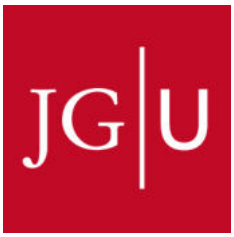
Bachelorarbeit

im Studiengang
Biomedizinische Chemie

Einfluss der Gehalte von H_2O und CO_2 im Lösemittel auf die elektrochemische Abscheidung von f-Element-Chloriden

Primiana Cavallo
Mainz, Februar 2022

1. Gutachter: Univ.-Prof. Dr. Christoph E. Düllmann
2. Gutachter: Dr. Dennis Renisch



Johannes-Gutenberg Universität Mainz

Fachbereich 09 - Chemie, Pharmazie, Geographie und Geowissenschaften
Department Chemie

Bachelorarbeit im Studiengang Chemie, Biomedizinische Chemie oder Polymerchemie an der Johannes Gutenberg - Universität Mainz

---

Ich, Primiana Cavallo, Matrikelnummer 2735864 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.

Lüdenscheid, 24.12.2021
(Ort, Datum)

Primiana Cavallo
(Unterschrift)

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die mich während meiner Bachelorarbeit unterstützt haben.

Zunächst bedanke ich mich bei Herrn Univ.-Prof. Christoph E. Düllmann für die Möglichkeit, die Bachelorarbeit in seinem Arbeitskreis anzufertigen.

Ein besonderer Dank gilt meinem Betreuer Ernst Artes, der mir dieses interessante Thema zur Verfügung gestellt hat und mich während meiner gesamten Zeit sehr gut betreut hat. Ich danke ihm für die vielen lehrreichen Diskussionen und wertvollen Anregungen, die mir ein tiefergehendes Verständnis über die Thematik meiner Bachelorarbeit ermöglicht haben.

Weiterhin danke ich Dr. Dennis Renisch für die verschiedenen technischen Anwedungsmethoden, die ich lernen durfte. Ein weiterer Dank gilt allen Mitgliedern des Arbeitskreises für die freundliche Aufnahme, Hilfsbereitschaft und positive Arbeitsatmosphäre.

Zuletzt danke ich meiner Familie und meinen Freunden, die mich während dieser Arbeit und der bisherigen Studienzeit begleitet und durchgehend unterstützt haben.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung 1

2 Theoretische Grundlagen 3

2.1 Molecular Plating 3

2.2 Die Löslichkeit von Gasen in Lösungen 4

2.3 Tracer Produktion/Neutronenaktivierungsanalyse 6

2.4 γ-Spektrometrie 8

2.5 α-Spektrometrie 9

2.6 Autoradiographie 11

2.7 Rasterelektronenmikroskopie/Energiedispersive Röntgenspektroskopie 12

3 Versuchsdurchführung 15

3.1 Herstellung der ^{160}Tb-Stammlösung 16

3.2 Herstellung der Reaktionslösungen 16

3.3 Versuche innerhalb der Glovebox 16

3.3.1 Bestimmung des Einflusses von D_2O in Abwesenheit von CO_2 16

3.3.2 Bestimmung des Einflusses von CO_2 in Abwesenheit von D_2O 16

3.3.3 Bestimmung des gemeinsamen Einflusses von D_2O und CO_2 . 17

3.3.4 Abscheidungen höherer Massenbelegungen 18

3.3.5 Abscheidung von ^{160}Tb mit Zugabe von ^{241}Am 18

3.4 Versuche außerhalb der Glovebox 18

3.4.1 Bestimmung des Einflusses von D_2O in Abwesenheit von CO_2 18

3.4.2 Bestimmung des gemeinsamen Einflusses von D_2O und CO_2 . 19

3.5 γ-Spektrometrie 19

3.6 α-Spektrometrie 19

3.7 Messwerte 20

4 Ergebnisse 21

4.1 Einfluss von D_2O in Abwesenheit von CO_2 24

4.2 Gemeinsamer Einfluss von D_2O und CO_2 24

4.3 Abscheidung von ^{160}Tb mit Zugabe von ^{241}Am 25

4.4 Abscheidungen höheren Massenbelegungen 26

4.5 Messwerte 26

5 Diskussion 29

5.1 Einfluss von D_2O in Abwesenheit von CO_2 29

5.1.1 Innerhalb der Glovebox 29

5.1.2 Außerhalb der Glovebox 29

5.2 Einfluss von CO_2 in Abwesenheit von D_2O 30
5.3 Gemeinsamer Einfluss von D_2O und CO_2 30
5.3.1 Innerhalb der Glovebox 30
5.3.2 Außerhalb der Glovebox 31
5.4 Abscheidungen höherer Massenbelegungen 32
5.5 Abscheidung von ^{160}Tb mit Zugabe von ^{241}Am 33

6 Zusammenfassung und Ausblick 35

A Chemikalienliste 37

B Geräteliste 39

C Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen 41

D Autoradiogramme 97

E γ-Spektrum 105

F Messwerte 107

Literaturverzeichnis 110

Abbildungsverzeichnis

1 Schematische Darstellung der elektrochemischen Zelle. 4
2 Schematische Darstellung der Herstellung eines Compoundkerns mit anschließender Kernumwandlung.[11] 7
3 Graphische Darstellung der durch die α-Teilchen erzeugten Ionenpaare in Abhängigkeit von ihrer Energie.[15] 10
4 Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Autoradiogramms 11
5 Schematische Darstellung der entstehenden Signale bei der Rasterelektronenmikroskopie. 12
6 Fotografie der verwendeten elektrochemischen Zelle 15
7 α-Spektrum von ^{241}Am. 25
8 Graphische Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Ausbeute von RL-48. 26
9 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-5 bei einer 19-fachen Vergrößerung 41
10 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-5 bei einer 20-fachen Vergrößerung 41
11 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-5 bei einer 300-fachen Vergrößerung 42
12 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-6 bei einer 25-fachen Vergrößerung 42
13 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-6 bei einer 90-fachen Vergrößerung 43
14 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-6 bei einer 300-fachen Vergrößerung 43
15 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-6 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 44
16 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-8 bei einer 21-fachen Vergrößerung 44
17 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-8 bei einer 18-fachen Vergrößerung 45
18 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-8 bei einer 300-fachen Vergrößerung 45
19 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-8 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 46

20 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-7 bei einer 18-fachen Vergrößerung 46
21 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-7 bei einer 18-fachen Vergrößerung 47
22 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-7 bei einer 300-fachen Vergrößerung 47
23 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-9 bei einer 20-fachen Vergrößerung 48
24 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-9 bei einer 300-fachen Vergrößerung 48
25 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-9 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 49
26 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-10 bei einer 20-fachen Vergrößerung 49
27 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-10 bei einer 20-fachen Vergrößerung 50
28 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-10 bei einer 300-fachen Vergrößerung 50
29 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-10 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 51
30 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-11 bei einer 21-fachen Vergrößerung 51
31 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-11 bei einer 20-fachen Vergrößerung 52
32 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-11 bei einer 300-fachen Vergrößerung 52
33 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-15 bei einer 23-fachen Vergrößerung 53
34 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-15 bei einer 20-fachen Vergrößerung 53
35 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-15 bei einer 300-fachen Vergrößerung 54
36 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-16 bei einer 19-fachen Vergrößerung 54
37 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-16 bei einer 19-fachen Vergrößerung 55
38 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-6 bei einer 300-fachen Vergrößerung 55

39 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-17 bei einer 20-fachen Vergrößerung 56
40 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-17 bei einer 19-fachen Vergrößerung 56
41 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-17 bei einer 300-fachen Vergrößerung 57
42 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-20 bei einer 17-fachen Vergrößerung 57
43 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-20 bei einer 20-fachen Vergrößerung 58
44 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-20 bei einer 300-fachen Vergrößerung 58
45 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-20 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 59
46 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-21 bei einer 19-fachen Vergrößerung 59
47 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-21 bei einer 20-fachen Vergrößerung 60
48 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-21 bei einer 300-fachen Vergrößerung 60
49 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-21 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 61
50 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-22 bei einer 20-fachen Vergrößerung 61
51 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-22 bei einer 20-fachen Vergrößerung 62
52 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-22 bei einer 300-fachen Vergrößerung 62
53 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-22 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 63
54 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-23 bei einer 20-fachen Vergrößerung 63
55 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-23 bei einer 20-fachen Vergrößerung 64
56 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-23 bei einer 300-fachen Vergrößerung 64
57 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-23 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 65

58 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-24 bei einer 20-fachen Vergrößerung 65
59 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-24 bei einer 20-fachen Vergrößerung 66
60 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-24 bei einer 300-fachen Vergrößerung 66
61 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-24 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 67
62 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-25 bei einer 20-fachen Vergrößerung 67
63 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-25 bei einer 20-fachen Vergrößerung 68
64 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-25 bei einer 300-fachen Vergrößerung 68
65 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-26 bei einer 20-fachen Vergrößerung 69
66 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-26 bei einer 20-fachen Vergrößerung 69
67 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-26 bei einer 100-fachen Vergrößerung 70
68 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-27 bei einer 19-fachen Vergrößerung 70
69 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-27 bei einer 20-fachen Vergrößerung 71
70 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-27 bei einer 300-fachen Vergrößerung 71
71 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-27 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 72
72 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-28 bei einer 20-fachen Vergrößerung 72
73 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-30 bei einer 20-fachen Vergrößerung 73
74 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-30 bei einer 300-fachen Vergrößerung 73
75 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-31 bei einer 20-fachen Vergrößerung 74
76 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-31 bei einer 103-fachen Vergrößerung 74

77 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-32 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 75
78 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-32 bei einer 300-fachen Vergrößerung . . . 75
79 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-33 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 76
80 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-33 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 76
81 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-33 bei einer 300-fachen Vergrößerung . . . 77
82 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-34 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 77
83 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-34 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 78
84 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-34 bei einer 300-fachen Vergrößerung . . . 78
85 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-35 bei einer 19-fachen Vergrößerung . . . 79
86 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-35 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 79
87 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-35 bei einer 300-fachen Vergrößerung . . . 80
88 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-36 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 80
89 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-36 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 81
90 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-36 bei einer 300-fachen Vergrößerung . . . 81
91 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-37 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 82
92 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-37 bei einer 21-fachen Vergrößerung . . . 82
93 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-37 bei einer 300-fachen Vergrößerung . . . 83
94 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-38 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 83
95 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-38 bei einer 20-fachen Vergrößerung . . . 84

96 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-38 bei einer 300-fachen Vergrößerung 84
97 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-39 bei einer 19-fachen Vergrößerung 85
98 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-39 bei einer 19-fachen Vergrößerung 85
99 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-39 bei einer 300-fachen Vergrößerung 86
100 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-40 bei einer 20-fachen Vergrößerung 86
101 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-40 bei einer 20-fachen Vergrößerung 87
102 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-40 bei einer 300-fachen Vergrößerung 87
103 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-40 bei einer 800-fachen Vergrößerung 88
104 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-41 bei einer 20-fachen Vergrößerung 88
105 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-41 bei einer 20-fachen Vergrößerung 89
106 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-41 bei einer 300-fachen Vergrößerung 89
107 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-41 bei einer 1000-fachen Vergrößerung 90
108 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-42 bei einer 20-fachen Vergrößerung 90
109 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-42 bei einer 300-fachen Vergrößerung 91
110 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-43 bei einer 20-fachen Vergrößerung 91
111 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-43 bei einer 300-fachen Vergrößerung 92
112 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-46 bei einer 20-fachen Vergrößerung 92
113 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-46 bei einer 300-fachen Vergrößerung 93
114 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-47 bei einer 20-fachen Vergrößerung 93

115 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-47 bei einer 300-fachen Vergrößerung 94
116 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-48 bei einer 20-fachen Vergrößerung 94
117 Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von RL-48 bei einer 99-fachen Vergrößerung 95

118 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-1 und RL-2. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 97
119 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-3 und RL-5. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 97
120 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-6 und RL-7. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 97
121 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-8 und RL-9. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 98
122 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-10 und RL-11. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 98
123 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-12 und RL-15. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 98
124 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-16 und RL-17. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 99
125 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-18 und RL-19. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 99
126 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-20 und RL-21. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 99
127 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-22 und RL-23. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 100
128 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-24 und RL-25. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 100
129 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-26 und RL-27. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 100
130 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-28 und RL-29. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 101
131 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-30 und RL-31. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 101
132 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-32 und RL-33. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 101
133 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-36 und RL-37. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 102

134 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-38 und RL-39. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 102
135 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-40 und RL-41. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 102
136 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-42 und RL-43. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 103
137 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-46 und RL-47. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 103
138 Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-48. Erstellt mit Gwyddion 2.55. 103

139 γ-Spektrum der ^{160}Tb-Stammlösung. 105

Tabellenverzeichnis

1 γ-Energien von ^{160}Tb und die zugehörigen Intensitäten. 8

2 Reaktionslösungen (RL), ihre Volumina an Stammlösung (SL), D_2O, CO_2-haltiger Lösung (Lsg.) und ^{241}Am, die ^{241}Am-Aktivität, die CO_2-Sättigung, die Reaktionsdauer und der Reaktionsort und die erwartete Massenbelegung (d). 20

3 Alle aufgenommenen Autoradiogramme und elektronenmikroskopischen Aufnahmen. Von links oben nach rechts unten: jeweils ein Autoradiogramm, eine 20-fach vergrößerte SE-Aufnahme und 300-fach vergrößerte SE-und BSE-Aufnahmen. 22

4 Alle aufgenommenen Autoradiogramme und elektronenmikroskopischen Aufnahmen. Von links oben nach rechts unten: ein Autoradiogramm, eine 20-fach vergrößerte SE-Aufnahme und 300-fach vergrößerte SE-und BSE-Aufnahmen. 23

5 Reaktionslösungen (RL), ihre Volumina an Stammlösung (SL), D_2O, CO_2-haltiger Lösung (Lsg.) und ^{241}Am, die ^{241}Am-Aktivität, die CO_2-Sättigung, die Reaktionsdauer und der Reaktionsort, die tatsächliche Massenbelegung (d) und die Ausbeute der RL. 27

6 Verwendeter Detektor, Abstand Präparat-Detektor in cm und Effizienz in %. 39

7 Reaktionslösungen (RL), ihre Volumina an Stammlösung (SL), D_2, CO_2-haltiger Lösung (Lsg.) und ^{241}Am, die dazugehörigen Anfangs (U_A)-und Endspannungen (U_E) und die Gehälter an H_2O und O_2 innerhalb der Glovebox. 107

Einleitung

Das *Molecular Plating* Verfahren wurde erstmalig im Jahr 1962 von *W. Parker* und *R. Falk* eingeführt und ist eine häufig verwendete Technik in der Target-Produktion.[1] Ursprünglich galt die Überzeugung, dass die Abscheidung in molekularer Form erfolgt, jedoch wurde diese Annahme widerlegt, da sich herausstellte, dass die Abscheidung als Oxid erfolgt. Dabei können, je nach Lösungszusammensetzung, auch Salze abgeschieden werden.[2]

Molecular Plating ermöglicht eine Abscheidung von Lanthaniden und Actiniden aus organischen Lösungen durch einen elektrischen Fluss. Das Verfahren erzielt hohe Ausbeuten und Abscheidungen mit Massenbelegungen von bis zu 1000 μg/cm.[2] Die für das Verfahren verwendete elektrochemische Zelle ist eine galvanostatische Zelle, bestehend aus zwei Elektroden. Die Abscheidung der f-Elemente erfolgt an der Kathode, da hier die Reduktion des jeweiligen Ions stattfindet. Dabei kann die Qualität der Abscheidung, d.h. die Filmqualität, durch verschiedene Parameter, wie H_2O und CO_2, beeinflusst werden.[1]

Die hergestellten Targets von Lanthaniden und Actiniden können anschließend als Quellen für verschiedene Anwedungen verwendet werden. Eine Verwendungsmöglichkeit ist die Herstellung superschwerer Elemente (engl. *superheavy elements*). Diese werden auch Transactinide genannt und umfassen die Elemente ab einer Ordnungszahl $Z \geq 104$. Sie werden durch die Kernfusion zweier Atomkerne gebildet. Für diese Fusion werden schwere Elemente, wie beispielsweise Americium, mit leichten Ionen beschossen. Die Projektilenergie der leichten Ionen muss dafür groß genug sein um die Coulombbarriere zu überwinden.[3]

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung des Einflusses unterschiedlicher Konzentrationen an H_2O und CO_2 in dem Lösemittel auf die elektrochemische Abscheidung von f-Element-Chloriden. Zur Untersuchung wurde ^{160}Tb verwendet. Es wird über Neutronenbeschuss vom stabilen Isotop ^{159}Tb gewonnen, besitzt eine Halbwertszeit von 72.3 d und zerfällt durch eine β^- Kernumwandlung zum ^{160}Dy.[4]

Erste Analysen der Filme lassen vermuten, dass verschiedene Kohlenstoffspezies, wie Carbonate, abgeschieden werden.[4] Durch bereits durchgeführte Versuche mit Terbiumnitrat konnte beobachtet werden, dass der CO_2-Gehalt in der Lösung Einfluss auf die Filmqualität haben. Diese Untersuchungen sollen nun auch auf Chloridsysteme ausgedehnt werden. Hierfür werden Verdünnungsreihen erstellt und mit verschiedenen Konzentrationen an H_2O und CO_2 versetzt, abgeschieden und miteinander verglichen. Weiterhin wurden ausgewählte ^{160}Tb-Lösungen mit einer kleinen Menge ^{241}Am versetzt und abgeschieden.

Zur quantitativen Gehaltsbestimmung werden γ-Spektrometrie und α-Spektrometrie verwendet. Als bildgebende Methoden dienen dabei die Autoradiographie und die Rasterelektronenmikroskopie.

Theoretische Grundlagen

2.1 Molecular Plating

Molecular Plating ermöglicht die Abscheidung der f-Elemente auf Oberflächen und eignet sich zur Herstellung von Targets für kerntechnische Anwendungen. Die Methode wurde 1962 von W. Parker und R. Falk[1] eingeführt und ermöglicht hohe Ausbeuten von bis zu 90 %.[2] Beim Molecular Plating werden organische Lösungsmittel, wie beispielsweise Mischungen aus Isopropanol und Isobutanol, verwendet.[2] Typische Reaktionszeiträume sind 1-2 Stunden, die Stromdichten können auf einige mA/cm^2 eingestellt werden und die Spannungen liegen in einem Bereich von 50–2000 V. Auf diese Weise kann eine hochwertige Filmqualität erhalten werden.
Die, für das *Molecular Plating* Verfahren verwendeten f-Metalle, liegen in 0.1 molarer Säure vor und werden in geringen Volumina zu den organischen Lösungen hinzugegeben. Weiterhin wird angenommen, dass aufgrund des hohen Spannungsbereiches Mischungen aus Carbonaten, Carboxylaten und Hydroxiden, abgeschieden werden.[5] Die Standardreduktionspotentiale der Lanthanide sind höher als das Referenzpotential, während die Standardpotentiale von Wasser und Kohlenstoffdioxid es nicht sind. Somit findet die Reduktion von Wasser und CO2 bevorzugter statt und es entstehen die oben genannten Mischungen. Diese Mischungen können Risse (sogenanntem *Mud cracking*) an den Target-Oberflächen verursachen. In Gleichung 1 wird die Entstehung der Risse mittels H2O dargestellt.

$$H_2O + e^- \longrightarrow H_2 + OH^- \tag{1}$$

Der gebildete Wasserstoff lagert sich unter das verwendete Substrat, einer Titanfolie, ab und verursacht beim entweichen des Wasserstoffs Risse auf der Folie. Lanthanide und Actinide sind aufgrund ihrer niedrigen Standardreduktionspotentiale unedel und können nicht elementar in rein wässrigen Lösungen abgeschieden werden. Terbium besitzt beispielsweise ein Standardreduktionspotential von -2.30 V und ist damit vergleichbar mit dem Standardreduktionspotential von Magnesium, welches bei -2.38 V liegt.[6] Mittels *Molecular Plating* können Abscheidungen von f-Elementen mit einer Massenbelegung von bis zu 1000 $\mu g/cm^2$ erreicht werden.[2]
Die Targetherstellung erfolgt in einer galvanostatischen Zelle, an der ein konstanter Strom mit variabler Spannung angelegt wird. Die Zelle besteht aus zwei Elektroden, einer Kathode, der Arbeitselektrode, und einer Anode, der Gegenelektrode. An der Kathode findet die Reduktion und an der Anode die Oxidation statt. Nach dem Anlegen einer Spannung werden die f-Elemente, die als Kationen vorliegen, zur Ka-

thode transportiert und auf einem Substrat (häufig eine Titanfolie) abgeschieden.[2] In Abbildung 1 wird die verwendete elektrochemische Zelle schematisch dargestellt.

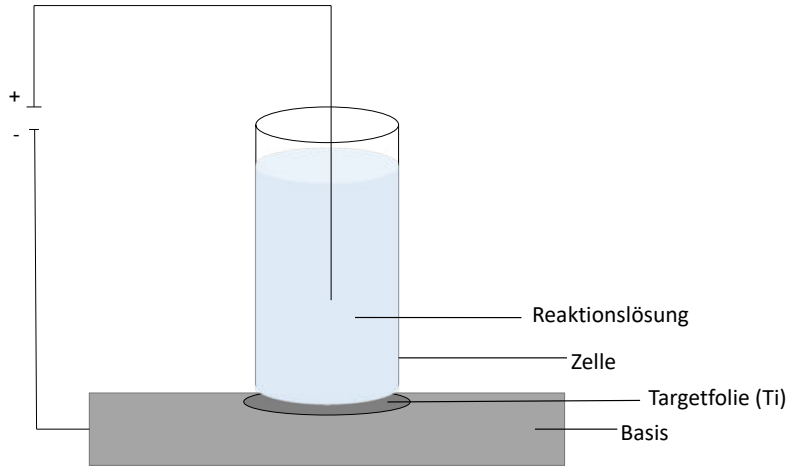


Abbildung 1: Schematische Darstellung der elektrochemischen Zelle.

Das Faraday'schen Gesetz (Gleichung 2) ermöglicht eine rechnerische Ermittlung der benötigten theoretischen Elektrolysezeit t, um eine bestimmte Masse m bei einer bekannten Stromstärke I elektrochemisch abzuscheiden.[7]

$$t = \frac{m \cdot z \cdot F}{M \cdot I} \tag{2}$$

Gleichung 2 setzt sich zusammen aus der theoretischen Elektrolysezeit t, der Masse m, der übertragenen Elektronen z, der Faraday'schen Konstante F, der molaren Masse M und der Stromstärke I.
Jedoch gilt das Faraday'sche Gesetz nicht für jede elektrochemische Abscheidung, da die theoretische Elektrolysezeit von der tatsächlichen Abweichen kann. Diese Abweichung findet beispielsweise beim *Molecular Plating* statt, da die experimentelle Elektrolysezeit deutlich länger als die theoretisch ermittelte Elektrolysezeit ist.

2.2 Die Löslichkeit von Gasen in Lösungen

Gase sind Teilchen, die sich in einem großen Abstand zueinander frei bewegen. Sie lösen sich in Flüssigkeiten, indem durch Diffusion ein Austausch zwischen den gasförmigen und flüssigen Molekülen an der Grenzfläche erfolgt. Dabei besagt das *Henry-Dalton-Gesetz*, dass der Partialdruck eines Gases direkt proportional zu seiner Konzentration in einer Flüssigkeit ist. Dieser Zusammenhang wird in Gleichung

3 dargestellt.[8]

$$[\mathrm{C}] = H_K \cdot p_A \tag{3}$$

Gleichung 3 setzt sich zusammen aus der Konzentration des Gases in der Flüssigkeit $[C]$, der Henry-Konstante H_K und dem Partialdruck des Gases. p_A[8]
Nach erreichen der Sättigungskonzentration stellt sich ein chemisches Gleichgewicht zwischen dem Eintritt und Austritt der Gasmoleküle in den jeweiligen Flüssigkeiten ein. Dieses Gleichgewicht kann nach dem Prinzip von *Le Chatelier*[8] durch Änderung folgender Größen beeinflusst werden: Konzentration, Temperatur oder Druck. Durch Erhöhung oder Verminderung dieser Größen wird auf die chemische Reaktion, welche sich im chemischen Gleichgewicht befindet, ein Zwang ausgeübt. Um diesem Zwang auszuweichen, wird das Gleichgewicht verschoben und ein neues Gleichgewicht eingestellt. Ein chemisches Gleichgewicht ist in Gleichung 4 allgemein formuliert.

$$a\ \mathrm{A}\ (\mathrm{g}) + b\ \mathrm{B}\ (\mathrm{s}) \rightleftharpoons c\ \mathrm{C}\ (\mathrm{g}) + d\ \mathrm{D}\ (\mathrm{g}) \tag{4}$$

Der Lösungsvorgang von Gasen in Flüssigkeiten erfolgt in der Regel exotherm. Eine Änderung der Temperatur kann dabei die Verschiebung des Gleichgewichts hervorrufen und bewirkt beispielsweise bei einer Temperaturerhöhung eine Abnahme der Löslichkeit von Gasen.[8]
Wird innerhalb eines Systems, welches nur aus gasförmigen Reaktionsteilnehmern besteht, der Druck erhöht, entsteht ebenfalls ein Zwang. Dieser wird umgangen, indem das Gleichgewicht in die Richtung mit der geringeren Gesamtanzahl an Teilchen verschoben wird.[8]
Weiterhin kann die Löslichkeit von Gasen durch Anwesenheit von Salzen in einer Lösung verringert werden. Aus diesem Grund ist die Löslichkeit von Sauerstoff im Salzwasser geringer als im Süßwasser.[8]
Die Löslichkeit verschiedener Gase ist variabel und ist sowohl von dem verwendeten Lösungsmittel als auch von dem Gas abhängig. Außerdem ist die Temperatur des Lösungsmittels relevant. Hierfür wurden im Jahre 1991 verschiedene empirisch belegte Gleichungen aufgestellt um die Molenbrüche der verwendeten Gase unter unterschiedlichen Bedingungen zu bestimmen.[9]
Mithilfe von Gleichung 5 und 6 können bei einer Temperatur von 293.15 K und einem Druck unter 200 kPa die Molenbrüche (x_{CO_2}) bestimmt werden.[9]

$$\ln(x_{CO_2}) = -83.277 + \frac{4450.3}{T} + 11.112 \cdot \ln(T) \tag{5}$$

$$\ln(x_{CO_2}) = -7.5561 + \frac{1195.7}{T} - 0.24941 \cdot \ln(T) \tag{6}$$

Mittels der Molenbrüche können Rückschlüsse über die Kohlenstoffdioxid Konzentration in dem jeweiligen Lösungsmittel bestimmt werden. Hierfür wird zunächst die Stoffmenge n des Lösungsmittel, unter Verwendung von Gleichung 7, ermittelt.

$$n(LM) = \frac{m}{M} \tag{7}$$

Dabei entsprechen m die Masse und M die molare Masse.

Daraufhin wird die Stoffmenge n von Kohlenstoffdioxid rechnerisch bestimmt.

$$n(CO_2) = x_{CO_2} \cdot (n(LM) + (n(LM) \cdot x_{CO_2})) \tag{8}$$

Schlussendlich kann anhand der obigen Gleichungen auf die Konzentration c geschlossen werden. Hierfür wird Gleichung 9 verwendet.

$$c(CO_2) = \frac{n(CO_2)}{V(LM)} \tag{9}$$

Mit V als Volumen des verwendeten Lösungsmittels.

2.3 Tracer Produktion/Neutronenaktivierungsanalyse

Die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) dient der qualitativen Gehaltsbestimmung über die γ-Spektrometrie und der quantitativen Analyse der elementaren Zusammensetzung einer Probe. Dabei findet eine Kernreaktion statt. Die Probe ist einer Neutronenquelle ausgesetzt und wechselwirkt mit den Neutronen, sodass über Neutroneneinfang radioaktive Isotope entstehen. Es erfolgt eine Zunahme der Massenzahl.[10] In Abbildung 2 wird die Herstellung eines Compoundkerns über ein Projektil und ein Target mit anschließender Kernumwandlung dargestellt.

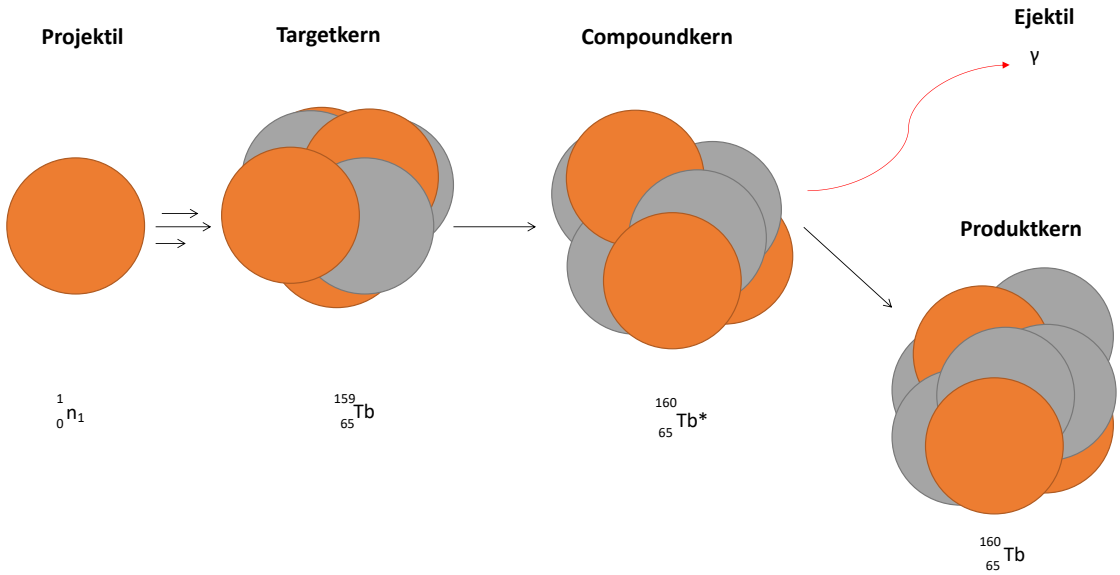


Abbildung 2: Schematische Darstellung der Herstellung eines Compoundkerns mit anschließender Kernumwandlung.[11]

So wird beispielsweise aus dem ^{159}Tb nach Neutronenbeschuss das ^{160}Tb Isotop. Dabei wird die Probe durch Neutronenbeschuss (Gleichung 10) bestrahlt.

$$^{159}\mathrm{Tb}(n,\gamma)^{160}\mathrm{Tb} \tag{10}$$

Das entstandene ^{160}Tb ist radioaktiv und zerfällt in einem β^--Zerfall. Im Falle des gebildete ^{160}Tb findet ein Zerfall zum ^{160}Dy statt.[4]

$$^{160}\mathrm{Tb} \longrightarrow {}^{160}\mathrm{Dy} + \mathrm{e}^- + \overline{\nu_e} \tag{11}$$

Das durch Neutronenbestrahlung hergestellte ^{160}Tb kann, aufgrund seiner Halbwertszeit von $t_{1/2}$=72.3 d als Tracer verwendet werden. Tracer sind radioaktive Isotope, welche zu inaktiven Isotopen hinzugegeben werden, um Informationen über die Ausbeute und Reaktionsgeschwindigkeit zu erhalten. Dabei werden weitere Folgeprozesse durch den Zerfall emittierter ionisierender Strahlung, wie beispielsweise die Emission von γ-Quanten, ausgenutzt. Diese können mittels geeigneten Detektoren detektiert werden.

In Tabelle 1 sind die charakteristischen Energien der γ-Linien und ihre Intensitäten für ^{160}Tb dargestellt.[4]

Tabelle 1: γ-Energien von ^{160}Tb und die zugehörigen Intensitäten.

Energien/keV	Intensität/%
879.48	30.1
298.59	26.1
966.166	25.1
1177.95	14.9
86.79	13.2
962.311	9.81
1271.87	7.44

2.4 γ-Spektrometrie

γ-Strahlung bezeichnet die Emission von energiereicher elektromagnetischer Strahlung aus einem Atomkern. Bei einem γ-Zerfall relaxiert der Kern aus dem angeregten Zustand in den Grundzustand und emittiert dabei ein Photon. Die Emission von γ-Quanten ist ein Sekundärprozess und findet im Anschluss an einen Kernzerfall oder eine Kernreaktion statt.[12] Die Energien des emittierten Photons sind diskret, sie besitzen weder Ruhemasse noch Ladung. Aufgrund dieser Eigenschaften können sie nur durch ihre Wechselwirkung mit der Materie nachgewiesen werden.

