

Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{63}Ni

zur Bestimmung der

Fluenz schneller Neutronen

von der

Hiroshima-Bombe

DIPLOMARBEIT

von

GEORG RUGEL

Physikdepartment der Technischen Universität München

Institut E15

Prof. Dr. Ekehart Nolte

Januar 1998

Zusammenfassung

Es hat sich in den letzten Jahren gezeigt, daß die Messungen von Radionukliden, die in Hiroshima durch *thermische* Neutronen produziert wurden, nicht mit den vom derzeit gültigen Dosimetriesystem DS86 vorhergesagten Werten übereinstimmen. Messungen des Radionuklids ^{63}Ni ($T_{1/2}=100,1\text{ a}$), das über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ in Hiroshima entstanden ist, bieten die Möglichkeit, den Fluß der dosisrelevanten *schnellen* Neutronen der Hiroshima-Bombe als Funktion des Abstandes noch heute zu bestimmen.

Diese Messungen sind sehr schwierig, könnten jedoch prinzipiell mit der Methode der Beschleunigermassenspektrometrie mit dem am Münchner Beschleunigerlaboratorium aufgebauten gasgefüllten Analysiermagnetsystem GAMS durchgeführt werden. Das Isobar ^{63}Cu verursachte aber einen zu hohen Untergrund, so daß es nicht ausreichend gut abgetrennt werden konnte und die Sensitivität der Methode begrenzte.

Zur weiteren Unterdrückung des störenden Isobars ^{63}Cu wurde deshalb eine neue Ionenquelle in Betrieb genommen und so modifiziert, daß alle Teile mit nennenswertem Kupfergehalt im Ionenquellenbereich eliminiert wurden. Durch die zusätzliche Verwendung einer speziell gebauten Handschuhbox zum Probenwechsel konnte das ^{63}Cu -Untergrundniveau gleichmäßig niedrig gehalten werden.

In einem Testexperiment wurde ^{63}Ni nachgewiesen, das in Kupferproben durch Bestrahlung mit Neutronen einer ^{252}Cf -Quelle produziert worden war. Die gemessenen $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ Konzentrationen lagen im Bereich $^{63}\text{Ni}/\text{Ni} \approx 10^{-11}$. Die während der Experimentierzeiten erreichte Nachweisgrenze liegt bei $^{63}\text{Ni}/\text{Ni} \approx 1 \cdot 10^{-13}$.

Abschätzungen der in Hiroshima zu erwartenden ^{63}Ni -Konzentration in Kupferproben, die ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, ergeben bei einem Nickelgehalt von etwa 20 ppm $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ Verhältnisse im Bereich von 10^{-10} nahe dem Hypozentrum der Explosion und 10^{-13} für eine Entfernung von 1 500 m vom Hypozentrum.

Mit der in dieser Arbeit erreichten Empfindlichkeit von $^{63}\text{Ni}/\text{Ni} \approx 1 \cdot 10^{-13}$ ist es mehr als 50 Jahre nach den Atombombenexplosionen von Hiroshima und Nagasaki erstmalig möglich, die Fluenz schneller Neutronen in beiden Städten selbst für Entfernungen größer als 1 000 m vom Hypozentrum experimentell zu rekonstruieren.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	ii
Inhaltsverzeichnis	iv
1 Einleitung	1
1.1 Das Dosimetriesystem DS86	1
1.1.1 Unsicherheiten in DS86	2
1.2 Die schnellen Neutronen	5
1.2.1 Messungen der ^{32}S -Aktivierung in Hiroshima	5
1.2.2 Mögliche Lösung durch neue Messung	6
2 Vorstellung der Methode	10
2.1 Meßaufbau	10
2.1.1 Strahlführungssystem am Münchner Tandemlabor	10
2.1.2 Das gasgefüllte Analysiermagnetsystem GAMS	12
2.2 Chemische Reduktion des Isobars	14
2.2.1 Probenaufbereitung	15
2.2.2 Probendeposition	15
3 Verringerung des ^{63}Cu-Untergrundes im Ionenstrahl	17
3.1 Erzeugung negativer Ionen in einer Hochstromionenquelle	17
3.2 Messungen des Untergrundes	18
3.3 Materialanalysen	20
3.3.1 Probenhalter	20

3.3.2	Bornitrid-Isolator	22
3.3.3	Ionisator draht mit Hitzeschild	23
3.3.4	Weitere Materialien	23
3.4	Verringerung des instrumentellen Kupferuntergrundes durch die neue Ionenquelle	24
3.4.1	Inbetriebnahme	26
3.5	Handschuhbox für Probenwechsel	27
3.6	Ergebnisse mit der neuen Ionenquelle und der Handschuhbox	29
4	AMS-Messungen	31
4.1	Herstellung einer Eichprobe	31
4.2	Isobarenunterdrückung	32
4.2.1	Unterdrückung durch den gasgefüllten Magneten	32
4.2.2	Unterdrückung durch die Ionisationskammer	32
4.3	Testmessungen	34
5	Diskussion	37
5.1	In DS86 erwartete ^{63}Ni -Produktion in Hiroshima	37
5.1.1	Abschätzung des Untergrundes, geeignetes Material	39
5.1.2	Probenmenge	39
5.2	Bewertung der Messungen	40
5.3	Ausblick	41
A	Isobarenunterdrückung durch Einschluß von Molekülionen	43
B	Bestimmung der Effizienz des Nickeltetracarbonylprozesses durch NAA	44
	Verzeichnis der Abbildungen	45
	Verzeichnis der Tabellen	47
	Literaturverzeichnis	49

Kapitel 1

Einleitung

Die Auswirkungen kleiner Strahlendosen auf den Menschen sind nicht einfach zu bestimmen, da die Inzidenzen von Strahlenschäden bei diesen Dosen sehr gering sind. Um eine statistisch signifikante Aussage über die biologische Wirkung kleiner Strahlendosen machen zu können, benötigt man ein großes Kollektiv strahlungsexponierter Personen und die genauen Dosen. Die Überlebenden der Atombombenabwürfe von Hiroshima und Nagasaki werden seit Anfang der 50er Jahre überwacht. Heute werden alle Todesfälle und Todesursachen im Rahmen der Life Span Study (LSS) sorgfältig verfolgt und dokumentiert (siehe z. B. [SKS90, PSP⁺96]). Die Tatsache, daß unter den ca. 87 000 Personen die große Mehrzahl nur geringen Strahlenexpositionen ausgesetzt war, ermöglicht es in dieser großen epidemiologischen Studie quantitative Aussagen über Spätwirkungen auch kleiner Dosen bis hinunter zu etwa 100 mGy^1 zu treffen. Für ca. 60% der Personen in der LSS ist die abgeschätzte Dosis größer als 5 mSv^2 , die durchschnittliche Dosis der gesamten Kohorte ist etwa 20 mSv . Wegen der großen Anzahl der Betroffenen ist es möglich, nicht nur getrennt nach Geschlecht und Altersgruppen, sondern auch gezielt Aussagen über die Tumorerkrankungen der einzelnen Organe Aussagen zu machen [Roe87, PSP⁺96].

1.1 Das Dosimetriesystem DS86

Seit 1945 wurden von japanischer und amerikanischer Seite beträchtliche Anstrengungen unternommen, um Grundlagen für zuverlässige Dosisabschätzungen zu gewinnen. Die Bestimmung individueller Dosen wird dadurch erleichtert, daß die Strahlenexpositionen nur zum Zeitpunkt der Explosionen vom 6. bzw. 9. August 1945 erfolgten. Daher sind die zur Bestimmung der Dosis nötigen Parameter nur für diese Zeitpunkte und die jeweiligen Aufenthaltsorte der Überlebenden erforderlich.

¹Gray (Gy) ist der spezielle Name der Einheit [J/kg] für die Energiedosis D.

²Sievert (Sv) ist der spezielle Name der Einheit [J/kg] für die Äquivalentdosis H. Die Äquivalentdosis H ist definiert durch die Relation $H=Q \cdot D$, wobei der sogenannte Qualitätsfaktor Q ein Maß für die relative biologische Wirksamkeit (RBW) der jeweiligen Strahlenart hinsichtlich der gesundheitlich relevanten Späteffekte bei kleinen Dosen ist.

Erste Ansätze, für die Überlebenden eine Dosis abzuschätzen, beruhten im wesentlichen auf Explosionen auf dem Testgelände in Nevada (Nakasaki-Typ) [Ara60, MS68]. Das derzeit gültige Dosimetriesystem DS86 [Roe87] basiert dagegen auf Computerrechnungen, die den Transport von Neutronen- und Gammastrahlung bis zum Zielorgan simulieren. Um die Gültigkeit dieser Rechnungen zu überprüfen, wurden Resultate der bis zu diesem Zeitpunkt in Hiroshima und Nagasaki erfolgten Messungen miteinbezogen. Durch die Explosion wurde an langreichweitiger Strahlung besonders Neutronen- und Gammastrahlung freigesetzt. Weitere Gammastrahlung entsteht bei Abregung oder Zerfall neutronenaktivierter Kerne sowie durch Wechselwirkung von Neutronen mit der Luft. Durch Thermolumineszenzmessungen (TLD), beispielsweise an Dachziegeln, konnte die Gammadosis bestimmt werden [Roe87]. Die Neutronenstrahlung wurde beispielsweise dadurch nachgewiesen, daß das über eine (n,p)-Reaktion an ^{32}S entstandene ^{32}P ($T_{1/2}=14,3$ Tage) gemessen wurde [YS53, Sug53]. DS86 wurde allgemein akzeptiert, da die Thermolumineszenzmessungen und die ^{32}P -Messungen (siehe Abschnitt 1.2.1) mit den durch DS86 berechneten Werten übereinstimmen. Es zeigen sich jedoch Unsicherheiten (siehe Abschnitt 1.1.1) in dem Modell, besonders bei großen Abständen, bei denen Menschen die Atombombenexplosionen überleben konnten. Diese Unsicherheiten auszuräumen, ist deshalb so wichtig, weil DS86 eine wichtige Komponente bei der Bestimmung der Strahlenrisiken aus den Beobachtungen an den Atombombenüberlebenden ist, und da diese Risikoabschätzungen ihrerseits die Grundlage der gültigen Strahlenschutzbestimmungen sind.

1.1.1 Unsicherheiten in DS86

Bereits im Abschlußbericht von DS86 [Roe87, Band 1, Seite 191] wird bei der Analyse von ^{60}Co , das über eine (n, γ)-Reaktion an ^{59}Co entstanden ist, auf eine Diskrepanz zwischen gerechneten und gemessenen Werten hingewiesen, wobei als abschließende Bemerkung steht:

“... the conclusion of this chapter must be that the neutron doses are in doubt until further work is done.” [Roe87, Band 1, Seite 203]

Aufgrund dieser Erkenntnis und der damit verbundenen Unsicherheit des Modelles wurden in den nachfolgenden Jahren weitere Messungen von neutronenaktivierten Radionukliden durchgeführt. In Tabelle 1.1 sind die gemessenen Nuklide aufgeführt.

Es gibt zwei Ansätze, um das von DS86 vorhergesagte Neutronenspektrum experimentell zu überprüfen. Der eine ist, in einer Probe möglichst viele *verschiedene Radionuklide* nachzuweisen, der andere, Radionuklide für *verschiedene Abstände* vom Hypozentrum, welches die senkrechte Projektion des Epizentrums (Explosionszentrums) auf den Boden ist, nachzuweisen.

Für den ersten Ansatz wurden in einem Grabstein, der sich nahe des Hypozentrums in Hiroshima befand, alle noch heute in Hiroshima meßbaren Nuklide (siehe Tab. 1.1) nachgewiesen [Rüh93, RKK⁺95]. Es zeigte sich, daß die durch $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$ -Reaktion entstandenen ^{36}Cl -Werte nicht mit den Aktivierungen der anderen Nuklide im Grabstein in Einklang gebracht werden können bzw. die gemessenen Werte erwiesen sich als nicht verträglich mit dem für den

Reaktion	$T_{1/2}$	Referenz
$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	14,3 d	[YS53, Sug53]
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	5,27 a	[HMS ⁺ 67]
$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}$	13,3 a	[NIKS83, OM83]
$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)^{154}\text{Eu}$	8,8 a	[NOM ⁺ 91]
$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$	$3,00 \cdot 10^5$ a	[HHK ⁺ 86, SEW ⁺ 92]
$^{40}\text{Ca}(n,\gamma)^{41}\text{Ca}$	$1,03 \cdot 10^5$ a	[KMN ⁺ 87, RKK ⁺ 92]

Tabelle 1.1: Zusammenfassung der in Hiroshima über Neutronenaktivierung entstandenen Radionuklide, die bis heute gemessen wurden. Zudem ist die Halbwertszeit $T_{1/2}$ und eine Auswahl wichtiger Referenzen angegeben.

Explosionsort berechneten Neutronenspektrum bei gegebenem Wirkungsquerschnittsverlauf der involvierten (n,γ) -Reaktionen. Die Ergebnisse der Messungen am Grabstein deuten darauf hin, daß das Neutronenspektrum am Ort des Grabsteines deutlich härter gewesen sein muß, als in DS86 angenommen wird.

Der zweite Ansatz wurde in mehreren Arbeiten verfolgt, wobei die Isotope ^{36}Cl , ^{152}Eu und ^{60}Co gemessen wurden; eine Übersicht findet sich in [SEW⁺92]. Besonders bei großen Abständen zeigen sich deutliche Abweichungen zwischen den auf DS86 basierenden Rechnungen und den gemessenen Werten (siehe Abb. 1.1).

Gegenwärtig sind die Gründe für diese Diskrepanzen unklar. Die in DS86 benutzten Neutronentransportrechnungen scheinen nicht das Problem zu sein. Die Wirkungsquerschnitte der für den Strahlungstransport wichtigen Wechselwirkungen mit Stickstoff und Sauerstoff wurden überprüft bzw. neu vermessen oder berechnet (siehe z. B. [HYCC94]) und es ergaben sich keine wesentlichen Änderungen.

Interessanterweise wurden die Transportrechnungen in Nagasaki bestätigt [SHME94]. So stimmen die gemessenen ^{36}Cl -Aktivierungen in Proben aus Nagasaki aus einer Entfernung von 1261 m vom Epizentrum mit den DS86 Rechnungen überein (siehe Abb. 1.2), beim Wert in 822 m Entfernung ergab sich durch neue Rechnungen von 1993 (update) eine bessere Übereinstimmung.

An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß von dem Typ der Nagasakibombe mehrere Testexplosionen auf dem Nevada Testgelände durchgeführt wurden. Eine Bombe von Typ der Hiroshima-Bombe wurde jedoch nie mehr gezündet. Deswegen ist es möglich, daß nicht die Methode für die Transportrechnungen ungeeignet ist, sondern daß das Quellspektrum der Hiroshimabombe noch Unsicherheiten aufweist. Kürzlich wurden Quellspektren vorgeschlagen, die die Aktivierungen in Hiroshima erklären können [RBS94]. Diese fordern eine Überhöhung der Anzahl von schnellen Neutronen im Energieintervall von 2-3 MeV. Zwischen 2,1 MeV und 2,7 MeV befinden sich dann aber 20 mal mehr Neutronen relativ zur Gesamtanzahl der Neutronen als in DS86. Eine physikalische Begründung für diese Überhöhung gibt es jedoch nicht, da eine solche Überhöhung in einem Reaktor- oder Bombenspaltspektrum

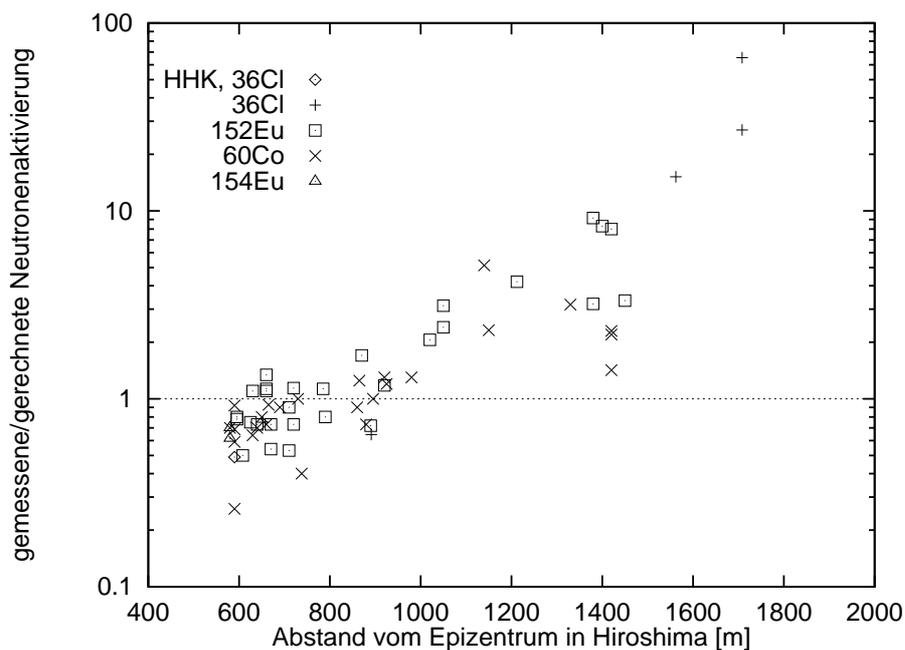


Abbildung 1.1: Vergleich der Werte gemessener zu berechneter Neutronenaktivierung in Hiroshima. Wert *HHK* aus [HHK⁺86], weitere Werte aus dem zusammenfassenden Artikel von Straume et al. [SEW⁺92]. Die Qualität der Daten läßt sich aus der Streuung beurteilen.

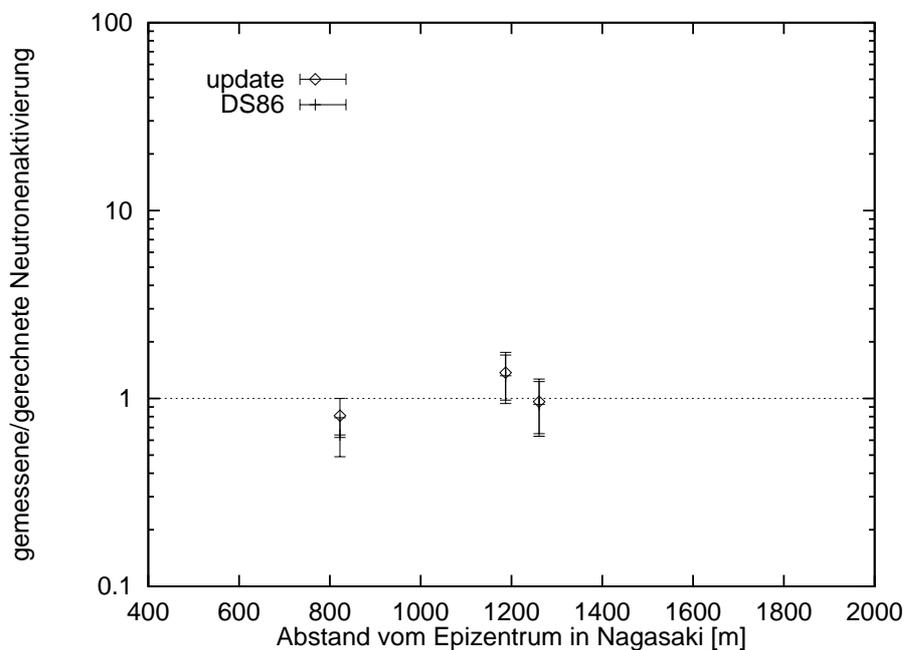


Abbildung 1.2: Vergleich der Werte gemessener zu berechneter Neutronenaktivierung in Nagasaki. Werte aus [SHME94]. Die überprüften Rechnungen von 1993 stimmen mit den ³⁶Cl-Meßdaten durchwegs überein, die DS86 Rechnungen nur mit den Werten für größere Entfernungen.

nicht vorhanden ist.

