



JOHANNES GUTENBERG-UNIVERSITÄT MAINZ
FACHBEREICH 09 – CHEMIE, PHARMAZIE UND GEOWISSENSCHAFTEN
INSTITUT FÜR KERNCHEMIE

Radiochemische Holmium- Probenpräparation für den RISIKO- Massenseparator für das ECHO-Projekt

Bachelorarbeit im Studiengang B. Sc. Chemie

Mainz 2014

vorgelegt von

Raphael Haas

geboren in Wiesbaden-Dotzheim

Selbstständigkeitserklärung:

Ich, **Raphael Haas**, Matrikelnummer **2681087**

versichere, dass ich meine Bachelorarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen schriftlichen und elektronischen Quellen sowie andere Hilfsmittel benutzt habe. Alle Ausführungen, die anderen Schriften wörtlich oder sinngemäß entnommen wurden, habe ich kenntlich gemacht.

(Ort, Datum)

(Unterschrift)

Danksagung:

Zu allererst möchte ich Prof. Dr. Christoph E. Düllmann dafür danken, dass ich in seinem Arbeitskreis meine Bachelorarbeit machen durfte und er mir dieses interessante Thema angeboten hat. Ich habe mich damals darüber sehr gefreut, da ich recht eigenständig an dem Thema arbeiten konnte und ich mich für die Elementarteilchenforschung sehr interessierte. Außerdem danke ich ihm für die liebe Betreuung während meiner Arbeit und dass er es mir ermöglichte, dass mich meine Arbeit an dem Thema nicht zu stark beanspruchte, sodass ich auch erfolgreich andere Module meines Studiums bewältigen konnte.

Ich danke auch Dr. Klaus Wendt dafür, dass er sich dazu bereit erklärte, der zweite Gutachter meiner Arbeit zu sein, und für den leckeren Kuchen zu einigen Meetings.

Des Weiteren möchte ich Christoph Mokry, Jörg Runke und Fabian Schneider dafür danken, dass sie mich während meiner Arbeit betreut und begleitet haben und dass sie sich die Zeit für die Korrekturen meiner Arbeit genommen haben.

Einen großen Dank verdienen auch Prof. Dr. Reich und seine Arbeitsgruppe dafür, dass sie meine angesetzten Stammlösungen mittels ICP-MS überprüften, und Christian Stieghorst dafür, dass er mir bei der Suche nach Fehlerfaktoren bei meinen Messungen sehr weiterhalf.

Ich danke auch allen weiteren Mitgliedern der Holmium purification group des ECHO-Projekts und des RISIKO-Massenseparators für die gute Zusammenarbeit und Verständigung. Außerdem danke ich der Betriebsleitung des Reaktors und allen weiteren Mitarbeitern des Instituts für Kernchemie in Mainz. Vielen Dank auch an die Arbeitsgruppe Düllmann für die liebe Aufnahme in die Gruppe, denn ich habe mich während meiner Zeit dort sehr wohl gefühlt.

Letztlich danke ich auch meiner Familie, meinen Freunden und meiner Freundin dafür, dass sie mich in dieser Zeit unterstützt haben und dass sie viel Verständnis für mich aufgebracht haben.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung, Motivation und Ziel der Arbeit	2
2. Theoretische Grundlagen	4
2.1. Informationen zu ^{165}Ho und ^{166g}Ho	4
2.2. Analyse durch Neutronenaktivierung	5
2.2.1. Detektion von γ -Strahlung	6
2.2.2. Statistik und Fehlerrechnung	7
2.3. Autoradiographie	8
2.4. RISIKO-Massenseparator	9
3. Experimentalteil	10
3.1. Verwendete Chemikalien	10
3.2. Probenanforderungen für RISIKO	10
3.3. Probenpräparation für die NAA	11
3.4. Untersuchung zur Reproduzierbarkeit	13
3.5. Untersuchung des Probenträgers	14
3.6. Effizienzkalibrierung und Effizienzmessung	14
3.7. Autoradiographie einer Probe und Blindprobe	15
4. Ergebnisse	16
4.1. Analyse durch Neutronenaktivierung	16
4.2. Reproduzierbarkeit und Effizienz	18
4.3. Autoradiographien	21
4.4. Überprüfung möglicher Fehlerfaktoren	24
5. Diskussion	26
5.1. Ergebnisse der NAA und Reproduzierbarkeit	26
5.2. Ergebnisse der Effizienzkalibrierung	26
5.3. Fehlerfaktoren	27
5.4. Autoradiographien	27
6. Zusammenfassung und Ausblick	28
7. Verzeichnisse	29
7.1. Abbildungsverzeichnis	29
7.2. Tabellenverzeichnis	29
7.3. Literaturverzeichnis	30
8. Anhang	31
8.1. Spektren der zweiten NAA zum Abschnitt 4.2 und 4.4	31

1. Einleitung, Motivation und Ziel der Arbeit

Zu Beginn des 20. Jahrhunderts standen Teilchenphysiker vor einem Problem, da bei dem radioaktiven β^- -Zerfall nur ein ausgesandtes Elektron detektiert werden konnte und damit eine Verletzung des Energieerhaltungssatzes vorliegen musste, um das kontinuierliche Energiespektrum der Betaelektronen zu erklären. Pauli schlug 1930 deshalb eine Hypothese vor, in dem er ein neues Teilchen einführte, das er zum damaligen Zeitpunkt noch „Neutron“ nannte, welches heute als Elektron-Neutrino ν_e bekannt ist. Er wählte diesen Namen, da er diesem Teilchen im Gegensatz zum Elektron eine elektrisch neutrale Ladung zuwies. Außerdem sollte das Teilchen einen Spin von $\frac{1}{2}$ und keine oder eine vernachlässigbar kleine Ruhemasse besitzen. Das Energiespektrum sollte dann deshalb kontinuierlich sein, weil bei jedem Betazerfall neben einem Elektron auch ein Neutrino emittiert werden sollte, wobei die Energie auf beide Teilchen gleichmäßig verteilt werden und somit die Summe der Energien von Elektron und Neutrino konstant bleiben sollte (1). 1956 konnte das von Pauli vorhergesagte Teilchen dann endlich mit dem Cowan-Reines-Neutrinoexperiment nachgewiesen werden, indem die bei einem Betazerfall entstandenen Elektron-Antineutrinos mit Protonen in einer Teilchenreaktion zu Positronen und Neutronen reagierten, welche einfach zu nachzuweisen waren (2) (3). Die Neutrinos gehören zur Familie der Fermionen und spielen heute als Elementarteilchen im Standardmodell eine wichtige Rolle, da sie für die schwache Wechselwirkung zwischen Teilchen verantwortlich sind (4).

Der Gegenstand aktueller Teilchenforschung ist, die Ruhemasse der Neutrinos möglichst genau zu bestimmen, da es für das heutige Standardmodell der Elementarteilchen wichtig ist, dass die Neutrinos nicht masselos sind. Eine Möglichkeit zur Bestimmung der Ruhemasse ist die direkte Messung vom Endpunkt des Betaspektrums von Tritium. Damit konnte bis 2006 die Masse der Elektron-Neutrinos mit $2 \text{ eV}/c^2$ nach oben eingeschränkt werden (5), wobei man sich durch das KATRIN-Experiment am Karlsruher Institut für Technologie eine Obergrenze von $0,2 \text{ eV}/c^2$ erhofft (6). Neben einigen indirekten Verfahren zur Messung der Ruhemasse der Neutrinos gibt es noch die Möglichkeit, die Masse des Elektron-Neutrinos direkt aus der Energie eines reinen Elektron-Capture-Zerfalls zu bestimmen. Das ECHO¹-Projekt beschäftigt sich mit genau einer solchen Bestimmung beim Zerfall von ^{163}Ho , welches in einem reinen EC-Zerfall zum stabilen ^{163}Dy zerfällt und dabei ein Elektron-Neutrino emittiert.

Für den Kernchemiker besteht hierbei die Herausforderung darin, das Isotop ^{163}Ho in möglichst hoher Reinheit herzustellen, damit bei der Messung des EC-Zerfalls keine Störungen durch Nebenaktivitäten von Verunreinigungen das Messergebnis verfälschen oder sogar eine genaue Bestimmung der Neutrinomasse unmöglich machen. Zur Gewinnung von ^{163}Ho gibt es mehrere Möglichkeiten: Eine Möglichkeit ist die Gewinnung des ^{163}Ho durch ein Zyklotron. Dabei kann der direkte Weg über den Beschuss mit Deuteriumprojektilen $^{163}\text{Dy}(d, 2n)^{163}\text{Ho}$ oder über den Beschuss mit Protonenprojektilen $^{nat}\text{Dy}(p, xn)^{163}\text{Ho}$ gewählt werden. Der indirekte Weg geht über $^{nat}\text{Dy}(\alpha, xn)^{163}\text{Er}(\epsilon)^{163}\text{Ho}$ oder $^{159}\text{Tb}(^7\text{Li}, 3n)^{163}\text{Er}(\epsilon)^{163}\text{Ho}$. Zum anderen kann durch Bestrahlung von ^{162}Er in natürlichem Erbium mit thermischen Neutronen und den anschließenden Zerfall von ^{163}Er das ^{163}Ho gewonnen werden, wobei aufgrund der anderen Isotope des natürlichen Erbiums und seinen Verunreinigungen sehr viele Nebenkernreaktionen und Nebenzerfälle verursacht werden, deren Nuklide noch vom ^{163}Ho abtrennt werden müssen. Dazu werden zunächst alle leichteren Elemente

¹ Electron Capture Holmium

vom natürlichen Erbium chromatographisch abgetrennt, da durch die Zerfälle nach der Neutronenbestrahlung ohnehin die schwereren Elemente erzeugt werden. Nach der Bestrahlung werden ebenfalls chromatographisch die schwereren Elemente abgetrennt, sodass am Ende die Nuklide ^{163}Ho und $^{166\text{m}}\text{Ho}$ erhalten werden. Da $^{166\text{m}}\text{Ho}$ sowohl Beta- als auch Gammastrahler ist und mit 1200 Jahren eine sehr lange Halbwertszeit besitzt, muss dieses unbedingt vor der EC-Messung des ^{163}Ho abgetrennt werden. Da dies nicht chromatographisch geht, da es sich um dasselbe Element handelt, muss eine massenseparative Trennung erfolgen. Für diese Trennung eignet sich in Mainz sehr gut der RISIKO-Massenseparator.

Das Ziel dieser Arbeit ist, radiochemisch Holmiumproben aus natürlichem Holmiumnitrat anzufertigen, mit denen der RISIKO-Massenseparator auf das Element kalibriert und mit denen die Effizienz des Massenseparators für Holmium getestet werden kann, bevor die eigentliche Trennung von ^{163}Ho und $^{166\text{m}}\text{Ho}$ erfolgt. Dazu werden sowohl Neutronenaktivierungsanalysen als auch Autoradiographien durchgeführt, um die Reproduzierbarkeit der Probenpräparation zu überprüfen und das Verfahren zur Probenpräparation zu optimieren. Außerdem wird überprüft, wie gut sich Holmium auf Titan als Probenträger nachweisen lässt, um zu klären, wie gut später das aufgetrennte ^{163}Ho nachgewiesen werden kann. Die Motivation zu dieser Arbeit war, einen nicht unwesentlichen Beitrag zur Teilchenforschung beizutragen, da das persönliche Interesse an physikalischer Chemie und Kernchemie groß ist und die Möglichkeit vorhanden war, an einem aktuellen neuen Forschungsthema teilzunehmen.

„Dass ich erkenne was die Welt

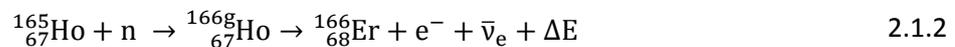
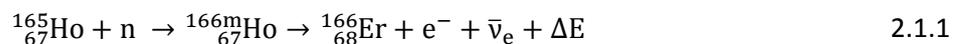
Im Innersten zusammenhält“

aus Johann Wolfgang Goethes *Faust I.*

2. Theoretische Grundlagen

2.1. Informationen zu ^{165}Ho und ^{166g}Ho

Holmium ist das elfte Element in der 4f-Übergangsreihe der Lanthanide und hat die Ordnungszahl 67. Die Oxidationsstufe Ho^{3+} ist dabei wie bei allen anderen Lanthaniden die stabilste. Als Nitratsalz ist es stark wasserziehend und bildet das feste Holmiumnitrat-Pentahydrat $\text{Ho}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, welches rosafarben und sehr gut löslich in Wasser ist (7). Es existiert nur ein stabiles Isotop, ^{165}Ho , natürliches Holmium ist entsprechend monoisotop. Bei der Neutronenaktivierung werden die Isotope ^{166m}Ho und ^{166g}Ho gebildet. Die Einfangsquerschnitte liegen im thermischen Neutronenbereich bei 3,5 barn und 63,0 barn. Beide Zustände dieses Isotops zerfallen zu 100 % durch einen β^- -Zerfall in stabiles ^{166}Er :



Die Halbwertszeiten betragen 26,8 h für ^{166g}Ho und 1200 a für ^{166m}Ho . Da ^{166m}Ho aufgrund des kleineren Wirkungsquerschnittes und der größeren Halbwertszeit zu wenig Aktivität für eine Messung besitzt, wird deshalb vertieft auf ^{166g}Ho anstatt auf ^{166m}Ho eingegangen. Das Gammaskpektrum von ^{166g}Ho besitzt die folgenden Linien mit den jeweiligen Intensitäten (8):

Tabelle 2.1: Energien mit jeweiligen Intensitäten der Linien im Gammaskpektrum von ^{166g}Ho

Energie / keV	Intensität / %
48,2 ± 0,1	2,86 ± 0,29
49,1 ± 0,1	5,07 ± 0,51
55,6 ± 0,1	1,62 ± 0,16
57,2 ± 0,1	0,45 ± 0,09
80,6 ± 0,1	6,20 ± 0,62
1379,4 ± 0,1	0,93 ± 0,11
1581,9 ± 0,1	0,18 ± 0,04
1662,4 ± 0,1	0,12 ± 0,02

Da die Linie im Gammaskpektrum bei 80,6 keV mit 6,2 % am intensivsten ist, eignet sich diese am besten zur Auswertung der Gammaskpektren für die Neutronenaktivierungsanalyse. Denn je höher die Zählrate ist, desto geringer ist vergleichsweise der statistische Fehler der Zählrate, da alle Zählraten mit statistischen Fehlern behaftet sind. Die untersten Linien bei Energien von 48,2 bis 57,2 keV liegen zu sehr im Röntgenstrahlenbereich und unterliegen dort einem hohen Untergrund. Sie eignen sich später zwar zur Verifizierung von ^{166g}Ho , aber durch große Störfaktoren im niederenergetischen Bereich ist es nicht sinnvoll, diese für quantitative Berechnungen bei der Neutronenaktivierungsanalyse zu verwenden. Je nach Zählrate könnte auch noch die Linie bei 1379,4 keV für die Berechnungen herangezogen werden.

