Lehrstuhl E15

Institut für Astro-Teilchenphysik

Fakultät für Physik der Technischen Universität München

Univ.-Prof. Dr. F. von Feilitzsch

SPURENANALYSE PRIMORDIALER RADIONUKLIDE FÜR DAS SOLARE NEUTRINOEXPERIMENT BOREXINO

Roger von Hentig

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. A. J. Buras

1. Prüfer: Univ.-Prof. Dr. F. von Feilitzsch

2. Prüfer: Univ. Prof. Dr.-Ing. P. Kienle

3. Gutachter: Univ.-Prof. Dr. H. J. Körner

Die Dissertation wurde am 18.6.1999 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 23.7.1999 angenommen.

Cosmic Gall

– John Updike –

Neutrinos, they are very small.
They have no charge and have no mass
And do not interact at all.
The earth is just a silly ball
To them, through which they simply pass,
Like dustmaids through a drafty hall
Or photons through a sheet of glass.
They snub the most exquisite gas,
Ignore the most substantial wall,
Cold-shoulder steel and sounding brass,
Insult the stallion in his stall,
And scorning barriers of class,
Infiltrate you and me! Like tall
And painless guillotines, they fall
Down through our heads into the grass.
At night, they enter at Nepal
And pierce the lover and his lass
From underneath the bed-you call
It wonderful; I call it crass.

The New Yorker Magazine, Inc., 1960

ÜBERSICHT

„Was macht Neutrinos für die Physik des 20. Jahrhunderts so interessant?“ – So lautet eine Frage, die sich wohl jeder, der mit diesem Gebiet in Berührung kommt, irgendwann einmal stellt. Nun, es mag an unserer Unkenntnis über diese fundamentalen Teilchen liegen, die uns seit der Postulation durch Wolfgang Pauli im Jahre 1930, nicht wesentlich mehr als ihren Drehimpuls und ihre Händigkeit offenbart haben. Obwohl sie zu einem wichtigen Werkzeug der Kernphysik geworden sind, liegen viele ihrer fundamentalen Eigenschaften noch im Dunklen.

In dem ersten Kapitel soll der Leser dieser Arbeit in den aktuellen Stand der Forschung auf dem Gebiet der solaren Neutrinophysik eingeführt werden. Aus diesem Grund werden einige der Experimente und deren experimentelle Resultate vorgestellt, die in klarem Widerspruch zu den Modellen unserer Sonne stehen. Auf die daraus hervorgehende Problemstellung, wie modifizierte Modelle und Modelle jenseits des Standardmodells der Teilchenphysik, wird eingegangen, soweit dies zum weiteren Verständnis der Arbeit notwendig ist. Das Kapitel schließt mit einem Exkurs über neue Experimente.

Das solare Neutrinoexperiment BOREXINO, das einen Beitrag zu der Lösung dieses Problems leisten kann, wird in Kapitel 2 beleuchtet. Seine Konzeption und die physikalische Zielsetzung werden an dieser Stelle dargelegt. Für BOREXINO ist eines der entscheidenden Kriterien für die Aussagekraft seines Ergebnisses die Reinheit der Detektorkomponenten. Dabei spielen radioaktive Verunreinigungen unterschiedlichen Ursprungs eine Rolle, die in Kapitel 3 diskutiert werden. Auf die Resultate des bisher zur Untersuchung dieser Fragestellung betriebenen Experimentes wird an jener Stelle eingegangen.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt auf dem Nachweis primordialer Radionuklide. Die experimentelle Methodik, die zum Nachweis dieser Nuklide im Spurenbereich verwendet wurde, ist in Kapitel 4 behandelt. Dieser Nachweis macht sich die Überführung langlebiger Radionuklide in kurzlebige Radionuklide in einem Neutronenfeld zunutze. Kombiniert wird diese Neutronenaktivierung mit empfindlichen Meßverfahren zum Nachweis der so erzeugten kurzlebigen Radionuklide. Das spurenanalytische Verfahren ist den Methoden der direkten Aktivitätsmessung komplementär, und diesem für einige Nuklide deutlich an Sensitivität überlegen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden für den Nachweis kleiner Zerfallsraten, aktivitätsarme Meßplätze in dem Untergrundlabor der Technischen Universität München aufgebaut, die in diesem Zusammenhang charakterisiert sind. Die Konzeption eines Anti-Compton-Detektors, welcher hohe Nachweiseffizienzen mit niedriger Eigenaktivität vereint, ist in Abschnitt 4.4 dargestellt.

Die Ergebnisse der Analysen von BOREXINO Detektorkomponenten sind in Kapitel 5 zusammengefaßt und in Kapitel 6 noch einmal zur Diskussion aufgegriffen. An dieser Stelle wird auf die Effizenz von Reinigungsverfahren und die erreichbare Reinheit eingegangen.

Schon an diese Stelle sei der Leser darauf hingewiesen, daß sich die in der Arbeit verwendeten Vertrauensbereiche, soweit es nicht anders angemerkt ist, auf ein Vertrauensniveau von 68% (1σ) und die Grenzen auf ein Vertrauensniveau von 90% beziehen.

1 Solare Neutrinos 5

1.1 Experimente zum Nachweis solarer Neutrinos 7
1.1.1 Chlor-Experiment 7
1.1.2 Gallium-Experimente 8
1.1.3 Wassercherenkovexperimente 8

1.2 Lösungsmodelle für das Neutrinodefizit 9
1.2.1 Sonnenmodellunabhängige Grenzen für Neutrinoflüsse 9
1.2.2 Astrophysikalische und kernphysikalische Ansätze 11
1.2.3 Teilchenphysikalische Ansätze 13

1.3 Zukünftige Sonnenneutrinoxperimente 18
1.3.1 Sudbury Neutrino Observatory (SNO) 18
1.3.2 Low Energy Neutrino Spectroscopy (LENS) 18

2 BOREXINO, ein solares Neutrinoexperiment 20

2.1 Zielsetzung und Konzeption von BOREXINO 20

2.2 Nachweisreaktion 23

3 Untergrund in BOREXINO 26

3.1 Primordiale Radionuklide 26
3.1.1 Thorium 27
3.1.2 Uran 28
3.1.3 Cadmium, Lanthan, Lutetium, Indium, Rubidium 30

3.2 Anthropogene Nuklide 31

3.3 Kosmogene Nuklide 32
3.3.1 Kosmogenes ^{14}C 32
3.3.2 Kosmogenes ^{7}Be 33
3.3.3 Kosmogene Edelgase: ^{39}Ar und ^{81}Kr 33
3.3.4 Myoneninduzierte Radionuklide 34

3.4 Detektorkomponenten in BOREXINO 35
3.4.1 Flüssigszintillatoren 35
3.4.2 Nylon 36
3.4.3 Weitere Detektorkomponenten 38

3.5 Counting Test Facility: Resultate 38

4 Analytik primordialer Radionuklide 42

4.1 Neutronenaktivierungsanalyse 42
4.1.1 Einleitung 42
4.1.2 Spezielle Aspekte 44
4.1.3 Flüssigkeitsbestrahlungsposition 45
4.1.4 Neutronenfeld an der Flüssigkeitsbestrahlungsposition 47
4.1.5 Probenaufbereitung 51
4.1.5.1 Aluminiumproben 52
4.1.5.2 Nylonproben und Kunststoffproben 53
4.1.5.3 Flüssigszintillatoren: Analyse mittels RNAA und Ausbeutebestimmung des Verfahrens 53
4.1.5.4 Flüssig-Flüssig Extraktion 55
4.1.5.5 Desorption adsorbierter Indikatorradionuklide 58
4.1.6 Elementspezifische Separation 59
4.1.6.1 Abtrennung von ^{24}Na 59
4.1.6.2 Abtrennung anderer interferierender Radionuklide 59

4.2 Nachweis der Indikatorradionuklide 62
4.2.1 Koinzidenzmeßtechniken 62
4.2.1.1 Uran: β–γ–Konversionselektronen Messungen zum Nachweis von ^{239}Np 65
4.2.1.2 Effizienzbestimmung 67
4.2.1.3 Thorium: β–γ Messungen zum Nachweis von ^{233}Pa 69
4.2.2 Cadmium, Kalium, Lanthan, Lutetium, Indium und Rubidium 70
4.2.3 Systematische Unsicherheit 70
4.2.4 Statistische Unsicherheit und Nachweisgrenzen 72

4.3 Untergrundarme Gammaspektroskopie 75
4.3.1 Aufbau und Abschirmung der Ge-Detektoren 76
4.3.2 Untergrundaktivität der HPGe-Detektoren 78
4.3.3 Myonenkorrelierter Untergrund 81
4.3.4 Untergrund primordialer Radionuklide 85
4.3.5 Untergrund und Nachweisgrenzen anthropogener Radionuklide 87

4.4 Anti-Compton-Detektor 88

5 Ergebnisse der Analysen 93

5.1 Aluminiumproben 93

5.2 Kunststoffproben 95

5.3 Quencher 97

5.4 Flüssigszintillatoren und deren Konstituenten 98

6 Konsequenzen für BOREXINO 102

6.1 Vergleichende Daten: Counting Test Facility-NAA 102

6.2 Sequentielle Entwicklung der CTF 103

6.3 Stabile Spurenelemente als Indikatoren zum Methodenvergleich 107

7 Zusammenfassung und Ausblick 110

8 Anhang 113

Abbildungsverzeichnis 116

Tabellenverzeichnis 120

Glossar 124

Literaturverzeichnis 125

1 Solare Neutrinos

Fast vierzig Jahre vergingen zwischen den Arbeiten von H. Bethe, der die Fusion leichter Kerne (^{1}H, ^{2}H, ^{3}He) zu ^{4}He als Produktionsmechanismus von Energie in Sternen vorschlug und dem ersten Nachweis solarer Neutrinos durch R. Davis im Jahre 1968 [Bet38, Bet38a ,Bet39, Dav68]. In den dazwischenliegenden Jahren wurden Sonnenmodelle entwickelt und die entscheidenden Reaktionsquerschnitte gemessen, die es zuließen, Aussagen über die Fusion in der Proton-Proton-Kette und in dem CNO-Fusionszyklus zu treffen. Für die Sonne, einen Hauptreihenstern mit einer Zentraltemperatur von $1.5 \cdot 10^7$ K ist der in Abbildung 1.1 dargestellte Proton-Proton Zyklus dominant, der über die Reaktion $4p \rightarrow {}^4He + 2e^+ + 2\nu_e$ eine Energie von 26.73 MeV freisetzt, von denen die emittierten Elektronneutrinos etwa 3% davontragen. Die Verzweigungsverhältnisse und somit die Neutrinoproduktion innerhalb der Zweige des pp-Zyklus sind durch die Wechselwirkungsquerschnitte und die Konzentration der beteiligten Kerne bestimmt.

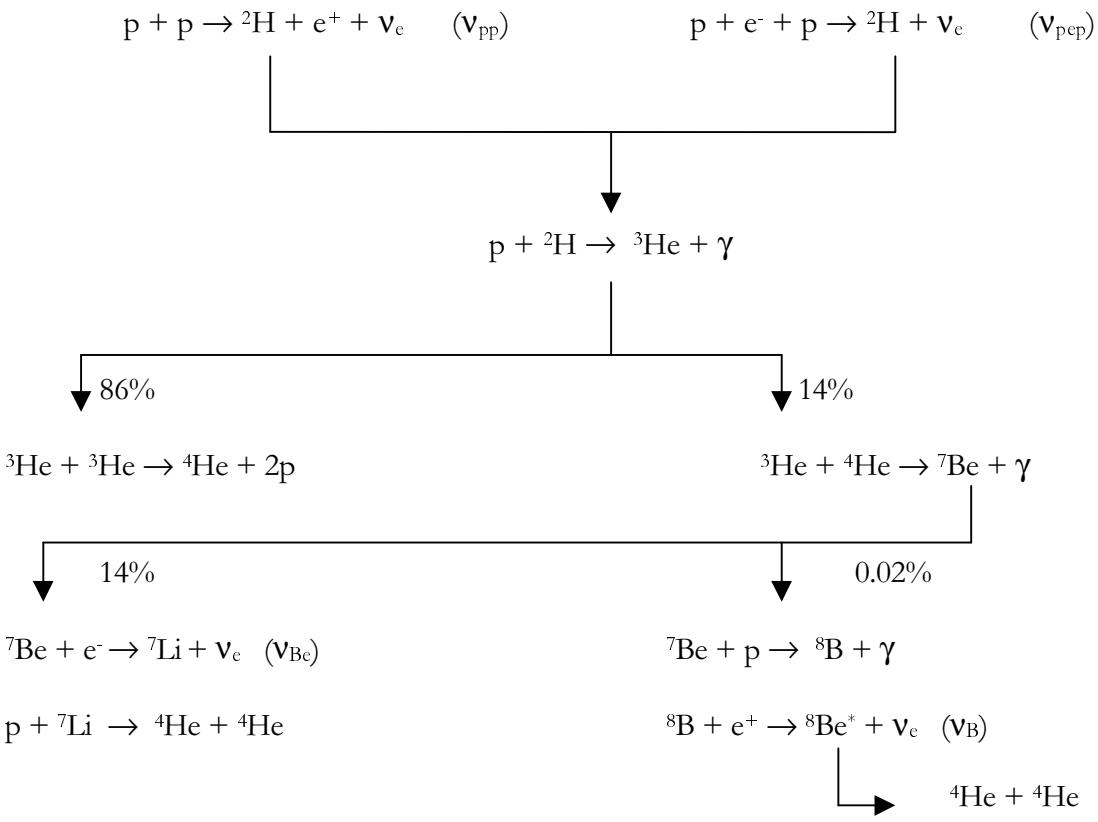

Abbildung 1.1: Der solare pp-Zyklus mit den absoluten Reaktionswahrscheinlichkeiten.

Die Luminosität der Sonne und Produktion der Neutrinos in dem pp-Zyklus wird im wesentlichen von der Reaktion $p + p \rightarrow {}^2H + e^+ + \nu_e$ festgelegt, die als Prozeß der schwachen Wechselwirkung die Produktion von ^{2}H und aller folgenden Schritte festlegt. Die konkurrierende Drei-

körperreaktion $p + e^- + p \rightarrow {}^2H + \nu_e$ trägt nur in 0.4% der Fälle zur Bildung eines ^4He Kernes bei. Das resultierende Spektrum solarer Neutrinos setzt sich aus den kontinuierlichen Spektren der pp-Neutrinos und B-Neutrinos, sowie aus den Linien der pep-Neutrinos bei 1.44 MeV und Be-Neutrinos zusammen. Letztere sind durch zwei Linien bei 862 keV und 384 keV im Spektrum vertreten, die durch den Übergang auf den Grundzustand (90%) und einen angeregten Zustand (10%) von ^7Li beim Elektroneinfang von ^7Be resultieren.

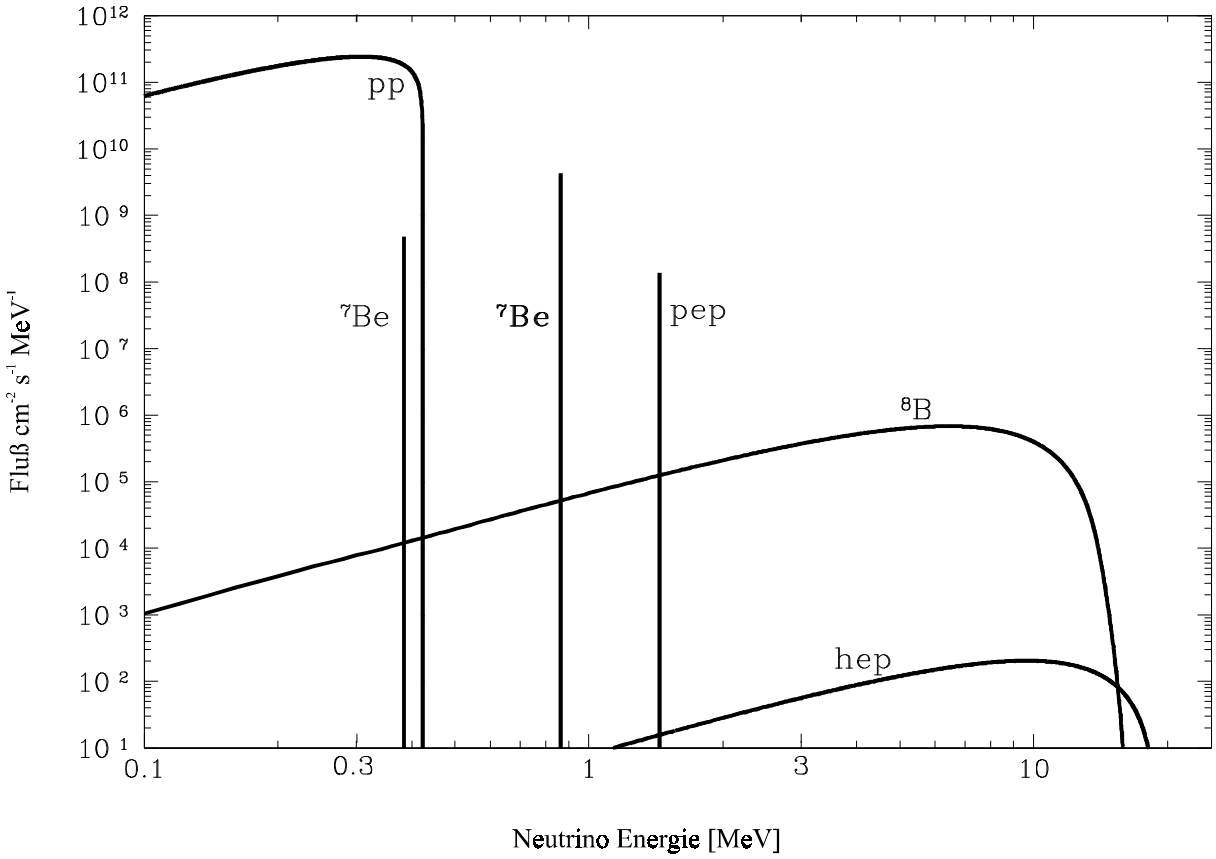

Abbildung 1.2: Das solare Neutrinospektrum für pp, ^7Be, ^8B hep und pep Neutrinos. Die Flüsse monoenergetischer Neutrinos sind in Einheiten von $cm^{-2}\ s^{-1}$ angegeben, die der kontinuierlichen Verteilungen in Einheiten von $cm^{-2}\ s^{-1}\ MeV^{-1}$.

Die Neutrinoproduktionsraten der einzelnen Reaktionen sind für verschiedene Sonnenmodelle in Tabelle 1.1 zusammengefaßt. Diese Modelle legen unterschiedliche Eingangsparameter zugrunde, die sich in den berechneten Flüssen bemerkbar machen, wobei einige dieser Modelle dazu konzipiert worden waren experimentelle Resultate mit adaptierten Eingangsparametern zu erklären. Dabei weisen die Modelle eine gute Übereinstimmung für den Fluß an pp-Neutrinos aus. Dieser ist direkt mit der wohlbekannten solaren Luminosität verknüpft, da die Produktion von ^2H der limitierende Prozeß für die Energieproduktion in dem gesamten Zyklus ist. Der Fluß der B-Neutrinos, der dem ^7Be-p Fusionsquerschnitt proportional ist, bleibt hingegen mit einer relativ großen Unsicherheit von etwa 15% (1σ) bei allen Modellen verknüpft [Bah98b], da der Fusions-

querschnitt dieser Reaktion mit einer Unsicherheit von etwa 15% behaftet ist. Die Unsicherheit des ^{7}Be-Flusses wird durch die des experimentell bestimmten ^{3}He-^{4}He Wirkungsquerschnittes dominiert, der im Rahmen von 10% liegt [Ade98] und für den Bereich von einigen keV auf einer Extrapolation der bei höherer Energie gemessenen Daten beruht.

	[Bah98b]	[Tur93]	[Cas99]	[Shi94]	[Dar96]
pp [10^{10} cm^{-2} s^{-1}]	5.94 ± 0.06	6.0	6.0	6.1	6.1
^{7}Be [10^{9} cm^{-2} s^{-1}]	4.80 ± 0.432	4.33	4.81 ± 1.05	3.9	3.7
^{8}B [10^{6} cm^{-2} s^{-1}]	$5.15 \pm^{0.978}_{0.721}$	4.4 ± 1	5.96 ± 2.44	3.0	2.49
pep [10^{8} cm^{-2} s^{-1}]	1.39 ± 0.013	-	-	-	1.43

Tabelle 1.1: Neutrinoflüsse des pp-Zyklus in verschiedenen Sonnenmodellen

1.1 Experimente zum Nachweis solarer Neutrinos

1.1.1 Chlor-Experiment

Das erste Experiment, das Sonnenneutrinos nachweisen konnte, beruht auf der Reaktion

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

wobei die Energieschwelle für diese Reaktion bei 814 keV und somit über dem Endpunkt der pp-Neutrinos liegt. Zum Nachweis des so produzierten ^{37}Ar wird dessen Rückzerfall zu ^{37}Cl in untergrundarmen Proportionalzählern nachgewiesen. R. Davis nahm dieses Experiment in der Homstake Mine in South Dakota 1968 in Betrieb und betreibt es bis zum gegenwärtigen Zeitpunkt. Dort dienen 615 t C_2Cl_4 als Target aus dem das über Neutrinoeinfang gebildete ^{37}Ar extrahiert wird. Wie andere radiochemische Experimente, die hier noch vorgestellt werden, ist das Chlor-Experiment lediglich auf Elektronneutrinos empfindlich.

Die Vorhergesagte Einfangrate $\langle\Phi_\nu\sigma_\nu\rangle$ je ^{37}Cl-Kern liegt bei $(7.7 \pm {}^{1.2}_{1.0})\cdot 10^{-36}$ s^{-1} für das [Bah98b] Sonnenmodell, während die gemessene bei $\langle\Phi_\nu\sigma_\nu\rangle = (2.55 \pm 0.25)\cdot 10^{-36}$ s^{-1} liegt [Dav98]. 77% der theoretisch vorhergesagten Neutrinoereignisse sind nach [Bah88] den hochenergetischen ^{8}B-Neutrinos zuzurechnen, während die ^{7}Be-Neutrinos 14% zu der berechneten Rate in diesem Experiment beitragen. Die übrigen Ereignisse lassen sich den Neutrinos aus dem CNO-Zyklus und den pep-Neutrinos zuschreiben.

1.1.2 Gallium-Experimente

Im Jahr 1966 schlug V. Kuzmin ein radiochemisches Experiment mit einer Energieschwelle von 233 keV vor, das sich die Reaktion

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

zunutze macht und in der Lage ist, einen Teil der von der Sonne emittierten pp-Neutrinos nachzuweisen, deren Endpunkt bei 422 keV liegt.

Gegenwärtig sind zwei auf diesem Nachweisprinzip basierende Detektoren in Betrieb. Eines der Experimente ist das unter dem Gran Sasso befindliche GNO Experiment, das andere ist das von einer amerikanisch-russischen Kollaboration im kaukasischen Baksan betriebene SAGE Experiment. Im Fall von GNO dienen 30 t Gallium, die in Form von 101 t salzsaurer $GaCl_3$ Lösung vorliegen als Target; bei SAGE besteht das Target aus 60 t metallischem Gallium. Der Nachweis des gebildeten und aus dem Target extrahierten ^{71}Ge erfolgt, ähnlich dem Chlor Experiment, in miniaturisierten Proportionalzählrohren [Alt96].

Für die Gallium Experimente wird von [Bah98b] eine Einfangrate von $(129 \pm {}^{8}_{6})\cdot 10^{-36}$ s^{-1}, je ^{71}Ga-Kern angegeben wobei andere Vorhersagen nicht unter $110\cdot 10^{-36}$ s^{-1} liegen [Dar94]. Der von dem bislang am Gran Sasso betriebenen Gallium Experiment GALLEX gemessene Wert beträgt hingegen nur $\langle\Phi_\nu\sigma_\nu\rangle = (77.5 \pm 7.7)\cdot 10^{-36}$ s^{-1}, während SAGE für $\langle\Phi_\nu\sigma_\nu\rangle = (69 \pm 12)\cdot 10^{-36}$ s^{-1} angibt [GAL99, SAG95]. Diese Resultate stehen im Widerspruch zu den Vorhersagen, nach denen 54% der Ereignisse in den Standardmodellen auf pp-Neutrinos zurückzuführen sind, deren Fluß nahezu modellunabhängig ist. Weitere 26% der ^{71}Ge Kerne sollten über den Einfang von ^{7}Be Neutrinos gebildet werden und etwa 11% über die ^{8}B-Neutrinos [Bah88].

1.1.3 Wassercherenkovexperimente

Ein völlig anderer Typus von Experimenten sind die in Japan betriebenen Wassercherenkovexperimente. Ursprünglich zum Nachweis des Protonzerfalls konzipiert, konnte der Kamiokande-Detektor erstmals solare ^{8}B Neutrinos mit einer Energieschwelle von 7.5 MeV zeit- und richtungsaufgelöst messen. In dieser Art von Detektoren beobachtet man Neutrinos, die über elastische Neutrino-Elektronstreuung mit den Elektronen eines Reinstwassertargets wechselwirken. Diese Wechselwirkungsprozesse werden anhand der Cherenkovstrahlung der Elektronen identifiziert, wobei sich die Winkelverteilung der gestreuten Elektronen relativ zur Position der Sonne für die Diskriminierung von Untergrundereignissen verwenden läßt. Das Kamiokande Experiment verwendete zum Nachweis 680 t Leichtwasser, während es bei dem im Betrieb befindlichen Superkamiokande-Detektor etwa 22.5 kt sind, die für den Nachweis solarer ^{8}B Neutrinos mit einer Schwelle von 6 MeV ausgelesen werden können. Trotz des vergleichsweise niedrigen ^{8}B Flusses lassen sich so etwa 50 neutrinoinduzierte Ereignisse täglich nachweisen.

Für Kamiokande beträgt das Verhältnis von gemessenen zu berechneten Wechselwirkungen $\langle\Phi_\nu\sigma_\nu\rangle_{exp}/\langle\Phi_\nu\sigma_\nu\rangle_{Bah98b} = 0.54 \pm 0.11$ [KAM95], während es für den Superkamiokan-

de-Detektor nach 374.2 Tagen Meßzeit $<\Phi_\nu\sigma_\nu>_{exp}/<\Phi_\nu\sigma_\nu>_{Bah98b} = 0.46 \pm 0.067$ beträgt [Fuk98, Bah98b].

1.2 Lösungsmodelle für das Neutrinodefizit

Im folgenden sollen einige Lösungsmodelle vorgestellt werden, die die Diskrepanz zwischen experimentellen Daten und den Vorhersagen der Sonnenmodelle erklären könnten, sofern man einmal annimmt, daß die experimentellen Resultate nicht mit eklatanten Fehlern behaftet sind. Bemerkenswert ist daneben auch, daß bereits der Vergleich mit sonnenmodellunabhängigen Ansätzen die Frage nach Physik jenseits des Standardmodells der Teilchenphysik aufwirft.

Sowohl die radiochemischen Experimente, die den integralen Neutrinofluß über einer Schwelle von 233 keV messen, als auch der Superkamiokande-Detektor offenbart ein signifikantes Neutrinodefizit. Der aktuelle Stand ist dazu noch einmal in Tabelle 1.2 zusammengefaßt. Vergleicht man die Daten von Superkamiokande mit dem Modell von Dar und Shaviv [Dar94] ergibt sich zwar für die Resultate dieses Experimentes kein Widerspruch, doch kann auch dieses Modell die Ergebnisse der Gallium-Experimente, die zum einen den pp-Fluß, wie auch den ^{7}Be-Fluß messen, nicht erklären und steht dazu in Widerspruch zu den helioseismologischen Beobachtungen. Ziel eines Modells wird es also sein alle experimentellen Resultate in Einklang zu bringen und Wege für neue Experimente aufzuzeigen.

Experiment	Energieschwelle	$<\Phi_\nu\sigma_\nu>_{exp}/<\Phi_\nu\sigma_\nu>_{Bah98b}$
$^{71}Ga + \nu_e \rightarrow {}^{71}Ge + e^-$	233 keV	0.60 ± 0.070
$^{37}Cl + \nu_e \rightarrow {}^{37}Ar + e^-$	814 keV	0.33 ± 0.061
Superkamiokande	6 MeV	0.46 ± 0.067

Tabelle 1.2: Das Verhältnis von experimentell bestimmten Neutrinoflüssen zu der Vorhersage eines Sonnenmodells mit quadratisch addierten experimentellen und theoretischen Unsicherheiten (1σ) [Bah98b, Dav98, GAL99, Fuk98].

1.2.1 Sonnenmodellunabhängige Grenzen für Neutrinoflüsse

In sonnenmodellunabhängige Ansätze zur Lösung des Neutrinodefizites gehen keine Annahmen über solare Modellparameter oder Fusionsquerschnitte ein. Es wird lediglich angenommen, daß die Energieproduktion dominant über den pp-Zyklus erfolgt und sich die Sonne im hydrostatischen Gleichgewicht befindet, welches einen zeitunabhängigen Neutrinofluß bedingt. Die Werte für die Neutrinoteilflüsse Φ_i (i = pp, pep, ^{7}Be, ^{8}B, CNO) sind, wie sich zeigt, Restriktionen unterworfen, die durch die Luminosität der Sonne gegeben sind. Diese Bedingung läßt sich als

$$\sum_i \left(\frac{Q}{2} - \langle E_{\nu i} \rangle \Phi_i \right) = const.$$

darstellen, wobei Q die Energie von 26.7 MeV je erzeugtem ^{4}He Kern und $<E_{\nu i}>$ die mittlere Energie der Neutrinos aus der Teilreaktion i bezeichnen [Bah96a]. Aus der Luminositätsbedingung und experimentellen Befunden lassen sich, wie hier noch kurz gezeigt werden soll, die in Tabelle 1.3 subsumierten Flußgrenzen für Neutrinos aus der pp-Kette angeben.

Gehen wir einmal von der die konservativen Annahme aus, daß die Fusion im pp-Zyklus lediglich über die Reaktionen p(p,^{2}H e^+)ν_e, ^{3}He(^{3}He,^{4}He)2p, im anderen Teil der Fusionskette über ^{3}He(^{4}He,γ)^{7}Be und die sukzessive Emission von ^{7}Be-Neutrinos erfolgt, erhält man für diese Neutrinospezies und die Resultate des GALLEX Experimentes eine Grenze, die mit 90% Konfidenz bei $1.7 \cdot 10^9$ s^{-1}cm^{-2} liegt [GAL99, Bah98b]. Nimmt man dabei noch den von Superkamiokande gemessenen ^{8}B-Fluß hinzu, zeigt sich, daß die Resultate von GALLEX den Fluß der ^{7}Be-Neutrinos mit einer Konfidenz von 90% auf den Bereich von etwa $9.6 \cdot 10^8$ s^{-1}cm^{-2} eingrenzen und dies, ohne Annahmen über kernphysikalische Parameter oder Sonnenmodelle vorauszusetzen. Läßt man über dies hinaus noch die Energieproduktion über den CNO-Zyklus zu, engt man den Raum für die ^{7}Be-Neutrinos weiter ein, da eine Verlagerung der Energieproduktion in den CNO-Zyklus die Diskrepanz der experimentellen Resultate der Gallium- und Chlorexperimente zu den Sonnenmodellen vergrößern würde.

Neutrino	Fluß [10^{10} s^{-1} cm^{-2}] bei 90% C.L.	Φ_{Max}/Φ_{SSM} bei 90% C.L	Restriktion
pp	6.51	1.06	Luminosität
pep	$4.49 \cdot 10^{-1}$	32.3	Gallium ν-Experimente
^{7}Be	0.10	0.21	Luminosität, ν-Experimente
^{8}B	$2.81 \cdot 10^{-4}$	0.53	ν-Experiment

Tabelle 1.3: Modellunabhägige Grenzen für die verschiedenen Elektronneutrinos des pp-Zyklus. Dem Verhältnis von maximalem Fluß zu Standardmodellfluß Φ_{Max}/Φ_{SSM} liegen [Bah98b, GAL99, Fuk98] zugrunde.

Wirft man einen Blick auf die der ^{3}He(^{4}He,γ)^{7}Be Reaktion folgenden Prozesse, so zeigt sich, daß der ^{7}Be-Fluß stärker unterdrückt sein muß, als der ^{8}B-Fluß. Dies ist ein Resultat, will man die Vorstellung einer Sonne im hydrostatischen Gleichgewicht nicht aufgeben, das nur durch die Einführung neuer Modelle beschrieben werden kann. Gerade die Kenntnis des pp- und des ^{7}Be-Neutrinoflusses ist für neue Modelle von Bedeutung, da diese beiden Reaktionen das Verhältnis von ^{3}He(^{3}He,^{4}He)2p zu ^{3}He(^{4}He,γ)^{7}Be und somit für alle anderen Neutrinospezies in der pp-Kette festlegen.

1.2.2 Astrophysikalische und kernphysikalische Ansätze

Die Sonne ist nach unserem Wissen ein Stern im hydrostatischen Gleichgewicht. Dabei sind Größen wie die Luminosität, der Radius und die Masse Beobachtungen direkt zugänglich, während das Alter der Sonne über die primordiale Elementzusammensetzung im Sonnensystem ermittelt werden kann. Die mit dem Alter verknüpfte chemische Zusammensetzung läßt sich mit Hilfe spektroskopischer Beobachtungen für das zweithäufigste Element, Helium, neuerdings über helioseismologische Messungen bestimmen [Sti98]. Diese Größen sind die wesentlichen astrophysikalischen Eingangsparameter der Sonnenmodelle, die zusammen mit den Zustandsgleichungen, der Opazität und den Fusionsquerschnitten den Aufbau der Sonne beschreiben. Letztere sind, mit Ausnahme des ^{3}He-^{3}He Wirkungsquerschnittes, im für die Sonne relevanten Bereich nicht direkt experimentell zugänglich, so daß man auf eine Extrapolation der Meßwerte zu niedriger Energie angewiesen ist [Ade98]. Dies läßt Modellen einen gewissen Spielraum, die sich jedoch immer an den in Kapitel 1.2.1 diskutierten Restriktionen orientieren müssen. Die Unsicherheit dieser Fusionsquerschnitte spiegelt sich auch in den vorhergesagten Neutrinoflüssen wieder, die wie der ^{8}B-Fluß mit einer Unsicherheit bis zu 15% behaftet sein können.

Zur Deutung des solaren Neutrinodefizites, das sich in dem Energiebereich von 233 keV bis zum Endpunkt des ^{8}B-Neutrinospektrums manifestiert, wurden die unterschiedlichsten Modifikationen, astrophysikalischer Modelle und kernphysikalischer Parameter vorgeschlagen. Letztere seien hier kurz im Zusammenhang mit Sonnenmodellen diskutiert, da beide miteinander verknüpft sind.

Die im Kern der Sonne produzierte Energie gelangt durch Diffusion und Konvektion an die Oberfläche, wobei der Temperaturgradient im Inneren über den Transportmechanismus und die Opazität festgelegt ist. Die lokalen Fusionsraten der leichten Elemente sind eine Funktion des Druckes, der Temperatur und der Konzentration der beteiligten Reaktionspartner, die in Sonnenmodellen keine Eingangsparameter sind, sondern selbstkonsistent aus diesen hervorgehen. Die Diffusion von Wasserstoff aus dem Kern heraus, sowie die Diffusion von Helium und schweren Elementen in den Kern hinein, wird von den Gradienten derer Zusammensetzung, Druck und Temperatur in Gang gesetzt. Die Diffusion von Helium und schweren Elementen findet zwar mit einer charakteristischen Zeit von mehr als 10^{12} Jahren statt, erhöht jedoch die Kerntemperatur um etwa 1.5% und die Opazität geringfügig gegenüber Modellen, die die Diffusion von ^{3}He vernachlässigen. Helioseismologische Messungen konnten die Standardmodelle bestätigen und darüber hinaus Parameter wie Opazität und Kerntemperatur weiter einschränken [Cas99], so daß die Kerntemperatur mit $T_c = 1.58 \cdot (1 \pm 0.014) \cdot 10^7$ K angegeben werden kann. Dies ist für die gemessenen Neutrinoflüsse insofern von Bedeutung als diese empfindlich von der Kerntemperatur abhängen. Für die drei wichtigsten Neutrinoflüsse gelten die Beziehungen $\Phi(pp) \propto T_c^{-0.92}$, $\Phi(^7Be) \propto T_c^{7.9}$ und $\Phi(^8B) \propto T_c^{18}$, die neben den modellunabhängigen Begrenzungen eine weitere Restriktion für Modifikationen des Sonnenmodells sind [Cas99].

Astrophysikalische Lösungsansätze des Neutrinodefizites legen vielfach eine Verminderung der Kerntemperatur zugrunde, die zwar den Fluß von ^{7}Be- und ^{8}B-Neutrinos herabsetzt, den pp-Fluß jedoch nahezu unberührt läßt. Eine Verringerung der Kerntemperatur um etwa 4% könnte zwar das Defizit der ^{8}B-Neutrinos erklären, steht jedoch damit in eindeutigem Widerspruch zu den Resultaten der Galliumexperimente, deren größter Beitrag zum Signal von den pp- und ^{7}Be-

Neutrinos stammt. Diese Modelle legen vielfach veränderte Häufigkeiten schwerer Elemente und eine andere Elementdiffusion zugrunde, die die Opazität und somit die Kerntemperatur verändern. Wie man jedoch aus den modellunabhängigen Annahmen schließen kann, muß der Fluß der ^{7}Be-Neutrinos stärker unterdrückt sein als der der ^{8}B-Neutrinos, was einer Verringerung der Kerntemperatur zuwiderläuft, da Φ (^{7}Be)/ Φ (^{8}B) $\propto T_c^{10.1}$ ist, was gegen diese Modelle spricht.

Die ^{7}Be-^{8}B Diskrepanz ließe sich, wie gerade gezeigt, durch eine Erhöhung der Kerntemperatur erklären [Alt95, Ber95]. Dazu müßte aber der ^{3}He-^{3}He Fusionsquerschnitt drastisch erhöht werden, dem allerdings die Messungen dieses Querschnittes im relevanten Bereich entgegenstehen [Jun98]. Gleichzeitig müßte der Querschnitt für die Reaktion ^{7}Be(p, γ)^{8}B heraufgesetzt werden, wofür sich anhand der experimentell gemessenen allerdings keine Rechtfertigung findet [Ade98]. Des weiteren sprechen helioseismologische Messungen gegen die, mit diesem Modell verknüpfte Erhöhung der Kerntemperatur um 8%, die gleichzeitig die Energieproduktion in den CNO-Zyklus verlagern würde und die experimentellen Grenzen für die Neutrinoflüsse des pp-Zyklus weiter einengen würde.

In Abbildung 1.3 sind dem Sonnenmodell von Bahcall et al. andere Modelle in einer Darstellung für den ^{7}Be/^{8}B-Neutrinofluß gegenübergestellt, die jedoch die experimentellen Befunde nach unserem derzeitigen Kenntnisstand nicht erklären können. Darunter finden sich Modelle, die die Opazität oder Häufigkeit schwerer Elemente herabsetzen, wie auch solche, die die Fusionsquerschnitte verändern. So scheiden auch Modelle, die eine verstärkte Diffusion von ^{3}He in den Kern zugrunde legen und somit die Reaktion ^{3}He(^{3}He,^{4}He)2p begünstigen würden aus [Hax98]. Dies ist zum einen in der Sternentwicklung begründet, zum anderen in den Konsequenzen, die ein solches Modell für die Helioseismologie hätte und die mit den Beobachtungen nicht in Einklang zu bringen sind.

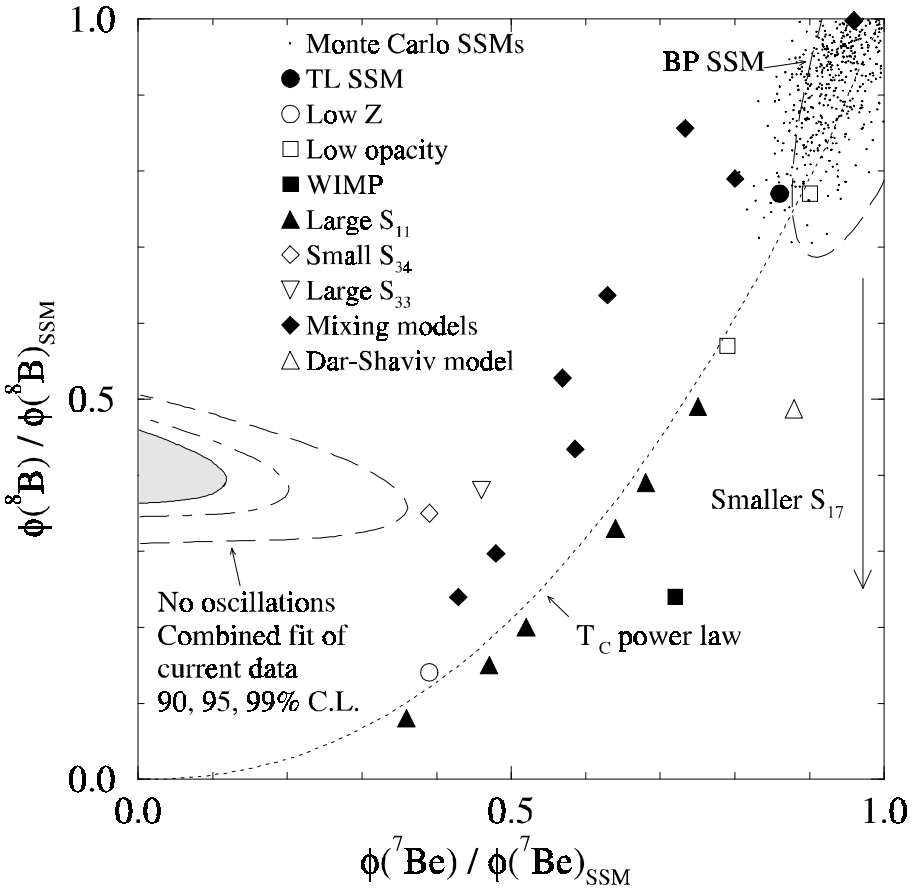

Abbildung 1.3: ^{7}Be und ^{8}B Neutrinofluß für verschiedene Sonnenmodelle und solare Fusionsquerschnitte [Hat95]. Den Verhältnissen von ^{7}Be und ^{8}B liegen die Daten der Gallium- und Wassercherenkovexperimente zugrunde.

1.2.3 Teilchenphysikalische Ansätze

Da kein astrophysikalischer oder kernphysikalischer Ansatz das Neutrinodefizit befriedigend erklären kann, liegt es nahe, die Ursache für das solare Neutrinoproblem bei den Neutrinos zu suchen. An dieser Stelle sei auch erwähnt, daß es für den Bereich der atmosphärischen Neutrinos Daten des Superkamiokandeexperimentes gibt, die weder mit den Flußrechnungen für atmosphärische Neutrinos, noch mit der Physik des Standardmodells vereinbar sind. Die Daten dieses Experimentes machen evident, daß die Ursache für die Anomalie in den Eigenschaften des Neutrinos begründet sind.

Neutrinos, linkshändig koppelnde Spin-½ Teilchen, haben unter Umständen Eigenschaften, die über die des allgemein akzeptierten Standardmodells der Teilchenphysik hinausgehen. In dem Standardmodell besitzen die Neutrinos der drei Leptonenfamilien keine Masse und kein magnetisches Moment, Annahmen, die für Erweiterungen des Standardmodells zur Erklärung der experimentellen Resultate aufgegeben werden müssen.

Schon 1967 schlug Pontecorvo [Pon69], in Analogie zu der Mischung im Quarksektor, eine Mischung verschiedener Masseeigenzustände zu Eigenzuständen der schwachen Wechselwirkung, sogenannten Flavoureigenzuständen, vor. Im Quarksektor ist diese Mischung eine Superposition von drei Zuständen definierter Masse, die an den geladenen schwachen Strom koppeln. Überträgt man dieses Verhalten auf den Leptonsektor, kann man unter der Annahme nichtverschwindender Neutrinomassen die Flavoureigenzustände ν_α als eine Superposition von drei Masseeigenzuständen ν_i schreiben:

$$\nu_\alpha = \sum_{i=1}^{3} U_{\alpha i} \cdot \nu_i \ .$$

Dabei bezeichnet α die Familie der e-, μ-, und τ-Neutrinos, während die Komponenten von U eine unitäre 3 x 3 Matrix mit vier freien Parametern bilden. Dies könnte, berücksichtigt man die Propagation nicht degenerierter Masseeigenzustände, zu einem ortsabhängigen Flavourgehalt eines Neutrinostrahls führen, ein Phänomen, das unter dem Bergriff Neutrinooszillation bekannt geworden ist [Obe92, Kay81, Kay95, Gri96, Lip95, Gro97, Ric93, Giu91]. Dies hat zur Konsequenz, daß die Wahrscheinlichkeit, ein Neutrino eines bestimmten Flavours nachzuweisen, eine Funktion des Abstands zur Neutrinoquelle ist, an der das Neutrino mit definiertem Flavour erzeugt wurde. Für die Sonne bedeutet dies, daß sich die Wahrscheinlichkeit ein bei $x_0 = 0$ erzeugtes Elektronneutrino als solches im Abstand x vom Entstehungsort nachzuweisen periodisch mit dem Abstand ändert. Dies hängt mit der unterschiedlichen Propagationsgeschwindigkeit der Masseeigenzustände zusammen, die sich an verschiedenen Orten zu verschiedenen Flavoureigenzuständen überlagern. Für die hochrelativistische Näherung ($m_i << E$), die für solare Neutrinos sehr gut erfüllt ist, kann man die Oszillationswahrscheinlichkeit des Flavours α in den Flavour β mit der Entwicklung von $p_i = \sqrt{E^2 - m_i^2} \approx E\left(1 - m_i^2/(2E^2)\right)$ als Funktion des Abstandes mit

$$P_{\nu\alpha\to\nu\beta}(x) = \left|\left\langle \nu_\alpha \left| \nu_\beta(x,t) \right\rangle\right|^2 = \left| \sum_{i=1}^{3} U_{\alpha i}^* U_{\beta i}\, e^{-i\frac{m_i^2}{2E}x} \right|^2 =$$

$$\sum_{i=1}^{3} \left|U_{\alpha i}\right|^2 \left|U_{\beta i}\right|^2 + 2\sum_{\substack{i,j=1 \\ j<i}}^{3} U_{\alpha i}^* U_{\alpha j} U_{\beta j}^* U_{\beta i} \cos\left(\frac{2\pi x}{L_{ij}^{osc}}\right)$$

angeben. Dabei wurde $L_{ij}^{osc} = 4\pi E_\nu / \Delta m_{ij}^2$ als Oszillationslänge und $\Delta m_{ij}^2 = \left|m_i^2 - m_j^2\right|$ eingeführt.

Für die Mischung zwischen zwei Neutrinofamilien lassen sich die vier freien Parameter der Mischung von drei Neutrinos auf einen freien Parameter, den Mischungswinkel θ reduzieren. Dabei macht man die Annahme, daß die Mischung der zwei benachbarten Neutrinofamilien, also die von e-μ-Neutrinos und μ-τ-Neutrinos über die Mischung von e-τ-Neutrinos dominiert und die CP-Invarianz in diesem System erfüllt ist. Damit vereinfacht sich U zu

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

Die Wahrscheinlichkeit ein Elektronneutrino als solches in dem Abstand x von seinem Entstehungsort vorzufinden kann man somit als

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

schreiben.

Für solare Neutrinos ist die Oszillationslänge in Metern etwa $L_{osc} = 2.5(E_\nu/\mathrm{MeV})/(\mathrm{eV}^2/\Delta m_{ij}^2)$, so daß die Neutrinoexperimente bei dem Abstand Erde-Sonne von $1.5\cdot10^8$ km für Neutrinomassedifferenzen bis $\Delta m^2_{e\mu} \geq 10^{-11}\,\mathrm{eV}^2$ sensitiv sind. Zum Bereich größerer Massedifferenzen ist dieser Bereich durch die Inkohärenz der Neutrinos und die Ausdehnung des solaren Kerns, in dem die Neutrinos produziert werden, bei etwa $\Delta m^2_{e\mu} \approx 10^{-9}\,\mathrm{eV}$ begrenzt.

Für einige Massedifferenzen und Mischungswinkel kann dabei in Materie eine resonante Verstärkung der Konversion, der Mikheyev-Smirnov-Wolfenstein Effekt, auftreten [Wol78, Mik86]. Unter der Präsenz von Elektronen können die Flavoureigenzustände mit unterschiedlichen effektiven Massen verknüpft sein, da sich die Vorwärtsstreuamplituden für Elektronneutrinos auf der einen Seite und für Myon- und Tauneutrinos auf der anderen Seite unterscheiden. Dies liegt darin begründet, daß Elektronneutrinos sowohl über den Austausch von $W^\pm$ als auch von Z^0-Bosonen mit Materie wechselwirken können, während dies Neutrinos anderer Flavoureigenzustände (μ-, τ-Neutrinos) nur über den Z^0-Austausch möglich ist. Für Werte von $\Delta m^2_{e\alpha} \cong 10^{-5}\,\mathrm{eV}^2$ kann die Resonanzbedingung für die Konversion von Elektronneutrinos in Myonneutrinos im Inneren der Sonne erfüllt sein, so daß selbst für kleine Mischungswinkel ein signifikanter Anteil der im Kern produzierten Elektronneutrinos konvertiert werden kann.

Die Daten der Sonnenneutrinoexperimente lassen für ein Konfidenzniveau von 99%, setzt man einmal das Neutrinospektrum als bekannt voraus, vier Bereiche in dem Parameterraum $\sin^2(2\theta)$-Δm^2 offen (Abbildung 1.4). Für drei dieser Bereiche ist der MSW-Effekt von Bedeutung, während die Resonanzbedingung für den Parameterbereich bei $10^{-10}\,\mathrm{eV}^2$ in der Sonne nicht erreicht wird. Diese beste Beschreibung der Experimente erzielt man durch Vakuumoszillationen, für die der MSW-Effekt vernachlässigbar ist, für einen Parametersatz von

$\sin^2(2\theta) = 0.75$, $\Delta m^2 = 6.5\cdot10^{-11}\mathrm{eV}^2$ bei $\chi_{min}/\mathrm{DOF} = 28.4/18$ [Bah98a].

Diese Lösung des solaren Neutrinoproblems ließe sich besonders schlüssig über die Messung der monoenergetischen ^{7}Be-Neutrinos nachweisen, da für die Vakuumoszillation die Oszillationslänge dieser Linie im Bereich der jährlichen Änderung der Sonne-Erde Entfernung liegt. Innerhalb eines Jahres könnte man so mit einer Messung der ^{7}Be-Neutrinos einen bedeutenden Teil der Oszillationslänge ausmessen, wobei sich abhängig von der Phasenlage der Oszillation unterschiedliche Zeitabhängigkeiten des Neutrinoflusses ergeben. Ein Nachweis über den ^{8}B-Neutrinofluß gestaltet sich dagegen für diese Hypothese schwierig, zum einen weil es für die spektrale Verteilung der ^{8}B-Neutrinos keine ausgezeichnete Oszillationswellenlänge gibt, zum anderen weil die mittlere Oszillationswellenlänge deutlich größer ist. Neutrinooszillationen dieses

Parameterbereiches würden sich für die ^{8}B-Neutrinos in einer Abweichung von dem theoretischen Spektrum manifestieren, das wohl verstanden ist und von Experimenten wie SNO und Superkamiokande mit einer Schwelle von etwa 5 MeV bis 6 MeV gemessen werden kann.

Die Lösungen des MSW-Effektes bezeichnet man üblicherweise als die „small mixing angle"-Lösung, die „large mixing angle"-Lösung und die „low"-Lösung. Die Minima dieser Lösungen finden sich, wenn man lediglich die zeitlichen Mittel der Ereignisraten der Neutrinoexperimente einbezieht, in der Parameterebene bei

$$\sin^2(2\theta) = 6.0\cdot10^{-3},\ \Delta m^2 = 5.4\cdot10^{-6}\text{eV}^2 \text{ bei } \chi_{min}/\text{DOF} = 1.7/3 \text{ (SMA)},$$

$$\sin^2(2\theta) = 0.76,\ \Delta m^2 = 1.8\cdot10^{-5}\text{eV}^2 \text{ bei } \chi_{min}/\text{DOF} = 4.3/3 \text{ (LMA)},$$

$$\sin^2(2\theta) = 0.96,\ \Delta m^2 = 7.9\cdot10^{-8}\text{eV}^2 \text{ bei } \chi_{min}/\text{DOF} = 7.3/3 \text{ (low)},$$

wobei letztere bei einem Konfidenzniveau von 95% aus dem Satz von Lösungen herausfällt. In Abbildung 1.4 sind die erlaubten Parameterwerte in der Δm^2-$\sin^2 2\theta$-Ebene dargestellt.

Berücksichtigt man neben den Raten der Experimente auch noch die von dem Superkamiokande-Experiment gemessene Energieverteilung und die tägliche Modulation des Signals, bleibt lediglich die Lösung

$$\sin^2(2\theta) = 6.3\cdot10^{-3},\ \Delta m^2 = 5.4\cdot10^{-6}\text{eV}^2 \text{ bei } \chi_{min}/\text{DOF} = 26.5/26 \text{ (SMA)}$$

für die Parameter der „small mixing angle"-Lösung bei einem Vertrauensniveau von 99% erhalten.

Die „small mixing angle"-Lösung ist für BOREXINO von besonderer Bedeutung, da für diesen Parameterbereich die ^{7}Be-Neutrinolinie in Myonneutrinos oder Tauneutrinos konvertiert wird. Im Falle der „large mixing angle"-Lösung sind dies etwa 50%, während sich für die „low"-Lösung in BOREXINO eine Zeitabhängigkeit zeigen würde, da die Konversionswahrscheinlichkeit mit einer täglichen Periode zwischen 50% und 70% aufgrund einer Regeneration von Myonneutrinos zu Elektronneutrinos in der Erde schwankt.

Neben diesen, derzeit favorisierten Oszillationsmodellen, gibt es noch andere Hypothesen, die auf einer Konversion von aktiven in sterile Neutrinos oder Antineutrinos beruhen [Akh91, Akh91a]. Diese Neutrinos entziehen sich der Detektion durch die betriebenen Experimente, so daß sich diese Modelle bislang nicht ausschließen lassen.