1.2 Die schnellen Neutronen

1.2.1 Messungen der ^{32}S -Aktivierung in Hiroshima

Die Messungen der Aktivierungen durch thermische Neutronen wurden von unterschiedlichen Gruppen mit unterschiedlichen Methoden durchgeführt. Die Ergebnisse scheinen miteinander konsistent zu sein, so daß ihnen Vertrauen zu schenken ist. Offen ist bis heute, ob die oben beschriebene Diskrepanz auch für schnelle Neutronen besteht. Die schnellen Neutronen thermalisieren nach einer Halbwertslänge von ungefähr 200 m in Luft, so daß auch der Wert der schnellen Neutronen überhöht sein könnte. Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, daß für die Dosis der Überlebenden die schnellen Neutronen im Vergleich zu den thermischen relevanter sind. Daher ist es wichtig, auch die schnellen Neutronen direkt nachzuweisen. Der einzige direkte Nachweis von schnellen Neutronen erfolgte über die Messungen von ^{32}P [YS53, Sug53], das über die Reaktion $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ an Schwefel erzeugt wurde. Die Reaktion hat eine Energieschwelle von ungefähr 2 MeV (siehe Abb. 1.3). ^{32}P zerfällt mit einer Halbwertszeit von 14,3 Tagen [Fir96] unter Aussendung eines β^- -Teilchens in den Grundzustand von ^{32}S . Wegen der kurzen Halbwertszeit von ^{32}P blieben die Messungen der ersten Wochen nach der Explosion der einzige Nachweis von schnellen Neutronen in Hiroshima.

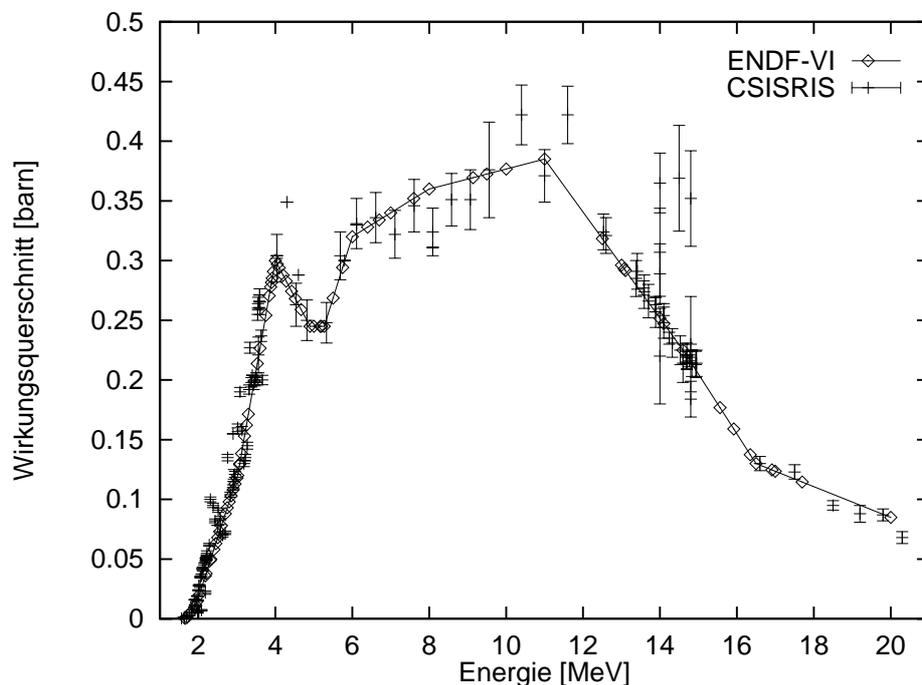


Abbildung 1.3: Wirkungsquerschnitt $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$; gerechnete Werte aus [Fu89], bzw. aus ENDF-VI Datenbank aus [Nuc97]; experimentelle Werte aus der Datenbank CSISRIS aus [Nuc97].

Als Probenmaterial diente schwefelhaltiger Klebstoff, mit dem die Keramik-Isolatoren von

Telegraphenleitungen befestigt waren. Die β^- -Teilchen wurden mit einem Lauritzen-Elektroskop nachgewiesen. Diese Messungen wurden sehr genau überarbeitet und liefern insbesondere in der Nähe des Hypozentrums wichtige Daten zur Überprüfung der in DS86 durchgeführten Rechnungen. So ist die aus diesen Messungen abgeschätzte Bombenstärke konsistent mit anderen Abschätzungen. Das Ergebnis, wie es in DS86 veröffentlicht ist, zeigt Abbildung 1.4. Der Untergrund für die Messungen lag bei 3700 dpm (decays per minute) am Hypozentrum. Diese Messungen sind bei großen Entfernungen, bei denen die Diskrepanz für thermische Neutronen besteht, wegen der großen Fehler nicht mehr aussagekräftig.

Der Meßpunkt bei 1080 m stellt in Bezug auf den Fehler eine Ausnahme dar, er zeigt aber gerade die zu erwartende Erhöhung. Zur Bewertung dieses Meßpunktes [Roe87, Band 2, Seite 266f.] konnte in der Literatur keine Aussage gefunden werden.

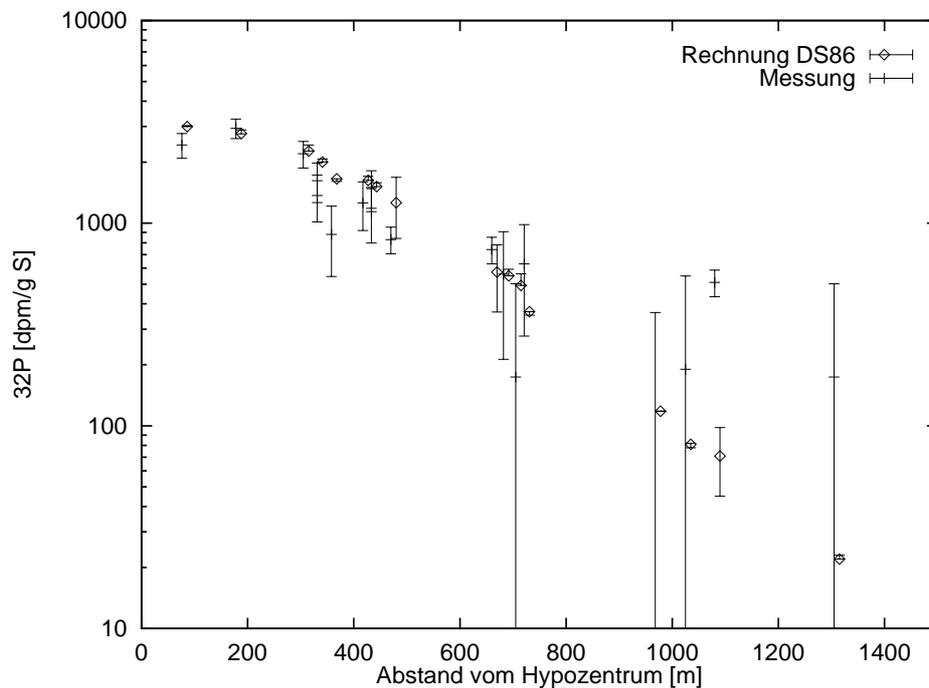


Abbildung 1.4: *Bisherige Messungen von schnellen Neutronen [Roe87, Band 2, Seite 290]. Die Werte der Rechnungen sind zur leichteren Unterscheidbarkeit um 10 m nach rechts verschoben.*

1.2.2 Mögliche Lösung durch neue Messung

Aus den oben genannten Gründen besteht heutzutage ein großes Interesse daran, die Fluenz³ der schnellen Neutronen von Hiroshima zu messen.

Eine systematische Suche [MS96] ergab sechs mögliche Nuklide (siehe Tab. 1.2), die durch schnelle Neutronen erzeugt wurden und im Prinzip heute noch meßbar sein sollten. Kriterien dieser Suche waren:

³Fluenz $\Phi = \phi \cdot t$, mit dem Neutronenfluß ϕ und der Zeit t .

Reaktion	$T_{1/2}$	σ_E [barn]
$^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$	269 a	0,37
$^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$	100,1 a	0,13
$^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92}\text{Nb}$	$3,47 \cdot 10^7$ a	0,14
$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92}\text{Nb}$	$3,47 \cdot 10^7$ a	0,88
$^{151}\text{Eu}(n,2n)^{150}\text{Eu}$	35,8 a	0,53
$^{209}\text{Bi}(n,2n)^{208}\text{Bi}$	$3,68 \cdot 10^5$ a	1,61

Tabelle 1.2: Mögliche Reaktionen für eine Messung des schnellen Neutronenflusses in Hiroshima. σ_E ist das Maximum des Wirkungsquerschnittes im Bereich [1 keV:10 MeV]; aus [MS96].

- $5 \text{ y} \leq T_{1/2} \leq 10^9 \text{ y}$.
- Wirkungsquerschnitt $\sigma > 0,01$ barn im Energieintervall von 1 keV bis 10 MeV.
- Schwellenenergie der Reaktion bei ungefähr 1 MeV.

Von den sechs Isotopen aus Tabelle 1.2 ist besonders das Radionuklid ^{63}Ni unter anderem deshalb interessant, da am Münchner Tandemlabor bereits gezeigt wurde, daß mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS, accelerator mass spectrometry) in diesem Massenbereich äußerst empfindlich Radionuklide gemessen werden können. So wurde für ^{59}Ni eine Nachweisgrenze von $^{59}\text{Ni}/\text{Ni} \approx 1 \cdot 10^{-13}$ erreicht [KFK97]. Außerdem wurde in Livermoore die Probenaufbereitung studiert, und es kam zu einer Vereinbarung, diese äußerst empfindliche Messung in München durchzuführen. Ein weiterer Vorteil von ^{63}Ni ist, daß das Targetmaterial Kupfer ein gebräuchliches Material ist, das beispielsweise bei Regenrinnen oder Blitzableitern verwendet wird. So existieren viele geeignete Proben (siehe auch Abschnitt 5.1.1). Weiterhin sind Störreaktionen an anderen Targetisotopen als ^{63}Cu zu vernachlässigen. Dies kann man in Abbildung 1.5, einem Ausschnitt aus der Nuklidkarte, gut erkennen. Einen möglichen Beitrag könnte die Reaktion $^{62}\text{Ni}(n_{th},\gamma)^{63}\text{Ni}$ liefern. Der Nickelgehalt im Kupfer muß also genügend gering sein (Diskussion des erlaubten Nickelgehaltes in Abschnitt 5.1.1). ^{63}Ni ist deshalb sehr gut geeignet, den Fluß der schnellen Neutronen der Hiroshima-Bombe zu bestimmen. Wenn man den Neutronenfluß, wie er in DS86 angegeben ist, verwendet, erhält man als Abschätzung in der Nähe des Hypozentrums $1,3 - 1,7 \cdot 10^7$ ^{63}Ni -Atome/g Cu (siehe Tab. 5.1).

Nachweis von ^{63}Ni über dessen radioaktiven Zerfall

Die Idee der Messung von ^{63}Ni zum Nachweis schneller Neutronen in Hiroshimaproben wurde erstmals von Shibata et al. [SIS⁺94] veröffentlicht. Es wurde vorgeschlagen, mit einem hochempfindlichen Flüssigszintillator ^{63}Ni über die β^- -Aktivität zu messen. ^{63}Ni ist ein β^- -Emitter (siehe Abb. 1.6), der ohne γ -Emission in den Grundzustand zerfällt. Die niedrige Endpunktsenergie Q_{β^-} von ca. 67 keV erschwert allerdings die Messung.

In einem Testexperiment ergab sich eine Nachweiseffizienz für ^{63}Ni - β^- -Strahlung von 55 %.

				Zn 63 38,1 m	Zn 64 3,10	Zn 64 244,3 d	Zn 66 27,9		
29	Cu 63,546	Cu 59 82 s	Cu 60 23 m	Cu 61 3,4 h	Cu 62 9,74 m	Cu 63 69,17	Cu 64 12,700 h	Cu 65 30,83	Cu 66 5,1 m
28	Ni 58,6934	Ni 58 68,077	Ni 59 7,4 10 ⁴ a	Ni 60 26,223	Ni 61 1,140	Ni 62 3,634	Ni 63 100 a	Ni 64 0,926	Ni 65 2,52 h
	Co 56 77,26 d	Co 57 271,79 d	Co 58 271,79 d	Co 59 100	Co 60 10,5 m 5,272 a	Co 61 1,65 h	Co 62 14 m 1,5 m	Co 63 271,79 d	
	30	31	32	33	34	35	36	37	

Abbildung 1.5: Ausschnitt aus der Nuklidkarte nach [Kar95].

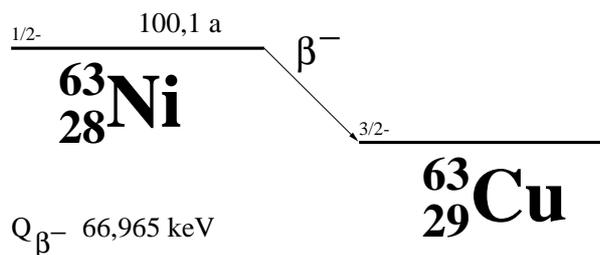


Abbildung 1.6: Zerfallsschema von ^{63}Ni , nach [Fir96].

Der Untergrund lag bei 0,06 Bq, die spezifische ^{63}Ni -Aktivität der für den Test verwendeten Kupferproben bei ungefähr 0,003 Bq/g Cu. Wegen der niederen Betaendpunktenergie können bombeninduzierte Aktivitäten, die auf Verunreinigungen der Probe zurückzuführen sein können, den Untergrund allerdings noch erhöhen. Mit einer Probenmenge von 10 g Kupfer kann die Messung nach [SIS⁺94] für Entfernungen nahe dem Hypozentrum durchgeführt werden. Für eine Entfernung von 1 500 m läßt sich eine 1 000 mal geringere Produktion von ^{63}Ni abschätzen (siehe Tab. 5.1). Damit würde diese Methode schon Probenmengen von ca. 10 kg benötigen. Bislang wurden in der Literatur keine experimentellen Ergebnisse dieser Methode, angewendet auf Proben aus Hiroshima, veröffentlicht.

Messung mit AMS

Eine weitere Methode ^{63}Ni nachzuweisen, ist die Beschleunigermassenspektrometrie. Am LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory) wurde am dortigen Institut CAMS (Center of Accelerator Mass Spectrometry [SCD⁺90]) ^{63}Ni in Testexperimenten gemessen [SMM96, MHM⁺97b]. Der Nachweis geschieht an einem 10-MV-FN-Tandem mit einem nachfolgenden Detektorsystem über den Nachweis der charakteristischen Röntgenstrahlung des Projektils (zur Methode siehe [ABG⁺93, ADK⁺94, WSS94, MBF⁺95]). Die Empfindlichkeit dieses Systems liegt bei $1,4 \cdot 10^8$ Atomen ^{63}Ni , bzw. $^{63}\text{Ni}/\text{Ni} = 2 \cdot 10^{-11}$ bei 1 mg stabiler Nickelträgersubstanz [MHM⁺97b]. Die Isobarenunterdrückung des Detektorsystemes liegt bei einem Faktor 300 [MHM⁺97b]. Störende Isotope werden durch das Strahlführungssystem unterdrückt. Für Proben aus größeren Entfernungen vom Hypozentrum ist jedoch ein empfindlicherer Nachweis notwendig. Eine wesentlich stärkere Isobarenunterdrückung bietet nun das Detektorsystem GAMS [KFK97], das mittlerweile am Münchner Tandemlabor für den Nachweis von ^{60}Fe und ^{53}Mn routinemäßig eingesetzt werden kann [KFK97, ABF⁺96]. So wurde vorgeschlagen, dieses System auch zum Nachweis von ^{63}Ni in Proben aus Hiroshima zu verwenden [SMM96].

Die Aufgabe der vorliegenden Diplomarbeit war es, die Meßmethode im Hinblick auf die Messung von ^{63}Ni aus Hiroshimaproben zu untersuchen und dann zu optimieren.

In Kapitel 2 wird die Meßmethode der Beschleunigermassenspektrometrie mit einem gasgefülltem Magneten sowie die verwendete Probenchemie vorgestellt. Beiträge zum Isobarenuntergrund werden in Kapitel 3 diskutiert und durchgeführte Verbesserungen aufgezeigt. In den Kapiteln 4 und 5 werden die bereits durchgeführten Messungen beschrieben und im Zusammenhang mit DS86 diskutiert.

Kapitel 2

Vorstellung der Methode

Wie bei vielen anderen Messungen von Radioisotopen mit Beschleunigermassenspektrometrie kommt auch bei ^{63}Ni der Untergrund hauptsächlich vom stabilen Isobar, also von ^{63}Cu . Um die Anforderungen an die Meßprobe zu bestimmen, wird zunächst das Nachweissystem behandelt.

2.1 Meßaufbau

2.1.1 Strahlführungssystem am Münchner Tandemlabor

In einer Ionenquelle (siehe Abschnitt 3.1) werden aus dem Probenmaterial negative Ionen gesputtert und durch eine Extraktionsspannung beschleunigt. Am Injektormagnet (Massenauflösung $\Delta A/A \approx 1/100$) wird die gewünschte Masse m des Ionenstrahles ausgewählt und über verschiedene Strahlführungskomponenten und eine Vorbeschleunigung in einen MP-Tandem eingeschossen (siehe Abb. 2.1). Bei einer Spannung von typischerweise 13,3 MV werden den negativen Ionen am Terminal in einer Kohlenstoffolie Elektronen abgestreift; im Ionenstrahl noch vorhandene Moleküle werden an der Folie durch Coulombexplosion aufgebrochen. Die jetzt positiven Ionen durchlaufen die Hochspannung nochmals und haben nach dem Tandem beispielsweise als 13^+ -Ionen eine Energie E von ungefähr 185 MeV. Am Analysiermagneten wird nun ein Ladungszustand q aus der Ladungsverteilung ausgewählt und weiter zum Detektorsystem GAMS geleitet. Durch einen Wienfilter vor dem Analysiermagneten kann zusätzlich noch nach der Geschwindigkeit selektiert werden.

Für die Messung der Konzentration eines Radionuklides mit AMS werden alle Strahlführungselemente so eingestellt, daß sie der magnetischen Steifigkeit $B\rho = \sqrt{2Em}/(qe)$ des ausgewählten Ladungszustandes nach dem Stripper entsprechen. Die Terminalspannung und die Energie für einen Ladungszustand sind gegeben, so daß das Strahlführungssystem als hochselektives Massenfilter betrachtet werden kann. Isobare haben aber einen zu kleinen Massenunterschied¹ und sind bei gleichem Ladungszustand über die magnetische Steifigkeit

¹z. B. zwischen ^{63}Cu und ^{63}Ni ist der relative Masseunterschied ca. 10^{-6} .

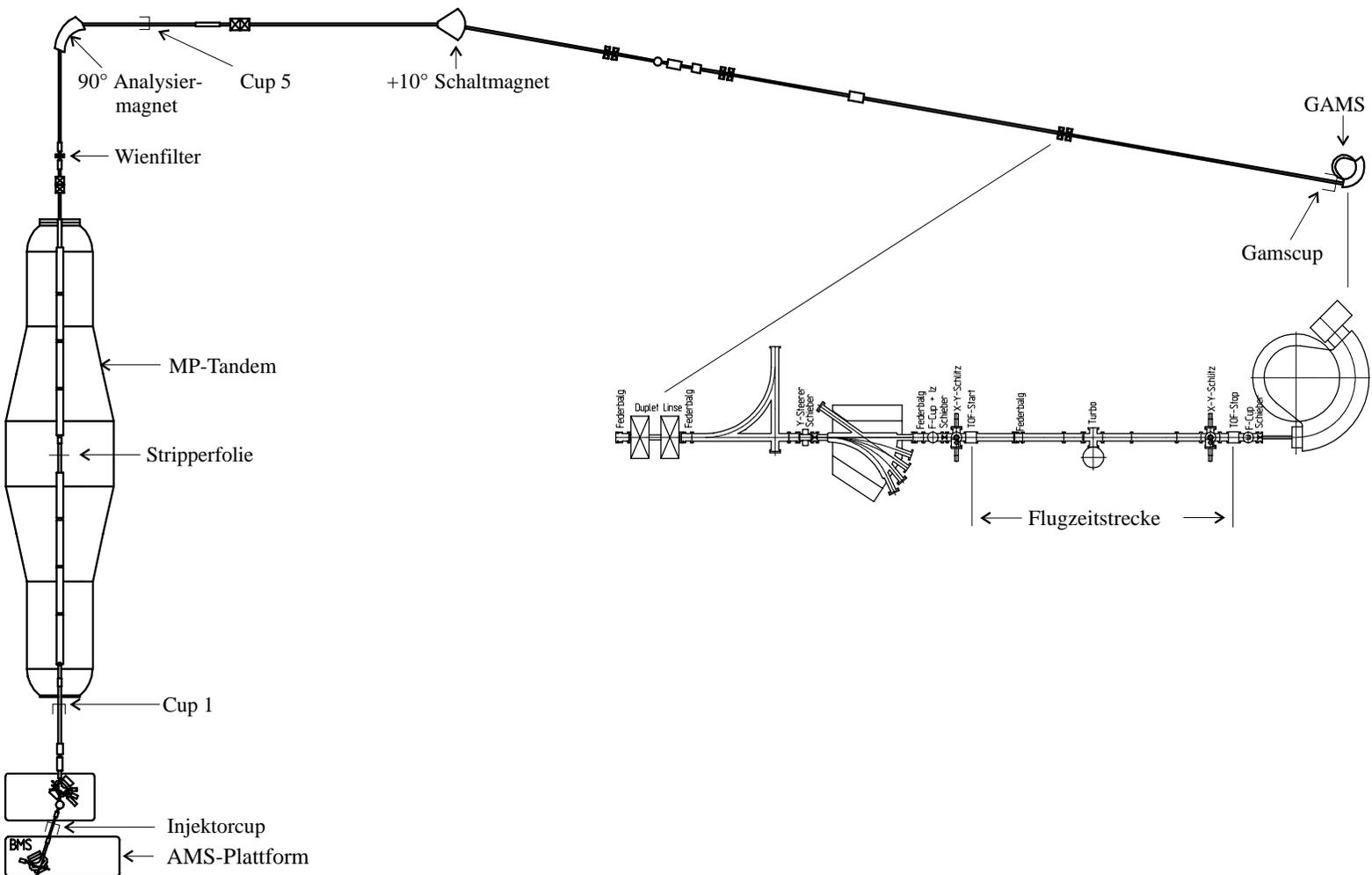


Abbildung 2.1: Experimenteller Aufbau.

nicht zu unterscheiden. Die elektrostatischen Elemente im Injektorbereich wirken als Energiefilter. Isobare mit gleichem q wie das Radionuklid lassen sich also im gesamten Strahlführungssystem prinzipiell nicht unterscheiden. Vornehmliche Aufgabe des Detektors ist deshalb die Isobarenreduktion. Isotope werden dagegen durch das bestehende Strahlführungssystem (siehe Abb. 2.1) hinreichend unterdrückt.

