

# BACHELORARBEIT



an der Technischen Universität München  
Fakultät für Physik

## Aktivierung von $NaCl$ - Proben gemäß der Reaktion $^{35}Cl(n, \gamma)^{36}Cl$ durch Spaltneutronen

Activation of  $NaCl$  - Samples by Reaction  $^{35}Cl(n, \gamma)^{36}Cl$   
through Fission Neutrons

20. Juli 2018

Name: Anna Oberbauer  
Matrikelnummer: 03670019  
Studiengang: B.Sc. Physik  
Themensteller: Prof. Dr. S. Schönert  
Zweitgutachter: Dr. J. M. Friedrich



# Inhaltsverzeichnis

<b>Abstract</b>	<b>v</b>
<b>1 Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2 Aktivierung von <math>^{35}\text{Cl}</math> durch Spaltneutronen</b>	<b>3</b>
2.1 Kosmische und terrestrische Strahlung . . . . .	3
2.2 Abschätzung des Verhältnis $X/\text{Cl}$ . . . . .	4
2.3 Überprüfung potenzieller Radionuklide $X$ . . . . .	7
<b>3 Experimentelle Überprüfung mittels AMS</b>	<b>9</b>
3.1 Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) . . . . .	9
3.2 Experimenteller Aufbau am MLL . . . . .	10
3.2.1 Ionenquelle und Injektor Magnet . . . . .	10
3.2.2 Tandem - Beschleuniger . . . . .	11
3.2.3 Gas - filled Analyzing Magnet System (GAMS) . . . . .	12
3.2.4 Ionisationskammer . . . . .	13
3.3 Vorbereitung der Proben . . . . .	14
3.3.1 Siedesalz und Steinsalz . . . . .	14
3.3.2 Tiefseewasser . . . . .	14
3.4 Durchführung der Messungen . . . . .	16
3.5 Auswertung der gemessenen Daten . . . . .	18
3.5.1 Bestimmung einzelner Ereignisse . . . . .	18
3.5.2 Berechnung der Konzentration . . . . .	19
3.5.3 Betrachtung der Unsicherheiten . . . . .	20
<b>4 Ergebnisse und Interpretation</b>	<b>23</b>
<b>A Moderation der Neutronen</b>	<b>25</b>
<b>B Betrachtung diverser Spaltelemente</b>	<b>27</b>
<b>C Erklärung</b>	<b>29</b>



# Abstract

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Untersuchung diverser  $NaCl$  - Proben auf das langlebige Radionuklid  $^{36}Cl$  mit Hilfe der AMS - Einrichtung am Mair - Leibnitz - Laboratorium in München. Hierfür wurde Siedesalz ohne Zusätze, Steinsalz direkt aus dem Berchtesgadener Bergwerk sowie  $NaCl$  einer Tiefseewasserprobe verwendet. Das gesuchte Radionuklid entsteht durch Neutroneneinfang durch  $^{35}Cl$  gemäß der Reaktion  $^{35}Cl(n, \gamma)^{36}Cl$ . Der Anlass für diese Untersuchungen liegt in einer vorherigen Arbeit, welche sich ebenfalls mit der Analyse des Chlorisotops  $^{36}Cl$  beschäftigt. Hierbei wurde der Neutroneneinfang durch atmosphärische Neutronen untersucht. Letztendlich wurde kein Einfluss festgestellt[Leb17]. Allerdings konnte auch in denjenigen Proben, welche keiner zusätzlichen kosmischen Strahlung ausgesetzt wurden, ein erhöhtes Verhältnis von  $^{36}Cl$  zu  $Cl$  gemessen werden. Nun steht die Klärung der Herkunft der hierfür verantwortlichen Neutronen im Vordergrund dieser Arbeit. Der Fokus diesbezüglicher Überlegungen liegt auf schweren Radionukliden wie Uran und Thorium, bei deren Spaltung unter anderem die benötigten Neutronen für die eben genannte Reaktion frei werden. Es wird gezeigt, dass der Zerfall von  $^{238}U$  eine entsprechende Menge an Neutronen liefert und in etwa mit gegeben Literaturwerten bezüglich des Urangehalts im Herkunftsgebiet der Steinsalzprobe übereinstimmt. Eine direkte Messung des Urangehalts in den verwendeten Salzproben an der Universität Wien deutet auf eine geringere Urankonzentration hin, was aber wahrscheinlich auf Verluste in der chemischen Aufarbeitung zurückzuführen ist.



# Kapitel 1

## Motivation

Die Motivation für die im Anschluss angestellten Überlegungen sowie durchgeführten Messungen liegt in einer vorherigen Arbeit der GAMS - Gruppe am Maier - Leibnitz - Laboratorium in München. Hierbei sollte der Einfluss von Neutronen, welche in der Atmosphäre durch kosmische Strahlung gebildet werden, auf eine AMS - Probe untersucht werden. In diesem Fall wurde die Aktivierung einer NaCl - Probe (Berchtesgadener Salz) mittels der Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$  untersucht. Die Probe wurde hierfür für eine gewisse Zeit im Flugzeug transportiert und anschließend am Maier - Leibnitz - Laboratorium untersucht. Es stellte sich heraus, dass nicht nur die im Flugzeug transportierte Probe eine erhöhte  $^{36}\text{Cl}$  - Konzentration von  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 5,89 \cdot 10^{-16}$  aufwies, sondern auch eine Vergleichsprobe, welche keinen atmosphärischen Neutronen durch Flugzeugtransport ausgesetzt wurde. Somit war ausgeschlossen, dass die erhöhte  $^{36}\text{Cl}$  - Konzentration ausschließlich auf atmosphärische Neutronen zurückzuführen ist [Leb17]. Es muss eine andere Quelle von Neutronen existieren, welche auf terrestrischer Ebene mit  $^{35}\text{Cl}$  zu  $^{36}\text{Cl}$  reagieren.

Im Zuge dieser Arbeit werden erneut NaCl - Proben untersucht. Zum einen wird Siedesalz ohne Zusätze, also das aus Salzbergwerken oder aus Quellen stammende, eingedampfte, salzhaltige Wasser, die so genannte Sole, betrachtet. Um jedoch eine mögliche Vorbelastung durch Wasser in Bezug auf die  $^{36}\text{Cl}$  - Konzentration auszuschließen, wird des weiteren eine Steinsalzprobe untersucht. Diese besteht aufgrund dessen, dass sie direkt aus dem Bergwerk in Berchtesgaden kommt und nicht vorbehandelt wurde, neben NaCl auch ungefähr zur Hälfte aus Gestein. Zudem wird auch eine Tiefseewasserprobe analysiert. (Der Grund hierfür ist in Abschnitt 2.3 zu finden.)





## Kapitel 2

# Aktivierung von $^{35}\text{Cl}$ durch Spaltneutronen

### 2.1 Kosmische und terrestrische Strahlung

Grundsätzlich ist auf der Erde zwischen verschiedenen Arten von ionisierender Strahlung zu unterscheiden.

**Kosmische Strahlung** bezeichnet hochenergetische Teilchen aus dem Weltall. Sie umfasst vorwiegend Protonen und Heliumkerne. Ein großer Teil dieser kosmischen Strahlung wird bereits durch die Atmosphäre sowie das Erdmagnetfeld aufgehalten. Umso höher man sich folglich in der Atmosphäre befindet, desto mehr kosmische Strahlung ist vorhanden. Kosmische Strahlung kann in drei verschiedene Arten unterteilt werden. Solare kosmische Strahlung umfasst hauptsächlich Protonen und  $\alpha$ -Teilchen mit Energien bis zu  $10^9\text{eV}$ . Galaktische Strahlung zeichnet sich durch sehr hohe Energien von 1 GeV und höher aus. Extragalaktische Strahlung setzt sich schließlich aus Teilchen mit Höchstenergien im Bereich von bis zu  $10^{20}\text{eV}$  zusammen. Bei Eintritt in die Atmosphäre werden durch die kosmische Strahlung Teilchenschauer erzeugt. Aufgrund der hohen Teilchenenergien entstehen zahlreiche Sekundärteilchen. Durch Spallationsreaktionen können schließlich Neutronen entstehen[Gru15]. In Abbildung 2.1 ist die schematische Darstellung einer solchen Kaskade zu sehen.

**Terrestrische Strahlung** entsteht durch radioaktive Kerne. Die von der Erde ausgehende Strahlung entsteht unter anderem beim Zerfall beziehungsweise bei der Spaltung radioaktiver Elemente. Dabei kommt es zur Umwandlung eines schweren Kerns in zwei leichtere Tochternuklide. Zudem kommt es jedoch auch hier zur Aussendung von  $\alpha$ -Teilchen (Heliumkerne),  $\beta$ -Strahlung (Elektronen oder Positronen),  $\gamma$ -Strahlung und Spaltneutronen[Kri12].

In welchem Ausmaß die Aktivierung von  $^{35}\text{Cl}$  durch Spaltneutronen herbeigeführt wird, soll im Zuge dieser Arbeit genauer untersucht werden. Des Weiteren besitzen Myonen ein hohes Durchdringungsvermögen und könnten möglicherweise ebenfalls zur Aktivierung von  $^{35}\text{Cl}$  beitragen. Allerdings wird im folgenden lediglich die Aktivierung durch freiwerdende Spaltneutronen untersucht.

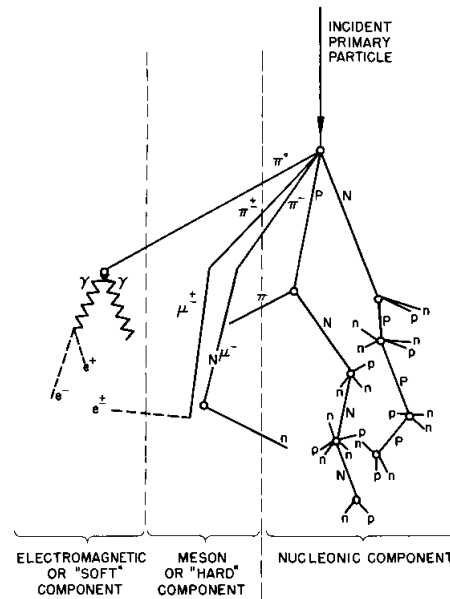


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines kosmischen Teilchenschauers, welcher von einem hochenergetischen Teilchen in der Atmosphäre in 20 km Höhe ausgelöst wurde [Wol]

## 2.2 Abschätzung des Verhältnis $X/\text{Cl}$

Im Fokus bei der Suche nach einer möglichen Neutronenquelle lagen diverse schwere Kerne mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit für spontane Spaltung (sf), bei deren Zerfall im Mittel drei Neutronen frei werden. Grundidee hierbei war die Gleichsetzung der Zerfallsrate von  $^{36}\text{Cl}$ , welches eine Halbwertszeit von etwa  $3 \cdot 10^6$  a hat, mit der Zerfallsrate desjenigen untersuchten Isotops  $X$ . Die Zerfallsrate lässt sich mit Hilfe des Zerfallsgesetzes,

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t} \quad (2.1)$$

zu

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot N_0 \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot t} \quad (2.2)$$

bestimmen.