γ-Quanten können auf verschiedene Weisen mit Materie wechselwirken. Sie können durch den Photoeffekt, Compton-Effekt oder anhand von Paarbildung wechselwirken.
Bei dem Photoeffekt gibt der γ-Quant seine Energie vollständig auf eines der Hüllenelektronen ab, wodurch das Atom ionisiert wird. Voraussetzung für den Photoeffekt ist, dass die Energie des Photons größer als die Bindungsenergie des Hüllenelektrons sein muss. Das emittierte Elektron besitzt schlussendlich die Energie des γ-Quanten abzüglich seiner Bindungsenergie.[12]
Bei dem Compton-Effekt handelt es sich um die inelastische Streuung eines Photons an einem freien oder nur schwach gebundenen Elektron. Das Photon überträgt einen Teil seiner Energie auf das Elektron, verbleibt mit einer niedrigeren Energie, vergrößert jedoch seine Wellenlänge λ nach der Beziehung:

$$\Delta\lambda = \lambda_e \cdot (1 - cos\Theta) \tag{12}$$

Dabei entsprechen λ_e der Wellenlänge des Elektrons und Θ dem Winkel, um den das Photon abgelenkt wird.[12]
Bei der Paarbildung kann der γ-Quant im elektrischen Feld ein Elektron-Positronen-Paar bilden. Dabei wird der γ-Quant vollständig vernichtet. Voraussetzung hierfür ist, dass die Energie des Photons größer ist als die doppelte Ruhemasse des Elek-

trons ($2m_e c^2 = 1022$ keV).[11] Das entstandene Positron ist ein Antiteilchen und tritt in Wechselwirkung mit einem Elektron, einem Teilchen. Es erfolgt eine gegenseitige Vernichtung, auch als Annihilation bezeichnet, und es werden mindestens zwei γ-Quanten mit je einer Energie von 511 keV in einem Winkel von 180° zueinander emittiert, diese Linie ist im Spektrum sichtbar und charakteristisch für den Annihilationspeak. In selteneren Fällen werden drei γ-Quanten emittiert. Ihre Energieverteilung ist jedoch winkelabhängig.
All diese Sekundärprozesse liefern ein γ-Energiespektrum. Beim Photoeffekt besitzen die Elektronen die gesamte Energie des γ-Quanten und bilden die intensivsten γ-Linien. Diese werden als Photopeak definiert. Bei dem Compton-Effekt werden die γ-Quanten mehrfach an die Elektronen gestreuut und verlieren einen Teil ihrer Energie. Die Energieverteilung der Elektronen, die beim Compton-Effekt emittiert werden, sind unterhalb der Compton-Kante verteilt. Die maximal mögliche Energieabgabe ist vom Streuwinkel Θ abhängig. An der Compton-Kante ist ebenfalls ein unscharfer Peak zu erkennen. Dieser ist der Rückstreupeak. Er besteht aus den γ-Quanten die außerhalb des Detektors in den Detektor zurückgestreuut werden und ist umso Intensiver, je größer die Rückstreuung ist.
Mithilfe von Halbleiterdetektoren und Szintillatoren kann die γ-Strahlung detektiert werden. Dabei basieren die Funkionsweisen beider Detektoren auf dem Bändermodell. Durch ionisierende Strahlung werden die Elektronen angeregt und vom Valenzband in das Leitungsband angehoben.[13]
Als Halbleiterdetektoren werden Halbleitermaterialien, wie zum Beispiel Lithiumdotierte Germanium Kristalle (Ge-Li-Detektoren) verwendet. Bei Ge-Li-Detektoren besteht der Nachteil darin, dass sie eine erhöhte Störleitfähigkeiten aufgrund von Verunreinigungen aufweisen Ein weiterer Nachteil ist, dass diese Detektoren ständig gekühlt sein müssen. Diese Nachteile kann jedoch durch Gebrauch von HPGe-Detektoren (*High Purity Germanium*) reduziert werden.[13]

2.5 α-Spektrometrie

Bei einem α-Zerfall wird ein $^4He^{2+}$-Ion, ein sogenanntes α-Teilchen, emittiert. Dieses α-Teilchen ist aufgrund seiner abgeschlossenen Schale besonders stabil. Es besitzt häufig kinetische Energien zwischen 2–10 MeV.[13] Gleichung 13 stellt den α-Zerfall am Beispiel von ^{241}Am dar.

$$^{241}\mathrm{Am} \longrightarrow {}^{238}\mathrm{Np} + {}^{4}\mathrm{He}^{2+} + \Delta\mathrm{E} \tag{13}$$

Der α-Zerfall findet erst ab einer Massenzahl statt und besitzt diskrete Energien, welche ein Linienspektrum zur Folge haben.

Die α-Teilchen wechselwirken mit Materie. Aufgrund ihrer Ladung und Masse können sie umliegende Materie ionisieren. In Abbildung 3 sind die durch die α-Teilchen erzeugten Ionenpaare in Abhängigkeit von ihrer Energie aufgetragen. Die Teilchen besitzen nur eine geringe Reichweite in der Luft (ca. 4 cm), da sie hohe Wechselwirkungswahrscheinlichkeiten haben.[14]

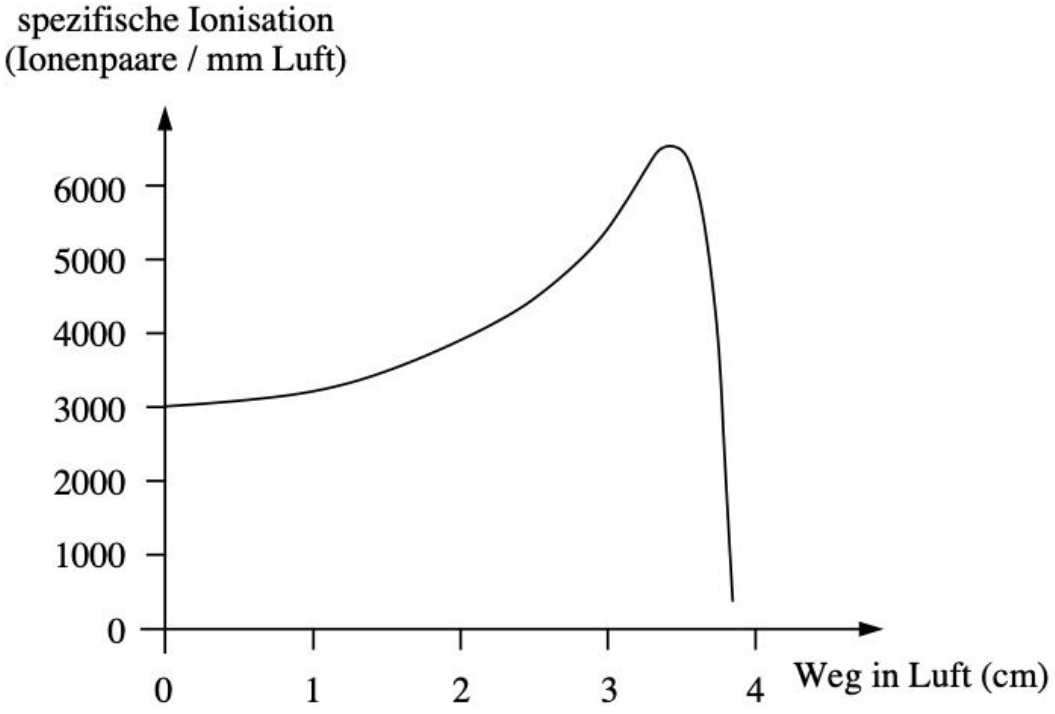


Abbildung 3: Graphische Darstellung der durch die α-Teilchen erzeugten Ionenpaare in Abhängigkeit von ihrer Energie.[15]

Um die Energien von α-Teilchen zu bestimmen, werden typischerweise Oberflächensperrschichtzähler verwendet. Weiterhin muss, aufgrund ihrer geringen Reichweite, die α-Messung im Vakuum stattfinden. Oberflächensperrschichtzähler eignen sich für diese Messungen, weil sie ein dünnes Eintrittsfenster besitzen. Sie bestehen aus einem n-dotierten Si-Kristall, welcher häufig auf einer Seite mit Gold bedampft wird, sodass ein elektrisch leitender Kontakt hergestellt werden kann. Der Kristall befindet sich zwischen zwei Elektroden, einer Anode und einer Kathode. Zwischen der p- und n-Schicht entsteht eine ladungsfreie Zone, einer sogenannten Sperrschicht. Tritt ionisierende Strahlung in die Sperrschicht, werden Ladungsträger freigesetzt, sogenannte Elektronen-Loch-Paare. Diese werden durch die angelegte Spannung getrennt und an den Elektroden gesammelt. Schließlich können Impulsströme in ein digitales Signal umgewandelt und detektiert werden.[16]

2.6 Autoradiographie

Die Autoradiographie (*engl. Radiographic Imaging*, RI) ist eine bildgebende Methode zur Ermittlung der relativen Menge und Verteilung von Radioaktivitäten. Diese Methode wurde bereits im Jahre 1896 von H. Bequerel entdeckt und führte zur Erkenntnis, dass Uran ein radioaktives Element ist. Damals wurden photographische Platten verwendet, die bei ionisierender Strahlung eine permanente Schwarzfärbung verursachten.[17]

Heutzutage werden Lumineszenz-Platten verwendet, die aus aus einer Polymermatrix auf der ein anorganisches Material aus BaFBr:Eu^{2+} ist bestehen. Diese werden auf die Probe platziert und für eine gewisse Zeit bestrahlt. Die ionisierende Strahlung trifft auf die Platte, die Elektronen der Lumineszenz-Platte werden angeregt und vom Valenzband in das Leitungsband angehoben. Nach beendeter Bestrahlungszeit kann die Information in den Lumineszenz-Platte gespeichert werden, weil die Relaxation in das Valenzband verboten ist. Anschließend kann mit Hilfe eines Lasers (HeNe Laser) die Lumineszenz-Platte ausgelesen werden. Die Anregung durch den Laser bewirkt die Lumineszenz des Eu^{2+}. Die Elektronen, die zuvor durch die ionisierende Strahlung in ein höheres Energieniveau angehoben wurden, relaxieren in den Grundzustand und emittieren dabei Photonen. Diese werden durch den Photomultiplier in ein elektrisches Signal umgewandelt, welches anschließend in ein Bild überführt wird.[17] Die Lumineszenz-Platten sind wiederverwendbar und können durch weißes Licht regeneriert werden. Die Funktionsweise der Autoradiographie wird in Abbildung 4 dargestellt.

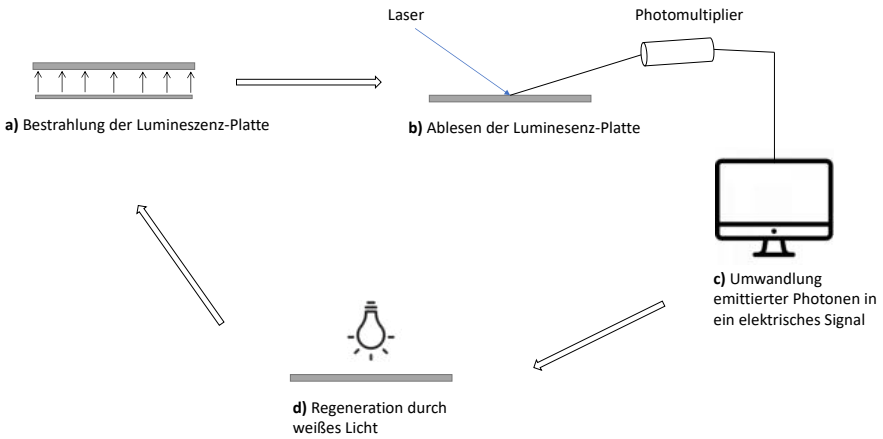


Abbildung 4: Schematische Darstellung der Funktionsweise der Autoradiographie. a) die ionisierende Strahlung trifft auf die Lumineszenz-Platte. b) Auslesen der Lumineszenz-Platte über einen Laser, umwandeln der emittierten Photonen in ein elektrisches Signal. c) Regeneration der Lumineszenz-Platte durch weißes Licht.[17]

2.7 Rasterelektronenmikroskopie/Energiedispersive Röntgenspektroskopie

Die Rasterelektronenmikroskopie (REM) ist eine Methode zur Analyse der Oberflächen von Proben.[17] Dabei können verschiedene Vergrößerungen verwendet werden, um die Oberflächenstruktur zu beobachten. Im Hochvakuum werden mithilfe einer Elektronenquelle, bestehend aus einem gebogenen Wolframdraht oder einem Lanthanhexaboridkristall (LaB_6), Primärelektronen (PE) erzeugt. Diese Primärelektronen werden in einem elektrischen Feld beschleunigt und mithilfe von Magnetfeldern wird der Elektronenstrahl abgelenkt und auf verschiedene Punkte der Proben fokussiert. Durch das Rastern des Elektronenstrahls über die Probe, werden die Ortsinformationen erhalten. Hierfür wechselwirkt der Elektronenstrahl auf verschiedene Weise mit der Oberfläche. Beim rastern der Probe werden Sekundärelektronen (SE) gestreut, welche Energien unterhalb 50 eV besitzen. Sie ermöglichen Aussagen über die Topografie der Probe indem die Sekundärelektronen, die unmittelbar an der Probenoberfläche gestreut werden, detektiert werden. Neben den Sekundärelektronen entstehen auch die Rückstreuelektronen (BSE). Dabei handelt es sich um zurückgestreute Elektronen, also Primärelektronen, die an den Atomkernen reflektiert werden. Sie besitzen Energien im eV-Bereich und liefern Informationen über die chemische Zusammensetzung. Die Anzahl an zurückgestreuten Elektronen ist dabei Abhängig von der Ordnungszahl des untersuchten Elements. Das bedeutet, dass die untersuchten Bereiche umso heller erscheinen, je schwerer das Element ist. In der nachfolgenden Abbildung 5 sind die entstehenden Signale dargestellt.[18]

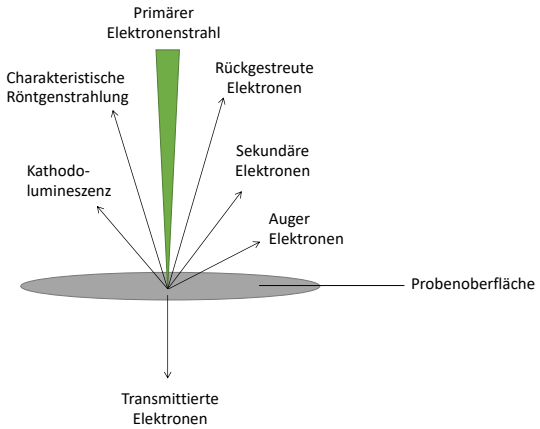


Abbildung 5: Schematische Darstellung der entstehenden Signale bei der Rasterelektronenmikroskopie.

Weiterhin kann der Elektronenstrahl die Elemente auch zur Röntgenfluoreszenz an-

regen. Diese Röntgenfluoreszenz kann für die energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) verwendet werden, da jedes Element spezifische Röntgenlinien emittiert, welche detektiert werden können. Dabei wandelt die Software die detektierten Röntgenlinien in ein Spektrum um, sodass eine Aussage über die elementare Probenzusammensetzung möglich ist.[18]

Versuchsdurchführung

Die im Verlauf der Arbeit verwendeten Alkohole (2-Methyl-1-propanol und 2-Propanol) besitzen einen Wassergehalt von weniger als 3 ppm (s. Anhang A).[19, 20]

Die Versuche wurden unter einer Argonatmosphäre innerhalb der Glovebox durchgeführt. Dabei wurde die Konzentration von H_2O und O_2 über den gesamten Prozess verfolgt und dokumentiert. Um den Einfluss der Schutzgasatmospäre($H_2O < 1$ ppm, O_2 = 1-4 ppm) auf das Plating zu beobachten wurden einige Versuche mit ausgewählten Parametern außerhalb der Glovebox durchgeführt.

Alle hergestellten Reaktionslösungen wurden innerhalb der Glovebox angefertigt und für die ausgewählten Versuche aus der Glovebox ausgeschleust. Lediglich die gesättigte CO_2-Lösung wurde außerhalb der Glovebox erstellt und im Anschluss eingeschleust. Dabei sollte angemerkt werden, dass das Einschleusen eine Verringerung des Umgebungsdrucks verursacht, welcher möglicherweise den CO_2-Gehalt der Proben reduzieren könnte.

Als elektrochemische Zelle wurde eine galvanische Zelle, mit einer Kathodenfläche von 0.28 cm^2, einem Durchmesser von 0.6 cm und einer konstanten Stromstärke von 0.20 mA/cm^2 verwendet. Während jeder Durchführung wurde die Qualität der Schutzgasatmosphäre (H_2O und O_2), die Anfangsspannung (U_A) und die Endspannung (U_E) notiert (s. Tabelle 7). Diese haben jedoch keinen Einfluss auf die Filmqualität und können vernachlässigt werden. In Abbildung 6 ist die verwendete elektrochemische Zelle abgebildet.

Abbildung 6: Links: Foto der aufgebauten Zelle. 1: Zelle, 2: Befestigung, 3: Basis. Rechts: Foto der Zellteile.

Das Plating wurde, wenn nicht anders erwähnt, in einem Zeitraum von 2 Stunden durchgeführt. Weiterhin sind alle hergestellten Reaktionslösungen mit ihren jeweiligen Volumina, Ort der Abscheidungen und erwarteten Massenbelegungen in Tabelle 2 dargestellt.

3.1 Herstellung der ^{160}Tb-Stammlösung

Zunächst wurde eine 10 mL Alkoholmischung (9 mL Isobutanol und 1 mL Isopropanol) hergestellt und mit $TbCl_3 \cdot 6\ H_2O$ versetzt. 1 mL dieser Lösung wurden entnommen, am 26.10.21 im TRIGA-Reaktor zur Herstellung von ^{160}Tb als Tracer für einen Zeitraum von 6 h bestrahlt und erneut in die Alkoholmischung überführt. Diese hergestellte Lösung wird im Verlauf der Arbeit als Stammlösung (SL) definiert.

3.2 Herstellung der Reaktionslösungen

Zur Herstellung der Reaktionslösungen (RL) wurden 150 μL der Stammlösung mit einer Alkoholmischung (9 mL Isopropanol und 1 mL 2-Methyl-1-propanol) auf 10 mL aufgefüllt. Alle verwendeten Reaktionslösungen wurden stets mit der gleichen Alkoholmischung hergestellt.

3.3 Versuche innerhalb der Glovebox

3.3.1 Bestimmung des Einflusses von D_2O in Abwesenheit von CO_2

Während der Versuchsdurchführung wurde anstelle von Wasser (H_2O) D_2O verwendet. Dieses lag bereits in der Glovebox vor und wurde ohne weitere Aufarbeitungsschritte verwendet.
Zur Herstellung der verwendeten Reaktionslösungen (RL) wurden 150 μL der Stammlösung und der verwendeten Menge an D_2O mit der Alkoholmischung auf 10 mL aufgefüllt. Die Bestimmung des Einflusses von deuteriertem Wasser (D_2O) erfolgte durch Variation der verwendeten Volumina an D_2O innerhalb der Reaktionslösungen.

3.3.2 Bestimmung des Einflusses von CO_2 in Abwesenheit von D_2O

150 μL der Stammlösung und eine variable Menge an gesättigter Kohlenstoffdioxid-Lösung (0.082 mol$\cdot$L^{-1}) wurden mit einer Alkoholmischung auf 10 mL aufgefüllt.

Anschließend wurde zur Herstellung der gesättigten CO_2-Lösung zunächst eine 10 mL Alkoholmischung angefertigt und aus der Glovebox geschleust. In diese Mischung wurde CO_2 eingeleitet und es wurde angenommen, dass nach 15 Minuten eine gesättigte CO_2-Lösung hergestellt wurde. Im Anschluss wurden bekannte Mengen der gesättigten CO_2-Lösung mit der gleichen Menge an Alkoholmischung der Reaktionslösungen ausgetauscht und so der CO2-Gehalt innerhalb der Reaktionslösungen sukzessiv erhöht.

Die für die Durchführung benötigte Konzentration an CO_2 wurden zunächst mithilfe der Gleichungen 5 und 6 die Molenbrüche rechnerisch bestimmt.
Für 1-Propanol ergibt sich somit:

$$\ln(x_{CO_2}) = -83.277 + \frac{4450.3}{293.15\ \mathrm{K}} + 11.112 \cdot \ln(293.15\ \mathrm{K}) = 0.0069 \qquad (14)$$

Die Stoffmenge n des Lösungsmittels konnte mit Hilfe von Gleichung 7 bestimmt werden und beträgt 0.013 mol. Somit ergibt sich nach Gleichung 15 folgender Wert für $n(CO_2)$:

$$n(CO_2) = 0.0069 \cdot (0.013\ \mathrm{mol} + (0.013\ \mathrm{mol} + 0.0069)) = 0.000090\ \mathrm{mol} \qquad (15)$$

Da jeweils 1 mL des 1-Propanols zur Herstellung der Alkoholmischungen verwendet wurden, kann anhand von Gleichung 9 die Konzentration $c(\mathrm{CO_2, IP}) = 0.090\ \mathrm{mol{\cdot}L^{-1}}$ ermittelt werden.
Analog kann die Konzentration c an CO_2 in 2-Methyl-1-propanol ermittelt werden. Diese beträgt $0.082\ \mathrm{mol{\cdot}L^{-1}}$.

Da es sich bei der verwendeten Lösung um eine Alkoholmischung in einem 9:1 (Isobutanol : Isopropanol) Verhältnis handelt, muss dies zusätzlich in den Berechnungen der Kohlenstoffdioxid Konzentration einbezogen werden. Anhand von Gleichung 16 wird die Konzentration bestimmt.

$$c(\mathrm{CO_2}) = \frac{(c(\mathrm{CO_{2,IB}}) \cdot 9) + c(\mathrm{CO_{2,IP}})}{10} = 0.082\ \mathrm{mol \cdot L^{-1}} \qquad (16)$$

3.3.3 Bestimmung des gemeinsamen Einflusses von D_2O und CO_2

150 μL der Stammlösung und verschiedene Volumina an D_2O und CO_2 wurden mit einer Alkoholmischung (9 : 1) auf 10 mL aufgefüllt. Für die Herstellung einer

gesättigten CO_2-Lösung wurde die gleiche Vorgehensweise, wie in Kapitel 3.3.2 angewendet. Der CO_2-Gehalt wurde innerhalb der Reaktionslösungen sukzessiv erhöht.

3.3.4 Abscheidungen höherer Massenbelegungen

Um eine Abscheidung mit einer höheren Massenbelegung von 1500 $\mu g/cm^2$ zu erreichen, wurden 450 μL der ^{160}Tb-Stammlösung in die Reaktionslösungen gegeben. Die Vorgehensweise zur Herstellung der Reaktionslösungen verlief analog zu den bisherigen Versuchen (Kapitel 3.2). Die verwendeten Volumina an D_2O betrugen jeweils 50 oder 75 μL. Die Abscheidungen wurden unter CO_2-Ausschluss durchgeführt-
Die Abscheidung der RL-48 wurde für einen Zeitraum von vier Stunden durchgeführt. Dabei wurden nach jeder verstrichenen Stunde 100 μL der Reaktionslösung entnommen und in jeweils ein PP-Röhrchen überführt.

3.3.5 Abscheidung von ^{160}Tb mit Zugabe von ^{241}Am

Zur Herstellung der Reaktionslösungen wurden 150 μL der Stammlösung mit der jeweiligen Alkoholmischung auf 10 mL aufgefüllt. Die ^{241}Am-Stammlösung war in Salpetersäure (HNO_3) gelöst. Zur Herstellung der ^{241}Am-Lösung wurden 10 μL aus der Stammlösung entnommen und eingedampft. Daraufhin wurde das eingedampfte ^{241}Am in Wasser gelöst. Dieser Vorgang wurde insgesamt drei mal durchgeführt. Zum Schluss wurde das ^{241}Am in 1 μL der Alkoholmischung gelöst und zur Reaktionslösung hinzugegeben.

3.4 Versuche außerhalb der Glovebox

3.4.1 Bestimmung des Einflusses von D_2O in Abwesenheit von CO_2

Um den Einfluss der Schutzgasatmosphäre auf das Plating zu beobachten, wurden die Versuche mit D_2O (50, 75 und 100 μL) erneut außerhalb der Glovebox durchgeführt. Die dabei verwendeten Lösungen (Reaktionslösung (RL), Stammlösung (SL) und D_2O-Lösung) wurden innerhalb der Glovebox angefertigt und für die Abscheidungen aus der Glovebox entnommen.
Zur Herstellung der Reaktionslösungen wurden 150 μL der Stammlösung mit der Alkoholmischung auf 10 mL aufgefüllt. Zusätzlich wurden sie mit einem ansteigenden Gehalt an D_2O versetzt (Vergleich Kapitel 3.3.2).

3.4.2 Bestimmung des gemeinsamen Einflusses von D_2O und CO_2

Zur Beobachtung des Einflusses der Schutzgasatmosphäre, wurden die Versuche mit den Parametern D_2O (50, 75 und 100 μL) und CO_2 (1, 2 und 4 mL) außerhalb der Glovebox wiederholt. Die verwendeten Reaktionslösungen wurden analog zu Kapitel 3.2 innerhalb der Glovebox hergestellt und für die Abscheidung aus der Glovebox entnommen. Für die Herstellung der gesättigten CO_2-Lösungen wurde die gleiche Vorgehensweise, wie in Kapitel 3.3.4 verwendet. Es wurden pro Versuchsreihe jeweils drei Reaktionslösungen mit konstantem D_2O-Gehalt und unterschiedlichen CO_2-Gehältern angefertigt. Der CO_2-Gehalt wurde, wie in Kapitel 3.3.4, innerhalb der Reaktionslösungen sukzessiv erhöht.

3.5 γ-Spektrometrie

Zur Gehaltsbestimmung wurden jeweils 100 μL vor und 500 μL nach der Abscheidung entnommen und in PP-Röhrchen überführt. Im Anschluss wurden die entnommenen 100 μL Aliquote mit H_2O auf 500 μL aufgefüllt. Diese wurden in die Probenhalterung gestellt und über einen Zeitraum von zwei Stunden gemessen.

3.6 α-Spektrometrie

Zur Bestimmung der Aktivität des ^{241}Am wurden jeweils 100 μL vor und 100 μL nach dem Plating entnommen, in jeweils ein PP-Röhrchen überführt und anschließend auf einer Titanfolie eingedampft. Die Messdauer betrug jeweils 30 Minuten.

3.7 Messwerte

In Tabelle 2 sind alle verwendeten Reaktionslösungen (RL), die Volumina an Stammlösung (SL), D_2O, CO_2 und ^{241}Am, die Sättigung an CO_2, die Aktivität von ^{241}Am, die Reaktionsdauer und der Reaktionsort und die erwartete Massenbelegung dargestellt.

Tabelle 2: Reaktionslösungen (RL), ihre Volumina an Stammlösung (SL), D_2O, CO_2-haltiger Lösung (Lsg.) und ^{241}Am, die ^{241}Am-Aktivität, die CO_2-Sättigung, die Reaktionsdauer und der Reaktionsort und die erwartete Massenbelegung (d).

RL	V(SL)/ μL	V(D_2O)/ μL	V(CO_2)/ mL	Sättigung CO_2/ %	V(^{241}Am)/ μL	A(^{241}Am) kBq	t/ h	Ort	d/ $\mu g/cm^2$
RL-1	150	0	0	0	0	0	2	GB	500±0.26
RL-2	10	0	0	0	0	0	2	GB	500±0.25
RL-3	150	1000	0	0	0	0	2	GB	500±0.081
RL-4	150	15	0	0	0	0	2	GB	500±0.23
RL-5	150	30	0	0	0	0	2	GB	500±0.23
RL-6	150	50	0	0	0	0	2	GB	500±0.13
RL-7	150	100	0	0	0	0	2	GB	500±0.15
RL-8	150	75	0	0	0	0	2	GB	500±0.26
RL-9	150	0	1	10	0	0	2	GB	500±0.10
RL-10	150	0	2	20	0	0	2	GB	500±0.31
RL-11	150	0	4	40	0	0	2	GB	500±0.31
RL-12	150	0	6	60	0	0	2	GB	500±0.18
RL-13	150	0	8	80	0	0	2	GB	500±0.15
RL-14	150	0	10	100	0	0	2	GB	500±0.25
RL-15	150	50	1	10	0	0	2	GB	500±0.77
RL-16	150	50	2	20	0	0	2	GB	500±1.48
RL-17	150	50	4	40	0	0	2	GB	500±1.71
RL-18	150	50	6	60	0	0	2	GB	500±1.83
RL-19	150	50	8	80	0	0	2	GB	500±0.12
RL-20	150	75	1	10	0	0	2	GB	500±0.15
RL-21	150	75	2	20	0	0	2	GB	500±1.82
RL-22	150	75	4	40	0	0	2	GB	500±10.49
RL-23	150	75	6	60	0	0	2	GB	500±10.94
RL-24	150	75	8	80	0	0	2	GB	500±5.50
RL-25	150	100	1	10	0	0	2	GB	500±6.97
RL-26	150	100	2	20	0	0	2	GB	500±13.23
RL-27	150	100	4	40	0	0	2	GB	500±6.41
RL-28	150	100	6	60	0	0	2	GB	500±17.29
RL-29	150	100	8	80	0	0	2	GB	500±0.82
RL-30	150	50	0	0	0	0	2	außerhalb	500±0.82
RL-31	150	75	0	0	0	0	2	außerhalb	500±2.73
RL-32	150	100	0	0	0	0	2	außerhalb	500±0.72
RL-33	150	50	1	10	0	0	2	außerhalb	500±0.81
RL-34	150	50	2	20	0	0	2	außerhalb	500±0.75
RL-35	150	50	4	40	0	0	2	außerhalb	500±7.90
RL-36	150	75	1	10	0	0	2	außerhalb	500±15.76
RL-37	150	75	2	20	0	0	2	außerhalb	500±0.93
RL-38	150	75	4	40	0	0	2	außerhalb	500±1.03
RL-39	150	100	1	10	0	0	2	außerhalb	500±0.95
RL-40	150	100	2	20	0	0	2	außerhalb	500±1.89
RL-41	150	100	4	40	0	0	2	außerhalb	500±0.73
RL-42	450	50	0	0	0	0	2	GB	1500±12.58
RL-43	450	75	0	0	0	0	2	GB	1500±11.25
RL-46	150	50	0	0	10	kommt	2	GB	500±0.48
RL-47	150	75	0	0	10	kommt	2	GB	500±0.47
RL-48	450	75	0	0	0	0	4	GB	1500±34.52

Ergebnisse

Von den hergestellten Targets wurden Autoradiographien aufgenommen, indem eine Lumineszenz-Platte für 30 Minuten bestrahlt wurde. Weiterhin wurden von einzelnen Target-Oberflächen elektronenmikroskopische Aufnahmen gemacht. In den Tabellen 3 und 4 sind die Aufnahmen der Targets mit verschiedenen Volumina an D_2O und CO_2 dargestellt. Weiterhin sind in den Abbildungen **29**, **31** und **32** in Tabelle 4 die Targets mit einer höheren Massenbelegung abgebildet. Die Abbildungen **28** und **30** sind die Targets der Proben, in denen ^{241}Am zugefügt wurde.
Zum Vergleich wurden die Reaktionslösungen mit der gleichen Auswahl an Parametern nebeneinander dargestellt. Es wurden sowohl Reaktionslösungen innerhalb, als auch außerhalb der Glovebox (**GB**) abgeschieden. Diese sind in den Tabellen 3 und 4 erwähnt. Weiterhin wurden die Aufnahmen nur bis zu einem Volumen von 4 mL einer gesättigten CO_2-Lösung dargestellt. Sowohl die dargestellten Aufnahmen, als auch Aufnahmen der Proben mit höheren Volumina befinden sich im Anhang.

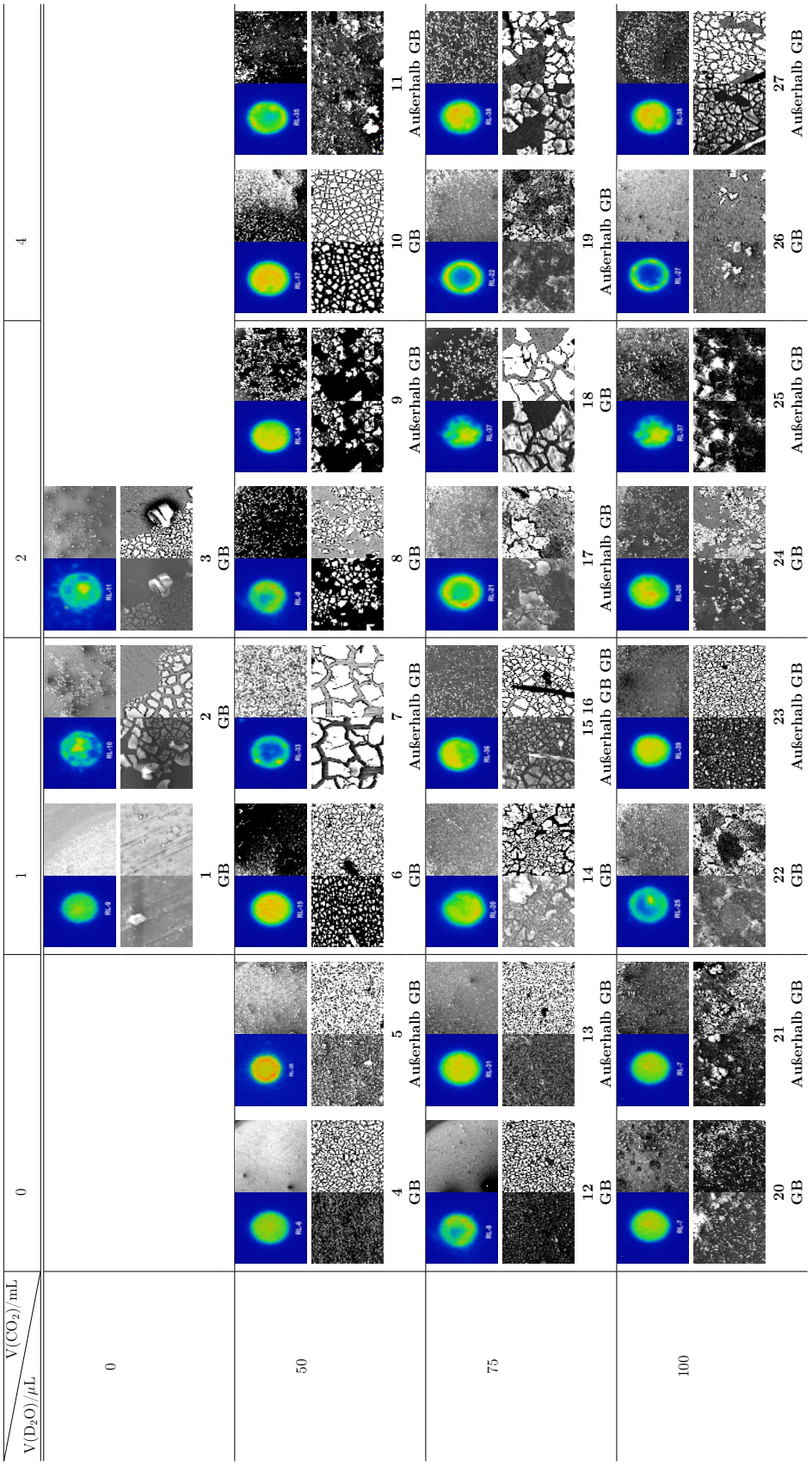


Tabelle 3: Alle aufgenommenen Autoradiogramme und elektronenmikroskopischen Aufnahmen. Von links oben nach rechts unten: jeweils ein Autoradiogramm, eine 20-fach vergrößerte SE-Aufnahme und 300-fach vergrößerte SE-und BSE-Aufnahmen.