Neben dem großen Einfangsquerschnitt im thermischen Neutronenbereich von 63 barn besitzt Holmium aber auch viele starke Resonanzen im epithermischen Neutroneneinfangsquerschnitt.

Deshalb ist Holmium auch in der Lage, bei der Neutronenaktivierung durch epithermische Neutronen aktiviert zu werden, sofern der Neutronenfluss der epithermischen Neutronen ausreichend hoch ist. Eine Auftragung des Neutroneneinfangsquerschnittes gegen die Energie der einfallenden Neutronen ist für ^{165}Ho in Abbildung 2.1 dargestellt.

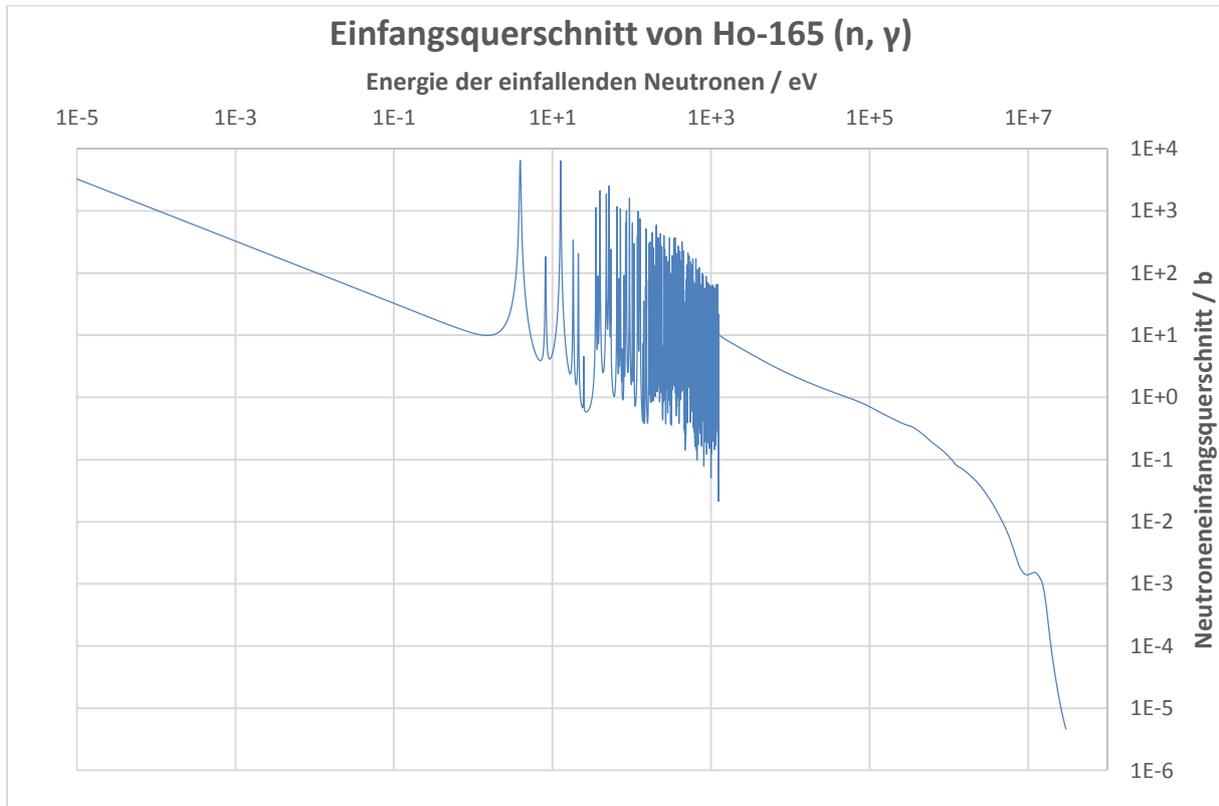


Abbildung 2.1: Neutroneneinfangsquerschnitt in barn für ^{165}Ho aufgetragen gegen die Energie der einfallenden Neutronen in eV^2

2.2. Analyse durch Neutronenaktivierung

Die Neutronenaktivierungsanalyse, auch kurz NAA, basiert auf der Kernreaktion von Nukliden mit meist thermischen Neutronen im Kernreaktor und dient in der Kernchemie häufig als qualitative analytische Methode zur Identifizierung von Spurenelementen in Mineralien, im Wasser oder anderen Proben (4). Sie kann aber auch zur quantitativen Analyse, also zur Bestimmung der Mengen von Elementen in Proben, genutzt werden. Dies erfolgt dadurch, indem beispielsweise durch Messung der γ -Strahlung die Aktivität der Probe nach der Bestrahlung bestimmt wird und damit auf die ursprünglich eingesetzte Probenmenge zurückrechnet wird. Mithilfe der Aktivierungsgleichung kann bei bekanntem Neutronenfluss Φ [$\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$], bekanntem Wirkungsquerschnitt σ [$\text{b} = 10^{-24} \text{cm}^2$] und bekannter Anzahl an Atomen N_A der Probe mit der Halbwertszeit $t_{1/2}$ des bei der Kernreaktion entstehenden Kerns die theoretische Aktivität $A(t)$ nach der Bestrahlungszeit t im Reaktor berechnet werden:

² Herman, M. *67-Ho-165(n,gamma) ENDF/B-VII.1*, NNDC, Brookhaven National Laboratory

$$A(t) = \sigma \cdot \phi \cdot N_A \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad 2.2.1$$

Die Konstante λ bezeichnet die Zerfallskonstante, die aus der Halbwertszeit $t_{1/2}$ berechnet wird:

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}} \quad 2.2.2$$

In die Aktivierungsgleichung wirkt im hinteren Term auch die Zerfallsgleichung mit ein, da auch während der Bestrahlung schon produzierte Kerne zerfallen. Außerdem kann zu einem späteren Zeitpunkt der Messung mithilfe der Zerfallsgleichung auf die Aktivität A_0 am Ende der Bestrahlungszeit zurückgerechnet werden. Die Zerfallsgleichung wird folgendermaßen beschrieben:

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad 2.2.3$$

Die Aktivität A ist dabei proportional zum Produkt der Zerfallskonstanten λ und der Atomzahl N :

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) \quad 2.2.4$$

Bei der NAA bewirken ein hoher Neutronenfluss und eine lange Bestrahlungszeit eine niedrige Nachweisgrenze der bestrahlten Nuklide. Dabei muss allerdings beachtet werden, dass bei kurzlebigen Produkten der Kernreaktion mit einer Halbwertszeit von wenigen Minuten eher eine kurze Bestrahlungszeit mit direkt nachfolgender Messung angebracht ist, um Nebenkernreaktionen und Begleitaktivität zu unterdrücken. Bei längerlebigen Produkten mit einer Halbwertszeit von einigen Stunden bis Tagen wie beim vorliegenden ^{166g}Ho lohnt sich eine lange Bestrahlungszeit mit anschließender Abklingzeit, damit Nebenprodukte mit kurzer Halbwertszeit abklingen können und somit der Untergrund reduziert wird, was die Nachweisgrenze von Holmium wiederum verbessert.

Da es im Reaktor auch zu Flussschwankungen der thermischen Neutronen oder durch Fremdexperimente zu Neutronendepressionen kommen kann oder das Nuklid Resonanzen im Neutroneneinfangsquerschnitt im epithermischen Neutronenbereich haben kann, eignet sich die NAA nur als Relativmethode, also unter Mitbestrahlung von Standardlösungen mit bekannten Mengen des Nuklids. Dabei muss darauf geachtet werden, dass die Probe und der Standard genau gleich behandelt werden, also sowohl genauso lang bestrahlt als auch gleich lang und in der gleichen Geometrie gemessen werden.

2.2.1. Detektion von γ -Strahlung

Die Messung der Gamma-Aktivität kann durch verschiedene Detektoren erfolgen, wobei die Wahl des Detektors direkt beeinflusst wird durch die notwendige Detektoreffizienz, die spektrale Auflösung und den messbaren Energiebereich. Für die Multikanalmessung, zur Messung des

gesamten Spektrums eingeteilt in mehrere Energiekanäle und damit zur Identifizierung von verschiedenen Nukliden, eignen sich am besten Halbleiterdetektoren wie den Germaniumdetektor. Sie haben im Gegensatz zu anderen Detektoren eine bessere Energieauflösung und eine kürzere Totzeit, aber dafür detektieren sie weniger Impulse. Es kann durch thermische Anregung oder durch Kristalldefekte zu Eigenleitfähigkeit im Germaniumeinkristall kommen. Die Eigenleitfähigkeit der Halbleitereinkristalle hervorgerufen durch thermische Anregung kann durch Kühlung mit flüssigem Stickstoff unterbunden werden. Die Störleitfähigkeit durch Kristalldefekte kann mithilfe einer p-n-Sperrschicht verhindert werden. Heutzutage werden allerdings hochreine Germaniumeinkristalle eingesetzt, sodass nur sehr wenige Fremdatome im Kristallgitter vorhanden sind und deren Störleitfähigkeit vernachlässigbar klein ist.

Da der Detektor die Impulsraten nicht in Energien sondern in Kanäle einteilt, muss eine Energiekalibrierung möglichst in derselben Geometrie wie die der Proben durchgeführt werden. Dies erfolgt mit einem zertifizierten Standard, der verschiedene aktive Nuklide enthält und bei dem die Energien der erscheinenden Peaks über das gesamte messbare Spektrum bekannt sind. Dann wird durch die lineare Zuordnung von mindestens zwei Kanälen zu den jeweiligen Sollenergien eine Kalibrationsgerade erstellt, mit deren Hilfe die Energien der Peaks der eigenen Proben berechnen werden können. Dabei steht E für die Energie zum Kanal x , m ist die Steigung der Kalibrationsgeraden und b der Ordinatenachsenschnittpunkt.

$$E = m \cdot x + b \quad 2.2.5$$

Die gemessenen Impulsraten unterliegen noch der Detektoreffizienz. Um deshalb die gemessenen Impulsraten mit einem theoretischen Wert, der über Gleichung 2.2.1 berechnet wurde, vergleichen zu können, muss für eine Messreihe ebenfalls in derselben Geometrie wie die Proben ein zertifizierter Standard gemessen werden, von dem bekannt ist, wie die Aktivitäten der enthaltenen Nuklide zu einem bestimmten Zeitpunkt waren. Nach der Messung des Standards können die gemessenen Impulsraten mithilfe von Gleichung 2.2.3 auf den Zeitpunkt der Aktivitäten zurückgerechnet werden. Aus dem Verhältnis von gemessener Impulsrate $A_{\text{Messung}}(t)$ und zertifizierter Aktivität $A_{\text{Theorie}}(t)$ wird die Effizienz ϵ für eine bestimmte Energie berechnet.

$$\frac{A_{\text{Messung}}(t)}{A_{\text{Theorie}}(t)} = \epsilon(E) \quad 2.2.6$$

Wenn die Effizienzen für alle Peaks berechnet werden und die Effizienzen als Funktion gegen die Energie aufgetragen werden, kann durch ein geeignetes Taylor-Polynom eine Kalibrationskurve angelegt werden, mit der die von der Effizienz unabhängigen Aktivitäten der Peaks der eigenen Proben berechnen werden können.

2.2.2. Statistik und Fehlerrechnung

Bei der Messung muss darauf geachtet werden, dass zum einen die Geometrie der Proben vor dem Detektor möglichst gleich ist und der Abstand zum Detektor innerhalb einer Messreihe nicht

verändert wird, da beides Auswirkungen auf die Zählrate hat und somit die Messergebnisse verfälscht. Außerdem ist es für die Messergebnisse statistisch sinnvoll, viele Messungen durchzuführen, um Zufallsfehler möglichst klein zu halten, sofern genug Impulse gemessen wurden, um den statistischen Fehler klein zu halten. Das arithmetische Mittel μ wird nach

$$\mu = \frac{\sum_{i=1}^N x_i}{N} \quad 2.2.7$$

berechnet, wobei N die Anzahl der Messungen ist. Die Standardabweichung σ der Messwerte vom Mittelwert wird nach

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \mu)^2}{N - 1}} \quad 2.2.8$$

berechnet. Die Varianz ist das Quadrat der Standardabweichung:

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \mu)^2}{N - 1} \quad 2.2.9$$

2.3. Autoradiographie

Die Autoradiographie ist eine Methode zur Lokalisierung von Radionukliden, wobei die ionisierende Eigenschaft der radioaktiven Strahlung ausgenutzt wird. Dazu kann beispielsweise eine photographische Platte verwendet und diese für eine bestimmte Zeit direkt auf eine möglichst glatte Oberfläche gelegt werden, auf der Radionuklide aufgebracht sind. Autoradiographien werden heutzutage allerdings nicht mehr mit Fotoplatten sondern mit Lumineszenz-Platten durchgeführt, bei denen die Fähigkeit zur PSL (photostimulated luminescence) zur Lokalisierung von Radionukliden ausgenutzt wird.