Untersucht wurden die beiden Uran - Isotope  $^{238}\text{U}$  und  $^{235}\text{U}$ , und das Thorium - Isotop  $^{232}\text{Th}$ . Unter Beachtung der Tatsache, dass bei den betrachteten Zerfällen im Mittel jeweils 3 Neutronen frei werden, sowie dass jedes Isotop eine spezifische Wahrscheinlichkeit für spontanen Zerfall besitzt, ergibt sich schließlich:

$$\text{Aktivität}({}^{36}\text{Cl}) = 3 \cdot (\text{sf}) \cdot \text{Zerfallsrate}(X) \quad (2.3)$$

wobei  $X = \{^{238}U, ^{235}U, ^{232}Th\}$  für die verschiedenen Isotope steht, und der Term  $(sf)$  die Wahrscheinlichkeit für spontane Spaltung wiedergibt. Allerdings wurde hierbei noch nicht berücksichtigt, dass die freiwerdenden Neutronen kurz nach dem Zerfall Energien zwischen  $1 MeV$  und  $8 MeV$  besitzen. Jedoch ist der Neutroneneinfang von  $^{35}Cl$  vor allem im thermischen Bereich, also im Bereich von  $meV$ , dominant. In diesem Bereich kann davon ausgegangen werden, dass jedes Neutron durch ein  $^{35}Cl$  - Atom eingefangen wird. Für die anderen Bereiche wird hier ein weiterer Faktor  $P^n$  eingeführt.

$$P^n = \left(1 - \frac{3}{8} \cdot \frac{\sigma_{^{35}Cl(n,p)}}{\sigma_{tot}}\right)^n \quad (2.4)$$

$P^n$  bezeichnet hierbei die Wahrscheinlichkeit, dass das Neutron beim  $n$  - ten Stoß gestreut wird und nicht etwa eine in diesem Fall unerwünschte  $(n, p)$  - Reaktion eingeht. Grundsätzlich existieren auch weitere unerwünschte Reaktionen, wie Stöße an einem  $Na$  - Atom. Da die Wirkungsquerschnitte in diesem Fall aber in jedem der betrachteten Bereiche deutlich kleiner sind wurden diese in der nachfolgenden Rechnung vernachlässigt. Weitere Reaktionen, welche nach einem Alpha - Zerfall ebenfalls Neutronen liefern sind  $(\alpha, n)$  - Reaktionen. Allerdings sind diese nicht dominant und wurden somit vernachlässigt.  $\sigma_{tot}$  entspricht der Summe aus  $\sigma_{^{35}Cl(n,p)}$ ,  $\sigma_{^{35}Cl(n,\gamma)}$  und  $\sigma_{^{35}Cl(n,ne\text{elast})}$ . Diese bezeichnen hierbei die Wirkungsquerschnitte für Einfang eines Neutrons und Aussendung eines Protons, den Neutroneneinfang unter Aussendung eines Gammaquants sowie für elastische Streuung. Der Faktor  $3/8$  entspricht dem Isotopenanteil an  $^{35}Cl$  in  $NaCl$ . Die betrachteten Wirkungsquerschnitte sind abhängig vom jeweils betrachteten Energiebereich und können stark variieren. (Siehe Abbildung 2.2, 2.3 sowie 2.4) Die jeweils benötigte Anzahl  $n$  an Stößen, welche zur Moderation bis hin zu einer bestimmten Energie nötig ist, wurde mit Hilfe des Energiedekrements  $\xi$  bestimmt. Das Energiedekrement gibt den natürlichen Logarithmus des mittleren Energieverlustes eines Neutrons beim Stoß mit einem Atomkern des Moderators an. Das Verhältnis von  $E_{vor}/E_{nach}$ , also  $e^\xi$ , beträgt bei  $^{35}Cl$   $E_{vor}/E_{nach} = 1,058$ . Hieraus lässt sich schließlich folgern, dass zwölf Stöße nötig sind, um einen Energieverlust von  $1/2$  zu erreichen. Hiermit kann nun für jeden beliebigen Energiewert die Anzahl der Stöße ermittelt werden, mit welcher dieser, ausgehend von der eben genannten, ursprünglichen Energie von Spaltneutronen, erreicht werden kann. Da es nicht möglich ist, für jeden einzelnen Energiewert eine genaue Wahrscheinlichkeit  $P^n$  zu bestimmen, wurden zur Abschätzung einzelne Energiebereiche ausgewählt und untersucht, in denen ein Konkurrenzprozess von Bedeutung sein könnte. (Die einzelnen Energiebereiche sowie die Berechnung der  $P^n$  - Werte sind unter Abschnitt A auf S.25 zu finden.) Diese einzelnen bestimmten Werte für  $P^n$  wurden anschließend miteinander multipliziert und mit  $\prod P^n = 0,36$  folgendermaßen in Gleichung 2.3 integriert:

$$Aktivität(^{36}Cl) = 3 \cdot 0,36 \cdot (sf) \cdot Zerfallsrate(X) \quad (2.5)$$

Unter Verwendung von Gleichung 2.2 erhält man:

$$^{36}Cl \cdot \frac{\ln 2}{T_{1/2}(^{36}Cl)} \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}(^{36}Cl)} \cdot t} = 1,08 \cdot (sf) \cdot X \cdot \frac{\ln 2}{T_{1/2}(X)} \cdot e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}(X)} \cdot t} \quad (2.6)$$

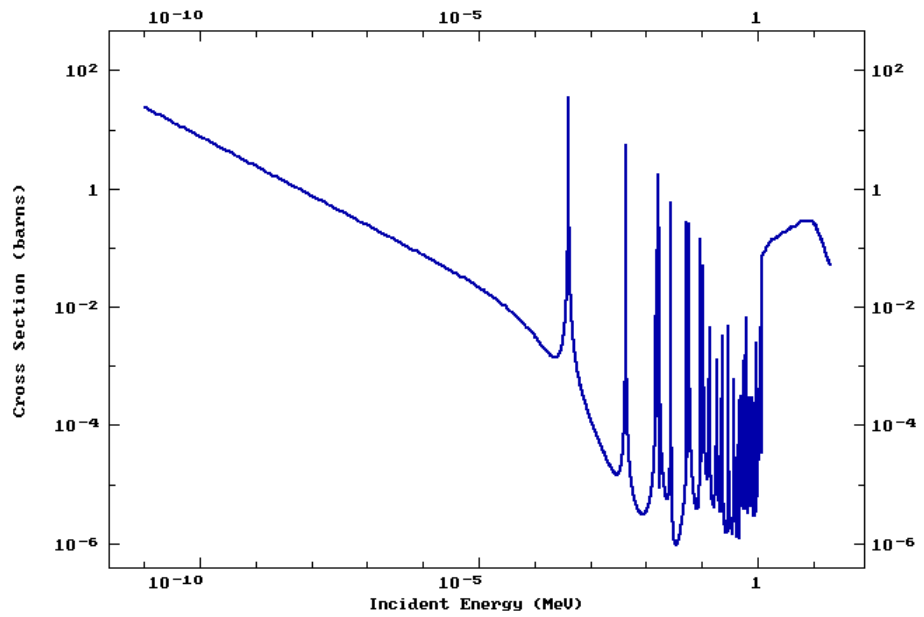


Abbildung 2.2: Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für den Einfang eines Neutrons unter Aussendung eines Protons  $\sigma_{^{35}\text{Cl}(n,p)}$ [Cha+]

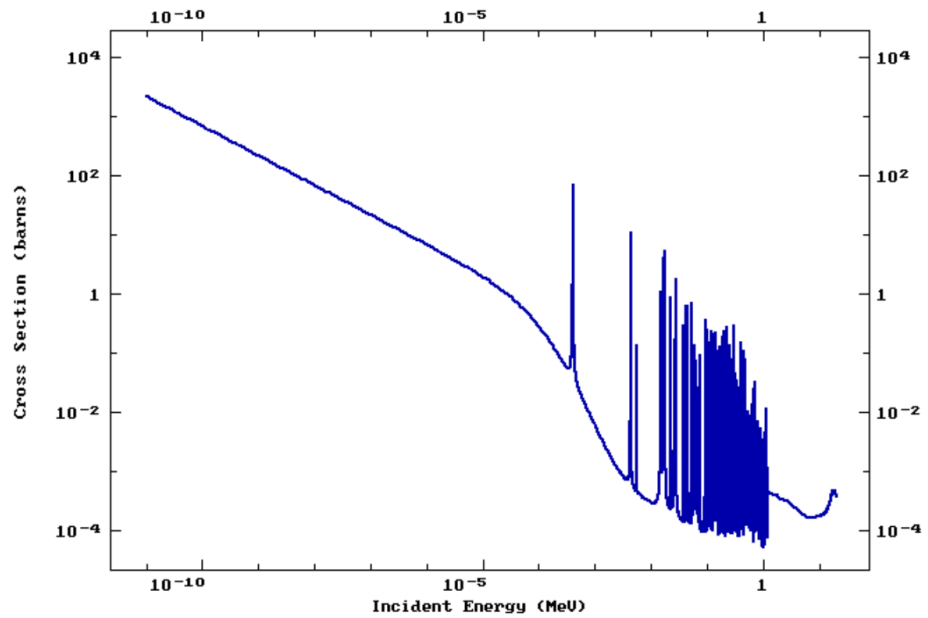


Abbildung 2.3: Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für den Einfang eines Neutrons unter Aussendung eines Gammaquants  $\sigma_{^{35}\text{Cl}(n,\gamma)}$ [Cha+]