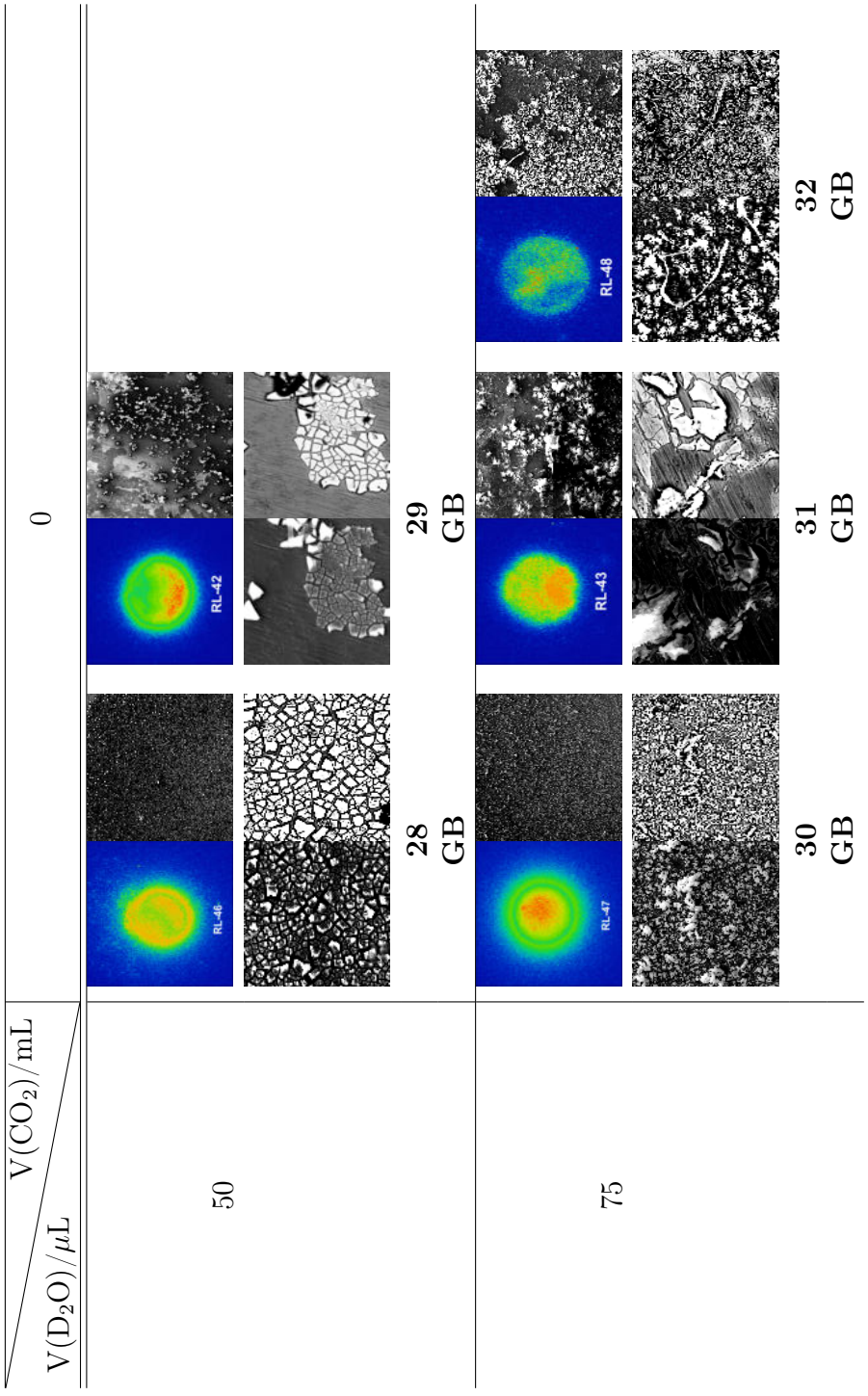


Tabelle 4: Alle aufgenommenen Autoradiogramme und elektronenmikroskopischen Aufnahmen. Von links oben nach rechts unten: ein Autoradiogramm, eine 20-fach vergrößerte SE-Aufnahme und 300-fach vergrößerte SE-und BSE-Aufnahmen.

4.1 Einfluss von D_2O in Abwesenheit von CO_2

In Tabelle 3 (Abbildungen **4**, **5**, **12**, **13**, **20** und **21**) sind die Autoradiogramme und elektronenmikroskopischen Aufnahmen der Proben mit unterschiedlichen Volumina an D_2O abgebildet. Dabei wurden **4**, **12** und **20** innerhalb und **5**, **13** und **21** außerhalb der Glovebox abgeschieden.
Die Autoradiogramme zeigen die Verteilung der Aktivität innerhalb der Target-Oberflächen. Insgesamt ist eine homogene Verteilung erkennbar.
Weiterhin sind vergrößerte Ausschnitte der elektronenmikroskopischen Aufnahmen abgebildet. Diese zeigen in den Abbildungen **2** und **3** Risse auf der Target-Oberfläche.

4.2 Gemeinsamer Einfluss von D_2O und CO_2

Die Abbildungen **6** bis **11** aus Tabelle 3 zeigen die hergestellten Proben innerhalb und außerhalb der Glovebox mit einem konstanten D_2O Gehalt von 50 μL und einer variablen Menge an gesättigter CO_2-Lösung. In den Autoradiogrammen ist die Verteilung der Aktivitäten auf den Target-Oberflächen zu erkennen. Die Verteilung wird bei den Oberflächen der Proben mit höheren Mengen an D_2 und CO_2 inhomogener. Die vergrößerten Ausschnitte der elektronenmikroskopischen Aufnahmen zeigen die Target-Mitte der jeweiligen Probe. Alle Abbildungen zeigen eine rissige Oberfläche. Weiterhin ist in Abbildung **8** die Verteilung des abgeschiedenen Terbiums inhomogen.

Weiterhin sind in Tabelle 3 vergrößerte Ausschnitte Rasterelektronenmikroskopische-Aufnahmen und Autoradiogramme in den Abbildungen **14** bis **19** Proben mit einem konstanten D_2O Gehalt von 75 μL und einer variablen Menge an gesättigter CO_2-Lösung abgebildet. Die Abbildungen **14**, **16** und **18** sind die Proben die innerhalb der Glovebox abgeschieden wurden, während **15**, **17** und **19** außerhalb der Glovebox abgeschieden wurden. Die aufgenommenen Autoradiogramme zeigen eine zunehmend inhomogene Verteilung der Aktivität innerhalb der Oberflächen bei erhöhter CO_2 Konzentration. Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen zeigen in allen Abbildungen Risse und eine inhomogene Verteilung des abgeschiedenen Terbiums in Abbildung **19**.

Weiterhin sind in den Abbildungen **21** bis **27** in Tabelle 3 die Proben mit einem konstanten D_2O Gehalt von 100 μL und unterschiedlichen Mengen an gesättigter CO_2-Lösung abgebildet. Die in den Abbildungen **22**, **24** und **26** dargestellten Proben wurden innerhalb der Glovebox abgeschieden, während die in den Abbildungen **23**, **25** und **27** abgebildeten Proben außerhalb der Glovebox abgeschieden wurden.

die Autoradiogramme zeigen auf der Target-Oberfläche von RL-39 (Abbildung **23** eine homogene Verteilung der Aktivität, während die anderen Proben eine inhomogene Verteilung auf den Oberflächen aufweisen.
Die vergrößerten Ausschnitte der elektronenmikroskopischen Aufnahmen zeigen in allen Proben Risse auf den Target-Oberflächen und eine inhomogene Verteilung von Terbium in den 300-fach vergrößerten SE-und BSE-Aufnahmen in Abbildung **26**.

4.3 Abscheidung von ^{160}Tb mit Zugabe von ^{241}Am

Die Abbildungen **28** und **30** in Tabelle 4 zeigen die Autoradiogramme und vergrößerten Ausschnitte der elektronenmikroskopischen Aufnahmen der Proben, in denen ^{241}Am hinzugegeben wurde.
In Abbildung **28** beinhaltet die Probe ein Volumen von 50 μL D_2O. Das Autoradiogramm zeigt eine homogene Verteilung der Aktivität auf der Target-Oberfläche. Weiterhin sind in den 300-fach vergrößerten SE-und BSE-Aufnahmen Risse auf der Oberfläche zu sehen.
Die Probe in Abbildung **30** hat einen D_2O Gehalt von 75 μL. Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen zeigen in den 300-fach vergrößerten SE-und BSE-Aufnahmen zeigen spröde Target-Oberflächen. Weiterhin ist die Aktivität homogen auf der Oberfläche verteilt.

In Abbildung 139 ist das α-Spektrum der verwendeten ^{241}Am-Stammlösung dargestellt.

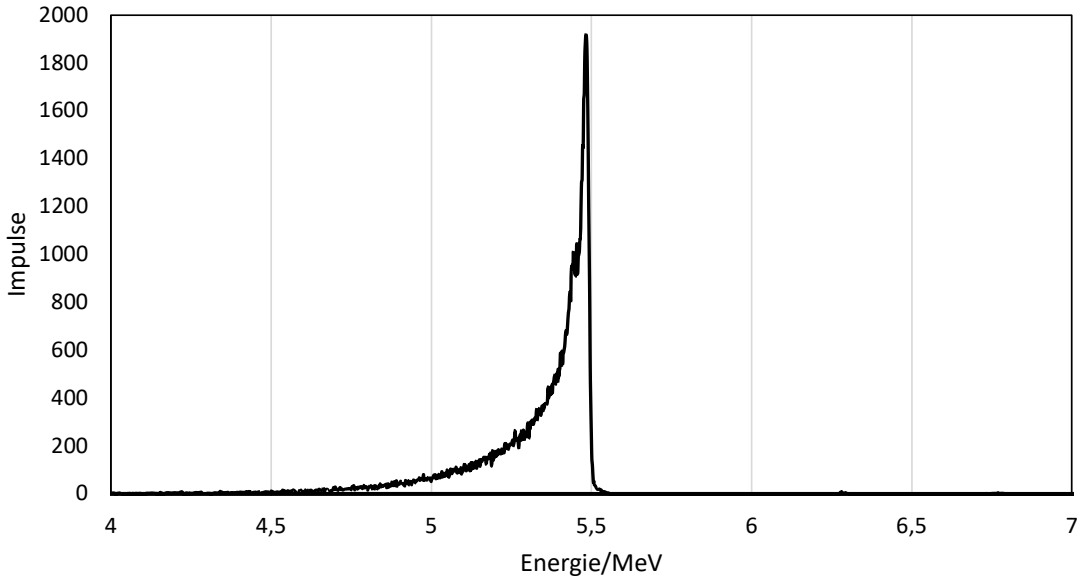


Abbildung 7: α-Spektrum von ^{241}Am.

Das Spektrum der verwendeten Stammlösung zeigt die Energien der durch den Zerfall entstehenden α-Teilchen. Auffällig dabei ist das *tailing* der α-Linie in den niederenergetischen Bereich. Die Halbwertsbreite (FWHM) beträgt 0.82 MeV.

4.4 Abscheidungen höheren Massenbelegungen

Die Abbildungen **30** und **31** in Tabelle 4 zeigen die Autoradiogramme und elektronenmikroskopischen Aufnahmen der Proben mit einem D_2O Gehalt von 75 μL. Die Autoradiogramme zeigen eine inhomogene Verteilung der Aktivität innerhalb der Target-Oberfläche. Weiterhin sind in den SE-und BSE-Aufnahmen erhöhte Mengen an Terbium auf der Oberfläche.

Aus RL-48 (75 μL D_2O) wurden während einer Reaktionsdauer von vier Stunden, in einem Intervall von je einer Stunde, insgesamt vier Aliquot entnommen. Die Ausbeuten der Aliquote wurden berechnet und in Tabelle **??** dargestellt.

Die zeitliche Entwicklung der Ausbeute ist graphisch in Abbildung 8 abgebildet.

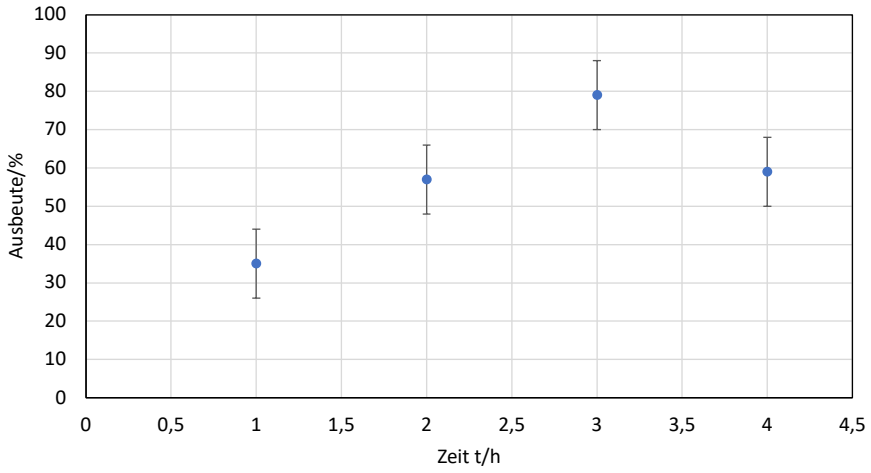


Abbildung 8: Graphische Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Ausbeute von RL-48.

4.5 Messwerte

In Abbildung 5 sind die Reaktionslösungen, die verwendeten Volumina an Stammlösung, D_2O, gesättigter CO_2-Lösung und ^{241}Am dargestellt. Weiterhin die Aktivität von ^{241}Am, die CO_2-Sättigung, die Reaktionsdauer, der Reaktionszeitraum, die tatsächliche Massenbelegung und die Ausbeute der Reaktionslösungen nach vollendeter Abscheidung.

Tabelle 5: Reaktionslösungen (RL), ihre Volumina an Stammlösung (SL), D_2O, CO_2-haltiger Lösung (Lsg.) und ^{241}Am, die ^{241}Am-Aktivität, die CO_2-Sättigung, die Reaktionsdauer und der Reaktionsort, die tatsächliche Massenbelegung (d) und die Ausbeute der RL.

RL	V(SL)/ μL	V(D_2O)/ μL	V(CO_2)/ mL	Sättigung CO_2/ %	V(^{241}Am)/ μL	A(^{241}Am) kBq	Zeit/ h	Ort	d/ $\mu g/cm^2$	Ausbeute/ %
RL-1	150	0	0	0	0	0	2	GB	500±0.26	00.05
RL-2	150	10	0	0	0	0	2	GB	500±0.25	0±0.05
RL-3	150	1000	0	0	0	0	2	GB	500±0.081	74±0.02
RL-4	150	15	0	0	0	0	2	GB	500±0.23	5±0.05
RL-5	150	30	0	0	0	0	2	GB	500±0.23	20±0.05
RL-6	150	50	0	0	0	0	2	GB	500±0.13	43±0.04
RL-7	150	100	0	0	0	0	2	GB	500±0.15	77±0.03
RL-8	150	75	0	0	0	0	2	GB	500±0.26	68±0.03
RL-9	150	0	1	10	0	0	2	GB	500±0.10	0±0.05
RL-10	150	0	2	20	0	0	2	GB	500±0.31	81±0.02
RL-11	150	0	4	40	0	0	2	GB	500±0.31	60±0.06
RL-12	150	0	6	60	0	0	2	GB	500±0.18	-
RL-13	150	0	8	80	0	0	2	GB	500±0.15	-
RL-14	150	0	10	100	0	0	2	GB	500±0.25	-
RL-15	150	50	1	10	0	0	2	GB	500±0.77	97±0.15
RL-16	150	50	2	20	0	0	2	GB	500±1.48	97±0.30
RL-17	150	50	4	40	0	0	2	GB	500±1.71	97±0.34
RL-18	150	50	6	60	0	0	2	GB	500±1.83	97±0.37
RL-19	150	50	8	80	0	0	2	GB	500±0.12	94±0.30
RL-20	150	75	1	10	0	0	2	GB	500±0.15	16±0.03
RL-21	150	75	2	20	0	0	2	GB	500±1.82	82±2.53
RL-22	150	75	4	40	0	0	2	GB	500±10.49	58±2.10
RL-23	150	75	6	60	0	0	2	GB	500±10.94	-
RL-24	150	75	8	80	0	0	2	GB	500±5.50	-
RL-25	150	100	1	10	0	0	2	GB	500±6.97	61±1.39
RL-26	150	100	2	20	0	0	2	GB	500±13.23	0±2.65
RL-27	150	100	4	40	0	0	2	GB	500±6.41	73±1.28
RL-28	150	100	6	60	0	0	2	GB	500±17.29	23±3.46
RL-29	150	100	8	80	0	0	2	GB	500±0.82	96±0.14
RL-30	150	50	0	0	0	0	2	außerhalb	500±0.82	94±0.55
RL-31	150	75	0	0	0	0	2	außerhalb	500±2.73	97±0.16
RL-32	150	100	0	0	0	0	2	außerhalb	500±0.72	-
RL-33	150	50	1	10	0	0	2	außerhalb	500±0.81	97±0.16
RL-34	150	50	2	20	0	0	2	außerhalb	500±0.75	-
RL-35	150	50	4	40	0	0	2	außerhalb	500±7.90	74±1.58
RL-36	150	75	1	10	0	0	2	außerhalb	500±15.76	0±0.15
RL-37	150	75	2	20	0	0	2	außerhalb	500±0.93	97±0.19
RL-38	150	75	4	40	0	0	2	außerhalb	500±1.03	-
RL-39	150	100	1	10	0	0	2	außerhalb	500±0.95	-
RL-40	150	100	2	20	0	0	2	außerhalb	500±1.89	-
RL-41	150	100	4	40	0	0	2	außerhalb	500±0.73	-
RL-42	450	50	0	0	0	0	2	GB	800±6.71	54±0.84
RL-43	450	75	0	0	0	0	2	GB	800±6.00	57±0.75
RL-46	150	50	0	0	10	0.3±0.03	2	GB	500±0.48	99±0.10
RL-47	150	75	0	0	10	0.4±0.04	2	GB	500±0.47	88±0.09
RL-48	450	75	0	0	0	0	0	GB	800±18.41	100±3.26
RL-48	450	75	0	0	0	0	1	GB	800±18.41	59±2.50
RL-48	450	75	0	0	0	0	2	GB	800±18.41	35±3.36
RL-48	450	75	0	0	0	0	3	GB	800±18.41	57±3.60
RL-48	450	75	0	0	0	0	4	GB	800±18.41	79±2.30

Diskussion

5.1 Einfluss von D_2O in Abwesenheit von CO_2

5.1.1 Innerhalb der Glovebox

Im Verlauf der Versuchsdurchführung wurde eine optische Veränderung der Targets bei Erhöhung der zugeführten Menge an D_2O ausgemacht. Bereits bei einem Volumen von 100 μL D_2O konnte eine spröde und rissige Target-Oberfläche beobachtet werden (Tabelle 3, Abbildung **20**). Zwar zeigt das aufgenommene Autoradiogramm in Abbildung **20** eine homogene Verteilung der Aktivität, jedoch kann aus den Elektronenmikroskopischen Aufnahmen entnommen werden, dass sich das Terbium von der Oberfläche löst.

Die ideale Menge an D_2O beträgt 75 μL. Sie erzielt hohe Ausbeuten von 68±0.03 % und einen qualitativ hochwertigen Film. Ebenso zeigen die Elektronenmikroskopischen Aufnahmen in Tabelle 3 Abbildung **12** die erfolgreiche, homogene Abscheidung des Terbiums auf der Target-Oberfläche. Insbesondere die BSE-Aufnahme zeigt, dass das Terbium aufgrund seiner höheren molaren Masse Elektronen stärker reflektiert, als die darunterliegende Titanfolie. Weiterhin ist das *Mud-cracking* auf der Target-Oberfläche erkennbar.

50 μL D_2O zeigt eine homogene Verteilung der Aktivität in dem aufgenommenen Autoradiogramm und den SE-und BSE-Aufnahmen der Target-Oberfläche. Jedoch ist die erzielte Ausbeute mit 43±0.04 % vergleichsweise geringer als bei einer Menge von 75 μL D_2O.

5.1.2 Außerhalb der Glovebox

Die Proben aus Abbildung **5** (50 μL D_2O), **13** (75 μL D_2O), **21** (100 μL D_2O) wurden außerhalb der Glovebox abgeschieden. In den jeweiligen Abbildungen sind die Autoradiogramme der Target-Oberflächen der jeweiligen Proben abgebildet. Diese zeigen eine homogene Verteilung der Aktivitäten auf den Filmen.
Analog zu den Proben innerhalb der Glovebox, war die ideale Menge 75 μL D_2O. Diese Probe erzielte eine Ausbeute von bis zu 97±0.16 % und eine gleichmäßige Verteilung auf der Target-Oberfläche, die auch in den SE-und BSE-Aufnahmen in Tabelle 3 Abbildung **13** gezeigt wird. Weiterhin ist in der BSE-Aufnahme das *Mudcracking* ersichtlich.

Die Abbildung **13** in Tabelle 3 zeigen die SE-und BSE-Aufnahmen der Target-Oberfläche von einer Probe mit 100 μL D_2O. Darin ist zwar eine homogene Verteilung zu erkennen, jedoch löst sich Terbium bereits von der Oberfläche und lässt auf eine schlechte Filmqualität schließen.
Insgesamt konnten keine signifikanten Unterschiede zwischen den Abscheidungen, die innerhalb und außerhalb der Glovebox durchgeführt wurden, erkannt werden. Sowohl innerhalb, als auch außerhalb der Glovebox konnten Veränderungen in der Optik der Target-Oberflächen bei Erhöhung der zugeführten Menge an D_2O bemerkt werden.

5.2 Einfluss von CO_2 in Abwesenheit von D_2O

Die sukzessive Erhöhung des CO_2-Gehaltes innerhalb der Reaktionslösungen hatte eine Veränderung in den Target-Eigenschaften zur Konsequenz, welche in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen und Autoradiogramm in den Abbildungen **1**, **2** und **3** näher betrachtet werden konnten.
Bereits ein Volumen von 2 mL einer gesättigten CO_2-Lösung verursacht eine spröde Oberfläche. Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen in Abbildung **2** zeigen zwar eine erfolgreiche Abscheidung des Terbiums, jedoch befindet es sich nicht auf der gesamten Target-Oberfläche. Weiterhin kann im Autoradiogramm entnommen werden, dass keine bzw. nur eine geringe Aktivität auf der Oberfläche vorzufinden ist.
Ähnliche Eigenschaften der Target-Oberfläche können bei einem Zusatz von 4 mL einer gesättigten CO_2-Lösung beobachtet werden. Das aufgenommene Autoradiogramm in Abbildung **3** zeigt eine inhomogene Verteilung der Aktivität. Diese inhomogone Verteilung ist auch bei der Betrachtung der elektronenmikroskopischen Aufnahmen sichtbar. Weiterhin zeigen die SE-und BSE-Aufnahmen, dass das Terbium nicht an der Oberfläche haftet.
Insgesamt konnte beobachtet werden, dass die Zufuhr einer gesättigten CO_2-Lösung die Filmqualität beeinträchtigt. Grund hierfür ist die Bildung von Carbonaten, wodurch weniger Terbium gebildet und abgeschieden werden kann.

5.3 Gemeinsamer Einfluss von D_2O und CO_2

5.3.1 Innerhalb der Glovebox

Die Autoradiogramme aus den Abbildungen **6** bis **11**, **14** bis **19** und **22** bis **27** in Tabelle 3 zeigen die Verteilung der Aktivitäten auf den verschiedenen Target-Oberflächen. Sowohl die Vergrößerung des Volumens an D_2O, als auch die Steigerung

der CO_2 Konzentration haben zur Folge, dass die Verteilung des Terbiums auf dem Film inhomogener ist. Dies wird auch in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen ersichtlich.

Die Kombination mit einem Volumen von 50 μL D_2O und 1 mL einer gesättigten CO_2-Lösung liefert, im Vergleich zu anderen durchgeführten Kombinationen, die vielversprechendsten Ergebnisse. Sie erzielte eine Ausbeute von 97±0.15 % und einen qualitativ hochwertigen Film. Das Autoradiogramm in Abbildung **6** zeigt eine homogene Verteilung der Aktivität auf der Target-Oberfläche. Dies ist ebenfalls in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen zu erkennen. Weiterhin zeigen die SE- und BSE-Aufnahmen das *Mudcracking*.

Die Kombination mit einem Volumen von 75 μL D_2O und 1 mL einer gesättigten CO_2-Lösung erzielte eine Ausbeute von 16±0.013 %. Das aufgenommene Autoradiogramm in Abbildung **4** zeigt eine größtenteils homogene Verteilung der Aktivität auf der Target-Oberfläche. Diese homogene Verteilung kann auch in den SE-und BSE-Aufnahmen entnommen werden. Weiterhin zeigen die Aufnahmen, dass das Terbium nicht an der Oberfläche haftet.

Im Vergleich zu den beiden oben genannten Fällen, liefert die Kombination mit einem Volumen von 100 μL D_2O und 1 mL einer gesättigten CO_2-Lösung zwar eine mit 61±1.39 % vergleichsweise höhere Ausbeute, jedoch zeigt das Autoradiogramm in Abbildung **22** eine inhomogene Verteilung der Aktivität. Weiterhin kann aus den elektronenmikroskopischen Aufnahmen eine spröde und rissige Target-Oberfläche entnommen werden. Grund hierfür ist, dass durch das hohe Kathodenpotential bei Anwesenheit von D_2O und CO_2 Formiate gebildet werden können, die die Filmqualität beeinflussen.

5.3.2 Außerhalb der Glovebox

Analog zu den Versuchen innerhalb der Glovebox, zeigen die Autoradiogramme aus den Abbildungen **7**, **9**, **11**, **15**, **17**, **19**, **23**, **25** und **27** in Tabelle 3, dass sowohl die Vergrößerung des Volumens an D_2O, als auch die Steigerung der CO_2 Konzentration eine inhomogenere Verteilung des Terbiums zur Folge haben. Dies kann auch in den elektronenmikroskopischen Aufnahmen erkannt werden.

Der Vergleich der Kombination aus 50 μL D_2O und 1 mL einer gesättigten CO_2-Lösung innerhalb und außerhalb der Glovebox zeigt eine auffälligere Veränderung der Target-Oberflächen bei den Proben, die außerhalb der Glovebox abgeschieden wurden.

Die in Abbildung **15** gezeigten SE-und BSE-Bilder der Target-Mitte der Kombination aus 50 μL D_2O und 1 mL CO_2 (RL-33) zeigen eine Anreicherung des Terbiums auf dem Film. Werden die 300-fach vergrößerten SE-und BSE-Aufnahmen derselben

Target-Mitte betrachtet, kann das *Mudcracking* erkannt werden.
Bei einer Kombination aus 50 μL D_2O und 2 mL einer gesättigten CO_2-Lösung (RL-34), welche ebenfalls außerhalb der Glovebox abgeschieden wurde, ist ein deutlicher Unterschied gegenüber der Target-Oberfläche von RL-33 sichtbar. Dies ist aus den elektronenmikroskopischen Aufnahmen aus den Abbildungen **18** ersichtlich. Die SE- und BSE-Aufnahmen zeigen eine inhomogene Verteilung des Terbiums.
Beim Vergleich der Kombinationen aus 50 μL D_2O und 1 mL CO_2 (RL-15) und 50 μL D_2O und 2 mL CO_2 (RL-16), die innerhalb der Glovebox abgeschieden wurden fällt auf, dass der Unterschied beider Target-Oberflächen vergleichsweise gering ist. Die Ursache für die auffälligen Unterschiede der Filme innerhalb und außerhalb der Glovebox, liegt in der gesättigten CO_2-Lösung. Das Vakuum, welches beim Einschleusen in die Glovebox herrscht, verringert den CO_2-Gehalt, sodass die Reaktionslösungen, die innerhalb der Glovebox abgeschieden wurden, einen geringeren Gehalt an CO_2 vorwiesen. Somit können bereits geringe Mengen an CO_2 die optischen Eigenschaften der Targets verändern indem spröde Oberflächen verursachen. Diese Annahme lässt sich auch durch den Vergleich der Abbildungen **6** (50 μL D_2O und 2 mL CO_2, innerhalb der Glovebox) und **7** (50 μL D_2O und 1 mL CO_2, außerhalb der Glovebox) bestätigen. Beide Aufnahmen zeigen Ähnlichkeiten trotz unterschiedlicher Konzentrationen an CO_2.

5.4 Abscheidungen höherer Massenbelegungen

Die elektronenmikroskopischen Aufnahmen in den Abbildungen **29**, **31** und **32** der 50 μL D_2O Probe und der zwei 75 μL D_2O Proben zeigen jeweils spröde Oberflächenstrukturen der Targets. Das Terbium haftet nicht an den jeweiligen Oberflächen In Abbildung **29** sind die SE-und BSE-Aufnahmen der 50 μL D_2O Probe, RL-42, abgebildet, welche das erfolgreich auf der Oberfläche abgeschiedene Terbium veranschaulichen. Jedoch ist die Verteilung sehr inhomogen und vergleichsweise gering. Weiterhin kann anhand der 300-fachen Vergrößerung in der BSE-Aufnahme das *Mudcracking* erkannt werden.
Die Abbildungen **31** und **32** zeigen jeweils zwei Proben mit den gleichen Volumina an D_2O, aber unterschiedlichen Reaktionsdauern. Die Abbildungen **31** (75 μL D_2O, Reaktionsdauer t= 2 h) und **32** (75 μL D_2O, Reaktionsdauer t= 4 h) illustrieren eine nicht kristalline Struktur des Terbiums. Außerdem zeigen die SE-und BSE-Aufnahmen (75 μL D_2O, t = 4 h) eine größere Menge des abgeschiedenem Terbium auf der Oberfläche.
Weiterhin wurden von der Probe mit einer Reaktionsdauer von vier Stunden, in einem Intervall von je einer Stunde, insgesamt vier Aliquote entnommen und anhand von γ-Spektrometrie die Ausbeuten bestimmt. Abbildung 8 zeigt die graphische

Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Ausbeute und entspricht dabei nicht dem erwarteten Verlauf. Da insgesamt nur vier Aliquote entnommen und die Messungen einmalig durchgeführt wurden, könnte es sich bei den Werten für t= 1 h und t= 2 h um Ausreißer handeln, die in einem möglichen, nicht berechneten Fehlerbereich liegen. Daher kann keine genaue Aussage über die Richtigkeit der Werte getroffen werden. Eine Möglichkeit wäre, die Versuchsreihe zu wiederholen und anschließend zu überprüfen, ob es sich um ein reproduzierbares Ergebnis handelt.

Insgesamt konnte nur eine Schichtdicke von ungefähr 800 μL/cm^2 erreicht werden.

5.5 Abscheidung von ^{160}Tb mit Zugabe von ^{241}Am

Die durch die Rasterelektronenmikroskopie aufgenommenen SE-und BSE-Aufnahmen in den Abbildungen **28** und **30** zeigen insgesamt eine homogene Verteilung des abgeschiedenen Terbiums. Die Probe mit einem Volumen von 50 μL D_2O besitzt hohe Ausbeuten von bis zu 99 ± 0.10 % und zeigt in der Abbildung **28** vergrößerte eine homogene Verteilung des Terbiums auf der Target-Oberfläche. Weiterhin zeigt das 300-fachen das *Mudcracking* auf der Oberfläche.
Die Target-Mitte der Probe mit einem Volumen von 75 μL D_2O wird in Abbildung **31** dargestellt. Anhand der BSE-Aufnahme aus kann angenommen werden, dass sich am Rand des Targets Americium abgeschieden hat, da es eine höhere molare Masse besitzt und so die Elektronen stärker reflektiert als die Titanfolie und Terbium. Des weiteren wurden nur geringe Mengen einer ^{241}Am-Stammlösung (10 μL) zu den Reaktionslösungen zugegeben, sodass die Abscheidung von Terbium statistisch wahrscheinlicher ist.

Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war die Bestimmung des Einflusses der Parameter D_2O und CO_2 im Lösemittel auf die elektrochemische Abscheidung von f-Element-Chloriden. Hierzu wurden mehrere ^{160}Tb-Reaktionslösungen angefertigt, mit D_2O und CO_2 versetzt und über das *Molecular Plating* Verfahren abgeschieden. Anhand ausgewählter Analysemethoden konnten die Target-Oberflächen auf ihre Aktivitäten-Verteilung und Filmqualität überprüft werden. Ebenso ermöglichte eine quantitative Gehaltsbestimmung über die gamma-Spektrometrie eine Aussage über die erzielten Ausbeuten.