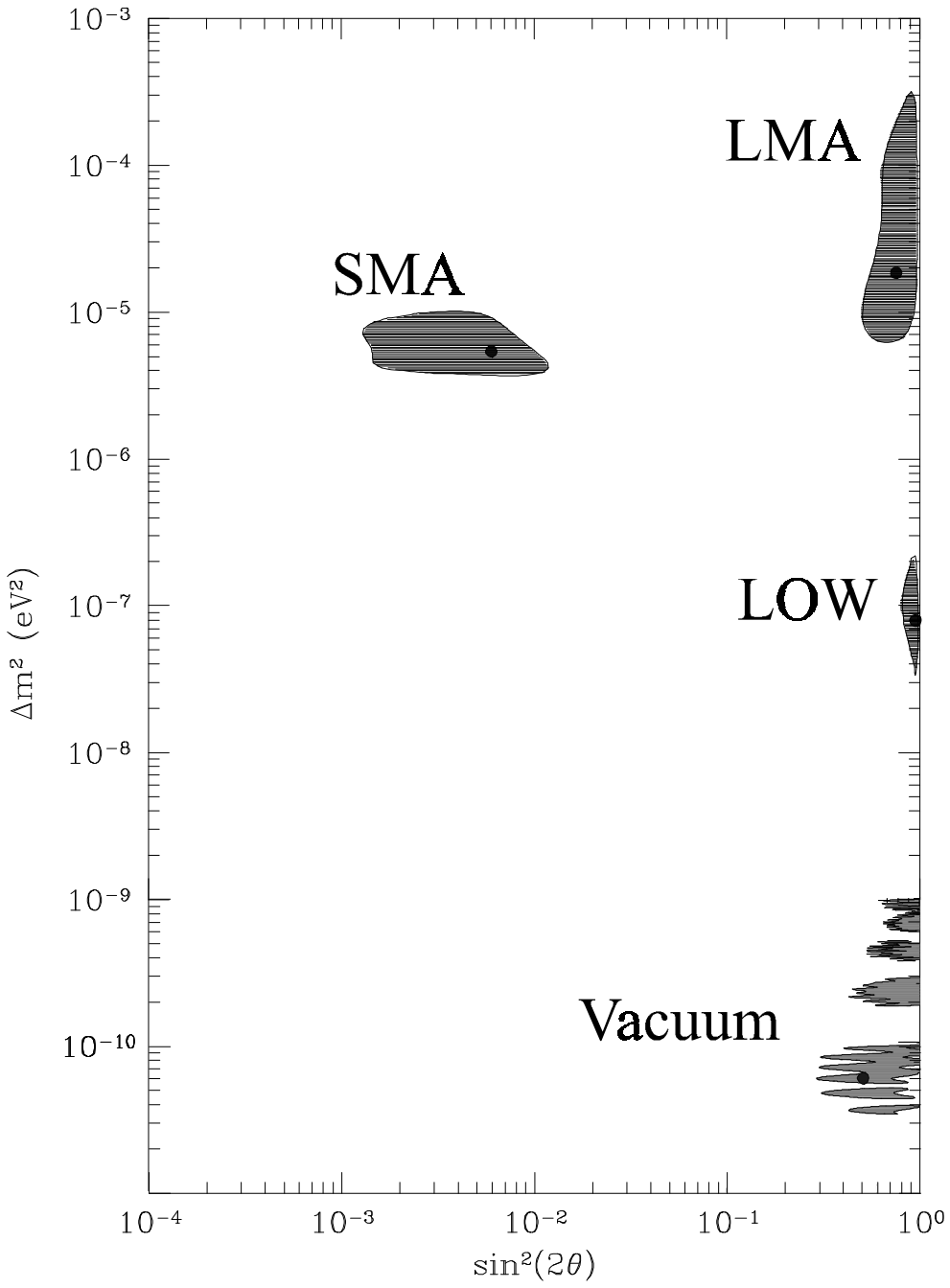

Abbildung 1.4: Erlaubte Werte im Parameterraum Δm^2-$\sin^2 2\theta$ für ein Vertrauensniveau von 99%. Für diese Darstellung sind die Ereignisraten der Chlor- und Galliumexperimente, sowie Raten des Superkamiokande-Detektors berücksichtigt. Nimmt man die spektrale Form des ^{8}B-Neutrinospektrums und die zeitabhängigkeit des Signals hinzu, fallen die LMA-Lösung und die low-Lösung auf einem Vertrauensniveau von 99% heraus. Das zugrunde gelegte Sonnenmodell stammt von J. Bahcall und M. Pinsonneault aus dem Jahre 1998 [Bah98a].

1.3 Zukünftige Sonnenneutrinoxperimente

1.3.1 Sudbury Neutrino Observatory (SNO)

Im kanadischen Sudbury befindet sich derzeit ein Neutrinoexperiment im Aufbau, das in 1000 t Schwerwasser ^{8}B-Neutrinos über die geladene Strom Wechselwirkung (CC) $\nu_e + {}^2H \rightarrow p + p + e^-$ nachweisen kann, wobei die Reaktionsschwelle der Reaktion 1.44 MeV beträgt [SNO99]. Einen eindeutigen Nachweis für Neutrinooszillationen kann dabei der Vergleich mit der neutralen Strom Wechselwirkung von (NC) $\nu_x + {}^2H \rightarrow p + n + \nu_x$ mit einer Reaktionsschwelle von 2.2 MeV geben. Eine Diskrepanz in den nachgewiesenen Ereignisraten dieser beiden Reaktionen wäre eine direkte Bestätigung für Neutrinooszillationen und Physik jenseits des Standardmodells, da die geladene Strom Wechselwirkung nur für Elektronneutrinos möglich ist, die neutrale Strom Wechselwirkung jedoch auch für Myon- und Tauneutrinos.

Über die geladene Strom-Wechselwirkung werden etwa 8800 Neutrinoereignisse im Jahr in SNO nachgewiesen werden, wohingegen für die neutrale Strom Wechselwirkung etwa 2600 Neutrinoereignisse im Jahr nach den Vorhersagen der Sonnenmodelle zu erwarten sind [SNO97]. Darüber hinaus ist nach diesen Modellen der Nachweis von jährlich 1200 Neutrinos über $\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$ möglich.

1.3.2 Low Energy Neutrino Spectroscopy (LENS)

Für die zeitaufgelöste und energiedispersive Messung des niederenergetischen Teils des solaren Neutrinospektrums, den Bereich von pp- und ^{7}Be-Neutrinos, wurde von R. Raghavan [Rag97, Rag99] ein Detektorkonzept vorgeschlagen, das es erlaubt, den Fluß von Elektronneutrinos über die geladene Stromwechselwirkung zu messen. Dabei macht man sich die Anregung eines isomeren Zustandes durch den Einfang eines Elektronneutrinos zunutze, der über die Emission eines oder mehrerer Photonen zerfällt.

Als Reaktionspartner kommen im wesentlichen ^{176}Yb, ^{160}Gd und ^{82}Se in Frage, die über die Reaktionen

$$^{176}Yb + \nu_e \rightarrow {}^{176}Lu^* + e^- + \gamma,$$

$$^{160}Gd + \nu_e \rightarrow {}^{160}Tb^* + e^- + \gamma,$$

$$^{82}Se + \nu_e \rightarrow {}^{82}Br^* + e^- + \gamma$$

von dem 0^+ auf metastabile 1^+ Zustände von ^{176}Lu*, ^{160}Tb*, ^{82}Br* übergehen, wobei die Reaktionsschwellen für alle drei Nuklide unter der Endpunktenergie der pp-Neutrinos liegen. Die Anregung metastabiler Zustände ist für den Nachweis niedriger Ereignisraten, wie es bei einem Sonneneutrinoexperiment der Fall ist, von Relevanz, da sich mittels der zeitlichen und lokalen Korrelation von Elektronen und verzögert emittierten Photonen, die aus dem Zerfall der metastabilen Zustände stammen, in einem Detektor Untergrundereignisse diskriminieren lassen. Aus

der kinetischen Energie des so produzierten Elektrons und der Anregungsenergie des Kerns läßt sich die Energie des eingefangenen Neutrinos bestimmen.

Für den Aufbau von LENS werden derzeit verschiedene Konzepte diskutiert. Ein Flüssigszintillator mit einer Beladung aus Gadolinium oder Ytterbium ließe sich in einem modularen oder homogenen Detektor auslesen, da die isomeren Zustände von ^{160}Tb und ^{176}Lu Lebensdauern im Bereich von 100 ns bei einer Anregungsenergie von etwa 100 keV besitzen.

Für die Interpretation des Resultates von BOREXINO ist die unabhängige Bestimmung des Elektronneutrinoflusses von entscheidender Bedeutung, da BOREXINO die Summe von geladener und neutraler Stromwechselwirkung der ^{7}Be-Neutrinos bestimmt, sofern ein Teil dieser als Myonneutrinos vorliegt. Mit dem vorgeschlagenen LENS-Experiment wäre eine Entfaltung beider Komponenten möglich, ein fundamentaler Schritt für das Verständnis des gesamten solaren Neutrinospektrums. Die Kombination der Resultate von BOREXINO und LENS wird für die ^{7}Be-Neutrinos die Flavourzusammensetzung bestimmen können, während dies SNO in einem Teil des Spektrums der ^{8}B-Neutrinos möglich ist. Für den Bereich der „small mixing angle"-Lösung wird von einigen Modellen für die ^{7}Be-Neutrinos allerdings eine völlige Konversion von Elektronneutrinos in Neutrinos anderer Flavours postuliert, so daß LENS über die geladene Stromwechselwirkung gegenüber BOREXINO für diesen Bereich einen stark unterdrückten ^{7}Be-Neutrinofluß messen sollte, das in diesem Fall die Myon- und Tauneutrinos über die neutrale Stromwechselwirkung nachweist.

2 BOREXINO, ein solares Neutrinoexperiment

2.1 Zielsetzung und Konzeption von BOREXINO

Die Zielsetzung von BOREXINO ist es, den solaren ^{7}Be-Neutrinofluß erstmals unabhängig von den anderen Neutrinos des solaren Spektrums zeitaufgelöst zu messen. Der ^{7}Be-Neutrinofluß soll dabei mit hoher Statistik und Signifikanz nachgewiesen werden. Die zeitaufgelöste Messung des Neutrinosignals kann tägliche sowie jährliche schwankende Signalraten aufdecken und könnte, falls eine klare Zeitabhängigkeit zu erkennen ist, Neutrinooszillationen beweisen. Wie in 1.2.3 dargelegt, könnte diese Zeitabhängigkeit einen klaren Hinweis auf Vakuumoszillationen und einen Lösungsbereich, den „low"-Bereich der MSW-Oszillationen geben. Für diese Lösungen zeitabhängiger Neutrinoflüsse ließe sich der Mischungswinkel und die Massedifferenz von Elektronneutrinos und Myonneutrinos im Fall der Mischung zwischen diesen beiden Familien sehr genau bestimmen. Auch für die Fälle der „small mixing angle"-Lösung und der „large mixing angle"-Lösung ließen sich Anhaltspunkte für Physik jenseits des Standardmodells gewinnen. Für einen zweifelsfreien Nachweis von Neutrinooszillationen müßte dann allerdings der Anteil von Elektronneutrinos unabhängig von dem der Myonneutrinos gemessen werden, was nur über die geladene Stromwechselwirkung möglich ist. BOREXINO kann so zusammen mit dem geplanten LENS Experiment die Flavourzusammensetzung eindeutig bestimmen.

Eine weitere Möglichkeit zwischen der „small mixing angle"-Lösung und der „large mixing angle"-Lösung des MSW-Effektes zu unterscheiden bestände darin, die von den europäischen Reaktoren erzeugten Antineutrinos, quantitativ in BOREXINO nachzuweisen. Dies beruht auf der Besonderheit der französichen , schweizer und deutschen Leistungsreaktoren, die eine mittlere gewichtete Distanz von etwa 800 km zu dem Gran Sasso Labor besitzen, in dem BOREXINO derzeit aufgebaut wird. Mit einer typischen Energie der Antineutrinos von 4 MeV läge die Oszillationswellenlänge der Antineutrinos genau in dem Bereich der Mischungsparameter, die für das Auftreten der „large mixing angle"-Lösung verantwortlich sein könnten. Würde BOREXINO den vollen Fluß von jährlich etwa 27 Antineutrinos in 300 t Szintillator messen, ließe sich nach drei Jahren Meßzeit, die „large mixing angle"-Lösung auf einem Vertrauensniveau von 95% ausschließen [Sch99].

Der Nachweis von solaren Neutrinos erfolgt in einem massiven Flüssigszintillator, in dem diese über elastische Neutrino-Elektronstreuung wechselwirken. Das Energieintervall in dem die Rückstoßelektronen der ^{7}Be-Neutrinos nachgewiesen werden können, wird sich für den Detektor, aufgrund der begrenzten Energieauflösung und des Untergrundes bei niedriger Energie, zwischen 250 keV und 800 keV bewegen. Da sich diese Wechselwirkung in ihrer Signatur nicht von β^--Zerfällen derselben Energie unterscheiden läßt, ist der Zerfall instabiler Kerne in dem Detektionsvolumen besonders kritisch, da der Anteil von Untergrundereignissen deutlich kleiner als die nachzuweisende ^{7}Be-Rate von zehn Ereignissen je Tag sein soll. Ebensowenig lassen sich Photonen von Neutrinoereignissen diskriminieren, die über Comptonstreuung in dem Detektionsvolumen wechselwirken, während sich mindestens ein Teil der im Detektionsvolumen emittierten α-Teilchen von den β^--Zerfällen unterscheiden läßt. Die Möglichkeit α-Zerfälle von β^--Zerfällen zu Unterscheiden, beruht dabei auf der lokal unterschiedlichen Ionisationsdichte beider Prozesse,

die die Lichtausbeute und den zeitlichen Verlauf des Szintillationssignals beeinflussen [Nef96]. Die Messung einer Richtungsabhängigkeit zur Unterdrückung von Untergrundereignissen wie bei den Wassercherenkovdetektoren ist für die niederenergetischen ^{7}Be-Neutrinos nicht möglich, da die Lichtemission der gestreuten Elektronen isotrop erfolgt. Neben der Detektion solarer Neutrinos läßt sich der Detektor vielseitig einsetzen:

- Anhand des Nachweises terrestrischer Antineutrinos aus dem Zerfall von Uran und Thorium in der Erdkruste lassen sich geophysikalische Modelle überprüfen.

- Die Grenze für das magnetische Moment des Neutrinos könnte mit der Messung einer künstlichen Neutrinoquelle verbessert werden.

- BOREXINO könnte imstande sein den Doppelbetazerfall von ^{136}Xe, das in dem Flüssigszintillator gelöst werden könnte, zu beobachten.

- Das LENS Experiment könnte in dem BOREXINO Detektor mit einem Szintillator realisiert werden, in dem Ytterbium oder Gadolinium gelöst ist. Bei einer Beladung von 5% des Szintillatorgewichtes, ständen 15 t eines dieser Elemente als Target zur Verfügung.

- BOREXINO kann restriktive Grenzen für den Fluß solarer Antineutrinos angeben und dadurch $\nu - \bar{\nu}$ Konversion ausschließen.

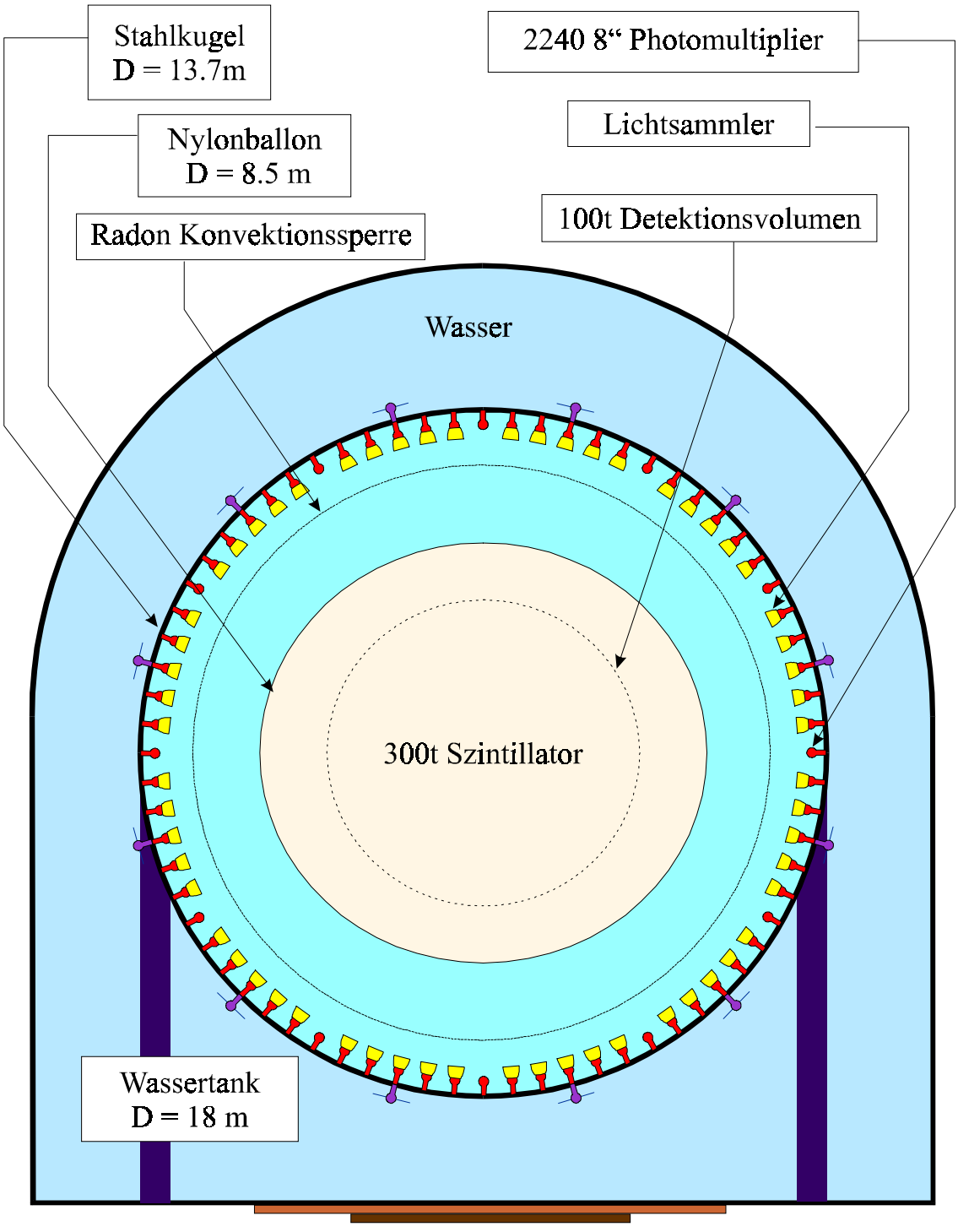

Abbildung 2.1: Schematischer Querschnitt durch den BOREXINO Detektor mit den wesentlichen Elementen.

Der in Abbildung 2.1 dargestellte BOREXINO-Detektor ist nun so konzipiert, daß das innerste Detektionsvolumen durch eine Reihe aktivitätsarmer Materialien abgeschirmt wird, deren Aktivität von außen nach innen abnimmt. Für die ^{7}Be-Neutrinos erfolgt der Nachweis in 100 t Flüssigszintillator, die innerhalb einer Masse von 300 t definiert werden können und sich in einer Nylonkugel von 8.5 m Durchmesser befinden. Dies ist möglich, da jedes Ereignis in einem Teil der 2200 Photomultiplier mit einer Zeitauflösung von typischer Weise 3 ns bei einer Energie E von 1 MeV nachgewiesen wird, wobei die Zeitauflösung proportional zu $E^{-1/2}$ ist. Der Ort eines Ereignisses mit einer Energiedeposition von einem MeV läßt sich innerhalb des Flüssigszintillators dadurch mit einer Unschärfe von etwa 10 cm rekonstruieren.

Die 100 t Detektionsvolumen sind somit noch einmal von 200 t des hochreinen Szintillators umgeben, der dieses gegen die Aktivität des Nylonballons und der Photomultiplier abschirmt. Darüber hinaus ist der Nylonballon von etwa 1 kt hochreiner Abschirmflüssigkeit umgeben, die in einer Stahlkugel enthalten ist, die gleichzeitig der Fixierung der Photomultiplier in definiertem Abstand dient. Da die Konvektion von Radon innerhalb dieser Abschirmflüssigkeit ein Problem darstellt, wird die innere Nylonkugel von den anderen Bauelementen innerhalb der Abschirmflüssigkeit von einer weiteren Nylonhülle umgeben sein. Zur Abschirmung von Neutronen und hochenergetischen Photonen ist diese innere Stahlkugel von weiteren 3 kt Wasser, in einem Tank von 18 m Durchmesser, umgeben.

Das Gran Sasso Untergundlabor schirmt das Experiment mit einer Überdeckung von etwa 350 kg/cm^2 gegen kosmische Strahlung ab, wobei der Myonenfluß in dem Labor noch etwa 1.16 m^{-2}h^{-1} beträgt. Da dieser Myonenfluß zu einer Ereignisrate von einigen hundert Ereignissen in dem relevanten Bereich führt, wird der Detektor mit einem Myonenveto ausgestattet, das sich die Cherenkovemission der Myonen im äußersten Wassertank zunutze macht. Die Cherenkovemission der Myonen, die den äußeren Tank durchqueren, kann über 200 nach außen gerichteten Photomultiplier detektiert und dazu genutzt werden, myonenkorrelierte Ereignisse zu unterdrükken. Die myonenkorrelierte Ereignisrate zwischen 250 keV und 800 keV wird durch den Cherenkovdetektor im äußeren Tank, sowie auf das Detektionsvolumen gerichtete Photomultiplier mit großem Öffnungswinkel und Datenrekonstruktion auf weniger als ein Ereignis täglich reduziert [Hag99].

2.2 Nachweisreaktion

Der Nachweis von Neutrinos erfolgt in BOREXINO über die elastische Streuung von Neutrinos an den Elektronen eines Flüssigszintillators, der die Rückstoßenergie der Elektronen der Detektion zugänglich macht. Für den quantitativen Nachweis von Neutrinos ist diese Reaktion deswegen von Vorteil, weil die Streuung über einen rein leptonischen Prozeß der elektroschwachen Wechselwirkung verläuft, dessen Wirkungsquerschnitt wohl verstanden ist. Elektronneutrinos streuen dabei an den Elektronen über den Austausch eines Z^0 oder $W^{\pm}$-Bosons. Anderen Neutrinoflavours ist dieser Prozeß nur über den Austausch von Z^0-Bosonen möglich, weshalb der Wechselwirkungsquerschnitt für Myon- und Tauneutrinos kleiner ist, als der für Elektronneutrinos. Der Energieübertrag T auf das Elektron läßt sich klassisch berechnen und beträgt für Rückwärtsstreuung von Neutrinos der Energie E_ν

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

Im Fall der ^{7}Be-Neutrinos ist dies eine Maximalenergie von 665 keV, für pep-Neutrinos 1.225 MeV. Nach dem Standardmodell der schwachen Wechselwirkung kann man die in Abbildung 2.2 dargestellte Energieverteilung der gestreuten Elektronen berechnen, wenn N_e Elektronen im Flüssigszintillator als Stoßpartner verfügbar sind und die chiralen Kopplungen $g_R = \sin^2\theta_W = 0.2325 \pm 0.0008$, $g_L = 1/2 + \sin^2\theta_W$ für Elektronneutrinos und $g_L = -1/2 + \sin^2\theta_W$ für Myonneutrinos oder Tauneutrinos sind [PDG92]:

$$\frac{dN}{dT} = N_e \Phi_\nu \frac{d\sigma_\nu}{dT} = N_e \Phi_\nu \frac{2G_F^2 m_e}{\pi\hbar^4}\left[g_L^2 + g_R^2\left(1 - \frac{T}{E_\nu}\right)^2 - g_L g_R\left(\frac{m_e c^2 T}{E_\nu^2}\right)\right].$$

Für eine Detektormasse von 100 t kann man, den Fluß eines Standardsonnenmodells zugrunde gelegt, etwa (47 ± 3.3) ^{7}Be-Neutrinoereignisse täglich beobachten, sofern man Elektronen in dem Energieintervall zwischen 250 keV und 800 keV akzeptiert. Im Fall der vollständigen Konversion in Myonneutrinos sind es unter diesen Bedingungen nur etwa 10 Ereignisse. Prinzipiell bestände die Möglichkeit, die Amplituden von Elektronneutrinos und Myonneutrinos in dem gemessenen Neutrinosignals zu entfalten, da sich die Rückstoßspektren beider Neutrinoarten durch ihre Form unterscheiden. Für den in BOREXINO zu erwartenden Untergrund in diesem Bereich ist diese Möglichkeit jedoch unrealistisch, da die Verteilung der Untergrundereignisse ebenfalls eine Funktion der Energie ist und diese als bekannt vorausgesetzt werden müßte.

Für BOREXINO wäre, falls es der Untergrund zuließe, grundsätzlich auch ein Nachweis von pep- und ^{8}B Neutrinos möglich, die unter den Annahmen des Standardmodells mit einer Rate von etwa 1000 (pep-νs) und 270 (^{8}B-νs) Ereignissen jährlich nachgewiesen werden könnten. In dem Energieintervall zwischen 2.75 MeV und 5.5 MeV, das weder von dem Super-kamiokande-Detektor noch von dem SNO-Detektor erfaßt wird, finden sich unter diesen Annahmen jährlich etwa 140 Ereignisse in einem Detektionsvolumen von 100 t.

Die Detektion der in Abschnitt 2.1 erwähnten Reaktorantineutrinos erfolgt über den inversen Betazerfall des Protons[1]

$$p + \bar{\nu}_e \rightarrow n + e^+,$$

eine Reaktion, deren absoluter, mit dem Reaktorneutrinospektrum gewichteter Wechselwirkungsquerschnitt $\sigma_{tot} = \int \Phi(E_\nu) \cdot \frac{\partial\sigma(E_\nu)}{\partial E_\nu} dE_\nu$ der Neutrinoenergie über 1 MeV experimentell gemessen ist [Dec94]. In BOREXINO kann man sowohl Positronen dieser Energie als auch, zeitlich verzögert, Neutronen beobachten, deren Absorptionslebensdauer im Szintillator etwa 200 μs

[1] Prinzipiell wäre der Nachweis über Antineutrino-Elektronstreuung möglich. Für Antineutrinos ist jedoch das Verhältnis von Signal zu Untergrundereignissen der hier beschriebenen Signatur besser.

beträgt. Der Nachweis dieser Neutronen erfolgt über die 2.2 MeV γ-Strahlung bei dem Neutroneneinfang an einem Proton des Flüssigszintillators. Eine zeitliche und örtliche Korrelation dieser Ereignisse diskriminiert diese Klasse deutlich von Untergrundereignissen, der unter realistischen Annahmen etwa ein Ereignis jährlich in dem gesamten Flüssigszintillator zugeordnet werden können.

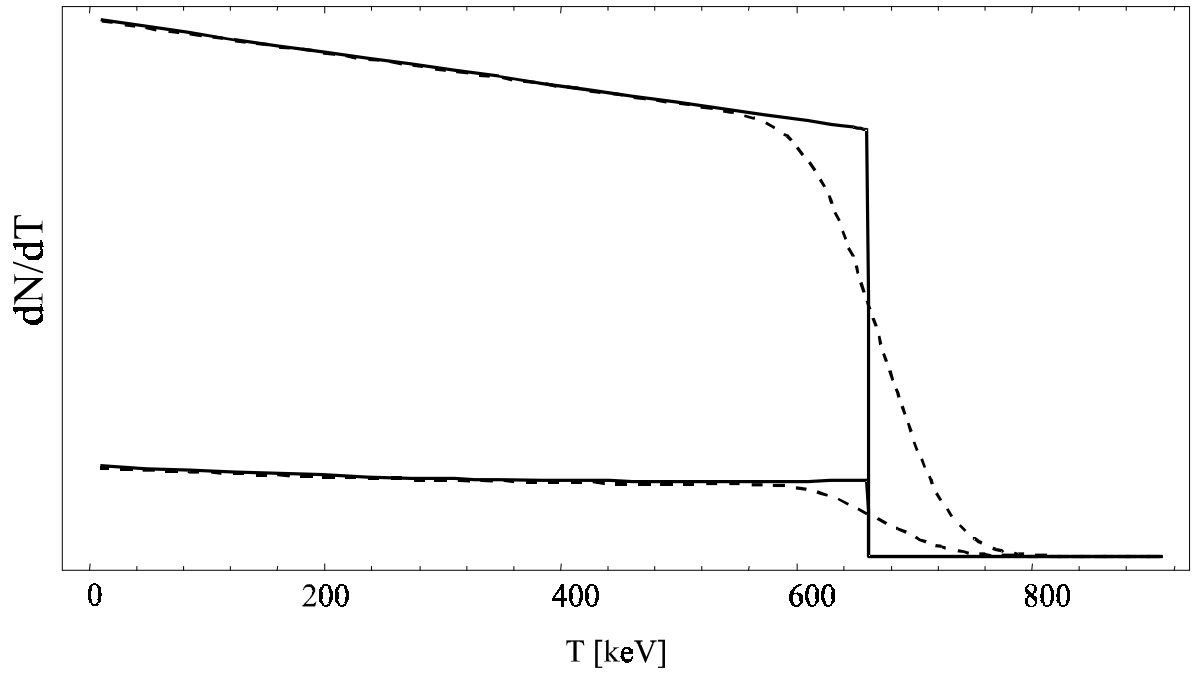

Abbildung 2.2: Rückstoßspektrum für ^{7}Be-Neutrinos bei elastischer Neutrino-Elektron Streuung. Die obere Linie gibt die Verteilung für Elektronneutrinos, die unter für Myonneutrinos wieder. Die mit der Energieauflösung des Detektors gefalteten Verteilungen sind gestrichelt gezeichnet.

3 Untergrund in BOREXINO

3.1 Primordiale Radionuklide

Element	Durchschnittliche Häufigkeit in der Erdkruste in Einheiten von 10^{-6} g/g [Mas82]	Spezifische Aktivität [Bq/g]	Durchschnittliche spezifische Aktivität der Erdkruste [Bq/g]
Cd	0.2	$1.6 \cdot 10^{-3}$	$3.2 \cdot 10^{-10}$
In	0.1	$2.5 \cdot 10^{-1}$	$2.5 \cdot 10^{-8}$
K	25900	$3.0 \cdot 10^{1}$	$7.7 \cdot 10^{-1}$
La	30	$8.2 \cdot 10^{-1}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$
Lu	0.5	$5.1 \cdot 10^{1}$	$2.6 \cdot 10^{-5}$
Rb	90	$8.8 \cdot 10^{2}$	$7.9 \cdot 10^{-2}$
Th	7.2	$4.1 \cdot 10^{3}$	$3.0 \cdot 10^{-2}$
U	1.8	$1.2 \cdot 10^{4}$	$2.2 \cdot 10^{-2}$
Σ			0.908

Tabelle 3.1: Durchschnittliche Konzentrationen und spezifische Aktivität primordialer Radionuklide in der Erdkruste. Für Uran und Thorium ist dabei nur die Aktivität der Isotope ^{238}U und ^{232}Th berücksichtigt.

In dem folgendem Kapitel soll auf die Bedeutung primordialer Radionuklide für BOREXINO eingegangen werden. Als primordiale[2] Nuklide seien hier solche bezeichnet, die vor Bildung des Sonnensystems vorhanden waren, auch wenn diese nicht im kosmologischen Sinn primordial sind. Die Nuklidkarte weist neben den hier betrachteten Nukliden und Zerfallsreihen noch wietere instabile Nuklide aus, die aber für BOREXINO nicht sonderlich relevant sind. Zu diesen zählen langlebige α-Emitter die sich mit hoher Effizienz von anderen Radionukliden diskriminieren lassen und $\beta\beta$-Nuklide, deren Halbwertszeiten so groß sind, daß diese für BOREXINO aufgrund ihrer geringen spezifischen Aktivität keine Rolle spielen. Die Übersicht erhebt also nicht den Anspruch, vollständig zu sein und geht lediglich auf die mit einzelnen Nukliden verknüpften Probleme ein.

Tabelle 3.1 gibt eine Übersicht über die Häufigkeit primordialer Elemente in der Erdkruste, die ein Anhaltspunkt für die Verteilung dieser Elemente in Proben sein mag. Auffällig ist, daß die

[2] Als primordiale Nuklide werden häufig die kurz nach dem Urknall gebildeten leichten Elemente verstanden, die in diesem Zusammenhang nicht gemeint sind.

Alkalimetalle neben Lanthan und den Actinoiden in Konzentrationen von einigen 10^{-6} g/g bis 10^{-3} g/g in der Umwelt zu finden sind. Umgerechnet auf die spezifische Aktivität der Erdkruste zeigt sich, daß Thorium, Uran, Kalium und Rubidium die potentiell gefährlichsten Elemente sind, zumal in dieser Zusammenstellung noch nicht berücksichtigt ist, daß Uran und Thorium die Mutterkerne dreier natürlich vorkommender Zerfallsketten bilden.

3.1.1 Thorium

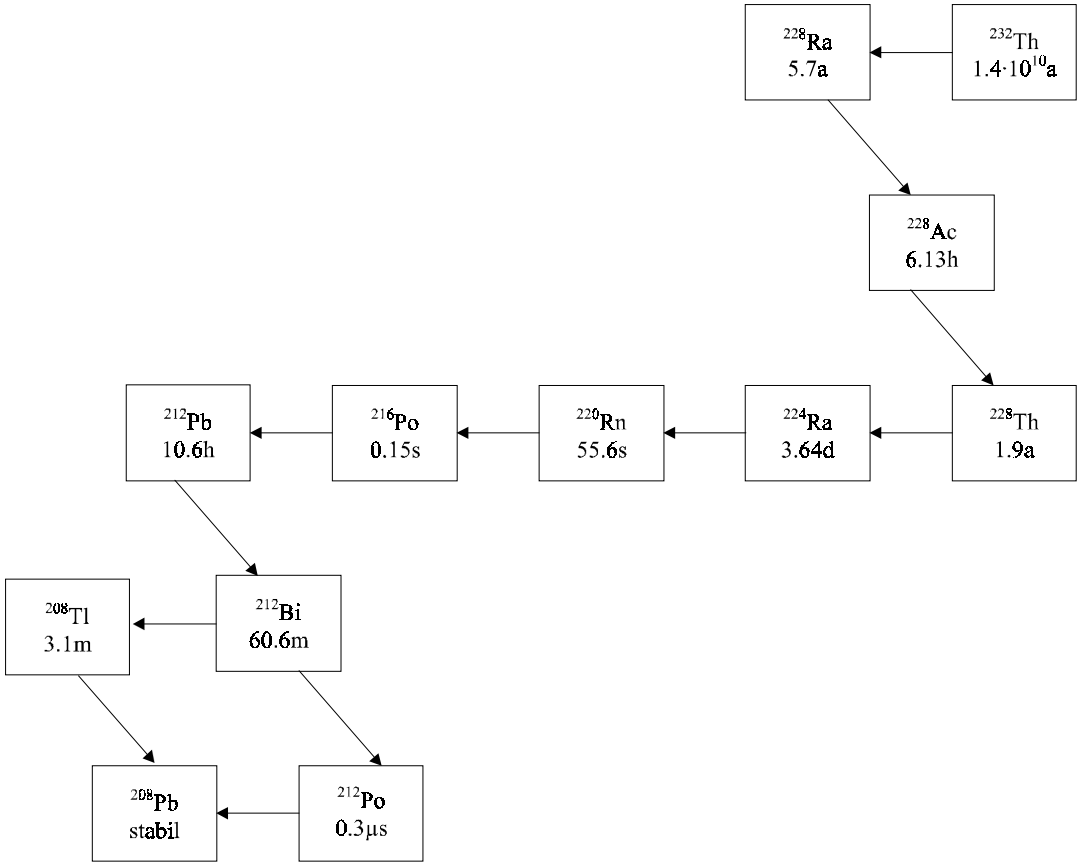

Abbildung 3.1: Thorium Zerfallskette. Nuklide und Halbwertszeiten der wichtigsten Zerfallskanäle.

Das Nuklid ^{232}Th ist der Mutterkern einer Zerfallsreihe, die für den Untergrund in dem Sonnenneutrinoexperiment eine wesentliche Stellung einnimmt. Dies hat nicht nur mit der Ubiquität von Thorium in der Umwelt zu tun, sondern auch mit den vielfältigen physikalischen Eigenschaften der in dieser Zerfallsreihe vorkommenden Nuklide. Die Thoriumreihe läßt sich, nimmt man einmal die Betriebsdauer des BOREXINO-Detektors als charakteristische Zeit, in zwei, jeweils im Gleichgewicht stehende Gruppen einteilen, die sich untereinander nicht notwendigerweise im Zerfallsgleichgewicht befinden. Zum einen ist da die Gruppe zwischen ^{228}Ra und ^{228}Th, zum anderen die Gruppe zwischen ^{228}Th und ^{208}Pb zu nennen. Das Zerfallsgleichgewicht in Komponenten des Detektors wird zwischen diesen Gruppen in aller Regel durch den Produktionsprozeß

oder darauf folgende Reinigungsschritte gebrochen sein. Die Gleichgewichtsaktivität der beiden Ketten läßt sich gammaspektroskopisch so zum einen über die Aktivität von ^{228}Ac, zum anderen über die Aktivität von ^{212}Pb und ^{208}Tl bestimmen. Dieses sind jedoch auch die Nuklide, deren Aktivität für die äußeren Komponenten des Detektors wie Stahl, Aluminium und Glas von gewisser Bedeutung ist. Eigens erwähnt sei ^{208}Tl, das unter der Emission eines 2.614 MeV Photons zerfällt und dessen Wechselwirkung in dem zentralen Flüssigszintillator des Neutrinodetektors durch eine massive Abschirmung unterdrückt werden muß. Für den intrinsischen Untergrund des Flüssigszintillators sind dagegen auch die β- und α-Zerfälle in der Kette zu berücksichtigen. In dem Teil der Kette zwischen ^{228}Th und ^{208}Pb läßt sich diese Gleichgewichtsaktivität über die verzögerte Koinzidenz zwischen ^{212}Bi und ^{212}Po messen. ^{212}Po zerfällt mit einer Halbwertszeit von 300ns, so daß man die Rate der zeitlich korrelierten Ereignisse des ^{212}Bi β-Zerfalls und des ^{212}Po α-Zerfalls auf einem Niveau von einigen Zerfällen je Tag in dem BOREXINO-Flüssigszintillator messen kann. Der Nachweis in dem oberen Teil der Zerfallskette ist auf diesem Niveau bislang nur mittels spurenanalytischer Verfahren möglich, wie sie in dieser Arbeit vorgestellt sind. Dies erlaubt es, Aussagen über das Zerfallsgleichgewicht in den beiden Zerfallsreihen zu machen. Für einige der untersuchten äußeren Detektorkomponenten ist dies leichter möglich, da hier in vielen Fällen die Aktivität der Nuklide direkt bestimmt werden kann.

3.1.2 Uran

Die Zerfallsreihe von ^{238}U weist einige Spezifika auf, die hier beleuchtet seien. Die Zerfallsreihe von ^{235}U hat dagegen für BOREXINO nur eine untergeordnete Bedeutung, da der Isotopenanteil unter 0.5% liegt. Auch in der ^{238}U-Zerfallskette existieren zwei Nuklidgruppen, die jeweils im Gleichgewicht stehen. Da ist zum einen die Gruppe zwischen ^{238}U und ^{234}Pa am Anfang der Kette, zum anderen die Gruppe zwischen ^{226}Ra und ^{214}Po, während die Aktivität der dazwischenliegenden langlebigen Nuklide ^{234}U, ^{230}Th und ^{210}Pb weitgehend von den anderen Gruppen entkoppelt ist. Der gammaspektroskopische Nachweis von Nukliden dieser Gruppen kann über die Linien der Nuklide ^{234}Th, ^{226}Ra, ^{214}Pb und ^{214}Bi erfolgen. Die Aktivität der anderen Nuklide ist sensitiv nur über α-Spektroskopie nachweisbar.

Für die empfindliche Bestimmung der Gleichgewichtsaktivität der Zerfallsreihe zwischen ^{226}Ra und ^{214}Po gibt es in BOREXINO die Möglichkeit die verzögerten Koinzidenzen des ^{214}Bi-^{214}Po Zerfalls zu beobachten. Diese Korrelation von β- und α-Zerfall stützt sich auf die Halbwertszeit von ^{214}Po mit 164 μs, und ist, wie die Koinzidenz in der Thorium-Zerfallskette, mit einer Rate von einigen Ereignissen je Tag in dem Szintillator meßbar.

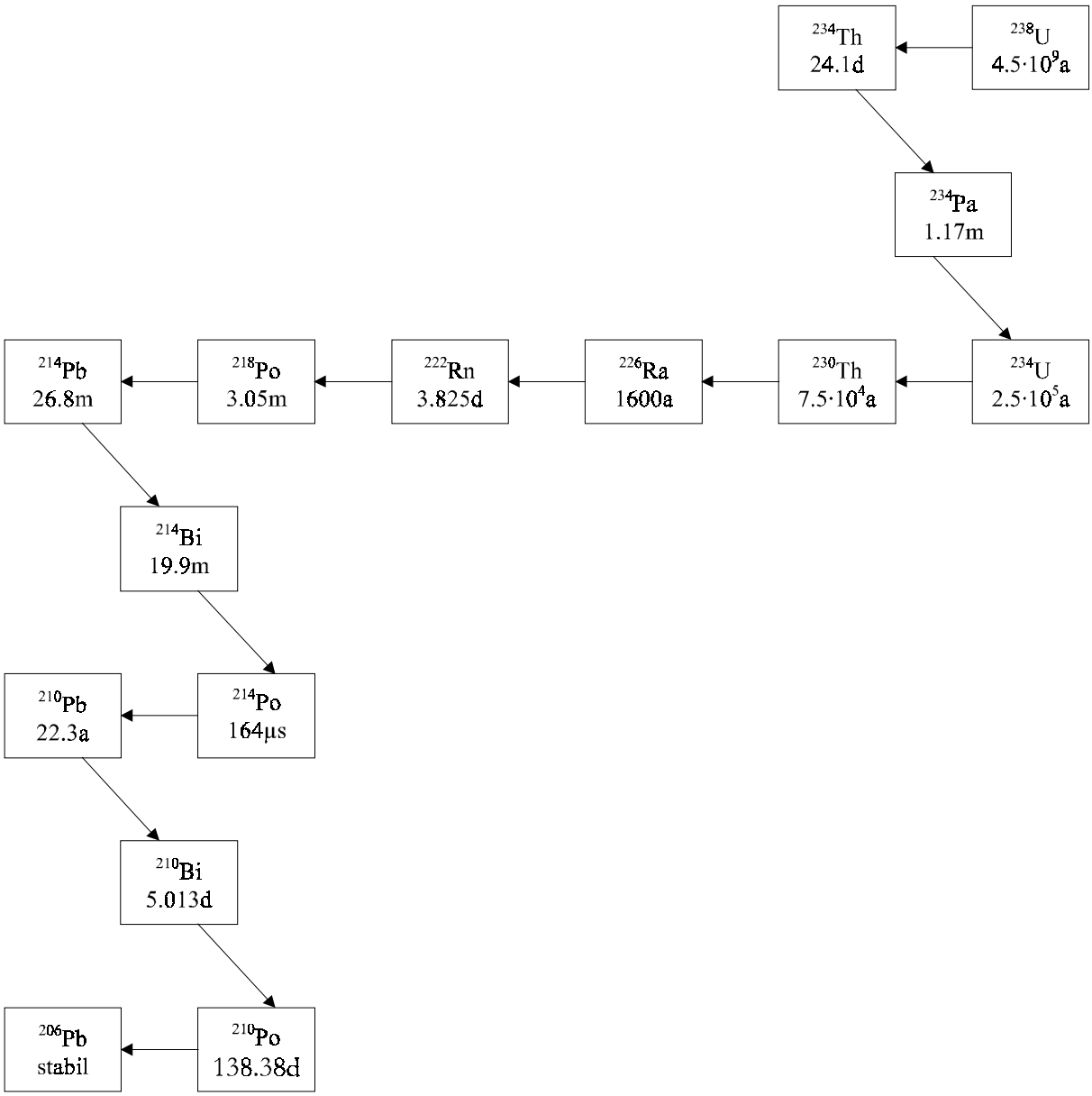

Abbildung 3.2: Uran Zerfallskette. Nuklide und Halbwertszeit der wichtigsten Zerfallskanäle.

Die Uran-Zerfallskette weist mit ^{222}Rn eine Besonderheit auf, die sie von der Thorium-Zerfallskette unterscheidet. ^{222}Rn wird über den α-Zerfall von ^{226}Ra gebildet und besitzt eine Halbwertszeit von 3.8 Tagen. Radon ist als Edelgas chemisch inert und dadurch relativ mobil, so daß es von Matrices, die ^{226}Ra enthalten emaniert wird[3]. Diese Emanation kann für BOREXINO

[3] Dies ist zwar für ^{220}Rn aus der Thorium-Zerfallskette prinzipiell auch möglich, doch ist die Lebensdauer in Matrices und damit die Wahrscheinlichkeit der Emanation viel geringer.

für Matrices mit großen Diffusionsweglängen, wie sie bei einigen Kunststoffen zu finden sind, außerordentlich problematisch sein und deren Verwendbarkeit in dem Experiment stark einschränken. Eine weitere Folge der Emanation von Radon ist die Aktivität der Umgebungsluft in Labors, die sich üblicherweise in einem Rahmen von 30 Bq/m³ bis 300 Bq/m³ unter Normalbedingungen bewegt. Nach dem Zerfall lagern sich die ionisierten Zerfallsprodukte bevorzugt an Staub oder Oberflächen an und sind damit eine mögliche Kontaminationsquelle für die in BOREXINO verwendeten Reinststoffe. Der Zerfall der kurzlebigen Radontochternuklide baut eine Aktivität von ^{210}Pb auf, das mit einer Halbwertszeit von 22.3 Jahren zerfällt. Es kann dadurch zu einer Bildung von ^{210}Pb-Oberflächenaktivität kommen, deren Aktivität sich über die Expositionsdauer abschätzen läßt.

3.1.3 Cadmium, Lanthan, Lutetium, Indium, Rubidium

Neben den Isotopen der Uran und Thorium Zerfallsketten gibt es einige primordiale Radionuklide, die in BOREXINO zu Untergrundereignissen führen können und in Tabelle 3.2 zusammengefaßt sind. Dabei sind vor allem β^--Emitter und Isotope, die über β^+-Emission oder Elektroneinfang zerfallen, für BOREXINO gefährlich, da sich diese über ihre Zerfallssignatur kaum oder überhaupt nicht von Neutrinowechselwirkungen unterscheiden lassen. Die primordialen α-Emitter sind in dieser Hinsicht als weniger kritisch zu bewerten, da sich diese zu einem bedeutenden Anteil über die α/β-Diskrimination des Detektors von Neutrinoereignissen separieren lassen. Dabei ist jedoch zu berücksichtigen, daß Flüssigszintillatoren für α-Teilchen eine geringere Lichtausbeute haben als für Elektronen gleicher Energie. Dadurch werden die Emissionslinien der α-Emitter, die im Bereich zwischen 2 MeV und 9 MeV liegen, im Energieintervall zwischen 200 keV und 900 keV des Detektors nachgewiesen [Nef96].

Für die tolerable Konzentration eines solchen Nuklids in BOREXINO ist nicht nur dessen spezifische Aktivität entscheidend, sondern auch der Q-Wert des Zerfalls. BOREXINO kann für die hier betrachteten Nuklide als kalorimetrisch arbeitender Detektor verstanden werden, der mit Ausnahme der Energie des (Anti)-Neutrinos, die gesamte Energie des Zerfalls nachweisen kann. Störend wirken sich solche Zerfälle auf den Untergrund aus, deren Energiedeposition im Intervall zwischen 250 keV und 800 keV stattfindet. Daneben gibt es noch die $\beta\beta$-Emitter, die jedoch so langlebig sind, daß deren spezifische Aktivität klein gegen die anderer Primordialer ist oder deren Verzweigungsverhältnis für diesen Zerfallsmodus so klein ist, daß diesem für die Untergrundbetrachtungen keine Bedeutung zukommt [Tre95].

Isotop	Isotopenanteil [%]	Verzweigungsverhältnis [%]	Zerfall	Q-Wert [keV]	Halbwertszeit [a]	Ereignisse zwischen 250 keV und 800 keV [%]
^{113}Cd	12.22	100	β^-	316	$9.3 \cdot 10^{15}$	2.7
^{115}In	95.7	100	β^-	495	$4.41 \cdot 10^{14}$	19.5
^{40}K	0.0117	89.28	β^-	1311.09	$1.277 \cdot 10^{9}$	54.9
		10.72	EC+γ, β^+	1504.9	$1.277 \cdot 10^{9}$	< 0.01
^{138}La	0.09	33.6	$\beta^-+\gamma$	1044	$1.05 \cdot 10^{11}$	12.0
		66.4	EC+γ	1737	$1.05 \cdot 10^{11}$	< 0.01
^{176}Lu	2.6	100	$\beta^-+\gamma$	1191.7	$3.6 \cdot 10^{10}$	61.4
^{87}Rb	27.83	100	β^-	283.3	$4.75 \cdot 10^{10}$	0.4

Tabelle 3.2: Zerfallscharakteristika primordialer Radionuklide, die für BOREXINO von Bedeutung sind [Nef96].

3.2 Anthropogene Nuklide

An dieser Stelle sei kurz auf die Bedeutung anthropogener Radionuklide auf den Untergrund eingegangen, die ubiquitär sind. Tritium stellt aufgrund seiner geringen Endpunktenergie von 18.6 keV in Spurenkonzentrationen für BOREXINO kein wesentliches Problem dar, sofern die Aktivität im Szintillator 10^5 Bq nicht überschreitet[4].

Problematischer hingegen sind radioaktive mobile Spaltprodukte, die von Kernkraftwerken und Aufarbeitungsanlagen freigesetzt werden. Dazu gehört ^{85}Kr, das als Spaltprodukte in die Atmosphäre gelangt, mit einem Q-Wert von 687 keV über β^--Emission zerfällt [Jac87] und in der nördlichen Hemisphäre in einer Aktivität von etwa 1.4 Bq/m³ nachweisbar ist [Loo99]. Für BOREXINO bereitet dies Schwierigkeiten, da die meisten der ^{85}Kr Zerfälle in dem Energieintervall zwischen 250 keV und 800 keV nachgewiesen werden. Prinzipiell ließe sich ^{85}Kr in BOREXINO identifizieren, da ein Zweig über die Emission eines 514 keV γ-Quants zerfällt. Da diese Signatur jedoch nur in 0.434% der Zerfälle zu beobachten ist, ist die Sensitivität des Detektors für dieses Isotop nicht ausreichend, um den ^{85}Kr korrelierten Untergrund statistisch zu subtrahieren, falls dieser zeitlich variiert. Unter stabilen Betriebsbedingungen könnte allerdings die Abnahme der ^{85}Kr-Aktivität mit einer Halbwertszeit von 10.76 Jahren beobachtet und als Untergrundbeitrag

[4] Ein Teil des Tritiums ist auch kosmogen, stellt jedoch aus den hier genannten Gründen, für BOREXINO kein Problem dar.

berücksichtigt werden. Als Edelgas kann ^{85}Kr jedoch mit Stickstoff zusammen mit anderen radioaktiven Gasen, aus dem Flüssigszintillator ausgetrieben werden, wie in der „Counting Test Facility“ gezeigt werden konnte.

Für die äußeren Detektorkomponenten sind im wesentlichen ^{60}Co und ^{137}Cs zu nennen. ^{60}Co ist in unterschiedlicher Aktivität in Stahl zu finden, so daß alle Komponenten des Detektors selektiert werden müssen, da die bei dem ^{60}Co-Zerfall emittierten Quanten nicht vollständig in der Abschirmflüssigkeit absorbiert werden können, die das Detektionsvolumen umgibt. Besonderer Sorgfalt bedarf die Selektion von Rohrleitungen, Tanks und Metallbauteilen, die direkt mit dem Szintillator in Berührung kommen, da es kein analytisches Verfahren gibt, mit dem sich die Aktivität von ^{60}Co und ^{137}Cs im Detektor erkennen ließe. ^{137}Cs ist für den Flüssigszintillator ein kritischer Kandidat als es in 94.4% der Fälle über β^--Zerfall mit einer Endpunktenergie von 514 keV auf einen metastabilen Zustand ($T_{½}$ = 2.55 min) von ^{137}Ba unter der Emission eines 661.7 keV γ-Quants zerfällt, das genau in dem Energiebereich des ^{7}Be-Neutrinosignals liegt. Möglicherweise läßt sich ^{137}Cs über die verzögerte β^--γ-Koinzidenz diskriminieren, da beide Ereignisse in Zeit und Ort korreliert sein sollten, sofern in dem Szintillator keine Konvektion stattfindet.

3.3 Kosmogene Nuklide

In diesem Kapitel seien Nuklide beleuchtet, die über die Wechselwirkung von Hadronen oder Myonen der kosmischen Strahlung erzeugt werden und Untergrundereignisse in dem Sonnenneutrinodetektor zur Folge haben können. Dabei sind zwei Gruppen von Bedeutung. Zum einen gibt es Nuklide, die in der Atmosphäre gebildet werden und durch ihre Mobilität während der Synthese des Szintillators oder während des Betriebes des Detektors in diesen gelangen; zum anderen gibt es Nuklide, die über die mittelbare Wechselwirkung von Myonen aus dem ^{12}C-Bestandteil des Szintillators, an der Erdoberfläche oder in dem Untergrundlabor gebildet werden.