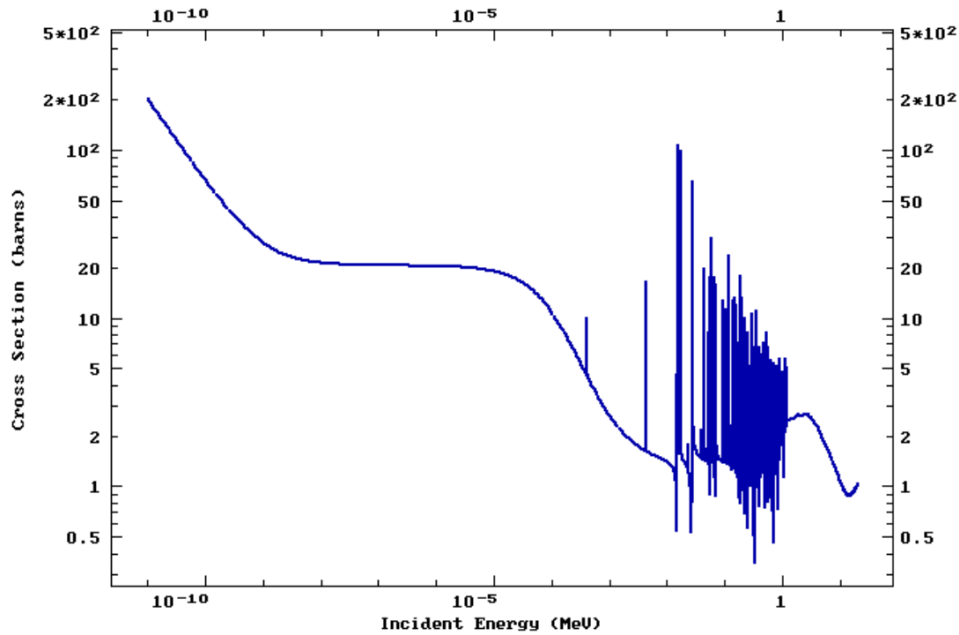


Abbildung 2.4: Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für elastische Stöße eines Neutrons  $\sigma_{^{35}\text{Cl}(n,ne\text{last})}[\text{Cha}+]$

Diese Gleichung kann durch zwei Annahmen vereinfacht werden. Der erste Exponentialterm  $\exp(-\ln 2/T_{1/2}(^{36}\text{Cl}) \cdot t)$  ist eins, da man von einem Gleichgewichtszustand ausgeht, in welchem  $t = 0$  gilt. Der zweite Exponentialterm  $\exp(-\ln 2/T_{1/2}(X) \cdot t)$  ist ebenfalls gleich eins aufgrund der hohen Halbwertszeiten der betrachteten Nuklide. Somit ergibt sich eine Gleichung, welche das Verhältnis des jeweiligen Isotops  $X$  zu  $^{36}\text{Cl}$  lediglich in Abhängigkeit von deren Halbwertszeiten sowie Wahrscheinlichkeiten für spontane Spaltung, angibt:

$$\frac{X}{^{36}\text{Cl}} = \frac{1}{1,08 \cdot (sf)} \cdot \frac{T_{1/2}(X)}{T_{1/2}(^{36}\text{Cl})} \quad (2.7)$$

Zudem lässt sich hiermit auch eine Gleichung, welche das Verhältnis zwischen Isotop  $X$  und Element (in diesem Fall  $\text{Cl}$ ) angibt, erzeugen:

$$\frac{X}{\text{Cl}} = \frac{^{36}\text{Cl}}{\text{Cl}} \frac{1}{1,08 \cdot (sf)} \cdot \frac{T_{1/2}(X)}{T_{1/2}(^{36}\text{Cl})} \quad (2.8)$$

Letztendlich hängt diese Gleichung nur noch von den Halbwertszeiten und der Wahrscheinlichkeit für spontane Spaltung ab.

## 2.3 Überprüfung potenzieller Radionuklide X

In Tabelle 2.1 sind die Vergleichswerte für die verschiedenen Isotope  $X$  ausgehend von einer Konzentration von  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  von  $1 \cdot 10^{-16}$  zu sehen. (Eine ausführ-

X	$X/\text{Cl}$	Literaturwert[Ber+14] $X/\text{Cl}$
$^{238}\text{U}$	$9,08 \cdot 10^{-7}$	$1,25 \cdot 10^{-6}$
$^{235}\text{U}$	$1,11 \cdot 10^{-3}$	$8,75 \cdot 10^{-9}$
$^{232}\text{Th}$	$1,60 \cdot 10^{-1}$	$2,45 \cdot 10^{-6}$

Tabelle 2.1: Vergleich des berechneten Verhältnisses (Anzahl) für  $X/\text{Cl}$  mit Literaturwerten [Ber+14]

lichere Übersicht über die verwendeten Parameter ist in Tabelle B.1 auf S. 27 im Anhang zu finden.) Hierbei ist zu erkennen, dass  $^{238}\text{U}$  das einzige relevante Radionuklid ist. Dies kann man zum einen durch den Term  $X/^{36}\text{Cl}$  in Tabelle B.1, in Spalte 4, sehen, da das Verhältnis für die Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  zur Anzahl der  $^{36}\text{Cl}$ -Atome sehr groß sein müsste, was ausgeschlossen ist. Eine zuverlässigere Überprüfung konnte auch anhand von bekannten Literaturwerten[Ber+14] über den Uran-beziehungsweise Thoriumgehalt in Gesteinen in verschiedensten Gebieten Österreichs durchgeführt werden. Hierfür wurde ein Gebiet in der Nähe des Berchtesgadener Bergwerks ausgewählt und die für dort gegebenen Werte in Bezug auf das korrekte Isotopenverhältnis sowie die Zusammensetzung des Gesteins angepasst. Da sich diese Werte jedoch auf ein Element und kein einzelnes Isotop beziehen, wurden diese Werte, wie gerade eben erwähnt, mit dem jeweiligen Isotopenverhältnis multipliziert. Zudem wurde der Wert durch den Faktor vier geteilt, da von einer Zusammensetzung im Verhältnis 1 : 1 von Salz und Gestein ausgegangen wird. Insbesondere wird davon ausgegangen, dass Salz und Gestein gleichmäßig miteinander vermischt sind. Zudem ist man in diesem Fall nur an  $\text{Cl}$  und nicht an  $\text{Na}$  interessiert, welches den zweiten Faktor  $1/2$  erklärt. Aufgrund dessen, dass es sich hierbei nur um die Abschätzung der Eignung einzelner Isotope geht, sind diese vereinfachenden Annahmen für diesen Teil ausreichend.

Eine genaue Überprüfung dieser Theorie erfolgt schließlich über eine erneute Messung des  $^{36}\text{Cl}$ -Gehalts diverser Salzproben sowie einer direkten Referenzmessung des Urangehalts in den untersuchten Salzen. Des Weiteren wird eine Tiefseewasserprobe untersucht. Hiermit soll insbesondere gezeigt werden, dass das Uran (in diesem Fall  $^{238}\text{U}$ ), welches eine Halbwertszeit von mehreren Milliarden Jahren hat, sich bereits vor der Entstehung des Gebirges im Meerwasser befand, und sich bei der Sedimentation des Gesteins sowie auch des Salzes darin festgesetzt hat. Ausgehend von einem Salzgehalt im Meer von ca. 3,5%, welches schließlich 20g Chlor pro l Meerwasser entspricht, und einer ebenfalls bekannten und ziemlich konstanten Uranmenge von  $3,3\mu\text{g}$  pro l Meerwasser erhält man hier ein Massenverhältnis von  $^{238}\text{U}/\text{Cl} = 1,7 \cdot 10^{-7}$ . Dieser Wert unterscheidet sich kaum vom verwendeten Literaturwerten in Tabelle 2.1 (Spalte drei, Zeile zwei) für Gesteinsproben. In Abschnitt 3 sowie 4) befindet sich eine weitere Tabelle (4.2), in der zur Überprüfung dieselbe Rechnung mit den im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Konzentrationen für  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ , erneut durchgeführt wurde. Zu sehen ist auch hier, dass lediglich die Werte für das Verhältnis von  $^{238}\text{U}$  zu  $\text{Cl}$  in einer ähnlichen Größenordnung liegt und somit als einziges Radioisotop als Hauptquelle für Spaltneutronen in Frage kommt.

## Kapitel 3

# Experimentelle Überprüfung mittels AMS

### 3.1 Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)

Beschleunigermassenspektrometrie ist eine hochsensitive Messmethode zur Bestimmung der Konzentration von Radioisotopen mit einer Lebensdauer im Bereich von  $10^3 a \leq T_{1/2} \leq 10^8 a$ . Die Besonderheit der AMS ist, dass hierbei die Atome der radioaktiven Isotope direkt gemessen werden und nicht deren Zerfallsprodukte. Somit liegt der entscheidende Vorteil der AMS darin, dass hier insbesondere Isotope mit relativ langen Halbwertszeiten und bereits mit Hilfe kleinster Probenmengen gemessen werden können. Ziel von AMS - Messungen ist die Bestimmung des Verhältnisses von der Anzahl der Atome einer langlebigen radioaktiven Spezies zu einem stabilen Isotop desselben Elements. Der grundlegende Aufbau für AMS - Experimente ist in der Regel immer derselbe. Es werden typischerweise kleinste Probenmengen, im Bereich von wenigen *mg*, in einen Probenhalter gepresst und anschließend in eine Ionenquelle eingesetzt. Hierbei treten schließlich negativ geladene Ionen aus, welche beispielsweise am Maier - Leibnitz - Laboratorium in München mit einem Tandem-Beschleuniger mit Spannungen bis zu 14MV beschleunigt werden. Diese Spannung ist unter anderem nötig, um die negativ geladenen Elektronen von den Ionen zu stripfen, wobei es zur Aufbrechung molekularer Bindungen kommt. Zur Unterdrückung unerwünschter Isotope mit abweichender Massenzahl trägt eine Kombination aus magnetischen Dipolen und Wien-Filtern bei. Dennoch wird die Identifizierung einzelner Atome durch Isobare sowie Ionen mit gleicher magnetischer Steifigkeit erschwert. Die Detektion der einzelnen Teilchen erfolgt meist über die Bestimmung des Energieverlustes (Ionisationskammer), die absolute Energie (z.B. Siliziumdetektor) oder deren Geschwindigkeit (Time-of-Flight-Messung). Der Vergleich der gezählten Ionen mit dem stabilen Referenzisotop liefert schließlich das gesuchte Atomverhältnis im Probenmaterial. Ein quantitatives Ergebnis kann durch die Verwendung eines Blanks (hier werden keine Isotope erwartet) und eines Standards (besitzt eine bekannte Konzentration des untersuchten Isotops) erreicht werden. Allerdings muss hierbei auch bedacht werden, dass es durch die Verwendung eines Standards zu Cross - Kontamination zwischen den einzelnen Messungen kommen kann. Zudem ist es oft schwierig, geeignetes Standard- und