Die Mehrheit der Versuche wurden innerhalb der Glovebox, unter einer Argon-Atmosphäre, durchgeführt. Einige Versuche mit ausgewählten Parametern wurden außerhalb der Glovebox wiederholt, um den Einfluss der Argon-Atmosphäre ($H_2O <$ 3 ppm, O_2 =1–4 ppm) zu beobachten.

Durch die Variation der Parameter konnte eine Veränderung in den Target-Eigenschaften beobachtet werden. Hohe Mengen an D_2O bewirkten eine spröde und rissige Oberfläche, welche primär durch die Bildung von Wasserstoff an der Kathode erzeugt wurden. Weiterhin führten bereits geringe Mengen einer gesättigten CO2-Lösung zu einer Verschlechterung der Filmqualität.

Insgesamt konnte kein Unterschied an der Filmqualität der Targets, welche innerhalb und außerhalb der Glovebox hergestellt wurden, erkennen. Es sollte jedoch erwähnt werden, dass alle Reaktionslösungen innerhalb der Glovebox vorbereitet und erst für die durchgeführten Abscheidungen außerhalb der Glovebox ausgeschleust wurden. Lediglich die Herstellung der gesättigten CO_2-Lösung fand außerhalb der Glovebox statt und wurde eingeschleust. Es kann angenommen werden, dass Reaktionslösungen, die unter Normalbedingungen hergestellt werden, einen höheren Wasseranteil besitzen und bereits bei geringen Mengen D_2O oder H_2O spröde und rissige Target-Oberflächen verursachen.

Wie bereits erwähnt wurde die gesättigte CO_2-Lösung außerhalb der Glovebox angefertigt und in die Glovebox eingeschleust. Das Einschleusen verursacht eine Verringerung des Umgebungsdruck und ermöglicht so dem CO_2 aus der Lösung auszuweichen, sodass der Gehalt an gesättigter CO_2-Lösung innerhalb der Reaktionslösungen geringer war. Eine Möglichkeit, um das Entweichen der Gase beim Einschleusen zu verhindern, wäre die direkte Gaseinleitung innerhalb der Glovebox.

Über die gamma-Spektrometrie konnte quantitativ die Ausbeute, die häufig über 50 % war, bestimmt werden. Jedoch war die Aktivität des verwendeten ^{160}Tb-Isotops (6 kBq) zu gering, sodass das Nuklid teilweise nicht identifiziert werden konnte. Je-

doch kann diese Fehlerquelle durch Verwendung höherer Aktivitäten umgegangen werden.
Gegen Ende der Arbeit wurden drei Abscheidungen mit einer höheren Massenbelegung durchgeführt. Ziel dabei war eine Massenbelegung von 1500 μg/cm^2, es konnten jedoch lediglich Abscheidungen mit einer Massenbelegung von ungefähr 800 μg/cm^2 erreicht werden. Da eine mögliche Fehlerquelle der Zeitraum sein könnte, wurde ein Zeitraum von vier Stunden ausgewählt. Dabei wurde jeweils stündlich ein Aliquote für die quantitative Gehaltsbestimmung entnommen. Allerdings lieferte diese Methode nicht die gewünschte Massenbelegung. Ein weiterer Paramater wäre der Widerstand R. Dieser steht nach Gleichung 17 in folgender Relation zur Spannung U und Stromstärke I:

$$U = R \cdot I \tag{17}$$

Da die Target-Herstellung über eine galvanostatische Zelle erfolgte, wird die Stromstärke I als konstant betrachtet. Eine Erhöhung des Widerstandes würde demzufolge nach Gleichung 17 eine erhöhte Spannung verursachen, woraus ein verkürzter Reaktionszeitraum und eine schlechte Filmqualität resultieren könnte. Weiterhin könnte die Verwendung einer größeren Zelle die gezielte Massenbelegung ermöglichen, da die während dieser Arbeit verwendete Zelle nur eine Kathodenfläche von 0.28 cm^2 besitzt.
Insgesamt konnte das Ziel dieser Arbeit erfolgreich erreicht werden.

Chemikalienliste

2-Propanol anhydrous, 99.5 %
Hersteller Sigma-Aldrich

2-Methyl-1-propanol anhydrous, 99.5 %
Hersteller Sigma-Aldrich

Terbium(III)-chlorid, anhydrous, powder, 99.99 % trace metals basis
Hersteller Sigma-Aldrich

Deuteriumoxid, 99.9 atom % D
Hersteller Sigma-Aldrich

Kohlendioxid 4.5, 99.995 Vol. % CO_2
Hersteller Westfalen

Geräteliste

Rasterelektronenmikroskop
Hersteller Philips
Typ XL30

Netzteil
Hersteller Keithley
Typ 2231A-30-3 Tripple Channel

Autoradiographie
Hersteller FUJIFILM
Typ FLA-7000

γ-Spektrometer
Hersteller Canberra
Software Genie2000
Relative Effizienz 46.8 %

PP-Röhrchen
Hersteller greiner.bio-one
Typ 4 mL

α-Spektrometer
Hersteller Mirion Technologie
Typ Alpha Analyst

Tabelle 6: Verwendeter Detektor, Abstand Präparat-Detektor in cm und Effizienz in %.

Detektor	Abstand/cm	Effizienz/%
A	4	9.9

Pipetten
Hersteller ROTH Eppendorf
Typ 10 μL ($\pm$ 3.0 μL), 1000 μL ($\pm$ 0.8 μL) und 10 mL ($\pm$ 0.6 μL)

Zentrifugenröhrchen
Hersteller VWR

Typ 15 mL

Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen

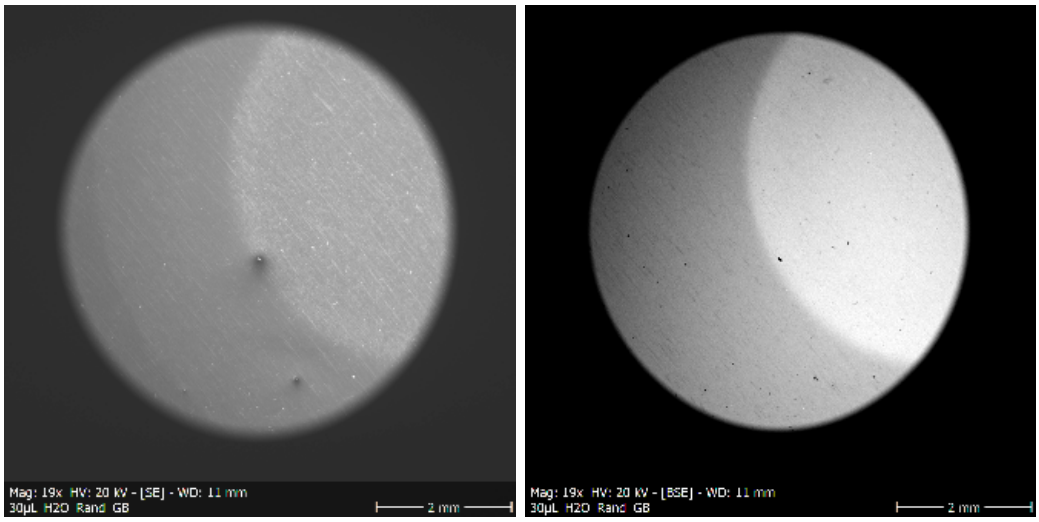


Abbildung 9: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-5 (30 μ D_2O) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-5 (30 μ D_2O bei einer 19-fachen Vergrößerung.

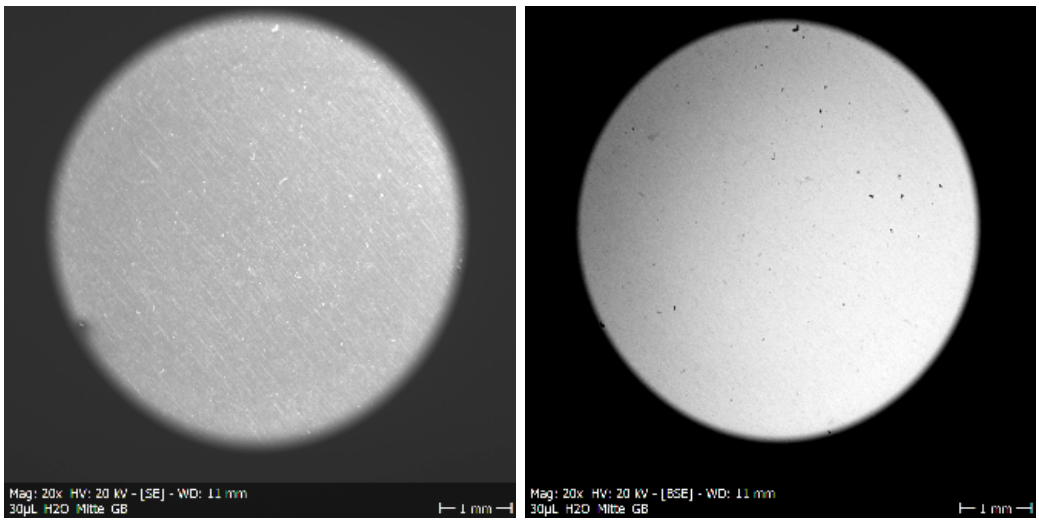


Abbildung 10: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-5 (30 μ D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-5 (30 μ D_2O bei einer 20-fachen Vergrößerung.

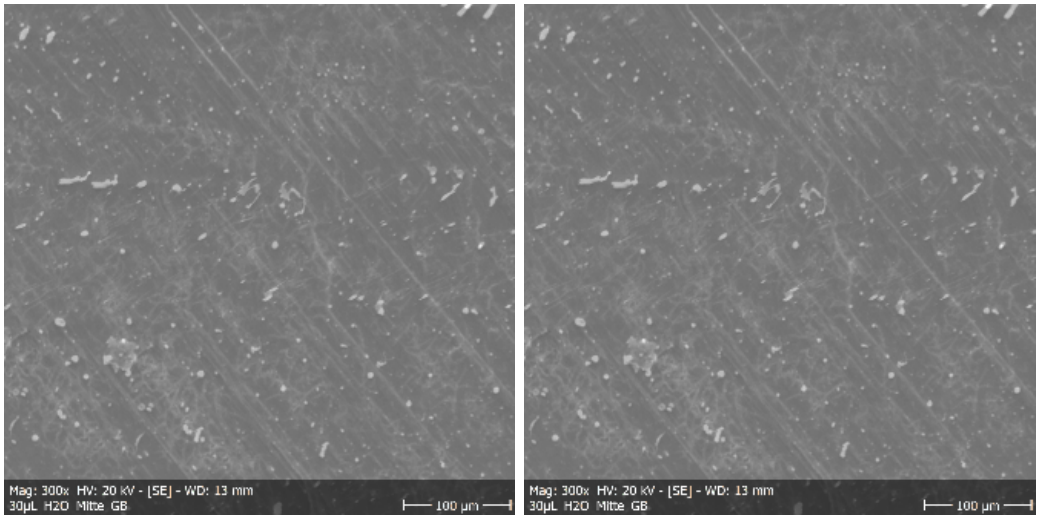


Abbildung 11: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-5 (30 μ D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-5 (30 μ D_2O bei einer 300-fachen Vergrößerung.

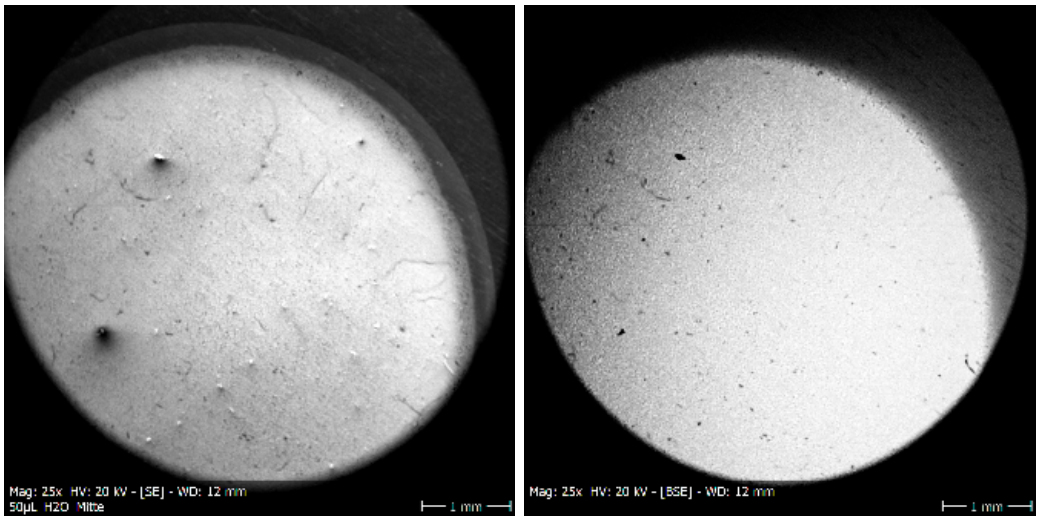


Abbildung 12: Links: SE-Bild von RL-6 (50 μL D_2O) bei einer 25-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-6 (50 μL D_2O) bei einer 25-fachen Vergrößerung.

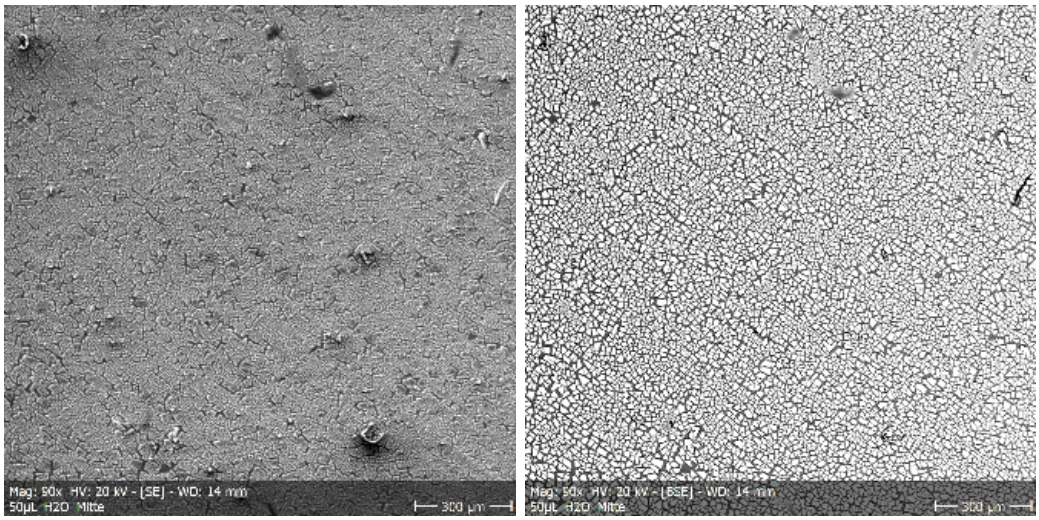


Abbildung 13: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-6 (50 μ D_2O) bei einer 90-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-6 (50 μ D_2O bei einer 90-fachen Vergrößerung.

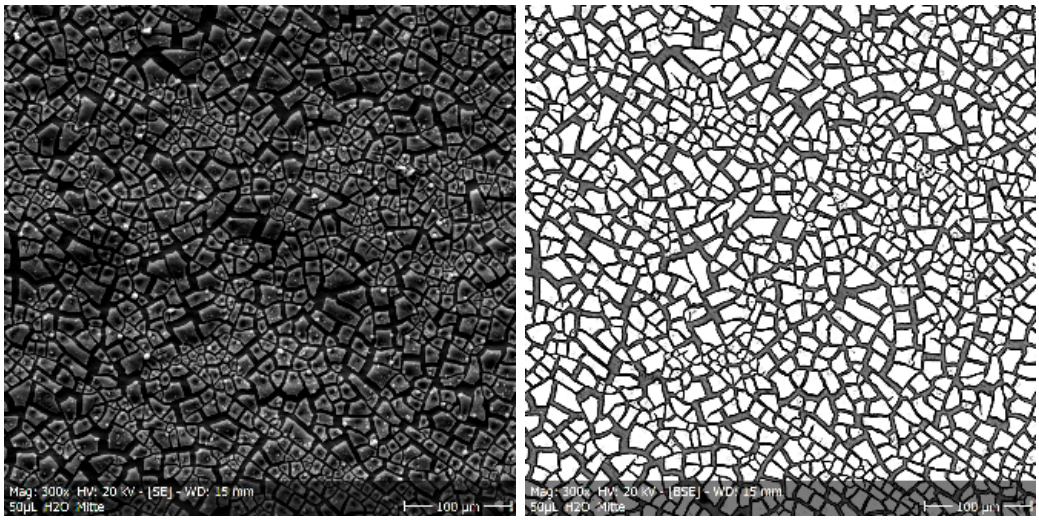


Abbildung 14: Links: SE-Bild von RL-6 (50 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-6 (50 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

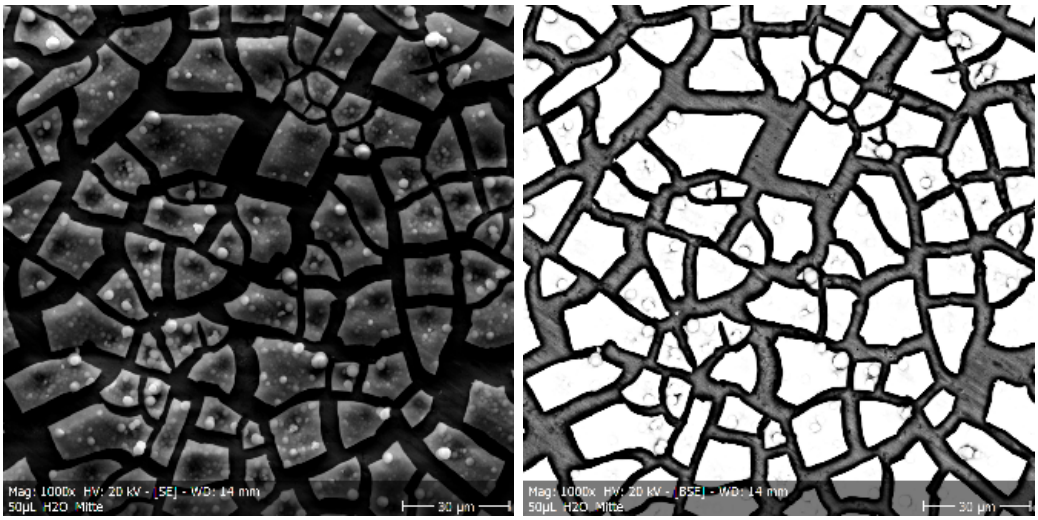


Abbildung 15: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-6 (50 μ D_2O) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-6 (50 μ D_2O bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

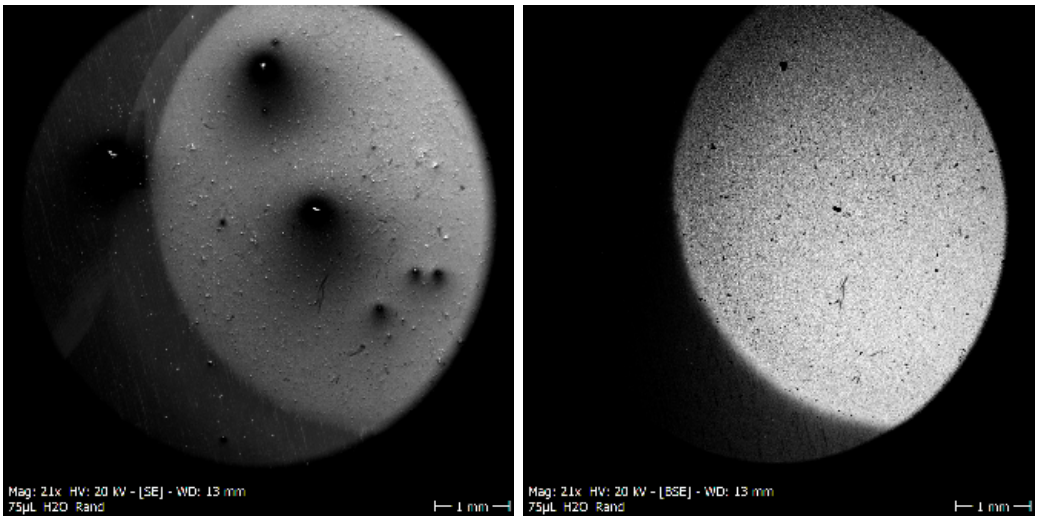


Abbildung 16: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-8 (75 μ D_2O) bei einer 21-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-8 (75 μ D_2O) bei einer 21-fachen Vergrößerung.

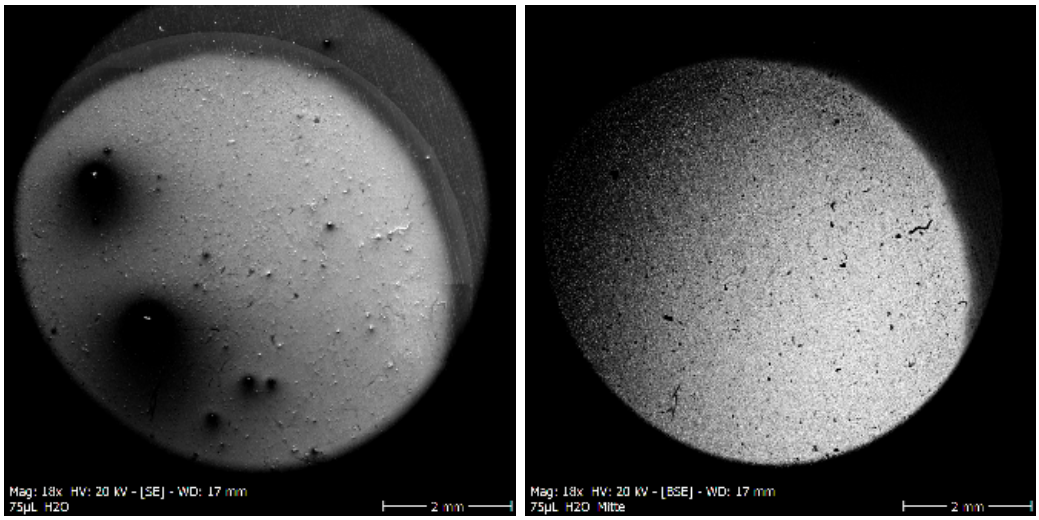


Abbildung 17: Links: SE-Bild von RL-8 (75 μL D_2O) bei einer 18-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-8 (75 μL D_2O) bei einer 18-fachen Vergrößerung.

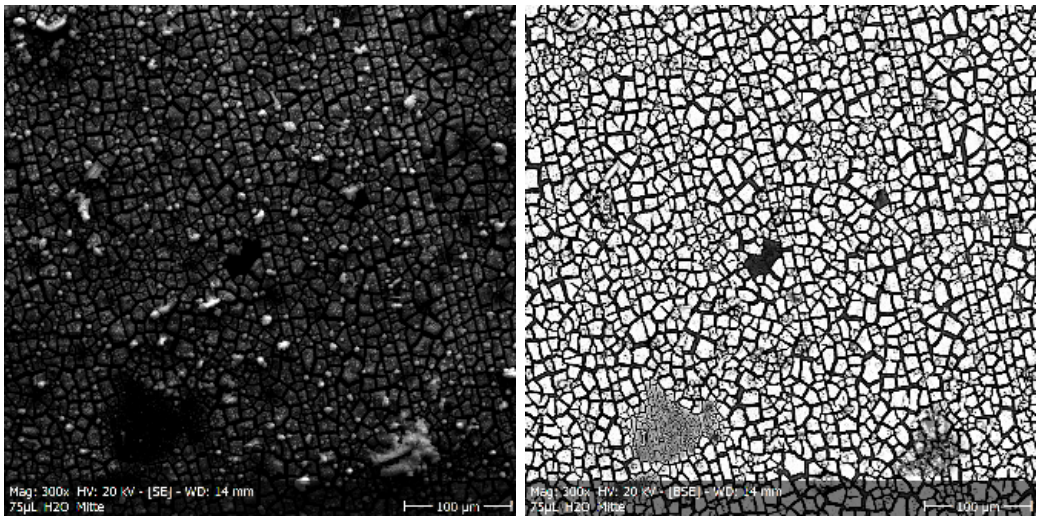


Abbildung 18: Links: SE-Bild von RL-8 (75 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-8 (75 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

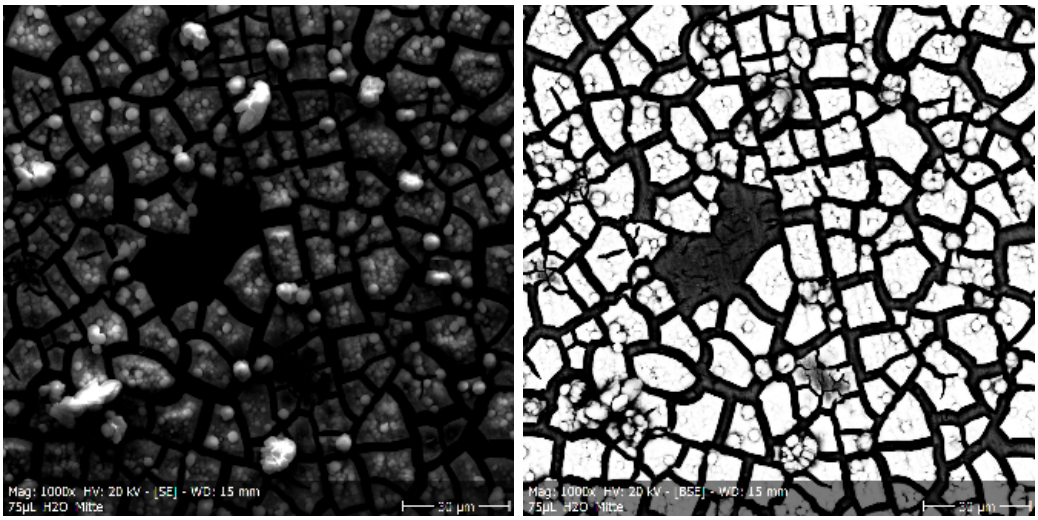


Abbildung 19: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-8 (75 μ D_2O) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-8 (50 μ D_2O) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

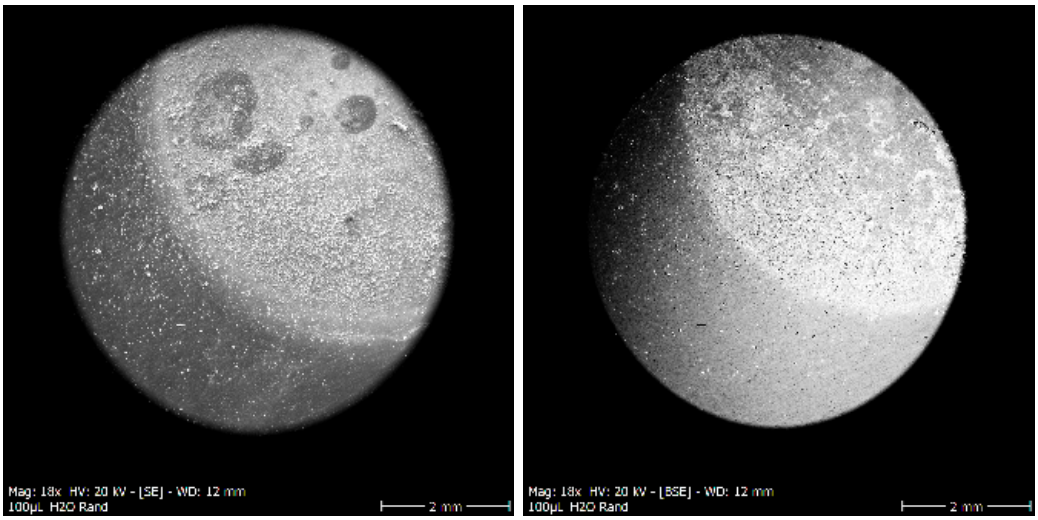


Abbildung 20: Links: SE-Bild von RL-7 (100 μL D_2O) bei einer 18-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-7 (100 μL D_2O) bei einer 18-fachen Vergrößerung.

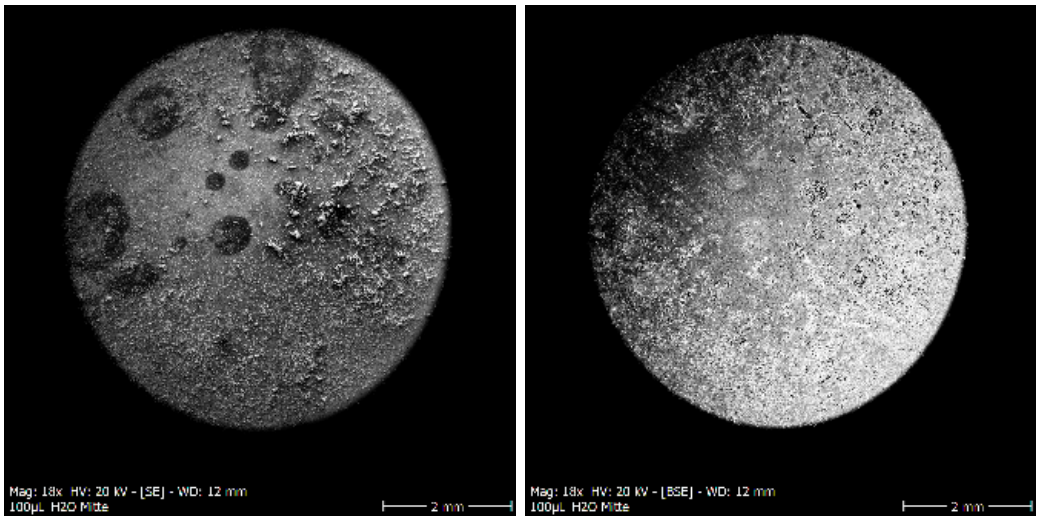


Abbildung 21: Links: SE-Bild von RL-7 (100 μL D_2O) bei einer 18-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-7 (100 μL D_2O) bei einer 18-fachen Vergrößerung.