Die Lumineszenz-Platten, die im Englischen auch als „phosphor imaging plates“ bezeichnet werden, bestehen aus einem polymeren Träger, auf dem eine anorganische Schicht aus BaFBr:Eu²⁺ aufgetragen ist. Damit die anorganische Kristallschicht keine Beschädigungen oder Verunreinigungen erleidet, ist diese noch mit einer sehr dünnen Schutzschicht überzogen (9) (10). Die etwa 1 mm dicken Platten können in beliebigen Größen zurechtgeschnitten werden und sind sowohl flexibel als auch wiederverwendbar. Nach der Bestrahlung der Platte im Kontaktverfahren wird die in den Kristallen gespeicherte Information mithilfe eines HeNe-Lasers in Form von Fluoreszenz durch das Eu²⁺ freigesetzt. Das Prinzip der Informationsspeicherung in den Kristallen beruht dabei auf der Anregung von Elektronen durch die eintreffende Strahlung auf ein höheres Energieniveau, welches die Elektronen nur durch Zuführung der Energie des Lasers wieder verlassen können. Die Fluoreszenz wird durch einen Photomultiplier in elektrische Signale umgewandelt und an einem Computer mit entsprechender Software ausgewertet. Danach kann die Platte mittels einer Halogenlampe für eine Wiederverwendung gelöscht werden.

Die Autoradiographie ist eine rein qualitative Methode und eignet sich nur zur Lokalisierung von Radionukliden auf oder in einem Objektträger. Es können mit ihr weder Rückschlüsse auf die Art der ionisierenden Strahlung gezogen werden noch können quantitative Aussagen über die Aktivität der Probe gemacht werden. Außerdem hängt das Auflösungsvermögen vom Abstand zwischen Probe und Platte ab sowie von der Zeit der Bestrahlung oder der Aktivität der Probe. Eine Streuung von beispielsweise γ -Strahlung auf der Kristalloberfläche kann dazu führen, dass Objekte größer als in Realität dargestellt werden und angelegte Maßstäbe deshalb nutzlos werden.

2.4. RISIKO-Massenseparator

Der Mainzer RISIKO³-Massenseparator dient im Rahmen des ECHO-Projekts zur Aufreinigung von ¹⁶³Ho durch Abtrennung vom stabilen ¹⁶⁵Ho und vom langlebigen ^{166m}Ho. Außerdem soll durch gezielte Laserionisation der Anteil an ¹⁶³Dy verringert werden. Das vorläufige Ziel ist, ¹⁶⁵Ho als Nitratsalz von einer Titanfolie als Atome herauszulösen, mittels Laserstrahlung zu ionisieren, von anderen Elementen zu trennen und möglichst rein auf einer anderen Titanfolie einzudampfen. Die Ausbeute an übertragenen Atomen wird dann mittels NAA und die Geometrie der aufgefangenen Atome auf der Titanfolie mittels Autoradiographie gemessen. Während dieser Arbeit wurden allerdings nur spektroskopische Untersuchungen durchgeführt.

Der RISIKO-Massenseparator ist aufgebaut aus einer Ionenquelle auf einer Hochspannungsplattform, ionenoptischen Elementen, einem Separatormagneten und einem Faraday-Becher. Darüber hinaus ist außerhalb des Massenseparators ein Lasersystem aufgebaut. Der Separator wird mit einem Druck von unter 10^{-6} mbar ausgepumpt, damit die Ionen eine möglichst weite Wegstrecke im Restgas zurücklegen können. Die Titanfolie mit dem Holmiumnitratsalz befindet sich gefaltet in einem Probenreservoir, einer Kapillare aus Tantal mit 2 mm Durchmesser und 1 mm Innenraumdurchmesser. Das Probenreservoir wird dediziert durch einen durchfließenden Strom mit 100 A bei etwa 6 V geheizt und ist an die Ionenquelle angesteckt. Auch diese wird durch einen Strom mit 300 A bei etwa 4 V geheizt (11). Holmium besitzt mit etwa 1470 °C einen etwas niedrigeren Schmelzpunkt als Titan mit 1667 °C, sodass es noch vor Titan schmilzt und beim Erhitzen durch Titan diffundiert (7). Die Holmiumatome können dann spezifisch mit dem Laser ionisiert werden. Die erzeugten Ionen werden danach im elektrischen Feld in den ionenoptischen Elementen mit einer Energie von 15 keV zu Beginn bis endgültig 30 keV beschleunigt, durch eine Einzellinse fokussiert und der Ionenstrahl kann anschließend noch durch Ablenkungskondensatorplatten in horizontaler und vertikaler Richtung leicht korrigiert werden (11). Im Separatormagneten, einem 60°-Sektorfeldmagneten mit einer magnetischen Flussdichte bis zu 0,6 T (11), erfolgt dieselbe Trennung wie in der Massenspektrometrie: Dabei werden die Ionen aufgrund der Lorentz-Kraft im magnetischen Feld nach dem Verhältnis von Masse zu Ladung getrennt und beschreiben eine Kreisbahn mit einem Radius r :

$$r = \frac{1}{B} \cdot \sqrt{\frac{2m \cdot U}{Z \cdot e}} \quad 2.4.1$$

³ Resonanzionisations-Spektroskopie in kollinearer Geometrie

Z ist die Ladung und m die Masse der Ionen, U ist die angelegte Spannung zur Beschleunigung und B ist die magnetische Flussdichte.

Die Ionen gelangen nach dem Durchlaufen des Separatormagneten durch einen Analysatorschlitz in die Nachweisregion, wo schließlich ein Faraday-Becher und ein Picoamperemeter stehen (11).

3. Experimentaltteil

3.1. Verwendete Chemikalien

Tabelle 3.1: Liste der verwendeten Chemikalien mit jeweiligen Informationen

Chemikalie	Holmium(III)nitrat-Pentahydrat	Titan
Summenformel	$\text{Ho}(\text{NO}_3)_3 \times 5 \text{H}_2\text{O}$	Ti
Zustandsform	kristallines Pulver	Folie (12,7 μm Dicke)
Reinheit	99,9 %	99,8 %
CAS-Nummer	14483-18-2	7440-32-6
Hersteller	Alfa Aesar	Alfa Aesar
H- und P-Sätze	H272-H315-H319-H335 P221-P210-P220- P305+P351+P338-P405-P501A	keine

3.2. Probenanforderungen für RISIKO

Da am RISIKO-Massenseparator Effizienzmessungen mit Holmium gemacht werden müssen, sollen die Proben natürliches und möglichst reines ^{165}Ho enthalten. Dieses soll als Nitratsalz auf einer 12,7 μm dicken und 6x6 mm großen Titanfolie aufgebracht werden, da Folien dieser Dicke sich leicht falten lassen und die Größe nicht zu groß für den Faradaybecher und nicht zu klein zum Bearbeiten ist. Es sollen verschiedene Proben mit jeweils 10^{14} , 10^{15} und 10^{16} Atomen auf Titanfolien angefertigt werden. Dazu eignet es sich besonders gut, Standardlösungen so anzusetzen, um die Proben mit der spezifischen Atomzahl in 10 μL destilliertem Wasser auf einer Titanfolie abzuscheiden. Die Titanfolien müssen von Hand zurechtgeschnitten, wodurch sie nicht immer exakt dieselben Maße haben, und mit Isopropanol gewaschen werden, damit keine Verunreinigungen wie Natrium, Kalium, Chlorid oder Fettspuren durch das Bearbeiten der Folien darauf zurückbleiben. In Abbildung 3.1 ist eine der zurechtgeschnittenen Titanfolien gezeigt.

Bevor die Proben an RISIKO gegeben werden, muss durch Neutronenaktivierungsanalyse überprüft werden, ob sich das Holmium gut auf der Titanfolie abscheiden lässt und genug Aktivität für die Messung erzeugt wird, da ansonsten größere Mengen an Holmiumnitrat auf den Titanfolien abgeschieden werden müssen. Außerdem soll über eine Autoradiographie überprüft werden, wie sich das Holmiumnitrat auf der Titanfolie verteilt, wie lange über die Autoradiographie das aktive Holmium auf der aktiven Titanfolie nachgewiesen werden kann und in welchem Verhältnis sich die

Aktivität des Holmiums von der Aktivität der Titanfolie abhebt. Dies sollte darüber entscheiden, ob die Autoradiographie genutzt werden kann, um später die Verteilung der auf einer Titanfolie aufgefangenen Holmiumatome zu untersuchen.

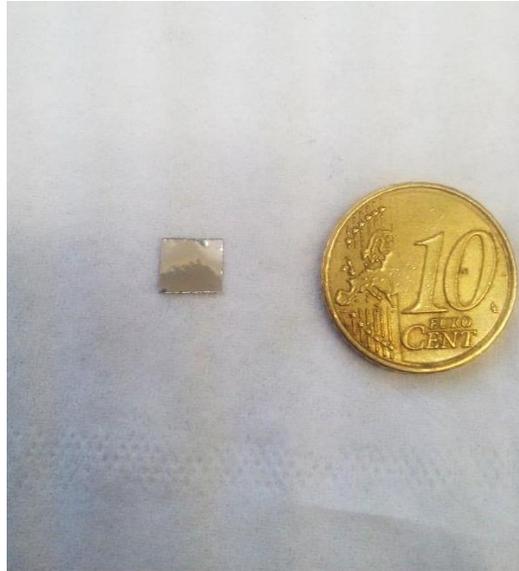


Abbildung 3.1: Auf 6x6 mm zurechtgeschnittene Titanfolie der Dicke 12,7 μm

3.3. Probenpräparation für die NAA

Es wurden die Standardlösungen angesetzt, welche während der gesamten Arbeit verwendet wurden. Dazu wurde zuerst das Holmiurnitrat getrocknet. Für die Einwaage wurde berechnet, wie viel Gramm an Holmium und Holmiumnitrat sich in 10 μL befinden müssen, damit die entsprechenden Atomzahlen von 10^{14} , 10^{15} und 10^{16} Atomen erreicht werden. Da zum Erstellen der Lösungen ein 25 mL Messkolben verwendet wurde, musste das 2500fache eingewogen werden. In Tabelle 3.2 sind die Mengen für die Einwaage von Holmiumnitrat und die entsprechenden Mengen für 10 μL Lösung zusammengetragen.

Tabelle 3.2: Berechnete Werte der Standardlösungen von Holmiumnitrat in Wasser

Atomzahl(Ho) pro 10 μL	$m(\text{Ho}) /$ $\text{g}/10 \mu\text{L}$	$m(\text{Ho}(\text{NO}_3)_3 \times 5 \text{H}_2\text{O}) /$ $\text{g}/10 \mu\text{L}$	$m(\text{Ho}(\text{NO}_3)_3 \times 5 \text{H}_2\text{O}) /$ $\text{mg}/25 \text{mL}$	$c(\text{Ho}(\text{NO}_3)_3) /$ mol/L
10^{14}	$2,74 \times 10^{-8}$	$7,323 \times 10^{-8}$	0,183	$1,66 \times 10^{-5}$
10^{15}	$2,74 \times 10^{-7}$	$7,232 \times 10^{-7}$	1,831	$1,66 \times 10^{-4}$
10^{16}	$2,74 \times 10^{-6}$	$7,232 \times 10^{-6}$	18,31	$1,66 \times 10^{-3}$

Da sich zum Abwiegen am besten die größte Menge an Holmiumnitrat eignete, wurde nur diese Menge eingewogen. Die Einwaage dafür betrug 18,3 mg, wobei mit einem Ablesefehler von mind. 0,1 mg gerechnet werden kann, da die Anzeige der Waage⁴ nur bis auf 0,1 mg genau das Gewicht

⁴ Hersteller: Mettler-Toledo; Modell: AG204; Ablesefehler: 0,1mg

anzeigte. Der Einwaagefehler liegt vermutlich innerhalb der Toleranz der Waage bei etwa 0,5 mg. Es wurde mit millipore Wasser auf 25 mL aufgefüllt. Aus dieser Standardlösung wurden dann mit einer Eppendorf-Pipette 2,5 mL entnommen und wiederum auf 25 mL aufgefüllt, um eine Verdünnung von 10:1 herzustellen und damit den Standard mit der nächstniedrigeren Konzentration herzustellen. Aus dieser Lösung wurden dann wieder 2,5 mL entnommen und die Standardlösung der niedrigsten Konzentration hergestellt.