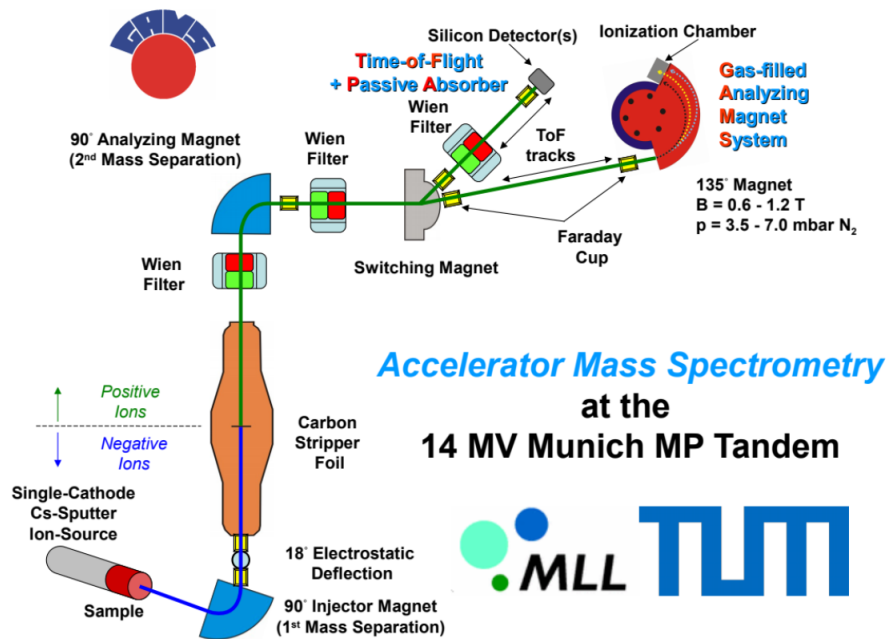


Abbildung 3.1: AMS-Experiment am MLL

Blankmaterial herzustellen. Mit AMS können letztendlich Konzentrationen bis zu  $10^{-17}$  gemessen werden.

## 3.2 Experimenteller Aufbau am MLL

Der Aufbau der AMS am MLL in Garching ist in Abbildung 3.1 zu sehen. Der 14MV - Beschleuniger wird in den verschiedensten Forschungsgebieten von Bio - Medizin bis hin zu nuklearer Astrophysik, eingesetzt. Insgesamt gibt es zwei verschiedene Strahlrohre speziell für AMS - Messungen. Diese unterscheiden sich vor allem durch die Art und Weise, wie die entsprechenden Isotope detektiert werden. Es gibt ein Strahlrohr, welches speziell für die Messung von schweren Isotopen wie Aktiniden ausgelegt ist, und mit einem Time - of - Flight (ToF) Detektionssystem verbunden ist. Das zweite Strahlrohr ist mit einem gasgefüllten Analysemagnet - System (GAMS) verbunden und eignet sich besonders gut zur Unterdrückung von Isobaren. Die für diese Messung relevanten Komponenten werden nachfolgend genauer erläutert.

### 3.2.1 Ionenquelle und Injektor Magnet

Nachdem die Probe in einen Kupferhalter gepresst wurde, kann dieser auf eine spezielle Stange geschraubt werden, welche das Einführen in die Ionenquelle erleichtert. (Vergleiche Abbildung 3.2) Dadurch, dass diese Stange wassergekühlt ist, wird die Bildung von negativen Ionen verstärkt, da sich das durch ein beheiztes Cs - Reservoir zugeführte Cäsium auf der Oberfläche der Probe absetzen



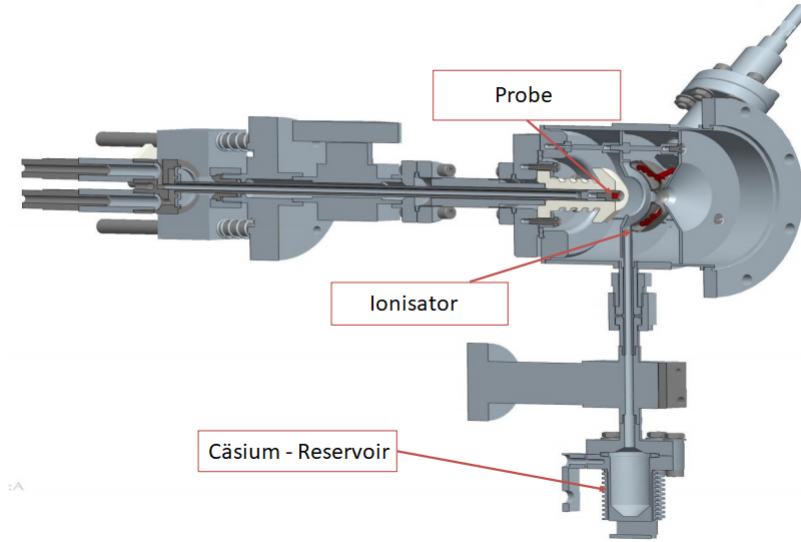


Abbildung 3.2: Querschnitt durch die Ionenquelle

kann. Die  $Cs$  - Atome werden an einem bis zu  $1300^{\circ}C$  heißen Tantal Ionisator ionisiert. Die Quelle wird schließlich auf  $p = 10^{-6}mbar$  evakuiert. Durch eine Sputter - Spannung von  $U_{sp} = 5kV$  werden die  $Cs^{+}$  - Ionen zur Probe hin beschleunigt und schlagen dort sowohl negativ geladene, aber größtenteils ungeladene Teilchen aus der Probe heraus. Negative Ionen werden schließlich durch eine Extraktionsspannung von  $U_{ex} = 23kV$ , und einer Energie von insgesamt  $28keV$ , in Richtung eines  $90^{\circ}$  - Injektor Magneten beschleunigt. Dieser dient einer ersten Massenseparation, da sich die Flugbahnen aufgrund der ungleichen Massen unterscheiden. Anschließend wird der Strahl unter  $18^{\circ}$  - Ablenkung, welche einer erforderlichen Energieseparation dient, in den Tandem - Beschleuniger geleitet.

### 3.2.2 Tandem - Beschleuniger

Die negativ geladenen Ionen treten in den Tandem ein und werden zu einem positiv geladenen Terminal in der Mitte des Tandems beschleunigt. Hierbei passieren sie eine sehr dünne ( $4\mu g/cm^2$ ) Kohlenstoff - Folie, welche Elektronen von den Ionen strippt. Die (mehrfach) positive Ladung bewirkt eine erneute Beschleunigung. Der Tandem wird schließlich mit folgender Gesamtenergie  $E_{kin}$  verlassen:

$$E_{kin} = e \cdot (U_{sp} + U_{ex} + U_{in}) + e \cdot U_{Tandem} \cdot \frac{M_{Ion}}{M_{Molekül}} + q \cdot e \cdot U_{Tandem} \quad (3.1)$$

$U_{Tandem}$  entspricht hierbei der Terminalspannung, welche bei Messungen mit Chlorisotopen im Bereich von  $U_{Tandem} = 11MV$  liegt.  $U_{sp}$  und  $U_{ex}$  entsprechen



Abbildung 3.3: MLL - Beschleunigerhalle; Tandem (orange) und  $90^\circ$  - Magnet (blau)

der bereits in Abschnitt 3.2.1 erwähnten Sputter - und Extraktionsspannung.  $U_{in}$  stellt die Injektorspannung dar, welche  $150\text{kV}$  beträgt.  $e$  entspricht der Elementarladung, die Ladung  $q$  hingegen der Ladung der Ionen, welche in der Regel mehrfach geladen sind. Bei Chlorionen wird beispielsweise ein Ladungszustand von  $10+$ , also  $q = 10$ , gewählt. Der Term  $M_{Ion}/M_{Molekül}$  wird benötigt, sofern ein Isotop nicht als atomares Ion, sondern nur als Molekül aus der Ionenquelle extrahiert wird. Danach durchläuft der Strahl einen Wien-Filter, welcher selektiv auf die Geschwindigkeit wirkt. Daraufhin gelangt der Strahl in einen  $90^\circ$  - Magnet mit einem maximalen Magnetfeld von  $B = 1,6\text{T}$  und einem Ablenkradius von  $\rho = 1,67\text{m}$ . (Siehe 3.1 sowie 3.3) Dieser wird auf die magnetische Steifigkeit  $B \cdot \rho = p/(q \cdot e)$  der entsprechenden Teilchen eingestellt. Durch einen weiteren Magnet wird der Strahl schließlich in das Strahlrohr zum GAMS gelenkt.

### 3.2.3 Gas - filled Analyzing Magnet System (GAMS)

Das GAMS ist für die Separation von Isobaren zuständig. Es besteht, wie der Name bereits verrät, aus einer mit  $N_2$  - Gas bei Drücken von  $p = 3\text{mbar}$  bis  $p = 7\text{mbar}$  gefüllten Magnetkammer, wobei der Magnet bei einem Magnetfeld im Bereich von  $B = 600\text{mT}$  bis hin zu  $B = 1,25\text{T}$  arbeitet. Er besitzt einen Radius von  $90\text{cm}$  und einen Ablenkwinkel von  $135^\circ$  (Siehe 3.4.) Isobare besitzen zwar gleiche Massen, unterscheiden sich jedoch in ihrer Ladungszahl  $Z$ . Kommt es nun zur Kollision mit  $N_2$  - Teilchen, so hängt die Anzahl der Elektronen, die die Ionen dadurch verlieren, von ihrer spezifischen Elektronenkonfiguration

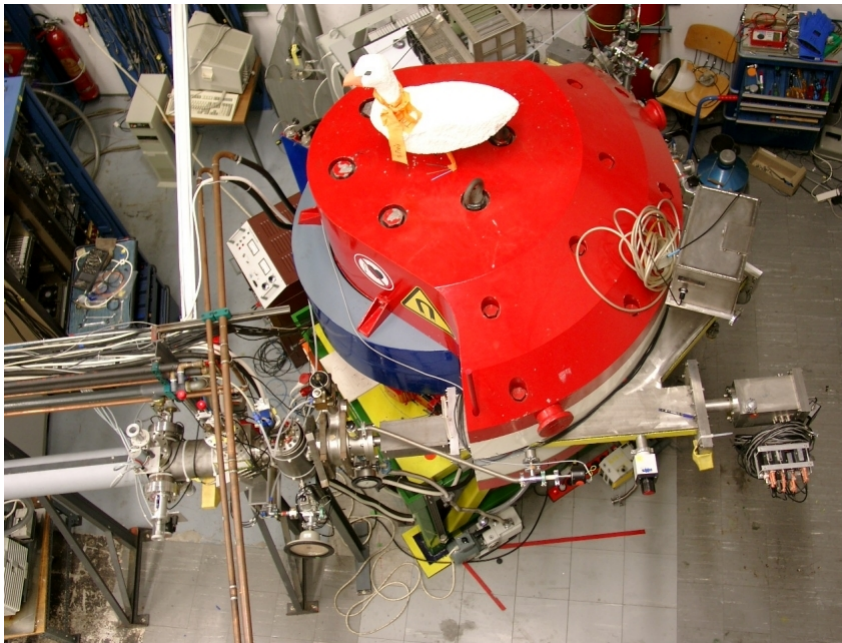


Abbildung 3.4: GAMS - filled Analyzing Magnetic System (GAMS)

ab. Für den mittleren Ladungszustand durch die Stöße gilt:  $\bar{q} \propto Z^{1/3}$  [Kni97]. Hierdurch verändert sich letztlich auch die magnetische Steifigkeit. Folglich gilt:  $B\rho \propto M/Z^{1/3}$ . Dies bewirkt eine Änderung der Flugbahn der einzelnen Ionen und ermöglicht somit eine gute Trennung im Detektor.