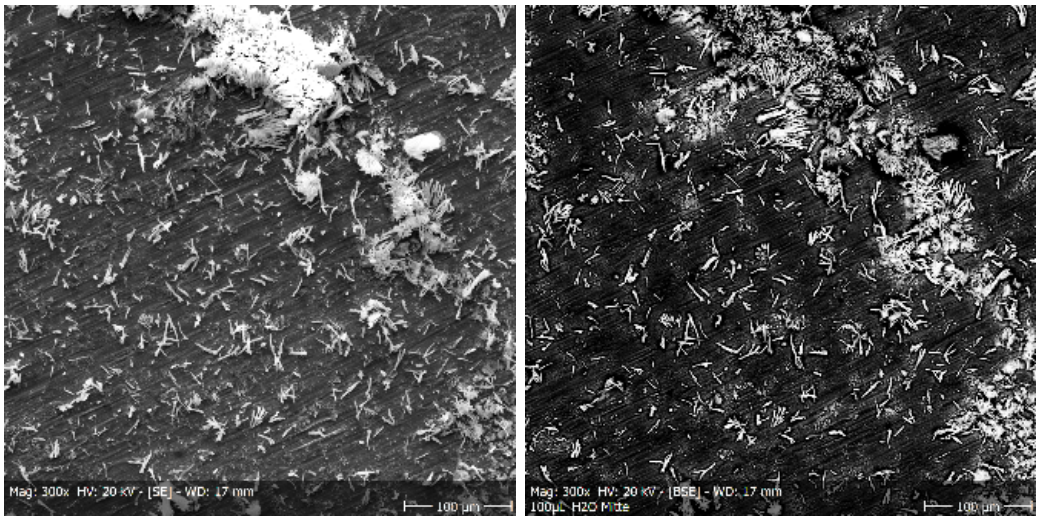


Abbildung 22: Links: SE-Bild von RL-7 (100 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-7 (100 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

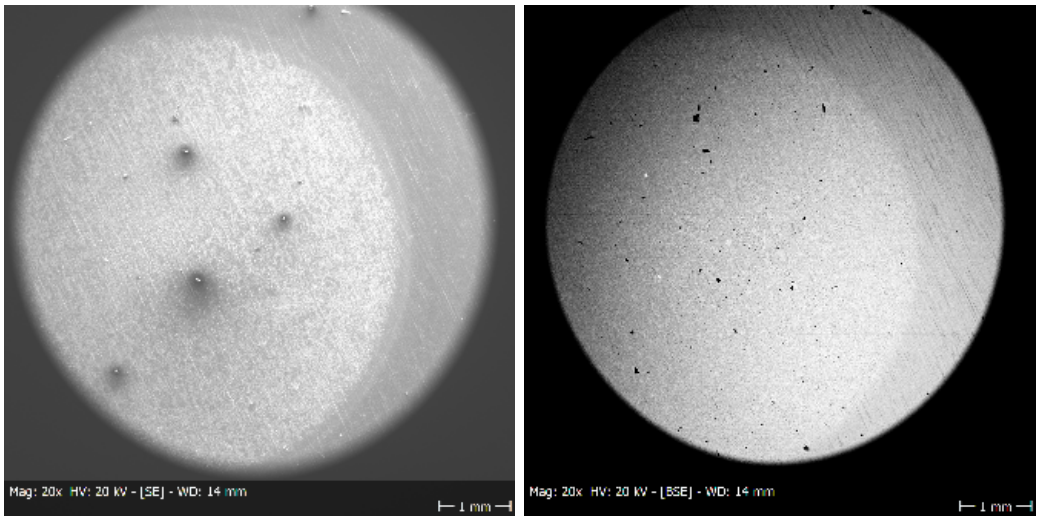


Abbildung 23: Links: SE-Bild von RL-9 (1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-9 (1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

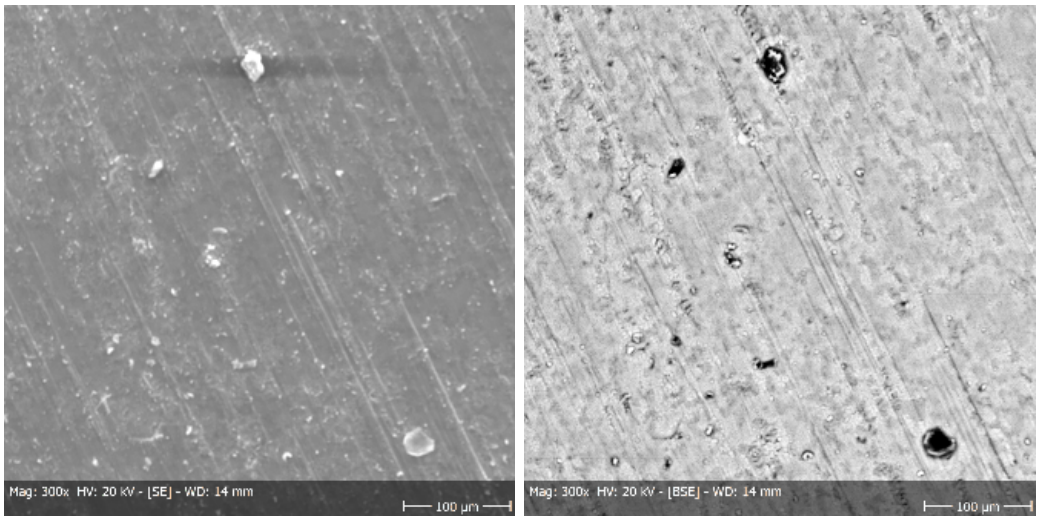


Abbildung 24: Links: SE-Bild von RL-9 (1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-9 (1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

Abbildung 25: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-9 (1 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-9 (1 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

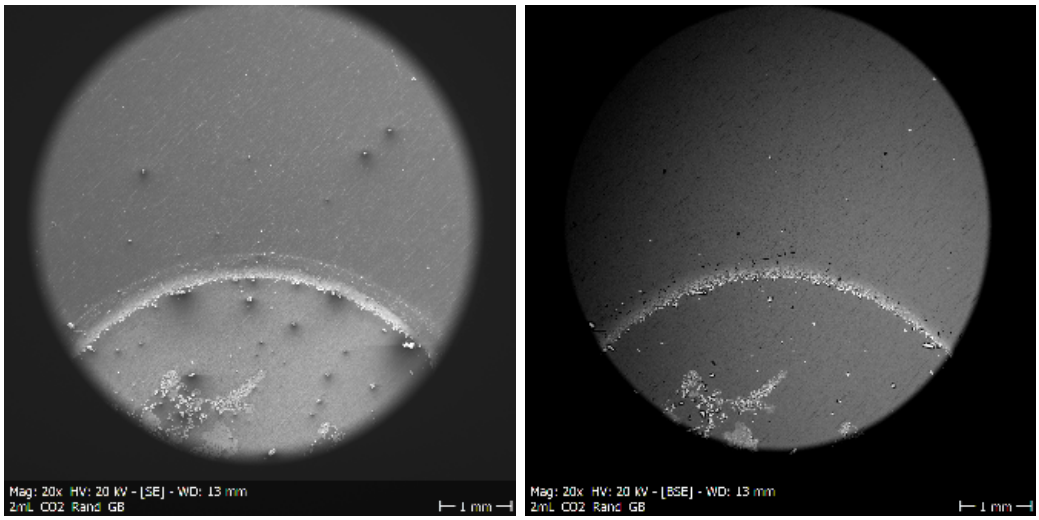


Abbildung 26: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-10 (w mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-10 (2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

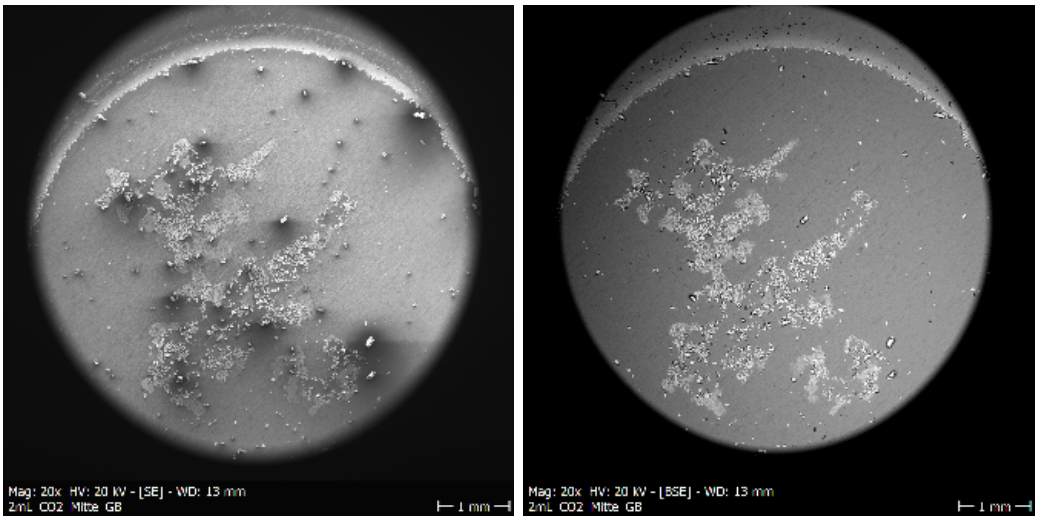


Abbildung 27: Links: SE-Bild von RL-10 (2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-10 (2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

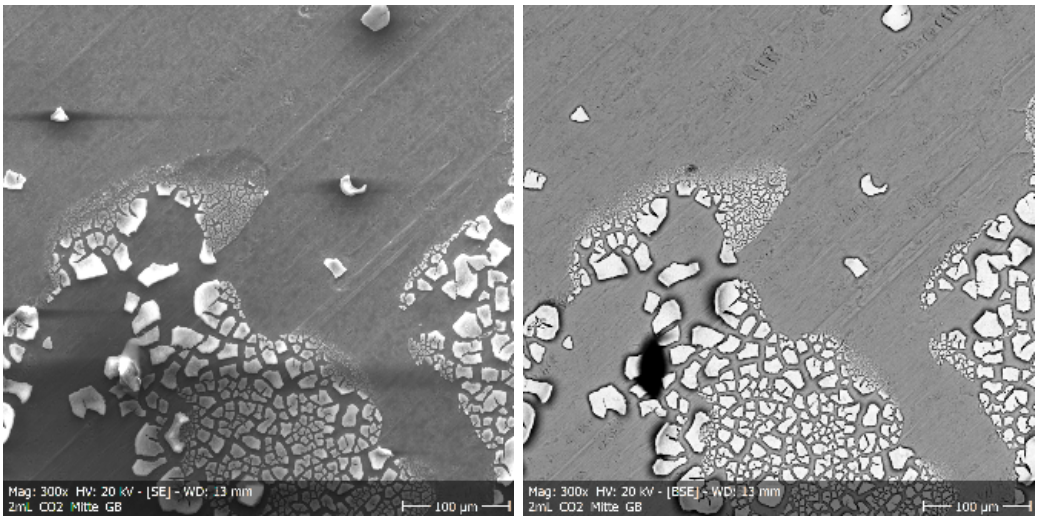


Abbildung 28: Links: SE-Bild von RL-10 (2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-10 (2 mL) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

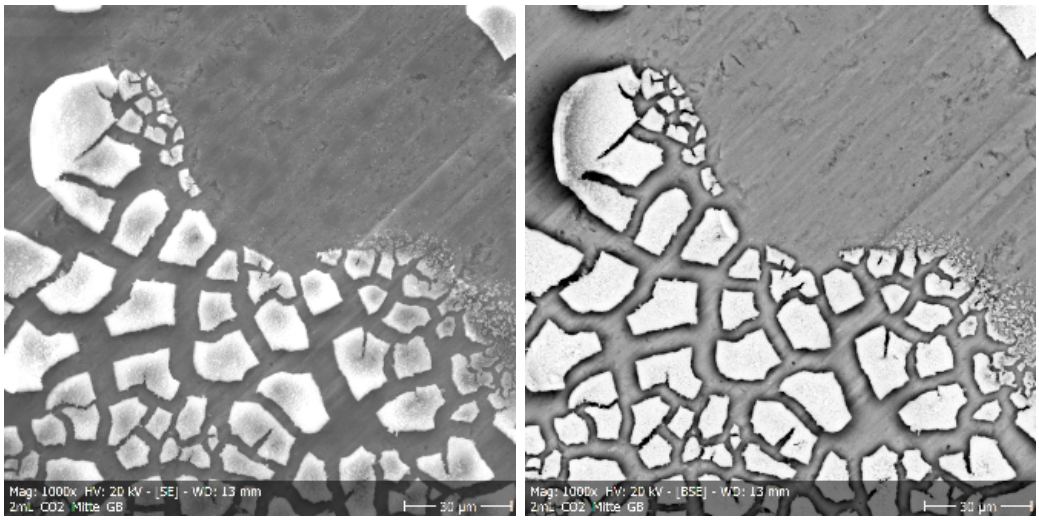


Abbildung 29: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-10 (2 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-10 (2 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

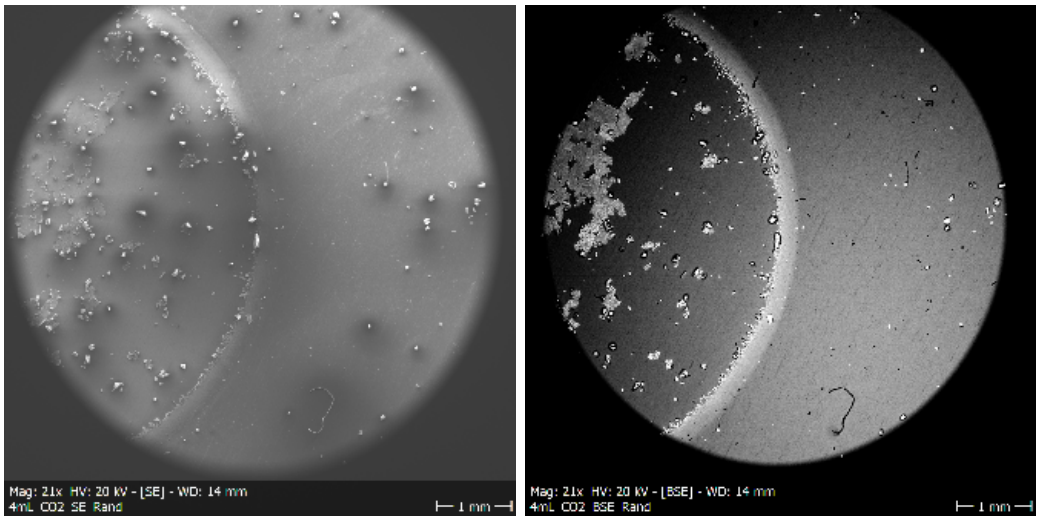


Abbildung 30: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-11 (4 mL CO_2) bei einer 21-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-11 (4 mL CO_2) bei einer 21-fachen Vergrößerung.

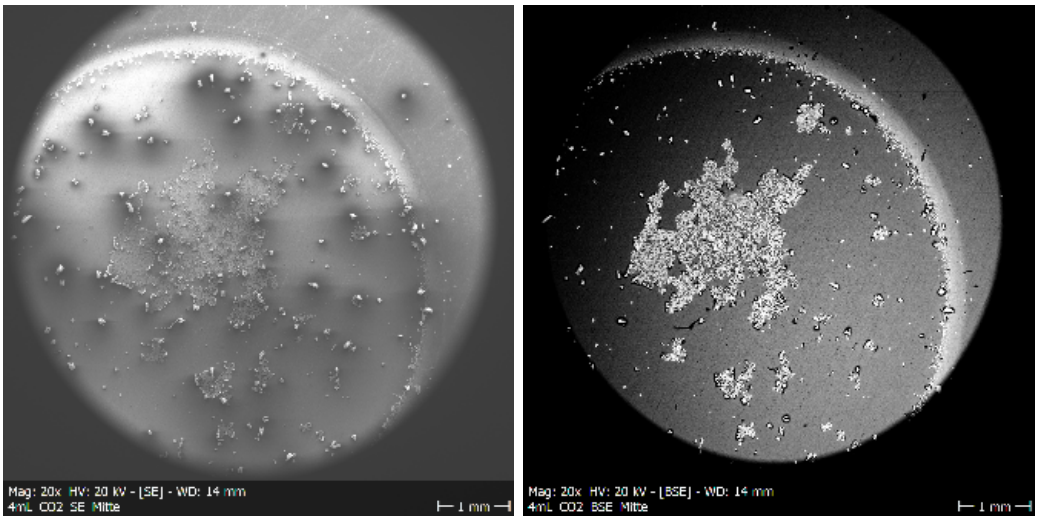


Abbildung 31: Links: SE-Bild von RL-11 (4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-11 (4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

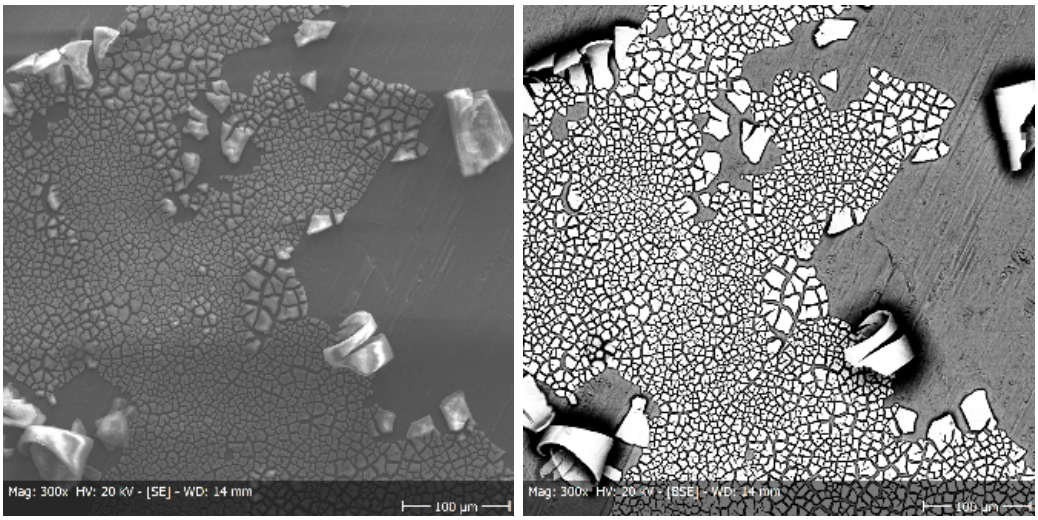


Abbildung 32: Links: SE-Bild von RL-11 (4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung. Rechts: BSE-Bild von RL-11 (4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

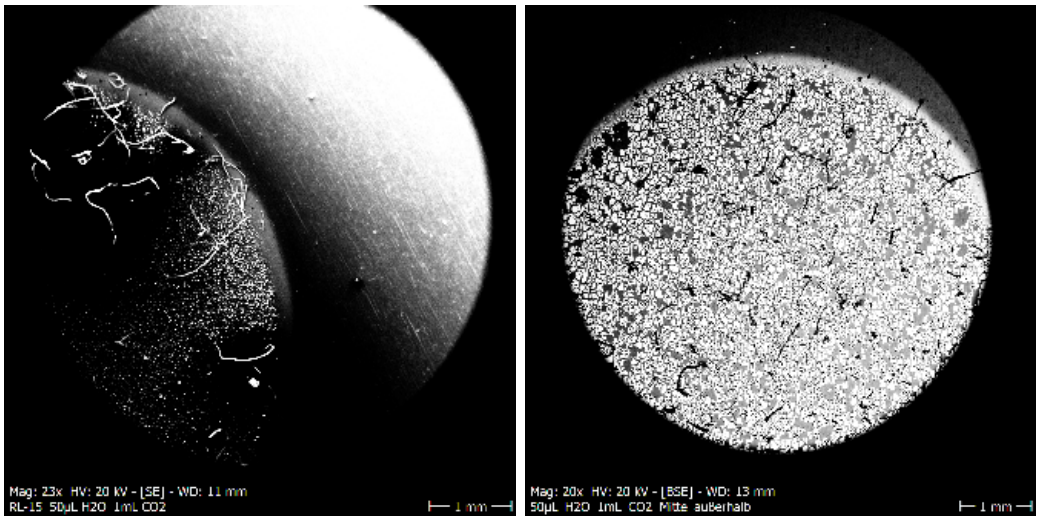


Abbildung 33: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-15 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 23-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-15 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

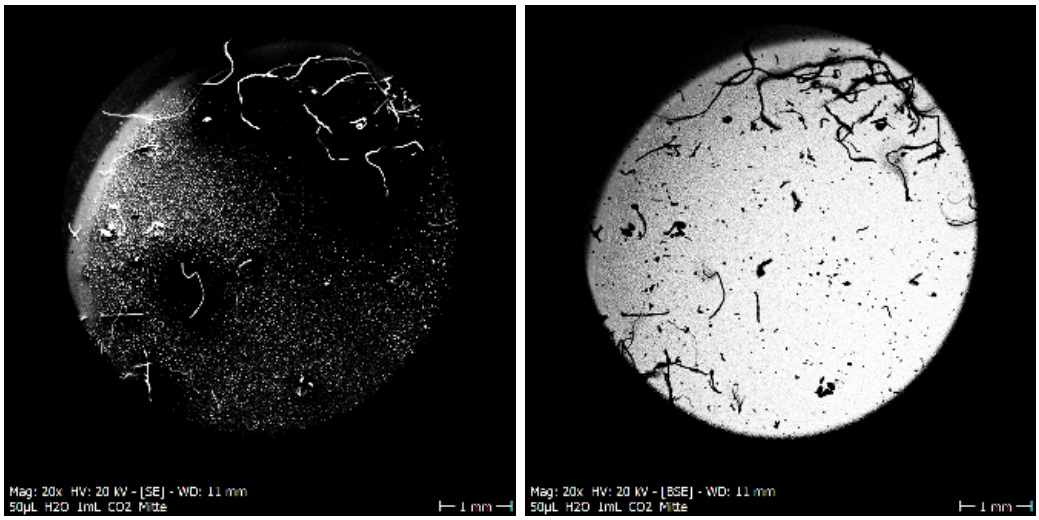


Abbildung 34: Links: SE-Bild von RL-15 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-15 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

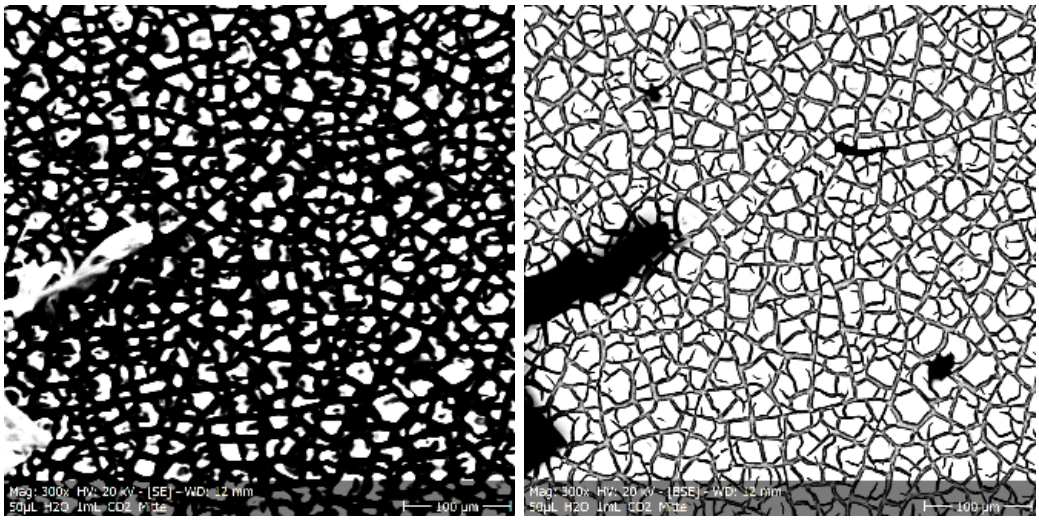


Abbildung 35: Links: SE-Bild von RL-15 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-15 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

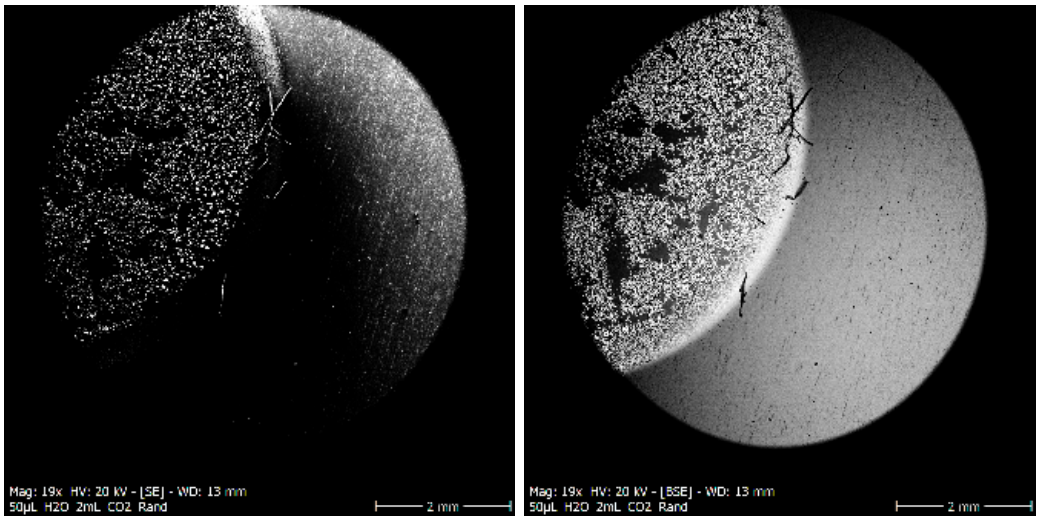


Abbildung 36: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-16 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-16 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

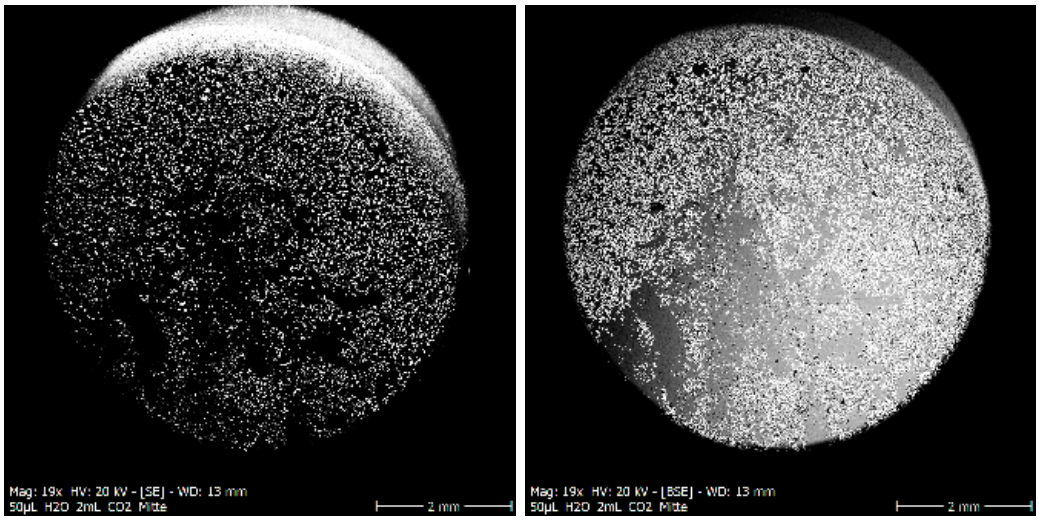


Abbildung 37: Links: SE-Bild von RL-16 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-16 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

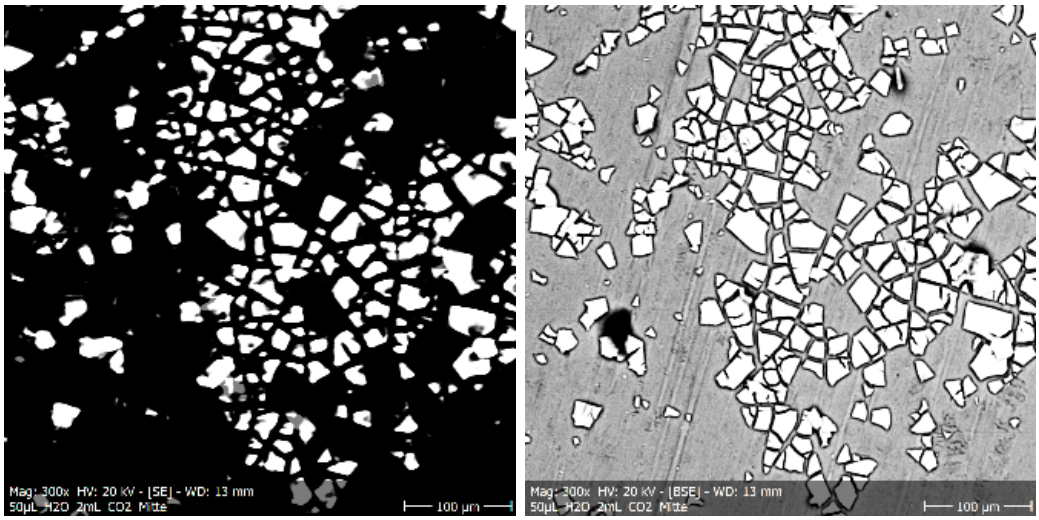


Abbildung 38: Links: SE-Bild von RL-16 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-16 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

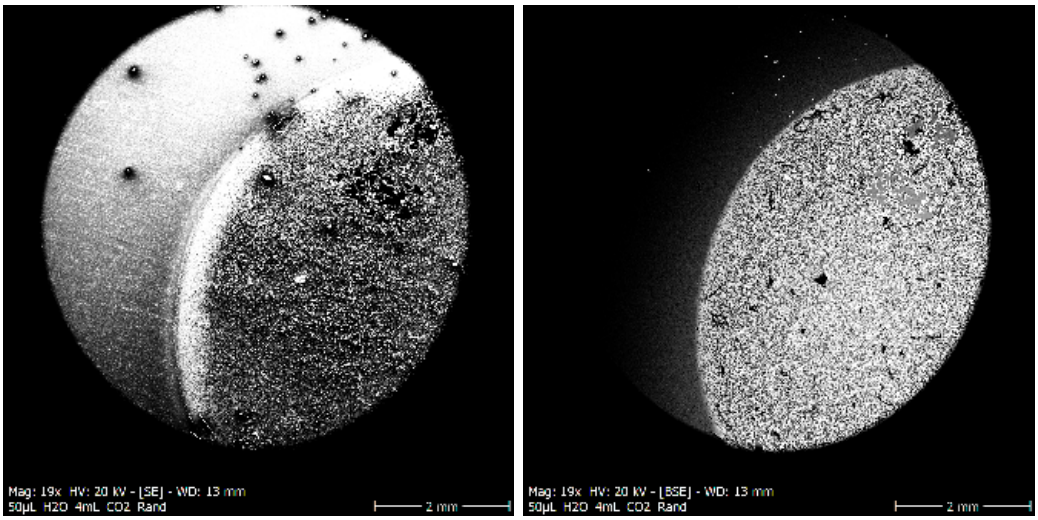


Abbildung 39: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-17 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-17 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

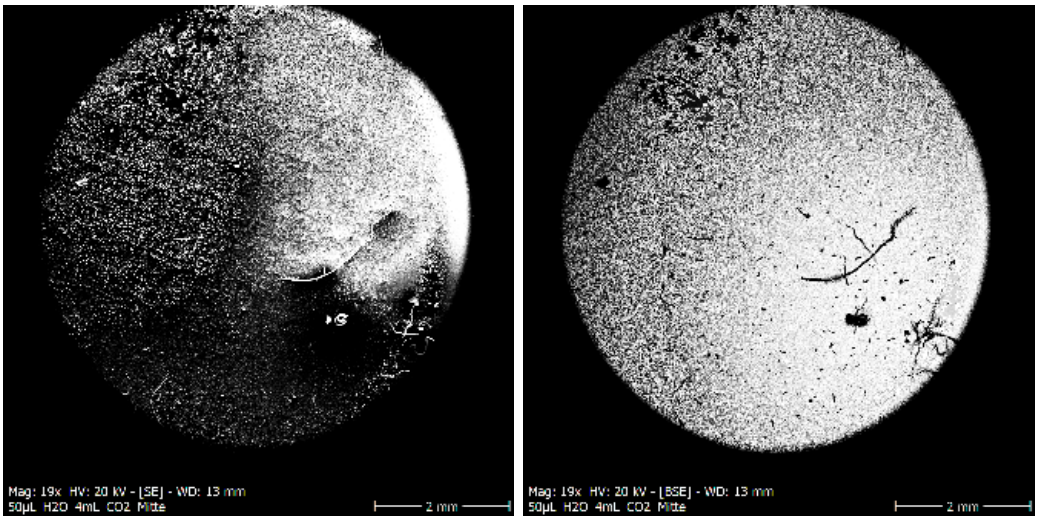


Abbildung 40: Links: SE-Bild von RL-17 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-17 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

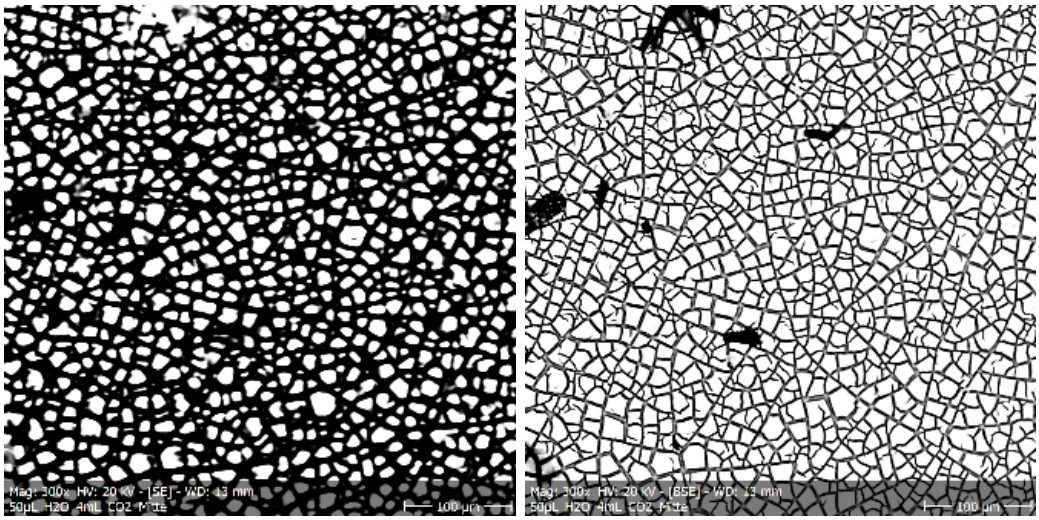


Abbildung 41: Links: SE-Bild von RL-17 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-17 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

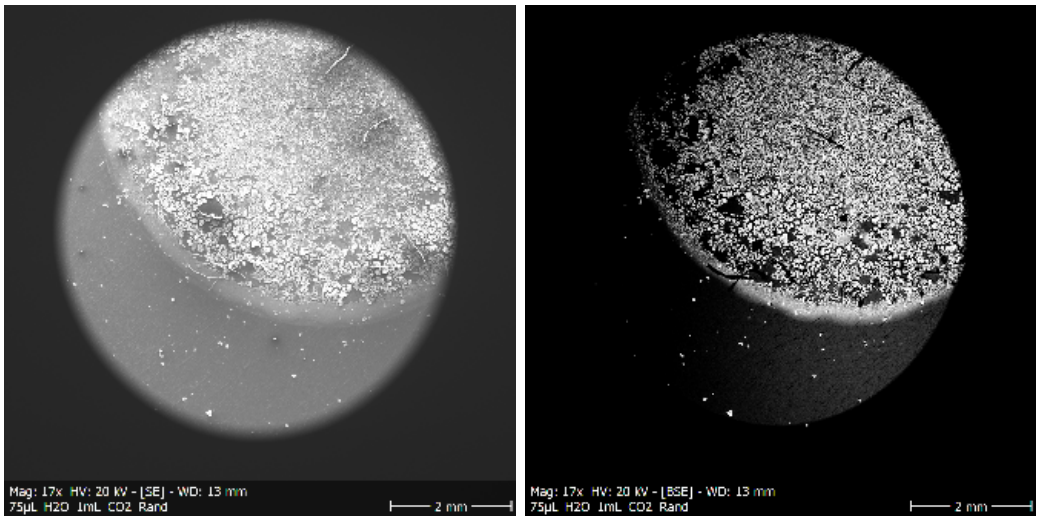


Abbildung 42: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 17-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 17-fachen Vergrößerung.