2.1.2 Das gasgefüllte Analysiermagnetsystem GAMS

Das gasgefüllte Analysiermagnetsystem GAMS [Kni96, KFK97], siehe Abbildung 2.1, ist ein für AMS-Anwendungen im Massenbereich $30 \leq A \leq 140$ ausgelegtes System, bestehend aus Flugzeitstrecke zur (weiteren) Isotopenunterdrückung, gasgefülltem 135° -Dipolmagneten und orts- und winkelauflösender Ionisationskammer mit multipler Energieverlustmessung. Die Flugzeitstrecke zur Selektion der Geschwindigkeit und somit der Isotope wurde bei dieser Arbeit nicht benötigt. (nähere Betrachtung [Kni96]).

Funktion des gasgefüllten Magneten

Durch die Wechselwirkung des Ionenstrahles mit dem Gas (N_2 , Druck bei ^{63}Ni -Messungen 4-6 mbar) in der Magnetkammer (Radius 0,90 m) stellt sich für Isobare ein von der Kernladungszahl Z_P abhängiger mittlerer Ladungszustand \bar{q} ein. Sayer fand eine semiempirische Formel, die das Verhalten im Vergleich zu den experimentellen Daten am besten beschreibt [Say77].

$$\bar{q} = Z_P \cdot \left(1 - 1.08 \cdot \exp \left[-80.1 Z_P^{-0.506} \left(\frac{v}{c} \right)^{0.996} \right] \right). \quad (2.1)$$

Dadurch ergibt sich für die Isobare ^{63}Cu und ^{63}Ni bei einer Energie von 185 MeV ein mittlerer Ladungszustand \bar{q} von 19,3 bzw. 18,8. In Abbildung 2.2 ist die mittlere magnetische Steifigkeit gegen die Energie aufgetragen. Man sieht den Unterschied wegen des unterschiedlichen \bar{q} und die Energieabhängigkeit. Die Messungen in dieser Diplomarbeit wurden bei Energien der Ionen von 182 MeV, 189 MeV, 186 MeV und 173 MeV durchgeführt.

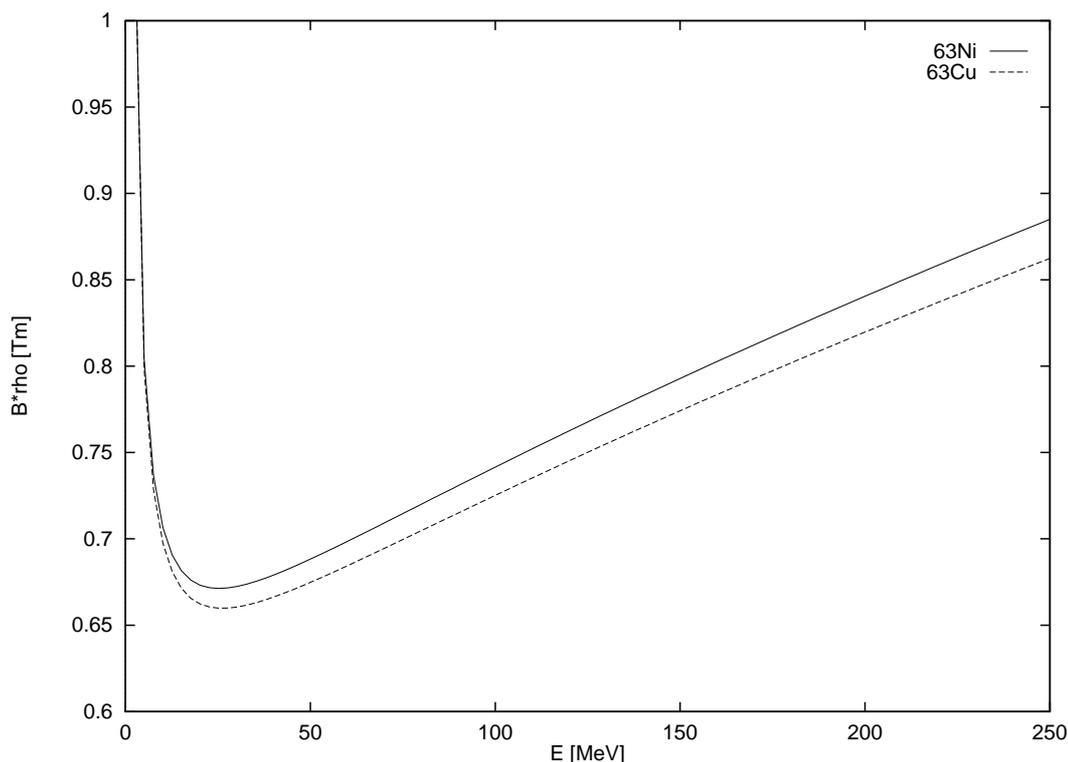


Abbildung 2.2: Die mittleren magnetischen Steifigkeiten für ^{63}Ni - und ^{63}Cu -Ionen, die sich aus Formel 2.1 ergeben, gegen die Projektilenergie aufgetragen.

Durch Anlegen eines Magnetfeldes ist es nun möglich, beide Ladungszustände örtlich zu trennen. Da die Bildung eines mittleren Ladungszustandes \bar{q} ein statistischer Prozeß ist, muß der mittlere Ladungszustand \bar{q}_i des einzelnen Ions nicht genau mit \bar{q} der Ladungsverteilung übereinstimmen. Dies führt zu einer Verbreiterung des Ionenstrahles in x-Richtung (senkrecht zu den Magnetfeldlinien). Außerdem werden die Ionen durch Stöße mit dem Gas gestreut (Verbreiterung in x- und y-Richtung). Insgesamt ergibt sich besonders in x-Richtung eine Verbreiterung. Durch Optimierung des Gasdruckes muß ein Optimum zwischen Statistik und Breite gefunden werden.

Nachweis in einer Ionisationskammer

Eine Ionisationskammer ist prinzipiell ein mit Gas gefüllter Plattenkondensator. Durch Stöße der Projektilionen mit den Gasatomen werden freie Ladungsträger erzeugt, die zur Anode (Elektronen) oder Kathode (Ionen) abgesaugt werden. Durch ein Frischgitter werden die Signale unabhängig vom Entstehungsort. Nach dem gasgefüllten Magneten wird eine Frischgitterionisationskammer verwendet, deren Anodenleiterplatte (siehe Abb. 2.3) in fünf Energieverluststreifen $\Delta E_1 - \Delta E_5$ aufgeteilt ist. Der erste und der dritte Energieverluststreifen sind diagonal geteilt, um aus der Ortsmessung eine horizontale Winkelinformation zu erhalten. Aus der Zeitdifferenz zwischen ΔE_2 und ΔE_4 wird der y-Winkel erhalten (Beschreibung in [Kni96]). Der (differentielle) Energieverlust dE/dx ist proportional zu \bar{q}^2 , so

daß die Isobare unterschiedliche Signale in den einzelnen Anodenstreifen erzeugen. Isotope unterscheiden sich bei gleicher magnetischer Steifigkeit durch ihre Energie und erzeugen so ein unterschiedliches Signal. Am Rechner werden Fensterbedingungen auf die einzelnen ΔE_i gesetzt und so die Spektren gewonnen (siehe Kapitel 4).

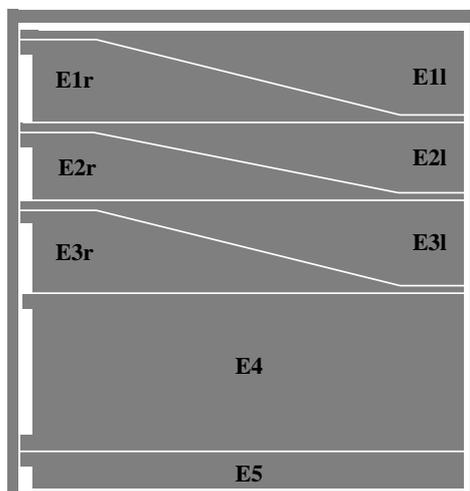


Abbildung 2.3: Ansicht der Anodenleiterplatte ($185 \cdot 195 \text{ mm}^2$, der Strahl kommt von oben). Im normalen Betrieb sind die Energieverlustsektoren ΔE_{2l} und ΔE_{2r} kurzgeschlossen. Um die Energieverlustsektoren ist ein sogenannter Guard-Ring, der auf Anodenpotential liegt. Dadurch wird verhindert, daß Ladungen durch Kriechströme abfließen können [KFK97].

Um für die hochsensible Messung im Bereich des homogenen Magnetfeldes zu sein, wurde das Eintrittsfenster in den Detektor durch Blenden verkleinert. Es gelangen so weniger Isobare in den Detektor, so daß die Zählrate reduziert wird. Eine moderate Zählrate ist für die Messung ein entscheidendes Kriterium, da man nicht durch den möglichen Ionenstrom der Ionenquelle, sondern durch die hohe Zählrate begrenzt ist. Somit macht ein gasgefüllter Magnet die für ^{63}Ni -Messungen mit Beschleunigermassenspektrometrie erforderliche Nachweisempfindlichkeit erst möglich.

Die Isobarenunterdrückung bei der Messung von ^{63}Ni sollte im gleichen Bereich wie für ^{59}Ni liegen. Dort wurde eine Unterdrückung um den Faktor 10^7 erreicht [Kni96, KFK97]. In dieser Arbeit wurde diese Unterdrückung sogar noch vergrößert (siehe Abschnitt 4.2).

2.2 Chemische Reduktion des Isobars

^{63}Ni wurde in Hiroshima in massivem Kupfer über die Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ in einer Kupfermatrix erzeugt (siehe Abschnitt 5.1). Das Isobar ^{63}Cu (natürliche Häufigkeit 69%) ist zu Anfang je nach Probe 15-18 Größenordnungen häufiger. Durch chemische Verfahren muß Kupfer aus der Probe entfernt werden, wobei die Grenzen der Chemie bei einigen ppb Kupfer liegen. Dies entspricht einer Verringerung des Kupferanteils um circa zehn Größenordnungen. Anschließend muß die Probe zur Messung noch in den Probenhalter überführt werden. In

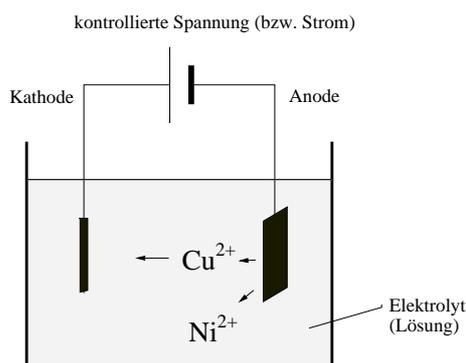


Abbildung 2.4: *Prinzip der Elektrolyse (Elektrochemie)*

Durch Anlegen eines Potentials (Wert 0-0,300 V) löst sich die Kupferanode auf, Cu^{2+} -Ionen wandern zur Kathode und werden reduziert, während Ni^{2+} -Ionen in der Lösung verbleiben.

einer Ionenquelle wird dann aus der Probe der Strahl aus negativen Ionen erzeugt. Die Probenaufbereitung wird in Livermoore durchgeführt, deshalb wird hier nur kurz die Methode beschrieben.

2.2.1 Probenaufbereitung

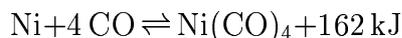
Aufgrund des unterschiedlichen elektrochemischen Potentials von $\text{Cu}^{2+}/\text{Cu}^0$ ($E^0 = +0,337\text{ V}$, [Hol95]) und $\text{Ni}^{2+}/\text{Ni}^0$ ($E^0 = -0,250\text{ V}$, [Hol95]) ist es möglich, mittels Elektrolyse (siehe Abb. 2.4) die beiden Metalle zu trennen. Durch Anlegen einer Spannung wird die Kupferprobe (Anode) sowie das darin enthaltene Nickel oxidiert. Dabei gehen beide Metalle als zweiwertige Metallionen in Lösung. Andere Wertigkeiten sind instabil und kommen in wässriger Lösung nicht vor, auch ^{63}Ni liegt in der Kupfermatrix zweiwertig vor, wie in Testexperimenten am LLNL gezeigt wurde [MHM⁺97a]. Aufgrund des edleren Charakters von Kupfer läßt sich die Elektrolysespannung so wählen, daß nur Cu^{2+} -Ionen an der Kathode selektiv zu elementarem Cu reduziert werden, während die Ni^{2+} -Ionen (^{63}Ni und Spuren natürlichen Nickels) unverändert in Lösung bleiben. Um die benötigte Probenmenge zu erhalten, kann als Trägersubstanz 1 mg stabiles Nickel zugegeben werden (siehe Abschnitt 5.1.2). Sobald ein hinreichender Teil der Kupferanode in Lösung gegangen ist, wird diese durch eine Platinelektrode ersetzt, um nun die Lösung von Kupfer zu reinigen.

Dieser Prozeß reduziert den Kupfergehalt um viele Größenordnungen [MHM⁺97a]. Nun muß das Ni^{2+} -Ion auf den Targethalter gebracht werden, wobei es dort als Feststoff vorliegen muß.

2.2.2 Probendeposition

Kupfer befindet sich in Spuren in nahezu allen Reagenzien und Gefäßen. Deshalb wurden die Proben immer wieder verunreinigt, wenn sie in den Targethalter überführt werden [MHM⁺97b]. Verschiedene Methoden führten zu einem Cu/Ni Verhältnis von ungefähr 10^{-5} . Um die Probe in den Probenhalter zu überführen und zusätzlich noch zu reinigen wird eine

labortechnische Variante des Mond-Verfahrens (siehe z. B. [Hol95]) verwendet [MHM⁺97b].



Da dieser Prozeß sehr selektiv auf Nickel² ist, wird die Elektrochemie nur noch verwendet, um den größten Teil des Kupfers abzutrennen. $\text{Ni}(\text{CO})_4$ ist ein hochgiftiges Gas, das zuerst in speziellen Schritten gebildet und danach mittels einer Glaskapillare direkt auf den Probenhalter geleitet wird (siehe Abb. 2.5), wo es an der 200 °C heißen Oberfläche wieder dissoziiert. Mit dieser Methode wurden bei AMS-Messungen am CAMS Cu/Ni-Verhältnisse von bis zu $2 \cdot 10^{-8}$ [MHM⁺97b] erreicht. Dieser Wert setzt allerdings eine gleiche Erzeugungseffizienz für Cu⁻- und Ni⁻-Ionen voraus. Bei verschiedenen Ionenquellen und Bedingungen in den Ionenquellen können aber die Ausbeuten schwanken. Deshalb ist dieser Wert mit den hier gemessenen Werten (siehe Abschnitte 3.2 und 3.6) nur bedingt vergleichbar.

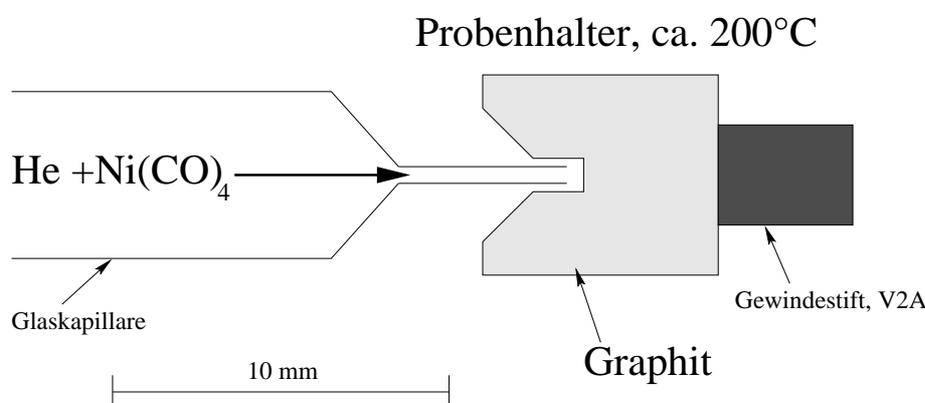


Abbildung 2.5: *Thermische Zersetzung von $\text{Ni}(\text{CO})_4$ im Probenhalter. Mit Helium als Trägergas gelangt $\text{Ni}(\text{CO})_4$ in den Probenhalter. Dort zerfällt die Verbindung an der 200 °C heißen Oberfläche und Ni schlägt sich am Graphit nieder. Prinzip aus [MHM⁺97b].*

Wichtig für AMS ist die Effizienz des chemischen Prozesses, da Probenmaterial, besonders bei Proben aus Hiroshima, sehr wertvoll ist. Am LLNL wurde die integrierte Effizienz, das Produkt aus Chemie- und Ionenquelleneffizienz, zu ca. 2 % bestimmt [McA97]. In dieser Arbeit wurde im Rahmen einer Abschätzung durch Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) die Effizienz des Carbonylprozesses zu ungefähr 50 % bestimmt (siehe Anhang B).

Bei ersten Messungen an Proben vom LLNL wurde im Ionenstrahl ein hoher Kupferuntergrund nachgewiesen. Da dieser Untergrund aus der Ionenquelle stammen mußte, wird auf die Erzeugung negativer Ionenstrahlen näher eingegangen.

²Kupfer bildet Carbonyle nur unter extremen Bedingungen. Zweikernige Carbonyle unterhalb von 30 Kelvin, einkernige unterhalb von 10 Kelvin [Hol95, Seite 1326, Anmerkung 10].

Kapitel 3

Verringerung des ^{63}Cu -Untergrundes im Ionenstrahl

3.1 Erzeugung negativer Ionen in einer Hochstromionenquelle

Da bei ersten Messungen an Proben in München ein hoher Kupferuntergrund festgestellt wurde (siehe Abschnitt 3.2), wird auf die Erzeugung negativ geladener Strahlen näher eingegangen. Durch Sputtern eines Cäsium-Strahles auf eine feste Oberfläche kann die Austrittsarbeit durch Belegung der Oberfläche soweit herabgesetzt werden, daß Elektronen die Oberfläche zusammen mit einem Neutralteilchen verlassen können. Dieses Prinzip wurde von Middleton bei Ionenquellen angewendet und dann weiterentwickelt [Mid82, Mid83, KSU88]. Aufgrund der hohen Effizienz an negativen Ionen ist dieser Ionenquellentyp Standard bei AMS.

Prinzip

In Abbildung 3.1 ist ein Schnitt durch eine am Tandemlabor für AMS verwendete Ionenquelle mit sphärischem Ionisator gezeigt.