Für die erste Neutronenaktivierungsanalyse wurden jeweils drei Proben auf Titan von allen Konzentrationen erstellt. Dazu wurde auf eine zugeschnittene Titanfolie 10 μL einer Standardlösung pipettiert und getrocknet, damit sich das Nitratsalz darauf bildet. Damit im Bestrahlungsröhrchen durch Erschütterungen dabei nicht das Salz auf der Folie beschädigt wird, wurde diese einmal vertikal und einmal horizontal gefaltet, wonach die Titanfolie eine Größe von ca. 3x3 mm besaß. In Abbildung 3.2 ist eine gefaltete Titanfolie in einem Bestrahlungsröhrchen zu sehen. Damit die Titanfolie leichter mit Pinzetten gefaltet werden konnte und damit der Tropfen einer Standardlösung möglichst mittig auf der Titanfolie sitzen blieb, wurde vor dem Pipettieren die Titanfolie mit einem für diesen Zweck extra angefertigten Stanzwerkzeug mittig etwas eingedrückt. In Abbildung 3.3 ist dieses Werkzeug zu sehen. Neben den Proben mit den Titanfolien wurden auch drei Bestrahlungsröhrchen mit jeweils 200 μL von einem der drei Standardlösungen befüllt. Alle 12 Bestrahlungsröhrchen wurden einzeln in Folie eingeschweißt und zusammen für 6 Stunden im Bestrahlungskarussell des TRIGA Mainz mit einem thermischen Neutronenfluss⁵ von etwa $0,7 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei 100 kW bestrahlt.



Abbildung 3.2: Gefaltete Titanfolie in einem Bestrahlungsröhrchen

⁵ Technische Daten zum Mainzer Forschungsreaktor unter: <http://www.kernchemie.uni-mainz.de/229.php>

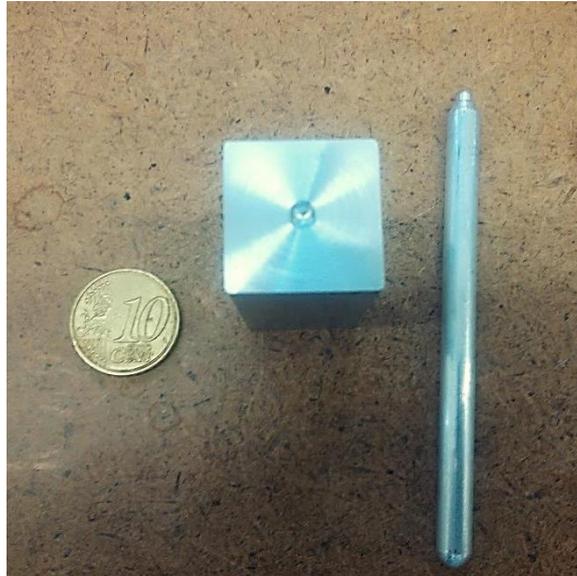


Abbildung 3.3: Stanzwerkzeug bestehend aus einem Block mit einer Mulde und einem Stift zum Eindrücken der Titanfolie

Nach etwa 15 Stunden Abklingzeit wurden die Proben auf den Titanfolien in neue Bestrahlungsröhrchen umgefüllt, sodass bei der Messung der γ -Strahlung keine Störstrahlung durch Verunreinigungen der aktivierten Bestrahlungsröhrchen gemessen wurde. Außerdem wurden aus einer bestrahlten Standardlösung dreimal 10 μL entnommen und jeweils in ein Bestrahlungsröhrchen gefüllt und dort getrocknet. Dabei wurde darauf geachtet, dass der Tropfen genau mittig unten im Röhrchen platziert war. Die Röhrchen wurden dann alle für jeweils 20 min mit dem Germaniumdetektor⁶ mit der internen Bezeichnung MOPS41 im Abstand von 42 mm zum Detektoreintrittsfenster gemessen.

3.4. Untersuchung zur Reproduzierbarkeit

Zur besseren statistischen Auswertung der Messungen der NAA und zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit des in Abschnitt 3.3 beschriebenen Präparationsverfahrens wurde eine größere Probenreihe von jeweils 5 Proben pro Standardlösung präpariert. Dabei wurde exakt nach dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Verfahren vorgegangen. Auch hier wurden von jedem Standard jeweils 200 μL entnommen und in ein Bestrahlungsröhrchen zur Mitbestrahlung gefüllt. Alle 18 Bestrahlungsröhrchen wurden dann einzeln in Plastikfolie eingeschweißt und zusammen für 6 Stunden im Bestrahlungskarussell des TRIGA Mainz mit einem thermischen Neutronenfluss von $0,7 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei 100 kW bestrahlt.

⁶ Hersteller: Ortec; Modell: GEM23185-P; Software: Genie-2000 von Canberra

Nach 15 Stunden Abklingzeit wurden die gefalteten Titanfolien aus den aktivierten Bestrahlungsröhrchen in neue Röhrchen umgefüllt. Aus der aktiven Lösung mit mittlerer Konzentration an Holmiumnitrat wurden zweimal 10 µL in jeweils ein Röhrchen gefüllt und getrocknet. Auch hier wurde wieder darauf geachtet, dass der Tropfen unten mittig im Röhrchen blieb. Die Röhrchen wurden dann alle für jeweils 30 min mit dem Detektor MOPS41 im Abstand von 42 mm zum Detektoreintrittsfenster gemessen.

3.5. Untersuchung des Probenträgers

Um die Verunreinigungen in der Titanfolie zu analysieren und die Halbwertszeit und Aktivität dieser Verunreinigungen zu bestimmen, wurde eine Blindprobe präpariert und bestrahlt. Dazu wurde eine Titanfolie mit den gleichen Abmessungen wie unter Abschnitt 3.3 und 3.4 gefaltet in ein Bestrahlungsröhrchen gegeben und zusammen mit den Proben aus Abschnitt 3.4 für 6 Stunden im Bestrahlungskarussell des TRIGA Mainz mit einem thermischen Neutronenfluss von $0,7 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei 100 kW bestrahlt. Nach den 15 Stunden Abklingzeit wurde die Folie in ein neues Bestrahlungsröhrchen überführt. Das Röhrchen wurde mit dem Detektor MOPS41 einmal 30 min und einmal 18 Stunden lang im Abstand von 42 mm zum Detektoreintrittsfenster gemessen.

3.6. Effizienzkalibrierung und Effizienzmessung

Zum Vergleich zwischen der gemessenen und mit der Aktivierungsgleichung berechneten Aktivität musste noch die Effizienz des Germaniumdetektors gemessen und kalibriert werden. Dazu wurde ein zertifizierter QCY Standard vom 1. Januar 2014 verwendet. Dieser wurde wie die Proben in Abschnitt 3.4 mit dem Detektor MOPS41 für 30 min im Abstand von 42 mm zum Detektoreintrittsfenster gemessen. Aus den Messdaten wurde eine Kalibrierkurve erstellt und damit konnten die von der Effizienz unabhängigen Aktivitäten der Proben aus Abschnitt 3.4 ermittelt werden.

Um genauere und bessere Ergebnisse zu bekommen, wurde für die Messung der γ -Aktivität anschließend der Detektor⁷ MOPS48 benutzt, der im niederenergetischen Bereich bessere Messdaten liefert und ein besseres Auflösungsvermögen besitzt. Auch daran wurde der QCY Standard vom 1. Januar 2014 im letzten Einschub, im Abstand von 27 cm zum Detektoreintrittsfenster, für 45 min gemessen und die Kalibrierkurve erstellt. Hierfür wurden neue Proben hergestellt: Es wurden drei Proben auf Titanfolien aus der Standardlösung mit der höchsten Konzentration erstellt, nach demselben Präparationsverfahren wie es in Abschnitt 3.3 beschrieben wurde. Außerdem wurden aus derselben Standardlösung 200 µL entnommen und in ein Bestrahlungsröhrchen gefüllt. Alle vier Bestrahlungsröhrchen wurden eingeschweißt und dann für 6 Stunden im Bestrahlungskarussell des TRIGA Mainz mit einem thermischen Neutronenfluss von $0,7 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei 100 kW bestrahlt. Nach 15 Stunden Abklingzeit wurden die Titanfolien in neue Röhrchen umgefüllt und aus der aktiven Lösung wurden dreimal 10 µL in ein jeweils neues Röhrchen gefüllt und getrocknet. Alle Röhrchen wurden dann, um Fehler durch unterschiedliche Geometrie der

⁷ Hersteller: Canberra; Modell: GX7020; Software: Genie-2000 Canberra

Proben in den Röhrchen zu verhindern, im letzten Einschub des Detektors MOPS48_GRÜN für jeweils 15 min gemessen. Diese Messdaten konnten mithilfe der durch den QCY Standard erstellten Effizienzkalibrierkurve in die von der Effizienz unabhängigen Aktivitäten umgerechnet werden.

3.7. Autoradiographie einer Probe und Blindprobe

Mithilfe einer Autoradiographie kann überprüft werden, wie die Nitratsalzkruste auf der Titanfolie verteilt ist und ob das aktive Holmium auf der aktiven Titanfolie gut damit nachgewiesen werden kann. Damit eine Titanfolie mit den Maßen der vorherigen Abschnitte über eine Autoradiographie gemessen werden kann, muss diese eine möglichst glatte Oberfläche haben, da ansonsten die Ortsunschärfe bei der Bestrahlung zunimmt. Deshalb darf die Titanfolie nicht gefaltet und geknickt sein. Es wurde auf eine Titanfolie in Schritten von 1 µL insgesamt 10 µL der Standardlösung mit der höchsten Konzentration pipettiert. Nach jedem Schritt wurde der Tropfen unter einer Wärmelampe getrocknet, bevor der nächste Tropfen darauf pipettiert wurde. Dadurch sollte eine Aufschichtung des Nitratsalzes bewirkt werden, sodass es sich nicht zu großflächig auf der Folie verteilt. Diese Titanfolie sowie eine saubere Titanfolie wurden jeweils in eine Bestrahlungskapsel gelegt, in Folie eingeschweißt und für 6 Stunden im zentralen Bestrahlungsrohr des TRIGA Mainz mit einem thermischen Neutronenfluss von $4,2 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei 100 kW bestrahlt. Nach 15 Stunden Abklingzeit wurden die Titanfolien vorsichtig aus den Kapseln genommen und mit Sekundenkleber auf der Unterseite einer Glasschale fixiert. Die Blindprobe wurde dabei um 45 ° gedreht fixiert, damit sie später in den Bildern der Autoradiographie schneller von der Holmiumprobe unterschieden werden konnte. In Abbildung 3.4 sind die aufgeklebten Titanfolien auf der Glasschale gezeigt. Vor der Bestrahlung der Fotoplatten wurden diese mit Mylarfolie überzogen, damit die Platten durch abgelöste Salzkristalle nicht verunreinigt werden. Die Platten wurden dann eine Woche lang täglich für 1 min und für 5 min auf die fixierten Folien gelegt. Nach jeder Bestrahlung wurde die Mylarfolie wieder abgezogen und die Platten wurden mit einem entsprechenden Gerät⁸ ausgelesen. Zwei Wochen nach der Bestrahlung der Titanfolien wurden noch eine letzte Autoradiographie gemacht, um zu sehen, ob bis dahin noch Holmium auf der Titanfolie zu erkennen ist.

⁸ Hersteller: Fujifilm; Modell: FLA-7000

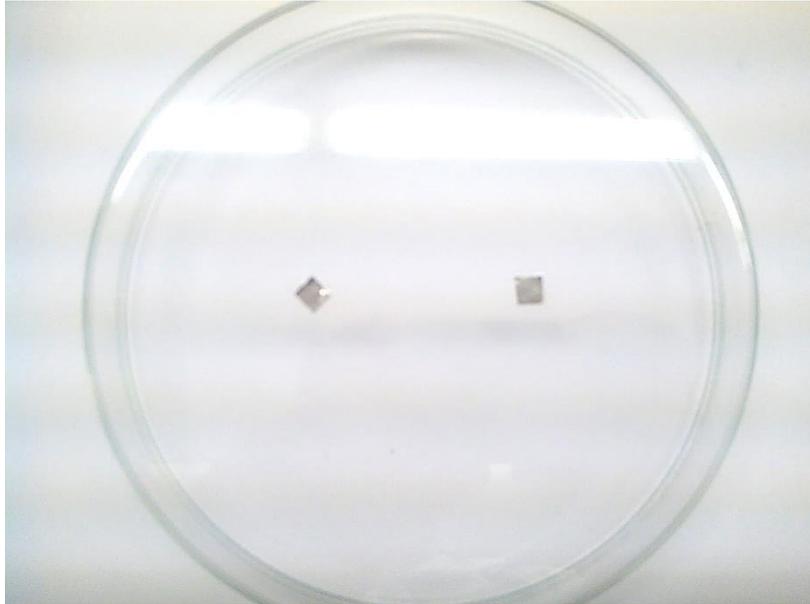


Abbildung 3.4: Titanfolien für die Autoradiographie auf der Unterseite einer Glasschale fixiert. Links: Blindprobe, um 45 ° gedreht, Rechts: Titanfolie mit Holmiumnitratsalz auf der Oberfläche

4. Ergebnisse

4.1. Analyse durch Neutronenaktivierung

Vor der ersten Bestrahlung wurde berechnet, wie hoch die Aktivität der Proben sein wird. Das diente neben einem späteren Vergleich mit den Messungen auch dazu, ob die Proben nach der Bestrahlung unter der Freigrenze für ^{166}gHo liegen und ob die Proben damit ohne weiteres zum Massenseparator transportiert werden können oder zuerst abklingen müssen. In Tabelle 4.1 sind die Ergebnisse der Berechnung kurz zusammengefasst. Die Aktivität der 80 keV Linie beträgt dabei 6,2 % (8) der Gesamtaktivität.