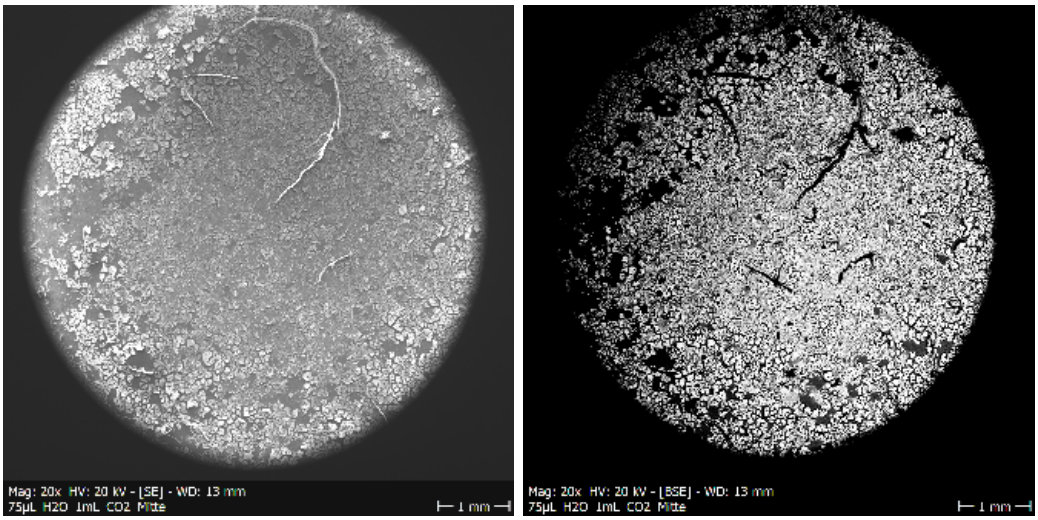


Abbildung 43: Links: SE-Bild von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

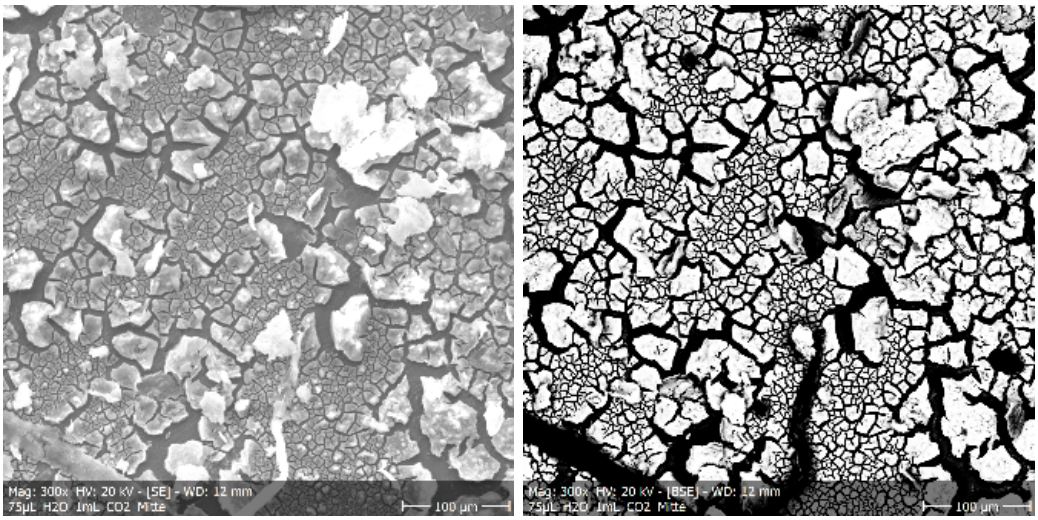


Abbildung 44: Links: SE-Bild von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

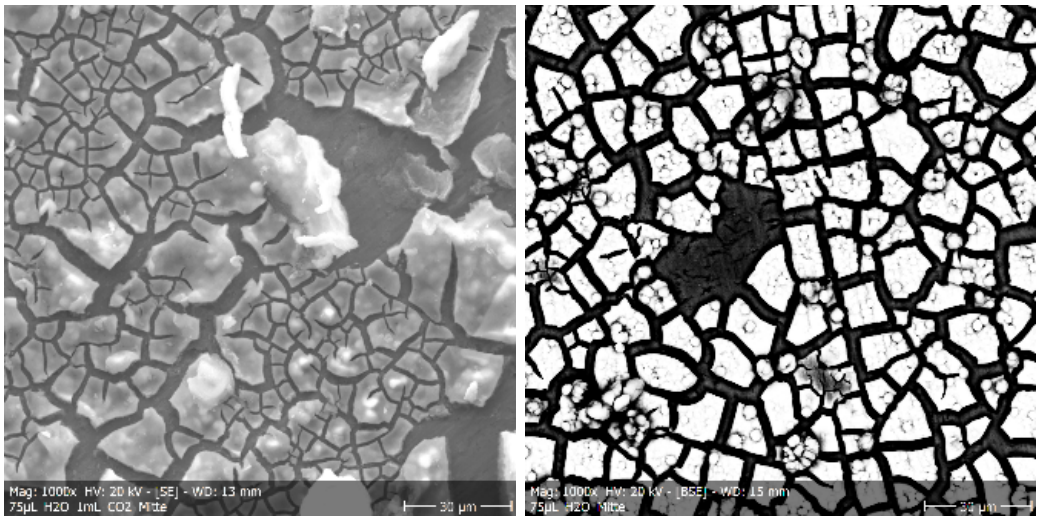


Abbildung 45: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-20 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

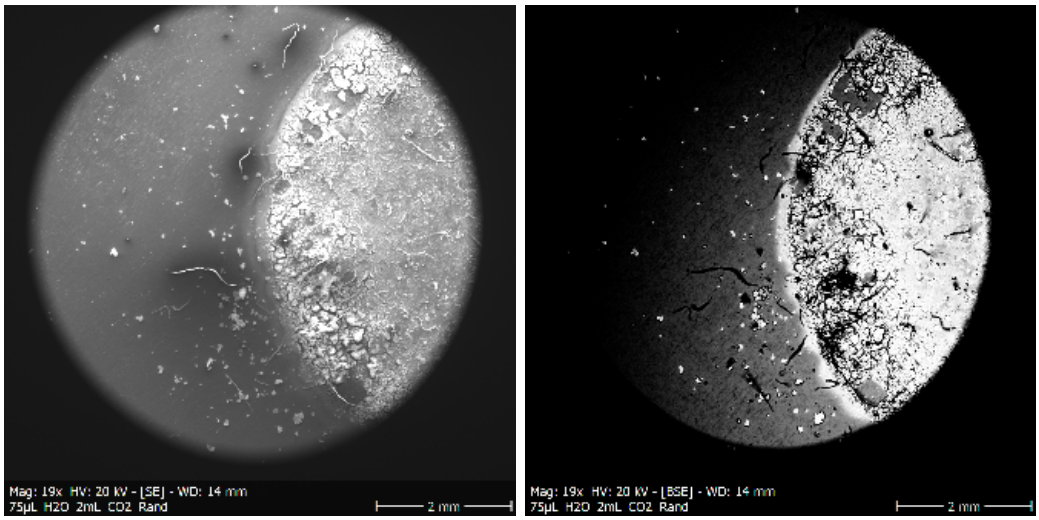


Abbildung 46: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

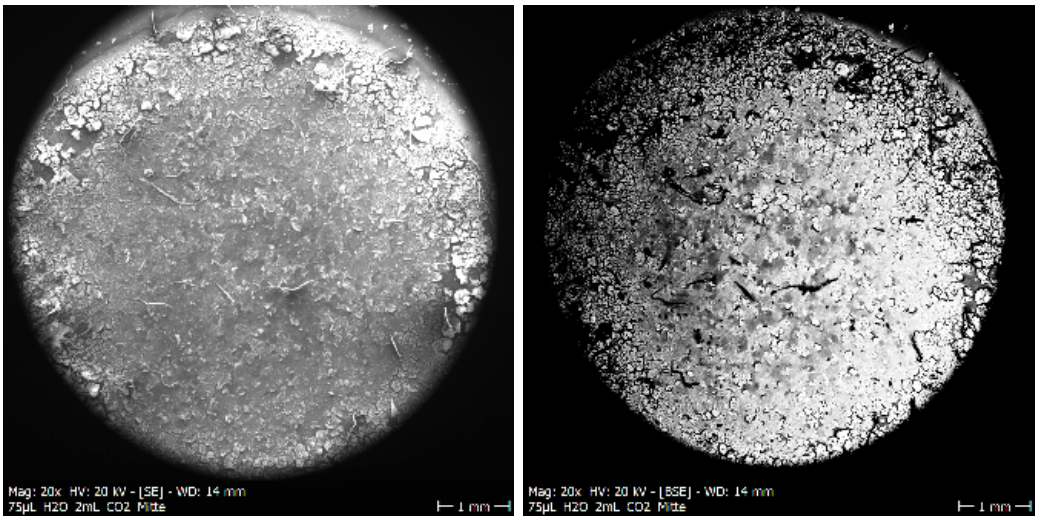


Abbildung 47: Links: SE-Bild von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

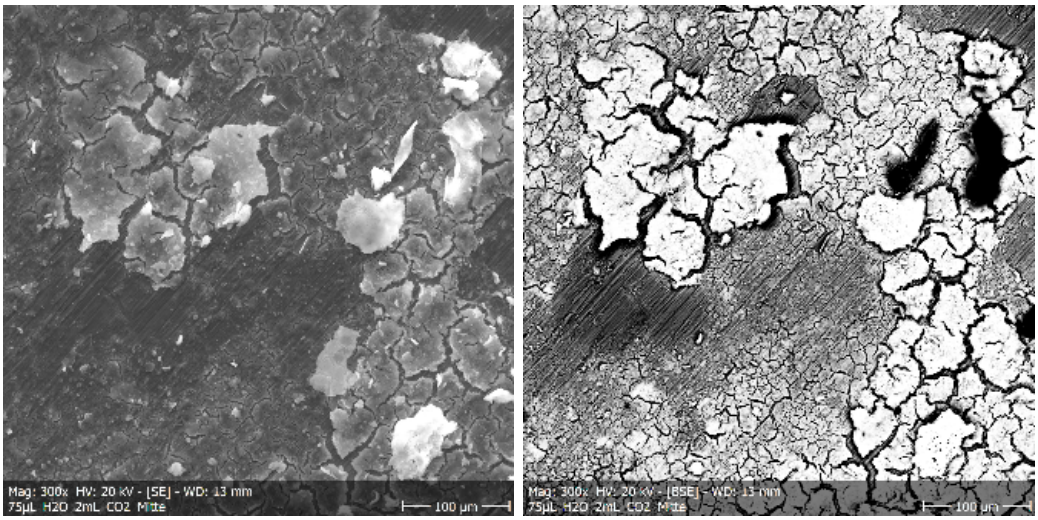


Abbildung 48: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

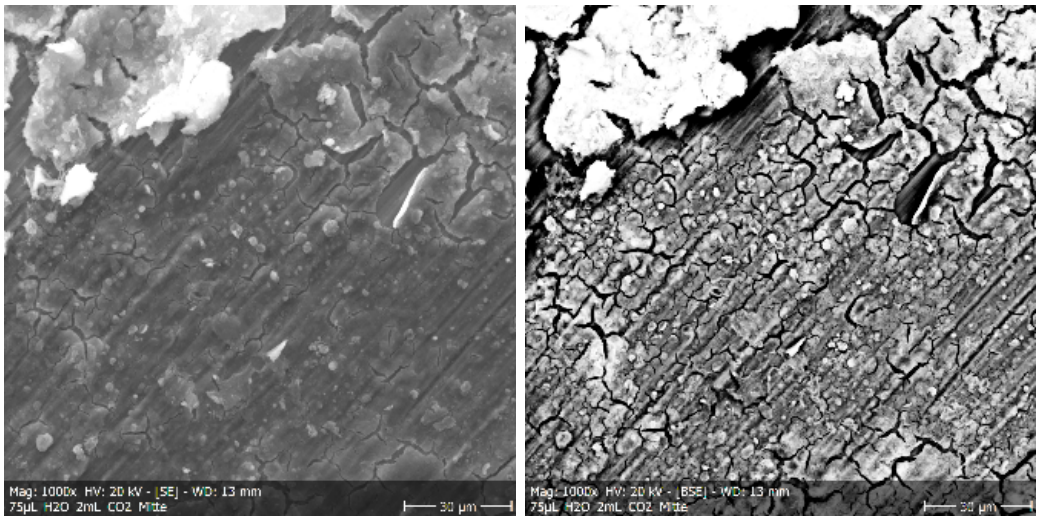


Abbildung 49: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-21 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

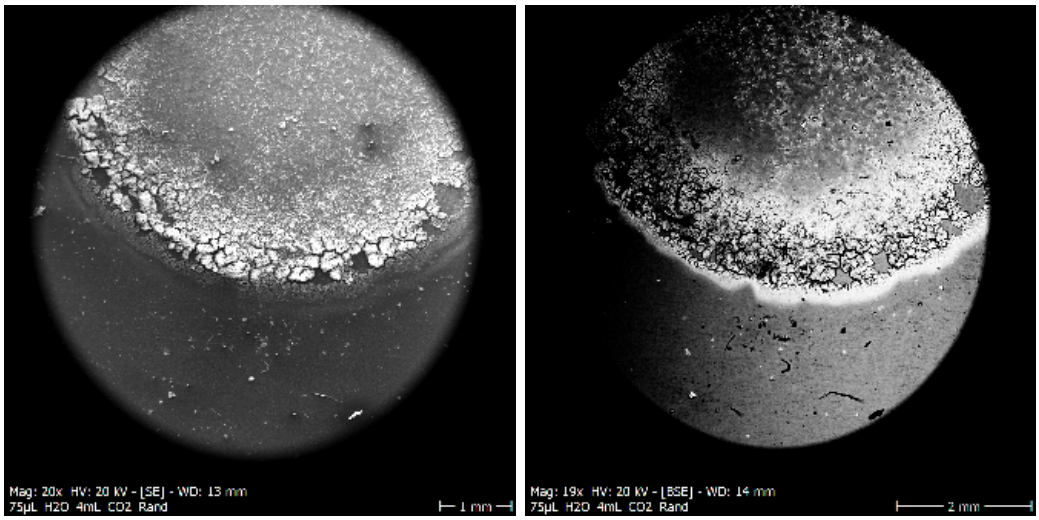


Abbildung 50: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Rand von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

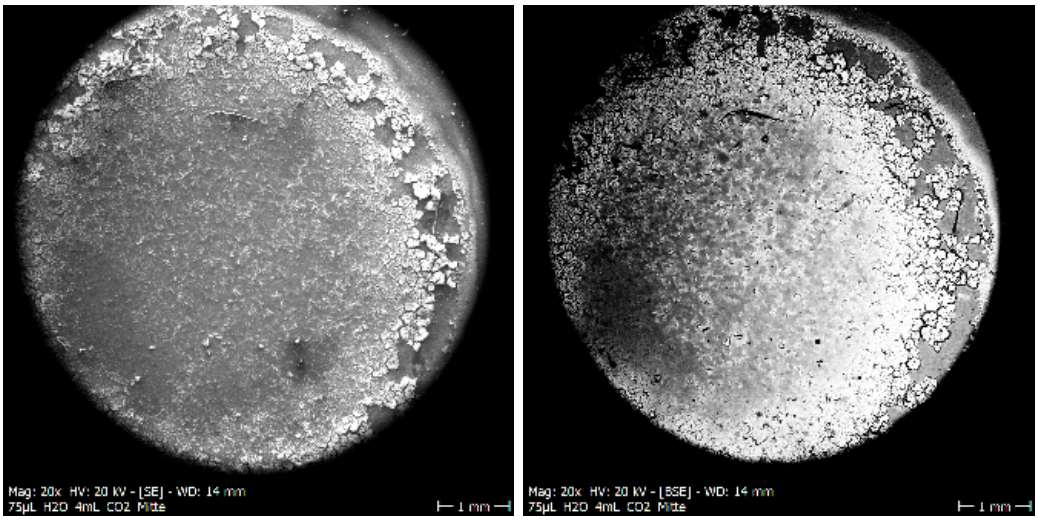


Abbildung 51: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

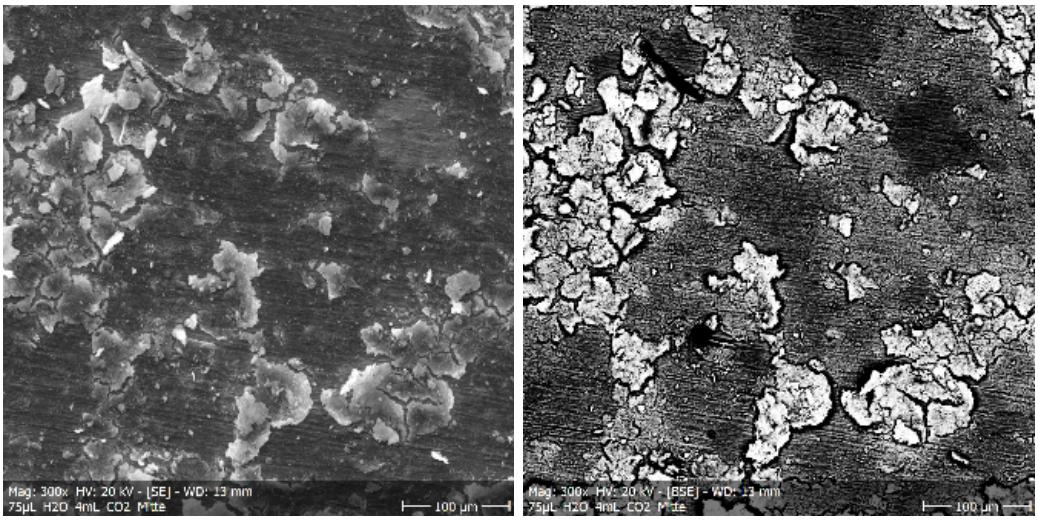


Abbildung 52: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

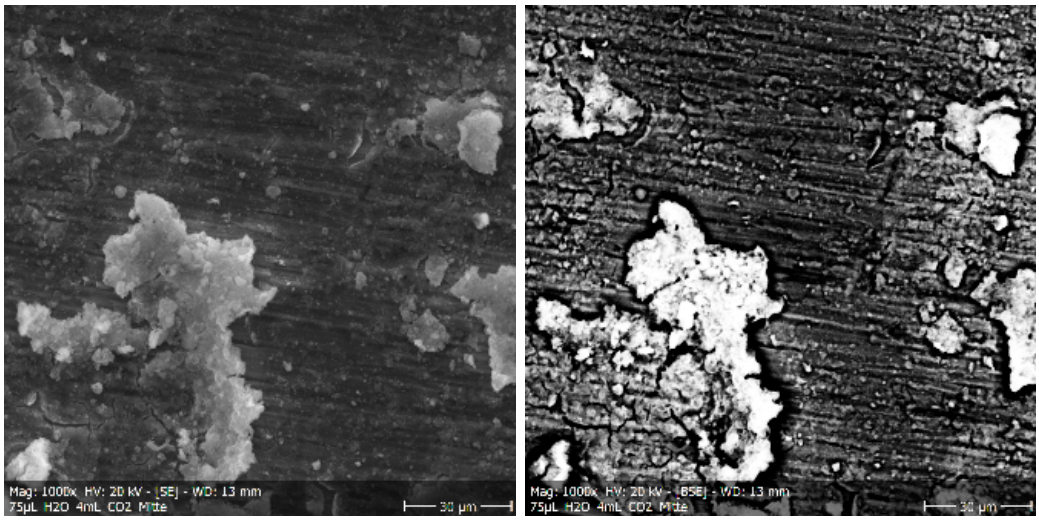


Abbildung 53: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-22 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

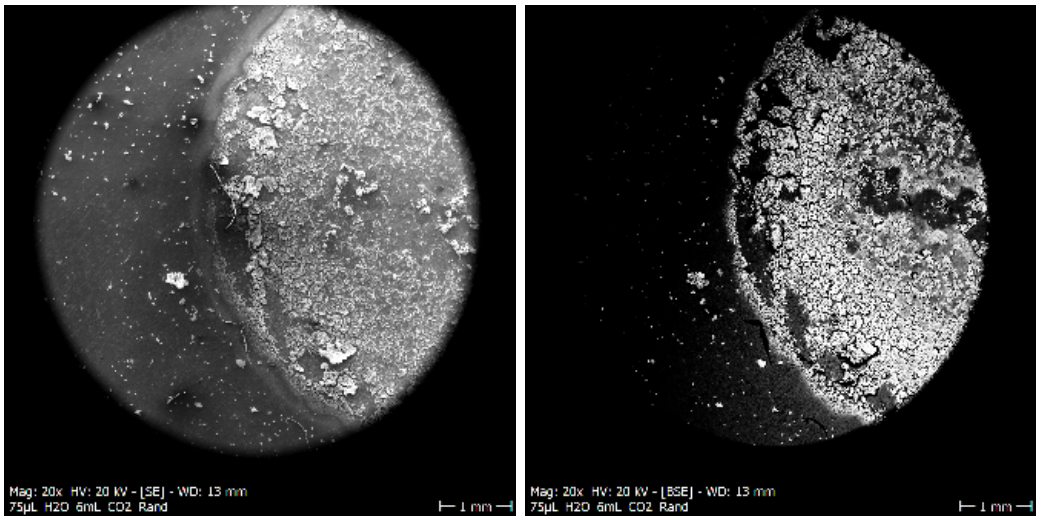


Abbildung 54: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

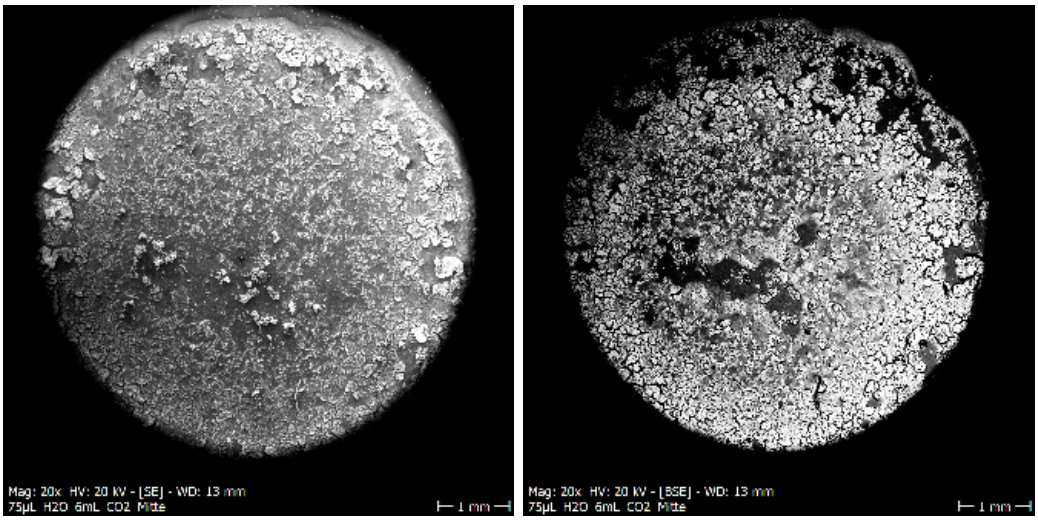


Abbildung 55: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

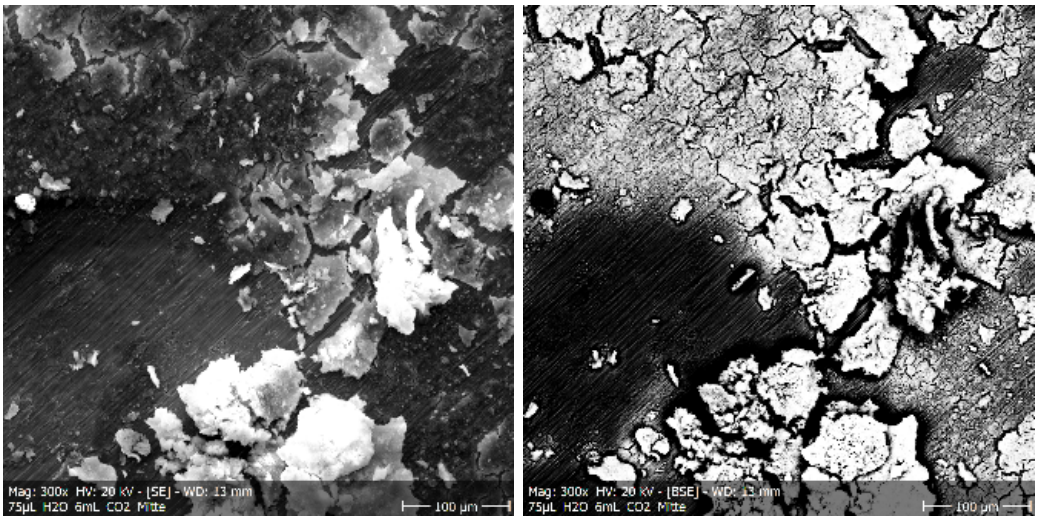


Abbildung 56: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

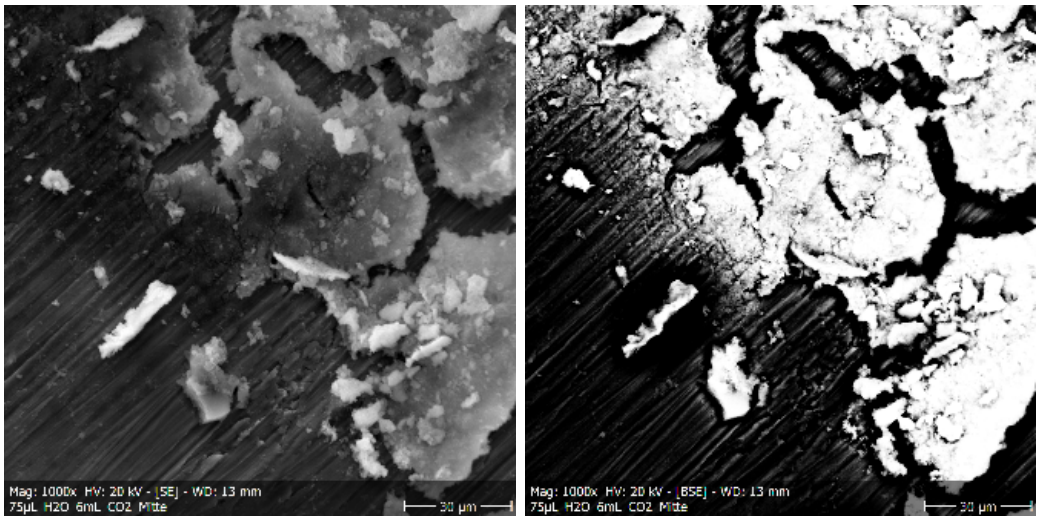


Abbildung 57: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-23 (75 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

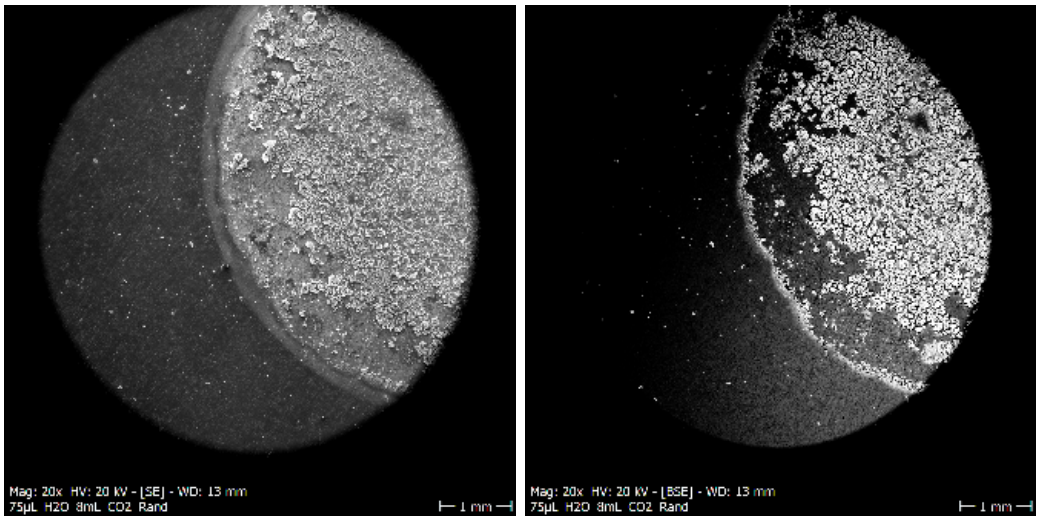


Abbildung 58: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

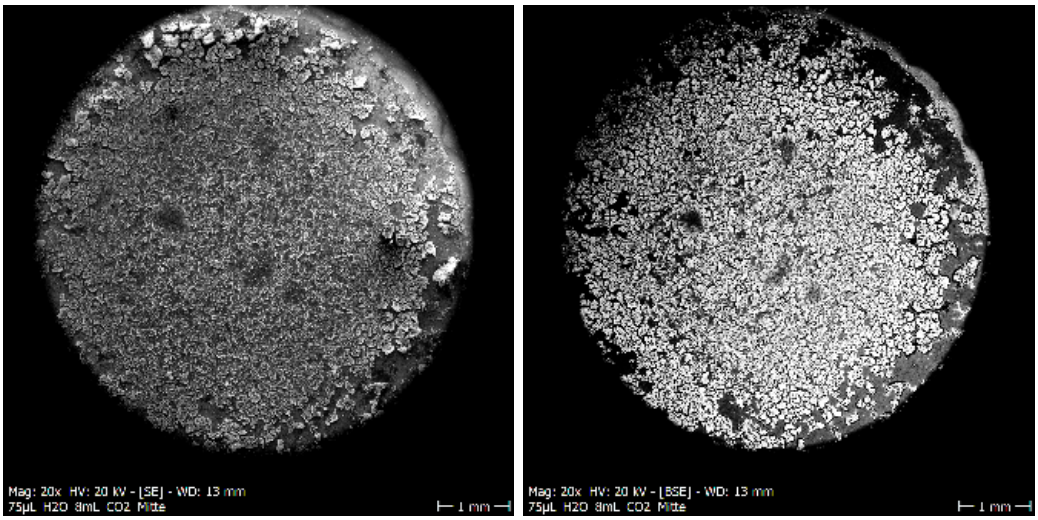


Abbildung 59: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

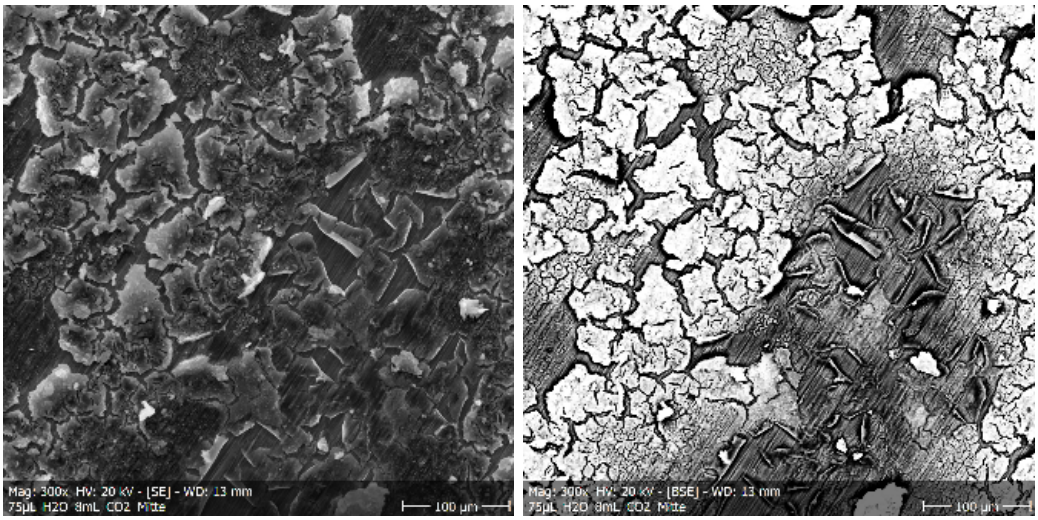


Abbildung 60: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

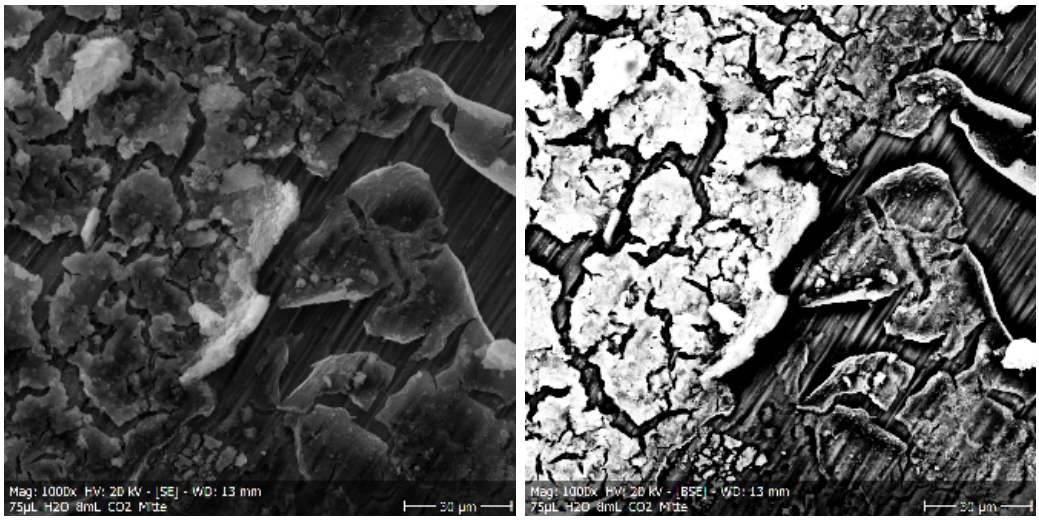


Abbildung 61: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-24 (75 μL D_2O und 8 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

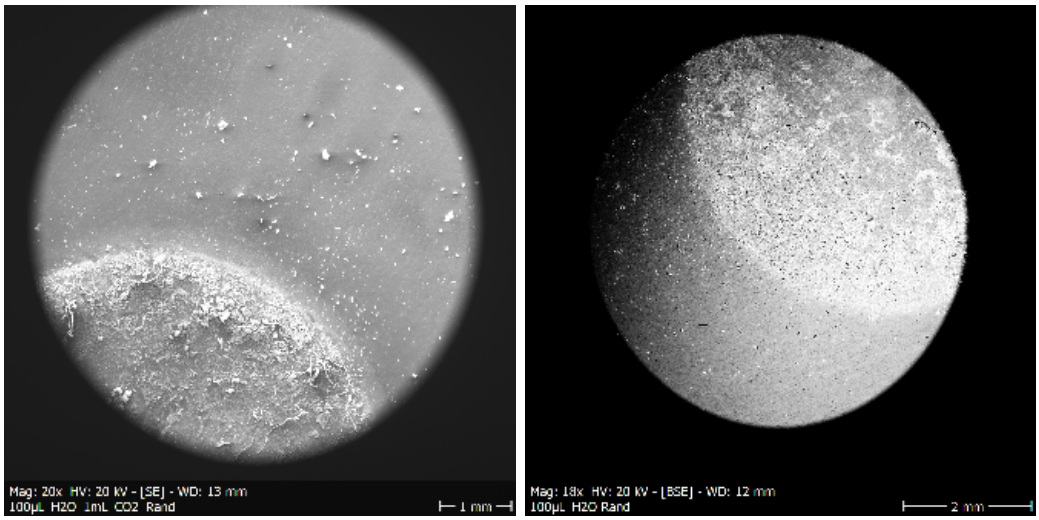


Abbildung 62: Links: SE-Bild von dem Target-Rand von RL-25 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild von dem Target-Rand von RL-25 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 18-fachen Vergrößerung.