3.3.1 Kosmogenes ^{14}C

Der in den oberen Schichten der Atmosphäre über ^{14}N(n,p)^{14}C gebildete β^--Emitter ist trotz seiner Endpunktenergie von 156.5 keV für das Experiment ein kritisches Isotop, da Kohlenstoff eines der Matrixelemente des Flüssigszintillators ist und das ^{14}C/^{12}C Verhältnis 10^{-18} nicht wesentlich übersteigen sollte. Für einen höheren Anteil von ^{14}C würden einige dieser Zerfälle wegen der begrenzten Energie- und Zeitauflösung des Detektors in dem Energiebereich über 250 keV nachgewiesen werden. Auf Grund der Halbwertszeit von 5730 Jahren sollte die ^{14}C-Konzentration der Syntheseedukte für organische Lösungsmittel, die mittelbar aus Rohöl hergestellt werden, jedoch deutlich kleiner sein. Für die in der „Counting Test Facility“ (CTF), einem Prototyp des BOREXINO Experimentes, untersuchten Flüssigszintillatoren wurde ein ^{14}C/^{12}C Verhältnis von $(1.94 \pm 0.09)\cdot10^{-18}$ in 1,2,4-Trimethylbenzol und ein ^{14}C/^{12}C Verhältnis von $(9.0 \pm 0.5)\cdot10^{-18}$ in Phenyl-o-xylylethan gemessen [Ali98a, Sch98b]. Dies zeigt, daß es möglich ist, einen Szintillator mit einem tolerablen ^{14}C Gehalt herzustellen, auch wenn einer der untersuchten Szintillatoren die geforderten Anforderungen in diesem Punkt verfehlt. Die ^{14}C Konzentration in Rohöl sollte wesentlich kleiner sein als die gefundenen, so daß die Quelle für ^{14}C in

einer Verunreinigung von 5 g-50 g Kohlenstoff aus anderen kontemporären Quellen zu suchen sein könnte, dessen Verhältnis von $^{14}C/^{12}C$ bei etwa $1.2 \cdot 10^{-12}$ liegt. Daneben sei noch bemerkt, daß die CTF derzeit der einzige Detektor ist, der imstande ist, das Verhältnis $^{14}C/^{12}C$ in dem Bereich unter 10^{-18} zu bestimmen, da Methoden wie die Beschleunigermassenspektroskopie lediglich eine Grenze von etwa 10^{-14} erreichen. Das Isotop ^{14}C stellt ein prinzipielles Problem für BOREXINO dar, da es, sofern es nicht als CO_2 in dem Szintillator gelöst ist, ein Bestandteil der Matrix ist. Aus der Matrix ließe sich ^{14}C nur mit physikalischen Verfahren abtrennen, was jedoch für eine Masse von 300 t Szintillator unrealistisch erscheint. Trotz einer erreichbaren Nachweisschwelle von etwa 20 keV schließt die Präsenz von ^{14}C, bei einem Verhältnis von $^{14}C/^{12}C$ von 10^{-19} in dem verwendeten Flüssigszintillator den Nachweis der pp-Neutrinos in BOREXINO aus.

3.3.2 Kosmogenes ^{7}Be

Die Produktion von ^{7}Be in dem Szintillator erfolgt über die Reaktionen $^{12}C(n,nn\alpha)^{7}Be$ und $^{12}C(p,np\alpha)^{7}Be$. An der Erdoberfläche stammen diese Protonen und Neutronen vorwiegend aus der hadronischen Höhenstrahlungskomponente, während sie im Untergundlabor als Sekundärteilchen eines Myonenschauers gebildet werden. ^{7}Be zerfällt mit einer Halbwertszeit von 53 Tagen über Elektroneinfang, so daß während der Exposition des Flüssigszintillators an der Oberfläche ^{7}Be gebildet wird bis eine spezifische Gleichgewichtsaktivität von etwa 10^{6} Bq je 100 t Szintillator erreicht ist. Da dieses Nuklid in 10% der Zerfälle unter der Emission eines 478 keV Photons zerfällt, einer Energie die in dem Bereich des nachzuweisenden Neutrinosignals liegt, muß diese kosmogene Aktivität um mindestens fünf Größenordnungen reduziert werden. Dies könnte durch die zweijährige Lagerung des Szintillators in dem Untergrundlabor oder ein Reinigungsverfahren erzielt werden. Auf die in situ Produktion von ^{7}Be, die die Gleichgewichtsaktivität in dem Untergrundlabor bestimmt, soll in Abschnitt 3.3.4 noch einmal eingegangen werden.

3.3.3 Kosmogene Edelgase: ^{39}Ar und ^{81}Kr

Neben anthropogenem ^{85}Kr sind in der Atmosphäre auch kosmogene Edelgase nachzuweisen. ^{39}Ar, wird über die Reaktion $^{40}Ar(n,2n)^{39}Ar$ über schnelle Neutronen gebildet und ist unter Normalbedingungen mit einer Aktivität von $(1.66 \pm 0.07) \cdot 10^{-2}$ Bq/m³ in der Atmosphäre zu finden [Loo69, Loo83, Loo99]. ^{39}Ar ist für BOREXINO wegen seiner Ubiquität und seiner Häufigkeit eine mögliche Quelle von Untergrundaktivität, zumal der β^{-}-Zerfall mit einer Endpunktenergie von 565 keV direkt auf den Grundzustand von ^{39}K erfolgt.

Daneben sei noch ^{81}Kr erwähnt, das über die Reaktionen $^{80}Kr(n,\gamma)^{81}Kr$ und $^{82}Kr(n,2n)^{81}Kr$ produziert wird. Mit einer Aktivität von $1.66 \cdot 10^{-2}$ Bq/m³ ist die spezifische ^{81}Kr Aktivität der Atmosphäre jedoch deutlich kleiner als die von ^{85}Kr. ^{81}Kr ist in dieser Hinsicht weniger kritisch, da der Q-Wert des Elektroneinfangs bei 280.7 keV und somit nicht direkt in dem Bereich der ^{7}Be-Rückstoßkante liegt.

3.3.4 Myoneninduzierte Radionuklide

Isotop	Zerfallsmodus	$T_{1/2}$	E_{max}[MeV]	E_γ [MeV], (BR)
^{11}Be	β^-	13.81 s	11.5	
^{11}Li	β^-, n	9 ms	20.8	
^{9}Li	β^-, n	180 ms	13.6	
^{8}Li	β^-, α	840 ms	13.0	
^{8}He	β^-, n	120 ms	10.6	
^{6}He	β^-	810 ms	3.5	
^{11}C	β^+	20.38 min	0.96	
^{10}C	β^+	19.26 s	1.9	0.72 (98.53%)
^{9}C	β^+	130 ms	16.0	
^{8}B	β^+	770 ms	13.9	
^{7}Be	EC	53.3 d	-	0.478 (10.52%)

Tabelle 3.3: Radionuklide, die in BOREXINO durch Myonen erzeugt werden können. Die Spalte E_{max} gibt den Endpunkt der β-Spektren an. Die nachgewiesene Energie liegt bei den β^+-Emittern, durch den simultanen Nachweis der beiden Annihilationsquanten um 1.022 MeV höher. In der zweiten Spalte ist neben dem Zerfallsmodus die Art der simultan bei diesem Zerfall emittierten Teilchen angegeben.

Natürlich muß man die myoneninduzierten Radionuklide auch zu den kosmogenen Radionukliden rechnen, allerdings seien diese hier getrennt von den kosmogenen beschrieben, da deren Problematik für BOREXINO anders gelagert ist. Bei dieser Klasse von Nukliden handelt es sich um Kerne, die aus ^{12}C in situ erzeugt werden. Ihre Produktionsrate hängt damit lediglich von den Charakteristika des Myonenspektrums am Ort des Detektors ab und ist nach Zerfall der an der Oberfläche erzeugten ^{7}Be-Aktivität zeitlich stationär. Myonen haben in dem Gran Sasso Labor eine mittlere Energie von 320 GeV und produzieren über (γ,n)-, (γ,p)-, Spallations und Einfangreaktionen an ^{12}C, die in Tabelle 3.3 zusammengefaßten Radionuklide.

Der Myonenfluß in dem Labor beträgt zwar nur 1.16 $h^{-1}m^{-2}$, dennoch durchqueren in BOREXINO etwa 2000 Myonen täglich die Flüssigszintillator gefüllte Nylonkugel. Da der Detektor mit einem Myonenveto ausgestattet ist, lassen sich Nuklide mit Halbwertszeiten mit bis zu einigen Sekunden Myonen zuordnen und somit fast vollständig unterdrücken. Für den Untergrund in dem Experiment sind solche Nuklide von Gewicht, die sich aufgrund der langen Korrelationszeit zwischen Myon und Zerfall, nicht diskriminieren lassen und deren Zerfälle Energie in dem Bereich der Rückstoßkante der ^{7}Be-Neutrinolinie zwischen 250 keV und 800 keV oder der pep-Neutrinolinie zwischen 800 keV und 1400 keV deponieren.

Die Produktionsquerschnitte für alle relevanten Nuklide konnten experimentell an dem Myonenstrahl des SPS-Beschleunigers bei einer Myonenenergie von 100 GeV und 190 GeV bestimmt werden. Dabei hat sich gezeigt, daß im wesentlichen ^{7}Be und ^{11}C für BOREXINO von Bedeutung sind. Von ^{7}Be werden täglich 4.2 ± 0.5 Kerne in 100 t Szintillator gebildet, von denen 10% in dem Bereich von 250 keV bis 800 keV gemessen werden. Das über β^{+}-Emission zerfallende ^{11}C ist in erster Linie für den Energiebereich der pep-Neutrinos von 800 bis 1400 keV von Belang, in dem (8.59 ± 0.83) der (16.98 ± 1.64) täglich produzierten Kernen nachgewiesen werden [Hag99a]. In diesem Intervall ist also lediglich eine statistische Subtraktion des Untergrundes von dem Signal möglich. Von allen anderen Nukliden werden in 100 t Szintillator etwa 3 Kerne täglich produziert, deren Energie jedoch so hoch ist, daß nur etwa 15 Ereignisse aus diesem Produktionsmechanismus jährlich zwischen 250 keV und 800 keV zu erwarten sind.

Für den Nachweis der Antineutrinos verdienen allerdings die Nuklide, deren Betazerfall mit der Emission eines Neutrons korreliert ist, besondere Beachtung, da deren Zerfallssignatur der des Antineutrinonachweises ähnlich ist. Allein von den Nukliden ^{9}Li und ^{8}He werden in den 300 t Szintillator BOREXINOs jährlich etwa 50 Kerne gebildet, die der zu erwartenden Zahl von 30 Reaktorneutrinoereignissen gegenübergestellt werden müssen. Diese beiden Nuklide lassen sich allerdings, wie der Zerfall von ^{11}Li für den die Verhältnisse ähnlich liegen dürften, unter Verwendung des Myonenvetos sehr effizient unterdrücken.

3.4 Detektorkomponenten in BOREXINO

Für alle in BOREXINO verwendeten Detektorkomponenten lassen sich Grenzen für die tolerierbare Aktivität angeben, die in diesem Zusammenhang in die Konzentration dieser Elemente in der Matrix umgerechnet sind[5]. Explizit angegeben seien hier die Grenzen für die inneren Komponenten des Detektors für die die Reinheitsanforderungen so sind, daß diese Grenzen derzeit nur mittels spurenanalytischer Verfahren erreicht werden können.

3.4.1 Flüssigszintillatoren

Der BOREXINO-Szintillator unterliegt den strengsten Anforderungen von allen in dem Sonnenneutrinoexperiment verwendeten Detektormaterialien. Für ihn gelten die in Tabelle 3.4 zusammengefaßten Grenzen unter der Annahme, daß innerhalb eines Detektionsvolumens von 100 t Masse täglich ein Ereignis gemessen wird, wobei eine α-Identifikationswahrscheinlichkeit von 95% angenommen wurde. Daneben wurde berücksichtigt, daß für die beiden Zerfallsreihen die mit den Nukliden ^{214}Bi und ^{210}Bi in Gleichgewicht stehenden Zerfälle statistisch von dem gemessenen Spektrum subtrahiert werden können. Diese Anforderungen sind also durchaus erforderlich in Anbetracht der Maßgabe, daß in dem selben Volumen täglich zehn Neutrinoereignisse, für den Fall der vollständigen Konversion, nachgewiesen werden sollen. Daneben sei, aus Gründen der Vergleichbarkeit, für die Zerfallsketten säkulares Zerfallsgleichgewicht angenommen. Unter

[5] Obwohl Konzentrationsangaben für kurzlebige Nuklide in diesem Zusammenhang weniger sinnvoll als die Angabe einer spezifischen Aktivität sind, wurden, um Resultate gegenüberstellen zu können, Aktivitätsangaben häufig unter der Annahme des säkularen Zerfallsgleichgewichtes in die Konzentrationen der langlebigen Isotope ^{238}U und ^{232}Th umgerechnet.

diesen Annahmen ergeben sich die strengsten Grenzen für Uran und Thorium. Für Uran entspricht dies einer Konzentration von 7 ng in 300 t Szintillator. Legt man für staubförmige Kontaminationen eine Konzentration von $1.8 \cdot 10^{-6}$ g/g zugrunde (Tabelle 3.1), entspräche die angegebene Grenze einer Masse von nur 4 mg Staub in dem gesamten Flüssigszintillator. Für andere Elemente, wie etwa Kalium, sind die Grenzen zwar nicht so restriktiv, auf der anderen Seite ist Kalium jedoch sehr viel häufiger und damit die Gefahr einer Kontamination ungleich größer.

Element	Konzentration [g/g]	Element	Konzentration [g/g]
Cd	$2.8 \cdot 10^{-9}$	Lu	$3.7 \cdot 10^{-15}$
In	$2.4 \cdot 10^{-12}$	Rb	$3.2 \cdot 10^{-14}$
K	$7.8 \cdot 10^{-15}$	U	$2.3 \cdot 10^{-17}$
La	$1.2 \cdot 10^{-12}$	Th	$5.8 \cdot 10^{-16}$

Tabelle 3.4: Konzentrationen primordialer Radionuklide in dem verwendeten Flüssigszintillator, die in 100 t Detektionsvolumen ein Ereignis je Tag in einem Energiebereich zwischen 250 keV und 800 keV erzeugen. Für die Zerfallsketten ist säkulares Gleichgewicht und eine α-Identifikationswahrscheinlichkeit von 95% angenommen. [Nef96] entnommen.

Für BOREXINO konnten zwei verschiedene Flüssigszintillatoren mit zwei komplementären Methoden auf die Kontamination durch Nuklide der Uran- und Thorium-Zerfallsreihe untersucht werden. Zum einen wurde deren Aktivität, wie noch gezeigt werden soll, direkt gemessen, zum anderen wurden die Konzentrationen der Isotope ^{238}U und ^{232}Th mit den in dieser Arbeit vorgesetellten Verfahren bestimmt und, sofern dies nicht möglich war, Grenzen dafür angegeben.

3.4.2 Nylon

In dem BOREXINO-Detektor wird das aktive Flüssigszintillator-Detektorvolumen in einem transparenten Nylonballon von 850 cm Durchmesser enthalten sein. Dieser muß dazu eine gewisse mechanische Festigkeit aufweisen, um den Szintillator innerhalb der Abschirmflüssigkeit zu fixieren. Daneben dient der Kunststoff als Diffusionssperre für Radon aus der das Detektionsvolumen umgebenden Abschirmflüssigkeit.

Für den Nylonballon ist in Tabelle 3.5 die Anzahl der Ereignisse angegeben, die für eine isotrop, homogen verteilte Masse eines der genannten Elemente innerhalb eines bestimmten Radius zu erwarten ist. Nimmt man einmal eine Foliendicke von 250 μm an, so wird der gesamte Ballon eine Masse von etwa 100 kg haben. Dies bedeutet für die Konzentration der primordialen Elemente, daß sie für Uran und Thorium in dem Bereich von 10^{-10} g/g, für Kalium und Lanthan in dem Bereich von 10^{-6} g/g liegen müssen. Für die Urankette ist dabei jedoch noch nicht berücksichtigt, daß ein Teil des innerhalb des Nylon gebildeten Radons in den Szintillator diffundieren kann. Diese Emanation kleiner Mengen von Radon verschärft die Grenze erheblich, so daß für Uran eine Reinheit von etwa 10^{-12} g/g erforderlich ist. Diese hängt von der Diffusionsweglänge

von Radon und somit der emanierenden Schichtdicke ab, sollte jedoch die genannte Grenze nicht wesentlich übersteigen.

Element	Radius	250 keV – 800 keV	800 keV – 1600 keV	Masse bei 425cm Abstand vom Zentrum
U	R < 300cm	< 0.8	< 0.8	$1 \cdot 10^{-5}$g
	R < 350cm	7.0	12.9	
	R < 400cm	607	393	
Th	R < 300cm	< 0.2	< 0.4	$1 \cdot 10^{-5}$g
	R < 350cm	2.25	5.4	
	R < 400cm	190	182	
K	R < 300cm	0.29	4.0	0.1g
	R < 350cm	1.4	111	
	R < 400cm	197	2427	
La	R < 300cm	< 0.04	0.62	0.1g
	R < 350cm	0.22	15.2	
	R < 400cm	23	303	

Tabelle 3.5: In der Tabelle sind die Raten angegeben, die bei einer homogenen Verteilung der in der fünften Spalte aufgeführten Massen, innerhalb der Volumina mit dem Radius R zu erwarten sind. [Obe98].

3.4.3 Weitere Detektorkomponenten

Detektorkomponente	Uran [g/g]	Thorium [g/g]	Kalium [g/g]	Untergrundbeiträge/d
Innere Stahlkugel	$2 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-5}$	< 0.7
2240 Photomultiplier	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-5}$	< 0.4
2000 Aluminium Lichtsammler	$6.7 \cdot 10^{-9}$	$5.9 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-6}$	< 0.06
Abschirmflüssigkeit	$1 \cdot 10^{-13}$	$1 \cdot 10^{-13}$	$1 \cdot 10^{-10}$	< 0.8

Tabelle 3.6: Beiträge verschiedener Detektorkomponenten, der angegebenen Konzentrationen primordialer Elemente, zu der Untergrundrate in dem Energiebereich zwischen 250 keV und 800 keV für die inneren 100 t Szintillator.

Für alle weiteren Detektorkomponenten ist vornehmlich die Emission von Photonen von Belang, die die Abschirmung durchdringen und in dem Detektionsvolumen wechselwirken. In Tabelle 3.6 ist der Beitrag dieser Komponenten unter realistischen Annahmen für weitere Detektorkomponenten zusammengestellt. Für die spurenanalytischen Messungen ist dabei vor allem die Abschirmflüssigkeit von Interesse. Diese wird in BOREXINO aus 1,2,4-Trimethylbenzol, Wasser oder Butylglykol bestehen. Für erstere existieren Grenzen, die eine Verwendung in dem Experiment zulassen [Hen96, Gol97a]. Butylglykol, das eine Adaption der Dichte zwischen Szintillator und Abschirmflüssigkeit ermöglichen würde, ist dagegen noch nicht untersucht.

3.5 Counting Test Facility: Resultate

Da es selbst mit den aktivitätsärmsten Meßplätzen oder spurenanalytischen Verfahren derzeit nicht möglich ist, die für BOREXINO verwendeten Flüssigszintillatoren auf deren Aktivität aller primordialer und kosmogener Nuklide in dem relevanten Bereich zu untersuchen, wurde im Vorfeld des BOREXINO Experimentes ein Detektor gebaut, um diese Fragestellungen zu untersuchen. Dabei galt es zu klären, ob die für BOREXINO zugrunde gelegten Anforderungen realisierbar sind und ob es Szintillatoren gibt, deren ^{14}C-Gehalt gering genug ist, um einen Detektor mit einer Schwelle von 250 keV zu betreiben. Die Counting Test Facility (CTF) ist ein Detektor, der 5 t Flüssigszintillator in einer aktivitätsarmen Umgebung, in einer BOREXINO ähnlichen Geometrie vermessen kann. Der in einem Nylonballon enthaltene Flüssigszintillator ist von 1 kt Reinstwasser umgeben und wird von 100 Photomultipliern beobachtet, die die Rekonstruktion von Ereignissen einer Energie von 300 keV mit einer Ortsauflösung von etwa 15 cm ermöglichen. Für eine detaillierte Beschreibung des Detektors sei der Leser an [Ali98c, Ali98] verwiesen.

Zwei Flüssigszintillatoren unterschiedlicher Zusammensetzung konnten mit Hilfe der CTF untersucht werden. Für einen aus 1,2,4-Trimetylbenzol (PC) und 2,5-Diphenyloxazol (PPO) zusammengesetzten Szintillator wurden Reinigungsverfahren wie Flüssig-Flüssig-Extraktion, Destillation und Filtration studiert und mit komplementären analytischen Verfahren getestet [Gol97a,

Lau98]. Für den aus Phenyl-o-xylylethan (PXE) als Lösungsmittel, p-Diphenylbenzol (pTP) als primärer Wellenlängenschieber und 1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol (bis-MSB) als sekundärer Wellenlängenschieber zusammengesetzten Flüssigszintillator, wurden Filtration, Flüssig-Flüssig-Extraktion und Flüssig-Fest-Extraktion mittels Kieselgel untersucht, deren Resultate in Kapitel 6.1 (Seite 102) für den PXE-Flüssigszintillator diskutiert werden. Für BOREXINO bietet letzterer gewisse Vorteile, da der PXE-Szintillator zum einen die für den Nachweis der ^{7}Be zur Verfügung stehende Detektormasse erhöhen würde, zum anderen die Handhabung von 300 t Szintillator erleichtern würde, da in diesem Fall Reinstwasser als Abschirmflüssigkeit verwendet werden könnte[6].

Ein entscheidendes Ergebnis der Counting Test Facility war, daß die in den beiden Szintillatoren enthaltene Aktivität von ^{14}C, ^{214}Bi und ^{212}Bi auf einem für BOREXINO relevanten Niveau vermessen werden konnte. Die Daten der beiden in der Counting Test Facility untersuchten Szintillatoren sind in Tabelle 3.7 gegenübergestellt. Für den PC-Szintillator konnten Daten nach verschiedenen Reinigungsschritten gewonnen werden, während dies für den PXE-Flüssigszintillator lediglich nach einem Flüssig-Fest-Extraktionsschritt möglich war, da die Counting Test Facility anschließend zu einer Revision außer Betrieb genommen wurde. Alle folgenden Reinigungsverfahren wurden zwar ebenfalls an den Einrichtungen Counting Test Facility durchgeführt, konnten jedoch dort nicht mehr gemessen werden. Die Resultate aller folgenden Reinigungsverfahren und die Tatsache, daß für den PXE-Szintillator eine dem PC-Szintillator vergleichbare Reinheit erzielt werden kann, ist in Abschnitt 6.2 diskutiert. Ab dem Sommer 1999 wird die Counting Test Facility, in einer verbesserten Version, für weitere Messungen verfügbar sein.

	PC-Flüssigszintillator	PXE-Flüssigszintillator
$^{14}C/^{12}C$	$(1.94 \pm 0.09)\cdot 10^{-18}$	$(9.0 \pm 0.5)\cdot 10^{-18}$
Uran [g/g]	$(3.5 \pm 1.3)\cdot 10^{-16}$	$(1.0 \pm 0.5)\cdot 10^{-15}$
Thorium [g/g]	$< 3.6\cdot 10^{-16}$ (@ 90% C.L.)	$(2.0 \pm 0.5)\cdot 10^{-15}$

Tabelle 3.7: Konzentration radioaktiver Spurenelemente in den mit der Counting Test Facility untersuchten Flüssigszintillatoren unter der Annahme säkularen Zerfallsgleichgewichtes.

Die ^{14}C-Konzentration bleibt von den Reinigungsverfahren unberührt, da dieses Isotop in die organische Matrix eingebunden ist. Für den BOREXINO Detektor ist dies jedoch eine Größe, die a priori unsicher und unbeeinflußbar ist. Es wird also unabdingbar sein, den in BOREXINO verwendeten Szintillator auf seinen ^{14}C-Gehalt zu untersuchen, da dieses Isotop nicht, wie andere Kontaminationen, entfernt werden kann.

[6] Dies ist auf die Dichte des Szintillators zurückzuführen, die bei 1,2,4-Trimethylbenzol 0.89g/cm^3, bei Phenyl-o-xylylethan 0.98g/cm^3 beträgt.

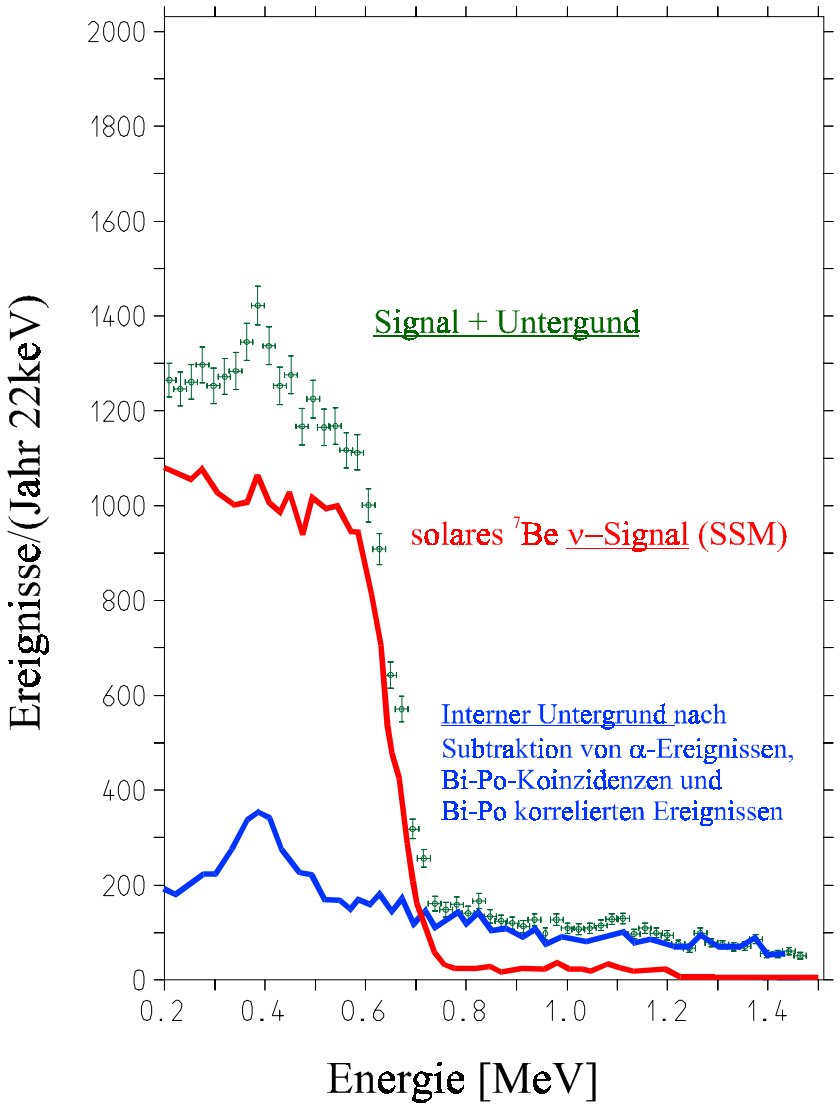

Abbildung 3.3: Berechneter interner Untergrund und Neutrinosignal des BOREXINO-Detektors in dem Energieintervall zwischen 200 keV und 1.5 MeV. Für den Untergrund ist eine Konzentration für Uran und Thorium von 10^{-16} g/g in säkularem Gleichgewicht, für Kalium eine Konzentration von 10^{-14} g/g angenommen. Die ^{14}C-Aktivität mit einem Endpunkt von 156 keV ist dabei nicht berücksichtigt[7]. Die Abbildung zeigt den Untergrund nach der Subtraktion von 90% aller α-Zerfälle, der Bi-Po Koinzidenzen sowie der statistischen Subtraktion aller Ereignisse, die sich diesen Teilen der Zerfallsreihen zuordnen lassen. Die Fehlerbalken bezeichnen die statistische Unsicherheit der Rechnung.

[7] Dies kann für eine höhere Aktivität von ^{14}C notwendig werden, wenn diese infolge von „pile up"-Effekten und der begrenzten Energieauflösung des Detektors im Bereich von 200 keV nachweisbar ist.

Abgesehen von den Daten über die Eigenaktivität des Flüssigszintillators, konnten die optischen und die zur Identifikation von α-Teilchen wesentlichen Eigenschaften in dem PC-Flüssigszintillator studiert werden, die bei großen optischen Weglängen Abweichungen von den von den bei kleinen optischen Weglängen gemessenen Parametern aufweisen. Große optische Weglängen verbreitern die zeitliche Charakteristik eines Ereignisses, eine Eigenschaft die zur Unterscheidung von α- und β-Ereignissen herangezogen wird. In der Zentrum der Counting Test Facility konnte für den α-Zerfall von ^{214}Po bei einer akzeptierten Mißidentifikation des ^{214}Bi β-Zerfalls von 2.5% eine α-Identifikationswahrscheinlichkeit von 97% erreicht werden. Diese Diskriminationseigenschaften sind für die Unterdrückung von Untergrundereignissen aus den Zerfallsreihen notwendig, falls sich deren Konzentration in Bereich von 10^{-16} g/g bewegt. Für deutlich niedrigere Konzentrationen gewinnt der Beitrag externen Untergrundes zunehmend an Bedeutung, der vorrangig für den β-artigen Untergrund verantwortlich ist. Für die anhand der Counting Test Facility gewonnenen Daten kann man das Untergrundspektrum für BOREXINO unter realistischen Annahmen radioaktiver Kontaminationen und optischer Eigenschaften simulieren. In Abbildung 3.3 ist ein Untergrundspektrum nach der Subtraktion von identifizierbaren Untergrundbeiträgen dargestellt, welche aus der Uran- und Thoriumzerfallskette stammen. Für die statistische Subtraktion der α-Zerfälle wurde dabei angenommen, daß diese zu 90% als solche erkannt und diskriminiert werden können, was angesichts der CTF-Resultate derzeit realisierbar erscheint.

Die Counting Test Facility ist mit 0.03 Ereignissen $kg^{-1}keV^{-1}a^{-1}$ der gegenwärtig untergrundärmste Detektor in dem Energiebereich zwischen 250 keV und 2.5 MeV und damit etwa eine Größenordnung besser als Experimente, die nach der Existenz eines $0\nu\beta\beta$-Zerfalls suchen.

4 Analytik primordialer Radionuklide

4.1 Neutronenaktivierungsanalyse

4.1.1 Einleitung

Die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) ist ein Verfahren zur Elementanalytik, das sich die Überführung langlebiger oder stabiler Isotope in instabile Isotope zunutze macht. Dies geschieht in aller Regel in dem Neutronenfeld eines Forschungsreaktors. Dabei werden aus einem Element üblicherweise ein oder mehrere Indikatorradionuklide über Neutroneneinfang produziert, die sich bei deren Zerfall über charakteristische γ-Strahlung nachweisen lassen. In speziellen Fällen kann man Spaltung schwerer Kerne, (n,α)-, (n,p)-, (n,n´)- oder (n,2n)-Reaktionen schneller Neutronen ausnützen, auf die hier jedoch nicht näher eingegangen werden soll. Für eine Zusammenfassung verschiedener Aktivierungsmechanismen sei an dieser Stelle auf [Alf94] verwiesen.

Die NAA hat sich in den vergangenen Jahrzehnten zu einer der Standardmethoden in der Elementanalytik entwickelt. Dazu haben verschiedene Faktoren wie genauere Daten für Neutroneneinfangquerschnitte und Zerfallsprozesse, sowie Weiterentwicklungen in dem Bereich der verwendeten Detektoren, beigetragen. Darüber hinaus hat sich die Neutronenaktivierungsanalyse als Referenzmethode etabliert, da sich mittels dieser Methode in einer Vielzahl von Matrices eine große Anzahl von Spurenelementen simultan bestimmen läßt. In der Ultraspurenanalytik hat sich die NAA ebenfalls zu einem unentbehrlichen Analyseverfahren entwickelt das es erlaubt Spurenelemente auf Oberflächen und in massiven Proben zu bestimmen. Als Referenzmethode ist die NAA deshalb besonders geeignet, da zur Identifizierung von Nukliden, mit der charakteristischen Energie emittierter Photonen und der Halbwertszeit des Indikatorradionuklides, zwei unabhängige Parameter verfügbar sind.

Die Einführung nicht-relativer Standardisierungsmethoden und die systematische Untersuchung der Neutroneneinfangreaktionen hat der NAA den Weg für die Multielementanalyse in den Ultraspurenbereich geebnet[8]. Dabei entfällt die aufwendige Präparation von Standards und ermöglicht eine Analyse der Spurenelementverteilung mit meist ausreichender Genauigkeit. Weitere Vorteile gegenüber anderen spurenanalytischen Verfahren wie AAS[9], GD-MS, ICP-AS und ICP-MS bietet die NAA dadurch, daß in vielen Fällen kein Aufschluß der Probe nötig ist und sich somit eine Ausbeutebestimmung des Analyten erübrigt. Aktivierungsanalytisch läßt sich in dem Gegensatz zu anderen Verfahren ein breiter Konzentrationsbereich erfassen, der im wesentlichen durch apparative Einschränkungen begrenzt ist. Im Falle geringer Konzentrationen und Aktivitäten ist dies die Eigenaktivität des Detektors, im Falle hoher Aktivität die Zeitauflösung des Detektors.

[8] In der vorliegenden Arbeit wurden Neutroneneinfangquerschnitte [McL95] entnommen

[9] Die hier verwendeten Abkürzungen finden sich im Glossar.

Für die Analyse wäßriger Lösungen kann die in der vorliegenden Arbeit verwendete Bestrahlungseinrichtung für eine Vielzahl von Elementen mit den empfindlichsten ICP-MS Geräten konkurrieren [Bro96], während es diesen für die Analyse organischer Flüssigkeiten im Ultraspurenbereich überlegen ist. Für die Injektion einer Probe in das Argonplasma einer ICP-MS Anlage muß diese in aller Regel als wäßrige Lösung vorliegen, so daß organische Matrices vor der Analyse aufgeschlossen werden müssen. Dies führt im Ultraspurenbereich zu Blindwerten[10], die die Nachweisgrenzen limitieren. Ist für die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) ein Aufschluß der Probe oder eine Separation der Indikatorradionuklide erforderlich, läßt sich dies gewöhnlich ohne eine Beeinträchtigung der Blindwerte nach der Aktivierung durchführen.

Bei genauer Kenntnis der Bestrahlungsparameter läßt sich die NAA als absolute Analysemethode anwenden. Die Ermittlung des Flusses Φ_{th} im thermischen Bereich einer Neutronenenergie zwischen 0 eV und 0.125 eV, des epithermischen Flusses Φ_{eth} zwischen 0.125 eV und 1 MeV und des schnellen Flusses über 1 MeV erfolgt dabei über Flußmonitore deren Wechselwirkungsquerschnitte in den jeweiligen Energiebereichen bekannt sind. Daraus läßt sich die Aktivität A eines so produzierten Nuklids der Lebensdauer λ über

$$A = N\left(1 - e^{-\lambda t_b}\right) \int_0^{4MeV} \Phi(E) \cdot \sigma(E)\, dE$$

berechnen, wobei Φ die differentielle Neutronenflußdichte, σ der Wirkungsquerschnitt, N die Anzahl der aktivierbaren Kerne und t_b die Bestrahlungsdauer ist. Für eine $1/\sqrt{E}$ Abhängigkeit des epithermischen Neutroneneinfangquerschnittes von Flußmonitor und aktivierbarem Nuklid kann man das Integral als Summe über die Teilkomponenten des Neutronenspektrums als

$$A = N\left(1 - e^{-\lambda t_b}\right) \int_0^{4MeV} \Phi(E)\sigma(E)\, dE = N\left(1 - e^{-\lambda t_b}\right) \cdot \left(\sigma_{th}\Phi_{th} + \sigma_{eth}\Phi_{eth}\right)$$

schreiben [Høg62, Sim80]. Für ein Nuklid mit der Emissionswahrscheinlichkeit w lassen sich in einem Detektor mit der Nachweiseffizienz ε

$$Z = \frac{Aw\varepsilon}{\lambda}\left(1 - e^{-\lambda t_m}\right) \cdot e^{-\lambda t_d}$$

Ereignisse in der Meßzeit t_m nachweisen, wenn zwischen dem Ende der Bestrahlung und dem Beginn der Messung die Abklingzeit t_d verstrichen ist. Da man in der Regel an der Analytkonzentration interessiert ist, muß man diese noch über die Zahl der aktivierbaren Kerne N mittels $N = \frac{h \cdot c \cdot m \cdot N_A}{M}$ berechnen. Setzt man den natürlichen Isotopenanteil h des aktivierten Nuklids, die Avogadro-Konstante N_A und die Molmasse M des Elements ein, erhält man für die Konzentration c in einer Probe der Masse m folgende Beziehung:

[10] Als Blindwert ist im folgenden diejenige Wert bezeichnet, der sich bei der Analyse für eine Probe mit verschwindender Analytkonzentration ergibt..

$$c = \frac{\lambda \cdot M \cdot Z}{N_A \cdot m \cdot h \cdot w \cdot \varepsilon \cdot \left(1 - e^{-\lambda t_m}\right) \cdot \left(1 - e^{-\lambda t_b}\right) \cdot \left(\sigma_{th}\Phi_{th} + \sigma_{eth}\Phi_{eth}\right)} \cdot$$

Mit den tabellierten Wirkungsquerschnitten läßt sich so die Analytkonzentration für Nuklide, für die die $1/\sqrt{E}$ -Abhängigkeit des epithermischen Wechselwirkungsquerschnittes erfüllt ist, angeben [McL95]. Für Nuklide, die diese Annahme nicht erfüllen oder Nuklide, deren Wechselwirkungsquerschnitt im thermischen Energiebereich eine Resonanz aufweist, so daß die Aktivierung empfindlich von der Neutronenenergie abhängt, kann man auf relative Methoden zurückgreifen oder weitere Parameter zur Beschreibung des Neutronenspektrums einführen [Høg62, Sim80, Wes60]. Für relative Methoden wird die Probe zusammen mit einem Standard des Analyten bestrahlt, dessen Masse bekannt ist, so daß in die Berechnung der Analytkonzentration nur das Verhältnis der Aktivität von Standard und Probe sowie deren Massen eingehen.

4.1.2 Spezielle Aspekte

Die für die vorliegende Arbeit eingesetzten Neutronenaktivierungstechniken wurden für die Analyse der radioaktiven primordialen Elemente in einer Reihe von Matrices optimiert, um diese Elemente mit der geforderten Empfindlichkeit in den Proben nachweisen zu können. Soweit sich andere Spurenelemente nachweisen ließen, wurden deren Konzentrationen in den Proben ebenfalls bestimmt. Zum einen kann deren Nachweis in den untersuchten Reinstmaterialien der Überprüfung der Effizienz der für BOREXINO verwendeten Reinigungsverfahren hinzugezogen werden, auf der anderen Seite können diese Elemente Indikatoren für Verunreinigungen der Probe sein, die Rückschlüsse auf die Kontamination aus verschiedenen Quellen zulassen.

Die untersuchten Matrices umfaßten dabei Aluminium, Kunststoffe, sowie feste und flüssige organische Verbindungen, die mittels instrumenteller Neutronenaktivierungsanalyse (INAA) und radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) untersucht wurden. Zur Steigerung der Sensitivität der angewandten Methode wurden verschiedene Faktoren optimiert, die zum einen für die Produktion der Indikatorradionuklide während der Bestrahlung, zum anderen für den Nachweis dieser Nuklide von Bedeutung sind optimiert. Dazu zählen:

- Probenmasse
- Bestrahlungszeit
- Neutronenfluß
- Abklingzeit
- Meßzeit
- Detektionseffizienz

Diese Parameter sind jedoch nicht frei variabel, so daß in der Praxis diese nur innerhalb bestimmter Grenzen gewählt werden können, die beispielsweise durch die Probenzersetzung aufgrund von Radiolyse der Probe und die meßbare Ereignisrate gegeben sind. Faktoren wie die natürliche Isotopenzusammensetzung und Zerfallscharakteristik lassen sich naturgemäß nicht

beeinflussen, sind jedoch für den Nachweis des Indikatorradionuklids von wesentlicher Bedeutung. Für die Wahl der Bestrahlungsparameter muß man, da dies für die erreichbaren Nachweisgrenzen limitierend ist, die Produktion interferierender Nuklide durch die Bestrahlung mit Neutronen berücksichtigen. Dies läßt sich durch eine kurze Bestrahlungszeit umgehen, sofern die Halbwertszeit des Indikatorradionuklids kürzer als die des interferierenden Nuklids ist oder durch eine lange Bestrahlung, kombiniert mit einer langen Abklingzeit, erreichen, sofern die Halbwertszeit des interferierenden Nuklids kürzer als die des Indikatorradionuklids ist. In der Praxis wird man dabei meist nur ein interferierendes Nuklid oder Konstituenten der Matrix berücksichtigen können, so daß die Sensitivität durch weitere, in der Probe enthaltene Spuren anderer Nuklide begrenzt wird. Kann man dagegen radiochemische Separationsverfahren einsetzen, um interferierende Nuklide nach der Bestrahlung abzutrennen, sind diese nicht mehr limitierend. Dies erlaubt es, die Produktion der Indikatorradionuklide weitgehend unabhängig von der Aktivität anderer zu optimieren, wobei man nur durch Restriktionen beschränkt bleibt, die durch Radiolyse oder Mindestabklingzeit gegeben sind. Limitiert wird die erreichbare Sensitivität durch die Anzahl der aktivierbaren Kerne eines Elements, die bei gegebenem Neutronenfluß, proportional dem Quadrat der Halbwertszeit des Indikatorradionuklids ist, sofern man den Abbrand des stabilen Nuklids oder des aktivierten instabilen Nuklids außer acht läßt.

4.1.3 Flüssigkeitsbestrahlungsposition

Eine der am Forschungsreaktor München bestehenden Bestrahlungspsositionen ist imstande, Probengefäße zur Bestrahlung von Flüssigkeiten aufzunehmen. Die Probengefäße werden zur Bestrahlung in einen Köcher eingesetzt, der am Rand des Reaktors in einer Lochplatte positioniert wird.

Für die Bestrahlung wässriger Proben und Lösungsmittel steht ein Gefäß aus monokristallinem Reinstsilizium mit einem Fassungsvermögen von 500 ml und ein Kolben aus synthetischem Quarz (Suprasil®) mit einem Probenvolumen von 250 ml zur Verfügung. Die Probengefäße sind so konstruiert, daß entstehende gasförmige Radiolyseprodukte in das Kühlwasser entweichen können, um einen Druckaufbau in den Probengefäßen während der Bestrahlung zu verhindern. Dies erlaubt es, organische Proben bis zu 150 Stunden bei einer, über das Bestrahlungsvolumen gemittelten, thermischen Neutronenflußdichte von $5 \cdot 10^{12}\ s^{-1}cm^{-2}$ bis $13 \cdot 10^{12}\ s^{-1}cm^{-2}$ zu bestrahlen. Die Flußmessung erfolgt dabei über eine in die Mitte des Bestrahlungsgefäßes eingebrachte Quarzkapillare, die Flußmonitore aus Zirkon oder Gold in der Rotationsachse der Anordnung fixiert.

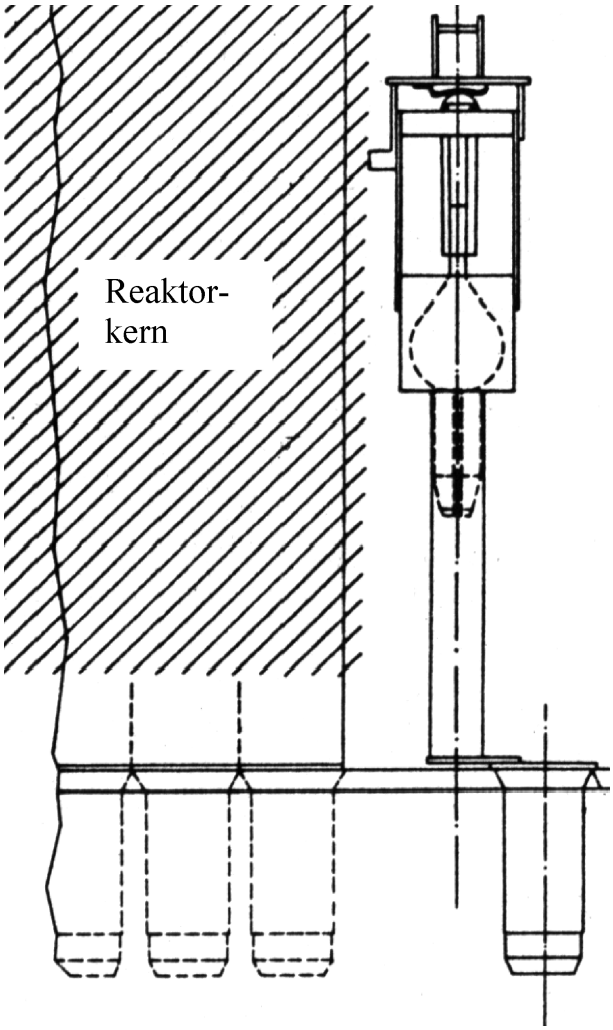

Abbildung 4.1: Die Bestrahlungsposition für Flüssigkeiten mit einem Fassungsvermögen von 250ml am Forschungsreaktor München. Der Quarzkolben befindet sich in einem Aluminiumköcher an dem Rand des Reaktorkerns. Sowohl die Brennelemete als auch die Flüssigbestrahlungsposition in einer Lochplatte fixiert.

Die Blindwerte dieser Bestrahlungsvorrichtungen waren Gegenstand vorangegangener Arbeiten [Ang97, Gol97a, Hen96], konnten jedoch durch die Verwendung neuer, nach speziellen Vorgaben gefertigter Quarzkolben um bis zu zwei Größenordnungen reduziert werden. Die Migration von aktivierten Nukliden aus der innersten Schicht des Bestrahlungefäßes während oder nach der Bestrahlung kann zu Blindwerten der Analyse führen, die in dieser Bestrahlungsvorrichtung nicht unabhängig von einer Probe bestimmt werden können. Die in Kapitel 5.4 gemessenen Konzentrationen für die reinste der untersuchten Flüssigkeiten können also durchaus Blindwerte der Analyse sein. Die Nachweisgrenze von Kalium, für die in den früher verwendeten Bestrahlungskolben vermutlich die Migration von Kalium in die Proben limitierend war, konnte mit reineren Quarzkolben auf einige 10^{-12} g/g verbessert werden. In den mit diesen Bestrahlungskolben durchgeführten Analysen ist für ^{42}K, das Indikatorradionuklid von Kalium, kein Signal erkenn-

bar, so daß die Nachweisgrenze für dieses Element durch interferierende Radionuklide und den Untergrund des Meßplatzes begrenzt wird.

4.1.4 Neutronenfeld an der Flüssigkeitsbestrahlungsposition

Die Flußdichteverteilung an der Flüssigkeitsbestrahlungsposition hat im thermischen Bereich bis etwa 0.2 eV eine thermische Energieverteilung und geht bei etwa 5kT in eine von 1/E abhängige über. Diese 1/E-Verteilung ist für Moderatoren erfüllt, deren Bremsvermögen energieunabhängig und deren Absorptionsquerschnitt klein gegen den Streuquerschnitt ist. Dieser Anteil des Spektrums wird durch das Flußverhältnis f, den Quotienten thermischer zu epithermischer Flußdichte, beschrieben. Die spektrale Verteilung der Neutronen wird von den Parametern f und der Neutronentemperatur T vollständig charakterisiert[11]. Die differentielle Flußdichte ist somit im wesentlichen durch

$$\Phi(E) = \Phi_{th}\left(\frac{E}{(kT)^2}e^{-E/kT} + \frac{1}{\mathrm{f}}\frac{\Theta(E/kT-5)}{E}\right)$$

gegeben, die in Abbildung 4.3 dargestellt ist. Die Abweichung der epithermischen Flußdichte von der 1/E-Verteilung ist klein. Für Isotope, deren epithermischer Einfangquerschnitt einem $1/\sqrt{\mathrm{E}}$ -Verhalten folgt, unterscheidet sich die Aktivierung um weniger als 1% von der einer 1/E-Flußverteilung. An der für die durchgeführten Analysen verwendeten Bestrahlungsposition liegt die über das Bestrahlungsvolumen gemittelte thermische Neutronenflußdichte $\overline{\Phi}_{th}$ zwischen $2{\cdot}10^{12}\,s^{-1}cm^{-2}$ und $13{\cdot}10^{12}\,s^{-1}cm^{-2}$. Das Verhältnis f ist, wie in Abbildung 4.2 dargestellt, eine Funktion des thermischen Flusses und wird an der Bestrahlungsposition in guter Näherung durch

$$\mathrm{f}(\Phi) = 110.98 - 2.91\,\Phi_{th}\ \ [10^{12}\,s^{-1}cm^{-2}]$$

approximiert, wobei sich die gemessene thermische Flußdichte $\overline{\Phi}_{th}$ im Bereich zwischen $0.2{\cdot}10^{13}\,s^{-1}cm^{-2}$ und $2.4{\cdot}10^{13}\,s^{-1}cm^{-2}$ bewegt. Im Energiebereich über 1 MeV schließt sich das Spektrum der Spaltneutronen an, deren mittlere Energie, abhängig von der Zusammensetzung des Brennstoffs, bei etwa 2 MeV liegt.

[11] Durch die Einführung weiterer Parameter ließe sich das Spektrum noch besser beschreiben, für die erforderliche Genauigkeit der Analysen reicht in diesem Fall allerdings die gegebene Darstellung aus.

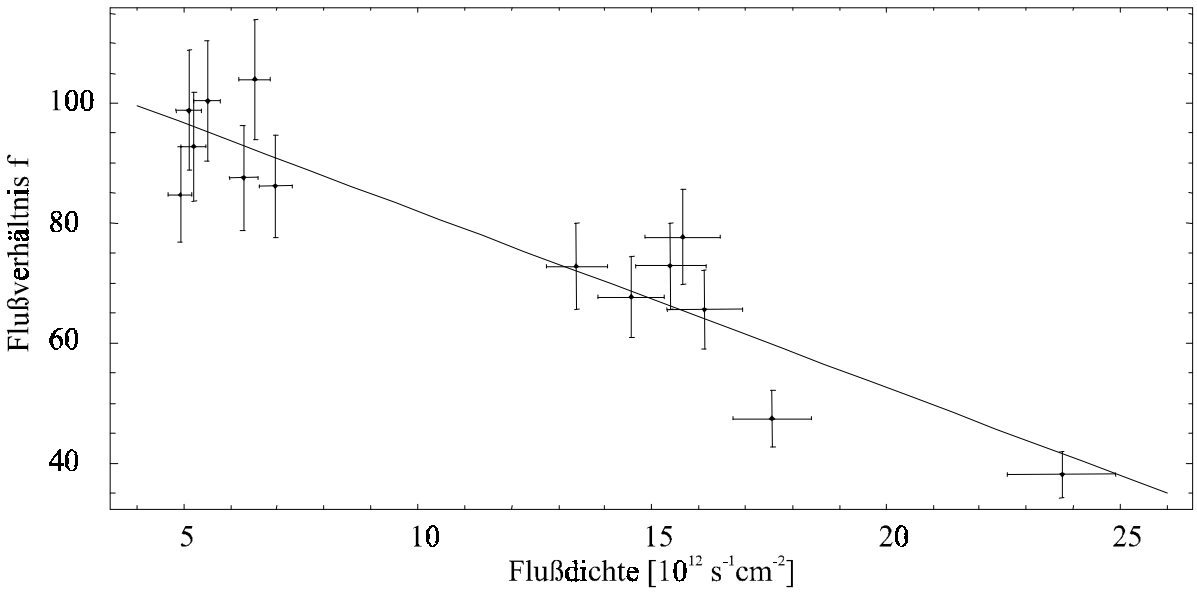

Abbildung 4.2: Das Verhalten des Flußverhältnisses f im Bereich der Flüssigkeitsbestrahlungsposition. Die Ausgleichsgerade ist $f(\Phi) = 110.98 - 2.91\,\Phi_{th}$ $[10^{12} s^{-1} cm^{-2}]$.

Bei der Bestrahlung großvolumiger Proben oder Matrices großen Einfangquerschnittes ist die Annahme einer homogenen Flußdichteverteilung der Neutronen über das Probenvolumen nicht mehr erfüllt. Dabei unterscheidet sich die Flußdichteverteilung in der Probe auch von der des Moderators. Zur Abschätzung der Flußdichteverteilung wurde die monoenergetische Diffusionsgleichung für die Flüssigkeitsbestrahlungsposition in zwei Dimensionen gelöst, die, sieht man einmal von der Umgebung stark absorbierender Medien ab, eine brauchbare Näherung darstellt. Dazu betrachtet man die Neutronenbilanz in einem Volumenelement. Der Neutronenstrom $\vec{J}$ und die Flußdichte Φ sind dabei über das Ficksche Gesetz

$$\vec{J} = -D\ grad\Phi$$

verknüpft, wobei Σ_a den makroskopischen Wirkungsquerschnitt und D die Diffusionskonstante bezeichnet. Die Neutronenbilanz eines Volumenelements läßt sich somit in der Form

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -div\vec{J} - \sum_a \Phi + S$$

darstellen.

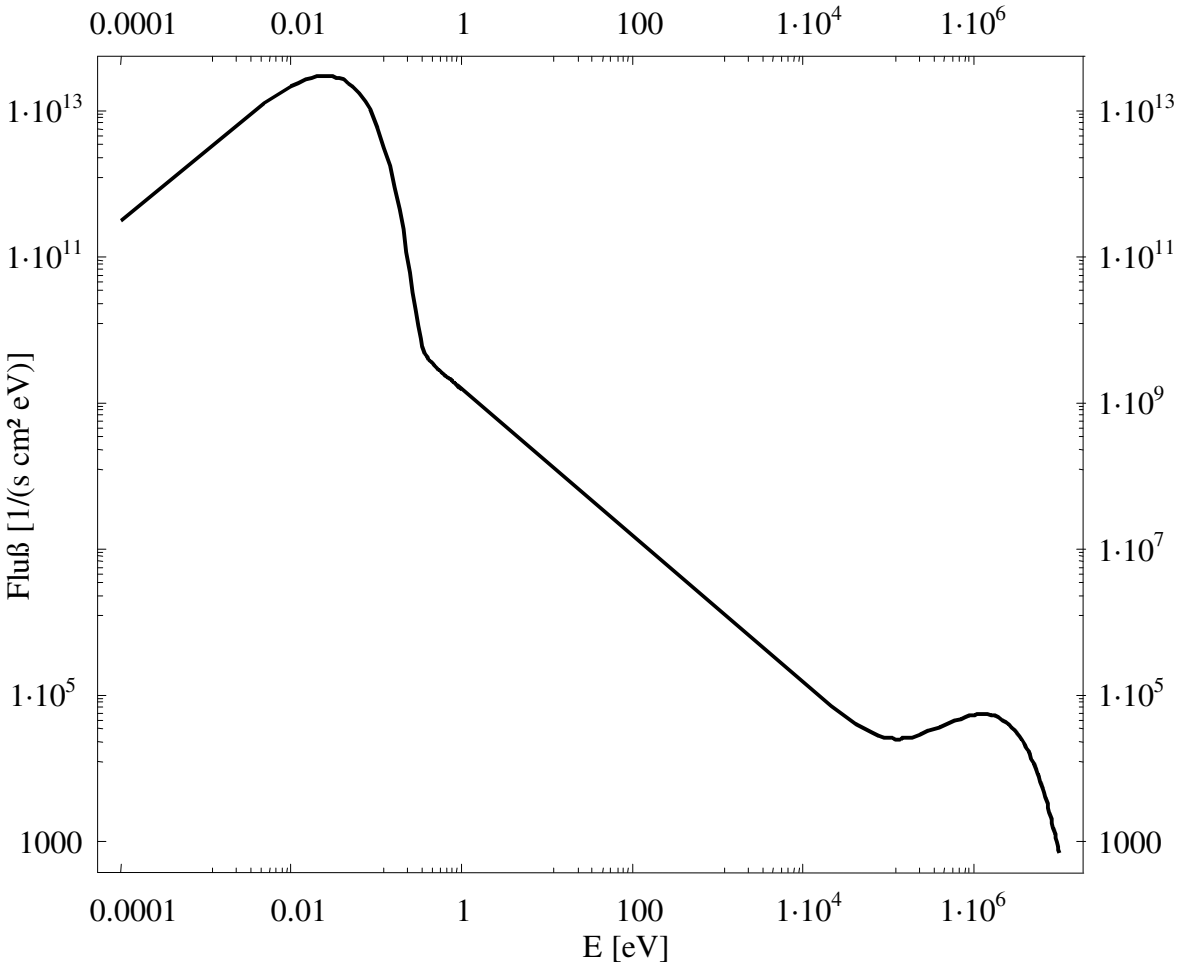

Abbildung 4.3: Neutronenspektrum eines leichtwassermoderierten Reaktors.