### 3.2.4 Ionisationskammer

Die Detektion erfolgt mit Hilfe einer Ionisationskammer. Diese ist direkt mit dem GAMS verbunden und sie besteht aus fünf hintereinander liegenden Anoden und einem sogenannten Frisch - Gitter. Sie ist mit  $C_4H_{10}$  (Isobutan) bei Drücken von  $p = 30\text{mbar}$  bis  $p = 60\text{mbar}$  gefüllt. Die ersten zwei Anoden sind zusätzlich diagonal unterteilt, was insgesamt zu acht verschiedenen Signalen führt, welche die jeweilige Energie wiedergeben sowie auch Ort und Winkel angeben können. An Kathode und Gitter wird jeweils eine Spannung von  $U = -700\text{V}$  beziehungsweise  $U = -280\text{V}$  angelegt, wobei die Anoden geerdet sind. Bei Isobaren unterscheiden sich deren Bragg-Kurven im Detektorgas dahingehend, dass der jeweilige Energieverlust  $\Delta E$  in den Energie-Spektren der Anoden zu erkennen ist und somit zwischen eigentlicher Probe und deren Verunreinigung unterschieden werden kann. Sofern die Teilchenrate im Bereich von  $\text{kHz}$  liegt, spielt die Totzeit eine immer größer werdende Rolle.

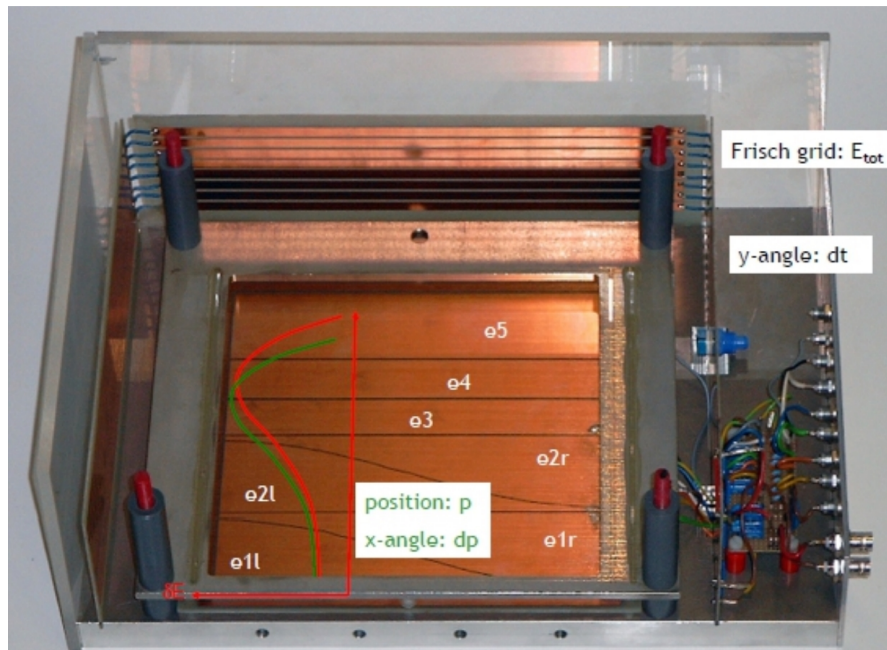


Abbildung 3.5: Ionisationskammer

### 3.3 Vorbereitung der Proben

#### 3.3.1 Siedesalz und Steinsalz

Wie bereits in 1 erwähnt, werden verschiedene Salzproben untersucht. Sowohl das Steinsalz (Abbildung ??) als auch das Siedesalz wurden für den Einbau in die Quelle mit Kupferpulver vermischt und anschließend in entsprechende Probenhalter aus Kupfer gepresst. Das Siedesalz wurde hierfür lediglich mit einem Mörser zerkleinert. (Abbildung 3.6) Das Steinsalz hingegen wurde aufbereitet, um mögliche Verunreinigungen wie Gesteinsreste zu entfernen. Speziell die Verunreinigung durch Gestein spielte in diesem Fall eine große Rolle, da dieses Schwefel beinhalten könnte.  $^{36}\text{S}$  ist isobar zu  $^{36}\text{Cl}$  und würde somit die Auswertung der Daten erheblich erschweren oder sogar unmöglich machen. Insgesamt wurde das Steinsalz nach Auflösen in destilliertem  $\text{H}_2\text{O}$  drei mal gefiltert. Zunächst wurde ein  $3\mu\text{m}$ -Filter verwendet und danach zwei  $0,1\mu\text{m}$ -Membran-Filter. (Abbildung 3.8) Zum Schluss wurde die gefilterte Lösung eingedampft und ebenfalls mit einem Mörser zerkleinert.

#### 3.3.2 Tiefseewasser

Um die gemessenen  $^{36}\text{Cl}$ -Konzentrationen im Salz mit dem  $^{36}\text{Cl}$ -Gehalt (über den bekannten  $U$ -Gehalt) in Meerwasser vergleichen zu können, wurden zusätzlich Tiefseewasserproben untersucht. Da diese sehr schwefelhaltig waren, musste zunächst eine entsprechende Chemie zur Schwefelunterdrückung durchgeführt werden, um schließlich brauchbare Messergebnisse zu erzielen. Die Schwefel-





Abbildung 3.6: Vermengung des gemahlene Siedesalzes mit Kupfer

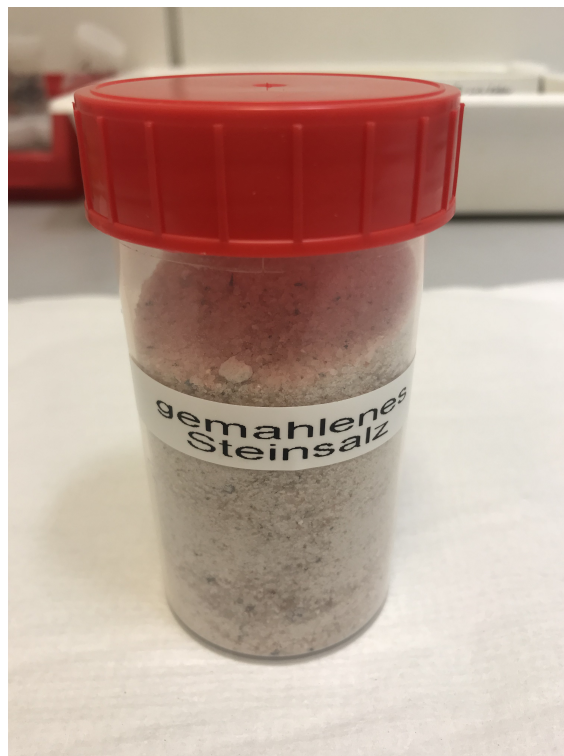


Abbildung 3.7: Steinsalz aus dem Berchtesgadener Bergwerk

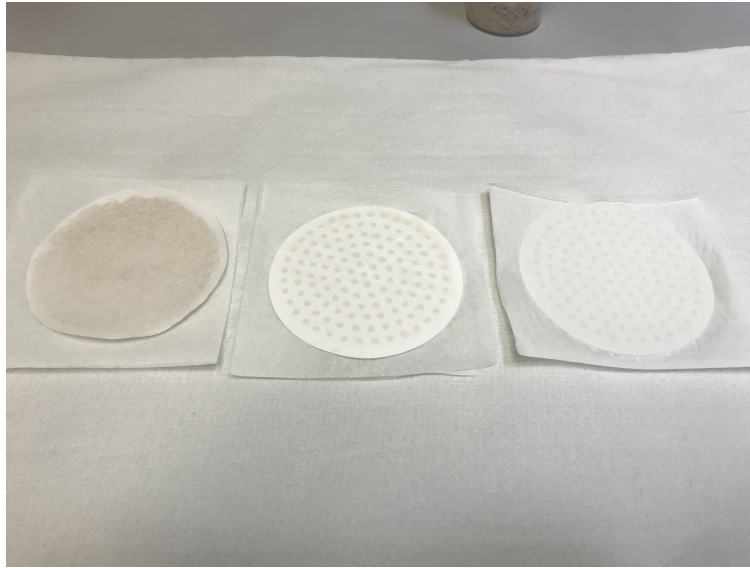


Abbildung 3.8: Einzelne Filterungsdurchgänge bei der Vorbereitung des Steinsalzes

suppression erfolgte in mehreren Schritten. Insgesamt wurden drei verschiedene Proben mit dem bereits eingedampften Tiefseewassers vorbereitet. Diese unterschieden sich jedoch nur in der jeweils verwendeten Menge des eingedampften Produktes, welche einmal  $10\mu\text{g}$ , einmal  $15\mu\text{g}$  und einmal  $30\mu\text{g}$  betrug. Dies diente lediglich dazu, herauszufinden, welche Menge sich am besten für derartige Chemie eignet. (Es stellte sich heraus, dass die prozentuale Ausbeute in dieser Größenordnung unabhängig von der Ausgangsmenge ist.) Das Salz wurde zunächst in destilliertem  $\text{H}_2\text{O}$  gelöst und mit  $1\text{gAgNO}_3$  vermischt, sodass  $\text{AgCl}$  entstehen kann (Abbildung 3.3.2). Nachdem sich das  $\text{AgCl}$  schließlich abgesetzt hatte, wurde die restliche Flüssigkeit sorgfältig entfernt und der Rest mehrmals mit destilliertem  $\text{H}_2\text{O}$  gewaschen und zentrifugiert. Um das  $\text{AgCl}$  auflösen zu können, wurde  $1\text{ml NH}_3$  hinzugegeben. Um den unerwünschten Schwefel zu entfernen, wurden  $0,5\text{ml Ba(NO}_3)_2$  hinzugefügt. Hierbei wird festes  $\text{BaSO}_4$  gebildet. Anschließend wurde der flüssige Teil mit Hilfe einer Pipette abgetrennt. Zum Schluss wurde zur erneuten Produktion von  $\text{AgCl}$   $1\text{ml HNO}_3$  sowie 2 Tropfen  $\text{AgNO}_3$  zugegeben. Nach einem finalen Waschdurchgang mit  $4\text{ml HNO}_3$  sowie destilliertem  $\text{H}_2\text{O}$  wurde die Lösung bei  $80^\circ\text{C}$  über Nacht in einen Ofen gestellt. Letztendlich erhielt man wieder einen Feststoff:  $\text{AgCl}$ . Die weitere Vorbereitung erfolgte analog zu den beiden anderen Salzproben.