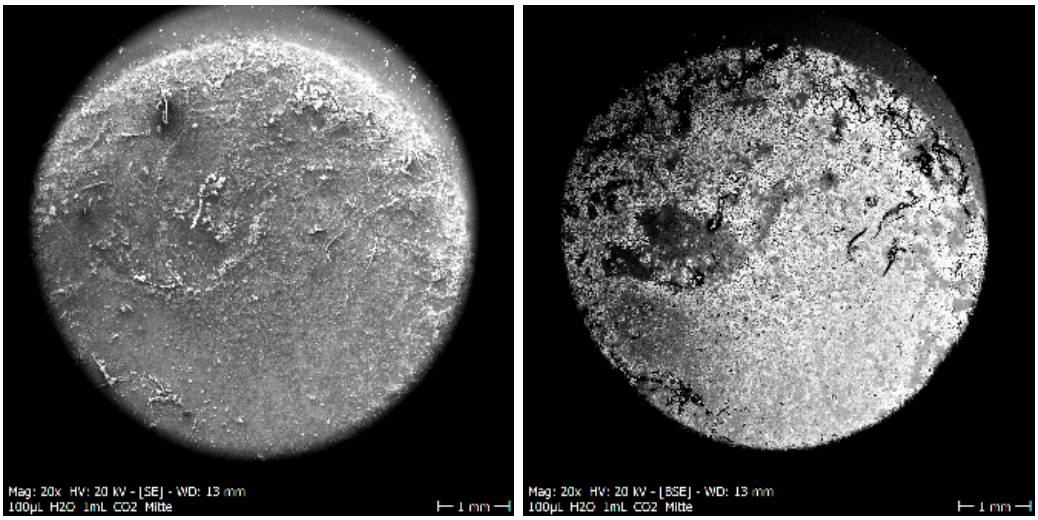


Abbildung 63: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-25 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-25 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

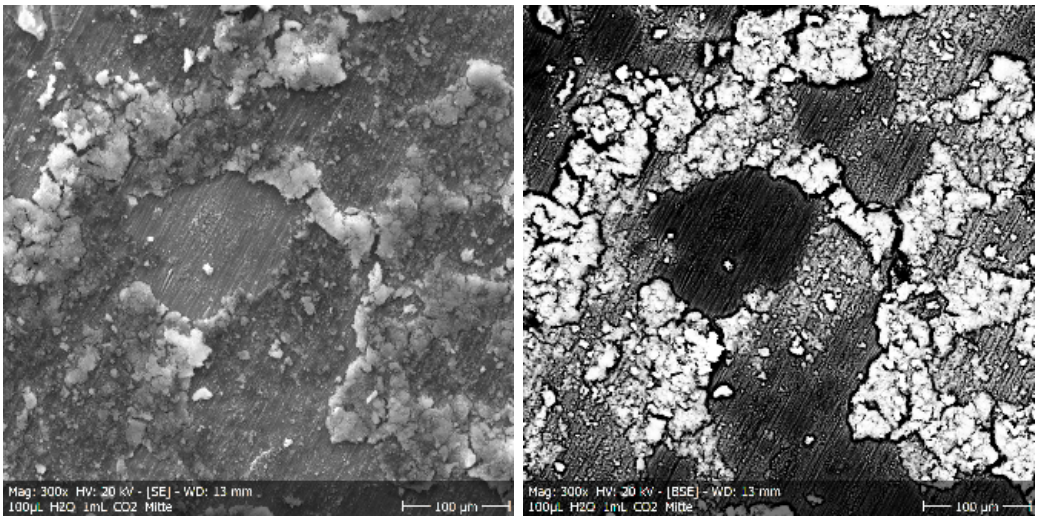


Abbildung 64: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-25 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-25 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

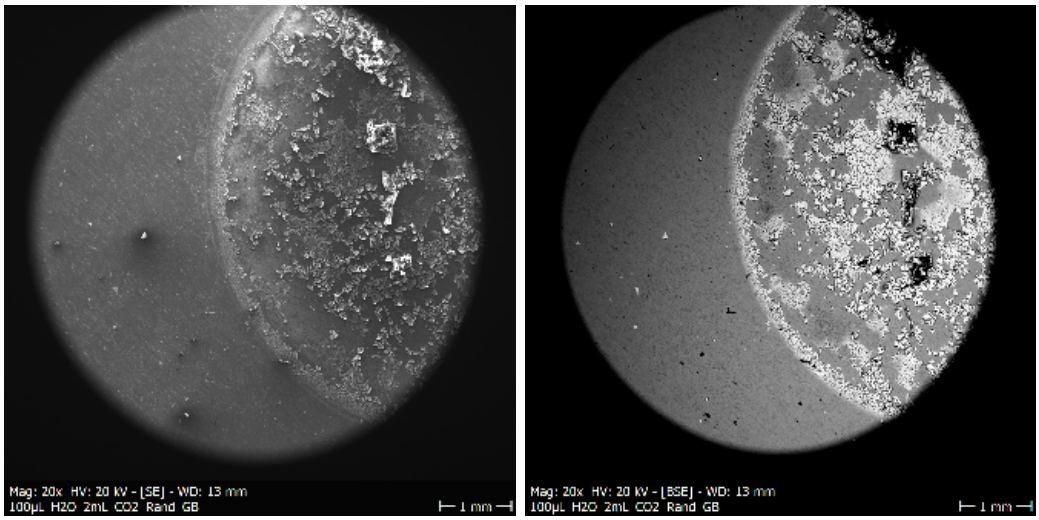


Abbildung 65: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-26 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-26 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

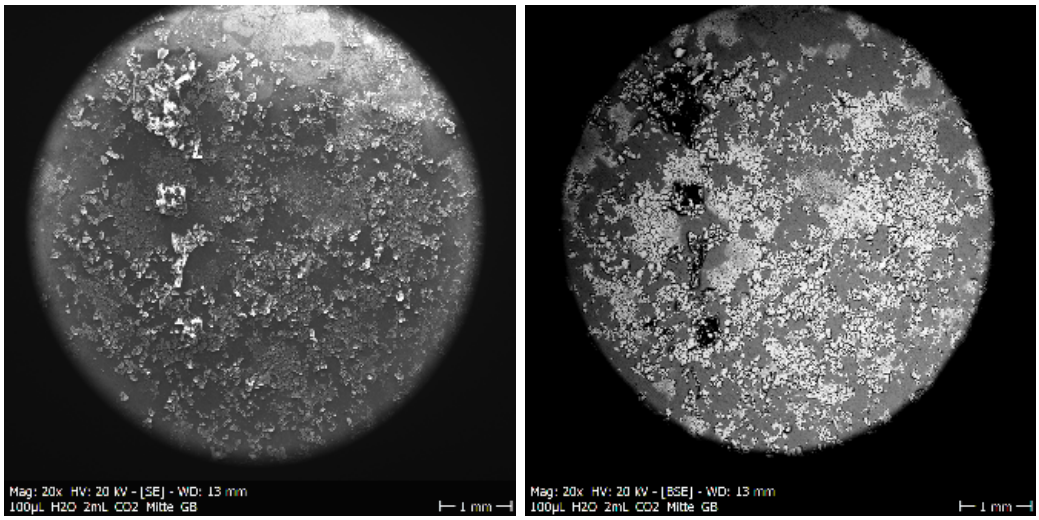


Abbildung 66: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-26 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-26 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

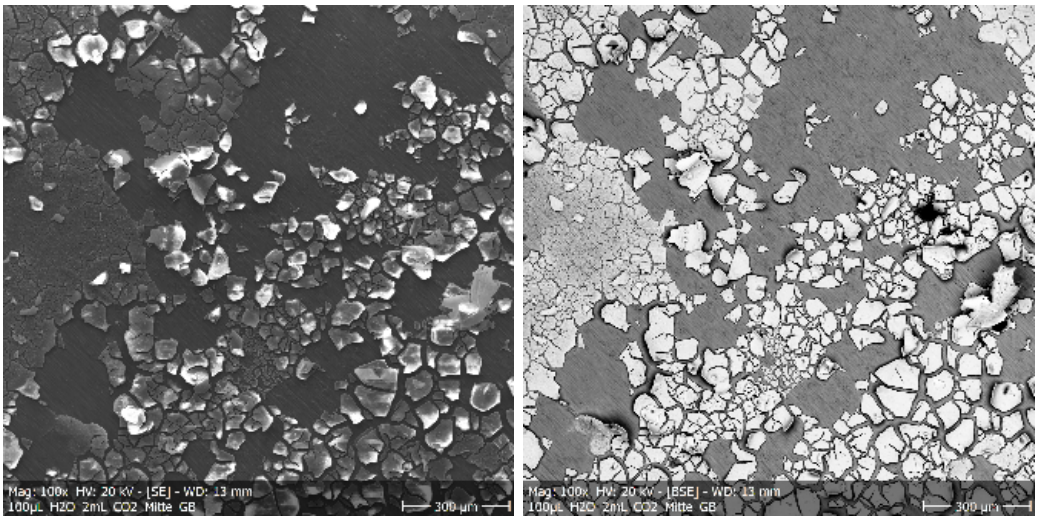


Abbildung 67: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-26 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 100-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-26 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 100-fachen Vergrößerung.

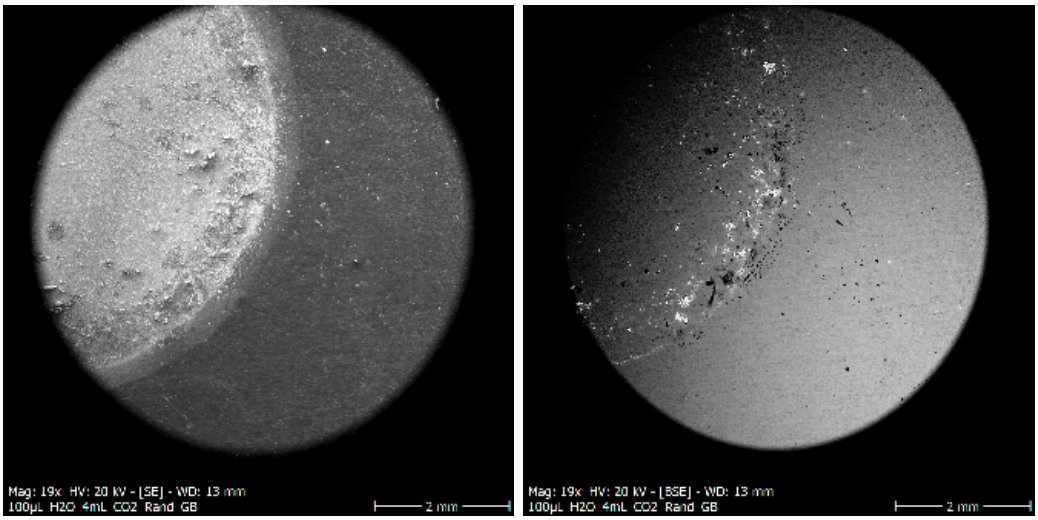


Abbildung 68: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

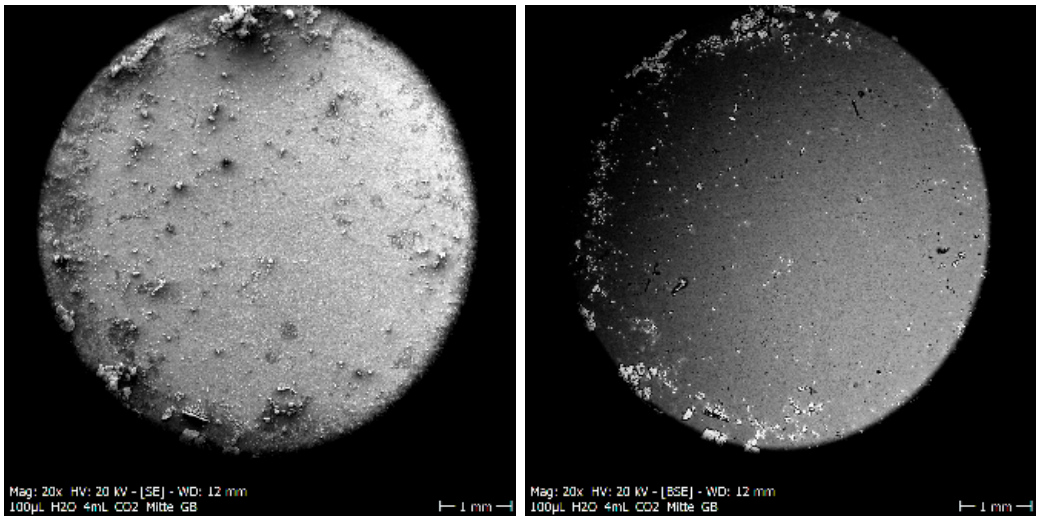


Abbildung 69: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

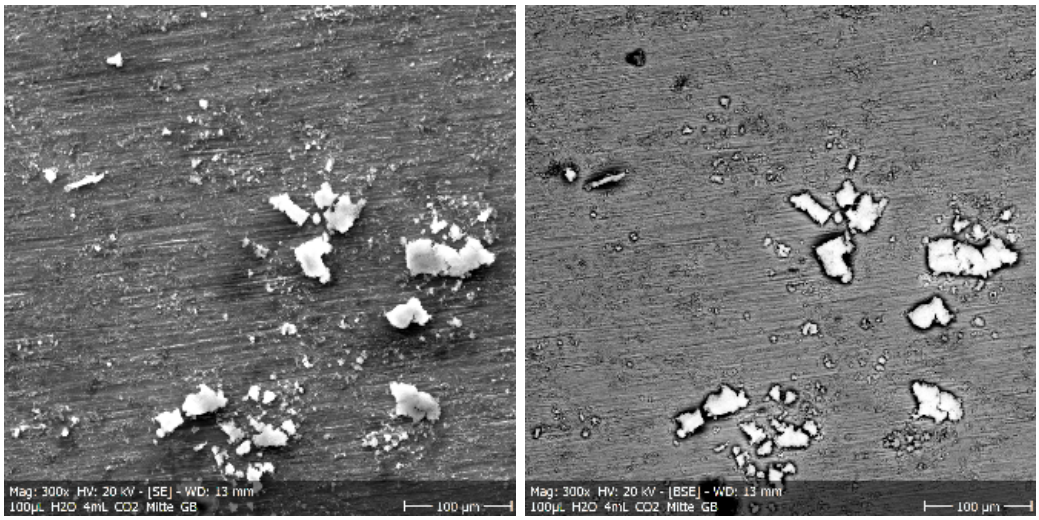


Abbildung 70: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

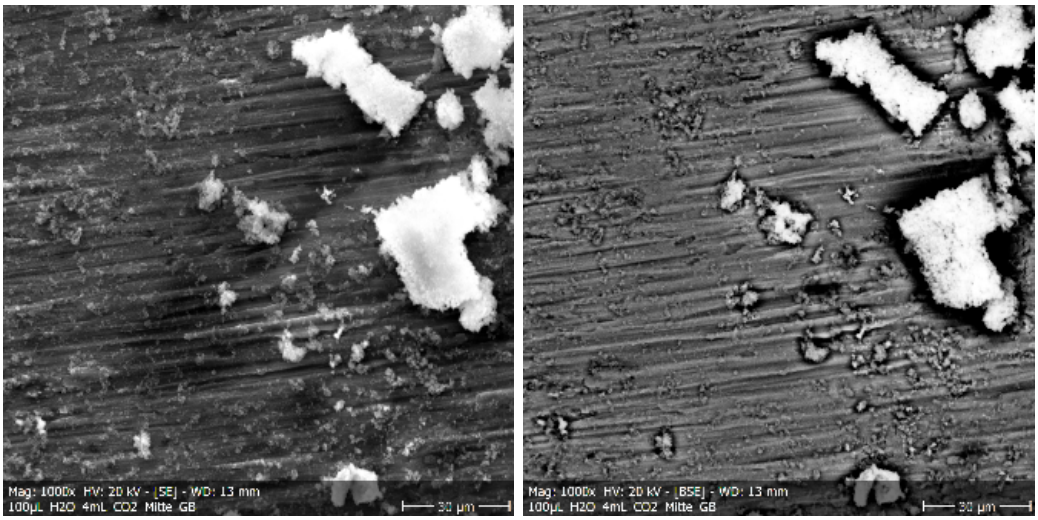


Abbildung 71: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-27 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

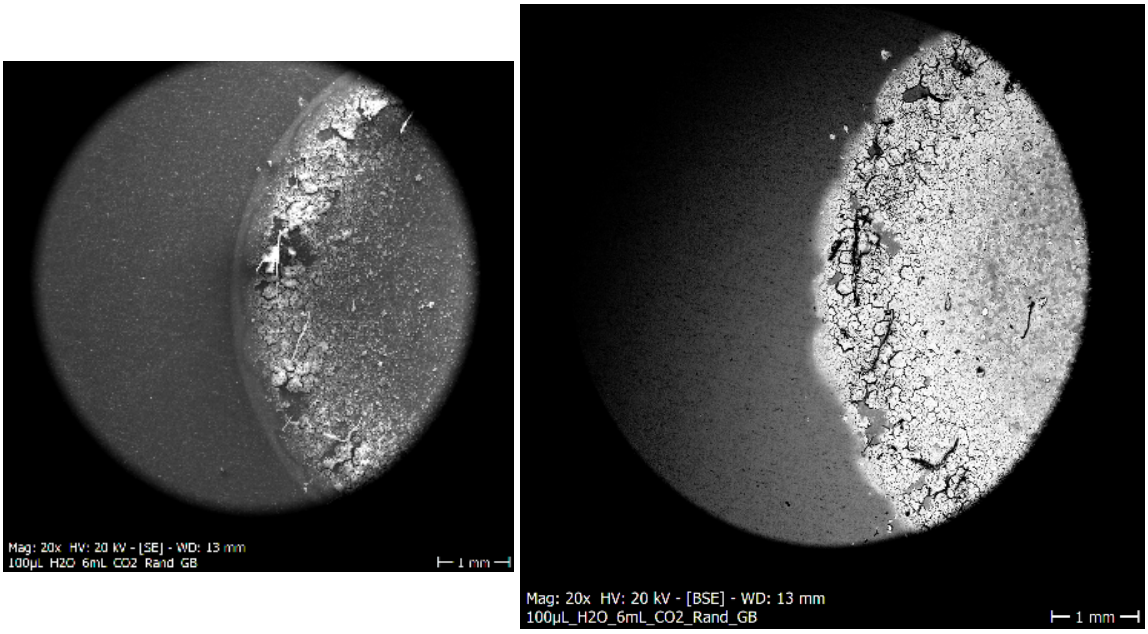


Abbildung 72: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-28 (100 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-28 (100 μL D_2O und 6 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

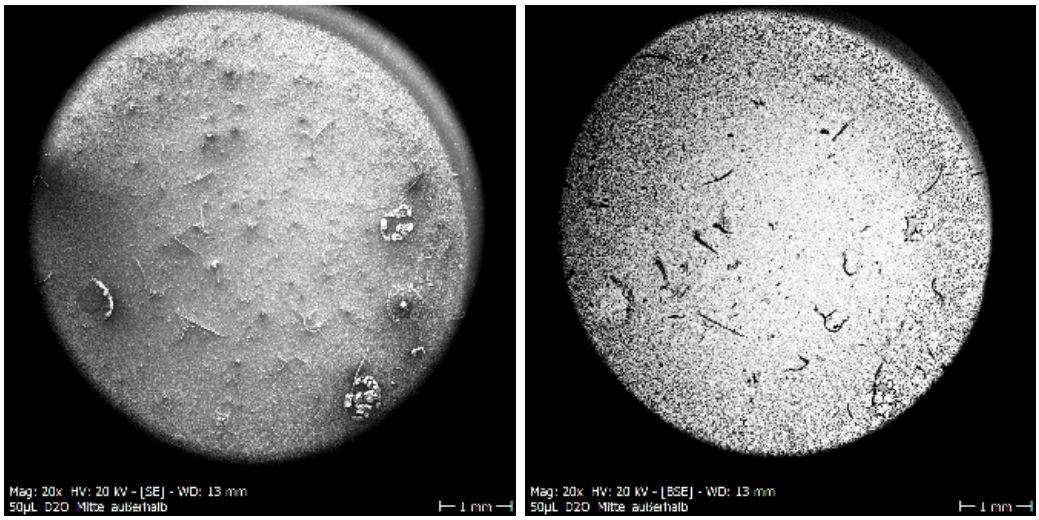


Abbildung 73: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-30 (50 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-30 RL-30 (50 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

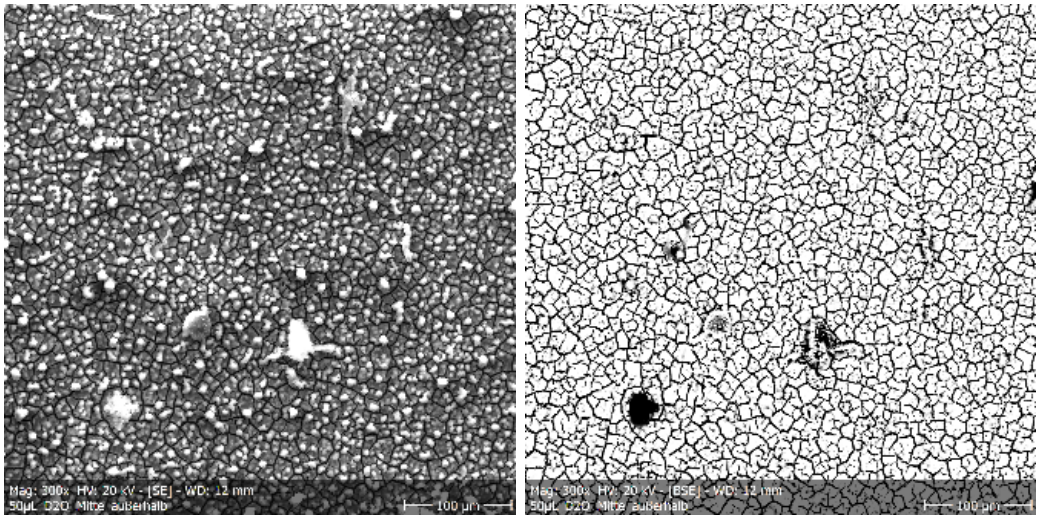


Abbildung 74: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-30 RL-30 (50 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-30 RL-30 (50 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

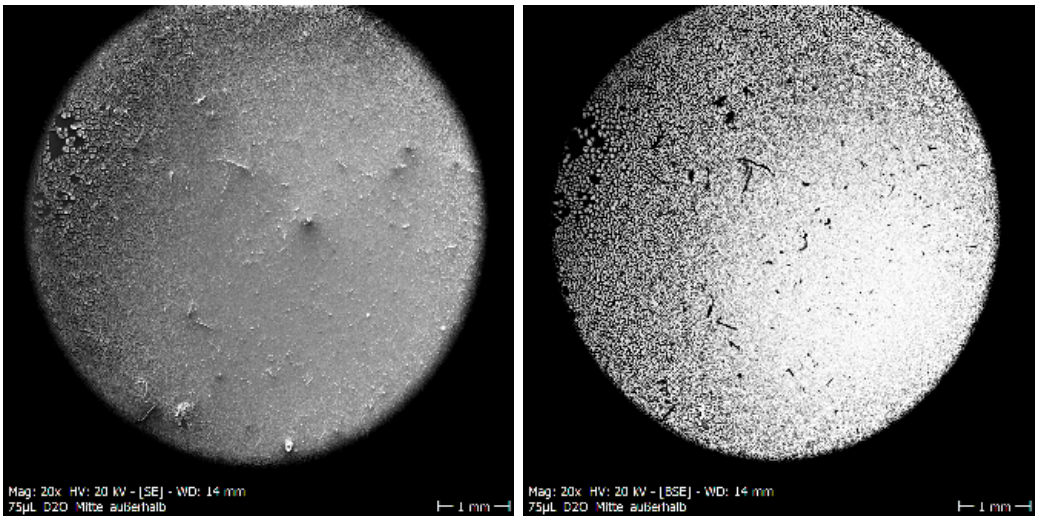


Abbildung 75: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-31 (75 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-31 (75 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

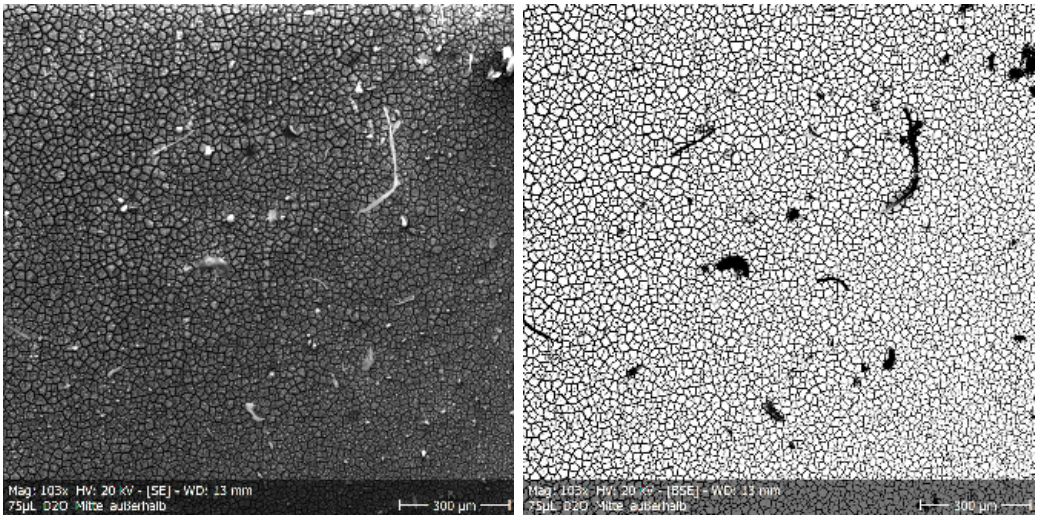


Abbildung 76: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-31 (75 μL D_2O) bei einer 103-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-31 (75 μL D_2O) bei einer 103-fachen Vergrößerung.

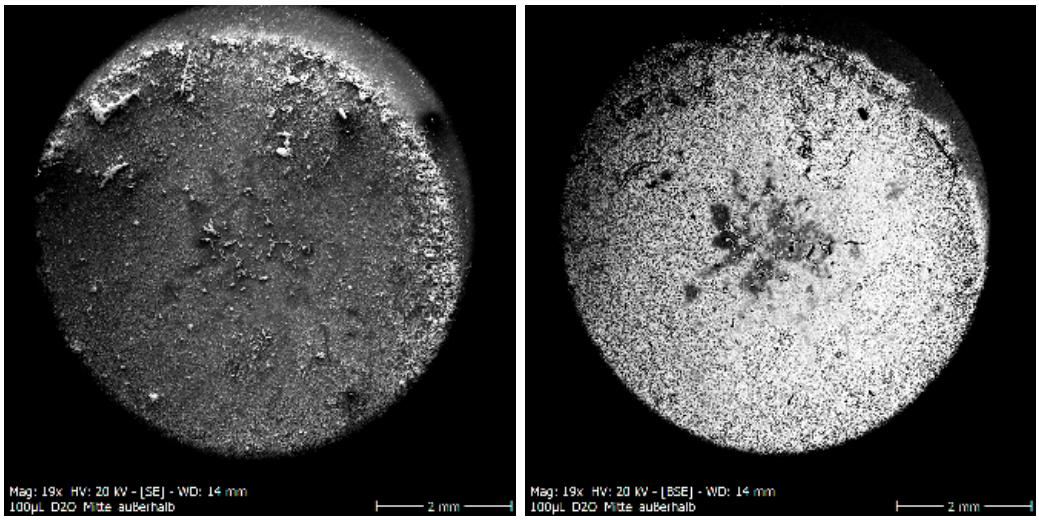


Abbildung 77: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-32 (100 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-32 (100 μL D_2O) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

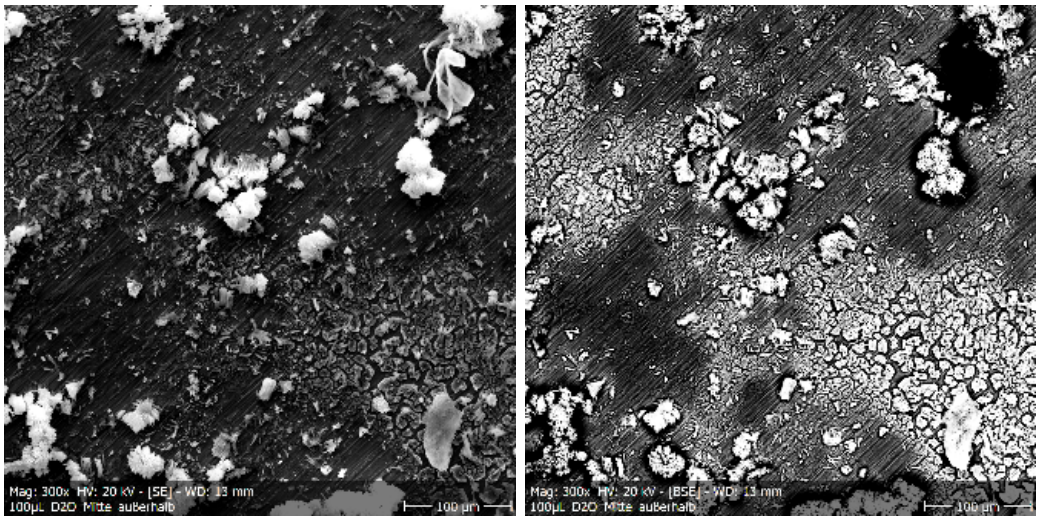


Abbildung 78: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-32 (100 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-32 (100 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

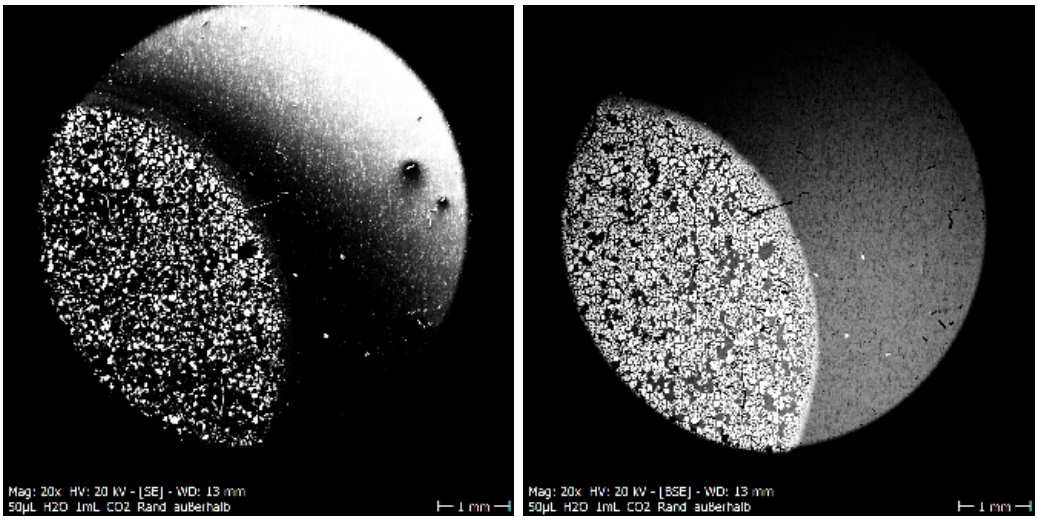


Abbildung 79: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-33 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-33 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