Aus einem beheizten Reservoir wird Cäsiumdampf über ein dünnes Rohr direkt an den Ionisator aus Tantal geleitet. An der ca. 1000°C heißen Oberfläche kann Cäsium als positives Ion desorbieren. Durch die angelegte 6 kV Sputterspannung wird das Cs^+ -Ion auf die Probe hin beschleunigt. Dort sputtert es neutrale Atome oder Moleküle, sowie positive und negative Ionen und Molekülionen. Die negativen Teilchen werden durch die Sputterspannung zum Ionisator hin beschleunigt und mit einer Extraktionsspannung von 28 kV aus der Quelle abgesaugt.

Die Effizienz der Bildung negativer Ionen ist von den Quellenparametern sehr empfindlich abhängig. Sie erhöht sich z. B. bei größerer Elektronenaffinität des Atomes. Aufgrund der Wasserkühlung des Targetträgers wird eine Belegung der Probe mit einer Cs-Schicht erreicht

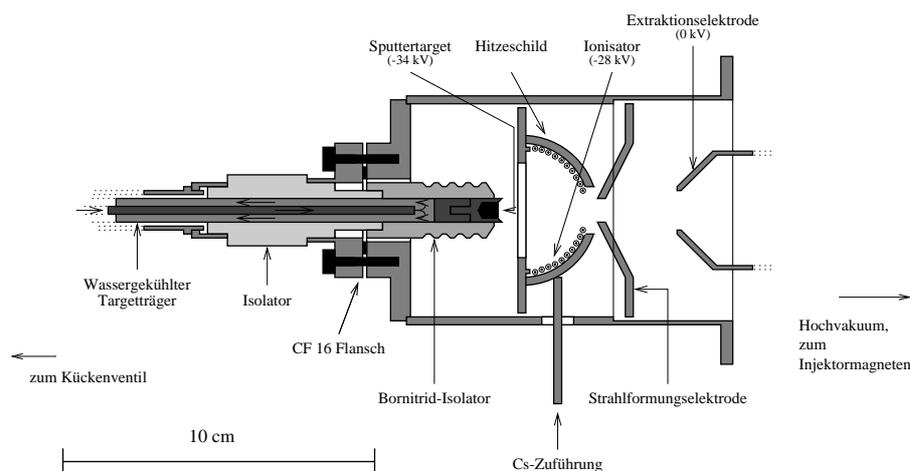


Abbildung 3.1: Hochstromionenquelle mit sphärischem Ionisator.

und dadurch die Wahrscheinlichkeit zur Bildung eines negativen Ions erhöht. So ergeben sich für Nickelionen Effizienzen je nach Geometrie des Cäsiumstrahles und des Probenhalters im Bereich 1-9% [Kni92, Kor97, Mid82]. Aufgrund des sphärischen Ionisators sputtert der Cs-Strahl nur auf einer Fläche von ungefähr 2 mm Durchmesser am Probenmaterial [Urb86, KSU88]. Andere Quellentypen haben um Größenordnungen kleinere Effizienzen an negativen Ionen und sind deshalb bei wertvollen Proben nur bedingt geeignet.

Eigenschaften der Ionenquelle

Die Ionenquelle ist klein und kompakt, ermöglicht einen schnellen, einfachen Probenwechsel über ein Küchenventil und kann auch leicht gesäubert werden. Allerdings enthält diese normale AMS-Quelle massive Kupferteile und hat nur ein kleines Volumen. Durch einen gekühlten Seitenflansch wurde versucht, störendes Restgas an der kalten Oberfläche zu binden. Dies brachte aber keine Verbesserung des Untergrundes. Deshalb wurde eine andere Ionenquelle (siehe Abb. 3.4) mit einem anderen Konzept erstmals in Betrieb genommen. Die neue Ionenquelle wird in Abschnitt 3.4 behandelt. Da die Geometrie des Sputterns, viele Werkstoffe und näherungsweise auch die Extraktionsgeometrie für beide Quellen die gleiche ist, wurden die Messungen mit der alten Hochstromionenquelle verwendet, um eine Systematik des Kupferuntergrundes zu erkennen. So beziehen sich die folgenden beiden Abschnitte auf die alte Hochstromionenquelle.

3.2 Messungen des Untergrundes

Bei dem ersten Versuch der Messung von ^{63}Ni ergab sich ein sehr hoher Untergrund von ^{63}Cu im Ionenstrahl. In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse dieser Messungen gezeigt, um daraus die Lösungsansätze zu erkennen.

Wie noch in Abschnitt 3.3.1 beschrieben wird, kamen zwei Arten von Probenhaltern zum Einsatz, Graphitprobenhalter, fortan mit Hxxx bezeichnet, und Silberprobenhalter, aXX

genannt.

In der Tabelle 3.1 ist ein Überblick über die gemessenen Schwankungen des Cu/Ni Verhältnisses gezeigt. Die Werte sind nicht absolut, da die Transmission (siehe Abschnitt 4.1) nicht immer wieder genau geprüft wurde und auch die absoluten Werte der verwendeten Strahlabschwächer eine Rolle spielen¹. Bei einer Strahlzeit im April zeigte die sauberste Probe ein Cu/Ni Verhältnis im Bereich 10^{-5} . Doch es zeigten sich große Schwankungen von Probe zu Probe, so daß der Untergrund nicht rein instrumenteller Natur sein kann. Eine einzelne Probe zeigte bei mehrmaliger Messung stets einen erhöhten Kupferuntergrund, wenn auch nicht immer gleich stark erhöht. Die Werte der Juni-Strahlzeit waren ähnlich hoch bzw. noch höher, trotz penibler Reinigung und großer Vorsicht bei der Probenaufbereitung. Durch die Zuführung von Cäsium wurde versucht, die Ionenquelle zu reinigen. Cäsium kann durch seine chemischen Eigenschaften stark getternd wirken und damit eventuelle Verunreinigungen an kühlen Oberflächen festhalten. Es ergab sich jedoch kein direkter Zusammenhang.

Probe	Cu [ppm] April	Cu [ppm] Juni
aXX	10 - 100	50 - 1000
Hxxx	100 - 1000	100 - 8000

Tabelle 3.1: *Untergrund der verschiedenen Proben im April und Juni (Silberprobenhalter aXX, Graphitprobenhalter Hxxx); Kupferwerte im Stahlstrom, bezogen auf Ni^{-} -Strom; die Werte sind nicht als Absolutmessungen zu verstehen, siehe Text.*

Außerdem wurde der Einfluß von Luft beim Wechseln der Proben getestet. Es wurde im schlechtesten Fall eine Verschlechterung der Kupferrate um den Faktor 60 gemessen. Daraus resultierte die Idee, den Probenwechsel mit mehr Aufwand zu betreiben (siehe Abschnitt 3.5).

Da das Niveau des Untergrundes zu hoch war, wurde eine neue Ionenquelle mit einem anderen Konzept in Betrieb genommen (siehe Abschnitt 3.4), um den instrumentellen Kupferuntergrund zu verhindern.

Insgesamt ergibt sich jedoch aus den Messungen, daß das Problem quantitativ unverstanden ist. Es gibt jedoch qualitative Ansätze zum Verständnis. In Livermore beim Betrieb deren Multisamplequelle [PSR⁺90] reduzierte sich der Kupferuntergrund durch die Installation einer Kryopumpe statt einer Turbomolekularpumpe um mehr als eine Größenordnung. Deren Vermutung ist es, daß bei der Verwendung einer Turbomolekularpumpe organometallische Verbindungen mit dem Pumpenöl einen genügend großen Dampfdruck haben, um die Probe zu verunreinigen [MHM⁺97b]. Pumpenöl, wie das am Tandemlabor München verwendete Schmiermittel TL011, sind selbst sehr saubere Öle². In Livermore ergab sich außerdem

¹Als Strahlabschwächer werden Lochblenden im Strahlführungssystem nach dem 90°-Analysemagneten verwendet. Je nach Lage und Durchmesser des Ionenstrahles ergeben sich unterschiedliche Werte für die Abschwächung. Besonders stark wird der Effekt bei Verwendung von zwei oder drei Strahlabschwächern, da sich Interferenzmuster ergeben.

²Turbopumpenöl TL011, Pfeiffer Vakuum GmbH, ist frei von Kupferbeimischungen. Durch Abrieb können jedoch Metallspuren in das Öl gelangen. Im normalen Betrieb gelangt Öl kaum in den Bereich des Hochvakuums, wohl jedoch bei Betriebsfehlern, wie Ausfall oder Belüftung [Pfe98].

mit der Kryopumpe eine Verbesserung des Vakuums um fast eine Größenordnung in den Bereich 10^{-7} mbar.

Isobarenunterdrückung NiH_2^- -Injektion

Durch Molkülioneneinschluß ist es bei AMS in einigen Fällen möglich, störende Isobare zu unterdrücken. Es wurde deshalb versucht, durch Verwendung von Nickeldihydrid (NiH_2^-) bei der Extraktion aus der Ionenquelle eine Verbesserung des Cu/Ni Verhältnisses zu erreichen. Leider führte dieser Versuch zu keiner Verbesserung. Das genauere Vorgehen wird in Anhang A beschrieben.

3.3 Materialanalysen

Um durch die Materialien in der Quelle keinen Kupferuntergrund zu verursachen, wurden von den in Frage kommenden Materialien Zertifikate angefordert und die Graphitprobenhalter sowie der Bornitrid-Isolator untersucht. Materialien, die heiß werden (Sättigungsdampfdruck) und Materialien von denen gesputtert wird, sind mögliche Quellen des Untergrundes.

Abbildung 3.2 zeigt ein Temperaturprofil einer Hochstromionenquelle im Betriebszustand, das zum besseren Verständnis aufgenommen wurde.

Der Sättigungsdampfdruck für Chrom (Cr), Kobalt (Co), Nickel (Ni), Kupfer (Cu), die mögliche Isobare für hier meßbaren AMS-Isotope ^{53}Mn , ^{59}Ni , ^{60}Fe , ^{63}Ni darstellen, ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Die Hochstromionenquelle hat im Betriebszustand ein Vakuum besser als 10^{-6} mbar, so daß besonders warme Materialien eine mögliche Ursache für den Untergrund darstellen können.

Gesputtert wird an der Probe, dem Probenhalter und dem Bornitrid; somit sollten diese Materialien keine Verunreinigungen mit Kupfer enthalten.

3.3.1 Probenhalter

Üblicherweise wird bei AMS-Messungen am GAMS hochreines Silber³ (Massenzahl 107 und 109) verwendet, laut Analysenzertifikat ist der Kupfergehalt unter 1 ppm. Wegen der hohen Massenzahl gegenüber den typischen am GAMS gemessenen Radioisotopen (^{53}Mn , ^{59}Ni , ^{60}Fe) trägt es nicht zum Untergrund bei. Da dieser Wert gering genug ist, wurde versucht, Nickel in diese Probenhalter zu deponieren. Die Effizienz der Deposition war aber so gering, daß nun hochreines Graphit⁴ verwendet wird. Dieses Material wird am LLNL verwendet, empirisch wurde eine hohe Effizienz der Deposition festgestellt (siehe auch Anhang B). Die Probenhalter (siehe Abb. 2.5) werden aus Graphitstangen gefertigt, wobei hier die Gefahr der Verunreinigung besteht.

³silver rod 99,999 %, Johnson Matthey Company.

⁴graphite rod 99,9995 %, Johnson Matthey Company.

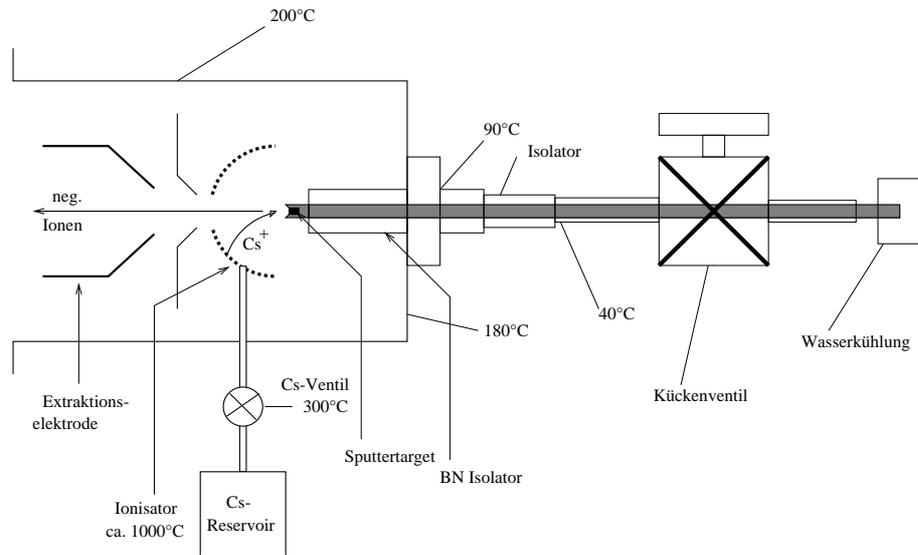


Abbildung 3.2: Temperaturen an der Hochstromionenquelle; schematische Zeichnung; Werte im Betrieb gemessen, Wert des Ionisatordrahtes aus [Urb86].

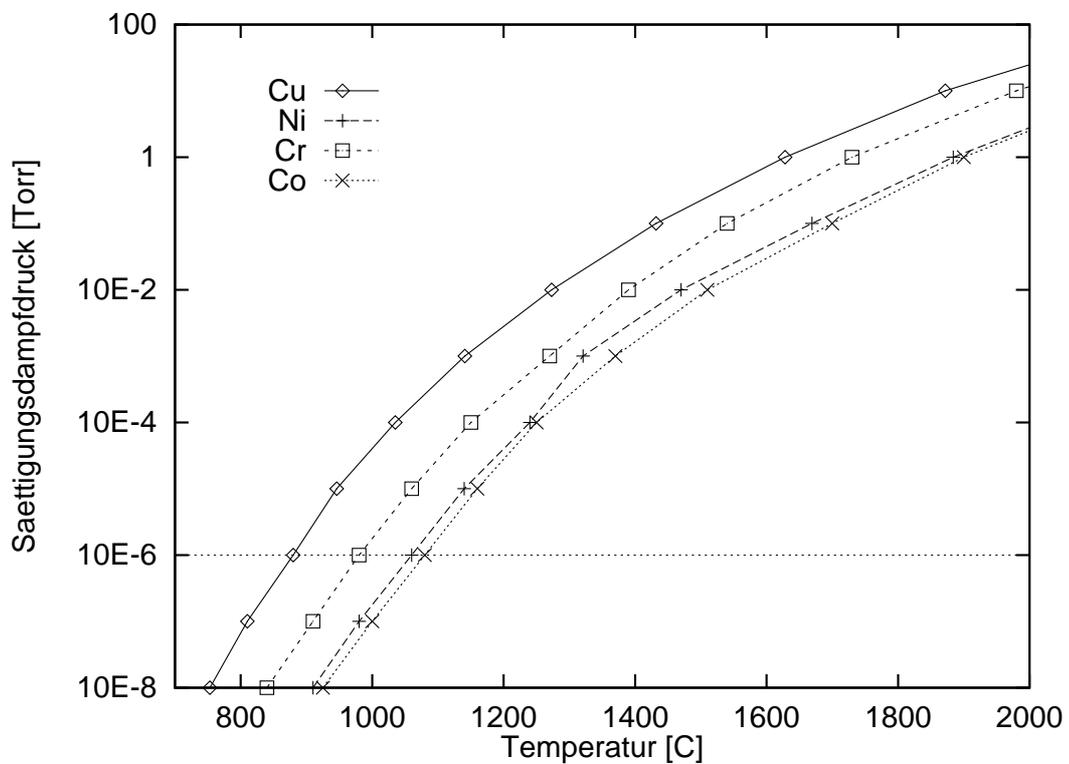


Abbildung 3.3: Sättigungsdampfdruck (Werte in Torr. 1 Torr=1,333 mbar) aus [Ard73].

Zur Überprüfung der Reinheit wurden zwei Probenhalter mit PIXE (Particle Induced X-ray Emission) im Laboratory for Nuclear Microanalysis am Rudjer Bosković Institutes, Zagreb untersucht [Bog97].

Probe	Zustand vor PIXE	Cu-Gehalt	Nachweisgrenze
H 049	neu	<31 ppm	31 ppm
H 050	gebraucht	238 ppm ($\pm 24\%$)	31 ppm

Tabelle 3.2: *PIXE-Messungen des Cu-Gehaltes von Probenhaltern; H 049: leerer Probenhalter, H 050: leerer Probenhalter, der zuvor in der alten Ionenquelle gemessen wurde.*

Diese Messung zeigt, daß der Cu-Untergrund aus der Ionenquelle stammt und deshalb eine bessere Ionenquelle verwendet werden muß.

Die Probenhalter wurden nach der PIXE-Messung nochmals in einer Sputterionenquelle gemessen. Die Probe H 050 zeigte einen um eine knappe Größenordnung größeren Cu-Wert. Die Probe H 050 hatte sich schon zuvor in der Ionenquelle befunden. In einer Rasteraufnahme ist stellenweise Kupfer zu erkennen, das sich offensichtlich durch den Sputterprozeß verteilt hat, so daß auf einer Fläche von ca. 1 mm^2 obiger Wert gemessen wurde. Ob die Verunreinigung von der Fertigung oder aus der alten Hochstromionenquelle stammt, konnte nicht bestimmt werden.

3.3.2 Bornitrid-Isolator

Ein Bornitrid-Isolator der Qualität HDBN (High Density Boron Nitride⁵), der als Isolator (siehe Abb. 3.1) in der Quelle verwendet wird, wurde mittels ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis) am Beschleunigerlaboratorium [AHH⁺94] auf Kupferuntergrund untersucht. Diese oberflächensensitive Methode ergab keine Verunreinigung mit schweren Elementen innerhalb der Nachweisgrenze von ca. 100 ppm. Somit ist auch der Kupfergehalt unterhalb von 100 ppm [Ass97]. Bei einem anderen möglichen Isolatormaterial Macor, einer Keramik, wurden viele Elemente mit höherer Kernladungszahl Z detektiert (z.B. $Z=19$, Kalium), so daß das in der Quellenatmosphäre bewährte HDBN weiterhin verwendet wurde.

Durch diese Messung konnte gefolgert werden, daß der starke Untergrund vermutlich nicht durch abgesputtertes HDBN erzeugt wird. Dies wird später durch den gemessenen geringen Untergrund bestätigt (siehe Abschnitt 3.6).

⁵Der Begriff "High Density" steht für das Herstellungsverfahren (Heißisostatpressen), nicht für die Festigkeit des Materials.

3.3.3 Ionisatordraht mit Hitzeschild

Als Ionisator (siehe Abb. 3.1) wird ein koaxialer Heizdraht verwendet, dessen Innenleiter auf Temperaturen über 1000°C ohmsch geheizt wird. Die Außenhaut des Koaxialdrahtes besteht aus reinem Tantal, der Kupfergehalt ist laut Analyse der Vertriebsfirma kleiner als die Nachweisgrenze von 5 ppm⁶.

Bei jedem Quellenwechsel, also nach jeder AMS-Experimentierzeit wird der Heizdraht ausgetauscht. Über ein Messingwerkzeug wird der Ionisatordraht zu seiner sphärischen Form gewickelt. Da dadurch Kupferuntergrund verursacht werden kann, wurde das Messingwerkzeug durch eines aus Plastik ersetzt. Der Draht wird nun in den Hitzeschild (siehe Abb. 3.1) gelegt, das aus gewöhnlichem Stahl besteht, der keine Kupferzusätze hat. Obwohl die Werte von Chrom und Nickel mit ca. 18% bzw. ca. 10% (siehe [Weg86]) sehr groß sind, ist der Untergrund bei Messungen von ⁵³Mn, bzw. ⁶⁰Fe im Bereich einiger ppm [Kni97].

Trotz des relativ höheren Dampfdruckes von Kupfer (siehe Abb. 3.3) ist es kaum anzunehmen, daß der instrumentelle Untergrund vom Ionisator mit Hitzeschild herrührt, falls der Ionisator über das Plastikwerkzeug gewickelt wurde.

3.3.4 Weitere Materialien

Ummantelung und Cs-Zuführung

Die Außenhülle der Ionenquelle, wie auch die Cs-Zuführung sind aus V2A-Stahl; sie sind zudem noch kälter als das Hitzeschild, so daß diesselbe Überlegung wie beim Hitzeschild gilt.