### 3.4 Durchführung der Messungen

Die verschiedenen Proben wurden bei zwei Strahlzeiten untersucht. Grundsätzlich wurden die Messungen jedoch unter gleichen Voraussetzungen beziehungsweise Bedingungen durchgeführt. Somit wurde zunächst das Strahlführungssystem optimiert. Hierbei wird zunächst auf ein anderes, stabiles Isotop des

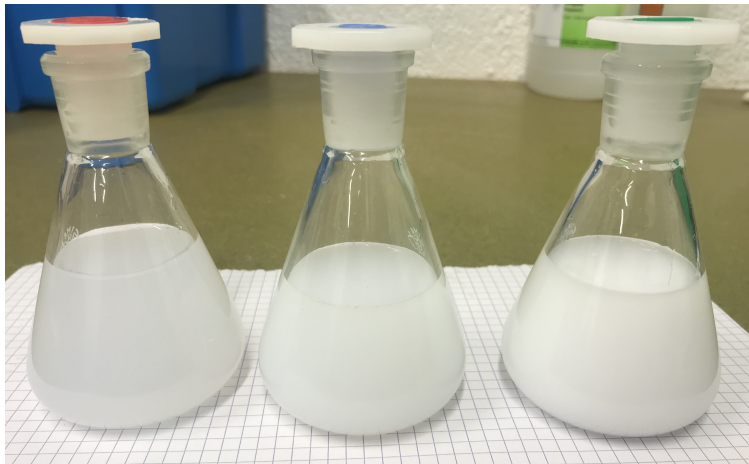


Abbildung 3.9: Gelöste Tiefseewasserproben (in dest.  $H_2O$ ) mit  $AgNO_3$ -Lösung; von links nach rechts:  $10\mu g$ ,  $15\mu g$  und  $30\mu g$

untersuchten Atoms eingestellt. Im Fall von  $Cl$  wird auf  $^{37}Cl$  eingestellt. Bei der sogenannten Fädelung werden sämtliche Elemente entlang des Strahlrohres so eingestellt, dass die Transmission maximal ist. Zur Überprüfung der Transmission befinden sich entlang des Strahlrohres mehrere Cups, an welchen der jeweilige Strom abgelesen werden kann. Von besonderem Interesse ist vor allem ein Faraday-Cup direkt vor dem GAMS, da hier letztendlich zu sehen ist, ob eine ausreichende Transmission vorhanden ist. An diesem Cup wird auch vor und nach jedem Messdurchgang der Strom gemessen, um schließlich bei der Analyse der Daten Konzentrationen bestimmen zu können (Siehe Abschnitt 3.5.2). Die Detektionseffizienz betrug bei diesen Messungen  $T = 89\%$ . Die zunächst negativ geladenen  $^{36}Cl$ - und  $^{37}Cl$ - Ionen traten beispielsweise bei der ersten Strahlzeit mit einer Vorbeschleunigungsenergie von  $E_{vor} = 178keV$  in den Tandem ein und wurden dort auf eine Stripperfolie gelenkt. (Funktionsweise: Abschnitt 3.3) Hätte man den Strahl mit Hilfe des Isotops  $^{35}Cl$  eingestellt, wessen Isotopenanteil drei mal so hoch ist wie der von  $^{37}Cl$ , so könnte diese Stripper-Folie unter Umständen durch den daraus resultierenden, viel höheren Strom zerstört werden. Zudem würde bei der Einstellung mit  $^{35}Cl$  eine höhere Terminalspannung benötigt. Mit Hilfe der Stripper - Folie werden sie meist auf einen Ladungszustand von  $q = 10$  gebracht. Dieser Zustand wurde gewählt, da er sowohl für  $^{36}Cl$ - Isotope als auch für  $^{37}Cl$ - Isotope eine akzeptable Ausbeute liefert. Die Terminalspannung betrug hierbei  $U_{Terminal} = 11,5MV$ . Nachdem die geladenen Ionen nun auf das GAMS treffen, muss auch dieses an die  $^{36}Cl$ - Ionen angepasst werden, um eine möglichst gute Suppression von Isobaren zu erreichen. Hierbei existiert nur ein störendes Isobar:  $^{36}S$ . Ziel hierbei ist es, zu verhindern, dass diese Isobare überhaupt in den Detektor gelangen. Diese Suppression im GAMS ist aufgrund des unterschiedlichen mittleren Ladungszustands des  $^{36}S$ , welcher durch Stöße mit dem Gas erreicht wird, möglich.

Bei diesen Messungen wurde erst ganz zum Schluss ein Standard verwendet. Normalerweise ist dies nicht üblich, da man in diesem Fall somit auch keine Referenzdaten bezüglich der Lage der möglichen Ereignisse hat. In diesem Fall wur-

de die Einstellung jedoch durch die vorherige Strahlzeit schon optimiert. Durch diese Vorgehensweise konnte ausgeschlossen werden, dass Proben durch die zwischenzeitige Verwendung eines Standards verunreinigt werden beziehungsweise somit zu einer fälschlichen Erhöhung der Ereignisse und einer Erhöhung der gemessenen Konzentration (Cross - Talk) führen. Somit wurde in der ersten Strahlzeit in folgender Reihenfolge gemessen:

- Siedesalz
- Steinsalz
- Salz aus Tiefseewasser (ohne Schwefelsuppression; Siehe 3.3.2)
- Standard

In der zweiten Strahlzeit wurde erneut Siedesalz gemessen, sowie eine erneute Messung des nun präparierten Tiefseewassers vorgenommen:

- Siedesalz
- Salz aus Tiefseewasser (nach durchgeführter Schwefelsuppression)
- Standard

## 3.5 Auswertung der gemessenen Daten

### 3.5.1 Bestimmung einzelner Ereignisse

Das Ziel der Datenauswertung ist die Verifizierung echter Ereignisse (das gesuchte Isotop; hier  $^{36}\text{Cl}$ ) und deren Unterscheidung vom Background. Unter Background versteht man diejenigen Isobare (bei  $^{36}\text{Cl}$  ist es vorwiegend  $^{36}\text{S}$ ), die ebenfalls zahlreiche Events erzeugen, und somit das Messergebnis verfälschen würden. Deshalb ist eine gute Abtrennung von diesen Isobaren erforderlich. Wie in Abschnitt 3.2.4 bereits erwähnt, liefert der Detektor sechs verschiedene Energiesignale. Fünf durch die Anoden sowie die Gesamtenergie  $E_{ges}$  durch das Frisch - Gitter. Die ebenfalls in Abschnitt 3.2.4 erwähnte Unterteilung der ersten zwei Anoden erlaubt eine Bestimmung der  $x$ - Position sowie des  $x$  - Winkels. Die Bestimmung der einzelnen Events ist nur mit Hilfe eines wie in Abschnitt 3.4 bereits angesprochenen, Standards möglich. Dieser besitzt eine sehr hohe Konzentration des gesuchten Isotops (hier  $^{36}\text{Cl}$ ) und liefert somit ein Referenzspektrum. Aufgrund dessen kann beim Vergleich mit der Messung einer Probe festgestellt werden, in welchem Bereich sich echte Ereignisse und in welchem Bereich sich nur Background - Ereignisse befinden. Diese können nun durch die Bestimmung von Fensterbedingungen eliminiert werden. Folglich werden nur bestimmte Parameter für die Datenauswertung berücksichtigt. Abbildung 3.5.1 zeigt beispielsweise die Energiesignale der fünften Anode vor der Definition von Fensterbedingungen. In der Abbildung kann deutlich zwischen  $^{36}\text{S}$  und  $^{36}\text{Cl}$  unterschieden werden. Der linke Peak,  $^{36}\text{S}$ , welcher sowohl bei Standard als auch bei Blank erkennbar ist, grenzt sich klar vom  $^{36}\text{Cl}$  - Peak (schwarzer Peak) in der Mitte ab. Die beiden deutlich niedrigeren Peaks rechts sprechen für eine weitere, in diesem Fall nicht bekannte Spezies, welche sich im untersuchten Material befand. Dadurch, dass auch diese klar abgegrenzt liegen, haben sie jedoch



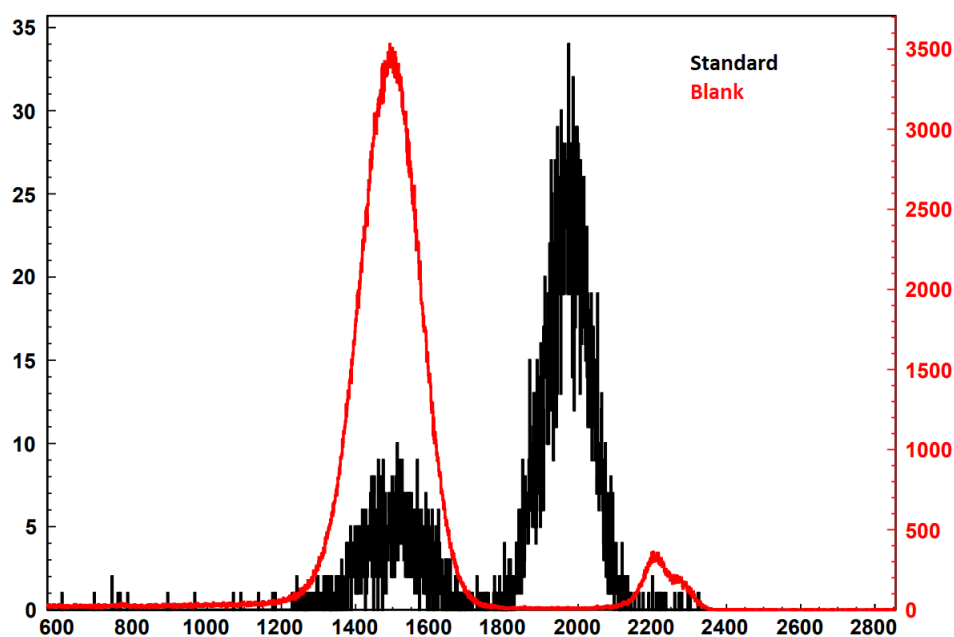


Abbildung 3.10: Energiespektrum der fünften Anode (ohne Fensterbedingungen)

keinerlei Einfluss auf die Untersuchungen in dieser Arbeit. Ausgehend hiervon können schließlich die relevanten Bereiche auf einzelne Ereignisse untersucht werden.