Tabelle 4.1: Ergebnisse der Berechnung für die Aktivität in Becquerel der gesamten Probe und der 80 keV mit jeweils unterschiedlicher Atomzahl

Atomzahl einer Probe	Erwartete Aktivität nach 6 h Bestrahlung / Bq	Erwartete Atomzahl an ^{166}gHo nach 6 h Bestrahlung	Erwartete Aktivität der 80 keV Linie / Bq
1E+14	630	2,45E+4	39
1E+15	6300	2,45E+5	390
1E+16	63000	2,45E+6	3900

Die Messergebnisse aus dem Gammaskopogramm der ersten Neutronenaktivierungsanalyse sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Alle Proben wurden dabei direkt am Tag nach der Bestrahlung gemessen. $A(t)$ bezeichnet die Impulsrate zum Zeitpunkt der Messung, $\Delta A(t)$ ist der Fehler der Impulsrate und $A(0)$ ist die zurückgerechnete Impulsrate aus $A(t)$ zum Zeitpunkt vom Ende der Bestrahlung. $\mu(A)$ gibt den

Mittelwert der Impulsraten zum Ende der Bestrahlung an und $\sigma(A)$ ist die Standardabweichung zum Mittelwert $\mu(A)$. Die Impulsraten beziehen sich nur auf die 80 keV Linie.

Tabelle 4.2: Messergebnisse der Gammaskpektren der ersten Neutronenaktivierungsanalyse

Atomzahl auf Folie	No.	Totzeit / %	$A(t)$ / 1/s	$\Delta A(t)$ / 1/s	$A(0)$ / 1/s	$\mu(A)$ / 1/s	$\sigma(A)$ / 1/s	$\sigma(A)$ / %
1E+14	1	0,11	0,86	0,04	1,32	1,32	0,07	5,23
	2	0,11	0,78	0,04	1,21			
	3	0,11	0,90	0,04	1,41			
1E+15	1	0,23	8,51	0,11	13,57	12,36	0,81	6,55
	2	0,20	7,22	0,10	11,65			
	3	0,19	7,27	0,10	11,85			
1E+16	1	1,15	68,21	0,32	112,56	111,99	3,09	2,76
	2	1,18	68,11	0,32	116,06			
	3	1,05	62,17	0,30	107,35			
Standard 1E+15	1	0,09	4,36	0,07	7,75	8,08	0,27	3,33
	2	0,10	4,69	0,08	8,48			
	3	0,09	4,38	0,07	8,00			

Die Impulsraten, Nettopeakflächen und Untergrundflächen bei 80 keV sind aus dem Gammaskpektrum der ersten Neutronenaktivierungsanalyse in Tabelle 4.3 noch einmal zusammengefasst.

Tabelle 4.3: Zusammenfassung der Gammaskpektren der ersten Neutronenaktivierungsanalyse

Gammaskpektren zusammengefasst	1E+14 Atome auf Titan	1E+15 Atome auf Titan	1E+16 Atome auf Titan	1E+15 Atome aus Standardlsg.
Zählrate bei 80 keV / cps	0,85 ± 0,04	7,67 ± 0,10	66,16 ± 0,31	4,48 ± 0,07
Nettofläche nach 20 min Messzeit / counts	1014 ± 46	9198 ± 125	7940 ± 374	5376 ± 90
Untergrundfläche / counts	327	1493	1200	670

Neben der Aktivität der Proben wurden auch die auftretenden Peaks in den Gammaskpektren untersucht. In Tabelle 4.4 sind die Peaks der Probe 2 mit 10^{15} Atomen auf Titanfolie dargestellt, da bei dieser Probe die meisten Peaks auch in den anderen Proben gefunden wurden. Die Peaks, die laut Referenz⁹ ^{166g}Ho zuzuordnen sind, wurden hervorgehoben.

⁹ Reus, U. und Westmeier, W. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. s.l. : Academic Press, Inc., 1983. Bd. 29.

Tabelle 4.4: Auftretende Peaks in Probe 2 mit 10^{15} Atomen auf Titanfolie aus der ersten Neutronenaktivierungsanalyse

Energie / keV	Peak Signifikanz
44,92	9,52
52,55	8,11
79,28	42,70
159,65	24,72
480,08	3,80
511,49	3,07
559,42	14,15
564,36	9,94
657,10	5,05
685,81	3,53
846,29	4,01
983,16	7,20
1037,16	6,63
1172,98	3,94
1312,61	6,18
1333,17	3,33
1380,30	8,30
1584,06	3,22

In Tabelle 4.5 sind die Peaks der Probe 2 mit 10^{15} Atomen aus 10 μ L Standardlösung dargestellt.

Tabelle 4.5: Auftretende Peaks der Probe 2 mit 10^{15} Atomen aus 10 μ L Standardlösung aus der ersten Neutronenaktivierungsanalyse

Energie / keV	Peak Signifikanz
44,97	8,82
52,65	7,92
79,28	33,26
1173,08	3,21
1332,65	3,16
1380,28	5,66

4.2. Reproduzierbarkeit und Effizienz

Die Messergebnisse der Gammaspektren aus der zweiten Neutronenaktivierungsanalyse sind in Tabelle 4.6 dargestellt. Auch hier gilt für die Bezeichnungen das gleiche wie bei Tabelle 4.2. Da hier allerdings mehr Proben gemessen wurden, mussten die Messungen auf zwei Tage verteilt werden. Alle Proben der geringsten Konzentration, die ersten vier Proben der mittleren Konzentration und die erste Probe der höchsten Konzentration wurden innerhalb von 24 Stunden nach der Bestrahlung gemessen, die restlichen Proben wurden am Tag darauf gemessen. Die Spektren der jeweils ersten Probe aller drei Atomzahlen auf Titanfolie sind im Anhang unter Abschnitt 8.1 abgebildet.

Tabelle 4.6: Messergebnisse der Gammaskpektren der zweiten Neutronenaktivierungsanalyse

Atomzahl auf Folie	No.	Totzeit / %	A(t) / 1/s	$\Delta A(t)$ / 1/s	A(0) / 1/s	$\mu(A)$ / 1/s	$\sigma(A)$ / 1/s	$\sigma(A)$ / %
1E+14	1	0,11	0,93	0,03	1,45	1,28	0,11	8,45
	2	0,10	0,82	0,03	1,32			
	3	0,10	0,78	0,03	1,27			
	4	0,10	0,79	0,03	1,35			
	5	0,09	0,59	0,03	1,02			
1E+15	1	0,21	7,86	0,07	13,81	13,10	0,45	3,41
	2	0,21	7,58	0,07	13,51			
	3	0,19	6,82	0,07	12,37			
	4	0,19	6,89	0,07	12,90			
	5	0,14	4,66	0,06	12,92			
1E+16	1	1,25	73,90	0,24	135,95	135,52	5,26	3,88
	2	0,88	51,90	0,20	146,12			
	3	0,79	46,51	0,19	132,80			
	4	0,74	43,17	0,18	125,10			
	5	0,81	46,88	0,19	137,66			
Standard 1E+15	1	0,06	1,98	0,04	5,89	6,18	-	-
	2	0,06	2,14	0,04	6,48			

In Tabelle 4.7 sind die Impulsraten, Nettopeakflächen und Untergrundflächen bei 80 keV aller Proben aus der zweiten Neutronenaktivierungsanalyse noch einmal zusammengefasst, wobei sich die Werte auf einen Zeitraum innerhalb von 24 Stunden nach der Bestrahlung beziehen.

Tabelle 4.7: Zusammenfassung der Gammaskpektren der zweiten Neutronenaktivierungsanalyse

Gammaskpektren zusammengefasst	1E+14 Atome auf Titan	1E+15 Atome auf Titan	1E+16 Atome auf Titan	1E+15 Atome aus Standardlsg.
Zählrate bei 80 keV / cps	0,83 ± 0,03	7,72 ± 0,07	73,90 ± 0,24	2,06 ± 0,04
Nettofläche nach 30 min Messzeit / counts	1496 ± 49	13900 ± 133	133000 ± 426	3704 ± 68
Untergrundfläche / counts	473	1787	20170	456

Die Messergebnisse der Gammaskpektren der letzten Neutronenaktivierungsanalyse sind in Tabelle 4.8 dargestellt, wobei hier für die Bezeichnungen dasselbe gilt wie bei Tabelle 4.6 und Tabelle 4.2. Die Messungen wurden alle am ersten Tag nach der Bestrahlung durchgeführt.

Tabelle 4.8: Messergebnisse der Gammaskpektren der letzten Neutronenaktivierungsanalyse

Atomzahl auf Folie	No.	Totzeit / %	$A(t)$ / 1/s	$\Delta A(t)$ / 1/s	$A(0)$ / 1/s	$\mu(A)$ / 1/s	$\sigma(A)$ / 1/s	$\sigma(A)$ / %
1E+16	1	0,13	9,13	0,11	13,55	13,89	0,23	1,63
	2	0,13	9,30	0,11	13,92			
	3	0,13	9,42	0,11	14,21			
Standard 1E+16	1	0,13	8,94	0,11	13,59	13,40	0,17	1,30
	2	0,12	8,59	0,10	13,14			
	3	0,12	8,75	0,10	13,48			

In Tabelle 4.9 sind die Impulsraten, Nettopeakflächen und Untergrundflächen bei 80 keV aller Proben aus der letzten Neutronenaktivierungsanalyse noch einmal zusammengefasst.

Tabelle 4.9: Zusammenfassung der Gammaskpektren der letzten Neutronenaktivierungsanalyse

Gammaskpektren zusammengefasst	1E+16 Atome auf Titan	1E+16 Atome aus Standardlsg.
Zählrate bei 80 keV / cps	9,28 ± 0,11	8,76 ± 0,10
Nettofläche nach 15 min Messzeit / counts	8355 ± 97	7881 ± 94
Untergrundfläche / counts	546	532

Die Ergebnisse der Effizienzkalibrierung und die Berechnungen der von der Detektoreffizienz unabhängigen Aktivität für alle Neutronenaktivierungsanalysen bei 80 keV sind in Tabelle 4.10 mit den theoretischen Werten, die Tabelle 4.1 entnommen wurden, verglichen. Dabei ist $\epsilon(E)$ die berechnete energieabhängige Effizienz, $A(0)$ ist die effizienzunabhängige Aktivität in Becquerel und $A_{\text{Soll}}(0)$ der theoretisch berechnete Wert dieser Aktivität ebenfalls in Becquerel. Die Fehler der Effizienz schwankten stark je nach Effizienzkalibrierungskurve und es kann deshalb ein mittlerer Wert von etwa 5 % für den Fehler der Effizienz festgelegt werden.

Tabelle 4.10: Ergebnisse der Effizienzkalibrierung und Vergleich mit theoretischen Aktivitäten für die 80 keV Linie

Bestrahlung No. (Detektor)	Atomzahl der Probe (Art)	$\epsilon(E)$	$A(0)$ / Bq	$A_{\text{Soll}}(0)$ / Bq	Abweichung / %
1 (MOPS41)	1E+14 (Ti)	0,0185	71,29 ± 0,07	39	+ 82,80
	1E+15 (Ti)	0,0185	667,58 ± 0,19	390	+ 71,17
	1E+16 (Ti)	0,0185	6049,59 ± 0,58	3900	+ 55,12
	1E+15 (Std)	0,0185	436,38 ± 0,13	390	+ 11,89
2 (MOPS41)	1E+14 (Ti)	0,0185	69,01 ± 0,06	39	+ 76,95
	1E+15 (Ti)	0,0185	706,34 ± 0,13	390	+ 81,11
	1E+16 (Ti)	0,0185	7308,34 ± 0,45	3900	+ 87,39
	1E+15 (Std)	0,0185	333,41 ± 0,14	390	- 14,51
3 (MOPS48)	1E+16 (Ti)	0,0022	6340,53 ± 0,21	3900	+ 62,58
	1E+16 (Std)	0,0022	6115,90 ± 0,19	3900	+ 56,82

4.3. Autoradiographien

Im Folgenden sind die Aufnahmen der Autoradiographie gezeigt. Die Orientierung der Titanfolien ist dabei immer gleich. Die Titanfolie, die als Blindwert dient, ist immer in der unteren linken Bildecke und die Titanfolie mit dem Holmiumnitrat ist immer in der oberen rechten Bildecke zu sehen. In den ersten drei Bildern ist aufgrund der hohen Aktivität des Holmiums bei der Bestrahlung der Platte eine Übersättigung in unmittelbarer Umgebung des Salzes auf der Folie aufgetreten. Die Peaks sind in den Autoradiographien linear skaliert, da eine logarithmische Skalierung die Übersättigung verstärkt hätte.