Ventil

Das Ventil über dem Cäsium-Reservoir ist ein Hochtemperaturventil SS-DLV51-HT der Firma Nupro. Zur Aufrechterhaltung der Funktionsfähigkeit wird es beheizt. Die medienberührten Teile bestehen alle aus Edelstahl 316 (ähnlich 1.4301) oder Kel-F, einer Teflonart, sind also „kupferfrei“.

Cäsium

Das verwendete Cäsium, ist hochrein⁷ und wird in Livermoore beim Betrieb deren Ionenquelle in großen Mengen verbraucht. Dort ergab sich kein hoher Untergrund bei deren Messungen (siehe Abschnitt 2.2.2). Zudem wurden auch am Tandemlabor geringe Werte des Kupferuntergrundes gemessen (siehe Abschnitt 3.6).

⁶Coaxial Tantalum Heater Wire, Temptron Engineering, Inc., California USA.

⁷Caesium 99,98% (metals basis), Johnson Matthey Company.

Teile aus Kupfer

Es wurden folgende mögliche Verursacher des Kupferuntergrundes gefunden:

- Dichtring am Cäsium-Reservoir
- Dichtring bei CF 16 Flansch
- Stromzuführung und Kleinteile
- Spitze des wassergekühlten Targetträgers
- Werkzeug zum Ionisatordrahtwickeln (Messing)

Bewertung

Durch den Austausch der Kupferteile kann alles makroskopisch vorhandene Kupfer aus einer Sputterionenquelle entfernt werden.

3.4 Verringerung des instrumentellen Kupferuntergrundes durch die neue Ionenquelle

Um den instrumentellen Untergrund zu verringern, wurde der Prototyp einer anderen Ionenquelle (siehe Abb. 3.4) in Betrieb genommen. Von diesem Quellentyp gab es zuvor noch keine Betriebsdaten, so daß diese zuerst erarbeitet werden mußten. Die Ionenquelle war schon vorhanden, wurde aber zuvor noch nie eingesetzt. Die Idee beim Bau dieser Ionenquelle war ihre offene Geometrie und die große Pumpleistung (besonders für Neutralteilchen) durch die gekühlten großen Wandoberflächen und die großen Pumpöffnungen. Herkömmlicherweise werden die Hochstromionenquellen in Garching außen vollständig mit einer Aluminiumfolie zur Verringerung der Kühlung durch Konvektion umwickelt; dadurch sind sie heiß und damit effizient im Cs-Verbrauch. Die herkömmlichen Hochstromionenquellen mit sphärischem Ionisator zeigen aber für das sehr flüchtige Element Chlor bei Messungen des Isotops ^{36}Cl ein Übersprechen im Promillebereich [Kni96]. Durch das größere Volumen und die für Restgas wie eine Kühlfalle wirkenden kalten Wände sollte diese Quelle ein wesentlich besseres Verhalten in bezug auf Übersprechen zeigen. Außerdem sollte es zu keiner Akkumulation von Untergrund produzierenden Atomen oder Molekülen im Sputtertargetbereich kommen.

Die massiven Kupferteile (siehe Abschnitt 3.3.4) wurden ersetzt:

Targetträgerspitze	→	hochreines Silber
Stromzuführung und Kleinteile	→	Nickel
Dichtring am Cäsium-Reservoir	→	Aluminium
Messingwerkzeug	→	Plastik

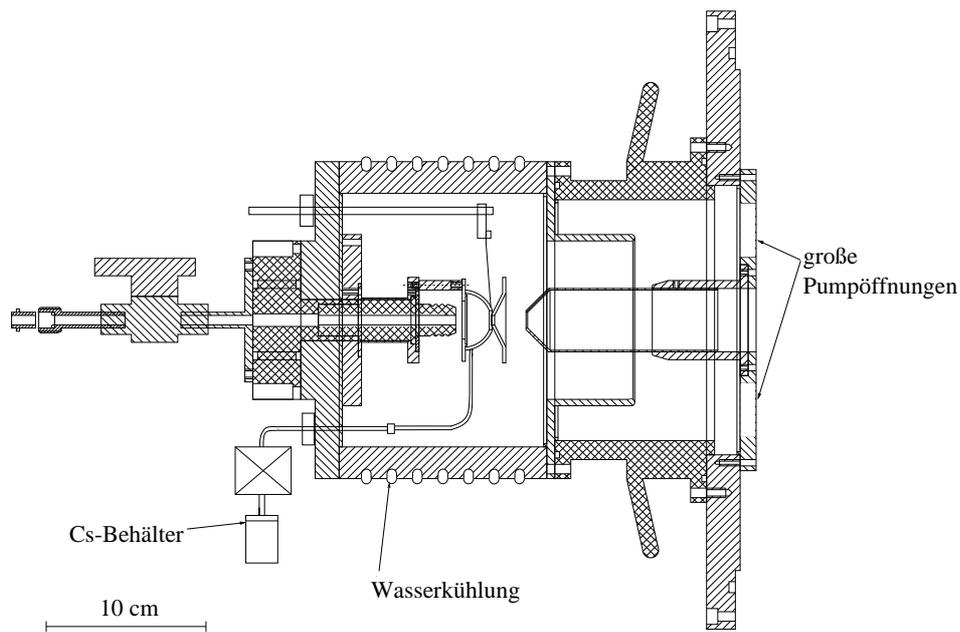
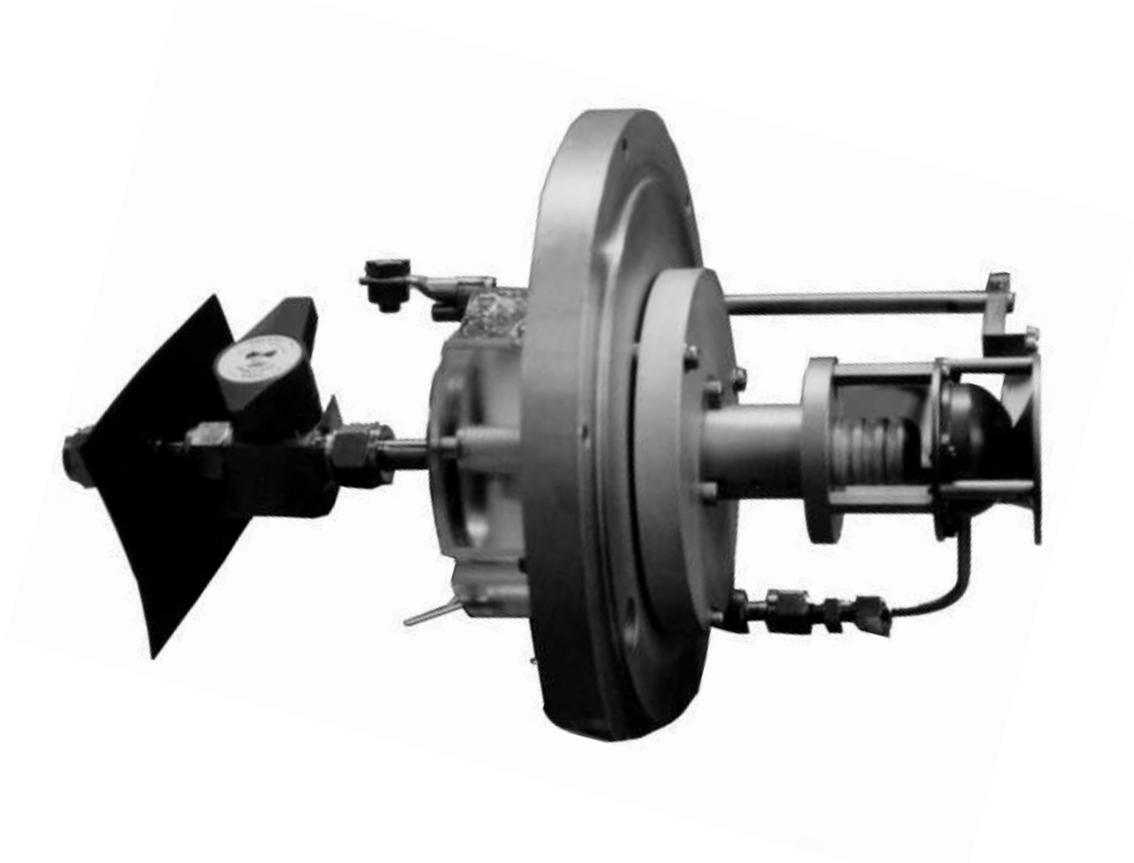


Abbildung 3.4: Ansichten der neuen Ionenquelle. Oben technische Zeichnung mit Extraktionselektrode, unten ein Photo. Die Geometrie bei dem Sputterprozeß, allgemein die Teile auf der Rotationsachse, sind bis auf leichte Veränderungen baugleich mit der alten Ionenquelle (Abb. 3.1). So liegen auch die verschiedenen Potentiale analog zur alten Ionenquelle.



Die neuen Materialien wurden in der Quellenatmosphäre im Betrieb erprobt. Der Ionisatordraht wurde über das Messingwerkzeug gewickelt. Bis auf den Dichtring des Cäsium-Reservoirs (Aluminium) sind alle Dichtungen der Ionenquelle aus Viton, da die Oberflächentemperatur dieser Quelle durch Wasserkühlung genügend kalt gehalten wird. Die Führung und damit die Justierung des Targetträgers ist durch den massiveren Aufbau stabiler, so daß der Cs-Strahl reproduzierbarer in das Sputterloch trifft. Beim Überdenken des Konzeptes wurden zudem die vakuumtechnischen Eigenschaften durch Beseitigung virtueller Lecks verbessert.

3.4.1 Inbetriebnahme

Nach diesen Veränderungen wurde die Ionenquelle an der AMS-Plattform (siehe Abb. 2.1) in Betrieb genommen.

Die Netzanschlüsse für die Strom- und Spannungsversorgungen sind kompatibel zu der anderen Ionenquelle, es mußte nur ein zusätzliches Netzgerät zur Heizung der Cs-Zuleitung verwendet werden. Zum Überblick sind typische Betriebswerte der Ionenquelle aufgezeichnet:

- Vakuum: $\sim 10^{-6}$ mbar
- Cs-Heizung: 2,1 W; Ventilheizung: 65 W; Cs-Rohr: 39 W
- Ionisatorheizung: 90 W
- Sputterstrom: 0,2 mA
- Extraktionsstrom: 0,14 mA
- $^{58}\text{Ni}^-$ Strom am Injektorcup: $1\mu\text{A}$

Um die Stabilität der Ionenquelle zu überprüfen, wurden die Parameter so gewählt, daß der Strom über den Zeitraum von einer Stunde $1\mu\text{A } ^{58}\text{Ni}^-$ ($\pm 10\%$) betrug. Das Ziel war es, stabile Betriebsbedingungen bei niedrigen Strömen bis zu maximal $2\mu\text{A } ^{58}\text{Ni}^-$ zu bestimmen, da auch bei einer erwarteten Strahlqualität von wenigen ppm Cu $^{58}\text{Ni}^-$ -Ströme von einigen hundert Nanoampere ausreichend sind⁸. So wurde das Stromverhalten auch bei kleineren Strömen getestet. Erreicht wurden diese Ströme bei niedrigen Werten für die Ionisatorheizung (ca. 80 W).

Optimierung der Extraktionsspannungen

Das Verhältnis von Extraktions- und Sputterspannung hat fokussierende Eigenschaften für den Strahl (siehe Abb. 3.4). Deshalb wurde durch Messung des Ionenstromes nach dem 90°-Injektormagneten das optimale Verhältnis bestimmt.

⁸Bei einer Transmission von 2%, 100 nA $^{58}\text{Ni}^-$ -Strom (10 ppm Cu), GAMS-Unterdrückungs Faktor 100 ergibt sich bereits eine Kupferzählrate von 1,2 kHz.

In verschiedenen Versuchen wurde die Extraktionsspannung variiert, wobei der Wert der Sputterspannung bei 6 kV gelassen wurde. Es ergab sich ein Maximum bei 25-26 kV. Für alle weiteren Messungen wurden deshalb 25 kV Spannung an der Extraktionselektrode gewählt.

Reinigung

Die Quelle wurde vor den Messungen noch gereinigt, um makroskopische Verunreinigungen zu entfernen. Das Aluminiumgehäuse wurde mit Isopropanol, der Bornitridisolator mit Sandpapier gereinigt. Die Oberfläche aller anderen Teile wurde mit Hilfe der Sandstrahlleinrichtung der Beschleunigerwerkstatt abgetragen. Um auch bei diesem Gerät saubere Bedingungen zu haben, wurde die Maschine von altem Strahlmittel gesäubert und danach mit frischen Glasperlen der Körnung 70-110 μm gespült. Nach der Reinigung wurden alle Teile in einem Ultraschallbad (gefüllt mit Isopropanol) vom Sand befreit, die Schrauben wurden ersetzt und auch der Ionisator Draht ausgewechselt (gewickelt mit dem Plastikwerkzeug).

3.5 Handschuhbox für Probenwechsel

Der Kupferuntergrund war bei den einzelnen Messungen mit der alten Ionenquelle nicht konstant. Deshalb kann er nicht ausschließlich nur aus den Materialien der Ionenquelle kommen. Der zweite Ansatz zur Verbesserung entstand aus der Erfahrung der ersten Experimentierzeiten und dem Vergleich mit Livermoore. In Garching werden die Proben normalerweise zum Wechseln an die Luft gebracht. Dadurch, daß die Ionenquelle jedesmal einer kleinen Menge Luft, also auch an Sauerstoff und Feuchtigkeit ausgesetzt wird, verschlechterte sich der Kupferuntergrund mit derselben Probe bis zu einem Faktor 60 (siehe Abschnitt 3.2). Am LLNL [PSR⁺90] wird eine Multisamplequelle verwendet, d. h. die Proben befinden sich vor der Messung als auch nach der Messung im Vakuum (10^{-6} mbar). Es wurde deshalb versucht, die Probe unter einer Schutzgasatmosphäre zu wechseln. Ein Vorversuch mit Hilfe eines mit Helium befüllten Beutels war erfolgreich, es ergab sich keine Verschlechterung des Kupferuntergrundes. Deshalb wurde eine Handschuhbox zum Wechseln der Proben gebaut (siehe Abb. 3.5).

Die Prozesse in einer Ionenquelle sind sehr komplex und für Spuren von Materialien nicht einfach zu verstehen. Ein Eintrag von reaktivem Sauerstoff und Wasserdampf hat beispielsweise einen Einfluß auf die Elektronenaustrittsarbeiten und somit die Ausbeute an negativen Ionen.

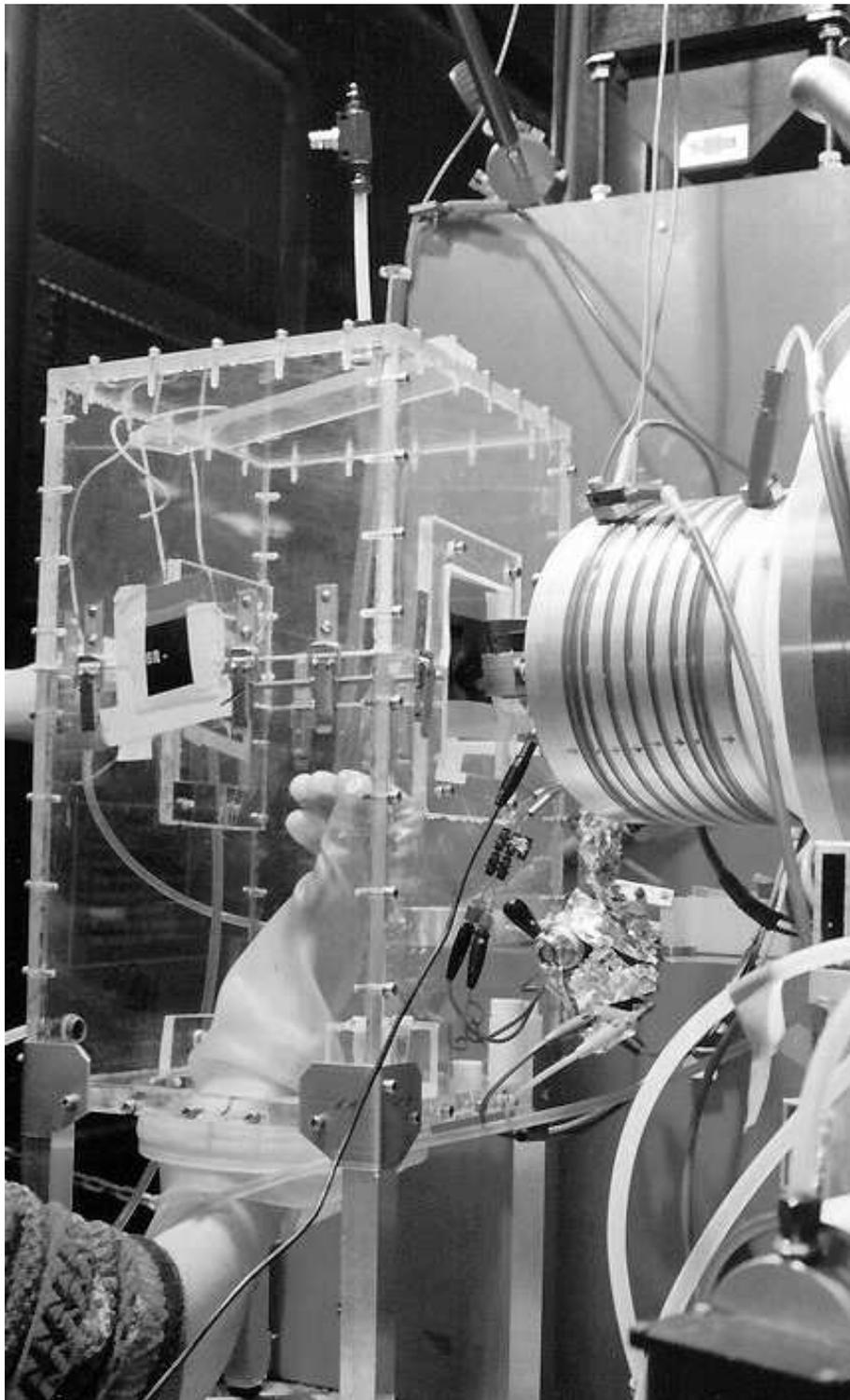


Abbildung 3.5: Handschuhbox beim Wechseln einer Probe am AMS-Injektor. Rechts ist die Ionenquelle dargestellt, links die Handschuhbox. Eine Hand am Targetträger, eine im Handschuh mit der Probe. Links unten das Einlaßventil für das Stickstoffgas, oben auf der Handschuhbox das Ablassventil.

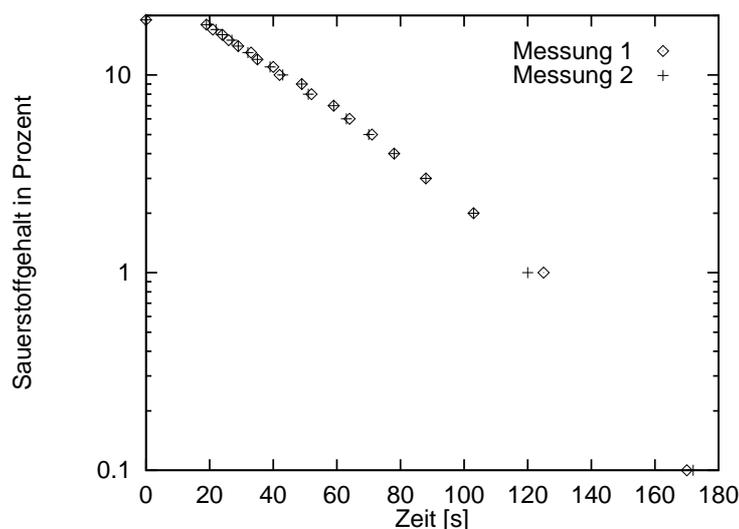


Abbildung 3.6: *Sauerstoffverdrängung durch Stickstoff (N_2) in der Handschuhbox. In der Praxis wurde vor jedem Wechsel 3 Minuten gespült, bevor mit den Probenwechseln begonnen wurde. Der erste Meßpunkt stellt den Startwert dar, danach wurde ein Reduzierventil zum Einlaß von N_2 geöffnet. Man sieht die rasche Abnahme der O_2 -Wertes, der über einen Sauerstoffsensoren gemessen wurde.*

In der neu gebauten Handschuhbox wird mit Stickstoffgas ein Überdruck erzeugt, das Gas strömt über die Dichtflächen aus. Die Dichtflächen sind aus Tesa Moll, die über Kistenverschlüsse zusammengepresst werden, die Löcher für den Targetträger bzw. zur Quelle hin werden über Gummilappen mittels Tape abgedichtet. Nach ungefähr 3 Minuten ist die Luft verdrängt; dies wurde über eine Messung mit einem Sauerstoffsensoren⁹ (siehe Abb. 3.6) bestimmt. Die Dichtheit der Box zeigt sich beispielsweise daran, daß nach dem Schließen aller Ventile nach 2 Stunden nur 2 Vol% an Sauerstoff in der Handschuhbox waren.