Die Differenz zwischen einströmenden und ausströmenden Neutronen der Geschwindigkeit v ist durch $-div\vec{J}$ gegeben, während der Term $\Sigma_a \Phi$ die Zahl der absorbierten Neutronen angibt. Der Quellterm S sei dabei im folgenden vernachlässigt.

Ersetzt man nun die Zahl der Neutronen n durch Φ/v kann man die Gleichung in der Form

$$\frac{1}{v}\frac{\partial \Phi}{\partial t} = D\Delta\Phi - \Sigma_a \Phi$$

darstellen und numerisch für die in Tabelle 4.1 angegebenen Werte mit den Regularitätsbedingungen für die Grenzflächen lösen. Dabei müssen sowohl der Neutronenstrom $\vec{J}$ als auch die Neutronenflußdichte Φ an den Grenzflächen stetig sein.

Matrix	Σ_a [1/cm]	D [cm]
1,2,4-Trimethylbenzol	0.02212	0.541
H_2O	0.02225	0.146
Phenyl-o-xylylethan	0.01730	0.618
Si	0.09240	3.120
SiO_2	0.00379	2.631

Tabelle 4.1: Makroskopische Absorptionsquerschnitte und Diffusionslängen für ausgewählte Matrices.

Die zweidimensionale Lösung der Gleichung dürfte in guter Näherung gelten, da die vertikale Ausdehnung des Bestrahlungskolbens größer ist als der horizontale Durchmesser des Kolbens und die Diffusionslänge der Neutronen in der Probe. Die durch den Deckel oder Boden des Kolbens ein- und austretenden Neutronen liefern somit nur einen kleinen Beitrag zur Neutronenbilanz im Bestrahlungsvolumen. Schon die eindimensionale Lösung der Diffusionsgleichung für thermische Neutronen zeigt, daß die Flußdichte Φ mit einer Halbwertslänge von etwa 2cm mit dem Abstand vom Reaktorkern abfällt, die über das Bestrahlungsvolumen gemittelte Flußdichte $\overline{\Phi}$ also empfindlich von der Position des Kolbens an der Bestrahlungsposition abhängt. Gleichzeitig erhebt sich auch die Frage, inwieweit die in der Rotationsachse des Kolbens bestimmte Flußdichte Φ_0 die gemittelte Flußdichte $\overline{\Phi}$ repräsentiert, die für die quantitative Auswertung der aktivierten Nuklide von Bedeutung ist.

Matrix	Quarzkolben	Siliziumkolben
Wasser	1.14 ± 0.05	1.27 ± 0.05
	(1.03 ± 0.04)	(1.05 ± 0.04)
1,2,4-Trimethylbenzol	1.32 ± 0.06	1.40 ± 0.06
	(1.15 ± 0.06)	(1.29 ± 0.07)
Phenyl-o-xylylethan	1.30 ± 0.06	1.36 ± 0.06
	(1.15 ± 0.06)	(1.28 ± 0.07)

Tabelle 4.2: Der Quotient $\overline{\Phi} / \Phi_0$ von über das Bestrahlungsvolumen gemittelter Flußdichte zu Flußdichte in der Rotationsachse der Bestrahlungskolben für thermische (epithermische) Neutronen.

Die Rechnungen für den Quarzkolben stimmen mit der gemessenen Flußdichteverteilung gut überein. Das Experiment liefert bei der Bestrahlung von Wasser, für den Quotienten $\overline{\Phi} / \Phi_0$ einen Wert von 1.10 ± 0.05, während die Rechnung mit einem Quotienten $\overline{\Phi} / \Phi_0$ von

1.14 die Tendenz befriedigend wiedergibt. Die berechneten Quotienten sind in Tabelle 4.2 für verschiedene Matrices und die beiden Flüssigbestrahlungsbehälter zusammengefaßt, wobei noch einmal bemerkt sei, daß diese Quotienten nur eine Näherung für Neutronen thermischer Energie darstellen und eine Korrektur der Aktivierung nur für Isotope zulässig ist, deren Aktivierung über den Einfang thermischer Neutronen erfolgt. Das Verhalten für den epithermischen Anteil des Spektrums läßt sich nun über die empirische Abhängigkeit zwischen thermischer und epithermischer Flußdichte abschätzen, die in Tabelle 4.2 dargestellt ist.

Die über das Bestrahlungsvolumen gemittelte Flußdichte ist für den thermischen wie für den epithermischen Anteil des Spektrums jeweils um den Faktor $\overline{\Phi}/\Phi_0$ gegenüber der in der Mitte des Bestrahlungskolben über einen Flußstandard ermittelten Flußdichte Φ_0 erhöht.

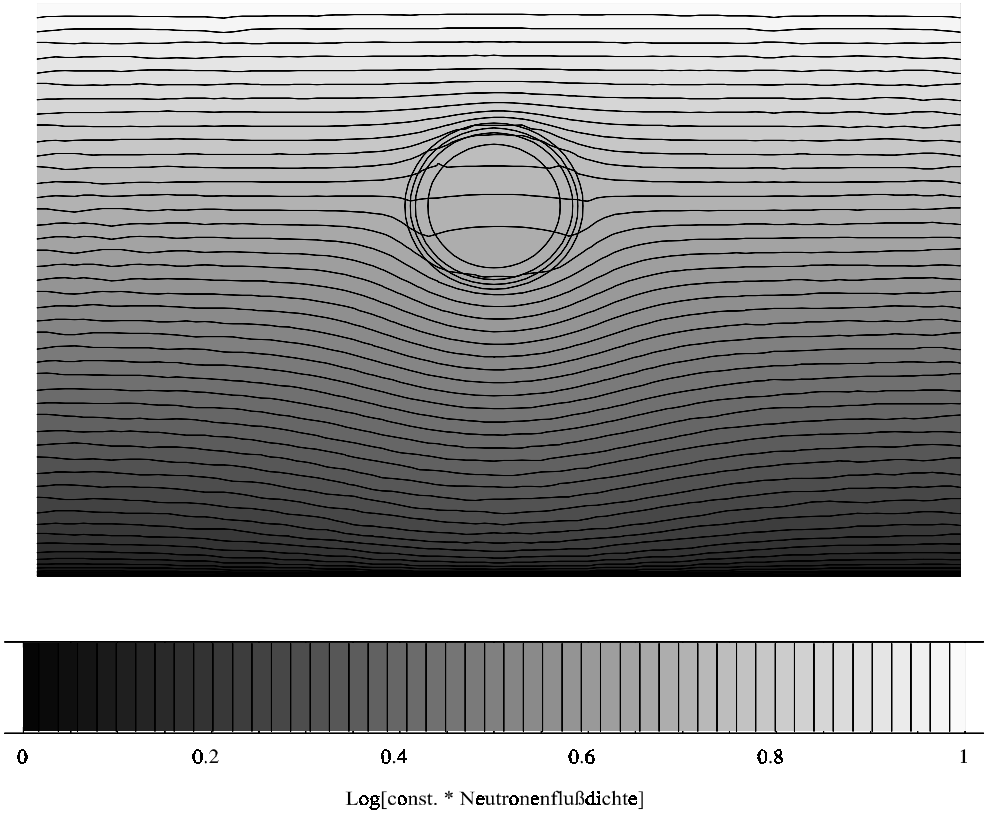

Abbildung 4.4: Die Flußdichteverteilung thermischer Neutronen innerhalb einer Flüssigkeitsbestrahlungsposition. Die Graustufenskalierung ist logarithmisch dargestellt.

4.1.5 Probenaufbereitung

Die untersuchten Matrices wurden, sofern ein radiochemischer Aufschluß nötig war, mit unterschiedlichen Verfahren aufgeschlossen, die im Anschluß beschrieben werden. Die dem Aufschluß folgende Trennung der Radionuklide wurde mit einem standardisierten Verfahren für alle

untersuchten Proben durchgeführt. Für viele Proben ist es unumgänglich, radiochemische Separationsverfahren anzuwenden, wenn instrumentelle Verfahren die erforderlichen Nachweisgrenzen nicht erreichen. Eine Steigerung von Bestrahlungsdauer und Probenmasse ist nicht immer möglich, da man in der Wahl beider durch Radiolyse und die zur Verfügung stehenden Bestrahlungspositionen begrenzt ist. Neben den nachzuweisenden Radionukliden werden während der Bestrahlung unvermeidlich auch andere Spurenelemente aktiviert oder Radionuklide aus der Matrix gebildet, deren Aktivität die Nachweisgrenzen limitiert.

Für das eingesetzte Trennverfahren galt es die Nachweisgrenzen für die primordialen Radionuklide zu optimieren, wobei man Faktoren wie

- Halbwertszeit des Indikatorradionuklids
- γ-Energie des Radionuklids
- Detektionseffizienzen
- Zerfallscharakteristika

berücksichtigen muß. Daneben ist man auch durch die Anzahl der verfügbaren Detektoren begrenzt, wobei man bestrebt ist, die Radionuklide dem jeweils effizientesten Detektor zuzuordnen und die Meßzeit der Halbwertszeit des Nuklids anzupassen. Dabei hat sich eine Auftrennung in drei wesentliche Gruppen bewährt. Diese Gruppen enthalten die Indikatorradionuklide von:

- Uran, Thorium
- Indium, Kalium, Lanthan, Lutetium, Rubidium
- Interferierenden Nukliden, Cadmium.

Die aktivierten Aktinoide lassen sich mit diesem Verfahren gemeinsam in einer Gruppe besonders sensitiv mittels den in 4.2.1 beschriebenen Koinzidenzmesstechniken untersuchen. Für den Nachweis der anderen primordialen Radionuklide erwies sich die Abtrennung in eine Gruppe als ausreichend. Für die analysierten Flüssigszintillatoren kann man dadurch die Eigenaktivität in der jeweiligen Gruppe soweit reduzieren, daß diese mit der Untergrundaktivität des Detektors vergleichbar ist und interferierende Radionuklide keine wesentliche Rolle mehr spielen.

Für aufgeschlossene feste und flüssige Proben, in denen ^{24}Na einen dominanten Untergrund darstellt, wurde vor der Ionenaustauschtrennung Natrium an einer Säule hydratisierten Antimon-(V)-oxids (HAP) adsorbiert. Durch eine Vereinheitlichung des Verfahrens konnte die Ausbeute für die Indikatorradionuklide genau bestimmt und die Detektoren für die Volumina der verschiedenen Eluate geeicht werden. Beides kommt einer Verringerung der systematischen Unsicherheit zugute.

4.1.5.1 Aluminiumproben

Die Analyse von Aluminium erfolgte mittels RNAA. Die Aluminiumproben wurden an der Angelschnurposition bei einem Neutronenfluß von $2 \cdot 10^{13}\ s^{-1}cm^{-2}$ eine Stunde bestrahlt. Die Oberfläche der bestrahlten Proben mit einer Masse von etwa 200 mg wurde vor der weiteren Verar-

beitung und der Einwaage mit konzentrierter Salzsäure abgeätzt. Dadurch lassen sich Oberflächenkontaminationen entfernen und Blindwerte ausschließen.

Für den Aufschluß wurden die bestrahlten Proben in konzentrierter Salzsäure unter der Zugabe einiger Tropfen Flußsäure gelöst. Anschließend durchlief die Lösung eine HAP-Säule zur Abtrennung von ^{24}Na. Je nach Reinheitsgrad des untersuchten Aluminiums wurde die Lösung mittels des in 4.1.6.2 beschriebenen Ionenauschtauschprozesses zum sensitiven Nachweis primordialer Radionuklide weiter aufgetrennt.

4.1.5.2 Nylonproben und Kunststoffproben

Die für BOREXINO analysierten Kunststoffproben bestanden aus Nylon unterschiedlicher Polyamide, die nicht nur die unterschiedlichen mechanischen Eigenschaften, sondern auch das Aufschlußverhalten bestimmen. Das Material wurde in Form von Granulat untersucht, das zur Bestrahlung in Polyethylenbeutel verschweißt wurde. Die Proben mit einer Masse von etwa 50 g wurden dazu etwa 30 Minuten bei einem Neutronenfluß von $2 \cdot 10^{13}\ s^{-1}cm^{-2}$ bestrahlt.

Brom und Natrium sind dabei die dominierenden Interferenznuklide, die die Nachweisgrenzen für andere Spurenelemente verschlechtern. Die selektive Abtrennung dieser Nuklide erfolgte dabei über ein Naßaufschlußverfahren mit anschließender Adsorption von ^{24}Na an HAP, sofern ein vollständiger Aufschluß der Matrix möglich war. Das Naßaufschlußverhalten der untersuchten Kunststoffe ist dabei stark von der Kristallinität und dem Polymerisationsgrad bestimmt. Daneben können organische Polymere Syntheserückstände und Additive wie Stabilisatoren, Antioxidantien, Weichmacher und Füllstoffe enthalten, die das Aufschlußverhalten beeinflussen. Einige Proben konnten nicht vollständig aufgeschlossen werden. In diesen Fällen war ^{24}Na aus dem Rückstand nicht abzutrennen, während Brom schon durch den Naßaufschluß fast vollständig entfernt wird. Ein Trockenaufschluß der Proben ließ sich nicht durchführen, da einige Matrices den Siedepunkt erreichten ohne sich jedoch thermisch zu zersetzen.

Der Naßaufschluß wurde mit oxidierenden Säuren bei Umgebungsdruck durchgeführt. Dazu wurden nach der Bestrahlung 300 ml rauchende HNO_3 in das, in einem 1 l Quarzkolben vorliegende Granulat, unter Rühren eingetropft. Nach Abklingen der mit der exothermen Reaktion verbundenen Gasentwicklung wurde die Lösung mit einem, dem Kolben angeschlossenen Rücklaufkühler ca. 6 Stunden gekocht. Nach dem Zusatz von 100 ml konzentrierter H_2SO_4 wurde die Lösung weitere 12 Stunden gekocht und durch die Zugabe von H_2O_2 geklärt. Die verbliebene Lösung wurde direkt vermessen und sofern ein vollständiger Aufschluß möglich war, zur Trockne eingeengt und in ein salpetersaures Medium überführt. Aus der salpetersauren Lösung wurde ^{24}Na an einer HAP-Säule adsorbiert und das Eluat anschließend vermessen.

4.1.5.3 Flüssigszintillatoren: Analyse mittels RNAA und Ausbeutebestimmung des Verfahrens

Zur Separation von Matrixaktivität und Indikatorradionukliden wurden in der Vergangenheit verschiedene Verfahren entwickelt, die in [Gol97, Hen98] beschrieben sind:

- Destillation mit Trockenveraschung des Destillationsrückstandes
- Destillation mit Naßaufschluß des Destillationsrückstandes

- Säureextraktion mit 5% HNO_3.

Dieser letztgenannte Extraktionsschritt dient dazu, die interferierende Aktivität von ^{82}Br zu separieren und die Indikatorradionuklide in eine wäßrige Lösung zu transferieren, um die Indikatorradionuklide weiter auftrennen zu können. Die getesteten Aufschlußverfahren erwiesen sich als zeitaufwendig und erbringen für einige Elemente nur eine geringe Wiederfindung, während die Säureextraktion innerhalb kurzer Zeit hohe Ausbeuten liefert. Für Protactinium ist allerdings die Wiederfindung sowohl mit 5% HNO_3 als auch mit HCl einer Stoffmengenkonzentration von 12 mol/l oder einem Gemisch von HNO_3 (0.05 mol/l) : HCl (12 mol/l) in gleichem Volumenverhältnis unbefriedigend, da sich das Gleichgewicht der Konzentrationen zwischen organischer und wäßriger Phase nur langsam einstellt oder die Verteilungskoeffizienten ungünstig sind. Für eine Mischung von HF (27 mol/l) : HCl (12 mol/l) : H_2O im Volumenverhältnis 1 : 1 : 1 konnten hingegen befriedigende Ausbeuten bei guter Reproduzierbarkeit gemessen werden. Die verbesserte Ausbeute von Protactinium und Neptunium gegenüber den zuvor verwendeten Verfahren könnte an der Stabilität der Fluorokomplexe dieser Elemente liegen, die den Verteilungskoeffizienten oder die Zeitkonstante zugunsten der Flüssig-Flüssig-Extraktion verbessern. Die Wiederfindung wurde nach verschiedenen Extraktionsschritten einer Tracermessung in einem Scheidetrichter bestimmt, wobei die wäßrige Phase nach jedem Extraktionsschritt ausgetauscht wurde, so daß sich nur Aussagen über die Wiederfindung, nicht jedoch über die Gleichgewichtsverteilung oder die Zeitkonstante der Extraktion gewinnen ließen. Die in Abbildung 4.6 und Tabelle 4.5 wiedergegebene Zeitkonstante ist lediglich die für die gegeben Versuchsbedingungen, bei einem Volumenverhältnis von wäßriger zu organischer Phase von 75 ml : 350 ml ermittelt worden. Daraus ist zu ersehen, daß man für drei Flüssig-Flüssig-Extraktionen von je 5 Minuten Dauer eine quantitative Wiederfindung für die untersuchten Nuklide erzielt. Ein weiterer Vorteil dieses Verfahren liegt darin, daß das Medium für die der Flüssig-Flüssig-Extraktion folgende Ionenaustauschtrennung nicht mehr gewechselt werden muß. Dadurch umgeht man ein Eindampfen der Lösung bis zur Trockne und die damit verbundenen Verluste. Die Lösung muß lediglich, nach dem Einengen, auf das für die Ionenaustauschtrennung erforderliche Volumen und die Stoffmengenkonzentration eingestellt werden.

Das dem bestrahlten Flüssigszintillator zur Extraktion zugesetzte n-Hexan beschleunigt dabei nicht nur die Phasentrennung wesentlich sondern reduziert auch die Viskosität der organischen Phase wodurch man eine verbesserte Durchmischung beider Phasen erreicht.

4.1.5.4 Flüssig-Flüssig Extraktion

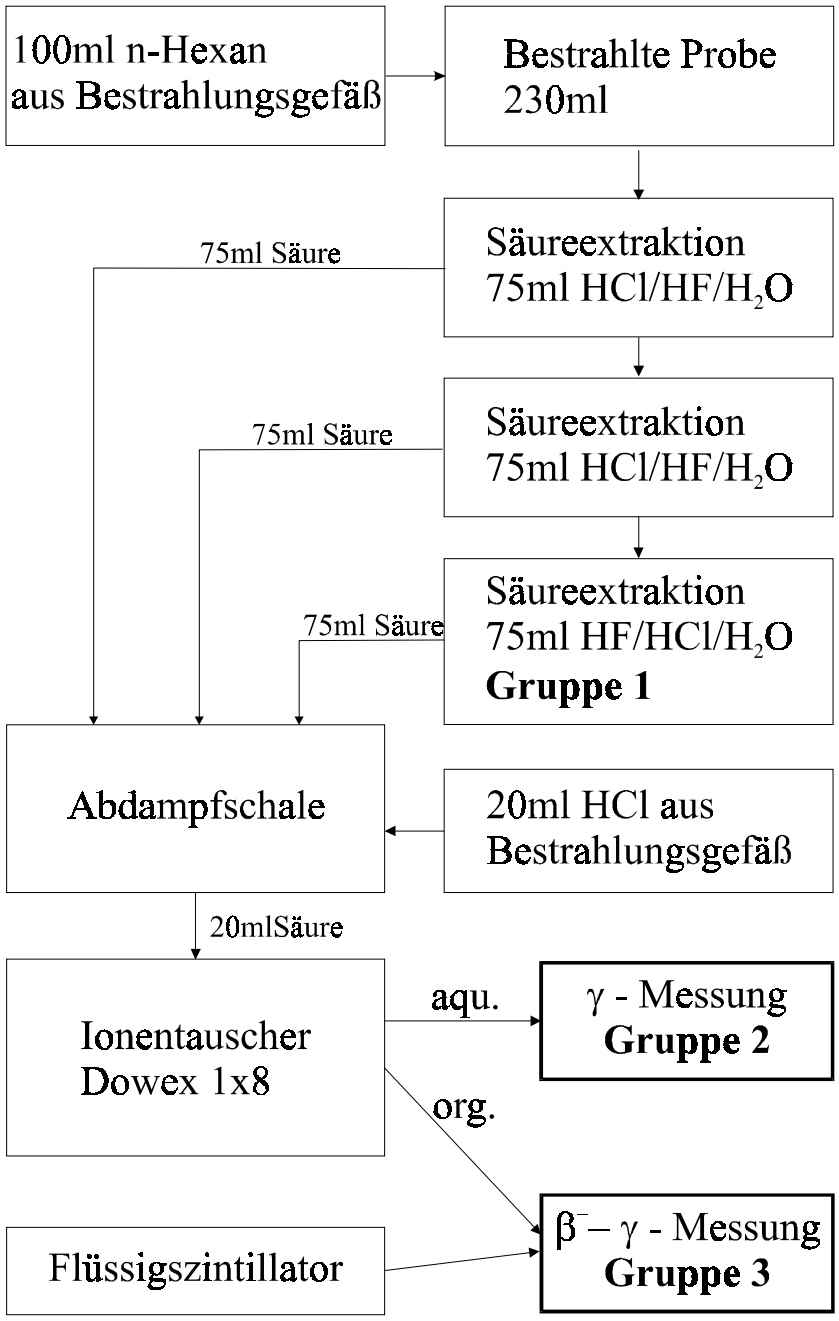

Abbildung 4.5: Säureextraktionsschritte zur Analyse von Flüssigszintillatoren

Der bestrahlte Szintillator wird nach der Abklingzeit zusammen mit einer standardisierten Trägerlösung der Indikatorradionuklide in einen PFA-Scheidetrichter gefüllt. Die Lösung besteht

dabei aus den Elementen Cd, In, K, La, Lu und Rb, die als Träger zur Minimierung von Adsorptionsverlusten der Extraktionslösung zugesetzt werden [Sch97]. Der Bestrahlungskolben wird mit 50 ml n-Hexan gründlich ausgespült und soweit wie nötig erwärmt, um der Gefäßwand anhaftende Reste zu lösen und der Extraktion zuzuführen. Die Lösung wird dem bestrahlten Szintillator zugeschlagen und der Bestrahlungskolben wird ein zweites Mal mit weiteren 50 ml n-Hexan nachgespült, die ebenfalls in den Scheidetrichter gefüllt werden. Verbliebene organische Reste werden in 1,2,4-Trimethylbenzol gelöst und der Extraktionslösung zugegeben. Anschließend wird der Bestrahlungskolben gründlich getrocknet, da Reste von unpolaren Lösungsmitteln die Benetzung der Gefäßwand und somit eine effektive Desorption der Indikatorradionuklide verhindern.

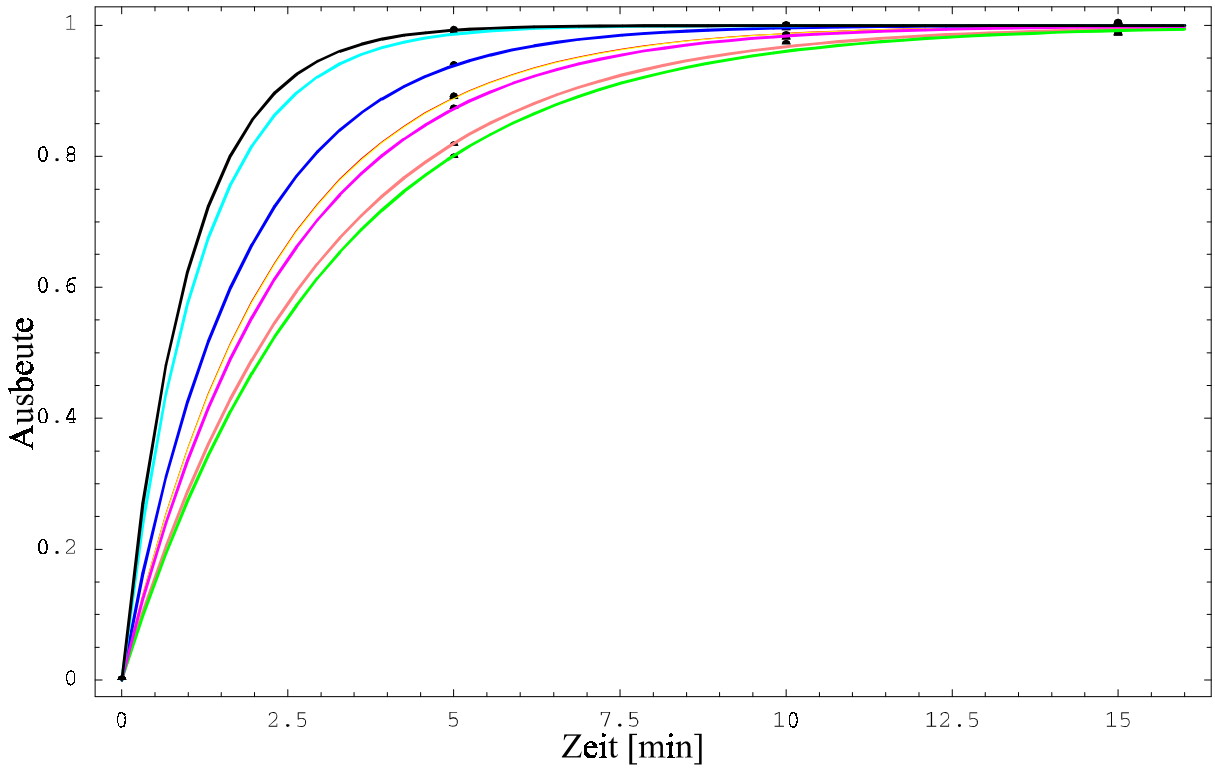

Abbildung 4.6: Zeitabhängigkeit der Extraktionsausbeute für K (schnell), Rb, Cd, Np, Pa, In, La, Lu (langsam), der zeitlichen Reihenfolge nach geordnet.

Die im folgenden zur Säureextraktion verwendete Salzsäure wird auf etwa 100°C erhitzt und zum Ausspülen des Bestrahlungskolbens verwendet. Dafür werden jeweils 25 ml reinste, HCl einer Stoffmengenkonzentration von 12 mol/l verwendet, um eine effiziente Desorption zu erzielen und eine Kontamination des Bestrahlungskolbens zu umgehen. Anschließend füllt man diese Säure zusammen mit je 25 ml HF (27 mol/l) und 25 ml H_2O in den Scheidetrichter und extrahiert die Lösung durch fünfminütiges kräftiges Schütteln. Nach der vollständigen Trennung der beiden Phasen wird die wäßrige Phase in eine PFA-Abdampfschale abgelassen. Dieses Procedere, wie es in Abbildung 4.5 dargestellt ist, wird zwei weitere Male durchgeführt, so daß sich am Ende

dieses Arbeitsschrittes 225 ml wäßriger Lösung in der Abdampfschale befinden, die dort für die weitere Ionenaustauschtrennung auf ein Volumen von 10 ml HCl (12 mol/l) und 1 ml HF (27 mol/l) eingestellt werden.

In ihrem Extraktionsverhalten zeigen die Alkalimetalle (K, Rb), die Aktinoide (Pa, Np) und die Lanthanoide (La, Lu) Unterschiede, während die Extraktionsverhalten der einzelnen Gruppen Gemeinsamkeiten aufweist. So lassen sich die Alkalimetalle schnell, die Lanthanoide hingegen nur langsam extrahieren, während die Aktinoide, Indium und Cadmium in der Zeitcharakteristik der Flüssig-Flüssig-Extraktion eine Mittelstellung einnehmen.

Element	Extraktionszeit τ [min]	Ausbeute nach 5 min 1. Extraktionsschritt	Kumulierte Ausbeute nach 10 min 2. Extraktionsschritt	Kumulierte Ausbeute nach 15 min 3. Extraktionsschritt
Np	1.57 ± 0.03	0.889	0.987	0.998
Pa	1.58 ± 0.03	0.888	0.987	0.998
K	0.70 ± 0.01	0.992	0.999	0.999
Rb	0.80 ± 0.01	0.986	0.999	0.999
La	2.02 ± 0.05	0.819	0.967	0.994
Lu	2.15 ± 0.05	0.801	0.960	0.992
In	1.68 ± 0.04	0.872	0.983	0.997
Cd	1.24 ± 0.02	0.938	0.996	0.999

Tabelle 4.3: Charakteristische Extraktionszeit τ und kumulierte Ausbeuten für die untersuchten Nuklide. Die Ausbeute läßt sich unter den gegebenen Bedingungen empirisch gut durch die Funktion $A(t) = 1 - e^{-t \ln 2/\tau}$ beschreiben. Die absoluten Fehler der Extraktionsausbeuten sind alle kleiner 0.01.

Für die Ausbeutemessungen der radiochemischen Verfahren stellt sich die Frage, in wieweit die anhand von Tracermessungen gewonnenen Daten auf reale Proben übertragen werden können. Die dem Separationsverfahren zugrunde gelegten Ausbeuten bestimmen direkt die erreichbaren Nachweisgrenzen, die Streuung der gemessenen Ausbeuten die Unsicherheit des gesamten analytischen Verfahrens. Eine genaue Kenntnis dieser Ausbeute ist die Voraussetzung für eine quantitative Analyse, wobei eine hohe Wiederfindung in aller Regel mit einer geringen Streuung korreliert.

Die Wiederfindungsmessungen wurden mit Lösungen durchgeführt, denen die zu untersuchenden Elemente vor der Bestrahlung sowohl als metallorganische Komplexe als auch in Alkohol gelöst zugesetzt wurden. Zur Herstellung der metallorganischen Verbindungen wurden Uran, Thorium, Lanthan und Lutetium aus salpetersaurer Lösung in TBP extrahiert, um den Standard der zu untersuchenden Elemente in möglichst stabiler und somit realitätsnaher Form dem Lösungsmittel hinzuzufügen [Ish60, Ish60a].

Während der Bestrahlung treten in Proben und den zur Ausbeutebestimmung verwendeten Lösungsmitteln Effekte auf, die die chemische Bindung der aktivierten Kerne so verändern, daß es berechtigt erscheint, die selben Extraktionsausbeuten für Proben und Wiederfindungsmessungen anzunehmen. In beiden Fällen treten Rückstoßeffekte und Anregungseffekte durch die Emission von Kernstrahlung nach einem Neutroneneinfang auf. Dies führt fast immer zu einer Veränderung der chemischen Bindung durch (n, γ)-Reaktionen, da die Anregungsenergie nach einem Neutroneneinfang über mehrere Photonen abgegeben wird, während der Impulsübertrag eines thermischen Neutrons dazu nicht ausreicht. So ist der maximale Energieübertrag durch Kernstrahlungsemission auf einen ^{239}U-Kern bei einem Q-Wert von –5 MeV für den Neutroneneinfang an ^{238}U etwa 50 eV. Hinzu kommen Effekte durch die Emission von Konversionselektronen oder sekundäre Effekte durch die Änderung der Kernladungszahl bei einem Zerfall, die die Struktur der Hülle verändern. Ein weiterer Hinweis dafür, daß der Vergleich beider Messungen gerechtfertigt ist, sind die übereinstimmenden Extraktionsausbeuten von Lösungen, denen Tracer als metallorganische Komplexe oder in Alkohol gelöst zugesetzt worden waren. Sowohl die Proben als auch die Vergleichsmessungen wurden, um eine vergleichbare Zusammensetzung und Viskosität zu erreichen, etwa 100 Stunden an derselben Bestrahlungsposition aktiviert.

4.1.5.5 Desorption adsorbierter Indikatorradionuklide

Für die Analyse bestrahlter Flüssigszintillatoren spielt die Adsorption aktivierter Nuklide an der Oberfläche der Bestrahlungsgefäßes eine wichtige Rolle. Anhand von Tracermessungen wurde die Adsorption und Desorption wichtiger Nuklide untersucht. So befindet ein signifikanter Anteil der aktivierten Kerne nach einer Bestrahlungsdauer von 100 Stunden nicht mehr in dem organischen Lösungsmittel, sondern ist an die Quarzoberfläche gebunden (Tabelle 4.4).

Radionuklid	^{115}Cd	^{114}In	^{42}K	^{140}La	^{177}Lu	^{86}Rb	^{239}Np	^{233}Pa
Adsorbierter Anteil [%]	70 ± 15	70 ± 14	65 ± 20	87 ± 7	86 ± 8	62 ± 20	73 ± 8	68 ± 6

Tabelle 4.4: Adsorbierter Anteil der Indikatorradionuklide nach einer Bestrahlungsdauer von 100 Stunden.

Die Desorption dieser Kerne erfolgt in zwei Schritten. Der Oberfläche anhaftende organische Reste werden mit 20 ml 1,2,4-Trimethylbenzol aus dem Bestrahlungskolben gelöst. Bevor der Kolben mit 25 ml 100 °C heißer konzentrierter Salzsäure ausgespült wird, muß dieser getrocknet werden, da anderenfalls die Oberfläche von der Säure nicht benetzt wird und die Desorption ineffizient ist. Das zur Reinigung der Oberfläche verwendete Lösungsmittel enthält dabei nur einen geringen Anteil der adsorbierten Nuklide, wobei eine dreifache Wiederholung der HCl-Spülung alle der untersuchten Radionuklide quantitativ desorbiert. Ein Abtrag der Oberfläche mittels Flußsäure zeigt, daß weniger als 5% der aktivierten Nuklide irreversibel adsorbiert sind.

Zwischen in TBP komplexierten Tracernukliden und in Methanol gelösten Tracern sind für diesen Schritt keine Unterschiede offensichtlich.

4.1.6 Elementspezifische Separation

4.1.6.1 Abtrennung von ^{24}Na

Ist ^{24}Na ein interferierendes Radionuklid in der Aufschlußlösung einer Probe, so kann man Na mit Hilfe eines Adsorbers aus einer sauren Lösung entfernen. ^{24}Na ist bei der Aktivierungsanalyse ein häufig vorkommendes Interferenznuklid, das bei der Analyse von Aluminium, Silizium und Aufschlußlösungen organischer Matrices die Nachweisgrenzen für andere Radionuklide beeinträchtigt. In Aluminium wird ^{24}Na vornehmlich über $^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$, in Silizium über $^{28}Si(n,p\alpha)^{24}Na$ aus der Matrix gebildet. In den anderen, in dieser Arbeit untersuchten Proben, war ^{24}Na häufig als Spurenelement enthalten, das für den sensitiven Nachweis der primordialen Nuklide separiert werden mußte. Für diese selektive Abtrennung von ^{24}Na aus konzentrierten salzsauren und konzentrierten salpetersauren Lösungen hat sich hydratisiertes Antimon-(V)-oxid bewährt [Gir68]. Für die vorliegende Arbeit wurden 20 mm hohe Säulen aus frisch synthetisiertem und mittels 10 ml konzentrierter HCl konditioniertem Antimon-(V)-oxid verwendet, die die ^{24}Na Aktivität einer Lösung von 20 ml Volumen, bei einem Elutionsvolumen von 30 ml, um einen Faktor von etwa 10^4 reduziert und mit einer quantitativen Wiederfindung für alle der untersuchten Radionuklide vereint. Dieser Adsorptionsschritt kann auch den im folgenden beschriebenen Trennverfahren vorangestellt werden, so daß auch für diese Proben ^{24}Na abgetrennt werden kann.

4.1.6.2 Abtrennung anderer interferierender Radionuklide

Die radiochemische Trennung der Indikatorradionuklide von den interferierenden Aktivitäten anderer Spurenelemente wird mittels einer Ionenaustauschtrennung in zwei Stufen durchgeführt [Egg88]. Das Ziel der Trennung besteht darin, die in der wäßrigen Lösung enthaltenen, aktivierten Nuklide so voneinander zu trennen, daß jede Gruppe mit einem für sie geeignetem Verfahren gemessen werden kann. Dabei wirkt sich die gute Selektivität, die gute Reproduzierbarkeit und die hohe Wiederfindung des verwendeten Verfahrens für die systematische Unsicherheit und die Nachweisgrenze vorteilhaft aus. Dafür ist allerdings auch eine genaue Einstellung der Stoffmengenkonzentrationen und Volumina der zur Eluation verwendeten Säuren unabdingbar. Daneben ist auf eine sorgfältige Konditionierung der verwendeten Säulen zu achten, auf die hier kurz eingegangen werden soll.

Das hier verwendete Ionenaustauschharz Dowex 1x8 (100-200 mesh) wird vor dem Gebrauch mit Reinstwasser mehrmals zu einer Suspension verrührt und dekantiert. Anschließend wird das Harz als Suspension in ein mit Filterwatte verschlossenes PP-Röhrchen von 7 mm Durchmesser pipettiert und mit Filterwatte verschlossen, wobei darauf zu achten ist, daß die Säule immer ausreichend Flüssigkeit enthält. Nur so erhält man eine Säule homogener Struktur, die von der Fließmittelfront gleichmäßig durchwandert wird. Vor der Verwendung wird jede der verwendeten Säulen mit 10 ml HCl (12 mol/l) bei einem Durchsatz von etwa 1 ml/min. vorgespült.

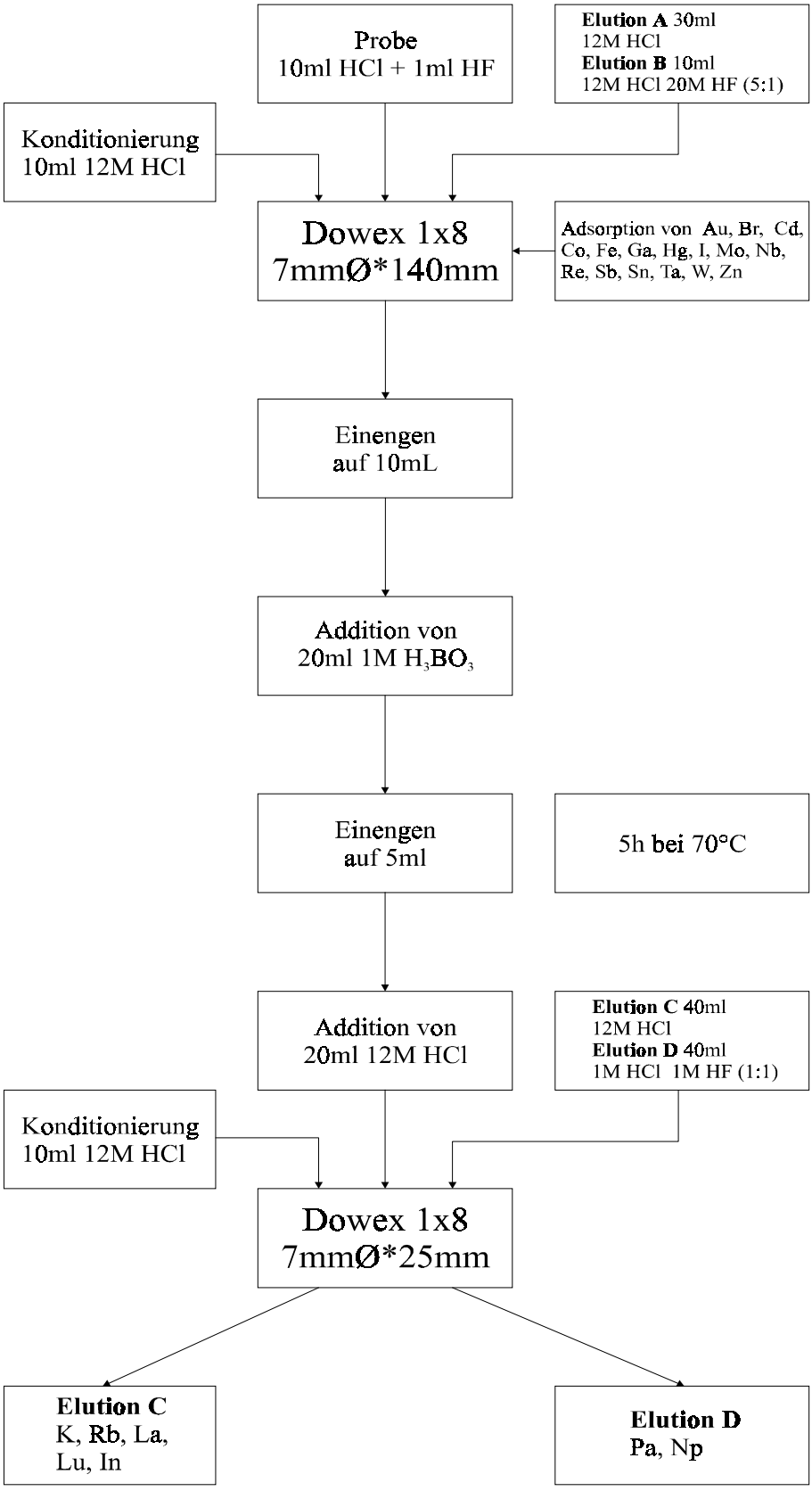

Abbildung 4.7: Ionenaustauschprozess zur Separation von Radionukliden.

Element (Indikatorradionuklid)	Gruppe 1	Gruppe 2	Gruppe 3
Ag (^{110m}Ag)*	< 1	> 99	< 1
As (^{76}As)*	54 ± 28	46 ± 28	< 1
Au (^{198}Au)*	> 99	< 1	< 1
Br (^{82}Br)	97 ± 2	3 ± 2	< 1
Cd (^{115}Cd)	> 99	< 1	< 1
Ce (^{141}Ce)	< 1	> 99	< 1
Co (^{60}Co)	> 99	< 1	< 1
Cr (^{51}Cr)	< 1	> 99	< 1
Fe (^{59}Fe)	> 99	< 1	< 1
Ga (^{72}Ga)*	> 99	< 1	< 1
Hg (^{203}Hg)*	> 99	< 1	< 1
In (^{114m}In)	47 ± 8	53 ± 8	< 1
K (^{42}K)	< 1	> 99	< 1
La (^{140}La)	< 1	> 99	< 1
Lu (^{177}Lu)	< 1	> 99	< 1
Mn (^{56}Mn)*	5 ± 1.3	95 ± 1.5	< 1
Mo (^{99}Mo)*	> 99	< 1	< 1
Na (^{24}Na)	< 1	> 99	< 1
Ni (^{65}Ni)*	< 1	> 99	< 1
Rb (^{86}Rb)	< 1	> 99	< 1
Sb (^{122}Sb)	> 99	< 1	< 1
Sc (^{46}Sc)*	< 1	> 99	< 1
Ta (^{182}Ta)*	> 99	< 1	< 1
Th (^{233}Pa)	< 1	< 1	> 99
U (^{239}Np)	< 1	< 1	> 99
W (^{187}W)	> 99	< 1	< 1

Tabelle 4.5: Wiederfindung einiger Radionuklide in den verschiedenen Gruppen des Trennverfahrens. Die Wiederfindung der mit * gekennzeichneten Nuklide ist [Egg88] entnommen.

Die in einer Lösung von 10 ml HCl (12 mol/l) und 1 ml HF (27 mol/l) enthaltenen Radionuklide werden durch eine 140 mm lange Säule in zwei Gruppen aufgetrennt. Dazu wird die Lösung bei einer Flußrate von etwa 1 ml/min durch die Säule gepumpt. Daraufhin wird die Säule mit 30 ml HCl (12 mol/l) und anschließend mit 10 ml HCl (12 mol/l) und HF (20 mol/l), im Mischungs-

verhältnis von 5 : 1, eluiert. Dabei werden interferierende Radionuklide wie Au, Br, Co, Fe, Hg, Mo, Ni, Pt, Re, Sb, Sn, Ta, Te und W an der Dowex 1x8 Säule quantitativ adsorbiert (Gruppe 1). Cd wird ebenfalls adsorbiert und in dieser Gruppe nachgewiesen (Gruppe 1). Im Eluat sind die Indikatorradionuklide von In, K, La, Lu, Rb, Th und U zu finden, die mittels einer zweiten Säule in wiederum zwei Gruppen aufgetrennt werden. Hierzu werden die 50 ml Lösung auf ein Volumen von 10 ml eingeengt und die Fluoridionen mit 20 ml H_3BO_3 (1 mol/l) maskiert. Die Lösung wird in fünf Stunden bei etwa 70 °C fast bis zur Trockne eingeengt und anschließend mit 20 ml HCl (12 mol/l) aufgenommen. Diese Lösung wird bei einer Flußrate von 1 ml/min durch eine 25 mm hohe Dowex 1x8 Säule gepumpt und zusammen mit dem ersten Eluat aufgefangen. Die erste Eluation führt man dabei mit 40 ml HCl (12 mol/l) durch. In dieser Gruppe befinden sich neben K auch Rb, La, Lu und In (Gruppe 2). Die Indikatorradionuklide von U und Th werden mittels einer Lösung 40 ml HCl (1 mol/l) und HF (1 mol/l), deren Volumenverhältnis 1 : 1 beträgt, eluiert (Gruppe 3).

Zur Übersicht ist die Wiederfindung in den einzelnen Gruppen für einige Nuklide in Tabelle 4.5 zusammengefaßt.

4.2 Nachweis der Indikatorradionuklide

4.2.1 Koinzidenzmeßtechniken

Zur Unterdrückung von Untergrundereignissen läßt sich in manchen Fällen eine Korrelation mehrerer gleichzeitig oder in kurzer zeitlicher Abfolge eingetretener Ereignisse nutzen. Dazu kann man im Falle neutronenaktivierter Nuklide γ-γ oder β-γ Korrelationen heranziehen.

Mit dem in Abbildung 4.8 dargestellten Versuchsaufbau läßt sich die Aktivität von Proben gleichzeitig mit unterschiedlichen Koinzidenzmeßtechniken nachweisen. Nach der radiochemischen Aufbereitung werden die Proben in einem Flüssigszintillator gelöst, der imstande ist, saure, wäßrige Proben aufzunehmen. Als dazu geeignet erwies sich der Szintillator Ultima Gold A/B der Firma Packard, in dem Mineralsäuren ohne wesentliche Einbußen der Lichtausbeute gelöst werden können. Die in Flüssigszintillator gelöste Probe befindet sich in einer PTFE Küvette, deren eine, dem Halbleiterdetektor abgewandte Seite von eine Quarzscheibe verschlossen wird. Auf diese Scheibe wird zur Messung ein aktivitätsarmer Photomultiplier mit einem optischen Kontaktmittel aufgekittet. Der Photomultiplier wird mit der Küvette lichtdicht verpackt und in der Achse des Halbleiterdetektors möglichst nahe an diesem plaziert. Mit dieser Anordnung kann man eine Energieschwelle von etwa 10 keV für die in dem Flüssigszintillator nachgewiesene Ereignisse erreichen.

Die Datenaufnahme erfolgte sowohl über ein CAMAC-System mit Einzelereignisauslese als auch über ein sehr viel schnelleres NIM-System zur Aufnahme von Histogrammen. Die Tripelkoinzidenzen wurden mit Hilfe der CAMAC-Datenaufnahme einzeln aufgenommen und in dem Speicher zur späteren Auswertung abgelegt. β-γ-Zweifachkoinzidenzen wurden simultan mit der NIM Datenaufnahme ausgelesen, wobei das vorhandene Myonenveto in Antikoinzidenz zu beiden Systemen geschaltet war.

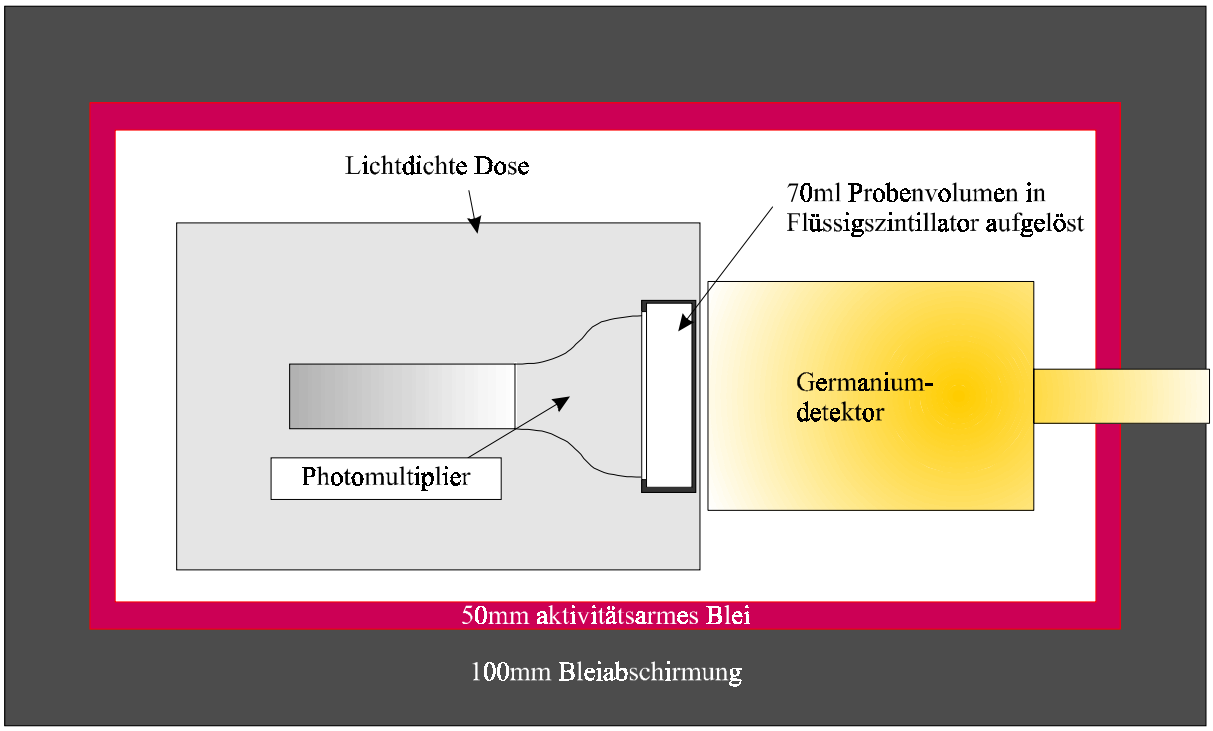

Abbildung 4.8: Der zur Messung von β^--γ und β^--γ-Konversionselektron Koinzidenzen verwendete Versuchsaufbau. Der Meßplatz befindet sich im untergrundarmen Labor und ist von fünf Seiten mit einem aktiven Myonenveto umgeben.

Uran wurde bei den durchgeführten Analysen alleinig über das Indikatorradionuklid ^{239}Np nachgewiesen. Andere Verfahren wie der Nachweis verzögerter Neutronen oder der Nachweis über Spaltprodukte wurden dabei nicht eingesetzt, obwohl sich für manche, hier nicht untersuchte Matrices, durch den Einsatz instrumenteller Verfahren Vorteile ergeben [Kri98]. Beim Einfang eines Neutrons an ^{238}U wird das Isotop ^{239}U gebildet, das über einen β^--Zerfall in ^{239}Np übergeht. Der Zerfall von ^{239}Np zeichnet sich gegenüber denen anderer aktivierter Nuklide dadurch aus, daß dieser einen isomeren Zustand von ^{239}Pu bevölkert. Diese Eigenschaft läßt sich zur Diskriminierung anderer Aktivitäten heranziehen, die nicht über diese Eigenschaft verfügen [Rag88]. Mit der Ausnahme von ^{187}W, das ebenfalls über einen isomeren Zustand zerfällt, kann man unter Ausnützung dieser Zerfallscharakteristik sowohl die intrinsische Aktivität der Probe als auch externe Aktivität unterdrücken, die sich störend auf den Nachweis der Np-Aktivität auswirken.

Die stärkste γ-Linie bei dem Zerfall von ^{239}Np ist bei 106.12 keV zu finden. Photonen dieser Energie werden in 27.2% der Zerfälle emittiert. Daneben treten noch Linien bei 227.59 keV und 228.18 keV auf, anhand derer sich das Nuklid identifizieren läßt. Neben der Kernstrahlung sind auch noch die $K\alpha_1$ und die $K\alpha_2$ Linien von ^{239}Pu bei 103.73 keV und 99.53 keV detektierbar, deren Emissionswahrscheinlichkeiten je nach beobachtetem Zerfallskanal unterschiedlich sind. Der Leser sei an dieser Stelle für die eingehende Diskussion der Nachweiswahrscheinlichkeiten und der Übergangswahrscheinlichkeiten auf 4.2.1.1 verwiesen.