Ein Tag
nach der Bestrahlung:

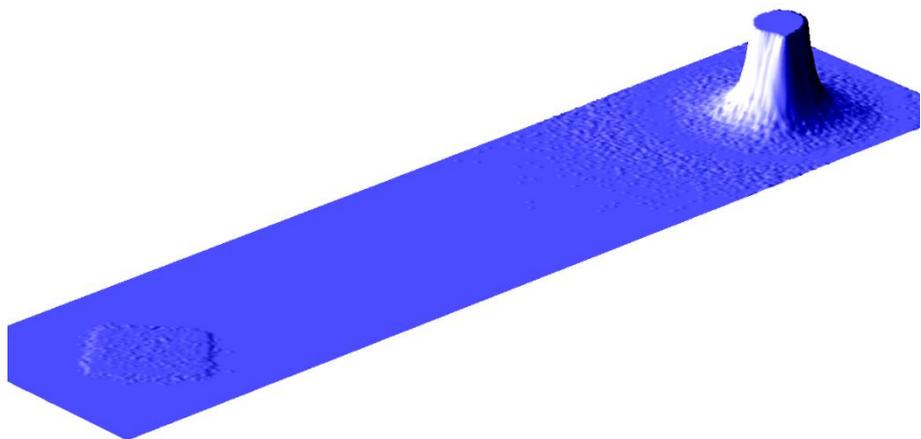


Abbildung 4.1: Autoradiographie ein Tag nach der Bestrahlung der Titanfolien

Image.99

2 Tage
nach der Bestrahlung:

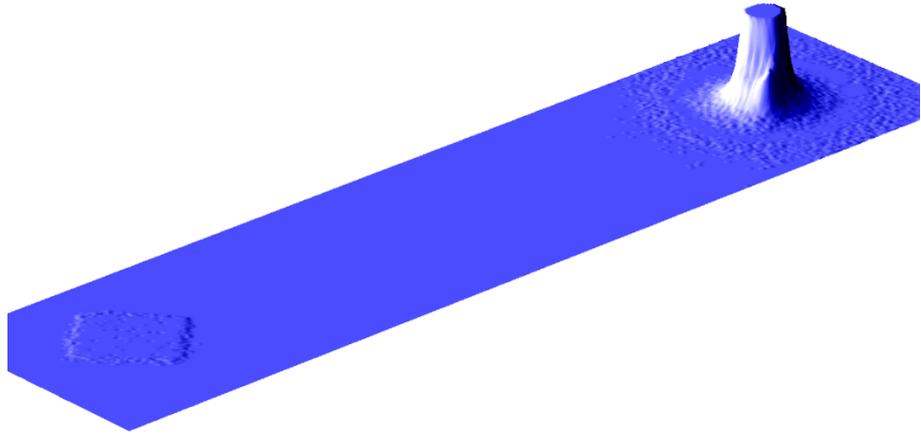


Abbildung 4.2: Autoradiographie zwei Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien

Image.BB

4 Tage
nach der Bestrahlung:

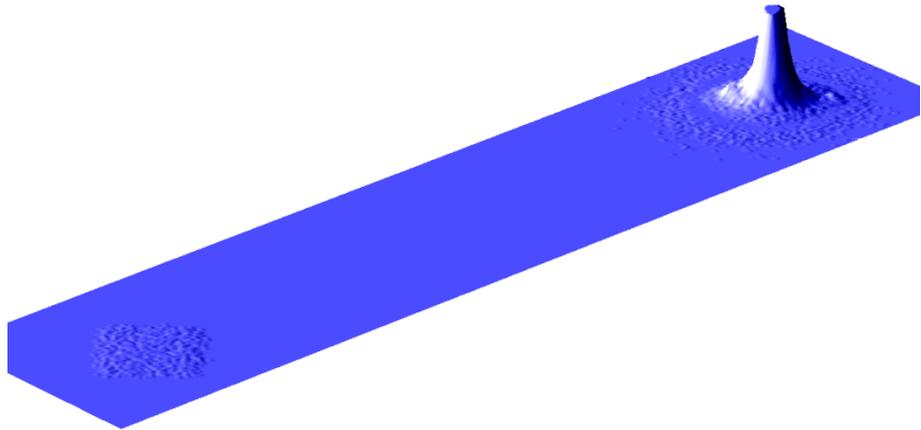


Abbildung 4.3: Autoradiographie vier Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien

Image.BB

7 Tage
nach der Bestrahlung:

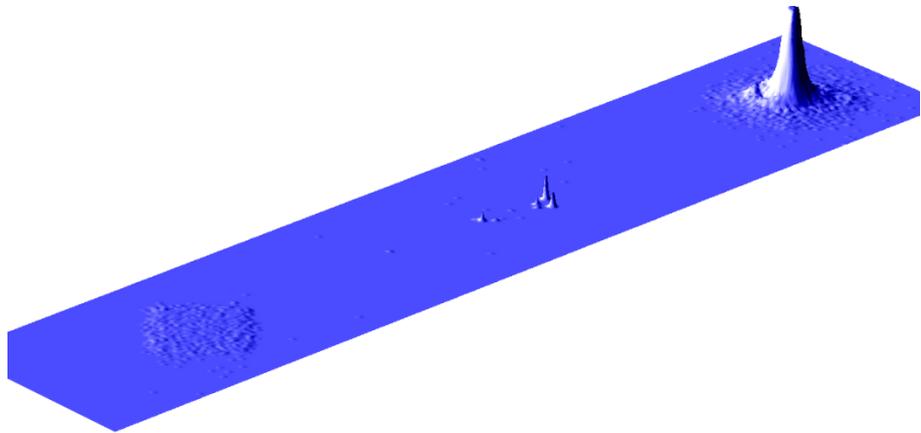


Abbildung 4.4: Autoradiographie sieben Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien

Image.59

8 Tage
nach der Bestrahlung:

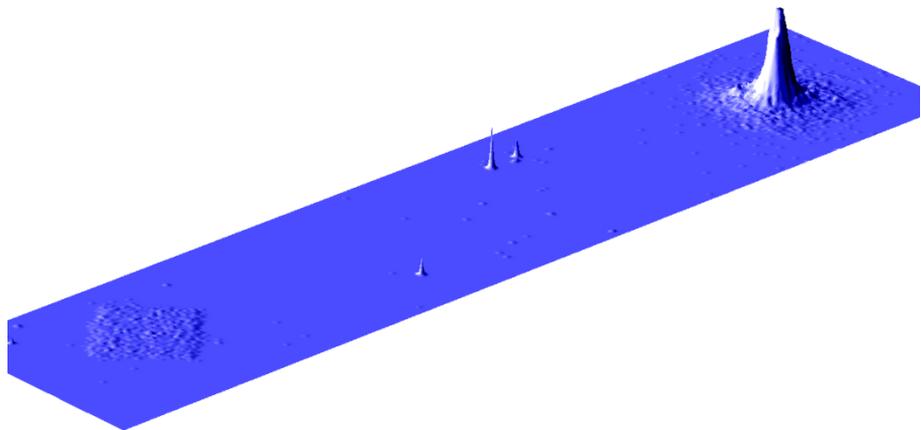


Abbildung 4.5: Autoradiographie acht Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien

Image.59

14 Tage
nach der Bestrahlung:

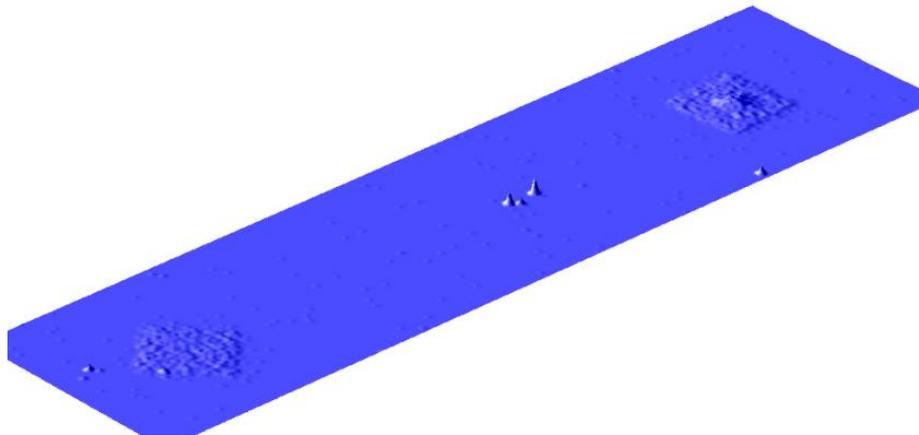


Abbildung 4.6: Autoradiographie zwei Wochen nach der Bestrahlung der Titanfolien

4.4. Überprüfung möglicher Fehlerfaktoren

In Tabelle 4.11 sind die Überprüfungen der benutzten Kolbenhubpipetten zusammengefasst. Dabei bezieht sich die Einwaage auf jeweils 10 μL bzw. 200 μL pipettiertes Wasser. Die Sollwerte liegen demnach bei 10 mg und 200 mg. Die Messfehler können hier wieder wie in Abschnitt 3.3 festgelegt werden: Der Ablesefehler beträgt etwa 0,1 mg, da die Waagenanzeige bis auf 0,1 mg genau abzulesen war, und der Einwaagefehler kann innerhalb der Toleranz der Waage auf etwa 0,5 mg gesetzt werden. Bei der Verdünnung der Lösungen im 25 ml Messkolben liegt der Fehler bei 0,04 ml bei 20 °C. Über alle Prozesse beim Ansetzen der Standardlösungen hinweg kann der Fehler auf etwa 5 % geschätzt werden.

Tabelle 4.11: Messwerte der Überprüfung der benutzten Eppendorfpipetten mit Mindestvolumina von 10 μL und 200 μL

Einwaage No.	Eppendorfpipette mit mind. 10 μL	Eppendorfpipette mit mind. 200 μL
1	9,7 mg	202,7 mg
2	9,7 mg	203,4 mg
3	9,9 mg	204,6 mg
4	9,8 mg	203,7 mg
5	9,9 mg	204,7 mg
Mittelwert der Einwaagen	9,8 mg	203,8 mg
Streuung der Messwerte	1,0 %	0,3 %
Abweichung vom Sollwert	- 2,0 %	+ 1,9 %

Die Konzentrationen der angesetzten Standardlösungen wurden mittels ICP-MS¹⁰ von der Arbeitsgruppe Prof. Dr. Reich überprüft und die Ergebnisse aus dem Vergleich zwischen gemessenen und theoretischen Werten sind in Tabelle 4.12 zusammengefasst. Bei den Messungen kann mit einem Messfehler von etwa 5 % gerechnet werden.

Tabelle 4.12: Ergebnisse der Überprüfung der Konzentration der angesetzten Standardlösungen mittels ICP-MS und Vergleich mit den theoretischen Werten

Probe	c_{Soll} / mol/L	c_{Messung} / mol/L	Abweichung / %
1	1,66E-03	2,05E-03	23,7
2	1,66E-04	1,88E-04	13,6
3	1,66E-05	1,81E-05	9,3

In Tabelle 4.13 sind die Peaks mit ihrer jeweiligen Intensität im Spektrum von der Blindwertmessung einer Titanfolie aufgelistet. Die stärksten Peaks sind dabei markiert. Das Spektrum dieser Messung ist im Anhang unter Abschnitt 8.1 abgebildet.

Tabelle 4.13: Liste der auftretenden Peaks bei der Blindwertmessung einer Titanfolie mit den jeweiligen Intensitäten der Peaks

Energie / keV	Peak Signifikanz
70,50	3,88
134,28	5,04
159,73	30,93
176,01	3,38
480,29	5,12
511,76	3,56
552,28	3,58
559,58	18,81
564,56	7,49
657,50	6,63
686,16	6,62
846,87	5,77
983,53	8,69
1037,72	7,87
1120,41	3,77
1173,43	3,48
1216,71	3,05
1313,10	8,17
1333,65	3,08
1370,20	5,41

¹⁰ Inductively coupled plasma mass spectrometry

5. Diskussion

5.1. Ergebnisse der NAA und Reproduzierbarkeit

Die ersten beiden Messreihen am Detektor MOPS41 zeigten, dass sich das Holmium zum einen sehr gut nach der Bestrahlung im Karussell nachweisen lässt, also es genug γ -Aktivität zum Nachweis besitzt, und zum anderen die Aktivität und damit auch die Totzeit nicht zu hoch sind, sodass es schon direkt am nächsten Tag nach der Bestrahlung gemessen werden kann. Dennoch fielen bei den ersten beiden Messreihen auch einige Schwachstellen auf: Als Erstes war die Reproduzierbarkeit noch nicht optimal, da die Messwerte der Impulsrate mit 3 bis 9 % um ihren Mittelwert streuten. Außerdem fiel bei dem Vergleich mit der Standardlösung auf, dass die Impulsraten zwischen Titanfolien und Standardlösung nicht übereinstimmten, sondern die Impulsrate der Titanfolien sogar etwa doppelt so hoch war wie die der Standardlösungen. Eine Überprüfung der Peaks von Titanfolie und Standardlösung zeigte, dass die Titanfolie durch Verunreinigungen im Titan zwar deutlich mehr Peaks zeigte, diese aber mit beispielsweise 159 keV oder 559 keV zu weit von dem ausgewerteten Peak bei etwa 80 keV entfernt lagen, um die Impulsrate zu verfälschen. Auch eine Lumineszenz von Blei aus der Bleiabschirmung um den Detektor konnte ausgeschlossen werden, da diese im Inneren durch eine zusätzliche Kupferabschirmung ausgekleidet war. Die Untergrundfläche bei 80 keV entspricht auch etwa nur 10 bis 30 % der Nettopeakfläche und deshalb konnte auch der Untergrund nicht die Ursache für den großen Unterschied der Impulsraten zwischen Titanfolien und Standards sein, zudem auch der Untergrund bei beiden Probenarten gleich ist. Erst die Erhöhung des Abstandes zum Detektoreintrittsfenster beim Detektor MOPS48 zeigte, dass es ein Geometrieproblem der Probe im Bestrahlungsröhrchen sein musste, da in der dritten Messreihe die Impulsraten von Standardlösung und Titanfolie im Rahmen der Messfehler sehr gut zusammenpassten. Die Probengeometrie des Salzes aus der Standardlösung musste also sehr unterschiedlich sein zu der Geometrie der Folie im Röhrchen. Am Detektor MOPS48 streuten auch die Messwerte der Impulsraten mit 1 bis 2 % geringer um ihren Mittelwert. Dies kann vermutlich damit begründet werden, dass MOPS48 eine viel bessere Energieauflösung im niederenergetischen Bereich hat im Gegensatz zu MOPS41. Die Totzeit fällt bei MOPS48 geringer aus, was darauf zurückzuführen ist, dass die Probe weiter vom Detektor entfernt ist und somit die Impulsrate um den Faktor 10 geringer ist als bei MOPS41. Letztendlich zeigt die letzte Neutronenaktivierungsanalyse, dass die Impulsraten von Titanfolien und Standards übereinstimmen und sich die Werte gut reproduzieren lassen.