3.6 Ergebnisse mit der neuen Ionenquelle und der Handschuhbox

Anhand der Abbildung 3.7 lassen sich die Verbesserungen mit der Handschuhbox und der neuen Ionenquelle am besten erklären. Man sieht bei den Proben einen geringen Kupferuntergrund von ca. 5 ppm. Dies zeigt, daß die Verbesserungen erfolgreich waren. Die neue Ionenquelle (Abb. 3.4) zeigt also einen geringen instrumentellen Cu-Untergrund. Außerdem war es mit der Handschuhbox möglich, auch beim Probenwechsel den Cu-Untergrund gleichmäßig niedrig zu halten und Probenhalter mehrmals zu messen (H123). Ab Run # 20 wurden die Proben unter Luftatmosphäre gewechselt, es ergab sich ein erhöhter Cu-Untergrund, der aber viel niedriger war als bei der alten Hochstromionenquelle.

⁹OXYCOM 25D, Drägerwerk AG, Lübeck.

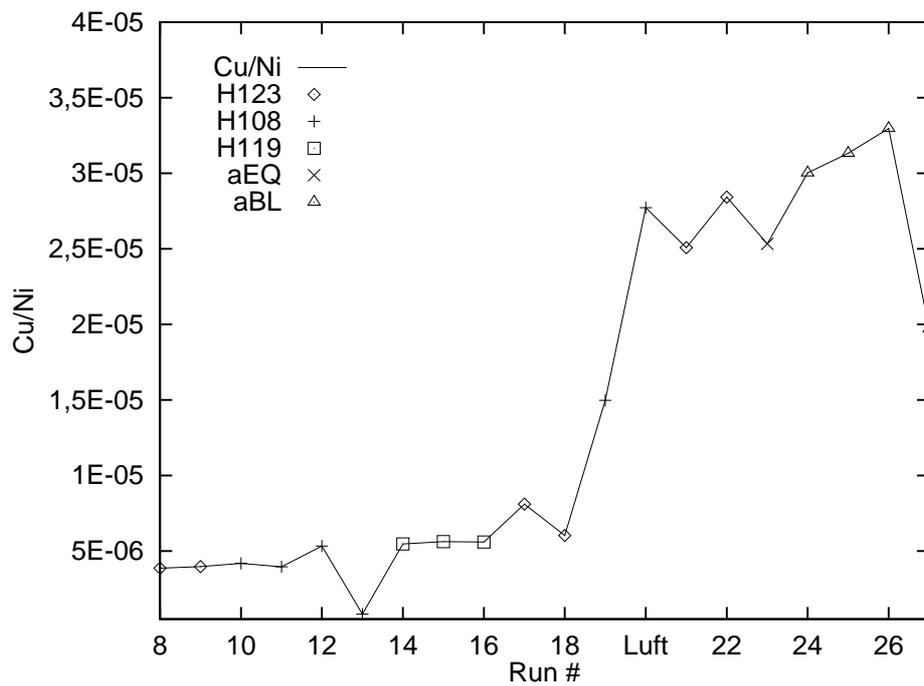


Abbildung 3.7: Messungen des Cu/Ni-Verhältnisses der einzelnen Proben im Oktober; die Linie gibt den zeitlichen Verlauf des Untergrundes wieder. Hxxx: Graphitprobenhalter, aXX: Silberprobenhalter, Blanks und Eichquelle (Abschnitt 4.1) bis zu RUN # 19 Probenwechsel mit der Handschuhbox, danach unter Luft; weitere Erklärung siehe Text.

Kapitel 4

AMS-Messungen

Im Rahmen der Diplomarbeit wurde in verschiedenen Experimenten die Isobarenreduktion des Detektorsystemes in bezug auf $^{63}\text{Ni}/^{63}\text{Cu}$ Trennung gemessen und verbessert. Zudem wurden Testmessungen mit ^{63}Ni -Proben aus künstlich bestrahltem Kupfer durchgeführt.

4.1 Herstellung einer Eichprobe

Eichproben werden zur Bestimmung der Transmission T durch das Strahlführungssystem (siehe Abb. 2.1) benötigt:

$$T = \frac{N_W \cdot e}{I \cdot t \cdot C_{Eich}} \quad (4.1)$$

N_W : nachgewiesene ^{63}Ni -Ereignisse im Detektor.

e : Elementarladung.

I : $^{58}\text{Ni}^-$ -Strom am Cup 1 vor dem Tandem,
die Ionenstrahlverluste bis zum Cup 1 werden vernachlässigt (siehe Abb. 2.1).

t : Meßzeit.

C_{Eich} : Konzentration der Eichquelle ($^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}$).

Zur Reproduzierbarkeit der Messungen mit Beschleunigermassenspektrometrie wird zwischen den Meßproben immer wieder die Transmission bestimmt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine dafür geeignete Eichprobe mit einer Konzentration von $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni} \approx 10^{-9}$ hergestellt. Dazu wurden 205 mg hochreines Nickelpulver¹ am Münchner Forschungsreaktor (FRM) 10 Minuten bei einem thermischen Fluß von $3 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ in der Rohrpostanlage 3 bestrahlt. Das Isotop ^{65}Ni , das über die Reaktion $^{64}\text{Ni}(n,\gamma)^{65}\text{Ni}$ mit einem thermischen Wirkungsquerschnitt von 14,2 barn an ^{64}Ni (Isotopenhäufigkeit 0,96 %) produziert wurde, diente als Flußsonde. Die Zahl der produzierten ^{65}Ni -Kerne wurde mittels γ -Messung der γ -Linien von ^{65}Ni ($T_{1/2}=2,52 \text{ h}$) bestimmt. ^{63}Ni wurde an ^{62}Ni (Isotopenhäufigkeit 3,6 %) über die Reaktion $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ mit einem thermischen Wirkungsquerschnitt von 1,48 barn

¹Ni powder 99,996%, Johnson Matthey Company.

erzeugt. So entstand eine Eichprobe mit einem $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}$ -Verhältnis von $(1,50 \pm 0,15) \cdot 10^{-9}$. Der Vergleich mit einer Eichprobe aus Livermoore [MHM⁺97b] ergab eine Konzentration von $(1,58 \pm 0,25) \cdot 10^{-9}$.

4.2 Isobarenunterdrückung

4.2.1 Unterdrückung durch den gasgefüllten Magneten

Wie in Abschnitt 2.1.2 gezeigt wurde, wird der Ionenstrahl durch die Wechselwirkung mit dem Gas in der Magnetkammer in zwei Strahlen im Ort aufgespalten. Durch geeignete Wahl des Magnetfeldes kann ein Großteil des störenden Isobars aus dem Detektor ausgeblendet werden. In den Abbildungen 4.1 ist dies mit einem Plot des differentiellen Energieverlustes ΔE_4 gegenüber dem Ort p veranschaulicht. Der Schwerpunkt der ^{63}Cu -Ereignisse liegt ca. 1300 Kanäle vom ^{63}Ni -Peak im Ort entfernt. Über die makroskopische Injektion der Isotope ^{62}Ni und ^{64}Ni in den Detektor - im obersten Spektrum dargestellt - wird die Position des ^{63}Ni -Peaks bestimmt, die in dieser Darstellung zwischen den Peaks der stabilen Isotope liegt. Mit einer Eichprobe (siehe Abb. 4.1 Mitte) kann nun die genaue Position des Schwerpunktes der ^{63}Ni -Verteilung bestimmt werden.

In den Abbildungen 4.1 und 4.2 gelangen nur 2,4% der Cu-Ionen in den Detektor. Bei Erhöhung des Magnetfeldes² lassen sich die ^{63}Cu -Ereignisse weiter verringern. So wurde bei hohem Untergrund eine Unterdrückung auf 0,7% der Cu-Ionen gewählt, um die Zählrate weiter zu begrenzen. Eine weitere Ausblendung durch ein noch höheres Magnetfeld ist allerdings nicht sinnvoll, da dann ^{63}Ni -Ionen ausgeblendet werden und sich somit die Transmission verringert (siehe Gl. 4.1).

In den ersten Experimentierzeiten mit hohem Cu-Untergrund wurde der Ladungszustand 13^+ mit einer geringeren Strippausbeute (ca. 6,6%) am Terminal gewählt. Mit der neuen Ionenquelle und der Handschuhbox und dem damit verbunden niederen Cu-Untergrund wurde der Ladungszustand 12^+ mit einer besseren Ausbeute von 13,9% bei 13,3 MV gewählt. Trotz der nun mit 173 MeV gegenüber ca. 185 MeV geringeren Energie verschlechterte sich die Trennung durch den gasgefüllten Magneten nur unwesentlich.

4.2.2 Unterdrückung durch die Ionisationskammer

In der Ionisationskammer (siehe Abschnitt 2.1.2) haben die Ionen einen unterschiedlichen differentiellen Energieverlust. Trägt man ΔE_4 gegen den Ort p auf, so erkennt man bei einer Eichprobe den Bereich der ^{63}Ni -Ereignisse (siehe Abb. 4.1). Wählt man nun diese Ereignisse aus und setzt bei allen anderen Detektorsignalen Bedingungen auf den ^{63}Ni -Peak, dann erhält man am Ende nur noch Ereignisse, die sich im Detektor wie ein ^{63}Ni -Ion verhalten haben.

Durch diese Datenanalyse verliert man ca. 50% der ^{63}Ni -Ereignisse, was sich in einer verminderten Transmission von ^{63}Ni -Ereignissen auswirkt. Insgesamt ergibt sich die sehr starke Isobarenunterdrückung um den Faktor 10^8 im Detektorsystem (siehe Abb. 4.2). Die Grenze

²Kupfer hat im gasgefüllten Magneten eine geringere magnetische Steifigkeit, siehe Abb. 2.2.

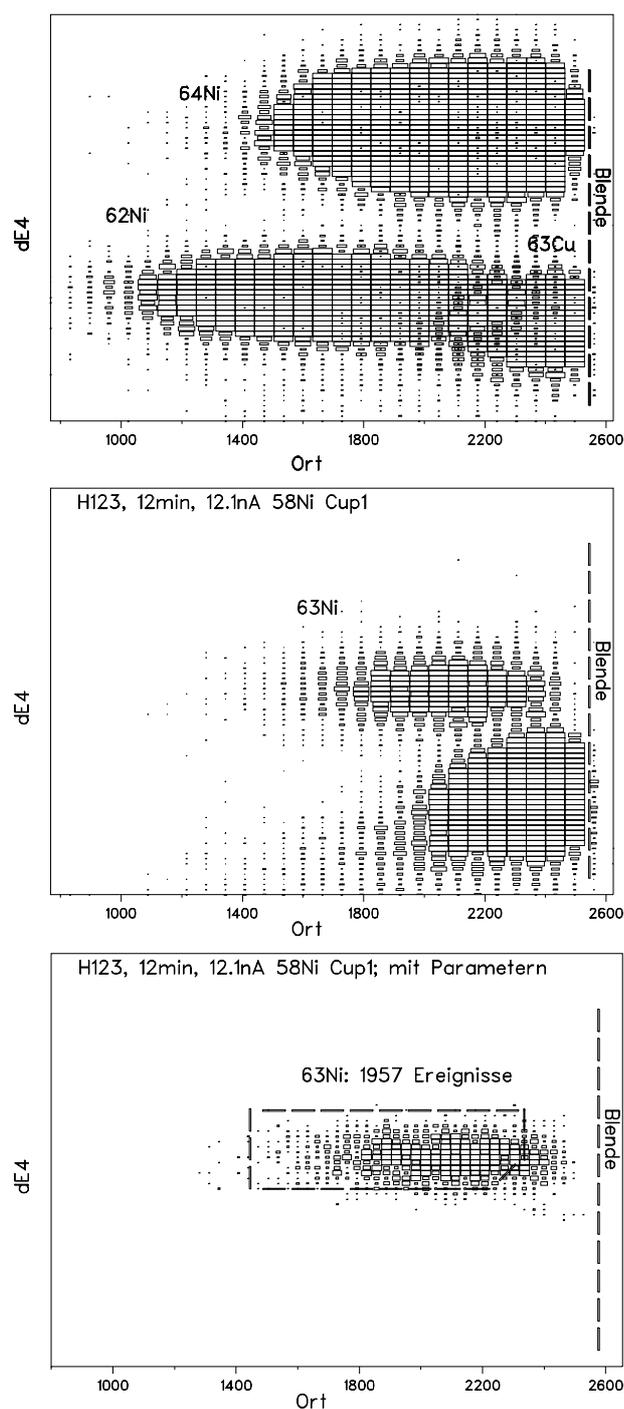


Abbildung 4.1: In den einzelnen Bildern ist jeweils der Ort p [Kanäle] gegen den differentiellen Energieverlust ΔE_4 aufgetragen. Am rechten Rand ist das Spektrum durch Blenden am Eintrittsfenster abgeschnitten. Oben sind drei Spektren übereinandergelegt, bei denen der Beschleuniger auf Massenzahlen 62, 63 und 64 eingestellt war, um die Position der ^{63}Ni -Ereignisse zu bestimmen. Das mittlere Spektrum zeigt die Eichprobe H123 mit einem $^{63}Ni/^{58}Ni$ Verhältnis von $1,7 \cdot 10^{-8}$. Das untere Spektrum wurde ebenfalls aus den Daten der Eichprobe H123 gewonnen, aber mit Fensterbedingungen auf den nicht gezeigten anderen Parametern.

der Isobarenunterdrückung in der Ionisationskammer ist erreicht, wenn Ereignisse aus einem „Blank“, bestehend aus hochreinem Ni-Pulver³, im für ⁶³Ni-Ereignisse ausgewählten Fenster liegen. Die Kupferunterdrückung aus der neuen Ionenquelle bei Verwendung der Handschuhbox wurde zu einem Faktor 10^5 verifiziert (vgl. Abb. 3.7). Damit ergibt sich eine mögliche Gesamtunterdrückung von $1 \cdot 10^{13}$. Folglich ergibt sich für die Messung von ⁶³Ni als Nachweisgrenze $^{63}\text{Ni}/\text{Ni} = 1 \cdot 10^{-13}$.

Somit wurde gezeigt, daß durch Optimierung des Systems zur Trennung von ⁶³Ni und ⁶³Cu die Isobarenunterdrückung einen Wert erreicht, der eine Empfindlichkeit wie bei der Messung von ⁵⁹Ni [KFK97] erlaubt.

4.3 Testmessungen

Um für Testmessungen potentielle Proben aus Hiroshima (z.B. Kupferdrähte, die den Neutronen der Hiroshima Bombe ausgesetzt waren) zu simulieren, wurden Kupferdrähte am NBS (National Bureau of Standards, USA) mit einer ²⁵²Cf-Quelle bestrahlt [LG88]. Bei dieser Quelle werden die Neutronen in einer spontanen Spaltungsreaktion erzeugt. Die Probenaufbereitung erfolgte in Livermore. Dabei kam es möglicherweise zu einer Kontamination der Proben [McA97]. Der Kupferuntergrund war nicht besser als ca. $2 \cdot 10^{-4}$ Cu/Ni. Mit diesem Untergrund und dem bestätigten Unterdrückungsfaktor des Detektorsystems GAMS konnten nur ⁶³Ni/⁵⁸Ni Verhältnisse bis ca. $4 \cdot 10^{-12}$ bestimmt werden. Die Zählrate begrenzte den Strom auf ca. 10 nA ⁵⁸Ni⁻, so daß nur mit relativ großem Fehler und auch schlechte Statistik gemessen werden konnte. In der Abbildung 4.3 ist die gemessene ⁶³Ni/⁵⁸Ni Konzentration der mit Neutronen der ²⁵²Cf-Quelle bestrahlten Drähte gegen den durch die Bestrahlung und Aufbereitung erwarteten Wert (Fehler 10 %) angegeben. Die einzelnen Meßwerte sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

³Ni powder 99,996%, Johnson Matthey Company.

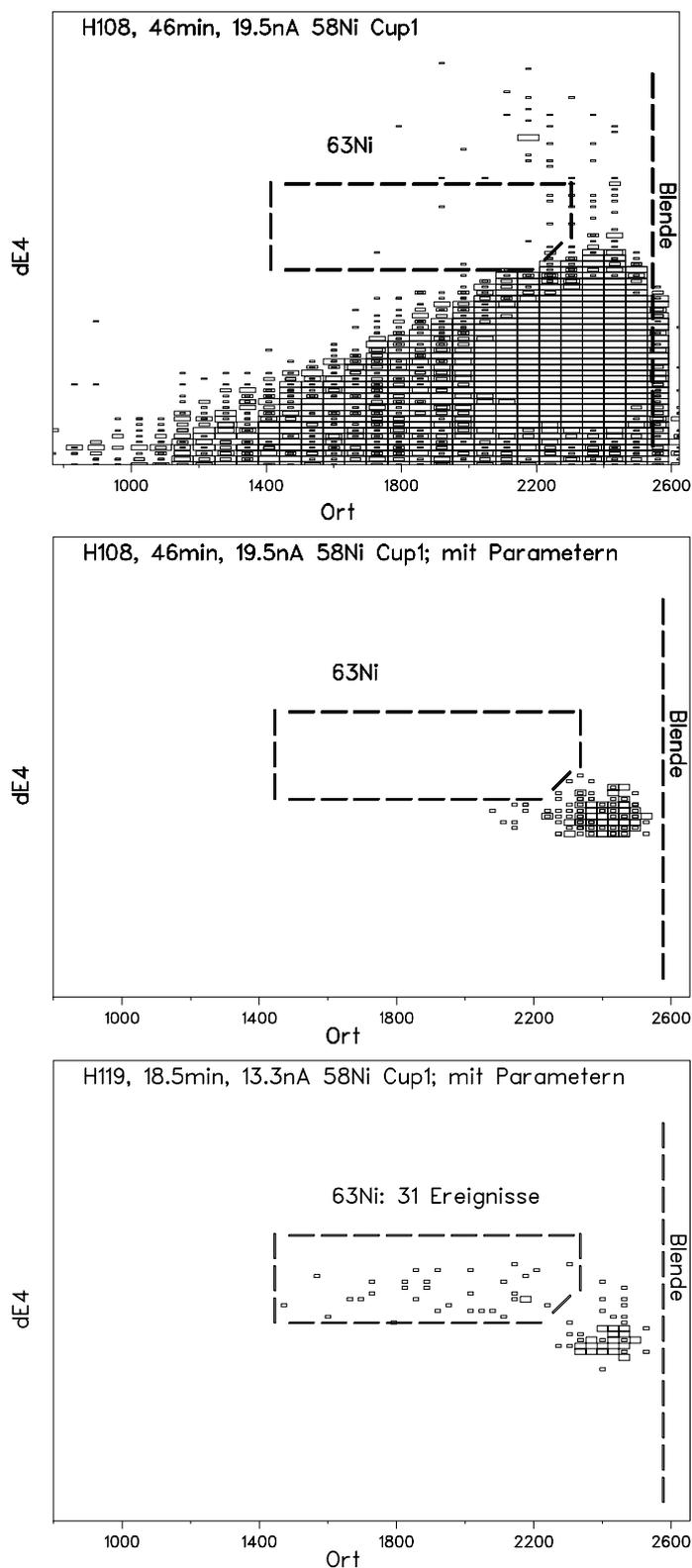


Abbildung 4.2: Die obere Abbildung zeigt ein Blank, die mittlere das Blank mit Fensterbedingungen. Auf ein Ereignis in allen Blanks kamen $2 \cdot 10^8$ ^{63}Cu -Ereignisse, bei einer weiteren Experimentierzeit $1 \cdot 10^8$. Die untere Abbildung zeigt eine Probe der Konzentration $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni} = 2 \cdot 10^{-10}$ nach der Datenauswertung.