### 3.5.2 Berechnung der Konzentration

Durch AMS - Messungen kann letztendlich eine Konzentration  $c_P$  ermittelt werden, welche das Verhältnis eines bestimmten Isotopes zu allen Isotopen eines Elements in einer Probe angibt. In diesem Fall:

$$c_P = \frac{N(^{36}\text{Cl})}{N(\text{Cl})} \quad (3.2)$$

wobei  $N(^{36}\text{Cl})$  und  $N(\text{Cl})$  für die Anzahl der jeweiligen Teilchen stehen. Diese Konzentration kann man mittels  $Q_{eff}$ , der Anzahl der überprüften  $\text{Cl}$  - Atome, bestimmen:

$$c_P = \frac{N(^{36}\text{Cl})}{Q_{eff}} \quad (3.3)$$

$Q_{eff}$  lässt sich wiederum folgendermaßen bestimmen:

$$Q_{eff} = \frac{t \cdot I \cdot T \cdot t_{live}}{q \cdot f_{37}} \quad (3.4)$$

$I$  gibt dabei den jeweiligen Strom während der Messung wieder. Dieser wird einmal vor und einmal nach dem Messvorgang bestimmt und anschließend wird

ein mittlerer Strom berechnet:

$$I = \frac{I_{vor} + I_{nach}}{2} \quad (3.5)$$

$T$  gibt die Transmission durch das GAMS wieder:

$$T = \frac{N(^{36}\text{Cl})_S \cdot q \cdot f_{37}}{I \cdot t \cdot t_{live} \cdot c_S} \quad (3.6)$$

$N(^{36}\text{Cl})_S$  steht in diesen Fall für die Anzahl der  $^{36}\text{Cl}$  eines Standards mit bekannter Konzentration, welche mit  $c_S$  bezeichnet wird.  $q$  ist die Ladung der  $^{37}\text{Cl}$ -Ionen, welche in diesem Experiment für die Optimierung des Strahls verwendet werden, und der Faktor  $t$  entspricht der Messzeit. Der Faktor  $t_{live}$  berücksichtigt die Totzeit:

$$t_{live} = 1 - \frac{\text{Totzeit}(\text{Detektor})}{t} \quad (3.7)$$

$f_{37}$  gibt letztendlich den Isotopenanteil von  $^{37}\text{Cl}$  wieder. Dieser beträgt  $f_{37} = 24,23\%$ [Mag+15].

### 3.5.3 Betrachtung der Unsicherheiten

Im vorherigen Abschnitt wurden bereits alle bei der Messung und Auswertung auftretenden Größen definiert. Bei der Betrachtung der Unsicherheiten liegen die Abweichungen des Stromes, der Transmission sowie die Anzahl  $N$  der einzelnen Ereignisse im Fokus. Alle Ströme werden an einem analogen Amperemeter abgelesen. Insbesondere unter Beachtung der Tatsache, dass es zudem häufig zu Intensitätsschwankungen kommt, ergibt sich ein relativer Fehler von ca. 15%. Dieser Fehler wurde konservativ abgeschätzt, da eine quantitative Bestimmung aufgrund von willkürlichen Schwankungen nicht möglich ist. Sofern der Strom während des Messdurchganges relativ konstant geblieben ist, gilt nach Gleichung 3.5:

$$\Delta I = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta I_1}{I_1} \approx 11\% \quad (3.8)$$

Für die Bestimmung der Unsicherheit in der Transmission ist die Betrachtung der Unsicherheit des Stromes  $\Delta I$ , der systematischen Unsicherheit der Konzentration des Standards  $\Delta c_S$  sowie die statistische Unsicherheit bezüglich der Teilchenanzahl  $\Delta N$  nötig. Diese Konzentration stellt bei derartigen Messungen den einzigen systematischen Fehler dar, da sämtliche andere systematische Fehlerquellen durch die Verwendung eines Standards wegfallen. Die genaue Konzentration inklusive Unsicherheit des Standards wurde bereits von der AMS-Gruppe bestimmt zu:  $c_S = (2,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-13}$ . Für die Anzahl der Ereignisse kann im Allgemeinen ein Fehler mit  $\sqrt{n}$  bestimmt werden. Diese Vorgehensweise ist jedoch nur für große  $n$ , hier wurde von  $n > 20$  ausgegangen, gerechtfertigt. In diesem Fall wurde hier für  $n < 20$  auf die Konfidenzintervalle und Grenzen von Feldmann und Cousins zurückgegriffen.[Fel+98] Die gerade eben genannten statistischen Unsicherheiten werden nun verwendet, um ein  $1 - \sigma$ -Konfidenzintervall abzuschätzen. Somit werden  $\Delta I$  und der statistische Anteil von  $\Delta T$  quadratisch addiert, woraus sich ein Fehler von 22% ergibt. Dieser kann wiederum erneut quadratisch auf die Fehlerintervalle von Feldmann und Cousins addiert werden. Aufgrund des hier vorliegenden, dominanten Beitrags der Zählstatistik ist diese Vorgehensweise gerechtfertigt. Genau genommen müssten die

N	UG [Fel+98]	OG [Fel+98]	UG neu	OG neu
0	0,00	1,29	0,00	1,76
1	0,37	2,75	0,33	2,76
2	0,74	4,25	0,67	4,29
3	1,10	5,30	0,99	5,39
4	2,34	6,78	2,12	6,92
5	2,75	7,81	2,50	8,02
6	3,82	9,28	3,45	9,54
7	4,25	10,30	3,85	10,64
8	5,30	11,32	4,78	11,76
9	6,33	12,79	5,68	13,28
10	6,78	13,81	6,10	14,40
11	7,81	14,82	7,00	15,52
12	8,83	16,29	7,87	17,04
13	9,28	17,30	8,31	18,16
14	10,30	18,32	9,19	19,31
15	11,32	19,32	10,06	20,44
16	12,33	20,80	10,91	21,95
17	12,79	21,81	11,37	23,09
18	13,81	22,82	12,23	24,24
19	14,82	23,82	13,09	25,38
20	15,83	25,30	13,94	26,89

Tabelle 3.1: Gesamtfehler durch Anpassung der Ober - und Untergrenzen von Feldmann und Cousins (Spalte zwei und drei) durch quadratische Addition der statistischen Unsicherheit der Transmission sowie des Stromes (Spalte vier und fünf)

Fehlerintervalle jedoch aus einer Poisson-Verteilung für wenige Ereignisse  $n$  und einer Gaussverteilung für andere Unsicherheiten gebildet werden. Für den Fall  $n = 0$  wird das obere Konfidenzintervall von demjenigen bei einem Ereignis übernommen[Lud15]. Die absoluten Intervalle sind nun in Tabelle 3.1 zu sehen:



## Kapitel 4

# Ergebnisse und Interpretation

Die experimentell bestimmten Werte für die Konzentration  $c_P = N(^{36}\text{Cl})/N(\text{Cl})$  der verschiedenen Salzproben sind in Tabelle 4.1 zu sehen. Hiermit konnte zum einen eine Überprüfung der gemessenen Werte aus dem Vorjahr durchgeführt werden. Letztendlich konnte festgestellt werden, dass damals vermutlich eine falsche Kalibration des Standards vorlag, da die Werte nun um einen Faktor kleiner als vorher waren.

Entscheidend war jedoch bei diesen experimentellen Untersuchungen, dass die gemessene  $^{36}\text{Cl}$  - Konzentrationen in Siede - und Steinsalz in etwa mit dem in Abschnitt 2 angenommenen Wert übereinstimmt. Somit sind die theoretischen Überlegungen in Bezug auf den Neutronenfluss, welche zunächst auf einem angenommenen Konzentrationswert von  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 1 \cdot 10^{-16}$  basierten, gerechtfertigt (vergleiche Abschnitt B.1). Aufgrund dessen, dass die einzelnen Konzentrationen für Siede - und Steinsalz auch untereinander übereinstimmen, wurde mit dem Mittelwert der drei einzelnen Konzentrationen (zwei mal Siedesalz, einmal Steinsalz) weitergerechnet. (Siehe Tabelle 4.1, Zeile 5) Die Bestimmung des  $^{238}\text{U}/\text{Cl}$  - Verhältnisses erfolgte analog zu Abschnitt 2 und konnte bestimmt werden zu  $^{238}\text{U}/\text{Cl} = 5,5 \cdot 10^{-6}$ .

Bei der Messung des Tiefseewassers (Siehe Tabelle 4.1, Zeile 6) konnte kein Ereignis bestimmt werden. Somit lässt sich folglich auch keine Konzentration, sondern lediglich ein Limit (Siehe 4.1) bestimmen.

Probe	Anzahl Ereignisse	$c_P$	+	-
Siedesalz(2. Messung)	3	$1,6 \cdot 10^{-16}$	$1,2 \cdot 10^{-16}$	$1,0 \cdot 10^{-16}$
Siedesalz(1. Messung)	4	$2,7 \cdot 10^{-16}$	$1,8 \cdot 10^{-16}$	$1,1 \cdot 10^{-16}$
Steinsalz	3	$2,6 \cdot 10^{-16}$	$2,0 \cdot 10^{-16}$	$1,6 \cdot 10^{-16}$
Siedesalz + Steinsalz	10	$2,2 \cdot 10^{-16}$	$0,8 \cdot 10^{-16}$	$0,7 \cdot 10^{-16}$
Salz in Tiefseewasser	0	0	$5,5 \cdot 10^{-16}$	0

Tabelle 4.1: Anzahl der gemessenen Ereignisse sowie die daraus berechnete Konzentration  $c_P = N(^{36}\text{Cl})/N(\text{Cl})$  der verschiedenen Salzproben inkl. Fehler

Wert	$^{238}\text{U}/\text{Cl}$
Siedesalz + Steinsalz	$5,55 \cdot 10^{-6}$
dir. Uranmessung	$4,28 \cdot 10^{-9}$
Literaturwert[Ber+14]	$1,25 \cdot 10^{-6}$

Tabelle 4.2: Vergleich der endgültigen  $^{238}\text{U}/\text{Cl}$  - Werte

Des Weiteren wurden letztlich auch genau die bei der Messung untersuchten Proben auf den direkten Urangehalt im Salz untersucht. Diese Messungen wurden allerdings an der Universität Wien von Dr. Karin Hain durchgeführt, da dort eine deutlich höhere Effizienz bei Uranmessungen erzielt werden kann. Der gemessene Urangehalt ist stark von der Präparation der Proben abhängig, da die einzelnen Komponenten zunächst durch chemische Vorbehandlung voneinander zu trennen. Auch hier lagen die einzelnen Messwerte für die verschiedenen Proben im selben Bereich und es wurde somit gemittelt. Es ergibt sich ein Verhältnis von  $(5,0 \pm 1,8)\text{at}/\text{g}$ , welches schließlich zu  $^{238}\text{U}/\text{Cl} = 4,3 \cdot 10^{-9}$  führt.