5.2. Ergebnisse der Effizienzkalibrierung

In den ersten beiden Messreihen der NAA lagen nach der Effizienzkalibrierung die effizienzunabhängigen Aktivitäten der Titanfolien mit einer Abweichung von bis zu 80 % über den theoretischen Aktivitäten, die über die Aktivierungsgleichung berechnet wurden. Die effizienzunabhängigen Aktivitäten der Standards hingegen lagen mit einer Abweichung von bis zu 18 % viel näher an den theoretischen Werten. Dieser Unterschied zwischen Titanfolien und Standards lag an einem Geometrieproblem der Proben in den Bestrahlungsröhrchen und wurde bereits in Abschnitt 5.1 geklärt. In der dritten Messreihe der NAA am MOPS48 lagen die effizienzunabhängigen Aktivitäten von Titanfolien und Standards mit einer Abweichung von bis zu

56 % über dem theoretischen Wert. Der Unterschied zwischen der gemessenen und der theoretischen Aktivität muss darin begründet sein, dass entweder bereits in den Standardlösungen ein Fehler bei der Verdünnung oder der Einwaage an Holmiumnitrat gemacht wurde und deshalb mehr Atome bestrahlt wurden, als theoretisch angenommen wurde, oder der Neutroneneinfangsquerschnitt oder sogar der Neutronenfluss sind größer, als es angenommen wurde. Da keine Überprüfung des Neutronenflusses während dieser Arbeit mehr gemacht werden konnte, mussten also die anderen Faktoren überprüft werden. Es ist allerdings sehr wahrscheinlich, dass der Großteil der Abweichung dadurch zustande kam, dass das Holmium epithermische Neutronen bei der Bestrahlung eingefangen hat, da hierfür der Neutronenfluss im epithermischen Bereich¹¹ im Bestrahlungskarussell mit $4 \times 10^{10} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ausreichend hoch ist. Dies zeigt wiederum, wie ungeeignet der Vergleich mit theoretischen Werten ist, da in der Praxis Faktoren mitwirken können, die man nicht ohne weiteres in einer theoretischen Berechnung berücksichtigen kann, und es ist deshalb sinnvoller, bei der NAA zum Vergleich Standards mitzubestrahlen.

5.3. Fehlerfaktoren

Bei der Überprüfung der Kolbenhubpipetten, mit denen die Verdünnungen gemacht wurden und die Aliquote für die Titanfolien entnommen wurden, zeigte sich, dass die Messwerte im Rahmen des Messfehlers sehr gut zu den theoretischen Werten passten. Das bedeutet also, dass die Kolbenhubpipetten keinen nennenswerten Beitrag dazu beisteuerten, dass die Messwerte der NAA weit oberhalb der theoretischen Werte lagen. Weiterhin ergab die Überprüfung der Konzentrationen von Holmium in den Standardlösungen mittels ICP-MS, dass diese ebenfalls gut im Rahmen des Messfehlers und der Fehler beim Ansetzen der Verdünnungen zusammenpassten. Die Konzentrationen lagen nur mit geringer Abweichung oberhalb der theoretisch angenommenen Werte, was zum einen die Abweichung der Messwerte der NAA nach oben stützt und zum anderen die Standardlösungen als grobe Fehlerquelle ausschließt. Auch die Überprüfung eines Titanfolien-Blindwertes durch NAA ergab, dass sich in unmittelbarer Umgebung von 80 keV keine Peaks durch Verunreinigungen im Titan feststellen lassen und dass somit die Titanfolie selbst als Fehlerquelle für die Abweichung der Messwerte der NAA ausscheidet. Der starke Peak im Titanspektrum bei etwa 159 keV ist vermutlich eine Verunreinigung durch Scandium, da ⁴⁷Sc bei 159 keV einen starken Peak besitzt (8) und die Berechnung der Halbwertszeit über zwei Blindwertmessungen von Titan etwa die Halbwertszeit von ⁴⁷Sc mit 3,5 Tagen ergab.

5.4. Autoradiographien

Die Autoradiographien mit 10^{16} Holmiumatomen auf einer Titanfolie zeigen in den ersten beiden Tagen nach der Bestrahlung noch eine starke Übersättigung auf der Titanfolie. Diese Übersättigung nahm aber gut ab bis zu einer Woche nach der Bestrahlung, sodass die Aktivität des Holmiums auf der Titanfolie bei der Autoradiographie eine gleichmäßige Kegelform beschreibt. Das zeigt, dass sich die Verteilung der Holmiumatome auf der Titanfolie etwa eine Woche nach der Bestrahlung gut

¹¹ <http://www.kernchemie.uni-mainz.de/229.php>

verfolgen lässt. Dies lässt sich sogar bis etwa zwei Wochen nach der Bestrahlung ausreizen, da selbst diese Autoradiographie, wenn auch nur schwach, die räumliche Verteilung des Holmiums auf der Titanfolie erkennen lässt. Allerdings bringt es einen Nachteil mit sich, die Proben erst ein bis zwei Wochen nach der Bestrahlung mittels Autoradiographie zu untersuchen. Denn je länger man wartet, desto empfindlicher wird die Autoradiographie für Verunreinigungen, deren Aktivität eine längere Halbwertszeit besitzt als Holmium, was man an einigen kleinen Peaks mittig der Bilder der Autoradiographien erkennen kann.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden theoretische Berechnungen zur Aktivierung von Holmium auf einer Titanfolie für einen bekannten thermischen Neutronenfluss gemacht und es wurden wässrige Stammlösungen mit verschiedenen Konzentrationen an Holmiumnitrat angesetzt, mit denen eine Optimierung des Verfahrens der Probenpräparation für den RISIKO-Massenseparator mittels Neutronenaktivierungsanalyse und Autoradiographie gemacht wurden. Außerdem wurde überprüft, wie gut sich Holmium in verschiedenen Konzentrationen auf Titan mittels NAA und Autoradiographie nachweisen lässt, um damit Verfahren zu bestimmen, mit denen sich die Effizienz des Massenseparators überprüfen oder bestätigen lässt. Schließlich wurde auch kontrolliert, ob sich die Aktivität der Proben theoretisch voraussagen lässt und ob sich gegebenenfalls die Messergebnisse der Proben durch Messung von mitbestrahlten Standards verifizieren lassen.

Die Ergebnisse der NAA zeigten zum einen, dass sich die Proben aller angesetzten Stammlösungen sehr gut nach der Bestrahlung messen ließen, da sich die 80 keV Linie des Holmiumspektrums aufgrund genügender Intensität und geringen Untergrundes besonders gut zur Auswertung eignete. Zum anderen konnte eine gute Reproduzierbarkeit mit einer Streuung von maximal 2 % erreicht werden, was die hohe Qualität des Verfahrens der Probenpräparation verifiziert. Auch stimmen die Messergebnisse von Proben und Standards im Rahmen der Zählfehler gut überein, sodass sich die mitbestrahlten Standards als Vergleichsmethode gut eignen. Weitaus weniger gut zum Vergleich eignet sich eine theoretische Berechnung der Aktivitäten, da hierbei die Messergebnisse über 50 % oberhalb der theoretischen Werte lagen. Die Überprüfung von Fehlerfaktoren zeigte, dass vermutlich der Neutronenfluss der thermischen und epithermischen Neutronen eine große Rolle spielt, da Holmium bei ausreichend hohem epithermischen Neutronenfluss einen großen Einfangsquerschnitt für epithermische Neutronen besitzt. Für die Zukunft sollten also noch sowohl die Neutronenflüsse thermischer und epithermischer Neutronen im Bestrahlungskarussell überprüft werden als auch die Bestrahlung in der thermischen Säule als Bestrahlungsmethode herangezogen werden, wenn die Aktivitäten mit theoretischen Berechnungen vergleichbar gemacht werden sollen.

Die Ergebnisse der Autoradiographie zeigten, dass sich diese Methode gut zum Nachweis der Verteilung des Holmiums auf einer Titanfolie als Probenträger eignet. Allerdings sollten kleine Bestrahlungszeiten der Photoplatten gewählt werden und die Aufnahmen über mehrere Tage verfolgt werden, da sich oft eine Übersättigung in unmittelbarer Nähe hoher Holmiumkonzentrationen auf der Folie zeigte, weil vermutlich die Aktivität des Holmiums innerhalb von 3 Halbwertszeiten noch etwas zu stark für die empfindlichen Photoplatten ist.

7. Verzeichnisse

7.1. Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1: Neutroneneinfangsquerschnitt in barn für ^{165}Ho aufgetragen gegen die Energie der einfallenden Neutronen in eV	5
Abbildung 3.1: Auf 6x6 mm zurechtgeschnittene Titanfolie der Dicke 12,7 μm	11
Abbildung 3.2: Gefaltete Titanfolie in einem Bestrahlungsröhrchen	12
Abbildung 3.3: Stanzwerkzeug bestehend aus einem Block mit einer Mulde und einem Stift zum Eindrücken der Titanfolie	13
Abbildung 3.4: Titanfolien für die Autoradiographie auf der Unterseite einer Glasschale fixiert. Links: Blindprobe, um 45 ° gedreht, Rechts: Titanfolie mit Holmiumnitratsalz auf der Oberfläche	16
Abbildung 4.1: Autoradiographie ein Tag nach der Bestrahlung der Titanfolien.....	21
Abbildung 4.2: Autoradiographie zwei Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien	22
Abbildung 4.3: Autoradiographie vier Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien.....	22
Abbildung 4.4: Autoradiographie sieben Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien	23
Abbildung 4.5: Autoradiographie acht Tage nach der Bestrahlung der Titanfolien	23
Abbildung 4.6: Autoradiographie zwei Wochen nach der Bestrahlung der Titanfolien	24
Abbildung 8.1: Spektrum einer Titanfolie mit 10^{14} Atomen Holmium nach einer 30 min Messung.....	31
Abbildung 8.2: Spektrum einer Titanfolie mit 10^{15} Atomen Holmium nach einer 30 min Messung.....	31
Abbildung 8.3: Spektrum einer Titanfolie mit 10^{16} Atomen Holmium nach einer 30 min Messung.....	32
Abbildung 8.4: Spektrum einer Titanfolie ohne Holmium nach einer 30 min Messung	32

7.2. Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1: Energien mit jeweiligen Intensitäten der Linien im Gammaspektrum von ^{166g}Ho	4
Tabelle 3.1: Liste der verwendeten Chemikalien mit jeweiligen Informationen.....	10
Tabelle 3.2: Berechnete Werte der Standardlösungen von Holmiumnitrat in Wasser.....	11
Tabelle 4.1: Ergebnisse der Berechnung für die Aktivität in Becquerel der gesamten Probe und der 80 keV mit jeweils unterschiedlicher Atomzahl.....	16
Tabelle 4.2: Messergebnisse der Gammaspektren der ersten Neutronenaktivierungsanalyse	17
Tabelle 4.3: Zusammenfassung der Gammaspektren der ersten Neutronenaktivierungsanalyse.....	17
Tabelle 4.4: Auftretende Peaks in Probe 2 mit 10^{15} Atomen auf Titanfolie aus der ersten Neutronenaktivierungsanalyse	18
Tabelle 4.5: Auftretende Peaks der Probe 2 mit 10^{15} Atomen aus 10 μL Standardlösung aus der ersten Neutronenaktivierungsanalyse	18
Tabelle 4.6: Messergebnisse der Gammaspektren der zweiten Neutronenaktivierungsanalyse	19
Tabelle 4.7: Zusammenfassung der Gammaspektren der zweiten Neutronenaktivierungsanalyse	19
Tabelle 4.8: Messergebnisse der Gammaspektren der letzten Neutronenaktivierungsanalyse	20
Tabelle 4.9: Zusammenfassung der Gammaspektren der letzten Neutronenaktivierungsanalyse.....	20
Tabelle 4.10: Ergebnisse der Effizienzkalibrierung und Vergleich mit theoretischen Aktivitäten für die 80 keV Linie	20
Tabelle 4.11: Messwerte der Überprüfung der benutzten Eppendorfpipetten mit Mindestvolumina von 10 μL und 200 μL	24

Tabelle 4.12: Ergebnisse der Überprüfung der Konzentration der angesetzten Standardlösungen mittels ICP-MS und Vergleich mit den theoretischen Werten	25
Tabelle 4.13: Liste der auftretenden Peaks bei der Blindwertmessung einer Titanfolie mit den jeweiligen Intensitäten der Peaks.....	25

7.3. Literaturverzeichnis

1. **Mößbauer, Rudolf L.** History of Neutrino Physics: Pauli's Letters. Physik Department E15 : Technische Universität München.
2. **Cowan, C. L., et al., et al.** Detection of the free Neutrino: A Confirmation. *Science*. 1956, Bd. 124, S. 103.
3. **Cowan, C. L. und Reines, F.** The Neutrino. *Nature*. 1956, Bd. 178, 4531, S. 446.
4. **Lieser, K. H.** *Einführung in die Kernchemie*. Weinheim : VCH, 1991. Bd. 3.
5. **Yao, W-M, et al., et al.** *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* 2006, Bd. 33, 1.
6. **Wolf, J.** The KATRIN neutrino mass experiment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2010, Bd. 623, S. 442 - 444.
7. **Hollemann, A. F. und Wiberg, N.** *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. Berlin : Walter de Gruyter & Co., 2007. Bd. 102.
8. **Reus, U. und Westmeier, W.** *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. s.l. : Academic Press, Inc., 1983. Bd. 29.
9. **von Seggern, H.** Photostimulable X-Ray Storage Phosphors: a Review of Present Understanding. *Brazilian Journal of Physics*. 1999, Bd. 29.
10. **Hareyama, M., et al., et al.** Two-dimensional measurement of natural radioactivity of granitic rocks by photostimulated luminescence technique. *Geochemical Journal*. 2000, Bd. 34.
11. **Schwellnus, F.** Dissertation. *Entwicklung von Ionenquellen zur Optimierung von Selektivität und Effizienz bei der resonanten Laserionisation*. 2010.