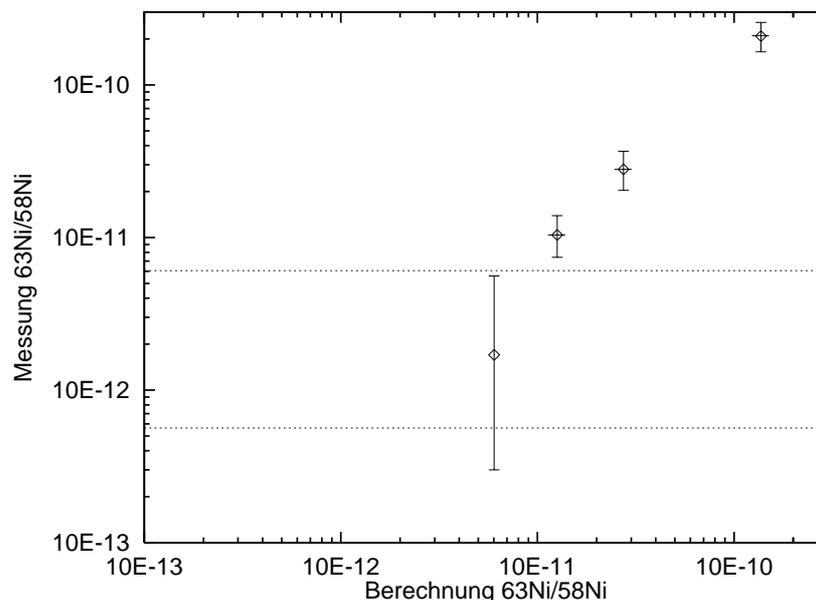


Abbildung 4.3: Vergleich Messung zu Berechnung für das Verhältniss $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}$ in künstlich erzeugten Proben. Der Untergrund wurde nicht korrigiert, die beiden Extremfälle von Blankmessungen sind als horizontale Linien eingezeichnet. Der gemittelte Untergrund über alle Blanks lag bei dieser Messung wegen des hohen Kupferuntergrundes bei $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni} = 3,5 \cdot 10^{-12}$; es wurden jedoch schon $1 \cdot 10^{-13}$ erreicht (siehe Abschnitt 4.2).

Probe	I·t [nAs]	T	^{63}Ni -counts	Messung $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}[10^{-12}]$	Berechnung $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}[10^{-12}]$
H211	13 769	0,68 %	1	$1,7^{+3,9}_{-1,4}$	6
H212	31 646	0,83 %	17	10^{+4}_{-3}	13
H213	6 243	0,54 %	44	209^{+48}_{-44}	140
H214	19 150	0,60 %	20	28^{+9}_{-7}	27
Σ Blanks	115 974	0,75 %	19	3,5	0

Tabelle 4.1: Obere Hälfte: AMS-Messungen an bestrahlten Proben;

Unten Summe über alle „Blanks“.

I: Strom am Cup 1; t: Meßzeit

T: Transmission von Cup 1 bis zum Detektor (siehe Abb. 2.1)

Der Fehler der Messung wurde mit der Poisson-Verteilung (68 % Vertrauensniveau) bestimmt, plus den systematischen Fehler von 15 %. Der Fehler der Berechnung beträgt 10 % [MHM⁺ 97a].

Kapitel 5

Diskussion

5.1 In DS86 erwartete ^{63}Ni -Produktion in Hiroshima

Um die Eignung möglicher Proben aus Hiroshima für die Messung in Garching zu überprüfen, sowie die Entfernung abzuschätzen, bei der mit der beschriebenen Apparatur noch ^{63}Ni nachgewiesen werden kann, wurde eine Abschätzung der zu erwartenden Aktivierung in Hiroshima als Funktion des Abstandes zum Hypozentrum durchgeführt. Die Bildung der ^{63}Ni -Kerne läßt sich über folgende Formel berechnen:

$$N(^{63}\text{Ni}) = \int N(^{63}\text{Cu}) \frac{d\Phi}{dE} \sigma(E) dE. \quad (5.1)$$

N ist die Anzahl der Atome des jeweiligen Isotops, $d\Phi/dE$ ist die differentielle Neutronenfluenz für einen Abstand vom Hypozentrum und $\sigma(E)$ ist der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ bei einer Neutronenenergie E .

Die im Rahmen einer Datenbankrecherche (alle Daten aus den Datenbanken [Tab97, Nuc97]) erhaltenen Querschnitte sind in Abbildung 5.1 gezeigt. Insbesondere für Energien größer als 5 MeV sind deutliche Unterschiede zu erkennen¹. Experimentelle Daten existieren nur bei rund 14 MeV (siehe Datenbank CSIRIS aus [Nuc97]). In dieser Arbeit werden alle drei Wirkungsquerschnitte benutzt, um die Produktion von ^{63}Ni für Hiroshima auszurechnen.

In DS86 ist die Neutronenfluenz als Funktion des Abstandes vom Hypozentrum nicht kontinuierlich, sondern in einer Energiegruppenstruktur von 46 diskreten Energiegruppen angegeben. (Inzwischen wurde die Gruppenstruktur auf 176 Gruppen verfeinert, was aber in Hiroshima keine wesentlichen Änderungen ergab [Wha94], weswegen auf die zugänglichen Daten aus DS86 [Roe87, Band 1, Seite 87f.] zurückgegriffen wurde.) Die genannten Wirkungsquerschnitte wurden nun mittels eines FORTRAN-Programmes in dieselbe Energiegruppenstruktur umgeschrieben.

¹Es existieren auch noch weitere Rechnungen siehe [MS96].

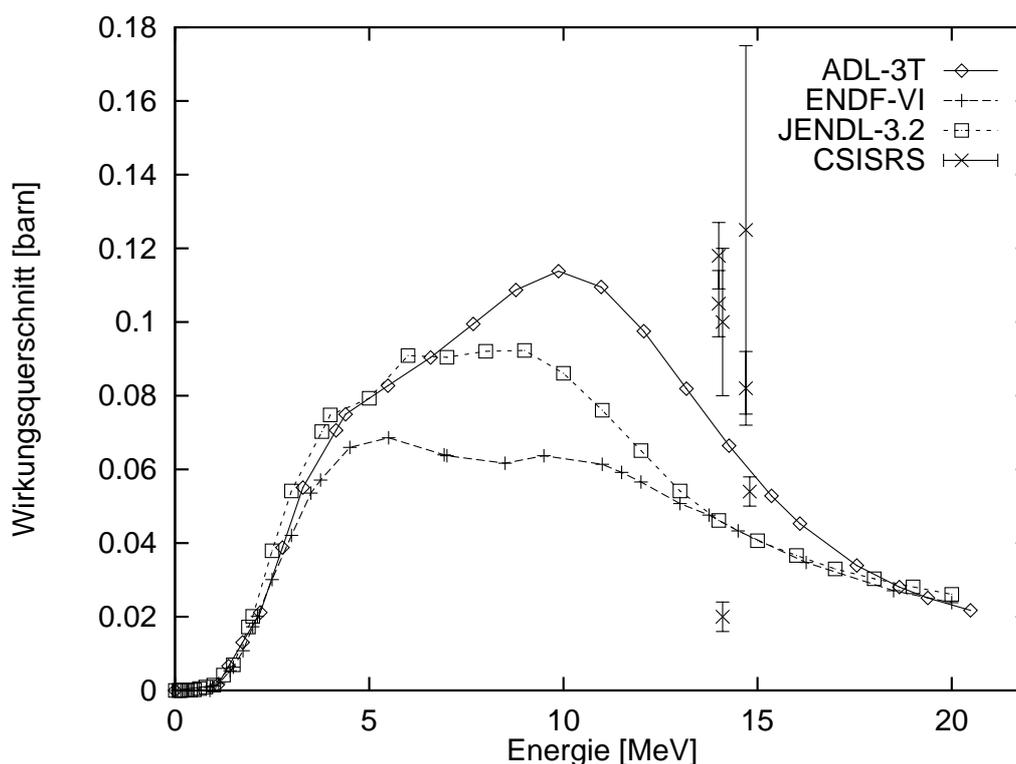


Abbildung 5.1: Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$; Werte aus Datenbanken über [Tab97, Nuc97]. CSISRS stellt eine Datenbank für experimentelle Daten dar. Zur Interpretation siehe Abschnitt 5.1.

So ergibt sich die Anzahl der in einer Cu-Matrix erzeugten ^{63}Ni -Atome aus folgender Formel:

$$N(^{63}\text{Ni}) = \sum_{i=1}^{46} N(^{63}\text{Cu})\Phi(E_i)\sigma(E_i). \quad (5.2)$$

$\Phi(E_i)$: Neutronenfluss der Energiegruppe i .

$\sigma(E_i)$: auf die Energiegruppe i kondensierter Wirkungsquerschnitt.

Wie aus Tabelle 5.1 ersichtlich, ergeben sich für die unterschiedlichen Wirkungsquerschnitte aus Abbildung 5.1 Abweichungen, die im Bereich des Meßfehlers von ca. 10% liegen. Der Grund für die geringen Abweichungen ist, daß hauptsächlich Neutronen im Bereich von 2-4 MeV zur Aktivierung beitragen und die Anstiegsflanke bei allen Datensätzen ähnlich ist. Dennoch ist es wünschenswert, gerade in diesem Bereich die theoretischen Wirkungsquerschnitte durch experimentelle Daten abzusichern. Daher werden gegenwärtig Anstrengungen unternommen, den Wirkungsquerschnitt insbesondere im Bereich einiger MeV zu messen [SIS+94, Str97].

Abstand	5 m	1 000 m	1 200 m	1 300 m	1 400 m	1 500 m
ADL-3T [^{63}Ni -Atome $\cdot 10^6$]	1 840	28,6	9,2	5,2	2,9	1,7
JENDL-3.2 [^{63}Ni -Atome $\cdot 10^6$]	1 740	28,4	9,2	5,3	3,0	1,7
ENDF-VI [^{63}Ni -Atome $\cdot 10^6$]	1 300	21,8	7,1	4,1	2,3	1,3

Tabelle 5.1: Zahl der ^{63}Ni Kerne in 100 g Kupfer, die durch $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ für verschiedene Abstände zum Hypozentrum (Hiroshima) erzeugt wurden; die Zahlen wurden zerfallskorrigiert (1997).

Die Umrechnung zwischen Hypozentrum und Epizentrum erfolgt mit der Formel:
 $(\text{Abstand zum Epizentrum})^2 = (\text{Abstand zum Hypozentrum})^2 + (\text{Explosionshöhe})^2$
 Die Explosionshöhe in Hiroshima wird mit 580 m angegeben.

5.1.1 Abschätzung des Untergrundes, geeignetes Material

Neutronenaktivierung von ^{62}Ni

Analog zu Gleichung 5.2 ist es nun möglich, den Beitrag der störenden Reaktion $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ zu bestimmen. Der Wirkungsquerschnitt für die (n,γ) -Reaktion ist bekannt. Es wurden die Werte aus ENDF-VI (aus [Nuc97]) verwendet, das Neutronenspektrum DS86 entnommen. Die Verunreinigung an stabilem Nickel ist probenspezifisch und muß bei jeder Probe gemessen werden. An einer Regenrinne aus Hiroshima wurde der Nickelgehalt mit Atomabsorptionsspektroskopie (AAS) zu 19 ppm gemessen [McA97]. Deswegen wurde für die Abschätzung ein Wert von 19 ppm Ni angenommen. In der Abbildung 5.2 sind beide Reaktionen aufgetragen. Man sieht, daß bei größeren Abständen vom Hypozentrum der Untergrund durch (n,γ) -Reaktion geringer wird, da das Spektrum mit zunehmendem Abstand härter wird. Somit ergibt sich durch eine stärkere Nickelverunreinigung bei großen Abständen kein störender Untergrund. Allerdings verschlechtert sich bei einem höheren Nickelgehalt die Nachweisgrenze in Bezug auf die Entfernung, da sich der Wert von $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ in der Probe verringert. Sauberere Proben als Regenrinnen wären beispielsweise Elektrokabel, die gewöhnlicherweise weniger als 1 ppm Nickel enthalten (Wert aus [SIS⁺94]). Auch andere Proben wie Blitzableiter oder Messingtafeln sind denkbar. Ein weiterer Vorteil der Kupferproben ist, daß sie meist unabgeschirmt der Strahlung ausgesetzt waren, und es so möglich ist, den Fluß der schnellen Neutronen direkt zu messen.

5.1.2 Probenmenge

Bei Beschleunigermassenspektrometrie wird aus der Probe der Ionenstrahl erzeugt, der dann analysiert wird. In Abbildung 5.2 ist das Verhältnis von $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ angetragen, das unabhängig von der Probenmenge ist. Wichtig zur Abschätzung der Probenmenge sind die Effizienzen der einzelnen Schritte bis zur Messung. Es wurde experimentell gezeigt, daß es in der Ionenquelle möglich ist, mit einer 200 μg Ni Probe (Wert vor der chemischen Aufbereitung) Messungen

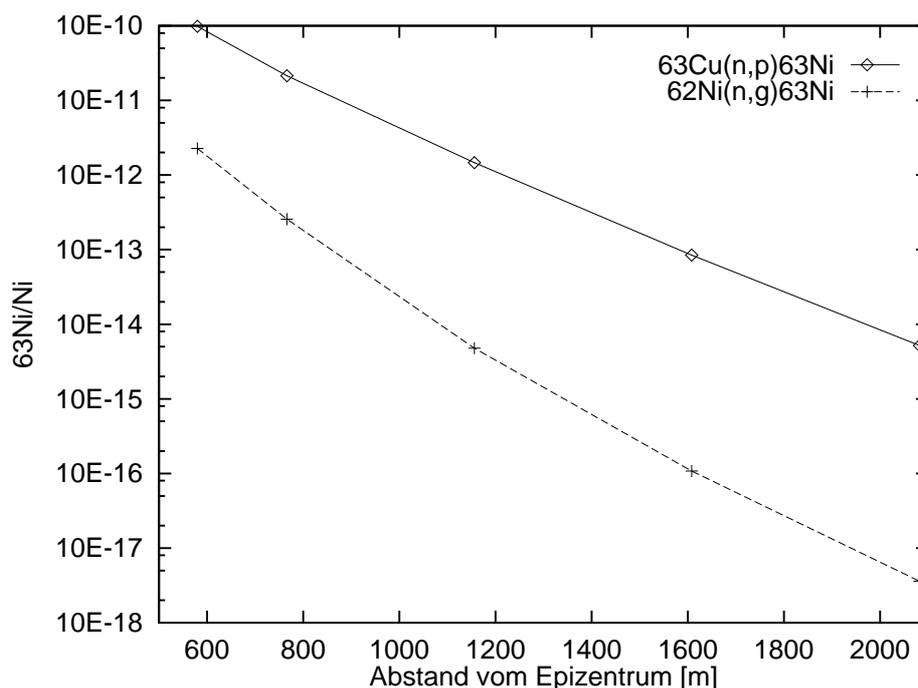


Abbildung 5.2: Aktivierung nach DS86 über $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ und $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$. Werte für Cu-Probenmaterial mit 19 ppm Ni. (zerfallskorrigiert 1997)

durchzuführen. Eine Probenmenge von 10^4 ^{63}Ni -Atomen reicht aus, den Nachweis zu führen. Um ca. 100 ^{63}Ni -Ereignisse im Detektor nachzuweisen, benötigt man eine Probenmenge von ca. 10^6 ^{63}Ni -Atomen. Bei einem Abstand von 1500 m vom Epizentrum werden (bei 19 ppm Ni-Gehalt im Cu) dazu weniger als 100 g Cu benötigt. Um die benötigte Probenmenge zu erhalten, kann auch stabiles Nickel als Trägermaterial zugegeben werden. Dadurch verschlechtert sich aber die Empfindlichkeit von AMS-Messungen indirekt, da $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ gemessen wird.

Die einzelnen Effizienzen sind in einer groben Abschätzung:

2 % vom Cu zu Ni^- -Ion (vgl. integrierte Effizienz vom LLNL)

0,5 % von der Quelle zum Detektor (Strahlführungssystem + Strippausbeute, Softwarefenster, Lifetime des Computers)

Probenmengen von einigen 100 g Kupfer sind vorhanden und können noch relativ einfach chemisch verarbeitet werden.

5.2 Bewertung der Messungen

In Abschnitt 4.3 wurde gezeigt, daß die momentale Nachweisgrenze des Detektorsystems GAMS für ^{63}Ni bei $1 \cdot 10^{-13}$ $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ liegt. Bei (vorhandenem) Probenmaterial mit 19 ppm Nickelverunreinigung entspricht das einem Abstand von ca. 1600 m (Abb. 5.2). Damit werden aus den Messungen von ^{63}Ni aus Hiroshimaproben weitaus bessere Daten erhalten wer-

den, als aus den Messungen der ^{32}S -Aktivierungen (siehe Abb. 1.4). Mit einer Messung von Proben am Münchner Tandemlabor ist es jetzt möglich, die Fluenz der Neutronen in Hiroshima für größere Abstände zu messen. Allerdings kann es bei der Probenaufbereitung oder auch aus der Ionenquelle einen zu großen Cu-Untergrund geben. Wenn es gelingt, das Isobarenverhältnis im Ionenstrahl unterhalb von ppm Kupfer zu halten, wird es aber sogar möglich sein, in noch größeren Abständen zu messen.

5.3 Ausblick

In Tabelle 1.1 wurden weitere Kandidaten zur Messung des schnellen Neutronenflusses vorgeschlagen. Von diesen am vielversprechendsten erscheint zum gegenwärtigen Zeitpunkt die Reaktion $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$. Die Produktion verläuft analog zu der von ^{32}P (siehe Abb. 1.3). Erste Abschätzungen zeigen, daß ^{39}Ar über low-level- β -Messung zumindest am Hypozentrum beispielsweise in einer Granitmatrix nachgewiesen werden kann [Nol97].

In Nagasaki wurden keine Messungen an ^{32}P durchgeführt, d.h. der schnelle Neutronenfluß wurde noch nicht gemessen, so daß es interessant wäre, auch hier das Spektrum zu überprüfen. So wurde auch für Nagasaki die zu erwartende Aktivierung abgeschätzt (Tab. 5.2). Daraus läßt sich erkennen, daß es mit der beschriebenen Methode auch möglich ist, in Kupferproben aus Nagasaki ^{63}Ni nachzuweisen.

Abstand	5 m	1 000 m	1 200 m	1 300 m	1 400 m	1 500 m
ENDF-VI [^{63}Ni -Atome $\cdot 10^6$]	2 400	32,1	9,92	5,5	3,1	1,7

Tabelle 5.2: Zahl der ^{63}Ni -Kerne (Nagasaki) in 100 g Kupfer, die durch $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ für verschiedene Abstände zum Hypozentrum erzeugt wurden; die Zahlen wurden zerfallskorrigiert (1997).

Die Explosionshöhe in Nagasaki wird allgemein mit 603 m angegeben.

Der nächste Schritt wird es jedoch sein, Proben aus Hiroshima zu messen. Es existieren Proben im Besitz der RERF (Radiation Effects Research Foundation), die für ^{63}Ni -Messungen zur Verfügung gestellt werden können. Dies schafft die Möglichkeit über 50 Jahre nach den Atombombenabwurf von Hiroshima weitere Daten zum Fluß der schnellen Neutronen zu erhalten, um die bestehenden Inkonsistenzen beheben zu können.

Anhang A

Isobarenunterdrückung durch Einschuß von Molekülionen

Kupfer bildet ebenso leicht negative Ionen wie Nickel und wird deshalb nicht schon in der Quelle unterdrückt. Die Elektronenaffinitäten der Isobare Nickel (1,156 eV [Smi82]) und Kupfer (1,228 eV [Smi82]) sind annähernd gleich. Werden aber nicht einfach negative Ionen, sondern Molekülionen aus der Quelle extrahiert, dann kann dies ein effektiver Weg sein, Isobare schon in der Quelle zu unterdrücken. Nach Middleton [Mid82] ist der maximale Strom von Kupferdihydrid (CuH_2^-) gegenüber Nickeldihydrid (NiH_2^-) um zwei Größenordnungen unterdrückt. Diese Unterdrückung wurde durch Messung am AMS-Cup nach dem 90°-Magnet als mindestens einem Faktor zehn bestätigt. So zeigte eine Probe mit Cu-Pulver bei Masse $A=67$ (CuH_2^-) gegenüber $A=65$ (Cu^-) nur 4% des Stromwertes. Die Probe mit Ni-Pulver zeigte bei Masse $A=66$ (NiH_2^-) noch über 40% des Stromes bei $A=64$ (Ni^-).