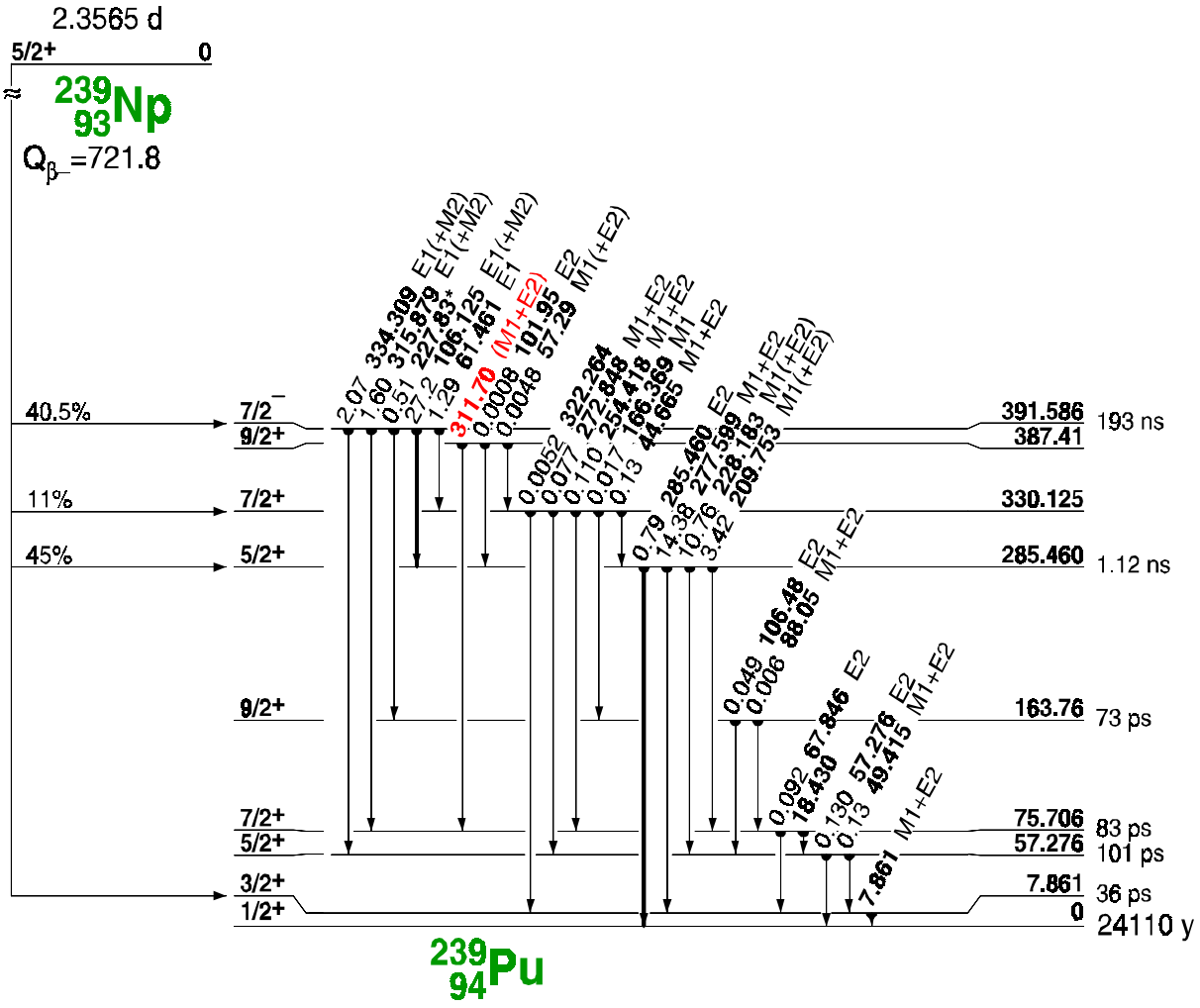

Abbildung 4.9: Zerfallsschema von ^{239}Np. Der isomere 7/2−Zustand liegt bei einer Energie von 391.6 keV über dem Grundzustand. Die darüberliegenden Niveaus sind in dieser Darstellung weggelassen [Fir96].

Will man die Signatur einer verzögerten Koinzidenz bei dem Zerfall von ^{239}Np nutzen, so bleibt man auf die 40.05% der Zerfälle beschränkt, die über den isomeren Zustand zerfallen, der über einen β^--Zerfall mit einem Endpunkt von 330 keV bevölkert wird. Als verzögerte Ereignisse lassen sich Kernstrahlungsphotonen, Konversionselektronen und Röntgenlinien nachweisen. Mit der Zeitinformation zwischen den β^- und diesen verzögerten Ereignissen lassen sich verschiedene Koinzidenzschaltungen realisieren [Gol97a]. Dazu gehören

- β^--γ-Koinzidenzen,
- β^--Konversionselektron-Koinzidenzen und
- β^--γ-Konversionselektron-Koinzidenzen.

So benötigt man für eine β^--γ-Koinzidenz einen Halbleiterdektor mit guter Zeitauflösung. Diese ist für effiziente Detektoren in dem Energiebereich um 100 keV jedoch im allgemeinen nicht hinreichend, um die prompten β^--γ-Koinzidenzen befriedigend zu unterdrücken. Eine β^--Konversionselektron-Koinzidenz ist nur bei Proben sinnvoll, die ^{239}Np ausschließlich geringster anderer Aktivitäten enthalten. Ein weiteres Problem dieser Koinzidenz sind Nachtrigger bei der Verwendung von Photomultipliern, die sich aufgrund ihrer Signatur nicht von anderen Ereignissen unterscheiden lassen. Dies kann man mit der β^--γ-Konversionselektron-Koinzidenz umgehen, die zwar die geringste Effizienz der drei Nachweismodi, dafür jedoch die beste Untergrundunterdrückung besitzt.

4.2.1.1 Uran: β–γ–Konversionselektronen Messungen zum Nachweis von ^{239}Np

Für den Nachweis des Zerfalls von ^{239}Np kann man sich die in Abbildung 4.9 wiedergegebene Zerfallssignatur zunutze machen [Rag88]. Dabei seien alle Ereignisse, die im Halbleiterdetektor nachgewiesen werden als „Photonen“, alle verzögerten Ereignisse, die dem β^- im Szintillationsdetektor folgen als „Elektronen“ bezeichnet.

Der in Abbildung 4.8 dargestellte Meßplatz erlaubt es für die Messung dieser Signatur, neben dem Zeitpunkt eines Ereignisses, die

- Energiedeposition in dem Germaniumdetektor (Photon),
- Energie des eines β-Ereignisses im Szintillator (β^-)
- Energie eines verzögerten Ereignisses im Szintillator („Konversionselektron“)
- Zeitdifferenz zwischen β-Ereignis und verzögertem Ereignis (ΔT)

aufzunehmen, wobei nur solche Ereignisse registriert werden deren Zeitdifferenz in dem Szintillator weniger als 1 μs beträgt. Jedes registrierte Ereignis ist also durch mindestens zwei diese vier Parameter sowie den Zeitpunkt seines Zerfalls charakterisiert. Für eine Eichaktivität von ^{239}Np sind die Projektionen auf die vier Eingangskanäle in Abbildung 4.10 dargestellt, wobei für diese Darstellung die Dreifachkoinzidenz zwischen Photon, β^- und verzögertem Ereignis gefordert war.

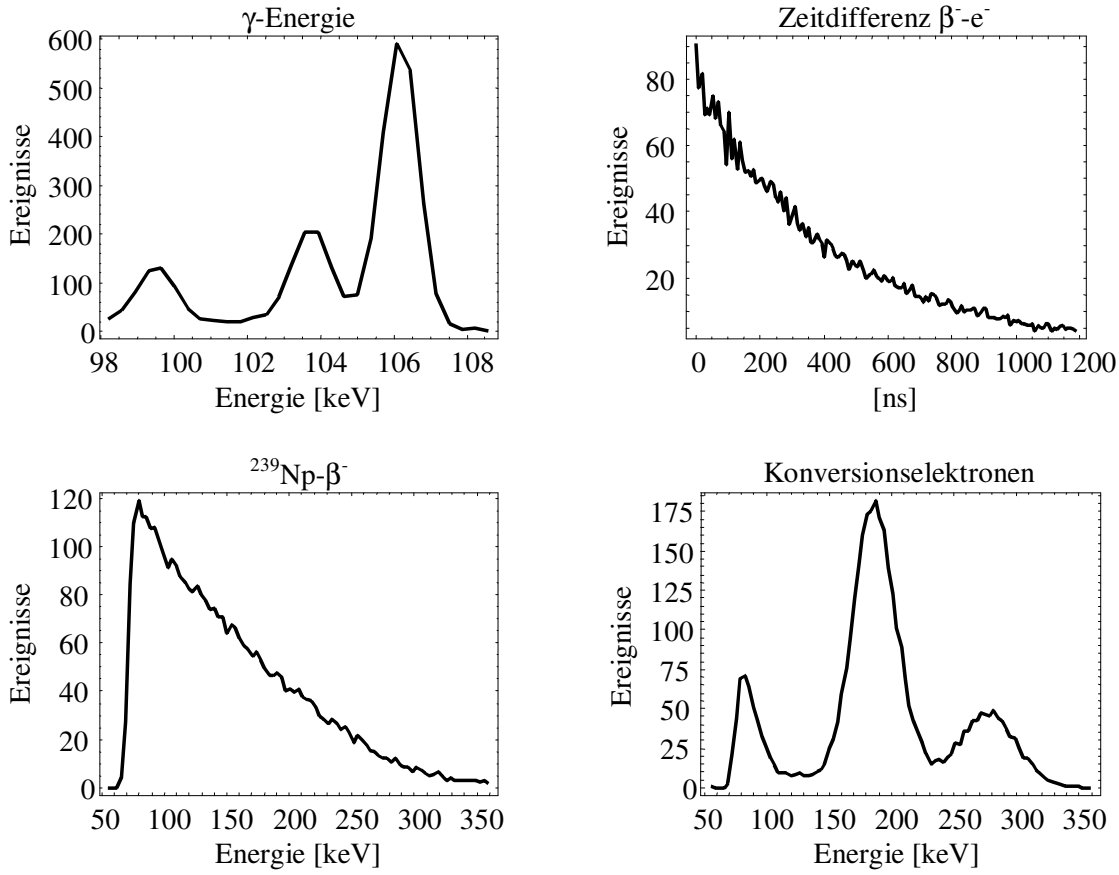

Abbildung 4.10: Projektionen eines Datensatzes auf die vier Eingangskanäle einer β-γ-e⁻Koinzidenz, die bei dem Zerfall von ^{239}Np auf einen isomeren Zustand von ^{239}Pu aufgezeichnet werden.

Das Elektronenspektrum umfaßt damit nicht nur K- und L-Konversionselektronen, sondern auch deren Fluoreszenzstrahlung, die mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit im Szintillator nachgewiesen wird, sowie Augerelektronen. Im Elektronenspektrum lassen sich damit drei Liniengruppen, die nicht aufgelöst werden können, folgenden Ereignissen zuordnen:

- Lininengruppe I: Augerelektronen, Fluoreszenz
- Liniengruppe II: Konversionselektronen
- Liniengruppe III: Konversionselektronen + Fluoreszenz.

Die Liniengruppe III ist somit bei etwa 285 keV zu finden, was der vollen Energiedeposition des Übergangs von $5/2^+$ auf den $½^+$ Grundzustand im Szintillator entspricht, der entweder über K- oder L-Konversion erfolgt. Dabei werden sowohl die Konversionselektronen als auch die emittierten Röntgenquanten als verzögerte Ereignisse im Szintillator mit der Summenenergie beider Ereignisse gemessen, die wiederum der Anregungsenergie des Zustandes entspricht. Die Linien-

gruppe II ist fast ausschließlich in Koinzidenz mit der $K\alpha_1$- und $K\alpha_2$-Fluoreszenz zu beobachten und repräsentiert die Energie der K-Konversionselektronen, wobei die $K\alpha_1/K\alpha_2$-Fluoreszenz nicht im Flüssigszintillator sondern im Halbleiterdetektor nachgewiesen wird.

Eine zusätzliche Verbesserung des Signal/Untergrund Verhältnisses läßt sich durch eine Analyse des in Abbildung 4.11 dargestellten Elektronen–Photonenspektrums erreichen. Eine Eingrenzung der Ereignisse im Elektronen–Photonenspektrum erlaubt es somit, den Untergrund der Messung bei geringfügig kleinerer Nachweiseffizienz (89%), weiter zu unterdrücken und eventuell verbleibende Untergrundereignisse zu diskriminieren.

Photonenenergie	99.53 keV	103.73 keV	106.23 keV
Elektronen	$K\alpha_2$ von ^{239}Pu	$K\alpha_1$ von ^{239}Pu	
Liniengruppe I	(1.03 ± 0.38)%	(1.04 ± 0.24)%	(11.43 ± 0.28)%
Liniengruppe II	(12.02 ± 0.42)%	(17.9 ± 0.40)%	(34.86 ± 0.37)%
Liniengruppe III	(3.65 ± 0.50)%	(5.38 ± 0.46)%	(12.66 ± 0.44)%

Tabelle 4.6: Relative Nachweiswahrscheinlichkeit aufgeteilt nach γ-Energie und Energie der verzögerten Ereignisse. Die korrespondierende Abbildung 4.11 findet sich auf Seite 69.

4.2.1.2 Effizienzbestimmung

Effizienz β^- (20 keV < E_β)	(95.0 ± 1.0)%
Effizienz · Emissionswahrscheinlichkeit Elektron (20 keV < E_e)	(16.9 ± 1.0)%
Effizienz· Emmissionswahrscheinlichkeit Photonen (98 keV < E_γ < 108 keV)	(10.0 ± 0.5)%
Produkt	(1.6 ± 0.2)%

Tabelle 4.7: Die Effizienzen einer verwendeten Meßanordnung für den Nachweis der β^- und Elektronen über einer Schwelle von 20 keV und der Photonen in dem Energieintervall zwischen 98 keV und 108 keV, die beim Zerfall von ^{239}Np emittiert werden. Die Photonennachweiseffizienz schließt dabei die Beimischung der K-Linien zum Zerfall ein. Die absolute Emissionswahrscheinlichkeit des Elektrons berücksichtigt nur die in dem zur Auswertung herangezogenen Zeitfenster emittierten.

Die Nachweiseffizienzen für β^-, Photonen und Elektronen wurden über die Auswertung der Raten und Koinzidenzraten von:

- β^-
- Photon

- β^--Elektron
- β^--Elektron-Photon

bestimmt. Bei einer Schwelle des Szintillationszählers von 20 keV können β^--Ereignisse des beobachteten Zerfalls mit hoher Effizienz nachgewiesen werden. Dies hängt sowohl mit der niedrigen Schwelle des Szintillators als auch der Endpunktenergie des β^--Zerfalls von 330.2 keV zusammen.

Übergang Photonenergie	Emissionswahrscheinlichkeit β^- - Photon	Emissionswahrscheinlichkeit β^- - Elektron – Photon
$K\alpha_2$ 99.53 keV	(15.6 ± 0.4)%	(6.13 ± 0.7)%
$K\alpha_1$ 103.73 keV	(24.5 ± 1.0)%	(9.73 ± 0.7)%
$7/2^- \rightarrow 5/2^+$ 106.23 keV	(27.2 ± 0.2)%	(27.2 ± 0.2)%
Summe	(67.3 ± 3.2)%	(43.06 ± 5.8)%

Tabelle 4.8: Die absoluten Emissionswahrscheinlichkeiten von $K\alpha_1$, $K\alpha_2$ und der 106.23 keV Linie beim Zerfall von ^{239}Np. Die linke Spalte bezeichnet die absolute Emissionswahrscheinlichkeit ohne Koinzidenzbedingung, die rechte Spalte bezeichnet die absolute Emissionswahrscheinlichkeit unter der geforderten Dreifachkoinzidenz von β^-, Elektron und Photon.

Elektronenereignisse über einer Schwelle von 20 keV können in 16.9% der Zerfälle beobachtet werden, was sowohl die Emissionswahrscheinlichkeit als auch die Nachweiseffizienz einschließt. Der Zerfall des $5/2^+$ Niveaus ist über die Emission von K-Konversionselektronen, L-Konversionselektronen, Augerelektronen und Fluoreszenzstrahlung erklärbar, die im Szintillator als verzögerte Ereignisse auftreten. In dem Szintillationsdetektor ist sowohl ein Teil der K- als auch die L-Fluoreszenzstrahlung nachweisbar. Dies führt zu der in diesem Detektor aufgenommenen Verteilung verzögerter Ereignisse (Abbildung 4.11).

Das Produkt aus Verzweigungsverhältnis und Effizienz, mit der Photonen im Halbleiterzähler nachgewiesen werden, sind für die $K\alpha_1$, $K\alpha_2$ und die 106.23 keV Linien in dem verwendeten LoAx-Detektor in Tabelle 1.1 aufgeschlüsselt. Die Wahrscheinlichkeit für den Nachweis eines Photons beim Zerfall von ^{239}Np über den isomeren Zustand beträgt in dem relevanten Energiebereich zwischen 98 keV und 108 keV etwa 10%. Die Nachweiswahrscheinlichkeit der $K\alpha$-Linien hängt dabei von dem Koinzidenzmodus ab und ist für die Dreifachkoinzidenz kleiner als für die β-γ-Koinzidenz oder die Messung ohne Koinzidenzbedingung, deren Werte in Tabelle 4.8 gegeben sind.

Die Effizienz für den Nachweis eines ^{239}Np Zerfalls beträgt unter den geforderten Bedingungen und der Dreifachkoinzidenz zwischen β^-, Elektron und Photon (1.6 ± 0.2)%. Für den Nachweis eines ^{239}Np Zerfalls unter Verwendung der Zweifachkoinzidenz von β^- und Elektron beträgt die Nachweiseffizienz (16.1 ± 1.0)%. In beiden Fällen ist dabei schon berücksichtigt, daß der Zerfall mit einem Verzweigungsverhältnis von 40.5% über den isomeren Zustand erfolgt.

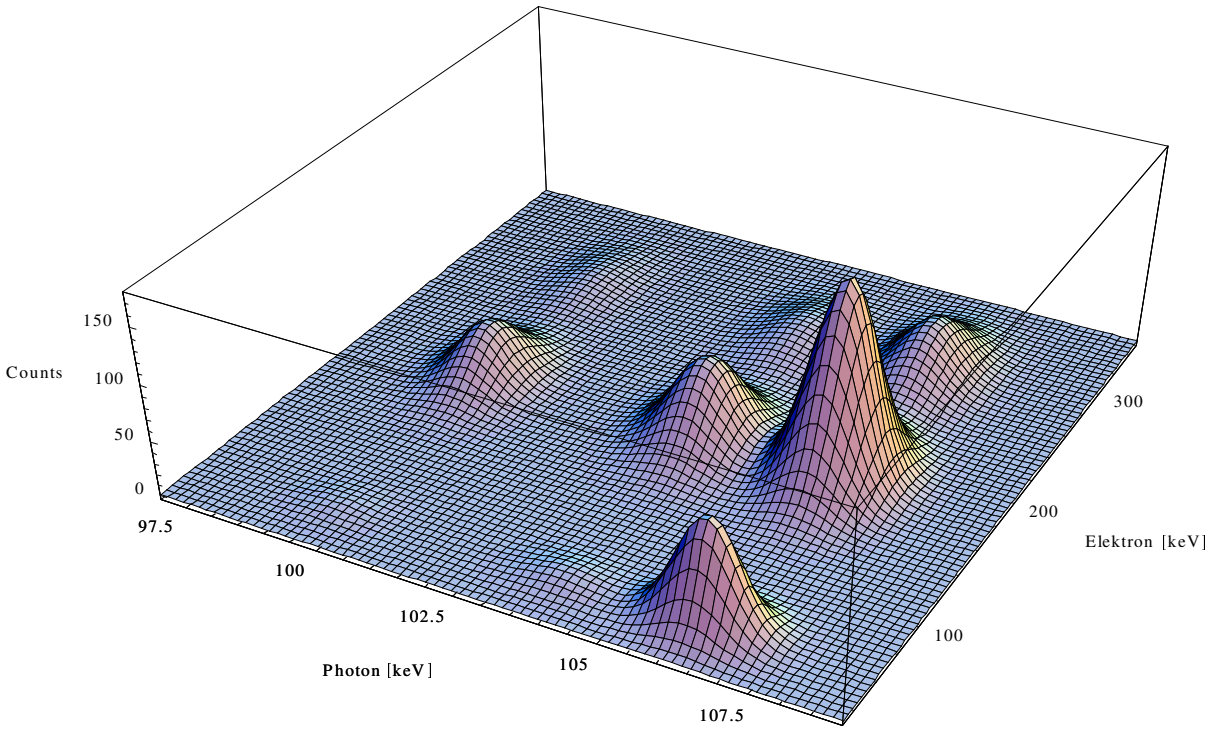

Abbildung 4.11: Die Häufigkeitsverteilung von Photonen zwischen 97.5 keV bis 108 keV und Elektronenereignissen der Liniengruppen I-III einer Eichaktivität. Die Korrelation zwischen beiden Ereignisgruppen läßt sich zur Diskriminierung von Untergrundereignissen verwenden.

4.2.1.3 Thorium: β–γ Messungen zum Nachweis von ^{233}Pa

Der Nachweis von Thorium in radiochemisch aufbereiteten Proben ist, nach der Abtrennung interferierender Nuklide, sensitiv über den Zerfall des Indikatorradionuklids ^{233}Pa möglich, das mit einer Halbwertszeit von 27 Tagen mit einem Verzweigungsverhältnis von 38.6% auf den Grundzustand von ^{233}U übergeht. Dabei wird ein 312.17 keV Photon koinzident zu dem β^--Zerfall emittiert. Der β^--Zerfall hat eine Endpunktenergie von 258 keV und ist damit in dem verwendeten Versuchsaufbau (Abbildung 4.8) mit hoher Effizienz nachweisbar. Die verwendete

β^--γ-Koinzidenz unterdrückt wirksam den detektorkorrelierten Untergrund, der bei einer typischen Meßzeit von fünf Wochen die Sensitivität begrenzt, da sich interferierende Radionuklide meist so gut abtrennen lassen, daß der probenkorrelierte Untergrund eine untergeordnete Rolle spielt. Einen deutlichen Gewinn an Sensitivität erreicht man bei dieser Messung durch die Antikoinzidenzschaltung mit dem Myonenveto des Detektors. Myonen scheinen häufig koinzidente Ereignisse in dem Flüssigszintillationsdetektor und dem Germaniumdetektor auszulösen, wenn diese die Bleiabschirmung durchqueren. Kann man diesen myonenkorrelierten Untergrund unterdrücken, lassen sich mit dieser Anordnung innerhalb der fünfwöchigen Meßzeit etwa 300 Zerfälle von ^{233}Pa nachweisen, die einer Detektionsrate von etwa $10^{-5}\,s^{-1}$ entsprechen.

4.2.2 Cadmium, Kalium, Lanthan, Lutetium, Indium und Rubidium

Der Nachweis von Cadmium, Kalium, Lanthan, Lutetium, Indium, Rubidium und weiteren Elementen wurde über die (n,γ) Reaktionen der Isotope ^{114}Cd, ^{41}K, ^{139}La, ^{176}Lu, ^{113}In und ^{85}Rb geführt. Für ^{176}Lu ist in diesem Zusammenhang eine Besonderheit zu erwähnen. Dessen thermischer Wirkungsquerschnitt hängt durch eine Resonanz stark von dem Neutronenspektrum ab [Bec64, Gry75], so daß für die angewandte Monostandardmethode die Nachweisgrenzen für Lutetium unter konservativen Annahmen für das Neutronenspektrum angegeben wurden.

4.2.3 Systematische Unsicherheit

Die NAA weist für Analysen im Spurenbereich gegenüber anderen analytischen Verfahren Vorteile für die erreichbare Genauigkeit auf, so daß dieses Verfahren häufig als Referenzmethode eingesetzt wird. Im Ultraspurenbereich erweist sich die NAA als ein zuverlässiges Verfahren, da die Probenmengen in der Regel größer gewählt werden können als für andere elementanalytische Methoden im Spurenbereich. Dies wirkt sich vorteilhaft auf die Reproduzierbarkeit und Genauigkeit der Analyseergebnisse aus, da kleine Analyteinträge durch Migration aus Laborgefäßen oder Analytverluste durch Adsorption weitaus geringere Auswirkungen auf das Analyseresultat haben als bei kleinen Probenmengen. Die Blindwerte, die sich auf die Probenaufbereitung zurückführen lassen, sind für die NAA ebenfalls besser abschätzbar, da sich die Aufbereitung, sofern diese nötig ist, vielfach nach der Bestrahlung durchführen läßt. Dabei fällt lediglich der Eintrag aktivierter Nuklide ins Gewicht, was sich bei sorgsamen Umgang mit den ebenfalls aktivierten Probenverpackungen vermeiden läßt. Dies erweist sich als besonderer Vorzug bei organischen Proben, die für andere analytische Verfahren in der Regel aufgeschlossen werden müssen, was fast immer mit einer Vergrößerung der Blindwerte verbunden ist. Der Analyteintrag während der Bestrahlung läßt sich bei aktivierungsanalytischen Verfahren hingegen nur schwer abschätzen. Die Nachweisgrenze einiger Elemente wird möglicherweise durch die Migration aktivierter Nuklide während der Bestrahlung limitiert [Ang97, Hen96], die sich jedoch durch die Verwendung reiner Bestrahlungsgefäße aus synthetischem Quarz oder Silizium verbessern läßt. Sicher umgehen läßt sich dieser Analyteintrag nur bei festen Proben, deren kontaminierte Oberfläche nach der Bestrahlung entfernt werden kann.

Bei jeder Analyse stellt sich die Frage nach den mit der Aktivitätsmessung verbundenen systematischen Unsicherheiten. Im Falle der radiochemischen Aufarbeitung einer Probe gilt es daneben noch die systematischen Unsicherheiten dieses Prozesses zu berücksichtigen. Beide hängen von dem analysierten Element ab, da man sich gerade elementspezifische Eigenschaften zu einer ra-

diochemischen Abtrennung zunutze macht und jedes Radionuklid spezifische Aktivierungs- und Zerfallscharakteristika besitzt, die sich in unterschiedlicher Weise auf die mit der Messung verknüpften Unsicherheiten auswirken.

	Tendenz	Typische Größe
Migration während der Bestrahlung	+	-
Probenentnahme	+	-
Probenlagerung	±	< 5%
Wägung	±	1%
Probenvorbereitung	+	-
Neutronenflußdichte	±	15%
Neutroneneinfangquerschnitt	±	5%
Flußverhältnis	±	5%
Bestrahlungszeit	±	1%
Extraktion	±	< 1%
Adsorption	-	< 5%
Ionenaustausch	±	< 1%
Zähleffizienz, Probengeometrie	±	5%
Meßzeit	±	< 1%
Totzeitverluste	-	< 1%
Geom. Mittel		**< 20%**

Tabelle 4.9: Systematische Unsicherheiten (1σ), die für ein typisches Indikatorradionuklid berücksichtigt wurden. Beiträge, die zu einem Analytverlust oder einer fälschlichen Erniedrigung des Resultats führen wurden mit -, Beiträge zu einem Analyteintrag in die Probe oder einer Erhöhung des Resultats führen, wurden mit + gekennzeichnet.

In Tabelle 4.9 sind einige systematische Unsicherheiten mit deren Größe und Auswirkung auf das Analyseresultat für ein typisches Spurenelement zusammengestellt, das mittels NAA in einer großvolumigen organischen Probe nachgewiesen werden kann. Für die gemessene Konzentration sei dazu angenommen, daß die Migration des Indikatorradionuklids aus dem Bestrahlungsgefäß in die Probe vernachlässigbar gegen die in der Probe enthaltene Menge ist. Diese Annahme ist für Proben im Ultraspurenbereich nicht immer erfüllt, so daß das Analyseresultat durch die Migration eines Radionuklids in die Probe verfälscht werden kann. Die Probenentnahme und Probenvorbereitung erfolgt unter Reinraumbedingungen, so daß die Kontamination der Probe mit Staub gewöhnlich vernachlässigt werden kann. Die systematische Gesamtunsicherheit ist bei großvolumigen Proben von der Neutronenflußdichte dominiert, die bereits in Abschnitt 4.1.4 diskutiert wurde. Die Unsicherheiten der radiochemischen Probenverarbeitung umfassen Adsorptionsverluste an Laborgefäßen und Schwankungen der Ausbeute, die jedoch anhand von

Tracermessungen zuverlässig gemessen werden können, wenn man einmal annimmt, daß sich ein Indikatorradionuklid wie ^{233}Pa im Konzentrationsbereich von 10^{-23} g/g so verhält wie im Konzentrationsbereich von 10^{-20} g/g bei Tracermessungen. Adsorptionsverluste lassen sich durch die Zugabe eines stabilen Trägers für viele Elemente, mit Ausnahme von Pa und Np, minimieren. Für diese Elemente wurde Lanthan zugesetzt, da es kein stabiles Isotop dieser Elemente gibt. Auch das langlebige ^{237}Np kommt für die Verwendung als Träger nicht in Frage, da es zu ^{233}Pa zerfällt, dem Isotop, das zur Analyse von ^{232}Th herangezogen wird.

Daneben sind apparative Effekte zu berücksichtigen, die bei der Monostandardmethode auf Unsicherheiten in der Effizienzkalibration der verwendeten Detektoren und Effekte der Probengeometrie zurückzuführen sind. Für einige Nuklide, die über die Emission von mehreren Photonen zerfallen, muß man bei nichtrelativen Messungen zusätzlich eine Kaskadenkorrektur einführen, die besonders für die in dieser Arbeit verwendete detektornahe Geometrie mit effizienten Detektoren ins Gewicht fällt, jedoch zuverlässig durch numerische Simulationen berechnet werden kann.

4.2.4 Statistische Unsicherheit und Nachweisgrenzen

Für die Bestimmung der statistischen Unsicherheit und der Nachweisgrenze einer Aktivität ist die Unterscheidbarkeit zwischen Aktivität und Untergrundereignissen jeder Messung von Bedeutung. Für energiedispersive Detektoren kann man zusätzlich noch die Energie eines detektierten Ereignisses zu einer Analyse von Signal und Untergrund hinzuziehen. Da beide Komponenten statistisch völlig unabhängig sind und in dem Bereich des zur Auswertung einer Aktivität betrachteten Energieintervalls a priori nicht unterscheidbar sind, ist die Schwankungsbreite beider zu berücksichtigen. So kann eine Fluktuation der Untergrundereignisse fälschlicher Weise ein positives Signal vortäuschen oder ein vorhandenes positives Signal unterdrücken [Cur68]. Im folgenden sei die Wahrscheinlichkeit, daß eine Aktivität nicht als solche erkannt wird zu höchstens 10% angenommen, welches einem Vertrauensniveau ε von 90% entspricht.

Bei der Auswertung eines γ-Spektrums wird man die Ereignisse in dem Energiebereich einer γ-Linie zur Auswertung heranziehen. Bei geringen Ereigniszahlen, wie sie bei einigen der durchgeführten Analysen auftrat, ist die Binomialverteilung die exakte Beschreibung. Die Poissonverteilung ist eine Näherung die, wie hier gezeigt werden soll, konservative obere Schranken für die Nachweisgrenzen liefert.

Die Wahrscheinlichkeit, ein Ereignis eines Kernzerfalls innerhalb der Halbwertsbreite[12] einer erwarteten γ-Linie zu finden, ergibt sich aus der Statistik folgender Prozesse:

- Emission von γ-Quanten einer gegebenen Anzahl von Kernen in der Meßzeit
- Nachweis der γ-Quanten im Detektor
- Ereignisse des nachgewiesenen Signals innerhalb der Halbwertsbreite der erwarteten Linie.

[12] Strenggenommen ist die relative Unsicherheit des Signals für ein Energieintervall von etwa 1.2 Halbwertsbreiten am kleinsten, wenn das Signal einer Gaußfunktion entspricht; diese hängt jedoch in diesem Bereich nur schwach von der Breite des Intervalls ab.

Sei p das Produkt der Wahrscheinlichkeiten dieser drei Prozesse und N/p die Anzahl der zerfallenden Kerne, dann wird die Wahrscheinlichkeit genau n Ereignisse auf diese Art zu detektieren durch die Binomialverteilung

$$W_p^{N/p}(n) = \binom{N/p}{n} p^n (1-p)^{N/p-n}$$

beschrieben. Werden n_0 Untergrundereignisse gemessen wurden, kann man die obere Schranke der Anzahl dieser Ereignisse berechnen, die bei einem gegebenen Vertrauensbereich ε durch deren statistische Streuung um den Erwartungswert N erkennbar sind. Die Anzahl N dieser Ereignisse erhält man aus der Lösung der Gleichung

$$\varepsilon = 1 - \sum_{n=0}^{n_0} \frac{(N/p)!}{n!(N/p-n)!} p^n (1-p)^{N/p-n} .$$

Mit der Gammafunktion läßt sich diese Gleichung in

$$\varepsilon = 1 - \sum_{n=0}^{n_0} \frac{\Gamma(N/p+1)}{\Gamma(n+1)\Gamma(N/p-n+1)} p^n (1-p)^{N/p-n}$$

überführen und für ein gegebenes Vertrauensniveau ε, sowie Parameterwerte von p und n_0 numerisch lösen. Einige Werte sind in Tabelle 4.10 zusammengefaßt. So liegt die Nachweisgrenze bei einem Vertrauensniveau von 90% und einer Nachweiswahrscheinlichkeit eines Zerfalls von p = 0.2 bei 5 Ereignissen, für den Fall, daß 2 Ereignisse beobachtet werden. N ist also die obere Schranke für die Anzahl der Ereignisse, die man bei einem Vertrauensniveau ε und n beobachteten Ereignissen angeben kann.

Unter bestimmten Annahmen kann man diese Verteilung durch die Poissonverteilung approximieren. Diese Voraussetzungen sind hinreichend gut erfüllt, wenn

- die Halbwertszeit des gesuchten Nuklids größer ist als die Meßzeit,
- die Zahl der zerfallenen Kerne groß (N/p > 100) und
- die Nachweiswahrscheinlichkeit für den Zerfall klein ist (p < 0.1).

Die Güte dieser Näherung hängt dabei von der Größe der gegebenen Parameter ab, ist aber für die in Abschnitt 4.2.1 erwähnten Parameter hinreichend gut erfüllt.

Läßt sich der Untergrund im Bereich einer γ-Linie aus den benachbarten Energiebereichen bestimmen, kann man den Untergrund innerhalb des zur Auswertung herangezogenen Bereiches statistisch subtrahieren. Dies wird in der Regel nur für Messungen möglich sein, die die Poissonnäherung erfüllen, so daß an dieser Stelle nur auf diesen Fall eingegangen werden soll [Hel83]. Das Signal, das mindestens N Ereignisse umfaßt, habe dabei den unbekannten Erwartungswert μ_S und der Untergrund den Erwartungswert μ_B.

Ereignisse n	Nachweisgrenze N Poissonstatistik 90% C.L.	Nachweisgrenze N Binomialstatistik 90% C.L. p = 0.01	Nachweisgrenze N Binomialstatistik 90% C.L. p = 0.2	Nachweisgrenze N Binomialstatistik 90% C.L. p = 0.5
0	2.30	2.29	2.06	1.66
1	3.89	3.88	3.59	3.08
2	5.32	5.31	4.98	4.39
4	7.99	7.97	7.58	6.87
8	12.99	12.97	12.47	11.58
16	22.45	22.45	21.78	20.61
32	40.54	40.54	39.52	38.09
64	75.52	75.51	74.31	72.19

Tabelle 4.10. Poisson- und Binomiallimites für G Ereignisse bei n beobachteten Untergrundereignissen für ein Vertrauensniveau von 90%. Der Parameter p durchläuft bei der Binomialverteilung p = 0.01, 0.2, 0.5

Diesen Erwartungswert μ_B kann man anhand der Mittelung über einen im Vergleich zur Halbwertsbreite breiten Energiebereich mit kleiner Unsicherheit bestimmen, die für die folgende Näherung vernachlässigt werden soll. Nicht bekannt hingegen ist jedoch die genaue Zahl n_B der Untergrundereignisse in dem zur Auswertung herangezogenen Energiebereich, der n_0 Ereignisse enthalte, die sowohl einem Signal als auch Untergrund zuzurechnen sein könnten. Nun kann man sich bei dem bekannten Erwartungswert μ_B für den Untergrund die Wahrscheinlichkeit berechnen, höchstens N Signalereignisse bei n_0 gemessenen Ereignissen in einer Einzelmessung zu finden [Cow98]:

$$\varepsilon = 1 - \frac{e^{(-\mu_B+N)} \sum_{n=0}^{n_0} \frac{(\mu_B + N)^n}{n!}}{e^{(-\mu_B)} \sum_{n=0}^{n_0} \frac{(\mu_B)^n}{n!}}.$$

Für das vorgegebene Vertrauensniveau ε läßt sich N als Funktion von n_0 und μ_B implizit darstellen (Abbildung 4.12). Dies liefert eine konservative Abschätzung für die obere Grenze eines Signals auch in Fällen, in denen Annahmen für große Teilchenzahlen und kleine Nachweiswahrscheinlichkeiten für die Poissonstatistik nicht mehr gültig sind. Die Anwendung der Binomialstatistik liefert in diesen Fällen eine geringfügig schärfere Nachweisgrenze.

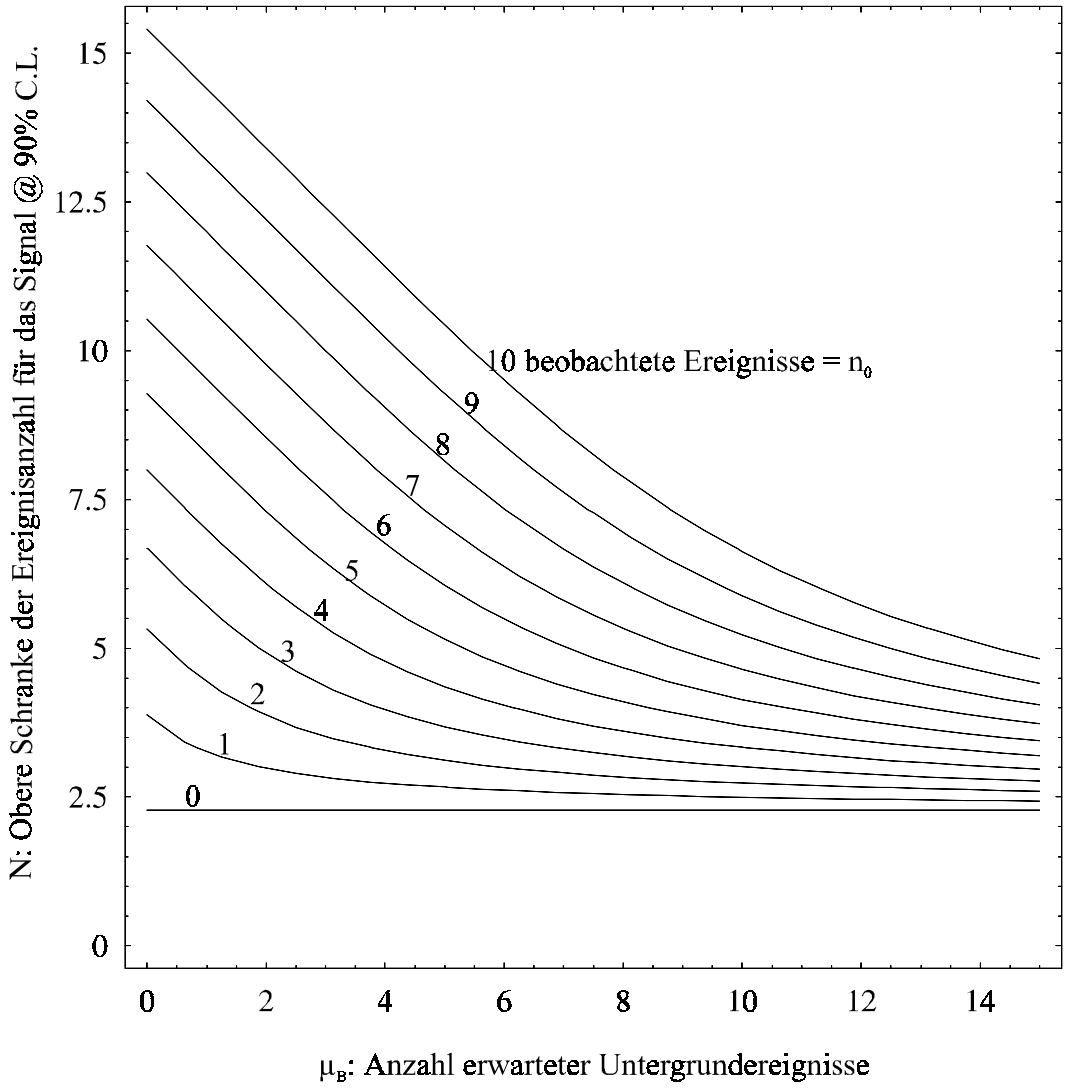

Abbildung 4.12: 90% Vertrauensbereich für die obere Grenze bei μ_B erwarteten und n_0 beobachteten Ereignissen.

4.3 Untergrundarme Gammaspektroskopie

Eine weitere Notwendigkeit, um niedrige Aktivitäten aktivierter, primordialer, kosmogener oder anthropogener Radionuklide nachzuweisen, sind Detektoren mit geringem Eigenuntergrund. Der Begriff „low-level counting“ und elementare Techniken gehen auf W. Libby zurück, der untergrundarme Meßplätze in den späten vierziger Jahren zum Nachweis von ^{14}C verwendete. Später flossen die Techniken und Erfahrungen in den Bau aktivitätsarmer Szintillationsdetektoren und hochauflösender Reinstgermaniumdetektoren [The96].

Für den Untergrund der von diesen Radionukliden emittierten Photonen ist der Aufbau der Meßplätze von Bedeutung, worauf im folgenden näher eingegangen werden soll. Die verschiedenen Anwendungen stellen völlig unterschiedliche Ansprüche an den Untergrund des verwendeten Detektors. So mißt man beispielsweise die primordiale Aktivität einer Probe in dem selben Energiebereich, in dem die Untergrundaktivität des Detektors zu finden ist, während diese Einschränkung für aktivierte Nuklide nicht gilt, da sich deren Energie in der Regel von der im Untergrund vorhandener Nuklide unterscheidet. Für die Bestimmung der kosmogenen Aktivität einer Probe muß man die Produktionsprozesse dieser Aktivität im Labor unterdrücken, was teilweise nur in sehr gut abgeschirmten Untergrundlabors möglich ist, in denen weder Neutronen noch Myonen die zu untersuchende Probe aktivieren.

4.3.1 Aufbau und Abschirmung der Ge-Detektoren

Die Ge-Detektoren wurden für die durchgeführten Messungen in verschiedenen Konfigurationen betrieben. In der ursprünglichen Konfiguration waren die Detektoren mit einer Abschirmung aus 100 mm antimongehärtetem Blei (PbSb4) und 5 mm Kupfer ausgestattet. Das für diese Messungen benutzte Labor dürfte den Meßplätzen dabei eine Überdeckung von etwa 200 g/cm² (2 mwe) geboten haben. Die technischen Daten der Detektoren sind dabei in Tabelle 4.11 zusammengefaßt sowie in Abbildung 4.13 und Abbildung 4.14 im Detail dargestellt.

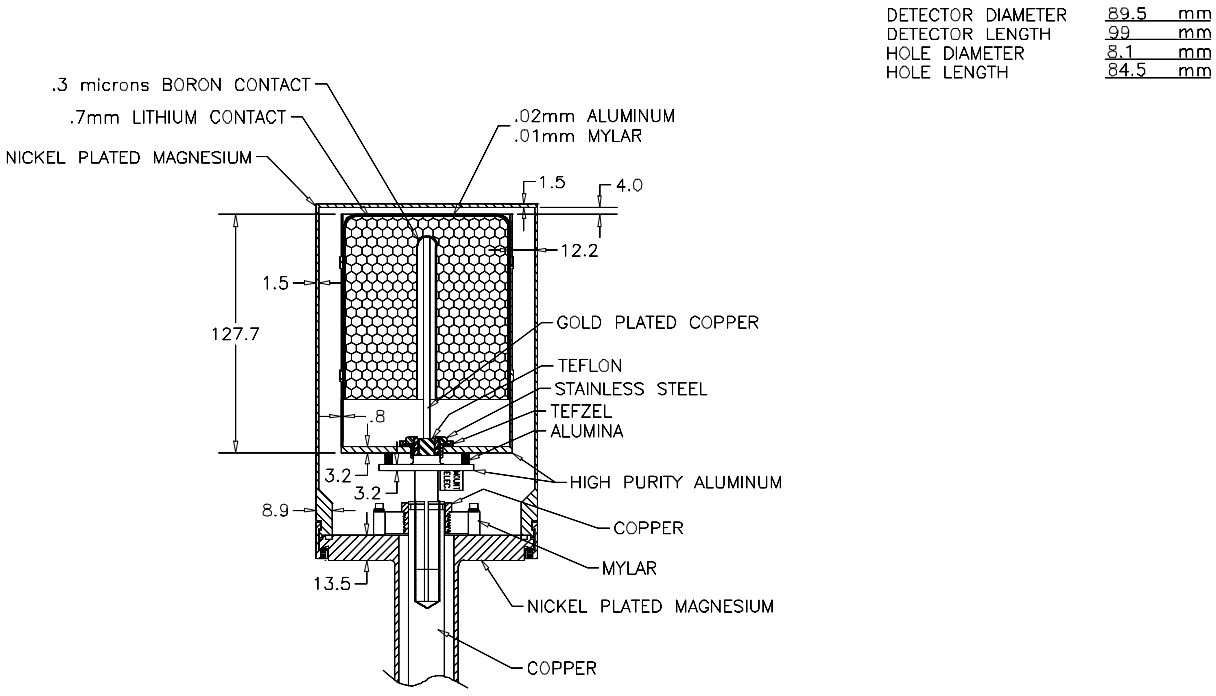

Abbildung 4.13: Aufbau des verwendeten p-Typ Detektors 150% relativer Effizienz.

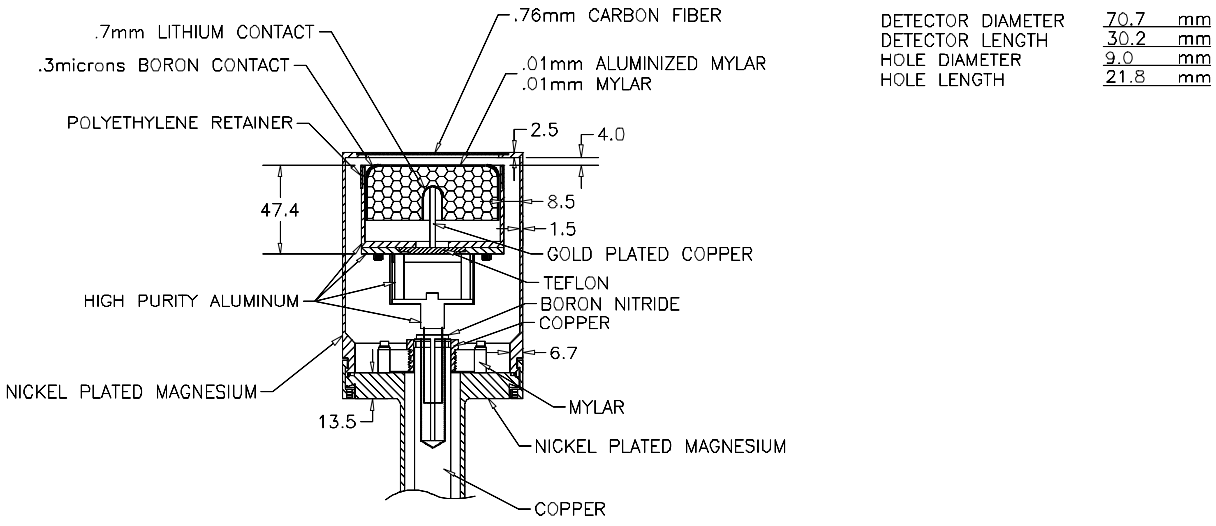

Abbildung 4.14: Zeichnung des verwendeten n-Typ Detektors.

Detektor	Kristall Durchmesser	Kristall Länge	Fensterdicke Fenstermaterial	Totschicht	Aktives Volumen	Ge-Masse
n-Typ	70.4 mm	29.2 mm	1.06 mm Kohlefaser	0.3 µm	113 cm³	594 g
n-Typ	70.7 mm	30.2 mm	0.76 mm Kohlefaser	0.3 µm	118 cm³	620 g
p-Typ	89.5 mm	99.0 mm	1.5 mm Mg	700 µm	622 cm³	3282 g

Tabelle 4.11: Charakteristika und Kenngrößen der verwendeten Detektoren.

In der neuen Konfiguration wurden die Meßplätze in einem Labor mit einer Überdeckung von etwa 1500 g/cm² (15 mwe) aufgebaut. Die Abschirmung dieses verbesserten Aufbaus besteht aus einer 100 mm dicken Außenschicht antimongehärteten Bleis und einer 50 mm dicken Innenschicht aktivitätsarmen Bleis, dessen ^{210}Pb Kontamination zu (23.2 ± 2.3) Bq/kg über die α-Aktivität des Tochterisotops ^{210}Po bestimmt werden konnte [PTB97]. Die Abschirmung ist dabei von einem Kunststoffgehäuse umgeben, das mit dem abdampfenden Stickstoff der Dewars befüllt wird, um die in der Raumluft vorhandene Radonaktivität aus der Meßkammer zu verdrängen. Die Detektoren sind darüber hinaus von einem Myonenveto umgeben, das aus 50 mm dicken Plastikszintillatoren besteht, deren Schwelle auf etwa 3 MeV justiert ist, so daß Myonen, die

in dieser Weglänge etwa 8 MeV deponieren, klar von den Photonen zu unterscheiden sind. Der Durchgang eines Myons durch den Szintillator öffnet für das Datenaufnahmesystem ein Antikoinzidenzzeitfenster von 50 μs Dauer. Dabei liegt die Totzeit des Systems bei einer Rate von 200 s^{-1} unter 5%. Aus einem Vergleich der Annihilationslinie von Messungen mit und ohne Veto läßt sich die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Myon vom Veto nicht erkannt wird mit <1.2% angeben.

4.3.2 Untergrundaktivität der HPGe-Detektoren

Die Messung des Untergrundes in einem Labor mit einer Überdeckung von etwa 200 g/cm² und, vergleichend dazu, in einem Labor mit einer Überdeckung von etwa 1500 g/cm² hebt die Charakteristika der Wechselwirkung von kosmischer Strahlung mit dem Detektor deutlich hervor. Es lassen sich verschiedene Arten von Untergrund unterscheiden, auf die im folgenden näher eingegangen werden soll.

Dabei lassen sich die Untergundbeiträge

- Neutroneninduzierten Reaktionen,
- Myoneninduzierten Reaktionen,
- Myonenproduzierten Neutronen,
- Photonen,
- Primordialen Radionukliden,
- Anthropogenen Radionukliden

zuordnen, die soweit diese in dem Spektrum eines Detektors erkennbar sind in Tabelle 8.1 aufgeführt sind.

Die durch Protonen hervorgerufene Untergrundaktivität spielt in einem Labor mit einer Abschirmung von 1500 g/cm² keine wesentliche Rolle, da deren Intensität mit Massenschwächungskoeffizienten von 1.6 m/mwe abnimmt [The96] und diese gegen die neutronen- und myoneninduzierte Aktivität vernachlässigbar ist. Für den Vergleich neutroneninduzierter Effekte ist allerdings zu berücksichtigen, daß der Beschuß von Blei mit hochenergetischen Protonen ein effizienter Produktionsmechanismus für Neutronen ist [Art88], wobei die Wechselwirkungslänge im Bereich von etwa 15 cm liegt. Dies hat zur Folge, daß in einem oberflächennahen Meßplatz jedes zweite Proton mit hoher Wahrscheinlichkeit ein oder mehrere Neutronen produziert.

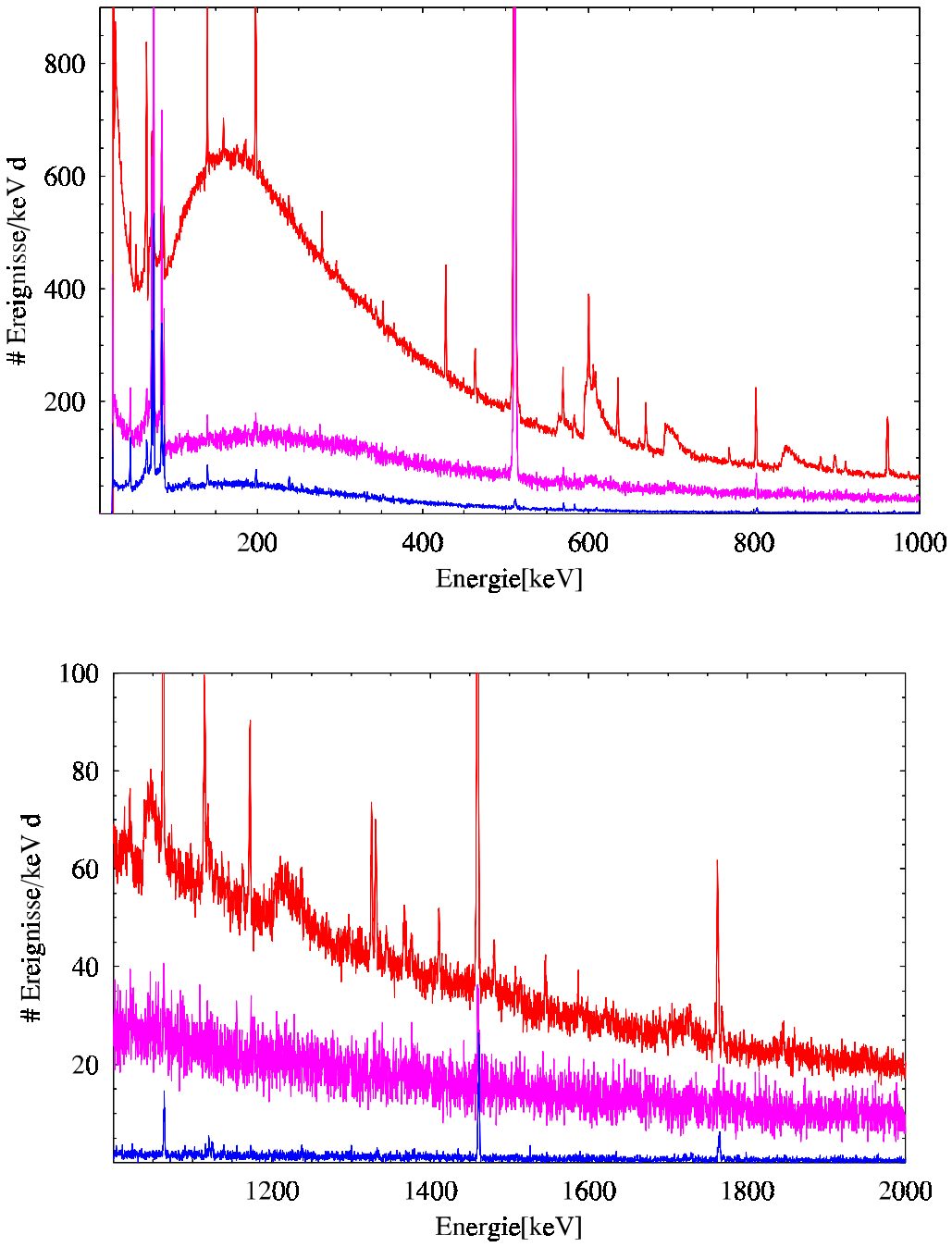

Abbildung 4.15: Spektren des p-Typ Detektors 150% relativer Effizienz nach 40 Tagen Meßzeiten der in ursprünglichen Konfiguration (oben) und mit der verbesserten Abschirmung in dem untergrundarmen Labor (mitte) und aktiver Myonenunterdrückung (unten). Die genaue Zuordung der Linien findet sich im Anhang.