In Tabelle 4.2 ist eine komplette Übersicht dargestellt. Diese zeigt zum einen den theoretisch bestimmten Wert für  $^{238}\text{U}/\text{Cl}$  basierend auf dem eben gemittelten Wert der verschiedenen Gesteinsproben - Messungen. Zum anderen ist der gemittelte Wert der direkten Uranmessung in Wien zu sehen. Da es sich hier um die Messung aller Uranisotope handelte, wurde der Wert noch an den entsprechenden Isotopenanteil von  $^{238}\text{U}$  angepasst.

Letztendlich ist zu sehen, dass die direkte Messung des Urangehalts in den Salzproben nicht in der selben Größenordnung wie der theoretisch bestimmte Wert, sowie der hier verwendete Literaturwert für Gesteinsproben[Ber+14] liegt. Allerdings hängt der direkt gemessene Urangehalt im Salz, wie bereits erwähnt, von der Art der chemischen Vorbereitung der Proben ab. Somit müsste für eine zuverlässigere Messung eine deutlich aufwendigere Präparation beispielsweise durch Vollaufschluss mittels Alkalischmelze oder Flusssäure durchgeführt werden.

Aufgrund dessen kann die anfänglich aufgestellte These, dass radioaktive  $^{238}\text{U}$  - Isotope bei spontaner Spaltung durch freiwerdende Spaltneutronen maßgeblich zur Produktion von  $^{36}\text{Cl}$ -Ionen, gemäß der Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ , beitragen, im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen sowie der angestellten theoretischen Überlegungen, dennoch bestätigt werden.

## Anhang A

# Moderation der Neutronen

Energie	Anzahl Stöße	$P^{AnzahlStöße}$ (Siehe 2)
0,1eV	317	0,51
1,0eV	247	0,76
1keV	152	0,99
0,1MeV	70	0,99
0,5MeV	37	0,99

Tabelle A.1: Abschätzung der Anzahl thermisch werdender Neutronen





## Anhang B

# Betrachtung diverser Spaltelemente

X	$T_{1/2}$ in a	sf in %	$X/^{36}Cl$	$X/Cl$	Literaturwert[Ber+14] $X/Cl$
$^{238}U$	$4,5 \cdot 10^9$	$5 \cdot 10^{-5}$	$9,07 \cdot 10^9$	$9,08 \cdot 10^{-7}$	$1,25 \cdot 10^{-6}$
$^{235}U$	$7,0 \cdot 10^7$	$7 \cdot 10^{-9}$	$1,11 \cdot 10^{13}$	$1,11 \cdot 10^{-3}$	$8,75 \cdot 10^{-9}$
$^{232}Th$	$1,4 \cdot 10^{10}$	$1 \cdot 10^{-9}$	$1,56 \cdot 10^{15}$	$1,56 \cdot 10^{-1}$	$2,45 \cdot 10^{-6}$

Tabelle B.1: Vergleich des berechneten Verhältnisses für  $X/Cl$  mit Literaturwerten [Ber+14]



## Anhang C

# Erklärung

Ich versichere hiermit, dass ich die von mir eingereichte Abschlussarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

München, den 19.07.2018

---



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung eines kosmischen Teilchenschauers, welcher von einem hochenergetischen Teilchen in der Atmosphäre in 20 km Höhe ausgelöst wurde [Wol] . . . . .	4
2.2	Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für den Einfang eines Neutrons unter Aussendung eines Protons $\sigma_{35Cl(n,p)}[Cha+]$ . . . .	6
2.3	Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für den Einfang eines Neutrons unter Aussendung eines Gammaquants $\sigma_{35Cl(n,\gamma)}[Cha+]$ . . . .	6
2.4	Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für elastische Stöße eines Neutrons $\sigma_{35Cl(n,elast)}[Cha+]$ . . . . .	7
3.1	AMS-Experiment am MLL . . . . .	10
3.2	Querschnitt durch die Ionenquelle . . . . .	11
3.3	MLL - Beschleunigerhalle; Tandem (orange) und 90° - Magnet (blau) . . . . .	12
3.4	GAMS - filled Analyzing Magnetic System (GAMS) . . . . .	13
3.5	Ionisationskammer . . . . .	14
3.6	Vermengung des gemahlene Siedesalzes mit Kupfer . . . . .	15
3.7	Steinsalz aus dem Berchtesgadener Bergwerk . . . . .	15
3.8	Einzelne Filterungsdurchgänge bei der Vorbereitung des Steinsalzes	16
3.9	Gelöste Tiefseewasserproben (in dest. $H_2O$ ) mit $AgNO_3$ -Lösung; von links nach rechts: $10\mu g$ , $15\mu g$ und $30\mu g$ . . . . .	17
3.10	Energiespektrum der fünften Anode (ohne Fensterbedingungen) .	19



# Tabellenverzeichnis

2.1	Vergleich des berechneten Verhältnisses (Anzahl) für $X/Cl$ mit Literaturwerten [Ber+14] . . . . .	8
3.1	Gesamtfehler durch Anpassung der Ober - und Untergrenzen von Feldmann und Cousins (Spalte zwei und drei) durch quadratische Addition der statistischen Unsicherheit der Transmission sowie des Stromes (Spalte vier und fünf) . . . . .	21
4.1	Anzahl der gemessenen Ereignisse sowie die daraus berechnete Konzentration $c_P = N(^{36}Cl)/N(Cl)$ der verschiedenen Salzproben inkl. Fehler . . . . .	23
4.2	Vergleich der endgültigen $^{238}U/Cl$ - Werte . . . . .	24
A.1	Abschätzung der Anzahl thermisch werdender Neutronen . . . . .	25
B.1	Vergleich des berechneten Verhältnisses für $X/Cl$ mit Literaturwerten [Ber+14] . . . . .	27





# Literaturverzeichnis

- [Mer+13] S. Merchel, R. Braucher, V. Alfimov, M. Bichler, D. L. Bourlès, J. M. Reitner. The potential of historic rock avalanches and man-made structures as chlorine-36 production rate calibration sites. *Quaternary Geochronology*, 2013. S.54 - 62.
- [Leb17] M. Lebert. Aktivierung von AMS Proben durch atmosphärische Neutronen beim Transport per Flugzeug am Beispiel der Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ . Bachelor Thesis. Technische Universität München, 2017.
- [Lud11] P. Ludwig. The AMS Setup at the MLL. 2012. [www.gams.ph.tum.de/index.php?id=22L=0](http://www.gams.ph.tum.de/index.php?id=22L=0). (22.06.2018).
- [Lud15] P. Ludwig. Search for  $^{60}\text{Fe}$  of supernova origin in Earth's microfossil record'. Dissertation. Technische Universität München, 2015.
- [Kni97] K. Knie. Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenseparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten. Dissertation. Technische Universität München, 1997.
- [Ber+14] R. Berka, C. Katzlberger, R. Philippitsch, G. Schubert, M. Kerner, C. Landstetter, K. Motschka, H. Pirkl, J. Grath, A. Draxler, T. Hörhan. Radionuklide in Grundwässern, Gesteinen und Bachsedimenten Österreichs 1:500000. Erläuterungen zur geologischen Themenkarte. Geologische Bundesanstalt Wien, 2014.
- [Mag+15] J. Magill, G. Pfennig, R. Dreher, Z. Sóti. Karlsruher Nuklidkarte. *Nucleonica*, 2015.
- [Fel+98] G. J. Feldman, R. D. Cousins. United approach to the classical statistical analysis of small signals. *Physical Review D* 57.7 (1998), S. 3873 - 3889. ISSN: 0556-2821. DOI: 10.1103/PhysRevD.57.3873.
- [Cha+] M. B. Chadwick u. a. ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. [www.nndc.bnl.gov](http://www.nndc.bnl.gov) (21.06.2018).
- [Gru15] C. Grupen. *Astroparticle Physics. Cosmic Rays*. Springer 2005. ISBN 3-540-25312-2. S. 77.

- [Kri12] H. Krieger. Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes. 4. Aufl., Vieweg+Teubner, Wiesbaden 2012, ISBN 978-3-8348-1815-7. S. 91 - 140
- [Zie13] A. Ziegler, H.-J. Allelein (Hrsg.). Reaktortechnik: Physikalisch-technische Grundlagen. 2. Auflage. Springer-Vieweg, 2013, ISBN 978-3-642-33845-8. S.39 - 55.
- [Wol] M. Wohlgehm. National Centers for Environmental Information. Cosmic Ray Showers. [www.ngdc.noaa.gov](http://www.ngdc.noaa.gov). (06.07.2018)

# Danksagung

Zuletzt möchte ich mich bedanken bei:

- Prof. Dr. Schönert, welcher es mir ermöglichte, die Arbeit an seinem Lehrstuhl zu schreiben
- Dr. Gunther Korschinek für die tolle Betreuung und für die zahlreichen Diskussionen mit ihm, durch welche ich einiges gelernt habe
- Dominik Koll, dafür dass ich durch ihn einen weiteren Betreuer hatte, der mich durchgehend in jeder Hinsicht, von der Vorbereitung der Proben bis hin zur Auswertung der Daten, tatkräftig unterstützt hat
- Dr. Thomas Faestermann, der mir insbesondere bei meinen theoretischen Überlegungen behilflich war
- Dr. José Manuel Gómez, Manuel Lebert, Angelina Kinast, David Krieg, Christoph Busser und Manuel Lechner, die ebenfalls jeder Zeit für Fragen und Diskussionen zur Verfügung standen und ohne die die Strahlzeit gar nicht erst möglich gewesen wäre
- Dr. Karin Hain, welche sich bereit erklärt hatte, die hier verwendeten Proben auf ihren direkten Urangehalt zu untersuchen
- den Operateuren des Beschleunigers für die Unterstützung während der Strahlzeit

Des weiteren möchte ich mich nochmals bei Allen bedanken, die meine Arbeit Korrektur gelesen haben.