8. Anhang

8.1. Spektren der zweiten NAA zum Abschnitt 4.2 und 4.4

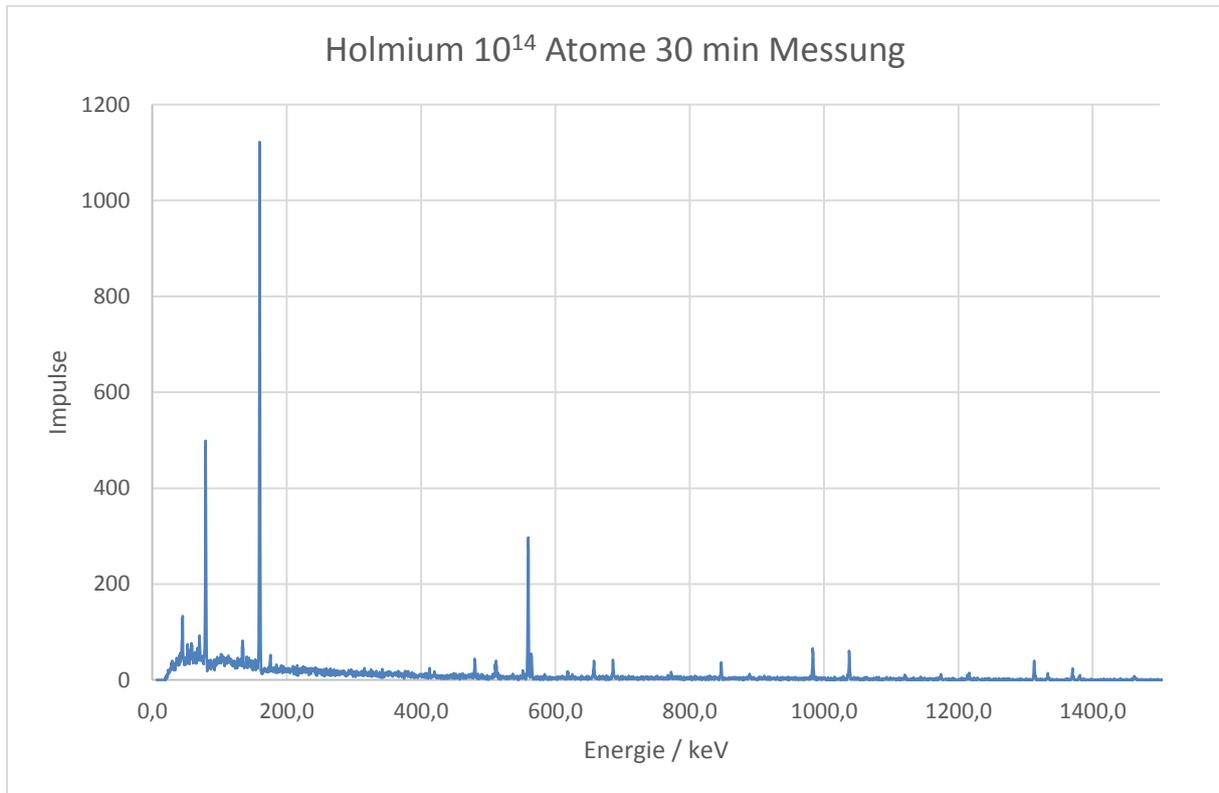


Abbildung 8.1: Spektrum einer Titanfolie mit 10^{14} Atomen Holmium nach einer 30 min Messung

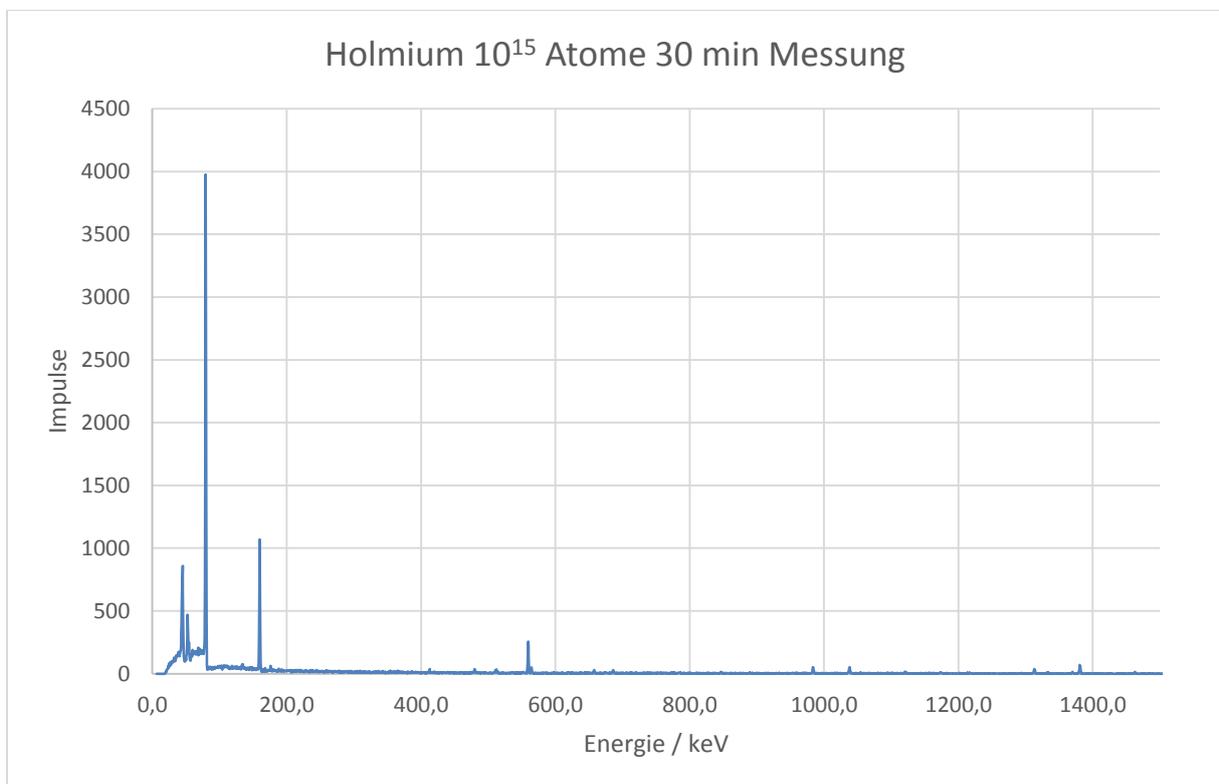


Abbildung 8.2: Spektrum einer Titanfolie mit 10^{15} Atomen Holmium nach einer 30 min Messung

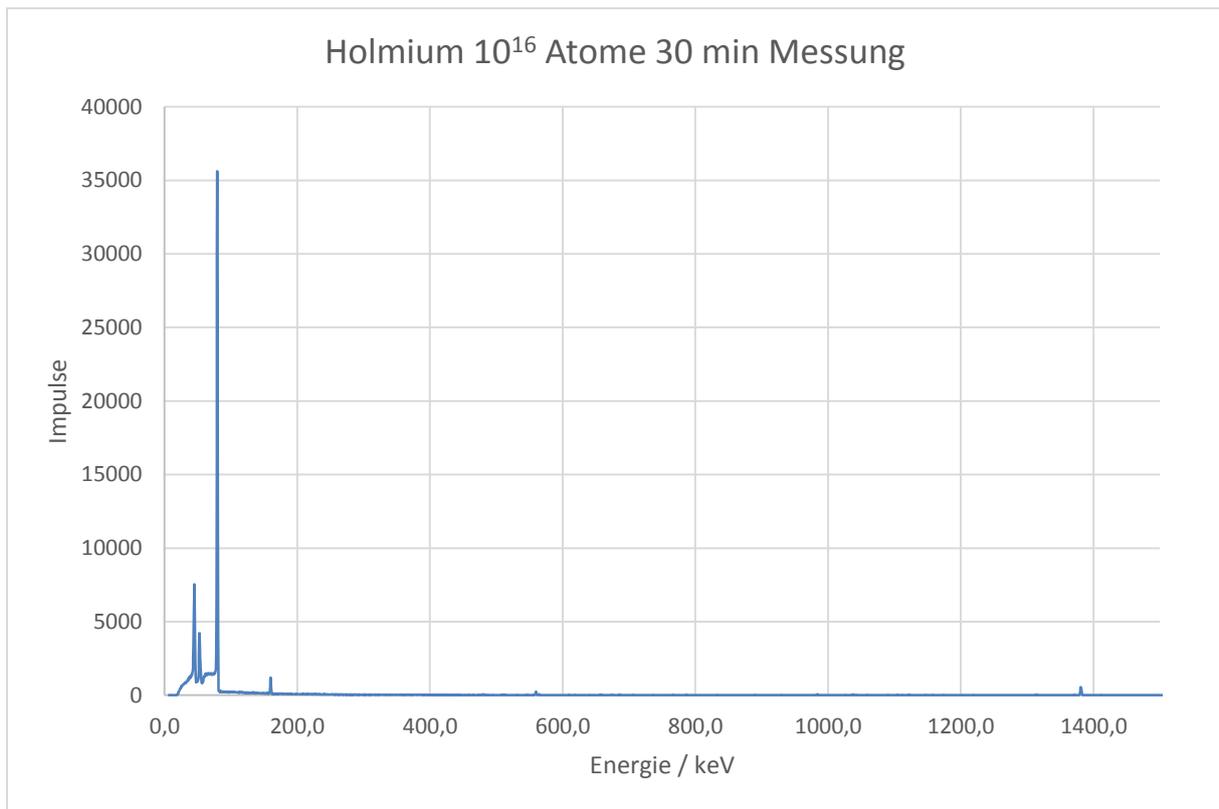


Abbildung 8.3: Spektrum einer Titanfolie mit 10^{16} Atomen Holmium nach einer 30 min Messung

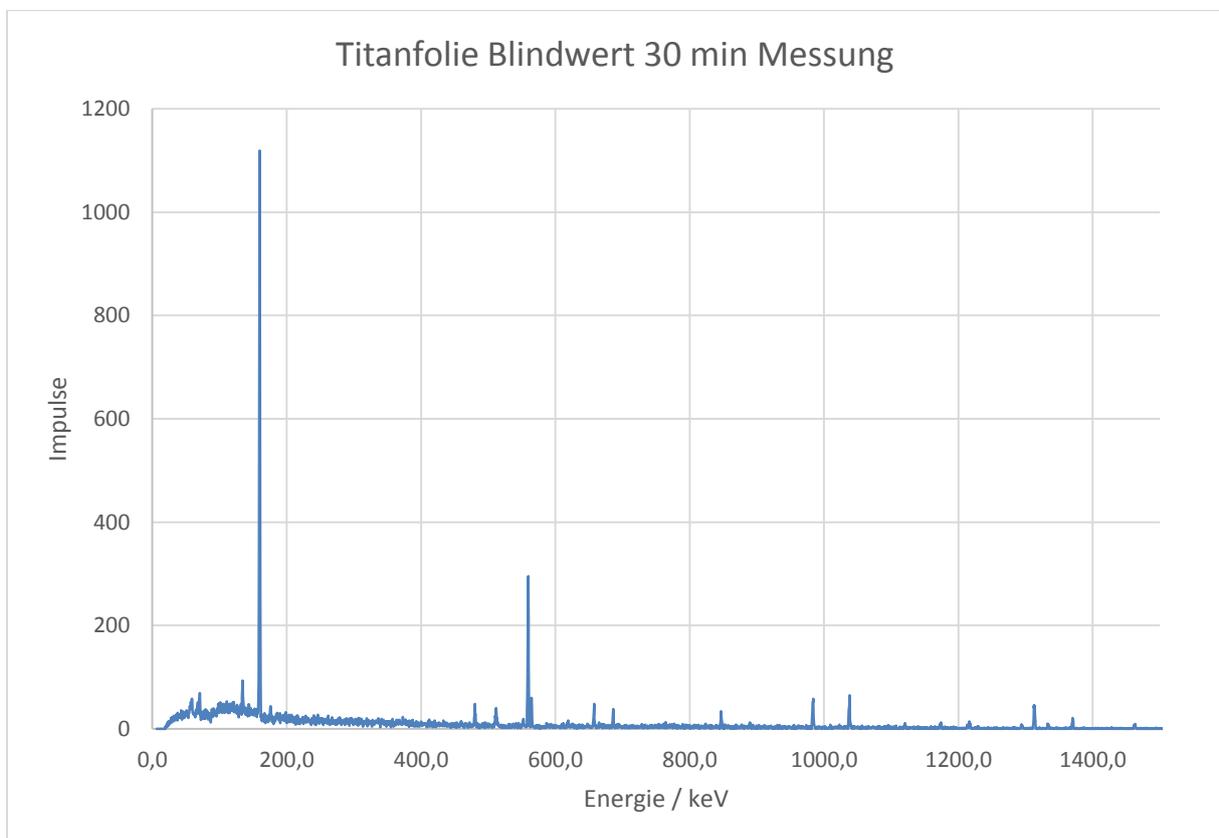


Abbildung 8.4: Spektrum einer Titanfolie ohne Holmium nach einer 30 min Messung