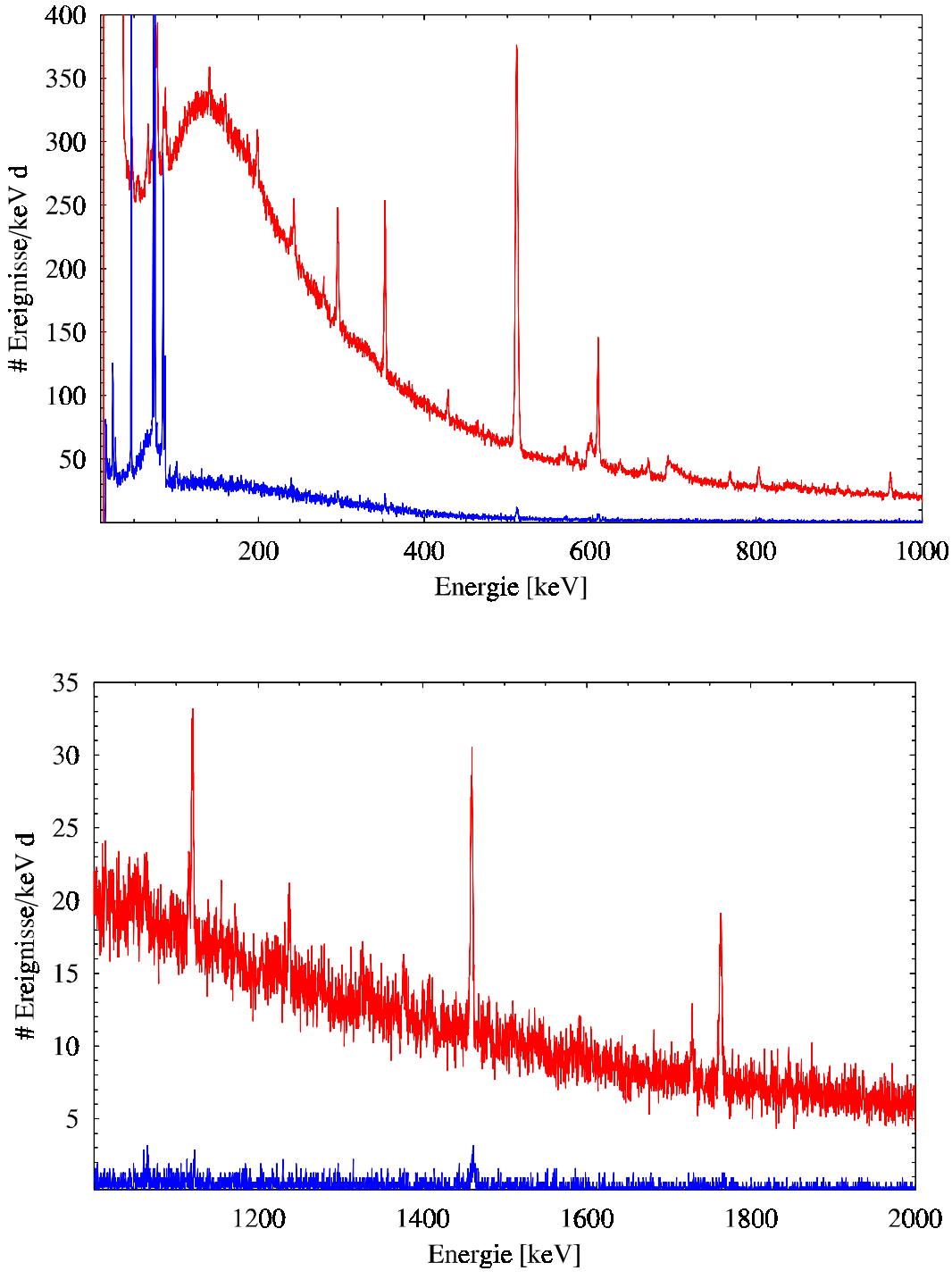

Abbildung 4.16: Spektren eines LoAx-Detektors nach 40 Tagen Meßzeiten der in ursprünglichen Konfiguration (oben) und mit der verbesserten Abschirmung in dem untergrundarmen Labor (unten) und aktiver Myonenunterdrückung. Die genaue Zuordung der Linien findet sich im Anhang.

In Abbildung 4.15 und Abbildung 4.16 sind die Untergrundspektren der verwendeten Detektoren in verschiedenen Konfigurationen dargestellt, deren Merkmale an dieser Stelle vorgestellt und in den folgenden Abschnitten quantitativ dargestellt werden sollen.

Augenfällig sind in den in einem Labor mit geringer Abdeckung aufgenommenen Spektren zunächst die angeregten Zustände der stabilen Germaniumisotope, welche über inelastische Neutronenstreuung bevölkert werden und durch die weitere Energiedeposition des gestreuten Neutrons in dem Detektor zu hoher Energie verbreitert sind. Daneben sind angeregte Zustände der Blei- und Kupferabschirmung als Linien in dem Spektrum erkennbar. Einige Linien gehen auf (n,α)-Prozesse und Spallationsprodukte von Kupfer zurück, die in den anderen Untergrundspektren fehlen, da die Kupferabschirmung in dem Untergrundlabor entfernt wurde. Ebenfalls als Linien treten die (n,γ)-Reaktionen in Germanium zutage, die in dem alten Labor eher durch die Neutronenkomponente der kosmischen Strahlung als durch sekundäre Neutronen erzeugt wurden, während die Verhältnisse in dem Untergrundlabor umgekehrt sein dürften. Hier werden die Neutronen vorrangig durch den Einfang negativer Myonen in Blei produziert, weshalb diese Effekte im folgenden dem myonenkorrelierten Untergrund zugerechnet sind. Daneben ist mit der Neukonfiguration der Detektoren eine deutliche Abnahme der Radonzerfallsprodukte und des kontinuierlichen Untergrundes erkennbar. Die Reduktion dieses kontinuierlichen Untergrundes korreliert mit der Abnahme der Höhenstrahlung und ist nicht auf die verbesserte Bleiabschirmung zurückzuführen, da sich diese Abnahme auch in dem Energiebereich oberhalb des ^{210}Bi-Bremsstrahlungsspektrums zeigt.

Die Untergrundspektren mit Myonenveto unterscheiden sich von denen ohne Myonenveto im wesentlichen durch die Abnahme des kontinuierlichen Anteil des Spektrums und die Reduktion der Annihilationslinie. Die Pb-Fluoreszenzlinien werden durch die Antikoinzidenzschaltung geringfügig unterdrückt, während die langlebigen Anregungen in Germanium und die Linien der primordialen Radionuklide davon unberührt bleiben. Für den LoAx-Detektor, dessen Eintrittsfenster für Photonen niedriger Energie transparenter ist als das des p-Typ Detektors, ist die starke Reduktion in dem Energiebereich unter 30 keV besonders auffällig.

4.3.3 Myonenkorrelierter Untergrund

Atmosphärische Myonen sind die Zerfallsprodukte geladener Pionen, die bei dem Auftreffen hochenergetischer Kerne auf die oberste Schicht der Atmosphäre gebildet werden. Am Entstehungsort wird das Spektrum der Myonen im wesentlichen durch die Energieverteilung der Pionen bestimmt. Das Spektrum wird beim Durchlaufen der Atmosphäre durch Ionisationsverluste, den Zerfall von Myonen und den Einfang negativer Myonen modifiziert. Der Energieverlust in der Atmosphäre erfolgt dabei, wie auch in Festkörpern, fast ausschließlich über Elektromagnetische Wechselwirkung, wozu Ionisation, Anregung, die Produktion von δ-Elektronen und zu einem kleinen Anteil Bremsstrahlung und Paarerzeugung gehören. In Festkörpern dissipiert der überwiegende Teil der Myonen seine Energie, bevor es zum Zerfall oder Einfang kommt. Beim Zerfall eines Myons teilen sich das Zerfallselektron und die Neutrinos die Energie von 106 MeV, wobei die Mittlere Energie der Elektronen bei etwa 40 MeV liegt [Hay69].

In [NCR87] ist ein Fluß von 1.71 $s^{-1}m^{-2}$ für Protonen, 63 $s^{-1}m^{-2}$ für Neutronen, 190 $s^{-1}m^{-2}$ für Myonen und 0.013 $s^{-1}m^{-2}$ für Pionen an der Erdoberfläche angegeben. Diese Werte sind jedoch

saisonalen Schwankungen unterworfen und daneben gilt es zu berücksichtigen, daß für einen entscheidenden Anteil neutroneninduzierter Ereignisse Myonen ursächlich sind.

Die Produktion von Neutronen in den Detektoren und deren Abschirmung läßt sich auf verschiedene Prozesse zurückführen:

- Einfang negativer, gestoppter Myonen in Pb,
- Photoproduktion aus Pb durch sekundäre Photonen und Elektronen,
- Spallation von Pb durch sekundäre Hadronen.

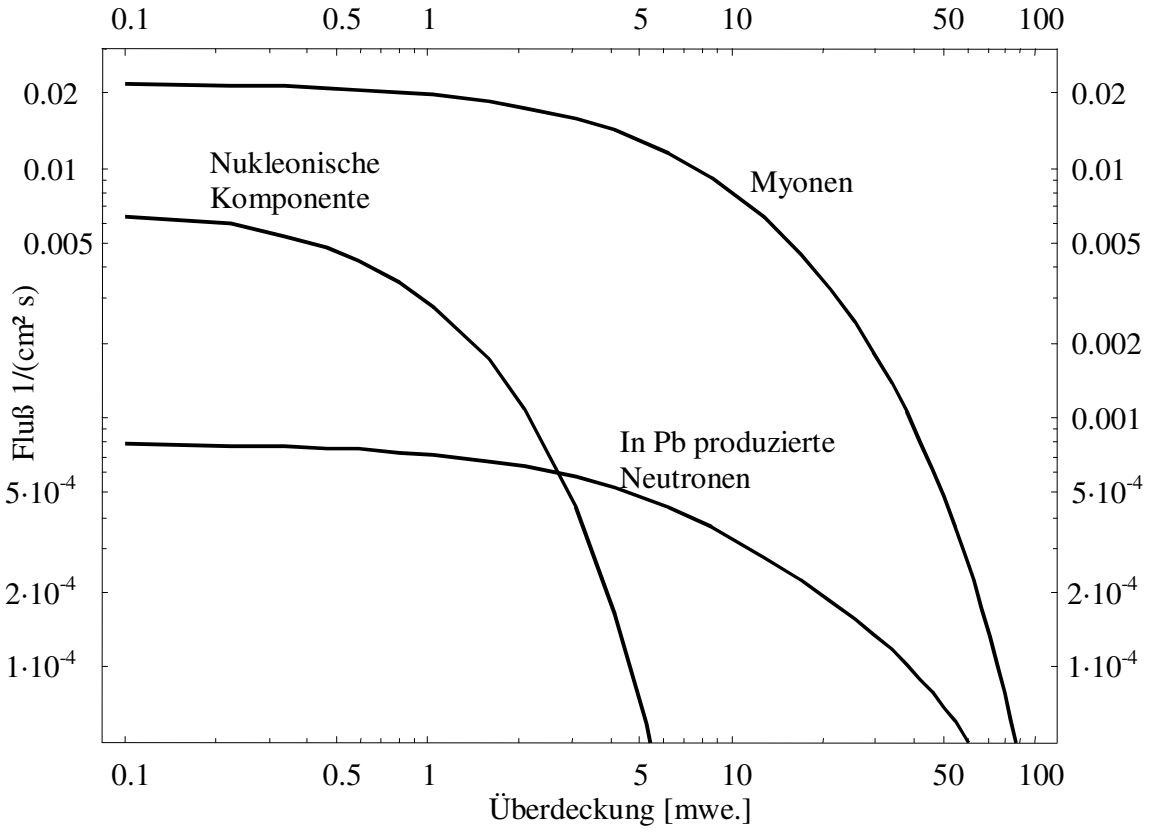

Abbildung 4.17: Tiefenabhängigkeit verschiedener Höhenstrahlungskomponenten. Aus [Heu96].

Durch den Einfang von μ^- in Blei werden schnelle Neutronen produziert, die in der Abschirmung nur unwesentlich moderiert werden. Der Anteil der durch Spallation über Sekundärprozesse erzeugten Neutronen hängt dabei vom Spektrum der Myonen ab. In den hier betrachteten Fällen ist dieser Anteil jedoch klein gegen den durch Einfang von μ^- produzierten. In Abbildung 4.17 ist der tiefenabhängige Fluß verschiedener Komponenten dargestellt, die in Germaniumdetektoren Untergrundereignisse erzeugen können. Vergleicht man die beiden Labors (2 mwe, 15 mwe) mit diesem Modell, kann man erwarten, daß der Fluß der Myonen auf etwa 0.3, der Fluß

der myonenproduzierten Neutronen auf etwa 0.25 und der Fluß der Hadronischen Komponente auf etwa 10^{-5} von einem Labor mit einer Überdeckung von 2 mwe zu einem Labor mit 15 mwe abfällt. In dem Labor mit geringer Überdeckung dominiert also der Fluß der Hadronischen Komponente, in einem Labor mit einer Überdeckung von 15 mwe der myonenproduzierter Neutronen, selbst unter der Annahme, daß in beiden Fällen Myonen mit Hilfe eines aktiven Vetos identifiziert werden können. Daneben sind auch Anregungen in der Bleiabschirmung, der Kupferabschirmung und dem Magnesiumkryostaten des Detektors zu beobachten.

Der elastische Streuquerschnitt für Neutronen einer Energie von einigen eV bis 5 MeV bewegt sich im Bereich von 5 barn bis 10 barn, was einer mittleren freien Weglänge von 3 cm bis 6 cm entspricht [The96], so daß schnelle Neutronen nur unwesentlich in der Bleiabschirmung moderiert werden und kaum meßbar zur thermischen Flußdichte in der Meßkammer beitragen. Das in Abbildung 4.18 dargestellte Spektrum gibt die Energieverteilung der Neutronen nach dem Einfang negativer Myonen in Blei wieder, bei dem im Mittel 1.5 Neutronen je eingefangenem Myon emittiert werden [Koz85, Had76, Mac65]. Die so produzierten Neutronen sind dann in (n,n‘) und (n,γ) Reaktionen im Detektor nachweisbar, wobei das Neutronenspektrum durch die den Detektor umgebende Bleiabschirmung kaum modifiziert wird.

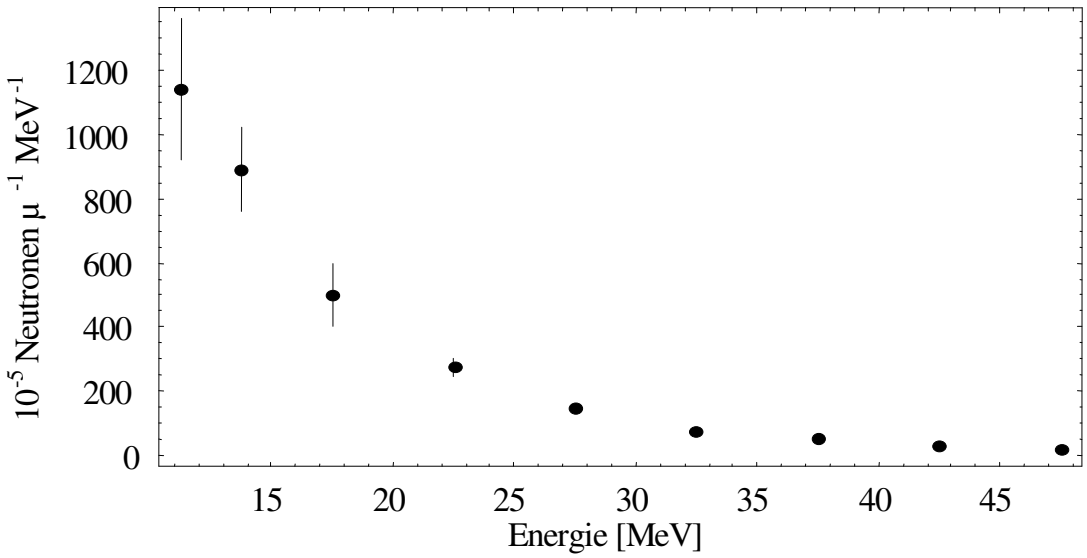

Abbildung 4.18: Spektrum von Neutronen, die über den μ^--Einfang an Pb produziert werden. Aus [Koz85].

Ein Teil der durch diese Neutronen in Germanium und der Abschirmung erzeugten Kernanregungen wird durch ein aktives Veto ebenfalls unterdrückt, da diese Anregungen noch innerhalb des Zeitfensters von 50 µs zerfallen, das ein Myon bei seinem Eintritt in das Vetosystem öffnet. Im Betrieb des Detektors ohne Veto sind diese kurzlebigen (n,n’)-Anregungen als breite, asymmetrische Linien im Spektrum erkennbar, da das inelastisch gestreute Neutron einen Teil seiner Energie im Detektor deponiert und das Ereignis somit zu einer Energie, über die der Kernanre-

gung verschiebt. Nicht unterdrücken lassen sich hingegen die langlebigen, metastabilen (n,n')-Anregungen von ^{72}Ge, ^{74}Ge, ^{76}Ge mit Halbwertszeiten zwischen 0.5 und 50 s.

Reaktion	^{74}Ge(n,γ)^{75}Ge	^{76}Ge(n,γ)^{77}Ge	^{70}Ge(n,γ)^{71}Ge	^{76}Ge(n,n')^{76}Ge*	^{206}Pb(n,n')^{206}Pb*, ^{207}Pb(n,2n) ^{206}Pb*
Energie	139.7 keV Rate [kg^{-1} d^{-1}]	159.7 keV Rate [kg^{-1} d^{-1}]	198.4 keV Rate [kg^{-1} d^{-1}]	562.8 keV Rate [kg^{-1} d^{-1}]	803.3 keV Rate [kg^{-1} d^{-1}]
Labor 2 mwe	92.1 ± 4.8	21.5 ± 3.7	135.8 ± 5.7	250.2 ± 6.4	65.1 ± 2.8
Labor 15 mwe	10.1 ± 2.4	2.4 ± 1.2	17.2 ± 4.0	17.0 ± 5.1	11.9 ± 2.2
Labor 15 mwe & Myonen-veto	10.0 ± 2.4	2.4 ± 1.2	17.0 ± 4.0	< 1.5	4.3 ± 0.6

Tabelle 4.12: Neutroneninduzierte Anregungen in Germanium und in der Bleiabschirmung der verwendeten Detektoren.

Detektorkonfiguration	511 keV Rate [kg^{-1} d^{-1}]
Labor 2 mwe	1162.3 ± 6.1
Labor 15 mwe	945.2 ± 14.1
Labor 15 mwe & Myonenveto	9.8 ± 1.4

Tabelle 4.13: Spezifische Ereignisrate der Annihilationsstrahlung in unterschiedlichen Detektorkonfigurationen des 150% p-Typ Detektors.

In Tabelle 4.12 sind die Raten einiger Anregungsprozesse zusammengefaßt. Ein quantitativer Vergleich dieser Raten macht deutlich, daß der für die (n,γ) Reaktionen verantwortliche Fluß im untergrundarmen Labor nur etwa 12% des im Labors mit geringer Überdeckung gemessenen beträgt. Dagegen ist der die Reaktion ^{76}Ge(n,n')^{76}Ge induzierende Fluß auf etwa 7% reduziert. Eine Gegenüberstellung der Datensätze mit und ohne Myonenveto zeigt deutlich, daß etwa 65% - 90% dieser kurzlebigen, myonenkorrelierten Ereignisse durch das Veto diskriminiert werden können. Das in Abbildung 4.15 dargestellte Spektrum zeigt darüber hinaus deutlich den mit dem Energieverlust der Myonen einhergehenden kontinuierlichen Untergrund, der vornehmlich auf δ-Elektronen zurückzuführen ist. Diese dissipieren ihre Energie über die Produktion von Brems-

strahlung, die zu Hauptkomponente des kontinuierlichen Spektrums führt, während die primäre Bremsstrahlung weniger als 3% zu deren Amplitude beiträgt [Voj95].

Die Annihilation von e^+-e^- ist ein weiterer Prozeß, der im wesentlichen mit Myonen korreliert ist. Mindestens 98.9% der 511 keV Quanten lassen sich Myonen zuordnen; die verbleibende Rate könnte auf ein Leck im Veto, primordiale Radionuklide oder auf hochenergetische Photonen zurückzuführen sein, die die Bleiabschirmung durchdringen und im Inneren des Detektors zur Paarerzeugung führen. Die myonenkorrelierten Annihilationsquanten stammen dabei hauptsächlich aus der direkten Paarerzeugung durch Myonen, wobei deren Zerfall und deren Bremsstrahlung ebenfalls einen kleinen Beitrag dazu leisten.

4.3.4 Untergrund primordialer Radionuklide

Primordiale Radionuklide erzeugen in den beschriebenen Halbleiterdetektoren Untergrund durch den Zerfall von

- Radon und seinen Zerfallsprodukten,
- im Blei enthaltenen ^{210}Pb und ^{210}Bi, sowie anderen darin enthaltenen primordialen Radionukliden,
- ^{40}K und ^{208}Tl außerhalb der Abschirmung des Detektors,
- ^{40}K in der Meßkammer.

Die Aktivität von ^{222}Rn und dessen Zerfallsprodukten wird durch den Austausch der Raumluft gegen Stickstoff in der Meßkammer mit einer Rate von etwa 2 l/min, um mindestens drei Größenordnungen reduziert, wobei die Abschirmungen unter leichtem Überdruck gehalten werden.

^{210}Pb, das als Zerfallsprodukt von Uran in der Erzlagerstätte vorhanden ist und bei der Produktion von Blei in die Matrix eingebracht wird, dürfte homogen in der Abschirmung verteilt sein. Bei seinem β^--Zerfall wird mit einer Wahrscheinlichkeit von 4.25% Gammastrahlung einer Energie von 46.5 keV emittiert. Gleichzeitig wird bei diesem Zerfall Bi-Röntgenstrahlung im Bereich von 82 keV – 87 keV emittiert. Die Rate der detektierten Untergrundereignisse hängt in diesem Bereich aufgrund der kurzen Absorptionslängen dieser Strahlung im wesentlichen von der Konfiguration der innersten Abschirmung, dem Kryostaten und dem Eintrittsfenster ab. Der β^--Zerfall von ^{210}Bi erzeugt mit einem Endpunkt von 1163 keV einen kontinuierlichen Bremsstrahlungsuntergrund. Der Endpunkt liegt somit unter der Schwelle für die Paarproduktion von e^+-e^-, so daß der Zerfall von ^{210}Bi nicht zum Annihilationslinie beiträgt.

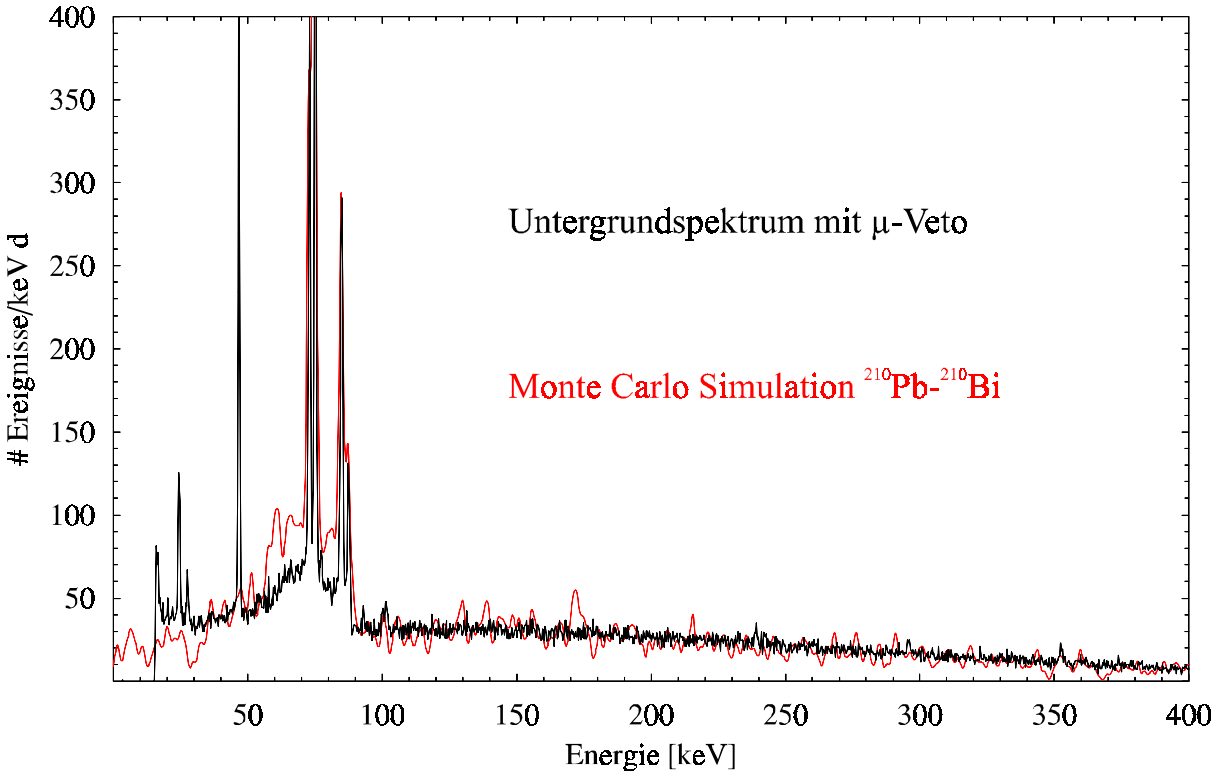

Abbildung 4.19: Untergrundspektrum im Bereich zwischen 15 keV und 400 keV, verglichen mit dem Mittels Monte Carlo Simulation (EGS4) berechneten Bremsstrahlungs- und Fluoreszenzspektrum von ^{210}Pb und ^{210}Bi.

Die in Abbildung 4.15 und Abbildung 4.16 dargestellten Spektren der Detektoren zeigen in der neuen Konfiguration, trotz der verbesserten Bleiabschirmung, ausgeprägte ^{210}Pb Linien, da die Kupferabschirmungen im Inneren der Meßkammern entfernt wurden. Der verbleibende Untergrund zeigt im Energiebereich bis etwa 400 keV eine gute Übereinstimmung mit dem Bremsstrahlunsspektrum des ^{210}Pb Tochternuklids ^{210}Bi, das sich mit einer Halbwertszeit von 5 Tagen im Zerfallsgleichgewicht mit ^{210}Pb befindet. Die Übereinstimmung eines gemessenen Spektrums mit dem simulierten Spektrum ist dabei sowohl für die spektrale Form des Bremsstrahlungsspektrums als auch für die Intensität der Pb-Fluoreszenzlinien auffällig. Die Emission der 46.5 keV Linie, die bei dem ^{210}Pb Zerfall emittiert wird, ist für die Simulation jedoch nicht berücksichtigt. Eine quantitative Abschätzung ergibt für das simulierte Spektrum eine ^{210}Pb-Aktivität von etwa 26 Bq/kg-Pb, die im Bereich der gemessenen (23.2 ± 2.3) Bq/kg-Pb liegt.

Die Nuklide ^{40}K und ^{208}Tl nehmen dabei unter den primordialen eine Sonderstellung ein, da bei deren Zerfall Photonen von 1.46 MeV und 2.614 MeV emittiert werden, die sich im Vergleich zu den Photonen anderer primordialer Radionuklide, nur schwer abschirmen lassen. Neben den die Abschirmung durchdringenden Photonen bilden die in der Abschirmung gestreuten einen comptonartigen Untergrund mit einem Maximum nahe der jeweiligen Comptonkante, die jedoch wegen der geringen Anzahl solcher Ereignisse nicht unmittelbar als solche erkennbar ist.

Detektor	Abschirmung	50-500 keV Zählrate [cpm/kg]	500-1000 keV Zählrate [cpm/kg]	1000-2000 keV Zählrate [cpm/kg]
3282 g Labor 2 mwe	100 mm Pb 5 mm Cu	47.12	15.46	9.49
3282 g Labor 15 mwe	100 mm Pb 50 mm Pb	11.24	5.02	3.32
3282 g Labor 15 mwe & Myonenveto	100 mm Pb 50 mm Pb	3.79	0.45	0.21
594 g Labor 2 mwe	100 mm Pb 5 mm Cu	106.64	22.49	13.43
594 g Labor 15 mwe & Myonenveto	100 mm Pb 50 mm Pb	13.18	0.96	0.49

Abbildung 4.20: Ereignisraten in verschiedenen Energiebereichen der verwendeten Detektoren in unterschiedlichen Konfigurationen.

4.3.5 Untergrund und Nachweisgrenzen anthropogener Radionuklide

In der Umwelt vorkommende Spaltprodukte wie ^{137}Cs, ^{125}Sb oder Nuklide wie ^{60}Co können eine weitere Quelle von Untergrund in Halbleiterdetektoren sein. In der Bleiabschirmung der ursprünglichen Konfiguration war eine geringe Kontamination von ^{125}Sb detektierbar, das über das dem Blei zum Härten zugesetzte Antimon in die Abschirmung gelangt war.

Die Nachweisgrenzen (90% C.L.) mit der verbesserten Abschirmung liegen, für den 594 g Detektor mit Myonenveto, bei 0.8 Ereignissen/Tag für die 661.7 keV Linie von ^{137}Cs und bei 0.4 Ereignissen/Tag für die 1173 keV Linie von ^{60}Co. Für den 3282 g p-Typ Detektor liegen diese Nachweisgrenzen bei 2.2 Ereignissen/Tag für die ^{137}Cs Linie und bei 2.6 Ereignissen/Tag für die 1173 keV Linie von ^{60}Co. Für den günstigsten Fall, einer punktförmig angenommenen Quelle, läßt sich damit eine Aktivität von 0.9 mBq ^{137}Cs bzw. 1.2 mBq ^{60}Co bestimmen.

4.4 Anti-Compton-Detektor

Für die bei den Messungen verwendeten Germaniumdetektoren stellt der durch Compton-Streuung von Photonen hervorgerufene Untergrund einen wesentlichen Beitrag dar. Dabei wird ein von der Probe emittiertes Photon über Compton-Streuung aus dem Germaniumkristall gestreut, wobei nur die auf das Elektron übertragene Energie im Detektor nachgewiesen wird. Dies führt zu dem Comptonuntergrund, der vor allem für den Nachweis von Photonen mit kleinerer Energie als der einer Störaktivität hinderlich ist.

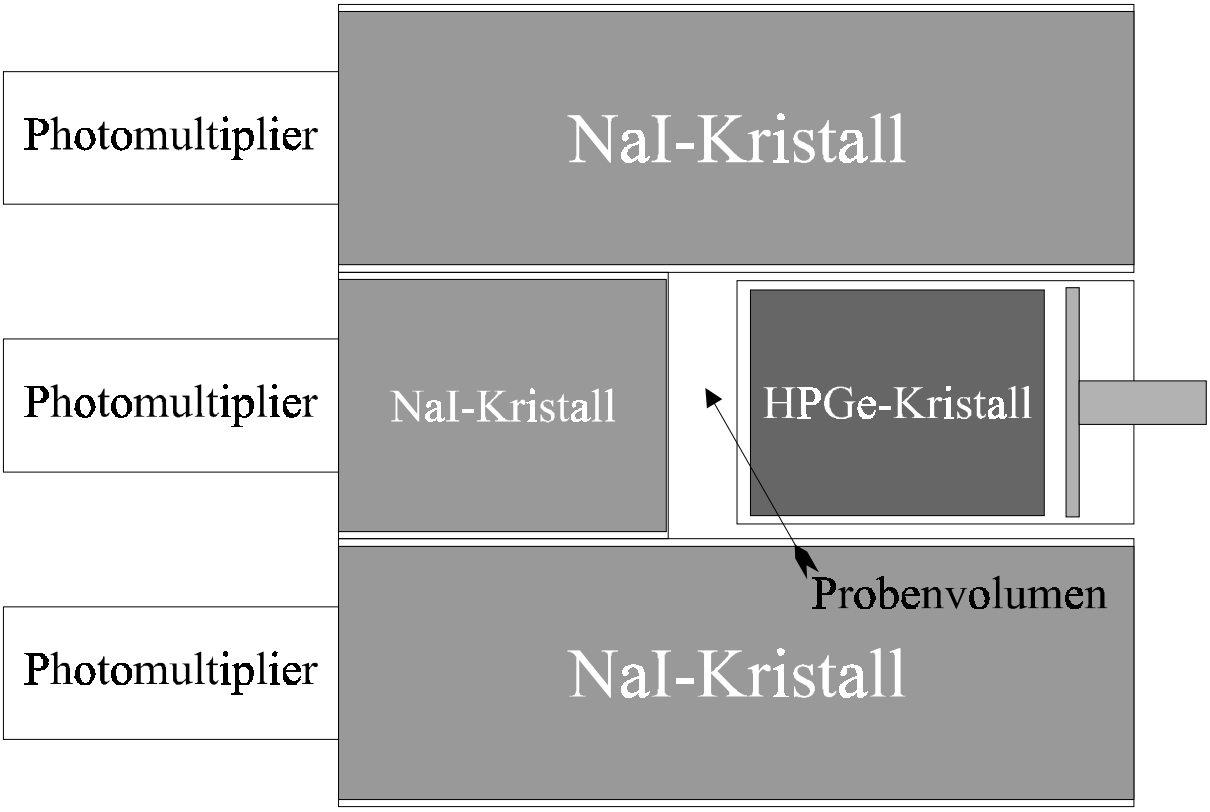

Abbildung 4.21: Schematische Zeichnung des NaI-Anti-Compton-Detektors. Der NaI-Kristall besitzt einen Außendurchmesser von 305 mm, bei einer Länge von 300 mm und einem Innendurchmesser von 132 mm.

Die Form des Compton-Spektrums hängt dabei wesentlich von der Geometrie der Quelle, der Geometrie des Detektors und der Energie der von der Störaktivität emittierten Photonen ab. Das Spektrum ergibt sich aus der Faltung aller möglichen Streuwinkel mit dem differentiellen Wirkungsquerschnitt $\frac{\partial\sigma}{\partial\Omega}$, der wiederum eine Funktion der Energie ist. Umgibt man den Halbleiterdetektor mit einem weiteren Detektor, in dem sich die gestreuten Photonen nachweisen lassen, kann man einen großen Anteil des Compton-Untergrundes aktiv unterdrücken. Der Nachweis

der Photonen erfolgt in einem NaI-Detektor, der hohe Lichtausbeute mit niedriger Eigenaktivität vereint. Der NaI-Detektor besteht dabei aus einem zylindrischen NaI-Ring mit einer Bohrung, in die der Ge-Detektor eingepaßt ist (Abbildung 4.21). Die dem Ge-Detektor gegenüberliegende Öffnung der Bohrung kann mit einem NaI-Detektor verschlossen werden, so daß eine Probe vollständig von den Detektoren umschlossen wird. Dabei ist man bestrebt, die Absorption von Photonen in Totschichten des gesamten Systems so gering wie möglich zu halten und den Anti-Compton-Detektor bei einer niedrigen Energieschwelle zu betreiben. Aus diesem Grunde sind sämtliche die Probe umgebenden Grenzflächen aus möglichst dünnem Aluminium gefertigt. Als Kompromiß zwischen Absorption und mechanischer Stabilität wurden die Eintrittsfenster des Anti-Compton-Detektors aus 0.8 mm dünnem Reinstaluminium gefertigt. Verlustprozesse von Photonen, die zu einer unvollständigen Energiedeposition im Halbleiterdetektor führen und über den Antikoinzidenzdetektor nicht nachgewiesen werden können sind:

- Absorption im Eintrittsfenster des Halbleiterdetektors,
- Absorption im NaI-Eintrittsfenster,
- Comptonstreuung im Halbleiterdetektor mit Energiedeposition im NaI-Detektor unter der detektierbaren Energieschwelle,
- Comptonstreuung in Eintrittsfenstern oder Totschichten.

Diese Prozesse sind für die erreichbare Unterdrückung limitierend. Wie aus dem Vergleich verschiedener Spektren hervorgeht, ist das Verhältnis von Linienfläche zu Comptonuntergrund für große Halbleiterdetektoren besser als für kleine Halbleiterdetektoren, da erstere ein günstigeres Verhältnis von streuendem Randbereich zu aktiven Detektionsvolumen haben. Neben einer hohen Effizienz galt der Eigenaktiviät der verwendeten Komponenten ein besonderes Augenmerk. Die Eintrittsfenster der NaI-Detektoren sind aus klunterfreiem Reinstaluminium hergestellt, während die mechanische Struktur der Außenseite aus Elektrolytkupfer gefertigt ist. Die Detektoren werden mittels aktivitätsarmer Photomultiplier ausgelesen, die optisch über einen Lichtleiter aus Quarz an die NaI-Kristalle gekoppelt sind.

Die Datenaufnahme des Meßplatzes ist auf unterschiedliche Meßmodi ausgelegt, die dem Nachweis verschiedener Isotope und Zählraten angepaßt ist. Die drei unabhängigen Detektoren lassen sich sinnvoller Weise in drei Modi betreiben, wobei mit jedem der Detektoren ein Pulshöhenspektrum bei einer Ereignisrate bis $10^4\ s^{-1}$ unter folgenden Koinzidenzbedingungen aufgenommen werden kann:

- Germaniumdetektor, Ringdetektor (Antikoinzidenz), Zentraler NaI-Detektor (Antikoinzidenz),
- Germaniumdetektor , Ringdetektor (Antikoinzidenz), Zentraler NaI-Detektor (Koinzidenz),
- Germaniumdetektor, Ringdetektor (Koinzidenz), Zentraler NaI-Detektor (Koinzidenz).

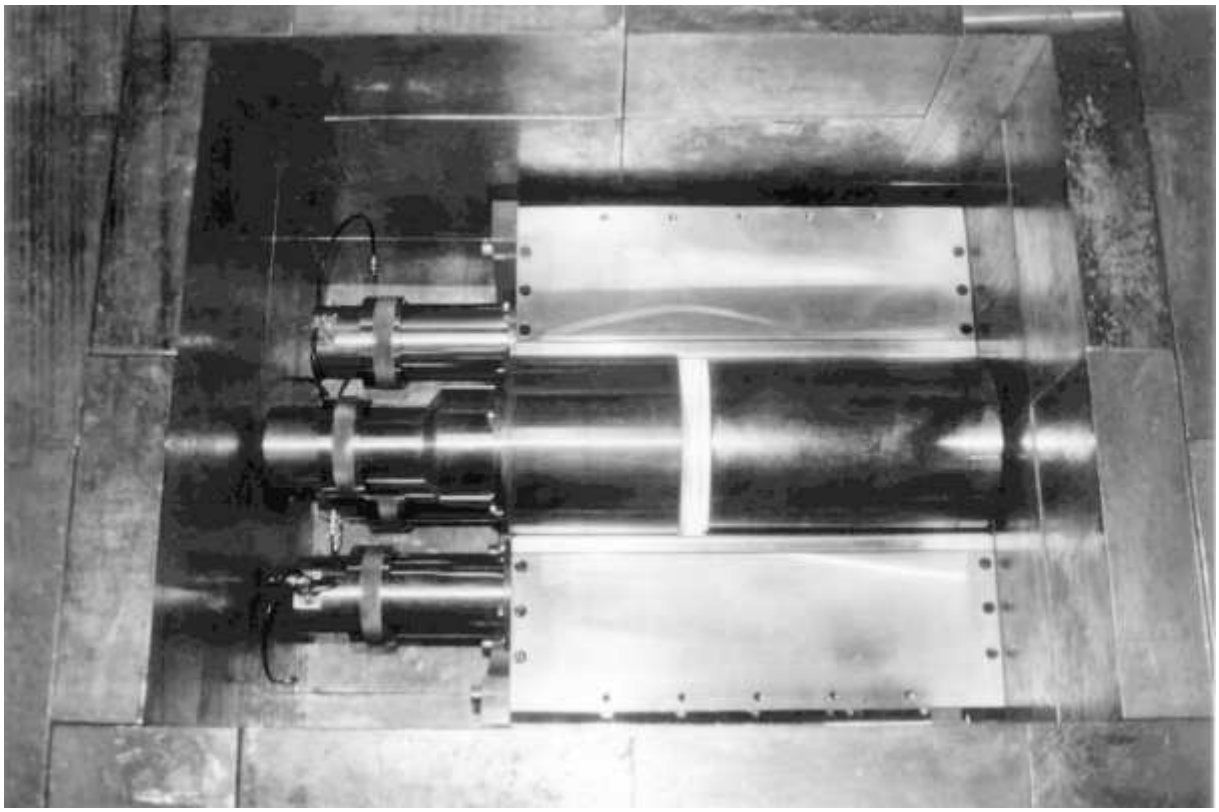

Abbildung 4.22: Anti-Compton-Detektor in geöffnetem Zustand. Auf der linken Seite ist der NaI-Detektor, auf der rechten Seite der Germanium Detektor sichtbar.

Daneben ist der Meßplatz mit einer Einzelereignisauslese ausgestattet, so daß jedes in einem der Detektoren nachgewiesene Photon separat erfaßt wird. Dies erlaubt es, nach Beendigung der Messung die aufgenommenen Daten nach beliebigen Koinzidenz- und Antikoinzidenzbedingungen auszuwerten, wobei zusätzlich die Energie jedes der nachgewiesenen Ereignisse berücksichtigt werden kann. Dadurch kann die Signatur für jede nachzuweisende Aktivität verbessert werden, da zum einen Comptonereignisse diskriminiert, zum anderen γ-γ-Korrelationen erfaßt werden können. Für die quantitative Bestimmung der Aktivität ist es, nach der Selektion der Ereignisse, sinnvoll, den Ge-Detektor als Detektor mit der besten Energieauflösung heranzuziehen. Betreibt man die beiden axial angeordneten Detektoren in Koinzidenz und den Ringdetektor in Antikoinzidenz, so hat dies den Vorteil, daß der Ringdetektor den Comptonuntergrund der beiden anderen Detektoren unterdrückt. Die Nachweiseffizienz der genannten Anordnungen läßt sich dabei für unterschiedliche Ereignisgruppen mit einem bekannten Maß der zu messenden Aktivität kalibrieren.

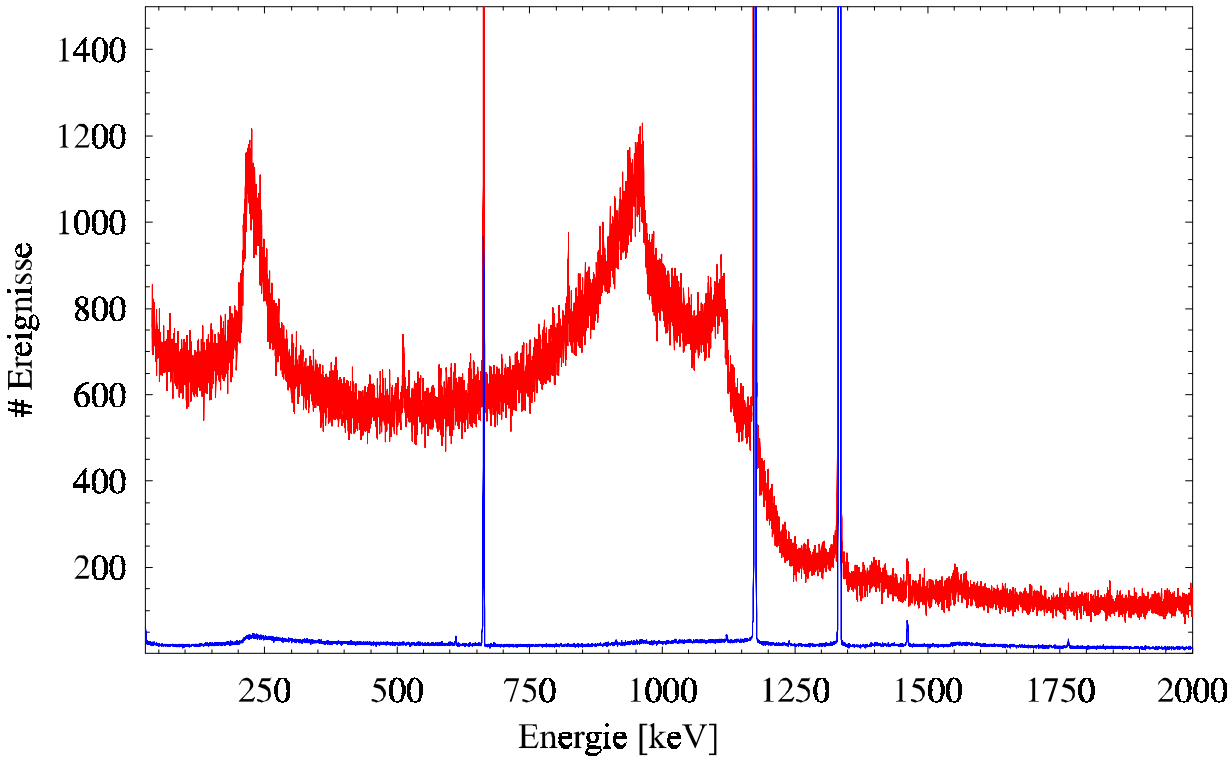

Abbildung 4.23: Der Comptonuntergrund einer ^{60}Co-Quelle aufgenommen mit dem 150% p-Typ Detektor. Die Spektren sind, auf dieselbe Meßzeit normiert, ohne Koinzidezbedingung und im Antikoinzidenzmodus aufgenommen. Bei 661.7 keV ist die ^{137}Cs-Aktivität der Quelle nachweisbar.

Für den Nachweis von ^{239}Np bietet dies die Möglichkeit, die Korrelation der 106 keV γ-Quanten mit den 99 keV und 104 keV Röntgenquanten von ^{239}Pu auszunutzen. Diese Zerfallssignatur kann dadurch über die in den Detektoren deponierte Energie von anderen interferierenden Nukliden diskriminiert werden, selbst wenn diese über die Emission mehrerer γ-Quanten zerfallen und in dem selben Koinzidenzkanal nachzuweisen sind. In der Praxis ist dies für den Nachweis von ^{239}Np in Kunststoffen und organischen Feststoffen von Bedeutung, die häufig ^{82}Br oder ^{24}Na als interferierende Radionuklide enthalten, deren Zerfallsprodukte über γ-γ-Kaskaden abregen.

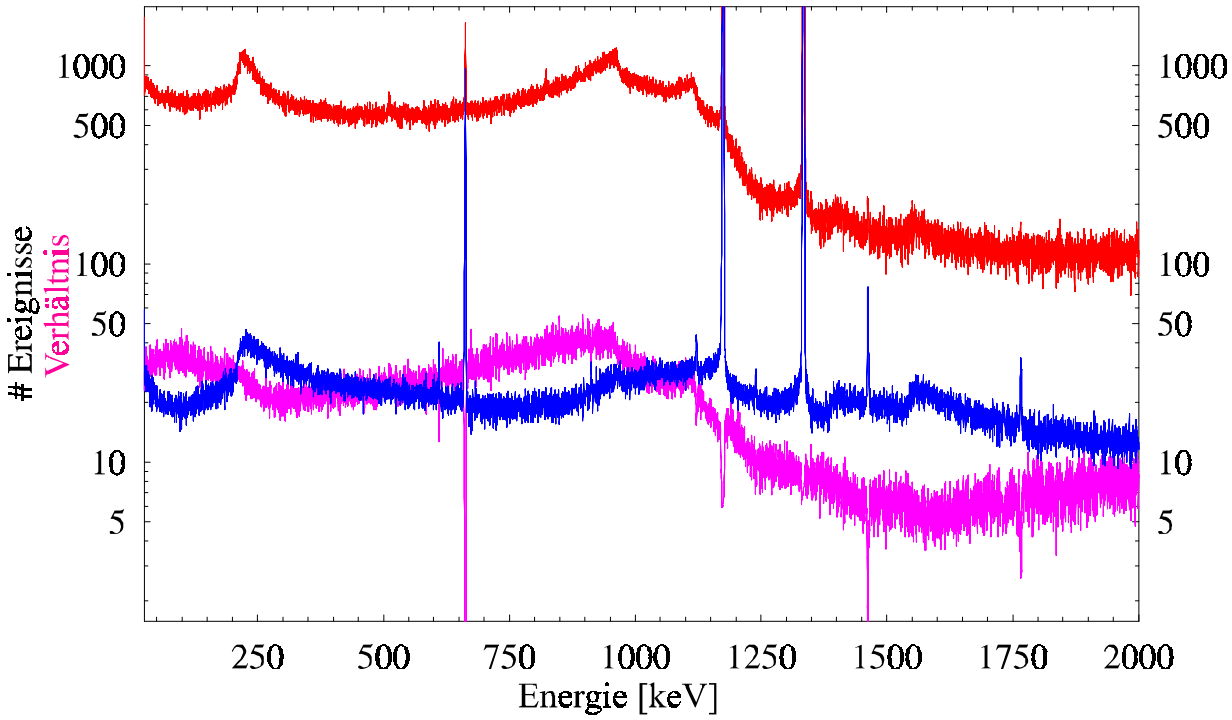

Abbildung 4.24: Logarithmische Darstellung des Comptonspektrums einer ^{60}Co Quelle. Die Spektren sind, auf dieselbe Meßzeit normiert, ohne Koinzidezbedingung und im Antikoinzidenzmodus aufgenommen. Daneben ist das Verhältnis des Spektrums ohne Koinzidenzbedingung zu dem im Antikoinzidenzmodus aufgenommenen Spektrum dargestellt.

In Abbildung 4.23 und Abbildung 4.24 ist der Comptonuntergrund einer ^{60}Co-Quelle dargestellt, die eine geringe Kontamination von ^{137}Cs enthält und im Antikoinzidenzmodus deutlich erkennbar ist. Der Comptonuntergrund der ^{60}Co Aktivität läßt sich in dem Antikoinzidenz-Meßmodus zwischen 200 keV und 1.2 MeV um einen Faktor 30 bis 50 reduzieren.

5 Ergebnisse der Analysen

In diesem Kapitel sind die Ergebnisse einiger für BOREXINO wesentlichen Proben zusammengestellt. Der Leser sei an dieser Stelle noch einmal darauf hingewiesen, daß sich die angegebenen Vertrauensbereiche auf die 1σ Unsicherheit der Resultate beziehen, wie dies in der Physik üblich ist[13]. Die Nachweisgrenzen sind für ein Vertrauensniveau von 90% angezeigt.

5.1 Aluminiumproben

Proben von Aluminium und Reinstaluminium wurden als mögliche Werkstoffe für optische Reflektoren untersucht. Die Proben einer Masse von etwa 0.2 g wurden dazu einem in Abschnitt 4.1.5.1 [Egg87] beschriebenen radiochemischen Aufschluß unterzogen. Die Proben werden hierfür in 10 ml konzentrierter Salzsäure unter dem Zusatz von 1 ml Flußsäure gelöst. Die in der Lösung enthaltenen Radionuklide werden anschließend in unterschiedliche Gruppen getrennt. Nach der Adsorption von ^{24}Na an einer HAP-Säule, das das interferierende Nuklid mit der größten Aktivität ist, werden Au, Cd, Co, Fe, Ga, W an einen Ionenaustauscher adsorbiert, während die anderen bestimmten Nuklide in dem Eluat nachgewiesen wurden.

Die Reinstaluminiumprobe der Vereinigten Aluminiumwerke Bonn wurde den im Zertifikat angegeben Konzentrationen gegenübergestellt, die in mittels OES und GDMS bestimmt wurden. Darüber hinaus wurde die Aktivität von VAW Highpural™ Aluminium per Gammaspektroskopie direkt gemessen, da das Zerfallsgleichgewicht der Uran und Thoriumreihe durch den Herstellungsprozeß in aller Regel gebrochen wird. Die hier untersuchte Probe zeigt die üblicherweise zu beobachtende Unterhäufigkeit zumindest für ^{228}Ra aus der Thorium Zerfallsreihe. Die Konzentration von ^{238}U ist um eine Größenordnung niedriger als die von ^{232}Th, ein Ergebnis, das vielfach für reines Aluminium zutrifft. Die Resultate von GDMS und RNAA sind dabei in guter Übereinstimmung.

[13] In der Analytik hat sich vielfach die Angabe von Vertrauensintervallen für ein Vertrauensniveau von 90% eingebürgert, die einer Unsicherheit von 1.68σ entspricht.

Element	Aluminium Ohne Spezifikation RNAA [g/g]	VAW Highpural™ Batch 8878 RNAA [g/g]	VAW Highpural™ Batch 8878 OES/GDMS [g/g]	VAW Highpural™ Batch 8878 γ-Spektroskopie [Lau98a] [g/g]
Au	-	$(3.88 \pm 0.6)\cdot10^{-9}$	-	
Cd	$< 2.0\cdot10^{-8}$	$< 1.03\cdot10^{-9}$	-	
Co	-	$(3.98 \pm 0.7)\cdot10^{-9}$	-	
Cr	$(3.30 \pm 0.5)\cdot10^{-6}$	$(3.01 \pm 0.6)\cdot10^{-8}$	-	
Cu	-	-	$4.99\cdot10^{-7}$ (OES)	
Fe	-	$(4.75 \pm 1.0)\cdot10^{-7}$	$< 5\cdot10^{-6}$ (OES)	
Ga	-	$(1.05 \pm 0.2)\cdot10^{-9}$	-	
In	$< 6.1\cdot10^{-7}$	$< 3.45\cdot10^{-9}$	-	
K	$(4.6 \pm 1.0)\cdot10^{-7}$	$< 2.52\cdot10^{-9}$	$< 1\cdot10^{-6}$ (GDMS)	
La	$(2.0 \pm 0.4)\cdot10^{-7}$	$(7.35 \pm 1.5)\cdot10^{-9}$	-	
Lu	$< 2.4\cdot10^{-9}$	$< 4.83\cdot10^{-9}$	-	
Rb	$< 2.3\cdot10^{-7}$	$< 5.59\cdot10^{-9}$	-	
Sc	$(3.6 \pm 0.7)\cdot10^{-8}$	$(1.62 \pm 0.3)\cdot10^{-9}$	-	
^{232}Th	$(6.95 \pm 1.6)\cdot10^{-8}$	$(1.15 \pm 0.2)\cdot10^{-8}$	$1.46\cdot10^{-8}$ (GDMS)	
^{228}Ra				$(2.93 \pm 0.3)\cdot10^{-9}$
^{228}Th				$(1.14\pm 0.1)\cdot10^{-8}$
^{238}U	$(3.0 \pm 0.5)\cdot10^{-7}$	$(1.18 \pm 0.3)\cdot10^{-9}$	$2\cdot10^{-9}$ (GDMS)	
^{226}Ra				$< 3.11\cdot10^{-9}$
W	-	$(6.02 \pm 1.3)\cdot10^{-9}$	-	
Zr	$(1.8 \pm 0.4)\cdot10^{-5}$	$(6.73 \pm 1.5)\cdot10^{-8}$	-	

Tabelle 5.1: Analysedaten für Aluminium. Die Konzentration von ^{228}Ra und ^{228}Th ist in die Gleichgewichtskonzentration von ^{232}Th umgerechnet, die von ^{226}Ra in die von ^{238}U.

