probe ergibt. Die Fehler sind mit ca. 50% anzugeben; zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.* 96

8.8 *Ergebnisse der Analysen von CTF-Szintillatoren. Die Fehler betragen ca. 50%, zur Diskussion der Fehler siehe Kap. 8.1.3.* 98

9.1 *Gegenüberstellung der Spurengehalte eines alten und eines unter optimierten Bedingungen hergestellten Bestrahlungskolben aus synthetischem Quarz. Die systematischen Fehler sind mit ca. 50% anzusetzen.* 101

9.2 *Ergebnisse von Analysen eines unter gleichen Bedingungen hergestellten Reinstwassers mit einem alten und neuen Quarzkolben und mit unterschiedlicher Bestrahlungszeit. Die Fehler sind mit ca. 30% anzusetzen.* 101

9.3 *Ergebnisse der Analyse des zonengezogenen Siliziums in [g/g], das für die Fertigung des Kolbens verwendet wurde. Die mit (*) gekennzeichneten Werte stammen von einer 29 h Bestrahlung, die mit (**) von einer 454 h Bestrahlung und für die Elemente ohne Kennzeichnung wurden die angegebenen Werte mit INAA ermittelt. Die Fehler sind mit einem Faktor 2 anzusetzen.* 103

9.4 *Ergebnisse von drei Bestrahlungen von subgeboiltem Reinstwasser in einem Siliziumkolben. Die Fehler betragen ungefähr 20%.* 105

Abkürzungsverzeichnis

ADC	Analog to Digital Converter
CFD	Constant Fraction Discriminator
CTF	Counting Test Facility
FRM	Forschungsreaktor München
FWHM	Full Width of Half Maximum
FWTM	Full Width of Tenth Maximum
HAP	hydratisiertes Antimon(V)oxid
INAA	instrumentelle NAA
NAA	Neutronenaktivierungsanalyse
PC	Pseudocumol (1,2,4-Trimethylbenzol)
PFA	Teflonart (Perfluoralkoxy)
PMT	Photomultipliertube
PPO	Diphenyloxazol (Wellenlängenschieber)
p-TP	para-Terphenyl (Wellenlängenschieber)
PXE	Phenyl-o-Xylylethan
RNAA	Radiochemische NAA
SSM	Standard-Sonnenmodell(e)
TBP	Tri-Butylphosphat
TDC	Time to Digital Converter

Danksagung

Auch wenn eine Doktorarbeit in der Regel eine eigenständige Leistung darstellt, ist ihr Gelingen doch in hohem Maße von der Wahl des Themas, der Betreuung und dem Umfeld abhängig. Daher möchte ich allen Beteiligten recht herzlich danken:

Allen voran gilt mein besonderer Dank Herrn Prof. Franz von Feilitzsch. Mit dem überlassenen Thema hat er mir die Möglichkeit gegeben, mit großer Eigenständigkeit an einem interessanten Experiment der Grundlagenforschung mitzuarbeiten und zugleich auf einem anwendungsbezogenen Arbeitsgebiet zur Weltspitze zu gelangen. Besonders wußte ich seine Art der Betreuung zu schätzen, die sich in ständiger Bereitschaft zur Diskussion und großem Einsatz zur Beschaffung der notwendigen Mittel ausdrückte. An dieser Stelle möchte ich auch seiner Behauptung entgegentreten, ich würde ihm nichts glauben. Seine Meinung über gesellschaftspolitische Fragen aller Art ist mir immer sehr wichtig gewesen.

„Meinen" drei Diplomanden Roger v. Hentig, Marianne Neff und Godehard Angloher danke ich für die gute Zusammenarbeit, die vor allem immer mit viel Spaß verbunden war. Aus den gemeinsamen Experimenten ist ein großer Teil dieser Arbeit hervorgegangen.

Meinem langjährigen Freund Dr. Michael Altmann danke ich für die fruchtbare Wegbegleitung durch die Studien der Physik und Betriebswirtschaft und durch die Promotion, auch wenn er mir die Auflösung meines kleinen Germaniumdetektors unrettbar zerstört hat. Vielleicht schaffen wir es in der Zukunft, an einem Experiment gemeinsam zu arbeiten.

Den anderen Mitgliedern der Münchner BOREXINO Gruppe, Prof. Oberauer, Dr. Stefan Schönert, Dr. Josef Jochum, Dr. Theo Hertrich, die Hagner Sisters, Dr. Gunther Korschinek, Karlheiz Schuhbeck, danke ich für viele interessante Diskussionen und vor allem für die lustige Stimmung auf den zahlreichen Ausflügen zu den Kollaborationstreffen, die unserem Lehrstuhl nicht zu Unrecht den Titel „Happy Institute" eingebracht hat.

Der gesamten Besatzung unseres Lehrstuhls möchte ich für die große Hilfsbereitschaft und die gute Atmosphäre am Institut danken.

Großer Dank gebührt dem Bestrahlungsteam des FRM I um Dr. Gerstenberg, die unsere ständigen Sonderwünsche mit viel Verständnis und Kooperationsbereitschaft aufgenommen haben.

Dem Institut für Radiochemie der TU München bin ich für die intensive Starthilfe und die Bereitstellung diverser Detektoren zu besonderem Dank verpflichtet. Namentlich möchte ich dabei Herrn Prof. Baumgärtner, Dr. Henkelmann, Dr. Lin, Wolfgang Stöwer und Guy Birebent nennen.

Der Besatzung unserer Werkstatt, Herr Seitz, H. Hess und Thomas Richter danke ich für die prompte und zuverlässige Anfertigung diverser Teile.

Allen Mitgliedern der BOREXINO Kollaboration danke ich für gute Zusammenarbeit und die chaotischen Diskussionen auf den Kollaborationstreffen, die zu einer Fortführung des BWL-Studiums angespornt haben.

Meiner lieben Frau danke ich für das große Verständnis, das sie mir bei den zahlreichen Wochenenden im Institut oder bei den Auslandsreisen entgegengebracht hat.