So wurde auch versucht, diesen Effekt am Detektor nachzuweisen, um damit einen eleganten Weg der Kupferunterdrückung zu haben. In die Probenhalter wurde ein Loch gebohrt, durch welches Wasserstoffgas eingeleitet wurde (Prinzip nach [Mid82]). Eine Reduktion des Kupferstromes gegenüber dem Nickelstrom konnte am Detektor nicht festgestellt werden, d. h. mikroskopisch verhält sich in der Quelle ein Kupferatom in einer Nickelmatrix wie ein Nickelatom. Dieser interessante Aspekt wurde aber nicht weiter untersucht, da eine Verringerung des Untergrundes nicht erreicht werden konnte, und nicht genug Zeit für eine ausführlichere Untersuchung zur Verfügung stand.

Anhang B

Bestimmung der Effizienz des Nickeltetracarbonylprozesses durch NAA

Nachdem klar war, daß die Methode in Bezug auf kleine Probenmengen optimiert werden mußte, wurden in Probenhaltern aus Graphit die Menge an deponiertem Nickel mittels NAA (Neutronenaktivierungsanalyse) gemessen. Dazu wurden ein leerer Probenhalter (H 049), drei Probenhalter mit Nickel und eine definierte Menge Nickel am FRM (Forschungsreaktor München) bestrahlt und danach die γ -Linien von ^{65}Ni ($T_{1/2}=2,52\text{ h}$) gemessen. Über den Vergleich der γ -Aktivität wurde so die Menge des deponierten Nickels gemessen. Jedoch konnte diese Messung nur zu einer Abschätzung der Ausbeute dienen, da bei diesen Proben die Ausgangsmenge an Nickellösung nur ungenau bekannt war. So stellt diese Menge mit 1-2 mg Nickel den größten Fehler dar, weswegen der Fehler für die Messungen sehr hoch ist. Die folgenden Werte sind nur als Anhaltspunkt zu nehmen, zur genauen Bestimmung werden weitere Probenhalter zur Verfügung gestellt werden [McA97]. Zur Abschätzung wurden 50 % Effizienz angenommen.

Probe	Ni
H 003	0,80 mg
H 032	0,54 mg
H 109	0,94 mg
H 049	0,00 mg

Tabelle B.1: Probenmenge, die über NAA bestimmt wurde.

Verzeichnis der Abbildungen

1.1	Werte von gemessener zu berechneter Neutronenaktivierung in Hiroshima. . .	4
1.2	Werte von gemessener zu berechneter Neutronenaktivierung in Nagasaki . .	4
1.3	Wirkungsquerschnitt $^{32}\text{S}(\text{n,p})^{32}\text{P}$	5
1.4	Bisherige Messungen von schnellen Neutronen	6
1.5	Nuklidkarte	8
1.6	Zerfallsschema von ^{63}Ni	8
2.1	Experimenteller Aufbau.	11
2.2	Mittlere magnetische Steifigkeit von ^{63}Ni und ^{63}Cu	13
2.3	Ansicht der Anodenleiterplatte	14
2.4	Prinzip der Elektrolyse	15
2.5	Thermische Zersetzung von $\text{Ni}(\text{CO})_4$ im Tagethalter	16
3.1	Hochstromionenquelle	18
3.2	Temperaturen an der Hochstromionenquelle	21
3.3	Sättigungsdampfdruck	21
3.4	Ansichten der neuen Ionenquelle	25
3.5	Handschuhbox beim Wechseln einer Probe	28
3.6	Sauerstoffverdrängung in der Handschuhbox	29
3.7	Messungen des Cu/Ni-Verhältnisses im Oktober	30
4.1	Spektren von ^{63}Ni -Messungen	33
4.2	Spektren von ^{63}Ni -Messungen	35
4.3	Vergleich Messung zu Berechnung für das Verhältniss $^{63}\text{Ni}/^{58}\text{Ni}$ in künstlich erzeugten Proben.	36

5.1	Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$	38
5.2	Aktivierung nach DS86	40

Verzeichnis der Tabellen

1.1	In Hiroshima gemessene Radionuklide	3
1.2	Mögliche Reaktionen zur Messung des schnellen Neutronenflusses in Hiroshima	7
3.1	Untergrund verschiedener Proben im April und Juni	19
3.2	PIXE-Messungen des Cu-Gehaltes von Probenhaltern	22
4.1	AMS-Meßergebnisse	36
5.1	Zahl der erzeugten ^{63}Ni -Kerne (Hiroshima)	39
5.2	Zahl der erzeugten ^{63}Ni -Kerne (Nagasaki)	41
B.1	Probenmenge, die über NAA bestimmt wurde.	44

Literaturverzeichnis

- [ABF⁺96] D. E. Alvarez, I. Bogdanović, T. Faestermann, J. O. Fernández Niello, U. Herpers, K. Knie, G. Korschinek, S. Merchel, T. Schätz, and J. Scholten. ^{53}Mn in extraterrestrial Matter. *Jahresber. des Beschleunigerlab. der Univ. und der TU München*, 1996.
- [ABG⁺93] H. Artigalás, M. F. Barthe, J. Gomez, J. L. Debrun, L. Kilius, X. L. Zhao, A. E. Litherland, J. L. Pinault, Ch. Fouillac, P. Caravatti, G. Kruppa, and C. Maggiore. FT-ICR with laser ablation and AMS combined with X-ray detection, applied to the measurement of long-lived radionuclides from fission or activation: preliminary results. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 79:617, 1993.
- [ADK⁺94] H. Artigalás, J. L. Debrun, L. Kilius, X. L. Zhao, A. E. Litherland, J. L. Pinault, C. Fouillac, and C. J. Maggiore. Application of AMS and inverse PIXE to the study of radioactive waste management problems. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 92:227, 1994.
- [AHH⁺94] W. Assmann, P. Hartung, H. Huber, P. Staat, H. Steffens, and Ch. Steinhausen. Setup for material analysis with heavy ion beams at the Munich MP tandem. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 85:726–731, 1994.
- [Ara60] E. T. Arakawa. Radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki atomic-bomb survivors. *The New England Journal of Medicine*, 263:488–493, 1960.
- [Ard73] M. v. Ardenne. *Tabellen zur angewandten Physik*, volume 2. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, 2nd edition, 1973.
- [Ass97] W. Assmann. priv. Mitteilung, 1997. LMU München.
- [Bog97] Iva Bogdanović. priv. Mitteilung, 1997. Rudjer Bosković Institute, Zagreb, Croatia.
- [Fir96] Richard B. Firestone. *Table of Isotopes*. John Wiley and Sons, 8th edition, 1996.
- [Fu89] C. Y. Fu. A re-evaluation of $^{32}\text{S}(n,p)$ cross sections from threshold to 5 MeV. In *Advances in nuclear engineering computation and radiation shielding*, volume 1,

- pages 209–211, Eldorado Hotel Santa Fe, New Mexico, USA, 1989. American Nuclear Society.
- [HHK⁺86] G. Haberstock, J. Heinzl, G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, U. Ratzinger, K. Kato, and M. Wolf. Acceleration mass spectrometry with fully stripped ³⁶Cl ions. *Radiocarbon*, 2A:204–210, 1986.
- [HMS⁺67] T. Hashizume, T. Marnyama, A. Shiragai, E. Tanaka, M. Izawa, S. Kawamura, and S. Nagaoka. Estimation of the air dose from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Physics*, 13:149–161, 1967.
- [Hol95] Arnold F. Holleman. *Lehrbuch zur anorganischen Chemie*. de Gruyter, 101. edition, 1995.
- [HYCC94] G. M. Hale, P. G. Young, M. B. Chadwick, and Z.-P. Chen. R-Matrix analysis for nitrogen and oxygen. In *Proceedings 8th International Conference on Radiation Shielding*, pages 224–231, Arlington, Texas USA, 1994. American Nuclear Society.
- [Kar95] Karlsruher Nuklidkarte, 1995. Forschungszentrum Karlsruhe.
- [KFK97] K. Knie, T. Faestermann, and G. Korschinek. AMS at the Munich gas-filled analyzing magnet system GAMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:128, 1997.
- [KMN⁺87] G. Korschinek, H. Morinaga, E. Nolte, E. Peisenberger, U. Ratzinger, A. Urban, P. Dragovitsch, and S. Vogt. Accelerator mass spectrometry with completely stripped ⁴¹Ca and ⁵³Mn ions at the Munich tandem accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 29:67–71, 1987.
- [Kni92] K. Knie. Messung von ⁵⁹Ni in extraterrestrischen und künstlichen Proben mit Beschleunigermassenspektrometrie. Diplomarbeit, Technische Universität München, 1992.
- [Kni96] K. Knie. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenspeparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten*. Dissertation, Technische Universität München, 1996.
- [Kni97] K. Knie. priv. Mitteilung, 1997. TU München.
- [Kor97] G. Korschinek. priv. Mitteilung, 1997. TU München.
- [KSU88] G. Korschinek, J. Sellmair, and A. Urban. A study of different ion sources for the use in the ²⁰⁵Pb experiment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 271:328, 1988.
- [LG88] G. P. Lamaze and J. A. Grundl. *NBS Measurement Services: Activation Foil Irradiation with Californium Fission Sources*. NATIONAL BUREAU OF STANDARDS, U.S. DEPARTMENT OF COMMERCE, Gaithersburg, MD 20899, 1988.

- [MBF⁺95] J. E. McAninch, G. S. Bench, S. P. H. T. Freeman, M. L. Roberts, J. R. Southon, J. S. Vogel, and I. D. Proctor. PXAMS - projectile X-ray AMS: X-ray yields and applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 99:541, 1995.
- [McA97] J. E. McAninch. priv. Mitteilung, 1997. Center for Accelerator Mass Spectrometry, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore USA.
- [MHM⁺97a] A. A. Marchetti, L. J. Hainsworth, J. E. McAninch, M. R. Leivers, P. R. Jones, I. D. Proctor, and T. Straume. Ultra-separation of nickel from copper metal for the measurement of ⁶³Ni by AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:230, 1997.
- [MHM⁺97b] J. E. McAninch, L. J. Hainsworth, A. A. Marchetti, M. R. Leivers, P. R. Jones, A. E. Dunlop, R. Mauthe, J. S. Vogel, I. D. Proctor, and T. Straume. Measurement of ⁶³Ni and ⁵⁹Ni by accelerator mass spectrometry using characteristic projectile X-rays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:137, 1997.
- [Mid82] R. Middleton. *A Negative Ion Cookbook*. University of Philadelphia, 1982.
- [Mid83] R. Middleton. A very high intensity negative ion source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 214:139, 1983.
- [MS68] R. C. Milton and T. Shohoji. Tentative 1965 Radiation Dose Estimation for Atomic Bomb Survivors. *Technical Report TR 1-68, Atomic Bomb Casualty Commission (now RERF)*, 1968.
- [MS96] A.A. Marchetti and T. Straume. A Search for Reactions That May be Useful for Hiroshima Dose Reconstruction. *Appl. Radiat. Isot*, 47(1):97, 1996.
- [NIKS83] T. Nakanishi, T. Imura, K. Komura, and M. Sakanoue. ¹⁵²Eu in samples exposed to nuclear explosions at Hiroshima and Nagasaki. *Nature*, 302:132–134, 1983.
- [Nol97] E. Nolte. priv. Mitteilung, 1997. TU München.
- [NOM⁺91] T. Nakanishi, H. Ohtani, R. Mizuochi, K. Miyaji, T. Yamamoto, K. Kobayashi, and T. Imanaka. Residual neutron-induced radionuclides in samples exposed to the nuclear explosion over Hiroshima: Comparison of measured values with the calculated values. *Journal of Radiation Research, Supplement*, pages 151–162, 1991.
- [Nuc97] *T-2 Nuclear Information Service, Los Alamos National Laboratory: Nuclear Data Viewer*. URL:<http://www.t2.lanl.gov/data/ndviewer.html>, 03.07. 1997. Online Nuclear Data Service.
- [OM83] S. Okajima and J. Miyajima. Measurement of neutron-induced ¹⁵²Eu radioactivity. *US-Japan Joint Workshop for Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki*, 302:132–134, 1983.

- [Pfe98] *Pfeiffer Vakuum GmbH, Abt. Turbomolekularpumpen*, Januar 1998. Telephonische Auskunft.
- [PSP⁺96] Donald A. Pierce, Yukiko Shimizu, Dale L. Preston, Michael Vaeth, and Kiyohiko Mabuchi. Studies of the Mortality of Atomic Bomb Survivors. Report 12, Part I. Cancer: 1950-1990. *Radiation Research*, 146:1, 1996.
- [PSR⁺90] I. D. Proctor, J. R. Southon, M. L. Roberts, J. C. Davis, D. W. Heikkinen, T. L. Moore, J. L. Garibaldi, and T. A. Zimmermann. The LLNL ion source - past present and future. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 52:334–337, 1990.
- [RBS94] W. A. Rhoades, J. M. Barnes, and R. T. Santoro. An explanation of the Hiroshima activation dilemma. In *Proceedings 8th International Conference on Radiation Shielding*, pages 238–244, Arlington, Texas USA, 1994. American Nuclear Society.
- [RKK⁺92] W. Rühm, K. Kato, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. ³⁶Cl and ⁴¹Ca depth profiles in a Hiroshima granite stone and the Dosimetry System 1986. *Zeitschrift für Physik A - Hadrons and Nuclei*, 341:235–238, 1992.
- [RKK⁺95] W. Rühm, K. Kato, G. Korschinek, H. Morinaga, and E. Nolte. Neutron spectrum and yield of the Hiroshima A-bomb deduced from radionuclide measurements at one location. *Int. J. Radiat. Biol.*, 68(1):97, 1995.
- [Roe87] W. C. Roesch, editor. *US - Joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki: final report*. Radiation Effects Research Foundation, 1987.
- [Rüh93] W. Rühm. *Das Neutronenspektrum der Atombombe von Hiroshima und das Dosimetriesystem DS86*. Dissertation, Technische Universität München, 1993.
- [Say77] R. O. Sayer. Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data. *Revue de Physique Appliquee*, page 1543, 1977.
- [SCD⁺90] J. R. Southon, M. W. Caffee, J. C. Davis, T. L. Moore, I. D. Proctor, B. Schumacher, and J. S. Vogel. The new LLNL AMS spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 52:301, 1990.
- [SEW⁺92] T. Straume, S. G. Egbert, W. A. Woolson, R. C. Finkel, P. W. Kubik, H. E. Gove, P. Sharma, and M. Hoshi. Neutron discrepancies in the DS86 Hiroshima dosimetry system. *Health Physics*, 63(4):421, 1992.
- [SHME94] T. Straume, L. J. Harris, A. A. Marchetti, and S. D. Egbert. Neutrons Confirmed in Nagasaki and at the Army Pulsed Radiation Facility: Implications for Hiroshima. *Radiation Research*, 138:193–200, 1994.
- [SIS⁺94] Tokushi Shibata, Mineo Imamura, Seiichi Shibata, Yoshitomo Uwamino, Tohru Ohkubo, Shinngo Satoh, Norio Nogawa, Hiromi Hasai, Kiyoshi Shizuma, Kazuo Iwatani, Maraharu Hoshi, and Takamitsu Oka. A Method to Estimate the

- Fast-Neutron Fluence for the Hiroshima Atomic Bomb. *Journal of the Physical Society of Japan*, 63(10):3546, 1994.
- [SKS90] Y. Shimizu, H. Kato, and W. J. Schull. Studies of the mortality of A-Bomb survivors. 9. Mortality, 1950-1985: Cancer mortality based on the recently revised doses (DS86). *Radiation Research*, 121:120–141, 1990.
- [Smi82] B.M. Smirnov. *Negative Ions*. McGraw-Hill, 1982.
- [SMM96] T. Straume, A. A. Marchetti, and J. E. McAninch. New analytical capability may provide solution to the neutron dosimetry problem in Hiroshima. *Radiation Protection Dosimetry*, 67(1):5, 1996.
- [Str97] T. Straume. priv. Mitteilung, 1997. University of Utah, USA.
- [Sug53] A. Sugimoto. Determination of fast neutron particles emitted at the time of the Hiroshima a-bomb explosion. In *Collection of Investigate Reports on Atomic Bomb Disaster*, page 19, Tokyo, 1953. Japan Science Promotion Society.
- [Tab97] *National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory: Table of the Nuclides*. URL:<http://www.dne.bnl.gov/CoN/index.html>, 09.04. 1997. Online Nuclear Data Service.
- [Urb86] A. Urban. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca . Diplomarbeit, Technische Universität München, 1986.
- [Weg86] C. W. Wegst. *Stahlschlüssel*. Verlag Stahlschlüssel GmbH, 14. edition, 1986.
- [Wha94] Paul P. Whalen. Source and replica calculations. In *Proceedings 8th International Conference on Radiation Shielding*, pages 212–223, Arlington, Texas USA, 1994. American Nuclear Society.
- [WSS94] M. J. M. Wagner, H. Synal, and M. Suter. Isobar discrimination in accelerator mass spectrometry by detecting characteristic projectile X-rays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 89:266, 1994.
- [YS53] F. Yamasaki and A. Sugimoto. Radioactive ^{32}P produced in sulfur in Hiroshima. In *Collection of Investigate Reports on Atomic Bomb Disaster*, pages 18–19, Tokyo, 1953. Japan Science Promotion Society.

Vielen Dank

Herrn Prof. Dr. E. Nolte für die Möglichkeit diese Arbeit in freiem Rahmen in der Gruppe am Beschleuniger durchführen zu können, sein Interesse und ständige Diskussionsbereitschaft, Herrn Dr. G. Korschinek für die sehr gute Betreuung dieser Arbeit, die klare Linienführung bei Fragen der Physik, die zu einem erfolgreichen Experiment führte, Herrn Dr. T. Faestermann, für die menschliche wie fachliche Unterstützung, Herrn Dr. K. Knie für seine Bereitschaft in allen physikalischen Belangen zu helfen, und seine GAMS,

Herrn Prof. Dr. T. Straume (University of Utah) und Dr. A. A. Marchetti (LLNL) für die Zusammenarbeit, die diese Arbeit möglich machte und besonders Dr. J. E. McAninch (LLNL) für die Hilfe während den Strahlzeiten,

Herrn Dr. W. Rühm (Institut für Radiobiologie, LMU München) für die Geduld und das stete Bemühen mich in die komplexen Gefüge der Wissenschaft der Dosimetrie einzuführen und die Zusammenarbeit bei den Rechnungen,

den Gästen unserer Gruppe und des Beschleunigerlaboratoriums, darunter besonders Frau Dr. I. Bogdanović, die mir zu Beginn meiner Arbeit viele gute Tips gab, und mit der PIXE-Untersuchung (noch vor Promotion und Kind Filip) auch nach Ihrem Aufenthalt zum Gelingen dieser Arbeit beitrug,

auch Herrn K. Mizunami (JAERI, Japan) für die Mithilfe beim Bau der Handschuhbox, Herrn Dr. W. Assmann und seiner Gruppe für die erfolgten ERDA-Messungen, dem Personal des Beschleunigers, vor allem Herrn F. Haftlmaier und der Werkstatt für die rasche Hilfe bei großen wie kleinen Problemen,

Frau U. Heim für die Hilfe bei Bildern und Programmen, Herrn N. Gärtner als Techniker, allen weiteren Mitgliedern der AMS-Gruppe, die zu einer offenen Arbeitsatmosphäre beigetragen haben, die es mir erlaubte Fragen zu stellen,

Herrn Dipl.-Phys. F. Kubo, Herrn Dipl.-Phys. C. Wallner, Herrn Dipl.-Phys. B. Heisinger und Herrn Dipl.-Phys. S. Massonet,

auch den ehemaligen Mitgliedern Herrn Dr. C. Steinhausen, Frau Dipl.-Phys. E. Beck, Herrn Dipl.-Phys. C. Winkelhofer und Herrn Dipl.-Phys. T. Schätz,

meiner „Mitdiplomandin“ Frau A. Elhardt, besonders für die menschliche Komponente bei der Arbeit, wie den Kommunikationen während den Mahlzeiten.

Meinen beiden Wegelagern in Garching und Thannhausen, bei denen ich während meines Studiums immer wieder aufgerichtet wurde und vielfältige Unterstützung bekam.

Hier möchte ich besonders meiner Familie für die immerwährende Unterstützung danken.