5.2 Kunststoffproben

Element	EMS G21 [g/g]	Trogamid CX 7323 [g/g]	Nyltech ADS40T [g/g]	Dupont Selar PA 3426 [g/g]	Dupont Selar PA 3426 [g/g]	Trogamid T5000 [g/g]
Au	$< 2.41 \cdot 10^{-12}$	$5.98 \cdot 10^{-12}$	$6.40 \cdot 10^{-12}$	$5.26 \cdot 10^{-12}$	$1.96 \cdot 10^{-12}$	$< 4.18 \cdot 10^{-13}$
Cd	$< 4.20 \cdot 10^{-9}$	$< 3.51 \cdot 10^{-9}$	$< 4.50 \cdot 10^{-10}$	$< 4.00 \cdot 10^{-9}$	$< 3.53 \cdot 10^{-10}$	$< 1.46 \cdot 10^{-9}$
Cr	$1.27 \cdot 10^{-7}$	$6.89 \cdot 10^{-8}$	$2.50 \cdot 10^{-9}$	$6.47 \cdot 10^{-7}$	$7.10 \cdot 10^{-7}$	$7.45 \cdot 10^{-8}$
Cs	-	$2.23 \cdot 10^{-6}$	-	-	-	-
In	$< 1.70 \cdot 10^{-8}$	$< 1.42 \cdot 10^{-8}$	$< 7.69 \cdot 10^{-10}$	$< 1.50 \cdot 10^{-8}$	$< 7.94 \cdot 10^{-10}$	$< 5.03 \cdot 10^{-9}$
K	$7.66 \cdot 10^{-8}$	$1.74 \cdot 10^{-8}$	$1.61 \cdot 10^{-9}$	$4.80 \cdot 10^{-8}$	$4.93 \cdot 10^{-8}$	$2.50 \cdot 10^{-8}$
La	$< 2.45 \cdot 10^{-11}$	$< 1.37 \cdot 10^{-11}$	$< 1.16 \cdot 10^{-12}$	$< 5.50 \cdot 10^{-11}$	$2.64 \cdot 10^{-11}$	$< 1.00 \cdot 10^{-11}$
Lu	$< 5.47 \cdot 10^{-11}$	$< 4.74 \cdot 10^{-11}$	$< 2.73 \cdot 10^{-12}$	$< 4.90 \cdot 10^{-11}$	$< 2.94 \cdot 10^{-12}$	$< 2.11 \cdot 10^{-11}$
Mn	$1.68 \cdot 10^{-7}$	$7.53 \cdot 10^{-9}$	$5.18 \cdot 10^{-9}$	$9.68 \cdot 10^{-8}$	$9.70 \cdot 10^{-8}$	$3.53 \cdot 10^{-6}$
Na	$2.43 \cdot 10^{-7}$	$2.71 \cdot 10^{-7}$	$7.25 \cdot 10^{-9}$	$2.31 \cdot 10^{-10}$	$2.31 \cdot 10^{-10}$	$2.31 \cdot 10^{-7}$
Rb	$< 2.00 \cdot 10^{-8}$	$< 2.49 \cdot 10^{-7}$	$< 1.44 \cdot 10^{-9}$	$< 1.36 \cdot 10^{-8}$	$< 1.42 \cdot 10^{-9}$	$2.05 \cdot 10^{-7}$
Sb	$3.43 \cdot 10^{-10}$	$6.80 \cdot 10^{-9}$	$3.40 \cdot 10^{-10}$	$3.08 \cdot 10^{-9}$	$3.29 \cdot 10^{-9}$	$6.21 \cdot 10^{-10}$
Th	$< 7.28 \cdot 10^{-10}$	$< 5.07 \cdot 10^{-9}$	$< 3.30 \cdot 10^{-11}$	$< 9.90 \cdot 10^{-10}$	$< 2.94 \cdot 10^{-11}$	$< 1.94 \cdot 10^{-10}$
U	$< 1.52 \cdot 10^{-10}$	$< 1.04 \cdot 10^{-10}$	$< 5.50 \cdot 10^{-12}$	$< 1.80 \cdot 10^{-10}$	$< 2.36 \cdot 10^{-11}$	$< 4.60 \cdot 10^{-11}$
W	$2.60 \cdot 10^{-10}$	$2.95 \cdot 10^{-10}$	$8.00 \cdot 10^{-12}$	$1.45 \cdot 10^{-9}$	$1.07 \cdot 10^{-9}$	$5.55 \cdot 10^{-10}$
Zn	$< 4.57 \cdot 10^{-9}$	$5.73 \cdot 10^{-8}$	$2.17 \cdot 10^{-9}$	$2.72 \cdot 10^{-8}$	$2.72 \cdot 10^{-8}$	$1.72 \cdot 10^{-8}$

Tabelle 5.2: Analyseergebnisse von Nylongranulat. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. Die relative Unsicherheit ist kleiner als 20%.

Die für BOREXINO analysierten Polymere umfassen unterschiedliche Typen von Nylon, sowie VESPEL und PEEK. In Tabelle 3.5 sind die für den Nylonballon erforderlichen Grenzen angegeben, die unter der Prämisse gültig sind, daß das innerhalb des Nylons gebildete Radon nicht in Flüssigszintillator diffundiert. Für die verschiedenen Proben ergeben sich wegen der verbleibenden Restaktivität nach dem Aufschluß unterschiedliche Grenzen.

Nimmt man einmal an, daß der Nylonkörper bei einer Foliendicke von 250 μm eine Masse von etwa 100 kg hat, so bedeutet dies, daß für Uran und Thorium eine Konzentration von 10^{-10} g/g noch tolerabel ist. Unter realistischen Bedingungen muß man allerdings noch die Diffusion des innerhalb der Nylonfolie gebildeten Edelgases Radon in das flüssigszintillatorgefüllte Detektionsvolumen des Detektors berücksichtigen. Die Grenze für Uran liegt unter diesen Bedingungen, abhängig von den Diffusionseigenschaften des Nylons, bei etwa 10^{-12} g/g.

In Tabelle 5.2 sind die Analyseergebnisse für Nylongranulat angegeben, welches das Ausgangsmaterial für gezogene Nylonfolien ist. Für Lanthan und Kalium erfüllen alle der untersuchten Granulate die Erfordernisse während die Nachweisgrenzen für Uran und Thorium über der konservativen Grenze von 10^{-12} g/g liegen. Der untersuchte Nylonfilm des Herstellers Airtech scheidet für die Verwendung in BOREXINO mit einem Kaliumgehalt von $3.7 \cdot 10^{-4}$ g/g ohnehin aus. Bemerkt sei, daß die Resultate der durchgeführten Analyse blindwertfrei sind, da die Proben vor der Bestrahlung unter Reinraumbedingungen in LD-Polyethylenfolie verschweißt und die Schnittflächen der Folienproben nach der Bestrahlung entfernt wurden.

Element	Airtech WC6500C Extruded film [g/g]
Au	$1.57 \cdot 10^{-7}$
Cd	$1.08 \cdot 10^{-8}$
Cr	$2.75 \cdot 10^{-7}$
In	$< 2.52 \cdot 10^{-8}$
K	$3.70 \cdot 10^{-4}$
La	$4.23 \cdot 10^{-10}$
Lu	$2.71 \cdot 10^{-10}$
Na	$4.59 \cdot 10^{-7}$
Rb	$< 2 \cdot 10^{-8}$
Sb	$4.92 \cdot 10^{-9}$
Th	$< 2.4 \cdot 10^{-10}$
U	$< 1.46 \cdot 10^{-10}$
W	$4.5 \cdot 10^{-9}$
Zn	$5.54 \cdot 10^{-7}$

Tabelle 5.3: Analyseergebnisse von Nylonfolie. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. Die relative Unsicherheit ist kleiner als 20%.

Für die untersuchten Nylonfäden, die zur Fixierung des Nylonballons in BOREXINO verwendet werden sollen, sind ebenfalls die in Tabelle 3.5 aufgeführten Grenzen gültig, die sich auf die gesamte in 425 cm vom Mittelpunkt des Detektors befindliche Masse an Strukturmaterialien bezieht. Die für diese Materialien geltenden Grenzen hängen dadurch von der Masse des verwendeten Materials ab, sollten jedoch nicht wesentlich über denjenigen für die verwendete Nylonfolie liegen. Haltefäden aus Kevlar wurden in diesem Zusammenhang ebenfalls untersucht, kommen jedoch für die Verwendung in dem Experiment mit einer Kaliumkonzentration von 10^{-4} g/g – 10^{-3} g/g nicht in Frage.

Die Kunststoffe VESPEL und PEEK wurden ebenfalls auf die Konzentration primordialer Radionuklide mittels INAA untersucht. Für BOREXINO könnten diese Kunststoffe in dem äußeren Bereich des Detektors verwendet werden. Für die Kristallhalterungen in untergrundarmen Reinstgermaniumdetektoren liegt die Kaliumkonzentration mit $3 \cdot 10^{-8}$ g/g-$3 \cdot 10^{-7}$ g/g in einem Bereich, dessen Aktivität in dem Rahmen der Grenzen liegt, die für Uran und Thorium erreicht werden konnten. Für ββ-Experimente und Detektoren, die für die Suche nach Dunkler Materie konzipiert sind, kann der Gehalt an Kalium dennoch ein Problem darstellen, da dieser eine Aktivität von 40 μBq/g – 400 μBq/g bedingt und die Anforderungen für einige der geplanten Detektoren zwei Größenordnungen schärfer sind [Hel97].

Element	VESPEL [g/g]	PEEK [g/g]	Berkley Nylon Monofilament [g/g]	Berkley Fireline™ [g/g]
Au	$2.09 \cdot 10^{-8}$	$1.77 \cdot 10^{-9}$	$1.65 \cdot 10^{-9}$	$8.59 \cdot 10^{-8}$
Cd	$< 3.00 \cdot 10^{-9}$	$< 2.35 \cdot 10^{-7}$	$< 5.44 \cdot 10^{-8}$	$< 4.20 \cdot 10^{-6}$
Cr	$2.09 \cdot 10^{-8}$	$< 4.26 \cdot 10^{-7}$	$< 1.21 \cdot 10^{-7}$	$< 9.4 \cdot 10^{-6}$
In	$< 1.43 \cdot 10^{-8}$	$< 9.71 \cdot 10^{-7}$	$< 2.82 \cdot 10^{-7}$	$< 2.12 \cdot 10^{-5}$
K	$3.37 \cdot 10^{-8}$	$3.57 \cdot 10^{-7}$	$4.14 \cdot 10^{-7}$	$3.43 \cdot 10^{-5}$
La	$< 2.74 \cdot 10^{-11}$	$< 2.50 \cdot 10^{-9}$	$< 5.00 \cdot 10^{-10}$	$< 3.84 \cdot 10^{-8}$
Lu	$< 4.79 \cdot 10^{-11}$	$< 3.38 \cdot 10^{-9}$	$< 8.72 \cdot 10^{-10}$	$< 6.81 \cdot 10^{-8}$
Mn	$4.53 \cdot 10^{-9}$	$5.22 \cdot 10^{-9}$	$1.03 \cdot 10^{-8}$	$1.35 \cdot 10^{-7}$
Na	$1.42 \cdot 10^{-7}$	$5.00 \cdot 10^{-5}$	$8.12 \cdot 10^{-7}$	$3.39 \cdot 10^{-5}$
Rb	$< 1.65 \cdot 10^{-8}$	$< 1.74 \cdot 10^{-6}$	$< 5.05 \cdot 10^{-7}$	$< 3.96 \cdot 10^{-5}$
Th	$< 5.39 \cdot 10^{-10}$	$< 3.76 \cdot 10^{-8}$	$< 1.07 \cdot 10^{-8}$	$< 8.35 \cdot 10^{-6}$
U	$< 1.04 \cdot 10^{-10}$	$< 8.02 \cdot 10^{-9}$	$< 1.80 \cdot 10^{-9}$	$< 1.47 \cdot 10^{-7}$
W	$2.02 \cdot 10^{-9}$	$8.26 \cdot 10^{-8}$	-	-

Tabelle 5.4: Analyseergebnisse von Kunststoffen und Kunststoffäden. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. Die relative Unsicherheit ist kleiner als 20%.

5.3 Quencher

Mögliche, für BOREXINO einzusetzende Quencher, die die Szintillation in der organischen Abschirmflüssigkeit unterdrücken, wurden mittels RNAA auf ihren Gehalt primordialer Nuklide untersucht. Dazu wurden 10 ml der Proben für etwa eine Stunde an einer Klappzellenposition bestrahlt und anschließend dem in 4.1.5.4 beschriebenen Flüssigextraktionsverfahren unterzogen.

Die an diesen Quencher gestellten Anforderungen sind zwar mit den an den Flüssigszintillator gestellten nicht vergleichbar, die Konzentration von Uran und Thorium sollte jedoch den Bereich von 10^{-14} g/g in der Abschirmflüssigkeit nicht überschreiten. Dies bedeutet für das untersuchte Dimethylphtalat, das in einer Konzentration von 5 g/l in der Abschirmflüssigkeit gelöst wird, daß die Konzentration von Uran und Thorium $4 \cdot 10^{-12}$ g/g nicht überschreiten sollte. Für Kalium liegt diese Grenze bei $4 \cdot 10^{-8}$ g/g, die wenigstens von einer der untersuchten Proben gerade erreicht wird. Für BOREXINO hat dies insofern Konsequenzen, als die Charge des zu verwendenden Dimethylphtalats vor dem Einsatz im Experiment analysiert werden sollte und eventuell von darin enthaltenen Spurenelementen befreit werden muß, da Kalium in einer Konzentration enthalten sein kann, die für das Experiment nicht tolerierbar ist.

Element Hersteller	Dimethylphtalat Aldrich [g/g]	Dimethylphtalat Aldrich [g/g]	Dimethylphtalat Fluka [g/g]
Cd	$< 8.6 \cdot 10^{-11}$	-	$< 1.9 \cdot 10^{-10}$
Cr	$(5.0 \pm 1.0) \cdot 10^{-10}$	-	$(3.9 \pm 0.8) \cdot 10^{-10}$
In	$< 4.8 \cdot 10^{-10}$	-	$<1.3 \cdot 10^{-10}$
K	$(3.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-8}$	$(7.5 \pm 1.5) \cdot 10^{-8}$	$(1.9 \pm 0.6) \cdot 10^{-10}$
La	$(6.9 \pm 1.6) \cdot 10^{-13}$	-	$< 1.2 \cdot 10^{-13}$
Lu	$< 1.3 \cdot 10^{-12}$	-	$< 4.9 \cdot 10^{-13}$
Mn	$(3.3 \pm 0.7) \cdot 10^{-10}$	-	$(6.0 \pm 1.0) \cdot 10^{-9}$
Na	$(4.6 \pm 0.7) \cdot 10^{-7}$	-	-
Rb	$< 3.1 \cdot 10^{-10}$	-	$< 9.0 \cdot 10^{-11}$
Th	$(8.1 \pm 2.0) \cdot 10^{-11}$	$< 2.1 \cdot 10^{-10}$	$< 6.0 \cdot 10^{-12}$
U	$< 5.3 \cdot 10^{-12}$	$< 3.910^{-11}$	$< 1.1 \cdot 10^{-12}$

Tabelle 5.5: Analyseergebnisse von Dimethylphtalat. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben.

5.4 Flüssigszintillatoren und deren Konstituenten

Die analysierten Proben wurden während der Herstellung und der Reinigung des Flüssigszintillators im Gran Sasso Untergrundlabor in PFA Probengefäße abgefüllt. Ein Flüssigszintillator aus Phenyl-o-xylylethan wurde als eine Alternative zu dem aus 1,2,4-Trimethylbenzol bestehenden Flüssigszintillator entwickelt. Phenyl-o-xylylethan bietet 1,2,4-Trimethylbenzol gegenüber den Vorteil, daß dessen Dichte bei 0.98 g/cm³ liegt, die es erlauben würde, Reinstwasser als Abschirmflüssigkeit in BOREXINO einzusetzen, eine Lösung die mit einem aus

1,2,4-Trimethylbenzol bestehenden Flüssigszintillator nicht möglich wäre, da dessen Dichte mit 0.89 g/cm³ deutlich unter derjenigen von Wasser liegt. Die Verwendung von 1,2,4-Trimethylbenzol als Szintillator und Reinstwasser als Abschirmflüssigkeit bedingt dagegen konstruktive Probleme, da dies einen Massenzuwachs von Strukturmaterialien im inneren Detektor nach sich ziehen würde, um den Auftrieb in Wasser zu kompensieren, der wiederum mit einer Zunahme von Aktivität im inneren Detektor verknüpft wäre.

Der aus Phenyl-o-xylylethan aufgebaute Flüssigszintillator enthält neben dem Lösungsmittel noch p-Diphenylbenzol in einer Konzentration von 2 g/l und 1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol in einer Konzentration 30 mg/l. Dabei dient p-Diphenylbenzol als primärer, 1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol als sekundärer Wellenlängenschieber. Eine Analyse von Wellenlängenschiebern zeigt, daß diese zu einem substantiellen Anteil radioaktiver Verunreinigungen in einem Flüssigszintillator beitragen können [Gol97a]. Besonderes Augenmerk ist bei der Präparation und Reinigung auf Uran, Thorium, Kalium und Rubidium zu richten, deren Konzentrationen um zwei bis drei Größenordnungen reduziert werden müssen. Die Reinigung dieses Szintillators ist neben der Flüssig-Flüssig-Extraktion mit Reinstwasser auch über Flüssig-Fest-Extraktion mit Kieselgel möglich, da die Polarität der Konstituenten des Szintillators so klein ist, daß diese nicht adsorbiert werden.

In Tabelle 5.7 seien die Analyseresultate einiger Proben zusammengestellt, auf deren Historie und Bedeutung für das Neutrinoexperiment im folgenden Abschnitt 6.2 noch näher eingegangen werden soll.

Element	Probe B PXE [g/g]	Probe C 27.9.96 PXE/p-TP [g/g]	Probe D 15.10.96 PXE/p-TP [g/g]	Probe E1 5.2.97 PXE/p-TP [g/g]
Ag	$< 4 \cdot 10^{-12}$	$1 \cdot 10^{-12}$	$< 2 \cdot 10^{-12}$	$(7.9 \pm 3.0) \cdot 10^{-14}$
Au	$(2.0 \pm 1.0) \cdot 10^{-14}$	$(2.0 \pm 1.0) \cdot 10^{-14}$	$(2 \pm 1) \cdot 10^{-14}$	-
Cd	$< 6 \cdot 10^{-12}$	-	$< 2 \cdot 10^{-12}$	-
Ce	$(5.0 \pm 2.5) \cdot 10^{-12}$	$< 5 \cdot 10^{-12}$	$< 2 \cdot 10^{-12}$	-
Co	$< 1.2 \cdot 10^{-12}$	-	$< 6 \cdot 10^{-13}$	-
Cr	$(8.0 \pm 4.0) \cdot 10^{-12}$	-	$(3 \pm 1.5) \cdot 10^{-11}$	$< 1.0 \cdot 10^{-13}$
Cs	$(5.0 \pm 2.5) \cdot 10^{-12}$	-	$(8 \pm 4) \cdot 10^{-12}$	-
Fe	$(1.9 \pm 1.0) \cdot 10^{-9}$	$< 2 \cdot 10^{-10}$	$< 2 \cdot 10^{-10}$	-
In	$< 5 \cdot 10^{-12}$	$< 3 \cdot 10^{-13}$	$(5 \pm 2.5) \cdot 10^{-12}$	$< 4.8 \cdot 10^{-13}$
K	$(5.0 \pm 2.5) \cdot 10^{-10}$	$< 8 \cdot 10^{-12}$	$< 5 \cdot 10^{-11}$	$< 1.3 \cdot 10^{-11}$
La	$(2.0 \pm 1.0) \cdot 10^{-13}$	$< 3 \cdot 10^{-14}$	$< 2 \cdot 10^{-14}$	$< 6.4 \cdot 10^{-15}$
Lu	$< 1.6 \cdot 10^{-15}$	$< 2 \cdot 10^{-15}$	$< 7 \cdot 10^{-16}$	$< 1.4 \cdot 10^{-15}$
Mn	-		-	-
Mo	$(1.6 \pm 0.8) \cdot 10^{-11}$	-	$< 7 \cdot 10^{-13}$	-
Rb	$< 7 \cdot 10^{-12}$	$< 3 \cdot 10^{-13}$	$< 8 \cdot 10^{-12}$	$< 2.8 \cdot 10^{-13}$
Re	-	-	-	-
Sb	$(1.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-12}$	$(3.0 \pm 1.5) \cdot 10^{-13}$	$(3 \pm 1.5) \cdot 10^{-13}$	-
Sc	$(1.3 \pm 0.6) \cdot 10^{-14}$	$< 2 \cdot 10^{-14}$	$< 2 \cdot 10^{-14}$	-
Sn	-	-	-	$< 5.8 \cdot 10^{-12}$
Ta	-	-	-	-
Th	$(2.7 \pm 1.5) \cdot 10^{-14}$	$< 2 \cdot 10^{-14}$	$(5 \pm 2.5) \cdot 10^{-15}$	$< 3 \cdot 10^{-15}$
U	$(3.2 \pm 1.6) \cdot 10^{-14}$	$(4.0 \pm 2.0) \cdot 10^{-14}$	$(1.4 \pm 0.7) \cdot 10^{-15}$	$< 6 \cdot 10^{-16}$
W	$(3.1 \pm 1.5) \cdot 10^{-12}$	-	$(1 \pm 0.5) \cdot 10^{-13}$	-
Zn	$(2.8 \pm 1.4) \cdot 10^{-10}$	-	$(7 \pm 3.5) \cdot 10^{-11}$	-

Tabelle 5.6: Analysedaten der Proben B, C, D, E1 für einen aus PXE, p-TP und bis-MSB zusammengesetzten Flüssigszintillator. Die genaue Charakterisierung der Proben ist in 6.2 zu finden. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben.

Element	Probe E 2 5.2.97 PXE/p-TP [g/g]	Probe G 25.11.97 PXE/p-TP [g/g]	Probe H 11.12.97 PXE/p-TP [g/g]
Ag	$(8.8 \pm 3.5)\cdot10^{-14}$	$(1.1 \pm 0.5)\cdot10^{-13}$	$(2.3 \pm 0.4)\cdot10^{-13}$
Au	-	$(1.8 \pm 0.9)\cdot10^{-16}$	$< 3.8\cdot10^{-17}$
Ba	-	-	$< 8.3\cdot10^{-13}$
Cd	-	$< 5.4\cdot10^{-14}$	$< 8.3\cdot10^{-15}$
Ce	-	$< 1.4\cdot10^{-14}$	$< 2.1\cdot10^{-14}$
Co	-	$(2.8 \pm 1)\cdot10^{-14}$	$(2.6 \pm 0.4)\cdot10^{-14}$
Cr	$(3.2 \pm 1.5)\cdot10^{-13}$	$(1.9 \pm 0.9)\cdot10^{-13}$	$(2.3 \pm 0.4)\cdot10^{-13}$
Cs	-	$< 6.8\cdot10^{-14}$	$< 2.1\cdot10^{-13}$
Fe	-	$< 2.5\cdot10^{-12}$	$(3.7 \pm 0.6)\cdot10^{-11}$
Ga	-	$< 1.2\cdot10^{-13}$	$< 8.1\cdot10^{-14}$
Hg	-	$(3.0 \pm 0.5)\cdot10^{-13}$	$(4.7 \pm 0.7)\cdot10^{-13}$
In	$< 8\cdot10^{-13}$	$< 2.5\cdot10^{-14}$	$< 1.2\cdot10^{-13}$
K	$< 8\cdot10^{-12}$	$< 2.0\cdot10^{-12}$	$< 6.1\cdot10^{-12}$
La	$< 3\cdot10^{-15}$	$< 9.4\cdot10^{-16}$	$< 4.3\cdot10^{-16}$
Lu	$< 2\cdot10^{-15}$	$< 4.0\cdot10^{-16}$	$< 3.8\cdot10^{-16}$
Mn	-	$< 8.7\cdot10^{-7}$	$< 2.4\cdot10^{-9}$
Mo	-	$< 1.8\cdot10^{-14}$	$< 3.7\cdot10^{-14}$
Rb	$< 4\cdot10^{-13}$	$< 1.1\cdot10^{-13}$	$< 1.1\cdot10^{-13}$
Re	-	$< 3.8\cdot10^{-16}$	$< 5.5\cdot10^{-16}$
Sb	-	$(3.0 \pm 1.0)\cdot10^{-14}$	$(8.7 \pm 1.3)\cdot10^{-15}$
Sc	-	$< 2.7\cdot10^{-16}$	$< 2.3\cdot10^{-16}$
Sn	$2\cdot10^{-11}$	$< 1.2\cdot10^{-12}$	$< 3.3\cdot10^{-12}$
Ta	-	$< 9.3\cdot10^{-15}$	$< 2.0\cdot10^{-15}$
Th	$< 8\cdot10^{-15}$	$(2.5 \pm 0.7)\cdot10^{-16}$	$< 1.8\cdot10^{-16}$
U	$< 7\cdot10^{-16}$	$< 2.5\cdot10^{-16}$	$< 1\cdot10^{-17}$
W	-	$(1.4 \pm 0.9)\cdot10^{-14}$	$< 4.8\cdot10^{-15}$
Zn	-	$(3.1 \pm 0.5)\cdot10^{-13}$	$(1.0 \pm 0.2)\cdot10^{-12}$

Tabelle 5.7: Analysedaten der Proben E2, G, H für einen aus PXE, p-TP und bis-MSB zusammengesetzten Flüssigszintillator. Die genaue Charakterisierung der Proben ist in 6.2 zu finden. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben.

6 Konsequenzen für BOREXINO

6.1 Vergleichende Daten: Counting Test Facility-NAA

Die Neutronenaktivierungsanalyse ist in der Lage, den Daten des BOREXINO Experimentes und denjenigen des CTF Prototyp Experimentes, komplementäre Informationen über die Reinheit des verwendeten Szintillators hinzuzufügen. Während die direkte Messung der Zerfallsraten von ^{214}Bi bzw. ^{212}Bi nur eine Aussage über die kurzlebigen Zerfallsprodukte von ^{226}Ra und ^{228}Th der natürlichen Zerfallsketten zuläßt, kann die NAA die Zerfallsraten von ^{238}U und ^{232}Th direkt bestimmen oder sofern dies nicht möglich ist, restriktive Grenzen für die Aktivität dieser Isotope angeben. Für die mit BOREXINO durchgeführten Messungen kann dies Bedeutung erlangen, da diese zwei komplementären Datensätze eine statistische Subtraktion der in dem Detektor gemessenen Aktivität beider Zerfallsketten möglich machen. Dies gilt auch für den Fall, daß sich die Ketten nicht im säkularen Gleichgewicht befinden.

Der Beitrag von ^{232}Th, ^{238}U und den damit im Gleichgewicht stehenden Isotope ^{234}Th und ^{234}Pa, sowie der anderer primordialer Nuklide ließe sich anhand der spurenanalytisch ermittelten Konzentrationen statistisch subtrahieren, sofern die Analyse ein positives Ergebnis für eines dieser Elemente ausweist. Für die Nuklide ^{214}Bi, ^{214}Po und ^{212}Bi, ^{212}Po ist hingegen eine Diskriminierung einzelner Ereignisse aufgrund der charakteristischen Korrelationszeit dieser Ereignisse möglich. Ebenso können die mit diesen Nuklidgruppen im Gleichgewicht stehenden Nuklide statistisch subtrahiert werden. In der Thorium Zerfallskette entziehen sich lediglich ^{228}Ra und ^{228}Ac der statistischen Subtraktion, während es in der Uran Zerfallskette ^{234}U, ^{230}Th und ^{210}Pb, ^{210}Bi, ^{210}Po sind, da das Zerfallsgleichgewicht für ^{210}Pb mit 22.3 Jahren Halbwertszeit in aller Regel gebrochen sein wird.

In der Sensitivität sind beide Verfahren, nimmt man für die Gegenüberstellung einmal säkulares Gleichgewicht der Zerfallsketten an, für die Uran- und Thoriumzerfallskette vergleichbar. Mit einer spurenanalytischen Messung konnte dabei eine Nachweisgrenze von $1 \cdot 10^{-17}$ g/g für ^{238}U erreicht werden, die die der CTF in der seinerzeit verwendeten Konfiguration um etwa eine Größenordnung übertrifft. Für andere primordiale Radionuklide wie K, Rb, Cd, In, La, Lu kann die NAA ebenfalls restriktivere Grenzen für die Konzentration in dem gemessenen Flüssigszintillator angeben, wobei die neutronenaktivierungsanalytische Nachweisgrenze für Kalium mit $2 \cdot 10^{-12}$ g/g noch nicht in die erforderliche von $4 \cdot 10^{-14}$ g/g erreicht.

Bei einer Analyse der mit der CTF durchgeführten Reinigungsverfahren für Flüssigszintillatoren ist es auch sinnvoll, das Verhalten anderer nachweisbarer Spurenelemente zu beobachten, deren Konzentration ein Indikator für den Kontaminationsgrad des Szintillators sein können. Für aktivierungsanalytische Messungen nach einer Flüssig-Fest-Extraktion kann man dabei auch Grenzen für den Übertrag an Säulenmaterial in den Flüssigszintillator angeben, wobei verschiedene Elemente als Indikatoren herangezogen werden können, deren Auswahl sich nach der Sensitivität der jeweiligen Messung richtet.

Für den Übertrag an Kieselgel (SiO_2) in den in der CTF gemessenen Flüssigszintillator lassen sich drei unabhängige Grenzen angeben. Zum einen kann man mittels der ^{222}Rn Emanation eine Obergrenze für den ^{226}Ra Gehalt von Kieselgel über die in der CTF gemessene Aktivität unmittelbar nach der Flüssig-Fest-Extraktion angeben, zum anderen kann man die ^{226}Ra Aktivität in der CTF bestimmen. Die verwendete Kieselgel Säule emanierte ^{222}Rn einer Aktivität von etwa 2.6 Bq, wobei die Nachweisgrenze der CTF bei der anschließenden Messung des extrahierten Flüssigszintillators besser als $6 \cdot 10^{-5}$ Bq war, so daß man für die obere Grenze des Übertrags, wenn man diesen als das Verhältnis der beiden Aktivitäten definiert, einen Wert von $2 \cdot 10^{-5}$ erhält [Sch98]. Der Vergleich der Urankonzentrationen in Kieselgel und Flüssigszintillator liefert dagegen, unter konservativen Annahmen, eine Grenze von $1 \cdot 10^{-7}$ für den Übertrag. Mit Labormessungen, die ^{24}Na als Indikator verwenden, kann man unter vergleichbaren Bedingungen ebenfalls eine Grenze von $1 \cdot 10^{-7}$ angeben [Ang97].

6.2 Sequentielle Entwicklung der CTF

Während des Betriebes der CTF wurden zu unterschiedlichen Zeitpunkten Proben des Phenyl-o-xylylethan Flüssigszintillators zur Analyse entnommen. Für einige Analysen liegen Daten beider Methoden vor, so daß sich feststellen läßt, inwieweit das säkulare Gleichgewicht der Zerfallsketten gebrochen ist. Darüber hinaus sind die Daten für eine Beurteilung der eingesetzten Reinigungsverfahren von Bedeutung.

Im folgenden sind die analysierten Proben nach Ort der Probenentnahme und Vorgeschichte zusammengestellt [Sch98a] und in Abbildung 6.1 dargestellt:

- Probe B ist die des Lösungsmittels Phenyl-o-xylylethan, das zur Herstellung des CTF-Flüssigszintillators verwendet wurde. Die Probe wurde einem der drei 2 t Transportbehälter vor der Reinigung entnommen.
- Probe C ist der für die CTF präparierte Flüssigszintillator. Dieser enthält neben dem Lösungsmittel 20 mg 1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol und 2 g p-Diphenylbenzol je dm^3.
- Probe D wurde vor dem Befüllen der CTF am oberen Einlaß des Nylonballons entnommen. Der Flüssigszintillator war zuvor durch eine 80 cm hoch gefüllte Kieselgelsäule und eine weitere 50 cm hoch gefüllte Kieselgelsäule gepumpt worden. Die erste Säule wurde dabei nach dem Durchlauf von 2 t Flüssigszintillator gewechselt.
- Probe E (E1 & E2) wurde ebenfalls am oberen Einlaß des Nylonballons abgezweigt. Der Szintillator wurde vor der Probenentnahme weitere vier Tage durch eine frische, 80 cm hoch befüllte Säule gepumpt. Die Säule wurde dabei im Zirkulationsverfahren bei einem Durchfluß von 2.5 t/d betrieben. Die Proben E1 und E2 sind zwei Messungen der Probe E und in Zusammensetzung und Herkunft identisch.
- Probe F wurde am oberen Einlaß des Nylonballons entnommen. Zuvor war der Szintillator fünf Tage im Zirkulationsverfahren bei einem Durchfluß von 5 t/d durch einen Teflonfilter mit einer Porengröße von 0.05 μm gepumpt worden. Nach Abschluß der CTF-Messungen

wurde der Szintillator in einen bereitstehenden Tank umgepumpt. Zu allen weiteren Reinigungsschritten wurde der Szintillator in diesem Tank belassen. Zu dieser Probe gibt es lediglich Daten aus den Messungen der CTF.

- Probe G wurde dem Tank nach der Flüssig-Flüssig-Extraktion des Szintillators (Wasserextraktion) entnommen.
- Probe H wurde nach einer weiteren Flüssig-Fest-Extraktion analysiert. Der Szintillator war dazu bei einem Durchfluß von 3.6 t/d für acht Tage im Zirkulationsverfahren durch die für Probe E verwendete Kieselgelsäule gepumpt worden.

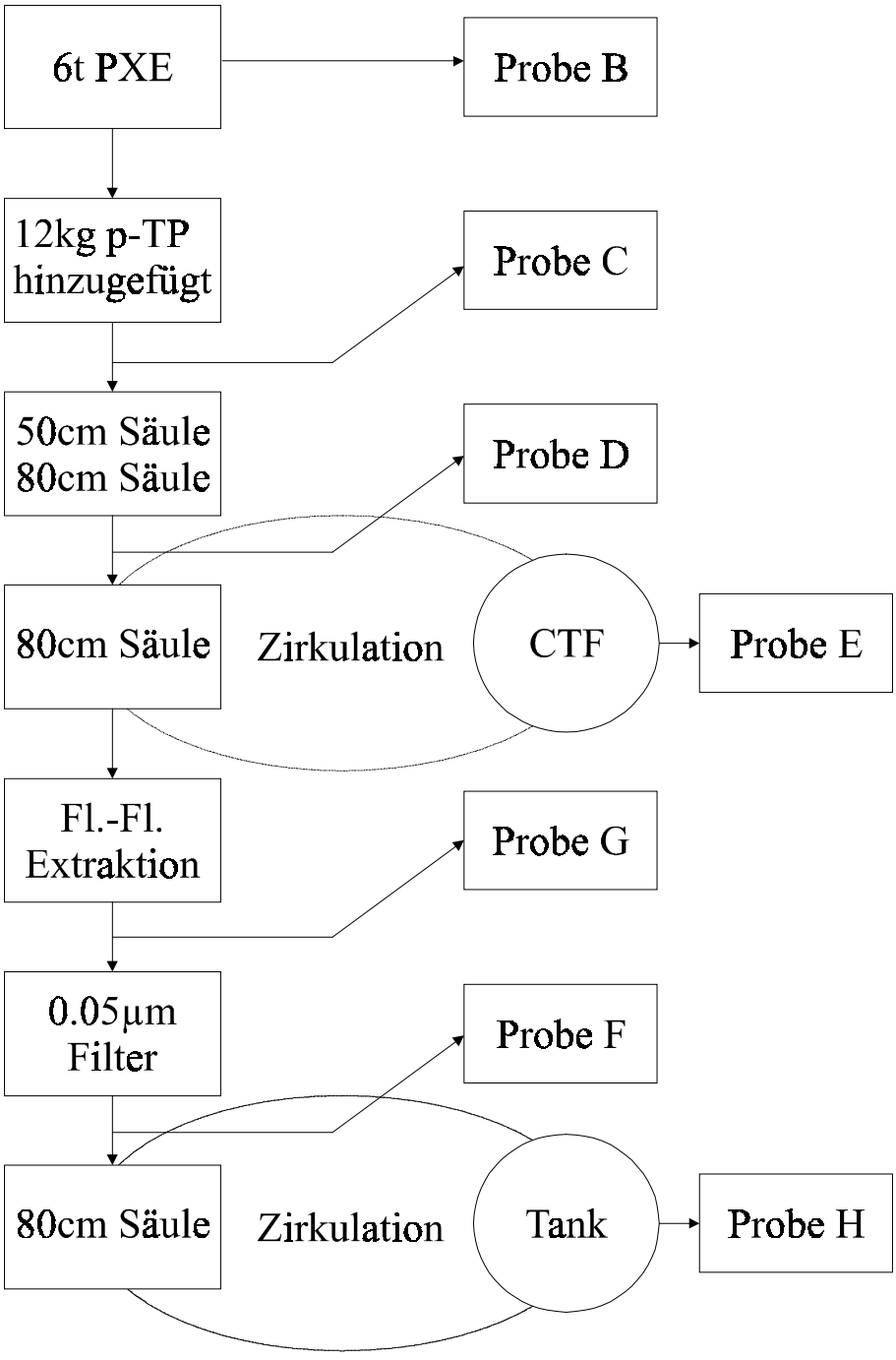

Abbildung 6.1: Schematische Darstellung der in dem Modul der „Counting Test Facility" durchgeführten Reinigungsschritte.

Für die in Tabelle 6.1 zusammengefaßten Analyseresultate sind zunächst keine Anzeichen für eine Störung des Gleichgewichtes der Zerfallsketten der Proben D und E zu erkennen. Die in der CTF gemessenen Urankonzentrationen sind tendentiell höher als die mittels NAA bestimmten

Grenzen. Dies könnte jedoch an der Diffusion von ^{222}Rn aus dem Nylonballon liegen. Einen Hinweis für diese Entwicklung kann man aus früheren CTF Messungen gewinnen, die einen Anstieg der gemessenen Urankonzentration von $(3.5 \pm 1.3)\cdot10^{-16}$ g/g auf $(1.2 \pm 0.3)\cdot10^{-15}$ g/g in einem auf 1,2,4-Trimethylbenzol basierendem Flüssigszintillator belegen [Mer98]. Dabei sei erwähnt, daß diese Argumentation für die Bestimmung von Thorium in der CTF nicht anwendbar ist, da die Halbwertszeit von ^{220}Rn der Thorium Zerfallskette mit 55.6 s sehr viel kürzer ist als die Diffusion aus dem Nylon stattfindet. Es kann somit nicht in den empfindlichen Bereich des Detektors diffundieren und die Ereignisrate der Tochternuklide von ^{220}Rn beeinflussen.

Daneben ist augenfällig, daß der Szintillator von einer ursprünglichen Urankontamination von etwa $4.0\cdot10^{-14}$ g/g befreit und ein Niveau von 10^{-17} g/g erreicht werden konnte. Für Thorium kann man einen Rückgang von etwa $2\cdot10^{-14}$ g/g auf weniger als $2\cdot10^{-16}$ g/g beobachten. Legt man die in Tabelle 3.4 gemachte Annahme einer α-Identifikationswahrscheinlichkeit von 95% und säkulares Gleichgewicht der Zerfallsketten zugrunde, wäre für die Uran Kette mindestens eine Ereignisrate erreichbar, die 0.43 Ereignissen je Tag und für die Thorium Kette und 0.035 Ereignissen je Tag in 100 t Detektionsvolumen in dem Energiebereich von 250 keV bis 800 keV entspricht.

	U – CTF [g/g]	U – NAA [g/g]	Th – CTF [g/g]	Th – NAA [g/g]
Probe B		$(3.2 \pm 1.6)\cdot10^{-14}$		$(2.7 \pm 1.5)\cdot10^{-14}$
Probe C		$(4.0 \pm 2.0)\cdot10^{-14}$		$< 2\cdot10^{-14}$
Probe D	$(1.8 \pm 0.1)\cdot10^{-15}$	$(1.4 \pm 0.7)\cdot10^{-15}$	$(2.9 \pm 0.6)\cdot10^{-15}$	$(5.0 \pm 2.5)\cdot10^{-15}$
Probe E1	$(1.6 \pm 0.4)\cdot10^{-15}$	$< 6\cdot10^{-16}$	$(2.5 \pm 0.4)\cdot10^{-15}$	$< 3\cdot10^{-15}$
Probe E2	$(1.6 \pm 0.4)\cdot10^{-15}$	$< 7\cdot10^{-16}$	$(2.5 \pm 0.4)\cdot10^{-15}$	$< 8\cdot10^{-15}$
Probe F	$(1.0 \pm 0.4)\cdot10^{-15}$		$(2.0 \pm 0.5)\cdot10^{-15}$	
Probe G		$< 2.5\cdot10^{-16}$		$(2.5 \pm 0.7)\cdot10^{-16}$
Probe H		$< 1\cdot10^{-17}$		$< 2\cdot10^{-16}$

Tabelle 6.1: Daten verschiedener Perioden der CTF. Die CTF Daten sind den Analyseresultaten der NAA gegenübergestellt. Für die Interpretation der CTF Daten ist das säkulare Gleichgewicht der Zerfallsketten angenommen.

In Abbildung 6.2 sind die gemessenen Konzentrationen und Nachweisgrenzen für Uran und Thorium noch einmal graphisch dargestellt. Auffallend ist die monotone Abnahme der Konzentrationen beider Elemente, die sich für Thorium bei den Proben B, D, G und für Uran bei den Proben C mit H zeigt. Für die Interpretation der Resultate sind die niedrigen Blindwerte beider Elemente vorteilhaft, die kleiner sind als die Nachweisgrenzen der Probe H. Dies läßt deutlich die Effizienz der angewandten Reinigungsmethoden erkennen, die die Konzentration von Thorium in Phenyl-o-xylylethan um mehr als zwei Größenordnungen und die Konzentration von Uran um mehr als drei Größenordnungen reduzieren konnte.

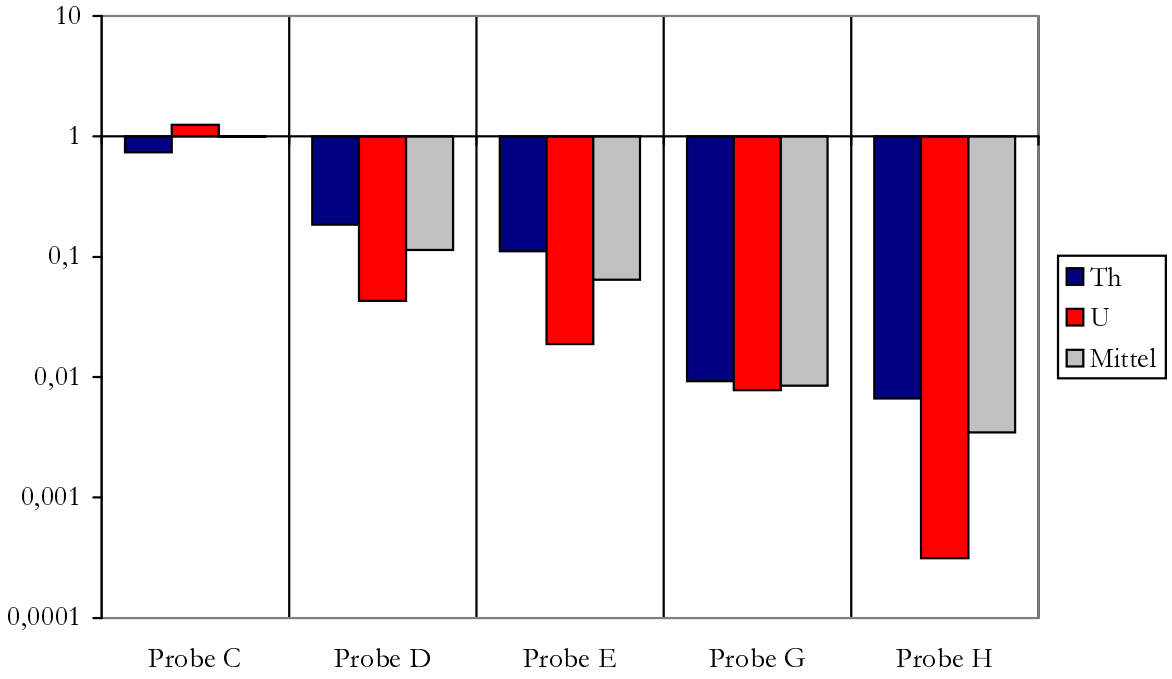

Abbildung 6.2: Konzentrationen bzw. Nachweisgrenzen von Uran und Thorium im Vergleich der verschiedenen Proben. Die Werte der Proben C, D, E, G, H sind der Tabelle 6.1 entnommen, wobei deren Werte auf die der Probe B normalisiert sind. Der Mittelwert wurde aus Elementkonzentrationen und Nachweisgrenzen gebildet, ist also lediglich eine obere Schranke für die Effizienz des jeweiligen Reinigungsschrittes.

6.3 Stabile Spurenelemente als Indikatoren zum Methodenvergleich

Neben den Elementen, die sich sowohl in der CTF als auch mittels der NAA bestimmen lassen, kann man stabile Elemente zum Methodenvergleich heranziehen. Einige dieser stabilen Elemente finden sich ebenfalls in sehr niedrigen Konzentrationen in einigen der Proben. Die Analyse dieser Elemente kann die für Uran und Thorium gemachten Beobachtungen stützen. Vergleicht man dazu die Spurenelementzusammensetzung des Flüssigszintillators vor den Reinigungsschritten (Proben B/C) mit der Zusammensetzung nach verschiedenen Extraktionsschritten (Proben G/H) kann man eine Verringerung aller beobachtbaren Spurenelementkonzentrationen oder eine Verbesserung der Blindwerte des Analyseverfahrens konstatieren. Die in Tabelle 6.2 angegebenen Verhältnisse widerspiegeln diese Entwicklung, wobei für einige Elemente nur eine untere Grenze angegeben werden kann, da in diesen Fällen nur eine Nachweisgrenze für die extrahierte Probe ermittelt werden konnte.

In Abbildung 6.3 sind die gemessenen Konzentrationen und Nachweisgrenzen für einige stabile Elemente noch einmal zusammengefaßt. Für einige Elemente ist eine deutliche Abnahme zu er-

kennen, die für die Proben G und H möglicherweise durch die Blindwerte der Analyse in diesem Bereich verdeckt werden. Lediglich für Silber ist eine leichte Zunahme der Konzentration zu beobachten, die für die Verwendung des Szintillators allerdings keine Beeinträchtigung darstellt. Die Mittelwerte der Proben D mit H nehmen für die stabilen Elemente, wie für Uran und Thorium, monoton ab, so daß sich auch für diese Elemente ein Anhaltspunkt für die Effizienz der eingesetzten Verfahren findet.

Element	Verhältnis	Element	Verhältnis
Ag	4.3	Sb	120
Au	> 500	Sc	> 56
Ce	> 250	Th	> 150
Cr	35	U	> 3000
Cs	> 25	W	> 640
Fe	51	Zn	280
Mo	> 430		

Tabelle 6.2: Das Verhältnis der Konzentration einiger Spurenelemente vor den Reinigungsschritten zu der nach den Reinigungsschritten eines PXE-Flüssigszintillators.

Dem aufmerksamen Leser wird nicht entgangen sein, daß die Konzentrationen von Antimon, Eisen und Lanthan für die Probe B höher liegen als die für die Probe C gemessenen Konzentrationen, obwohl letztere neben dem Lösungsmittel den primären Wellenlängenschieber enthält. Eine Erklärung dieses, auf den ersten Blick widersprüchlichen, Ergebnisses könnte darin liegen, daß die Probe B lediglich ein drittel des Lösungsmittels der Probe C repräsentiert, da diese Probe einem der drei Transportbehälter entnommen wurde.

Die Resultate geben einen klaren Hinweis auf die Effizienz der Reinigung des Szintillators durch Kieselgelsäulen und Flüssig-Flüssig-Extraktion. An den für Uran gemessenen Ergebnissen der Reinheit zeigt sich nicht nur die Verbesserung der Nachweisgrenze sondern ist auch ein Anhaltspunkt dafür, welche Grenzen für BOREXINO erreichbar sind. BOREXINO steht damit neben der Flüssig-Flüssig-Extraktion ein weiteres Verfahren zur Verfügung, das zur Reinigung von Flüssigszintillatoren mit p-Diphenylbenzol als Wellenlängenschieber eingesetzt werden kann.

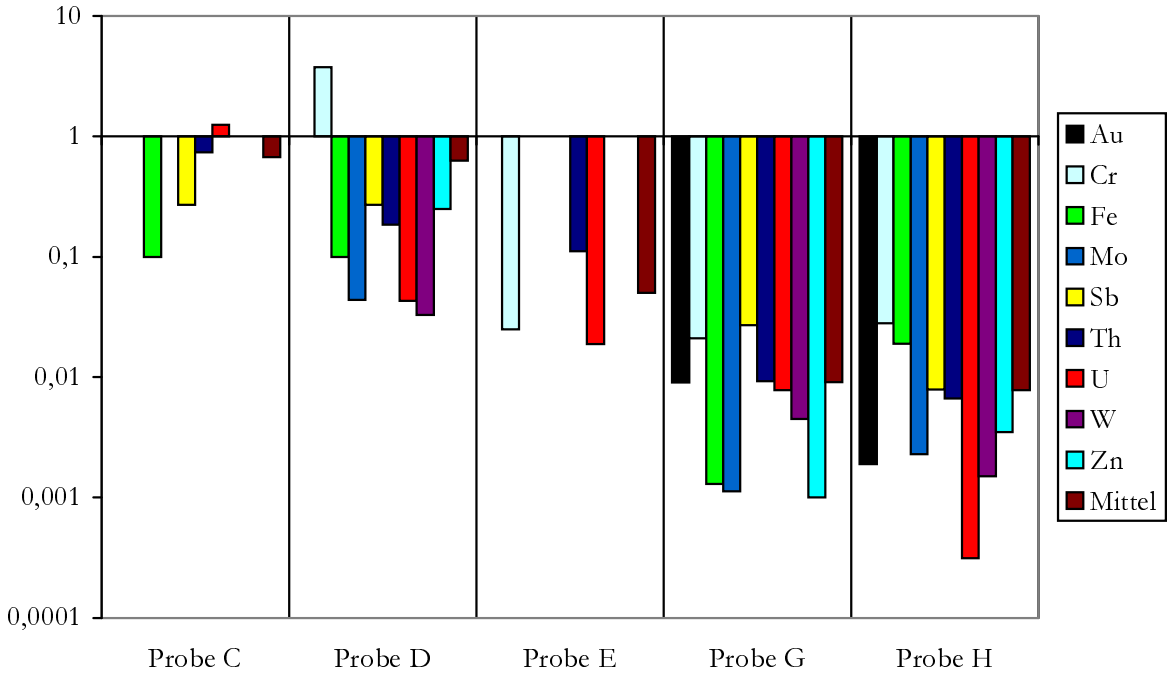

Abbildung 6.3: Konzentrationen bzw. Nachweisgrenzen verschiedener stabiler Spurenelemente im Vergleich der verschiedenen Proben. Die Werte der Proben C, D, E, G, H sind der Tabelle 5.6 und Tabelle 5.7 entnommen, wobei deren Werte auf die der Probe B normalisiert sind. Der Mittelwert wurde aus Elementkonzentrationen und Nachweisgrenzen gebildet, ist also lediglich eine obere Schranke für die Effizienz des jeweiligen Reinigungsschrittes.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Das solare Neutrinorätsel ist derzeit eine der zentralen Fragestellungen der Teilchenphysik, die eng mit den grundlegenden Eigenschaften der Neutrinos verknüpft zu sein scheint. Hinweise darauf stützen sich auf die modellunabhängigen Restriktionen und die Resultate der bisherigen Sonnenneutrinoexperimente, die von keinem Sonnenmodell schlüssig erklärt werden können. Ebenso scheiden kernphysikalische Modifikationen der Fusionsquerschnitte zur Lösung des Problems nach unserem heutigen Kenntnisstand aus.

Massebehaftete Neutrinos könnten dagegen eine Erklärung für die experimentellen Ergebnisse liefern, sofern deren Eigenzustände der schwachen Wechselwirkung untereinander mischen und deren Masseeigenzustände nicht entartet sind. Eine erste Evidenz dafür findet sich in der Konversion von hochenergetischen atmosphärischen Myonneutrinos in Tauneutrinos oder sterile Neutrinos, von der die japanisch-amerikanische Superkamiokande-Kollaboration berichten konnte [Kaj98, Yas98]. Die Existenz massiver Neutrinos hätte damit nicht nur die Erweiterung des Standardmodells zur Folge, sondern könnte auch weitreichende kosmologische Konsequenzen haben.

Die Messung des Flusses der monoenergetieschen ^{7}Be-Neutrinos wird ein wesentlichen Beitrag zur Lösung dieses Problems sein. Zum einen, weil verschiedene Oszillationshypothesen mit einer klaren Signatur behaftet wären, zum anderen weil die Messung des ^{7}Be-Flusses ein wesentlicher Schritt für das Verständnis des gesamten Spektrums ist. Eine eindeutige Zuordnung der Mischungsparameter für Neutrinooszillationen ergäbe sich aus der Beobachtung einer täglichen oder jahreszeitlichen Schwankung des ^{7}Be-Neutrinoflusses.

Das Ziel des BOREXINO Experimentes ist es den Fluß dieser ^{7}Be-Neutrinos zeitaufgelöst mit hoher Statistik zu bestimmen. Der Nachweis erfolgt dabei in 100 t Flüssigszintillators über elastische Neutrino-Elektronstreuung, wobei nach Standardmodellen etwa 50 Neutrinos, für Szenarien vollständiger Konversion in Myonneutrinos nur etwa 10 Ereignisse täglich in diesem Volumen nachgewiesen werden sollten. Für die Detektion von Neutrinos ist dabei die Reinheit der Komponenten bezüglich radioaktiver Kontaminationen entscheidend, da sich unkorrelierte β-Zerfälle und Photonen prinzipiell nicht von Neutrinoereignissen diskriminieren lassen. Eine zentrale Rolle spielen dabei neben anthropogenen und kosmogenen Radionukliden Verunreinigungen der Detektorkomponenten durch primordiale Radionuklide. Dabei ist es erforderlich die Konzentrationen in dem Flüssigszintillator von Uran und Thorium in einem Bereich von 10^{-16}g/g – 10^{-17} g/g und für Kalium in einem Bereich von 10^{-14} g/g zu erreichen. Das ^{14}C/^{12}C Verhältnis sollte dabei nicht wesentlich über 10^{-18} liegen. Zur Untersuchung dieser Fragestellung wurde ein BOREXINO in Aufbau und Abschirmung ähnlicher Detektor im Gran Sasso Untergrundlabor aufgebaut und betrieben. Über die korrelierten ^{212}Bi-^{212}Po und ^{214}Bi-^{214}Po konnten in diesem Detektor die Konzentrationen von ^{224}Ra und ^{226}Rn für zwei Flüssigszintillatoren untersucht werden, wobei in beiden Fällen eine Nachweisgrenze erreicht wurde, die im säkularen Zerfallsgleichgewicht einer Konzentration von etwa 10^{-16} g/g der Nuklide ^{232}Th und ^{238}U entsprechen. Gleichzeitig konnte das Verhältnis von ^{14}C/^{12}C auf einem Niveau von 10^{-18} gemessen werden.

Der direkten Aktivitätsmessung mit der erforderlichen Empfindlichkeit entziehen sich allerdings die β^{-}-instabilen Isotope der primordialen Elemente Uran, Thorium, Kalium, Lanthan, Lutetium,

Indium, Rubidium und Cadmium, die zu dem Untergrund in BOREXINO beitragen können. Ein eigens für dieses Experiment entwickeltes spurenanalytisches Verfahren eröffnet die Möglichkeit, einige dieser Elemente mit der erforderlichen Empfindlichkeit nachzuweisen. Für die Zerfallsketten von Uran und Thorium lassen sich so zu der Aktivität der Bi-Po Zerfälle komplementäre Informationen gewinnen, da es denkbar ist, daß das Zerfallsgleichgewicht gebrochen ist.

Element	Nachweisgrenze @ 90% C.L.	Ereignisse $(100\ t)^{-1}d^{-1}$ 250 keV-800 keV
U	$1 \cdot 10^{-17}$ g/g	0.43
Th	$2.0 \cdot 10^{-16}$ g/g	0.34
K	$2.0 \cdot 10^{-12}$ g/g	256
La	$4.3 \cdot 10^{-16}$ g/g	$4 \cdot 10^{-4}$
Lu	$3.8 \cdot 10^{-16}$ g/g	0.10
In	$1.2 \cdot 10^{-13}$ g/g	0.05
Cd	$8.3 \cdot 10^{-15}$ g/g	$3 \cdot 10^{-6}$
Rb	$1.1 \cdot 10^{-13}$ g/g	3.44

Tabelle 7.1: Nachweisgrenzen und korrespondierende Untergrundraten eines für BOREXINO untersuchten Flüssigszintillators, der aus dem Lösungsmittel Phenyl-o-xylylethan besteht.

In dieser Arbeit wurden Neutronenaktivierung, unterschiedliche analytische Verfahren mit untergrundarmer Gammaspektroskopie und Koinzidenzmeßtechniken kombiniert, um eine möglichst hohe Sensitivität für die primordialen Radionuklide in einer Vielzahl von Matrices zu erhalten. Dazu wurden sowohl die der Neutronenaktivierung zuzurechnenden Parameter optimiert als auch radiochemische Trennverfahren, wie Flüssig-Flüssig-Extraktion und Ionenaustauschtrennung eingesetzt, um die bestrahlten Proben in geeigneter Weise für die untergrundarmen Meßplätze aufzubereiten. Die aktivierten Nuklide wurden in drei Gruppen aufgetrennt, so daß interferierende Radionuklide und die Indikatorradionuklide der relevanten Elemente separat gemessen werden konnten. Der empfindliche Nachweis von ^{232}Th und ^{238}U erfolgte dabei in einer eigenen Gruppe, die auf einem untergrundarmen Meßplatz mittels β-e^- und β-e^--γ-Koinzidenz, ohne den Einfluß störender Interferenzaktivitäten und myoneninduzierter Ereignisse, untersucht werden konnte. Im Rahmen dieser Arbeit wurden dazu ein untergrundarmes Labor und effiziente Reinstgermaniumdetektoren aufgebaut, wobei diese mit einer Abschirmung aus aktivitätsarmen Reinstblei und einem aktiven Myonenveto umgeben wurden. Der Einsatz der aktiven Myonenvetosysteme hat sich dabei neben der Messung niedriger Aktivitäten für den Betrieb der Detektoren in den koinzidenten Meßmodi bewährt, da Myonen in diesen Fällen für einen signifikanten Anteil korrelierter Ereignisse ursächlich sind, die sich in dem neuen Aufbau diskriminieren lassen.

Die erreichten Grenzen für Flüssigszintillatoren seien an dieser Stelle noch einmal für den untersuchten Flüssigszintillator in Tabelle 7.1 zusammengefaßt, wobei für alle Elemente mit der Aus-

nahme von Kalium, Nachweisgrenzen erreichen werden konnten, die einer Rate von wenigen Ereignissen je Tag in BOREXINO entsprechen. Für dieses Element bleibt die Nachweisgrenze durch die Zahl der aktivierbaren Kerne und den Untergrund in diesem Energiebereich beschränkt. Der Einsatz quantitativer Flüssig-Flüssig-Extraktionstechniken und Ionenaustauschtrennung konnte die relative systematische Unsicherheit der Analyse für die Flüssigszintillatoren auf etwa 20% reduzieren. Die erreichte Sensitivität und systematische Unsicherheit läßt es denkbar erscheinen, die Aktivität der mit ^{238}U und ^{232}Th in Gleichgewicht stehenden Nuklide von dem in BOREXINO gemessenen Signal statistisch zu subtrahieren. Für den Aufbau und die Reinigung eines aus Phenyl-o-xylylethan bestehenden Flüssigszintillators konnte gezeigt werden, daß es möglich ist, mittels Flüssig-Flüssig-Extraktion und Flüssig-Fest-Extraktion an Kieselgel, einen Szintillator der erforderlichen Reinheit für BOREXINO herzustellen und die bisher besten spurenanalytischen Grenzen für Uran und Thorium zu erreichen.

Eine Reihe von Nylonsorten konnte blindwertfrei mittels radiochemischer und instrumenteller Neutronenaktivierungsanalyse mit der erforderlichen Sensitivität analysiert werden, wobei für Uran eine Verbesserung um eine weitere Größenordnung auf etwa 10^{-12} g/g erstrebenswert ist. Ein im Rahmen dieser Arbeit konzipierter Anti-Compton-Detektor wird es ermöglichen, die für BOREXINO verwendeten Kunststoffe mit instrumentellen Verfahren zu analysieren. Der Meßplatz ist mit einer Einzelereignisauslese versehen, die es ermöglicht, interferierende Nuklide über ihre Zerfallsstruktur von Indikatorradionukliden zu separieren.

Mit der Messung des solaren ^{7}Be-Neutrinoflusses wird sich zeigen ob John Updike mit seiner Behauptung „Neutrinos, do not have mass at all“ Recht behält oder ob das Standardmodell erweitert werden muß. Schwere Neutrinospezies könnten nicht nur für die atmosphärische Neutrinoanomalie und das Defizit solarer Neutrinos, sondern auch für die Dunkle Materie nichtbaryonischer Zusammensetzung im Universum verantwortlich sein.

8 Anhang

An dieser Stelle ist eine Übersicht über, die stärksten bei Germaniumdetektoren vorkommenden Linien der Untergrundspektren gegeben. Berücksichtigt sind dabei primordiale Elemente wie kosmogene Effekte, die innerhalb von Kupfer und Bleiabschirmungen zu beobachten waren.

Energie [keV]	Zerfall	Produktion	$T_{½}$
46.54	$^{210}Pb \rightarrow {}^{210}Bi$	Primordial	
53.44	$^{73}Ge^{*}$	$^{72}Ge(n,\gamma)^{73}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,n')^{73}Ge^{*}$, $^{75}Ge(n,2n)\ ^{73}Ge^{*}$, μ	0.49 s
66.75	$^{73}Ge^{*}$	$^{72}Ge(n,\gamma)^{73}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,n')^{73}Ge^{*}$, $^{75}Ge(n,2n)\ ^{73}Ge^{*}$, μ	0.49 s
68.75	$^{73}Ge^{*}$	$^{73}Ge(n,n')^{73}Ge^{*}$, $^{74}Ge(n,2n)\ ^{73}Ge^{*}$, μ	1.74 ns
72.81	Pb X $K_{\alpha 2}$	Elektronen, μ	
74.82	Bi X $K_{\alpha 2}$	$^{210}Pb \rightarrow {}^{210}Bi$	
74.97	Pb X $K_{\alpha 1}$	Elektronen, μ	
76.86	Po X $K_{\alpha 2}$	$^{210}Bi \rightarrow {}^{210}Po$	
77.11	Bi X $K_{\alpha 1}$	$^{210}Pb \rightarrow {}^{210}Bi$	
79.29	Po X $K_{\alpha 1}$	$^{210}Bi \rightarrow {}^{210}Po$	
84.94	Pb X $K_{\beta 1}$	Elektronen, μ	
87.30	Pb X $K_{\beta 2}$	Elektronen, μ	
87.35	Bi X $K_{\beta 1}$	$^{210}Pb \rightarrow {}^{210}Bi$	
89.23	Po X $K_{\beta 2}$	$^{210}Bi \rightarrow {}^{210}Po$	
89.78	Bi X $K_{\beta 2}$	$^{210}Pb \rightarrow {}^{210}Bi$	
92.31	Po X $K_{\beta 1}$	$^{210}Bi \rightarrow {}^{210}Po$	
139.68	$^{75}Ge^{*}$	$^{74}Ge(n,\gamma)^{75}Ge^{*}$, $^{76}Ge(n,2n)\ ^{75}Ge^{*}$, μ	47.7 s
159.70	$^{77}Ge^{*}$	$^{76}Ge(n,\gamma)^{77}Ge^{*}$, μ	52.9 s
186.10	$^{226}Ra \rightarrow {}^{222}Rn$	Primordial	
198.37	$^{71}Ge^{*}$	$^{70}Ge(n,\gamma)^{71}Ge^{*}$, $^{72}Ge(n,2n)^{71}Ge^{*}$, μ	20.4 ms
238.63	$^{212}Pb \rightarrow {}^{212}Bi$	Primordial	
270.23	$^{228}Ac \rightarrow {}^{228}Th$	Primordial	
278.24	$^{64}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,\gamma)\ ^{64}Cu^{*}$, $^{65}Cu(n,2n)\ ^{64}Cu^{*}$,μ	< 9 ps
295.21	$^{214}Pb \rightarrow {}^{214}Bi$	Primordial	
343.90	$^{64}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,\gamma)\ ^{64}Cu^{*}$, $^{65}Cu(n,2n)\ ^{64}Cu^{*}$,μ	< 4 ps

351.92	$^{214}Pb \rightarrow {}^{214}Bi$	Primordial	
427.75	$^{125}Sb \rightarrow {}^{125}Te$	Spaltprodukt	
463.00	$^{228}Ac \rightarrow {}^{228}Th$	Primordial	
463.37	$^{125}Sb \rightarrow {}^{125}Te$	Spaltprodukt	
511	e^{+}-e^{-} Annihilation		
562.93	$^{76}Ge^{*}$	$^{76}Ge(n,n')^{76}Ge^{*}$, μ	18.2 ps
569.70	$^{207}Pb^{*}$	$^{207}Pb(n,n')^{207}Pb^{*}$, μ	130.5 ps
583.19	$^{208}Tl \rightarrow {}^{208}Pb$	Primordial	
595.85	$^{74}Ge^{*}$	$^{74}Ge(n,n')^{74}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,\gamma)^{74}Ge^{*}$, μ	12.35 ps
600.66	$^{125}Sb \rightarrow {}^{125}Te$	Spaltprodukt	
600.71	$^{226}Ra \rightarrow {}^{222}Rn$	Primordial	
606.72	$^{125}Sb \rightarrow {}^{125}Te$	Spaltprodukt	
609.32	$^{214}Bi \rightarrow {}^{214}Pb$	Primordial	
635.47	$^{226}Ra \rightarrow {}^{222}Rn$	Primordial	
635.95	$^{125}Sb \rightarrow {}^{125}Te$	Spaltprodukt	
661.66	$^{137}Cs \rightarrow {}^{137}Ba$	Anthropogen	
669.67	$^{63}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,n')\,^{63}Cu^{*}$, μ	0.2 ps
691.55	$^{72}Ge^{*}$	$^{72}Ge(n,n')^{72}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,2n)^{72}Ge^{*}$, μ	444.2 ns
770.64	$^{65}Cu^{*}$	$^{65}Cu(n,n')\,^{65}Cu^{*}$, μ	99 fs
803.10	$^{206}Pb^{*}$	$^{206}Pb(n,n')^{206}Pb^{*}$, $^{207}Pb(n,2n)\,^{206}Pb^{*}$, μ	8.14 ps
810.76	$^{58}Co \rightarrow {}^{58}Fe$	$^{63}Cu(n, \alpha\, 2n)^{58}Co$	
834.14	$^{72}Ge^{*}$	$^{72}Ge(n,n')\,^{72}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,2n)\,^{72}Ge^{*}$, μ	3.35 ps
897.80	$^{207}Pb^{*}$	$^{206}Pb(n,\gamma)\,^{207}Pb^{*}$, $^{207}Pb(n,n')^{207}Pb$, $^{208}Pb(n,2n)\,^{207}Pb^{*}$, μ	0.115 ps
911.07	$^{228}Ac \rightarrow {}^{228}Th$	Primordial	
962.10	$^{63}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,n')\,^{63}Cu^{*}$, μ	0.57 ps
969.11	$^{228}Ac \rightarrow {}^{228}Th$	Primordial	
1039.25	$^{70}Ge^{*}$	$^{70}Ge(n,n')^{70}Ge^{*}$, μ	1.3 ps
1115.56	$^{65}Cu^{*}$	$^{65}Cu(n,n')\,^{65}Cu^{*}$, μ	0.285 ps
1120.29	$^{214}Bi \rightarrow {}^{214}Po$	Primordial	
1163.40	$^{62}Co \rightarrow {}^{62}Ni$	$^{65}Cu(n,\alpha)^{62}Co$	
1172.91	$^{62}Co \rightarrow {}^{62}Ni$	$^{65}Cu(n,\alpha)^{62}Co$	
1173.24	$^{60}Co \rightarrow {}^{60}Ni$	$^{63}Cu(n,\alpha)^{60}Co$	

1204.20	$^{74}Ge^{*}$	$^{74}Ge(n,n')^{74}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,\gamma)^{74}Ge^{*}$, μ	4.9 ps
1215.41	$^{70}Ge^{*}$	$^{70}Ge(n,n')^{70}Ge^{*}$, μ	3.7 ns
1327.01	$^{63}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,n')\,^{63}Cu^{*}$, μ	0.61 ps
1332.50	$^{60}Co \rightarrow {}^{60}Ni$	$^{63}Cu(n,\alpha)^{60}Co$	
1368.66	$^{24}Mg^{*}$	$^{24}Mg(n,n')\,^{24}Mg^{*}$	1.35 ps
1412.05	$^{63}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,n')\,^{63}Cu^{*}$, μ	< 1 ps
1460.86	$^{40}K \rightarrow {}^{40}Ar$	Primordial	
1463.76	$^{74}Ge^{*}$	$^{74}Ge(n,n')^{74}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,\gamma)^{74}Ge^{*}$, μ	1.7 ps
1464.12	$^{72}Ge^{*}$	$^{72}Ge(n,n')^{72}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,2n)^{72}Ge^{*}$, μ	4.5 ps
1481.84	$^{65}Cu^{*}$	$^{65}Cu(n,n')\,^{65}Cu^{*}$, μ	0.41 ps
1547.05	$^{63}Cu^{*}$	$^{63}Cu(n,n')\,^{63}Cu^{*}$, μ	< 1 ps
1728.42	$^{72}Ge^{*}$	$^{72}Ge(n,n')^{72}Ge^{*}$, $^{73}Ge(n,2n)^{72}Ge^{*}$, μ	1.5 ps
1729.60	$^{214}Bi \rightarrow {}^{214}Po$	Primordial	
1764.49	$^{214}Bi \rightarrow {}^{214}Po$	Primordial	
1847.42	$^{214}Bi \rightarrow {}^{214}Po$	Primordial	

Tabelle 8.1: Energie und Herkunft verschiedener Quellen von Untergrundaktivität. Die vierte Spalte gibt die Halbwertszeit der Anregung an.

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1.1: Der solare pp-Zyklus mit den absoluten Reaktionswahrscheinlichkeiten. 5

Abbildung 1.2: Das solare Neutrinospektrum für pp, ^{7}Be, ^{8}B hep und pep Neutrinos. Die Flüsse monoenergetischer Neutrinos sind in Einheiten von $cm^{-2}\ s^{-1}$ angegeben, die der kontinuierlichen Verteilungen in Einheiten von $cm^{-2}\ s^{-1}\ MeV^{-1}$ 6

Abbildung 1.3: ^{7}Be und ^{8}B Neutrinofluß für verschiedene Sonnenmodelle und solare Fusionsquerschnitte [Hat95]. Den Verhältnissen von ^{7}Be und ^{8}B liegen die Daten der Gallium- und Wassercherenkovexperimente zugrunde. 13

Abbildung 1.4: Erlaubte Werte im Parameterraum Δm^2-$\sin^2 2\theta$ für ein Vertrauensniveau von 99%. Für diese Darstellung sind die Ereignisraten der Chlor- und Galliumexperimente, sowie Raten des Superkamiokande-Detektors berücksichtigt. Nimmt man die spektrale Form des ^{8}B-Neutrinospektrums und die zeitabhängigkeit des Signals hinzu, fallen die LMA-Lösung und die low-Lösung auf einem Vertrauensniveau von 99% heraus. Das zugrunde gelegte Sonnenmodell stammt von J. Bahcall und M. Pinsonneault aus dem Jahre 1998 [Bah98a] 17

Abbildung 2.1: Schematischer Querschnitt durch den BOREXINO Detektor mit den wesentlichen Elementen. 22

Abbildung 2.2: Rückstoßspektrum für ^{7}Be-Neutrinos bei elastischer Neutrino-Elektron Streuung. Die obere Linie gibt die Verteilung für Elektronneutrinos, die unter für Myonneutrinos wieder. Die mit der Energieauflösung des Detektors gefalteten Verteilungen sind gestrichelt gezeichnet. 25

Abbildung 3.1: Thorium Zerfallskette. Nuklide und Halbwertszeiten der wichtigsten Zerfallskanäle. 27

Abbildung 3.2: Uran Zerfallskette. Nuklide und Halbwertszeit der wichtigsten Zerfallskanäle. 29

Abbildung 3.3: Berechneter interner Untergrund und Neutrinosignal des BOREXINO-Detektors in dem Energieintervall zwischen 200 keV und 1.5 MeV. Für den Untergrund ist eine Konzentration für Uran und Thorium von 10^{-16} g/g in säkularem Gleichgewicht, für Kalium eine Konzentration von 10^{-14} g/g angenommen. Die ^{14}C-Aktivität mit einem Endpunkt von 156 keV ist dabei nicht berücksichtigt. Die Abbildung zeigt den Untergrund nach der Subtraktion von 90% aller α-Zerfälle, der Bi-Po Koinzidenzen sowie der statistischen Subtraktion aller Ereignisse, die sich diesen Teilen der Zerfallsreihen zuordnen lassen. Die Fehlerbalken bezeichnen die statistische Unsicherheit der Rechnung. 40

Abbildung 4.1: Die Bestrahlungsposition für Flüssigkeiten mit einem Fassungsvermögen von 250ml am Forschungsreaktor München. Der Quarzkolben befindet sich in einem Aluminiumköcher an dem Rand des Reaktorkerns. Sowohl die Brennelemete als auch die Flüssigbestrahlungsposition in einer Lochplatte fixiert. 46

Abbildung 4.2: Das Verhalten des Flußverhältnisses f im Bereich der Flüssigkeitsbestrahlungsposition. Die Ausgleichsgerade ist $f(\Phi) = 110.98 - 2.91\,\Phi_{th}$ $[10^{12} s^{-1} cm^{-2}]$. 48

Abbildung 4.3: Neutronenspektrum eines leichtwassermoderierten Reaktors. 49

Abbildung 4.4: Die Flußdichteverteilung thermischer Neutronen innerhalb einer Flüssigkeitsbestrahlungsposition. Die Graustufenskalierung ist logarithmisch dargestellt. 51

Abbildung 4.5: Säureextraktionsschritte zur Analyse von Flüssigszintillatoren 55

Abbildung 4.6: Zeitabhängigkeit der Extraktionsausbeute für K (schnell), Rb, Cd, Np, Pa, In, La, Lu (langsam), der zeitlichen Reihenfolge nach geordnet. 56

Abbildung 4.7: Ionenaustauschprozess zur Separation von Radionukliden. 60

Abbildung 4.8: Der zur Messung von β^--γ und β^--γ-Konversionselektron Koinzidenzen verwendete Versuchsaufbau. Der Meßplatz befindet sich im untergrundarmen Labor und ist von fünf Seiten mit einem aktiven Myonenveto umgeben. 63

Abbildung 4.9: Zerfallsschema von ^{239}Np. Der isomere 7/2—Zustand liegt bei einer Energie von 391.6 keV über dem Grundzustand. Die darüberliegenden Niveaus sind in dieser Darstellung weggelassen [Fir96]. 64

Abbildung 4.10: Projektionen eines Datensatzes auf die vier Eingangskanäle einer β-γ-e— Koinzidenz, die bei dem Zerfall von ^{239}Np auf einen isomeren Zustand von ^{239}Pu aufgezeichnet werden. 66

Abbildung 4.11: Die Häufigkeitsverteilung von Photonen zwischen 97.5 keV bis 108 keV und Elektronenereignissen der Liniengruppen I-III einer Eichaktivität. Die Korrelation zwischen beiden Ereignisgruppen läßt sich zur Diskriminierung von Untergrundereignissen verwenden. 69

Abbildung 4.12: 90% Vertrauensbereich für die obere Grenze bei μ_B erwarteten und n_0 beobachteten Ereignissen. 75

Abbildung 4.13: Aufbau des verwendeten p-Typ Detektors 150% relativer Effizienz. 76

Abbildung 4.14: Zeichnung des verwendeten n-Typ Detektors. 77

Abbildung 4.15: Spektren des p-Typ Detektors 150% relativer Effizienz nach 40 Tagen Meßzeiten der in ursprünglichen Konfiguration (oben) und mit der verbesserten Abschirmung in dem untergrundarmen Labor (mitte) und aktiver Myonenunterdrückung (unten). Die genaue Zuordung der Linien findet sich im Anhang. 79

Abbildung 4.16: Spektren eines LoAx-Detektors nach 40 Tagen Meßzeiten der in ursprünglichen Konfiguration (oben) und mit der verbesserten Abschirmung in dem untergrundarmen Labor (unten) und aktiver Myonenunterdrückung. Die genaue Zuordung der Linien findet sich im Anhang. 80

Abbildung 4.17: Tiefenabhängigkeit verschiedener Höhenstrahlungskomponenten. Aus [Heu96]. 82

Abbildung 4.18: Spektrum von Neutronen, die über den μ^--Einfang an Pb produziert werden. Aus [Koz85]. 83

Abbildung 4.19: Untergrundspektrum im Bereich zwischen 15 keV und 400 keV, verglichen mit dem Mittels Monte Carlo Simulation (EGS4) berechneten Bremsstrahlungs- und Fluoreszenzspektrum von ^{210}Pb und ^{210}Bi. 86

Abbildung 4.20: Ereignisraten in verschiedenen Energiebereichen der verwendeten Detektoren in unterschiedlichen Konfigurationen. 87

Abbildung 4.21: Schematische Zeichnung des NaI-Anti-Compton-Detektors. Der NaI-Kristall besitzt einen Außendurchmesser von 305 mm, bei einer Länge von 300 mm und einem Innendurchmesser von 132 mm. 88

Abbildung 4.22: Anti-Compton-Detektor in geöffnetem Zustand. Auf der linken Seite ist der NaI-Detektor, auf der rechten Seite der Germanium Detektor sichtbar. 90

Abbildung 4.23: Der Comptonuntergrund einer ^{60}Co-Quelle aufgenommen mit dem 150% p-Typ Detektor. Die Spektren sind, auf dieselbe Meßzeit normiert, ohne Koinzidezbedingung und im Antikoinzidenzmodus aufgenommen. Bei 661.7 keV ist die ^{137}Cs-Aktivität der Quelle nachweisbar. 91

Abbildung 4.24: Logarithmische Darstellung des Comptonspektrums einer ^{60}Co Quelle. Die Spektren sind, auf dieselbe Meßzeit normiert, ohne Koinzidezbedingung und im Antikoinzidenzmodus aufgenommen. Daneben ist das Verhältnis des Spektrums ohne Koinzidenzbedingung zu dem im Antikoinzidenzmodus aufgenommenen Spektrum dargestellt. 92

Abbildung 6.1: Schematische Darstellung der in dem Modul der „Counting Test Facility“ durchgeführten Reinigungsschritte. 105

Abbildung 6.2: Konzentrationen bzw. Nachweisgrenzen von Uran und Thorium im Vergleich der verschiedenen Proben. Die Werte der Proben C, D, E, G, H sind der Tabelle 6.1 entnommen, wobei deren Werte auf die der Probe B normalisiert sind. Der Mittelwert wurde aus Elementkonzentrationen und Nachweisgrenzen gebildet, ist also lediglich eine obere Schranke für die Effizienz des jeweiligen Reinigungsschrittes. 107

Abbildung 6.3: Konzentrationen bzw. Nachweisgrenzen verschiedener stabiler Spurenelemente im Vergleich der verschiedenen Proben. Die Werte der Proben C, D, E, G, H sind der Tabelle 5.6 und Tabelle 5.7 entnommen, wobei deren Werte auf die der Probe B normalisiert sind. Der Mittelwert wurde aus Elementkonzentrationen und Nachweisgrenzen gebildet, ist also lediglich eine obere Schranke für die Effizienz des jeweiligen Reinigungsschrittes. 109

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1.1: Neutrinoflüsse des pp-Zyklus in verschiedenen Sonnenmodellen 7

Tabelle 1.2: Das Verhältnis von experimentell bestimmten Neutrinoflüssen zu der Vorhersage eines Sonnenmodells mit quadratisch addierten experimentellen und theoretischen Unsicherheiten (1σ) [Bah98b, Dav98, GAL99, Fuk98] 9

Tabelle 1.3: Modellunabhägige Grenzen für die verschiedenen Elektronneutrinos des pp-Zyklus. Dem Verhältnis von maximalem Fluß zu Standardmodellfluß Φ_{Max}/Φ_{SSM} liegen [Bah98b, GAL99, Fuk98] zugrunde. 10

Tabelle 3.1: Durchschnittliche Konzentrationen und spezifische Aktivität primordialer Radionuklide in der Erdkruste. Für Uran und Thorium ist dabei nur die Aktivität der Isotope ^{238}U und ^{232}Th berücksichtigt. 26

Tabelle 3.2: Zerfallscharakteristika primordialer Radionuklide, die für BOREXINO von Bedeutung sind [Nef96]. 31

Tabelle 3.3: Radionuklide, die in BOREXINO durch Myonen erzeugt werden können. Die Spalte E_{max} gibt den Endpunkt der β-Spektren an. Die nachgewiesene Energie liegt bei den β^+-Emittern, durch den simultanen Nachweis der beiden Annihilationsquanten um 1.022 MeV höher. In der zweiten Spalte ist neben dem Zerfallsmodus die Art der simultan bei diesem Zerfall emittierten Teilchen angegeben. 34

Tabelle 3.4: Konzentrationen primordialer Radionuklide in dem verwendeten Flüssigszintillator, die in 100 t Detektionsvolumen ein Ereignis je Tag in einem Energiebereich zwischen 250 keV und 800 keV erzeugen. Für die Zerfallsketten ist säkulares Gleichgewicht und eine α-Identifikationswahrscheinlichkeit von 95% angenommen. [Nef96] entnommen. 36

Tabelle 3.5: In der Tabelle sind die Raten angegeben, die bei einer homogenen Verteilung der in der fünften Spalte aufgeführten Massen, innerhalb der Volumina mit dem Radius R zu erwarten sind. [Obe98]. 37

Tabelle 3.6: Beiträge verschiedener Detektorkomponenten, der angegebenen Konzentrationen primordialer Elemente, zu der Untergrundrate in dem Energiebereich zwischen 250 keV und 800 keV für die inneren 100 t Szintillator. 38

Tabelle 3.7: Konzentration radioaktiver Spurenelemente in den mit der Counting Test Facility untersuchten Flüssigszintillatoren unter der Annahme säkularen Zerfallsgleichgewichtes. 39

Tabelle 4.1: Makroskopische Absorptionsquerschnitte und Diffusionslängen für ausgewählte Matrices. 50

Tabelle 4.2: Der Quotient $\overline{\Phi} / \Phi_0$ von über das Bestrahlungsvolumen gemittelter Flußdichte zu Flußdichte in der Rotationsachse der Bestrahlungskolben für thermische (epithermische) Neutronen. 50

Tabelle 4.3: Charakteristische Extraktionszeit τ und kumulierte Ausbeuten für die untersuchten Nuklide. Die Ausbeute läßt sich unter den gegebenen Bedingungen empirisch gut durch die Funktion $A(t) = 1 - e^{-t \ln 2 / \tau}$ beschreiben. Die absoluten Fehler der Extraktionsausbeuten sind alle kleiner 0.01 57

Tabelle 4.4: Adsorbierter Anteil der Indikatorradionuklide nach einer Bestrahlungsdauer von 100 Stunden. 58

Tabelle 4.5: Wiederfindung einiger Radionuklide in den verschiedenen Gruppen des Trennverfahrens. Die Wiederfindung der mit * gekennzeichneten Nuklide ist [Egg88] entnommen. 61

Tabelle 4.6: Relative Nachweiswahrscheinlichkeit aufgeteilt nach γ-Energie und Energie der verzögerten Ereignisse. Die korrespondierende Abbildung 4.11 findet sich auf Seite 69. 67

Tabelle 4.7: Die Effizienzen einer verwendeten Meßanordnung für den Nachweis der β^- und Elektronen über einer Schwelle von 20 keV und der Photonen in dem Energieintervall zwischen 98 keV und 108 keV, die beim Zerfall von ^{239}Np emittiert werden. Die Photonennachweiseffizienz schließt dabei die Beimischung der K-Linien zum Zerfall ein. Die absolute Emissionswahrscheinlichkeit des Elektrons berücksichtigt nur die in dem zur Auswertung herangezogenen Zeitfenster emittierten. 67

Tabelle 4.8: Die absoluten Emissionswahrscheinlichkeiten von Kα_1, Kα_2 und der 106.23 keV Linie beim Zerfall von ^{239}Np. Die linke Spalte bezeichnet die absolute Emissionswahrscheinlichkeit ohne Koinzidenzbedingung, die rechte Spalte bezeichnet die absolute Emissionswahrscheinlichkeit unter der geforderten Dreifachkoinzidenz von β^-, Elektron und Photon. 68

Tabelle 4.9: Systematische Unsicherheiten (1σ), die für ein typisches Indikatorradionuklid berücksichtigt wurden. Beiträge, die zu einem Analytverlust oder einer fälschlichen Erniedrigung des Resultats führen wurden mit -, Beiträge zu einem Analyteintrag in die Probe oder einer Erhöhung des Resultats führen, wurden mit + gekennzeichnet. 71

Tabelle 4.10. Poisson- und Binomiallimites für G Ereignisse bei n beobachteten Untergrundereignissen für ein Vertrauensniveau von 90%. Der Parameter p durchläuft bei der Binomialverteilung p = 0.01, 0.2, 0.5 74

Tabelle 4.11: Charakteristika und Kenngrößen der verwendeten Detektoren. 77

Tabelle 4.12: Neutroneninduzierte Anregungen in Germanium und in der Bleiabschirmung der verwendeten Detektoren. 84

Tabelle 4.13: Spezifische Ereignisrate der Annihilationsstrahlung in unterschiedlichen Detektorkonfigurationen des 150% p-Typ Detektors. 84

Tabelle 5.1: Analysedaten für Aluminium. Die Konzentration von ^{228}Ra und ^{228}Th ist in die Gleichgewichtskonzentration von ^{232}Th umgerechnet, die von ^{226}Ra in die von ^{238}U. 94

Tabelle 5.2: Analyseergebnisse von Nylongranulat. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. Die relative Unsicherheit ist kleiner als 20%. 95

Tabelle 5.3: Analyseergebnisse von Nylonfolie. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. Die relative Unsicherheit ist kleiner als 20%. 96

Tabelle 5.4: Analyseergebnisse von Kunststoffen und Kunststoffäden. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. Die relative Unsicherheit ist kleiner als 20%. 97

Tabelle 5.5: Analyseergebnisse von Dimethylphtalat. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. 98

Tabelle 5.6: Analysedaten der Proben B, C, D, E1 für einen aus PXE, p-TP und bis-MSB zusammengesetzten Flüssigszintillator. Die genaue Charakterisierung der Proben ist in 6.2 zu finden. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. 100

Tabelle 5.7: Analysedaten der Proben E2, G, H für einen aus PXE, p-TP und bis-MSB zusammengesetzten Flüssigszintillator. Die genaue Charakterisierung der Proben ist in 6.2 zu finden. Die Konzentration ist in [g/g] angegeben. 101

Tabelle 6.1: Daten verschiedener Perioden der CTF. Die CTF Daten sind den Analyseresultaten der NAA gegenübergestellt. Für die Interpretation der CTF Daten ist das säkulare Gleichgewicht der Zerfallsketten angenommen 106

Tabelle 6.2: Das Verhältnis der Konzentration einiger Spurenelemente vor den Reinigungsschritten zu der nach den Reinigungsschritten eines PXE-Flüssigszintillators. 108

Tabelle 7.1: Nachweisgrenzen und korrespondierende Untergrundraten eines für BOREXINO untersuchten Flüssigszintillators, der aus dem Lösungsmittel Phenyl-o-xylylethan besteht. 111

Tabelle 8.1: Energie und Herkunft verschiedener Quellen von Untergrundaktivität. Die vierte Spalte gibt die Halbwertszeit der Anregung an. 115

Glossar

AAS	Atomabsorptionsspektrometrie
ADC	Analog to Digital Converter
bis-MSB	1,4-bis-(2-Methylstyryl)-Benzol
CAMAC	Computer Aided Measurement And Control
cpm	Counts per Minute
CTF	Counting Test Facility
DOF	Degrees of Freedom
FRM	Forschungsreaktor München
FWHM	Full Width Half Maximum
GD-MS	Glow Discharge Mass Spectrometry
HAP	Hydratisiertes Antimon-(V)-oxid
HPGe	High Purity Germanium
ICP-AS	Inductively Coupled Absorption Spectrometry
ICP-MS	Inductively Coupled Mass Spectrometry
INAA	Instrumentelle Neutronenaktivierungsanalyse
LD-PE	Low Density Polyethylen
LMA	Large Mixing Angle
MSW-Effekt	Mikheyev-Smirnov-Wolfenstein-Effekt
mwe	meter water equivalent, 1 mwe = 100 g/cm²
NAA	Neutronenaktivierungsanalyse
NIM	Nuclear Instrument Module
OES	Optical Emission Spectroscopy
PC	Pseudocumol, 1,2,4-Trimethylbenzol
PEEK	Polyetheretherketon
PFA	Perfluoroalkoxy
PPO	2,5-Diphenyloxazol
p-Tp	p-Terphenyl, p-Diphenylbenzol
PXE	Phenyl-ortho-xylylethan
RNAA	Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse
SMA	Small Mixing Angle
SNU	Solar Neutrino Unit
SPS	Super Proton Synchrotron, CERN
SSM	Standard Solar Model
TBP	Tributylphosphat

Literaturverzeichnis

[Ade98] E.G. Adelberger et al., Rev. Mod. Phys. **70**/4, 1265 (1998)

[Akh91] E.Kh. Akhmedov, Phys. Lett. B, **255**, 84 (1991)

[Akh91a] E.Kh. Akhmedov , Phys. Lett. B, **257**,163 (1991)

[Alf94] Z. B. Alfassi (ed.), „Determination of Trace Elements, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim“ (1994)

[Ali98] G. Alimonti et al., Astroparticle Phys., **8**, 141 (1998)

[Ali98a] G. Alimonti et al., Nucl. Phys. B, **442**/1, 349 (1998)

[Ali98c] G. Alimonti et al., Nucl. Instr. Meth. A, **406**, 411 (1998)

[Alt95] M. Altmann, Proc. Ringberg 1995, TUM SFB-375, Ringberg Castle, Tegernsee (1995)

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

[Ang97] G. Angloher, Diplomarbeit, Technische Universität München (1997)

[Art88] R. J. Arthur et al., „Use of low-background germanium detectors to preselect high purity materials intended for construction of advanced ultralow-level detectors“, IEEE Trans. Nucl. Sciences, 582 (1988)

[Bah88] J.N. Bahcall, R.K. Ulrich, Rev. Mod. Phys., **60**, 297 (1988)

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

[Bah96] J. N. Bahcall, M. Fukugita, P. I. Krastev, Phys. Lett. B, **374**, 1 (1996); astro-ph/9602065

[Bah96a] J. N. Bahcall, P. I. Krastev, Phys. Rev. D, **53**, 4211 (1996); hep-ph/9512378

[Bah97] J. N. Bahcall, P. I. Krastev, Phys. Rev. C, **55**, 929 (1997); astro-ph/9607013

[Bah97a] J. N. Bahcall, P. I. Krastev, Phys. Rev. C, **56**, 2839 (1997); hep-ph/9706239

[Bah97b] J. N. Bahcall, P. I. Krastev, E. Lisi, Phys. Rev. C, **55**, 494 (1997); nucl-ex/9610010.

[Bah98] J.N. Bahcall, Phys. Rev. D, **58**, 096016-2 – 096016-22 (1998), hep-ph/9807216

[Bah98a] J.N. Bahcall, P.I. Krastev, A.Yu. Smirnov, Phys. Rev. D, **58**, 096016-1 – 096016-22; hep-ph/9807216

[Bah98b] J.N. Bahcall, S. Basu, M.H. Pinsonneault, „How uncertain are solar neutrino predictions?“, Preprint, submitted to Elsevier Preprint

[Bar96] R.M. Barnett et al., Phys. Rev. D, **54**, 1 (1996)

[Bau72] F. Baumgärtner, D. Wiles, Fortschr. Chem. Forsch., **32**, 63 (1972)

[Bec64] K.H. Beckurts, K. Wirtz, „Neutron Physics“, Springer Verlag, Berlin (1964)

[Ber95] V. Berezinsky et al., „Last Hope for an astrophysical solution to the solar neutrino problem“, submitted to Phys. Lett. B, (1995)

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

[Bet38a] H.A. Bethe, C. Critchfield, Phys. Rev., **54**, 862 (1938)

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

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

[Bög97] W. Bögershausen et al., Fresenius' J. Anal. Chem., **357**, 266 (1997)

[Bre92] I.B. Brenner, H.E. Taylor, Crit. Rev. Anal. Chem., **23**/5, 355 (1992)

[Bro96] J.A.C. Broekaert, „Plasma Optical Emission and Mass Spectrometry“, in Determination of Trace Elements, Editor: Z.B. Alfassi, Verlag Chemie, Weinheim (1996)

[Bur95] W.C. Burnett, C. C. Yeh, Radioactiv. & Radiochem., **6**, 4 (1995)

[Cal90] R. Caletka, V. Krivan, J. Radioanal. Nucl. Chem., **142**/2, 373 (1990)

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

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

[Cho95] G.R. Choppin, K. L. Nash, Radiochimica Acta, **70/71**, 225 (1995)

[Col76] L.E. Coles (ed.) et al., Analyst, **101**, 62 (1976)

[Cow98] G. Cowan, „Statistical Data Analysis“, Clarendon Press, Oxford (1998)

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

[Dar94] A. Dar, G. Shaviv, „A Standard Model Solution to the Solar Neutrino Problem?“, Preprint, TECHNICON-PH-94-5 (1994)

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

[Dav68] R. Davis, D.S. Harmer, K.C. Hoffman, Phys. Rev. Lett., **20**, 1209 (1968)

[Dav98] R. Davis et. al., Astrophys. J., **495**, 1 (1998)

[Dec94] Y. Declais et al., Phys. Lett. B, **338**, 383 (1994)

[Ebe57] A. Eberle, M. W. Lerner, Anal. Chem., **29**/8, 1134 (1957)

[Egg87] K.P. Egger, V. Krivan, Fresenius' Z. Anal. Chem., **327**, 119 (1987)

[Egg88] K.P. Egger, V. Krivan, Fresenius' Z. Anal. Chem., **331**, 394 (1988)

[Egg88a] K.P. Egger, V. Krivan, Fresenius' Z. Anal. Chem., **323**, 827 (1988)

[Ewa57] G.T. Ewan et al., Phys. Rev., **108**, 1308 (1957)

[Ewa59] G.T. Ewan et al., Phys. Rev., **116**/4, 950 (1959)

[Fir96] R. Firestone (ed.), „Table of Isotopes", Wiley, New York (1996)

[Fuk98] Y. Fukuda for the Superkamiokande Collaboration, „Solar Neutrino Observations with Superkamiokande", Proc. of „Fourth SFB-375 Ringberg Workshop Neutrino Astrophysics October 20-24 1997", Ringberg Castle, Tegernsee (1998)

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

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

[Giu91] C. Giunti et al., Phys. Rev. D, **44**, 3635 (1991)

[Gol97] T. Goldbrunner et al., J. Radioanal. Nuc. Chem., **216**, 293 (1997)

[Gol97a] T. Goldbrunner, Dissertation, Technische Universität München (1997)

[Gri96] W. Grimus, P. Stockinger, Phys. Rev. D, **54**, 3414 (1996)

[Gro97] Y. Grossmann, H. Lipkin, Phys. Rev. D, **55**, 2760 (1997)

[Gry75] E.M. Gryntakis, J.I. Kim, Radiochimica Acta, **22**, 128 (1975)

[Had76] J. Hadermann, K. Junker, Nucl. Phys. A, **271**, 401 (1976)

[Hag99] T. Hagner, Dissertation, Technische Universität München (1999), in Vorbereitung

[Hag99a] T. Hagner et al., „Myon Induced Production of Radio Instable Isotopes in Szintillation Detectors", in Vorbereitung

[Hat95] N. Hata and P. Langacker, Phys. Rev. D, **52**, 420 (1995), hep-ph/9409372

[Hax98] W.C. Haxton, „Uncertainties in the Solar Neutrino Flux“, Preprint, nucl-th/9819924 (1998)

[Hay69] S. Hayakawa, „Cosmic Ray Physics“, John Wiley & Sons (1969)

[Hei98] B. Heisinger, Dissertation, Technische Universität München (1998)

[Hel83] O. Helene, Nucl. Inst. Meth., **212**, 319 (1983)

[Hel97] J. Hellmig, H.V. Klapdor-Kleingrothaus, Z. Phys. A, **359**, 361 (1997)

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

[Hen98] R. v. Hentig, et al., Fresenius' J. Anal. Chem., **360**, 664 (1998)

[Heu92] G. Heusser, M. Woijcik, Appl. Radiat. Isot, **43**/1, 9 (1992)

[Heu95] G. Heusser, Annu. Rev. Nucl. Part. Phys., **45**, 543 (1995)

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

[Høg62] O.T. Høgdal, Report MMPP-226-1 (1962)

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

[Ish60a] T. Ishimori, Bull. Chem. Soc. Jap, **33**, 636 (1960)

[Jac87] D.J. Jacob, M.J. Prather, S.C. Wofsy, M.B. McElroy, J. Geophys. Res., **92**, 6614 (1987)

[Jun98] M. Junker et. al., Phys. Rev. C, **57**, 2700 (1998)

[Kaj98] T. Kajita, „Results of Kamiokande and Superkamiokande“, Proc. of Neutrino 98, Takayama, Japan (1998), hep-ex/9810001

[KAM95] KAMIOKANDE Collaboration, Proc. of. „Rencontre de Moriod“, Villars sur Ollon (1995)

[Kay81] B. Kayser, Phys. Rev. D, **24**, 110 (1981)

[Kay95] B. Kayser, L. Stodolsky, Phys. Lett. B, **359**, 343 (1995)

[Ker98] W. Kerl et al., Fresenius' J. Anal. Chem., **359**, 407 (1998)

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

[Koe91] L. Koester, H. Rauch, E. Seymann, Atomic Data and Nuclear Data Tables, **49**, 65 (1991)

[Koz85] T. Kozlowski et al., Nucl. Phys. A, **436**, 717 (1985)

[Kri85] V. Krivan in W. Fresenius, H. Günzler, W. Huber, I. Lüderwald, G. Tölg, H. Wisser (Eds.): Analytiker Taschenbuch Bd. 5, Springer Verlag, Berlin (1985)

[Kri98] V. Krivan et al, Fresenius' J. Anal. Chem., **360**, 527 (1998)

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

[Lau96] J. Laurec et al., Nucl. Instr. Meth. A, **369**, 566 (1996)

[Lau98] M. Laubenstein, Dissertation, Max Planck Institut für Kernphysik, Heidelberg (1998)

[Lau98a] M. Laubenstein, persönliche Mitteilung

[Lie97] K.H. Lieser, Nuclear and Radiochemistry, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim (1997)

[Lip95] H. Lipkin, Phys. Lett. B, **348**, 604 (1995)

[Loo69] H.H. Loosli, H. Oeschger, Earth and Planetary science letters, **7**/1, 67 (1969)

[Loo83] H.H. Loosli, Earth and Planetary Letters, **63**, 51 (1983)

[Loo99] H.H. Loosli, persönliche Mitteilung

[Mac65] B. MacDonald, et al., Phys. Rev. B., **135**/5, 1253 (1965)

[Mad68] A.G. Maddock et al,. Nuclear Chemistry , „The Chemical Effects on Nuclear Transformations", Vol. II, Academic Press, New York (1968)

[Mas82] Mason, Moore, „Principles of Geochemistry", 4th edition, John Wiley & Sons, New York (1982)

[McL95] V. McLane (Ed.) et al., The Cross Section Evaluation Group, Data Formats and Procedures for the evaluated Nuclear Data File ENDF-6, Report BNL-NCS-44945 (ENDF-102), Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, U.S.A. (1995)

[Mer98] E. Meroni, Kollaborationsinterner Bericht (1998)

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

[Mun92] A. Munter, Neutron News, **3**/3, 29 (1992)

[Nad69] R.A. Nadkarni, W.D. Ehmann, Radiochem. Radioanal. Lett., **2**/3, 161 (1969)

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

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

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

[Obe98] L. Oberauer, persönliche Mitteilung

[PDG92] K. Hikasa et al., Phys. Rev. D, **45**, 1 (1992)

[Pon53] B. Pontecorvo, Zh. Eksp. Theor. Fiz., **33**, 549 (1953)

[Pon69] B. Pontecorvo, Zh.. Eksp. Theor. Fiz., **53**, 1717 (1969)

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

[Rag88] R. Raghavan et al., AT&T Ball Labs, Technical Report 11131-880114-02TM (1988)

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

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

[Ric93] J. Rich, Phys. Rev. D, **48**, 4318 (1993)

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

[Sch95] G. Schwendt, „Analytische Chemie“, Gerog Thieme Verlag, Stuttgart (1995)

[Sch97] M. Schuster et al., Fresenius' J. Anal. Chem., **357**, 258 (1997)

[Sch98] S. Schönert, persönliche Mitteilung

[Sch98a] S. Schönert, Kollaborationsinterner Bericht (1998)

[Sch98b] S. Schönert et al., Nucl. Phys. B, **422**/1-4, 349 (1998)

[Sch99] S. Schönert, Nucl. Phys. B Proc. Suppl., **70**, 195 (1999)

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

[Sim80] A. Simonitis et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., **60**, 461 (1980)

[SNO97] R.M. Drees for the Sudbury Neutrino Observatory Collaboration, Proc. of „Fourth International Solar Neutrino Conference“, Heidelberg, April 8-11, (1997)

[SNO99] G. Jonkmans for the Sudbury Neutrino Observatory Collaboration, Nucl. Phys. B Proc. Suppl., **70**, 329 (1999)

[Sta62] I.E. Starik et al., Radiokhimica , **4**/1, 44 (1962)

[Sti98] M. Stix, „Solar Models“, Proc. of „Fourth SFB-375 Ringberg Workshop Neutrino Astrophysics October 20-24 1997“, Ringberg Castle, Tegernsee (1998)

[The96] P. Theodórsson, „Measurement of Weak Radioactivity“, World Scientific, Singapore (1996)

[Tre95] V.I. Tretyak, Y.G. Zdesenko, Atomic and Nuclear Data Tables, **61**, 43 (1995)

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

[Urc75] D. Urch, „Nuclear Recoil Chemistry in Gases and Liquids, Radiochemistry“, Vol. II, The Chemical Society, London (1975)

[Voj95] P. Vojtyla, Nucl. Instr. Meth. B, **100**, 87 (1995)

[Vol96] M.P. Voloynets, B. F. Myasoedov, Crit. Rev. Anal. Chem., **24**/4, 247 (1996)

[Wah96] W. Wahl et al., Nucl. Instr. Meth. A, **369**, 627 (1996)

[Wes60] C.H. Wescott, Report CRRP-960 of the AECL (1960)

[Will66] M.M.R. Williams, „The slowing down and thermalization of neutrons“, North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1966)

[Will87] D. Wildhagen, V. Krivan, Fresenius' J. Anal. Chem., **359**, 230 (1998)

[Wis58] L. Wish, Anal. Chem, **31**/3, 327 (1958)

[Wol78] L. Wolfenstein, Phys. Rev. D, **17**/9, 2369 (1978)

[Wol98] D. Wollenweber et al., Fresenius' J. Anal. Chem., **359**, 414 (1998)

[Wor96] R. Wordel et al., Nucl. Instr. Meth. A, **369**, 557 (1996)

[Yam89] M. Yamamoto et al., Radiocim. Acta, **47**, 63 (1989)

[Yas98] O. Yasuda, „$\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$ versus $\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$ Solutions“, Proc. of Neutrino 98, Takayama, Japan (1998)

[Zie83] A. Ziegler, J. Heithoff, „Reaktortechnik“ Bd. 1, Springer Verlag, Berlin (1983)

[Zuh98] W. Zuh et al., Fresenius' J. Anal. Chem., **360**, 74 (1998)

DANKSAGUNG

An dieser Stelle gilt es Dank zu sagen da diese Arbeit ohne die Unterstützung der unterschiedlichsten Seiten nicht zustande gekommen wäre.

Meinem Doktorvater Prof. Franz von Feilitzsch möchte ich an dieser Stelle ein Dankeschön für seine unermüdliche Unterstützung und sein stetes Interesse sagen. Nicht nur, daß ich mich mit ihm vortrefflich über Physik unterhalten kann, ebenso interessant waren die Gespräche über Demokratieverständnis, Jagd, Landwirtschaft und unzählbar viele Bereiche der Zeitgeschichte auf den langen Fahrten an den Gran Sasso. Meine süffisanten, wenn auch gut gemeinten Bemerkungen zu der einen oder anderen Gelegenheit möge er mir bitte nachsehen.

Herrn Prof. Franz Baumgärtner möchte ich für sein Interesse an unserem Arbeitsgebiet, die hilfreiche Unterstützung und die seitens seiner Mitarbeiter danken, von denen ich Frau Barbara Krafka an dieser Stelle besonders erwähnen möchte.

Herrn Prof. Michael Schuster und seinen Mitarbeitern Michael Schwarzer und Gabriel Risse möchte ich für wertvolle Hilfestellungen danken.

Herrn Prof. Eckehart Nolte darf ich an dieser Stelle meinen Dank sagen, da er mir nicht nur bei manchen Fragen der Physik weitergeholfen hat sondern auch die freudige Aufgabe hatte bei dem Bau des Untergrundlabors mit dem Bauamt einer Münchener Hochschule zu verhandeln.

Einem Wegbereiter dieser Arbeit, Herrn Thomas Goldbrunner, bin ich zu besonderem Dank verpflichtet. Sein überschäumender Optimismus ließ mich nie daran zweifeln, daß auch das ausgefallenste analytische Problem lösbar ist. Herrn Thomas Riedel darf ich für die tatkräftige Hilfe beim Aufbau der Detektoren und der Einrichtung des Labors danken ohne die das Labor vermutlich immer noch bodenlos wäre.

Unserer Institutssekretärin Frau Beatrice van Bellen möchte ich für das „Drumherum“, die Logistik und die Zusammenhalten aller Fäden in unserem Institut danken. Ihr Organisationstalent und ihr Gedächtnis haben mir manche Mühe erspart.

Meinen Freunden und Kollegen möchte ich für gemeinsam erlebtes und die großen wie kleinen Abenteuer danken. Dazu zählen nicht nur die Diskussionen über die ausgefallensten Gebiete der Physik, die Reisen mit Caren Hagner, Tanja Hagner und Hans Schnagl, sondern auch die Berg- und Skitouren mit Lothar Oberauer und Michael Altmann im gesamten Alpenraum.

Herrn Stefan Schönert und Frau Marianne Neff möchte ich für ihre Hilfe danken, die weit über die Fragestellungen bei BOREXINO hinausging. In besonderer Erinnerung sind mir Stefans Palazzi, die immer einen gastlichen Aufenthalt in L’Aquila boten.

Meinen kryophilen Kollegen Josef Jochum, Steffi Wänninger, Paul Hettl und Godehard Angloher bin ich für die gute Zusammenarbeit und die gemeinsamen Ausflüge verbunden.

Herrn Bernhard Heisinger danke ich für die Exkurse über Myonen, Bachs Violoncellosonaten, Cembali und wertvolle Literaturhinweise.

Herrn Gerstenberg und der Bestrahlungsgruppe am Forschungsreaktor darf ich für die Kooperationsbereitschaft und die Erfüllung unserer Sonderwünsche danken.

Für die Unterstützung durch unsere Ingenieure und Eckehard Kellner, Karlheinz Schuhbeck darf ich mich ebenso bedanken wie für die Ausführung mechanischer Arbeiten durch Herrn Erich Seitz, Herrn Harald Hess und Herrn Thomas Richter.

Herrn Gerd Heusser und Herrn Matthias Laubenstein danke ich für die hilfreiche Unterstützung und die gute Zusammenarbeit, die sich zwischen Heidelberg, München und Gran Sasso so unkompliziert gestaltete.

Schließlich seien die Seiten genannt von denen uns finanzielle Unterstützung zum Aufbau und Betrieb des Labors zuteil wurden. Die Arbeiten wurden durch den Sonderforschungsbereich 375, die Deutsche Forschungsgemeinschaft und das Beschleunigerlaboratorium der Münchener Hochschulen gefördert.

Dem Freistaat Bayern danke ich für das zweijährige Stipendium.

Meinen Eltern und Freunden darf ich für ihre Geduld und Unterstützung jenseits der Physik danken.