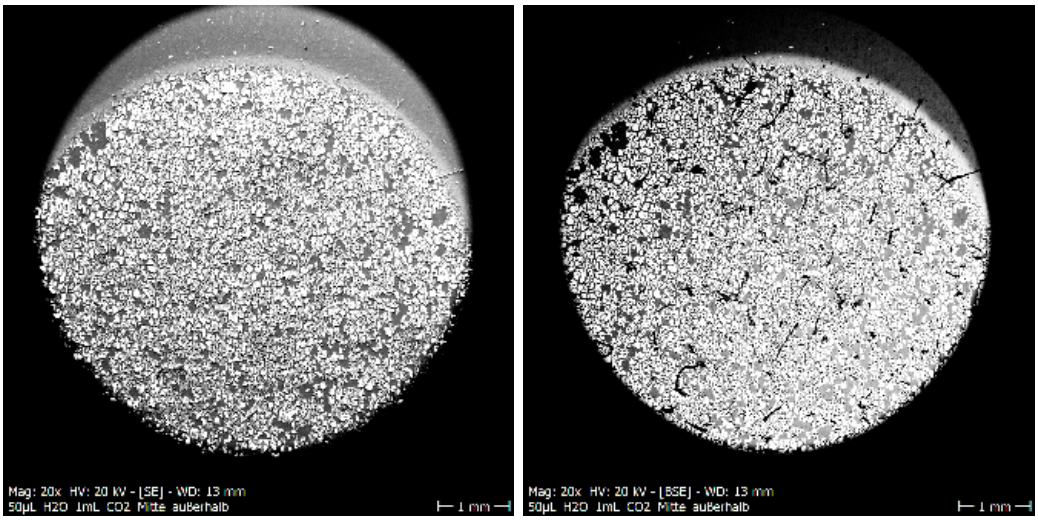


Abbildung 80: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-33 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-33 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

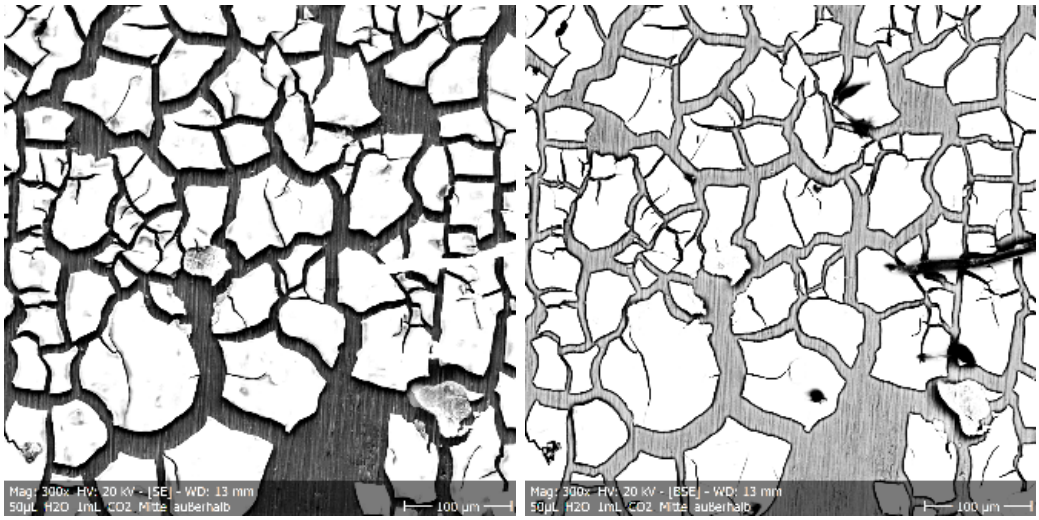


Abbildung 81: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-33 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-33 (50 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

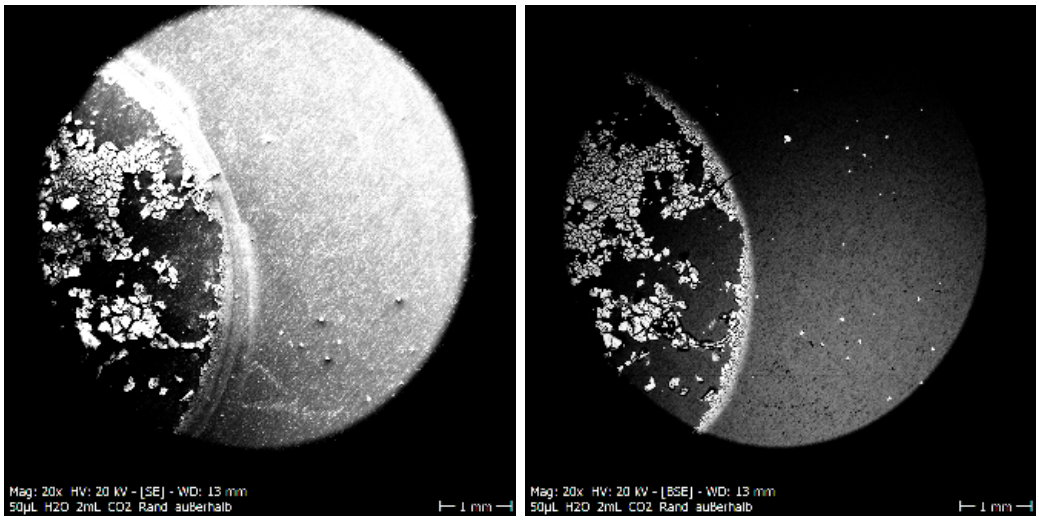


Abbildung 82: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-34 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-34 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

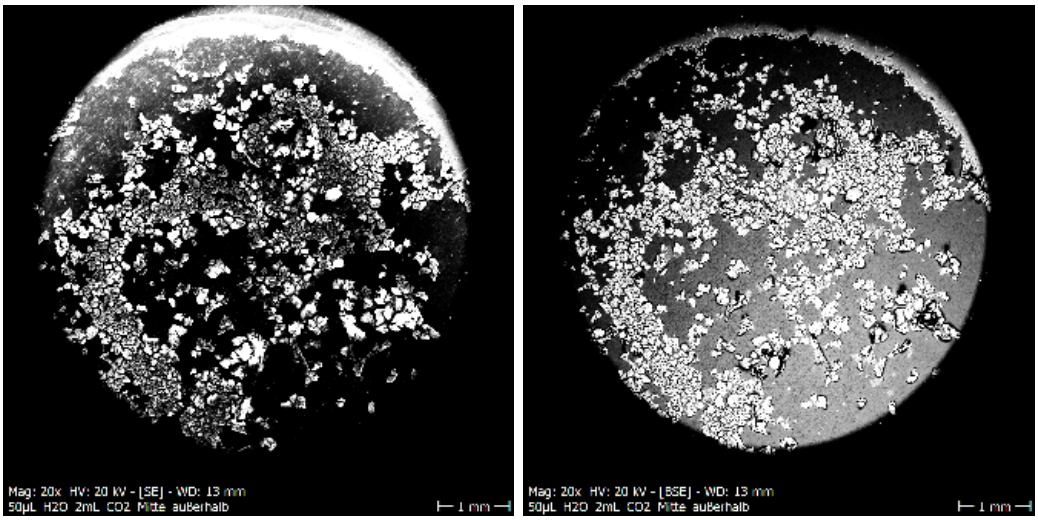


Abbildung 83: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-34 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Taget-Mitte von RL-34 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

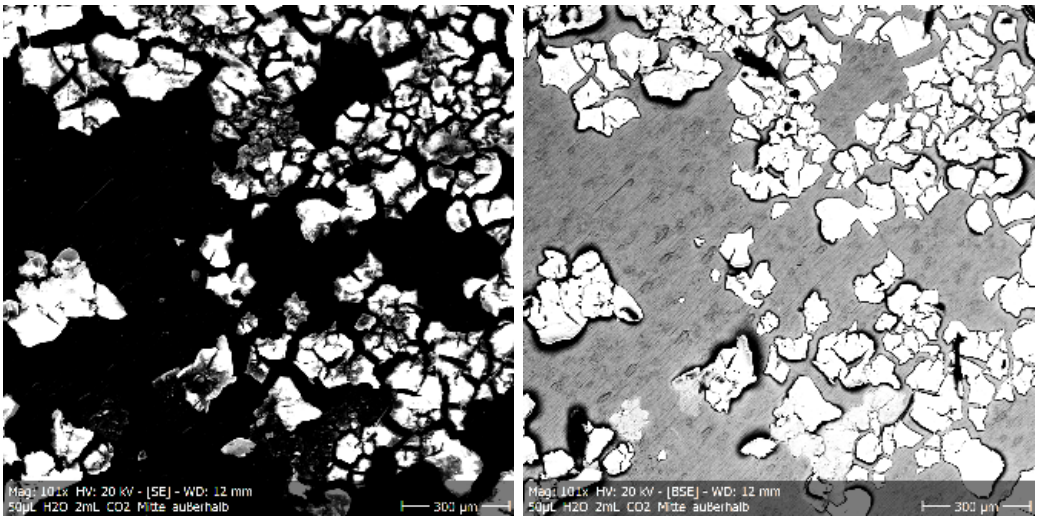


Abbildung 84: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-34 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-34 (50 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

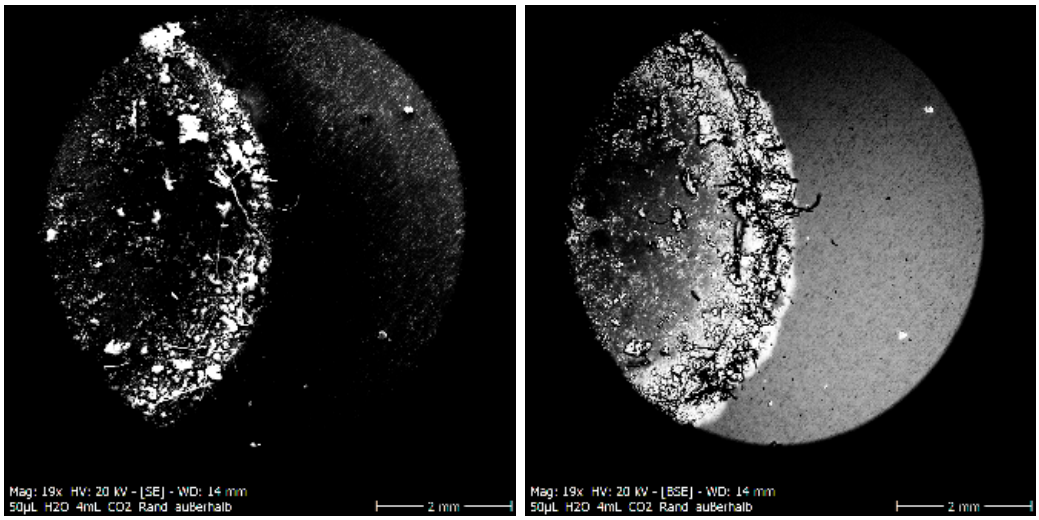


Abbildung 85: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-35 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-35 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

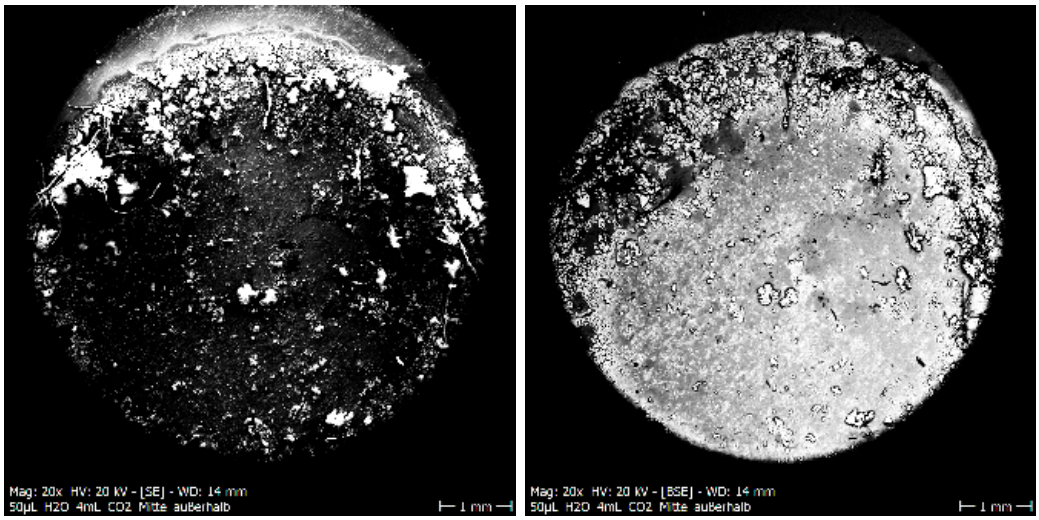


Abbildung 86: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-35 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-35 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

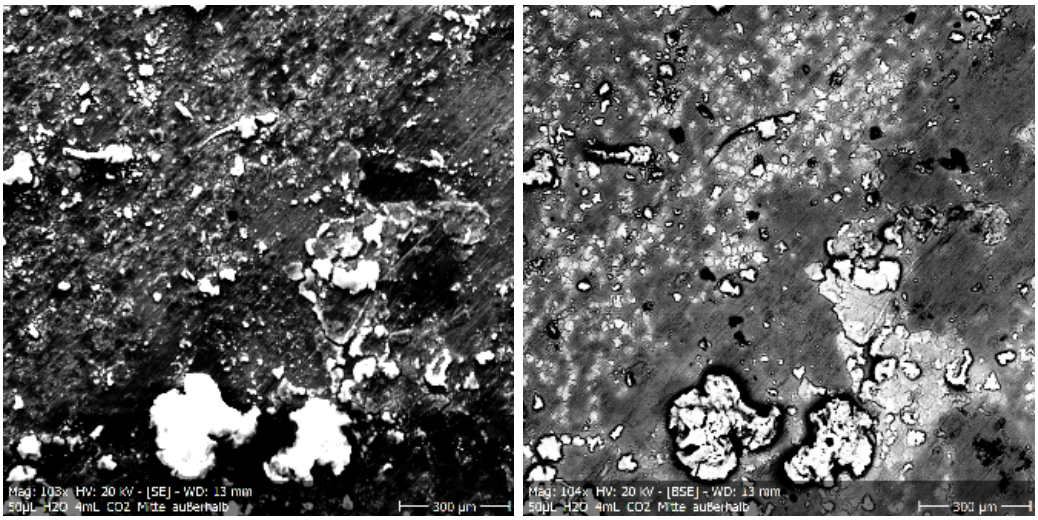


Abbildung 87: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-35 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-35 (50 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

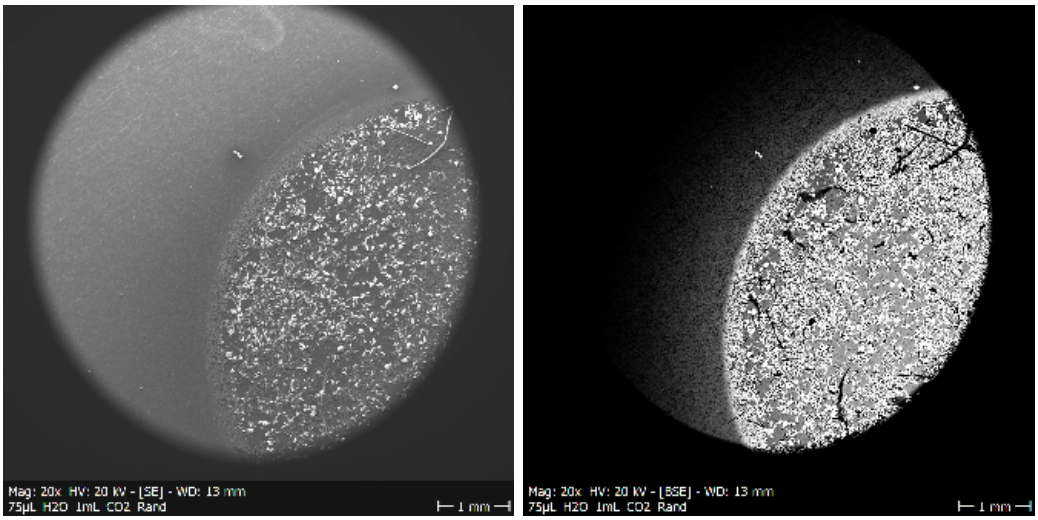


Abbildung 88: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-36 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-36 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

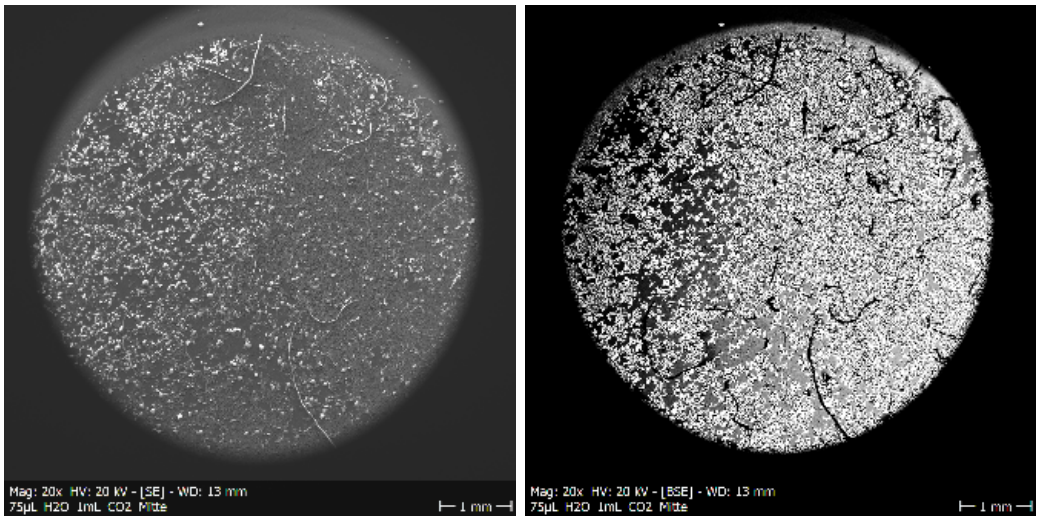


Abbildung 89: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-36 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-36 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

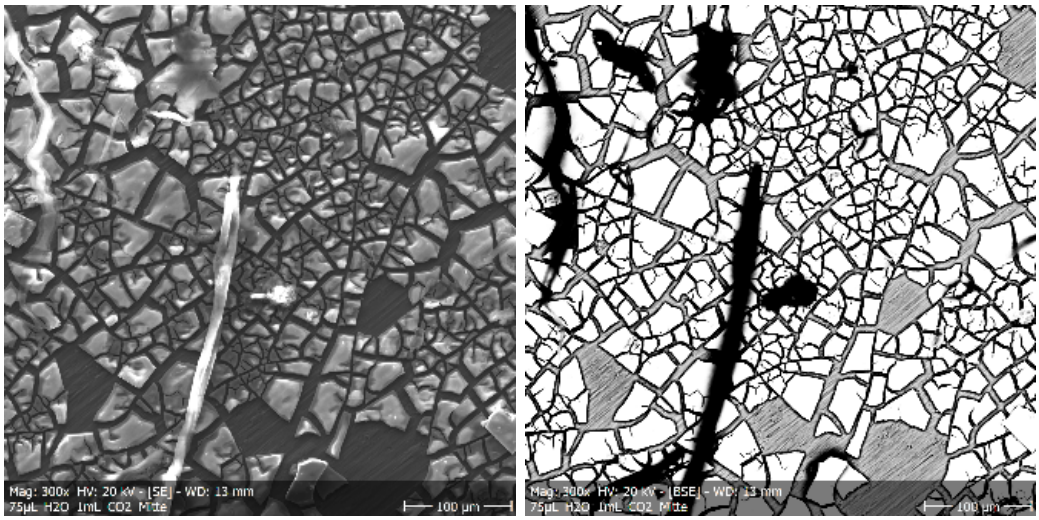


Abbildung 90: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-36 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-36 (75 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

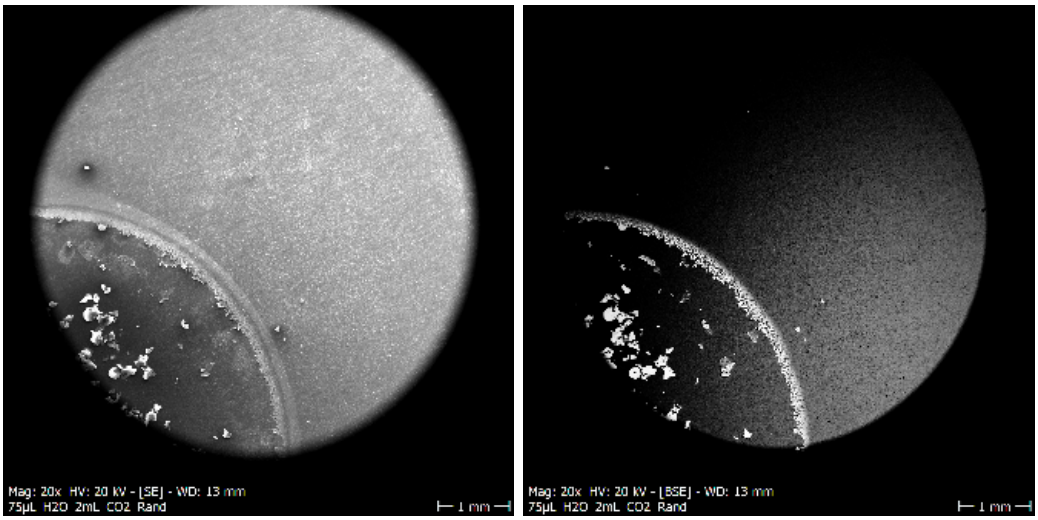


Abbildung 91: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-37 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-37 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

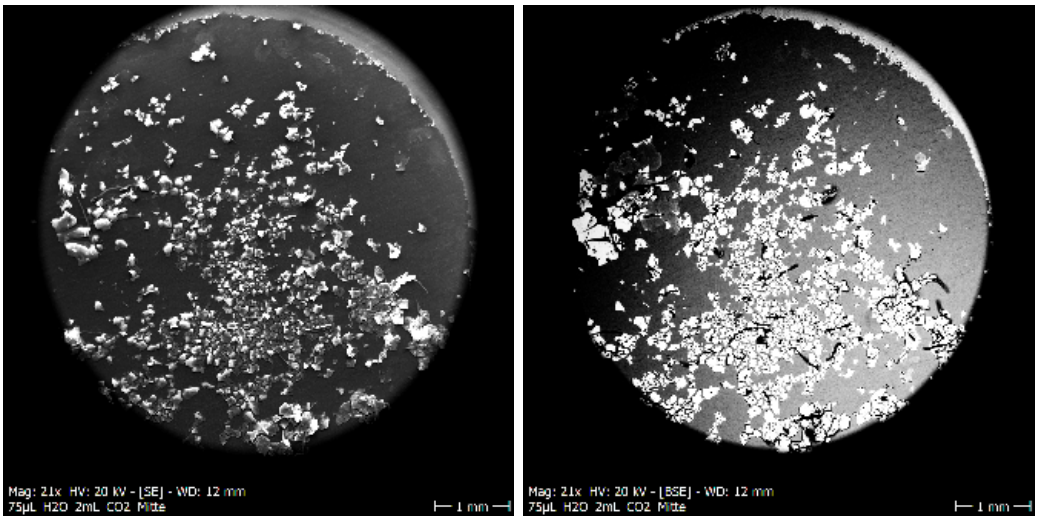


Abbildung 92: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-37 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 21-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-37 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 21-fachen Vergrößerung.

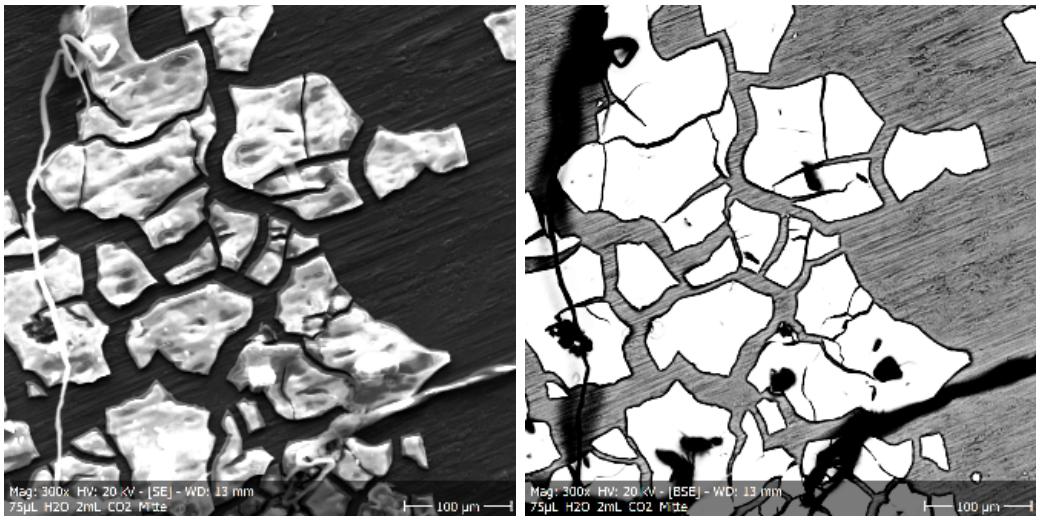


Abbildung 93: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-37 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-37 (75 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

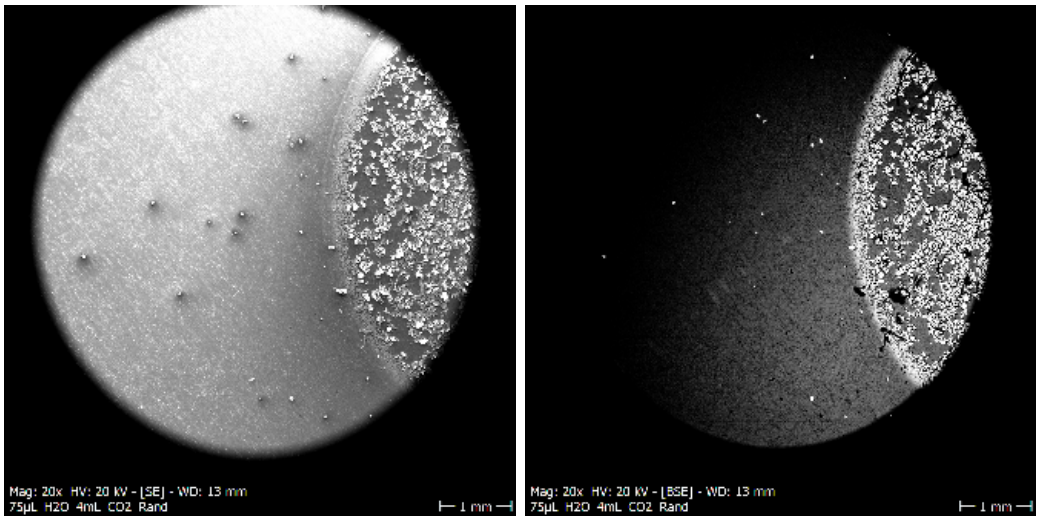


Abbildung 94: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-38 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-38 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

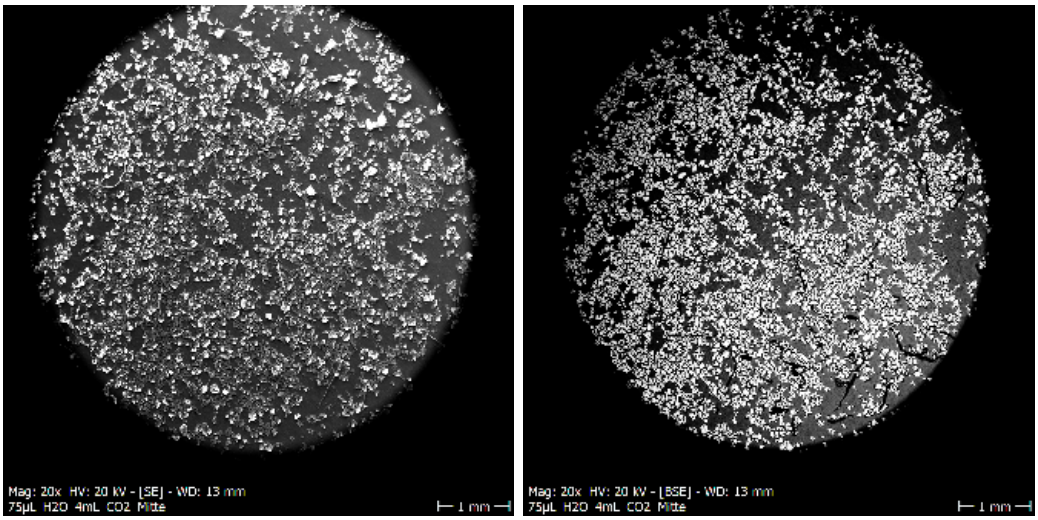


Abbildung 95: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-38 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-38 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

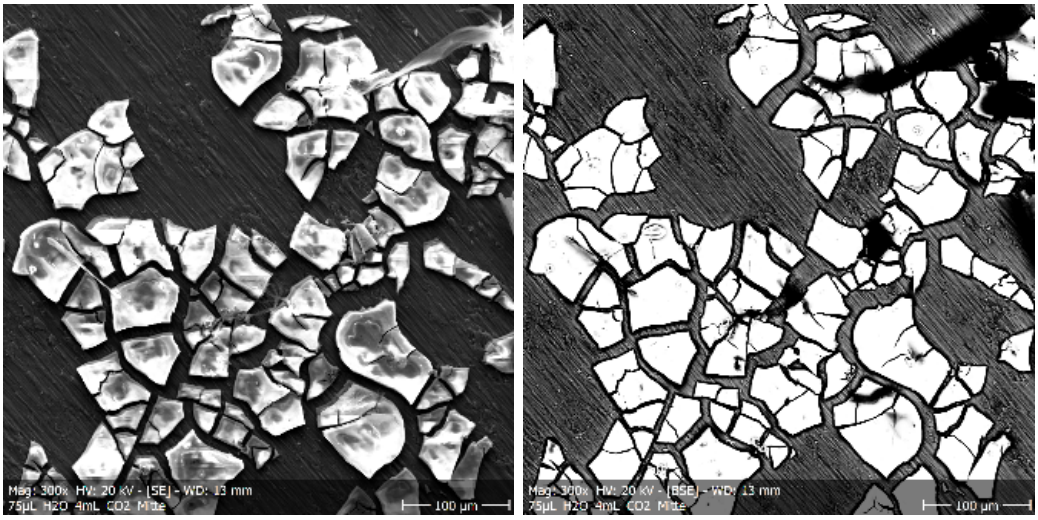


Abbildung 96: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-38 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-38 (75 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

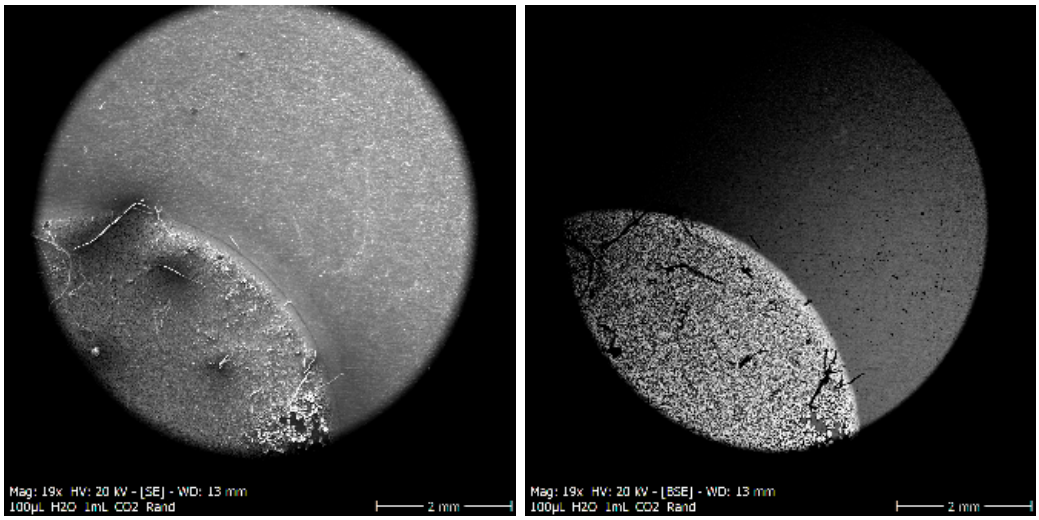


Abbildung 97: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-39 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-39 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

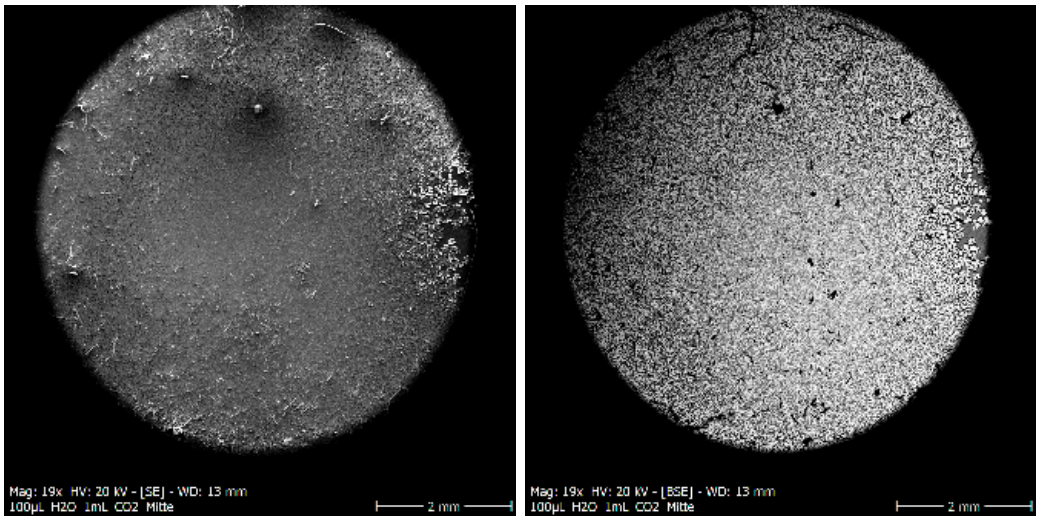


Abbildung 98: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-39 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-39 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 19-fachen Vergrößerung.

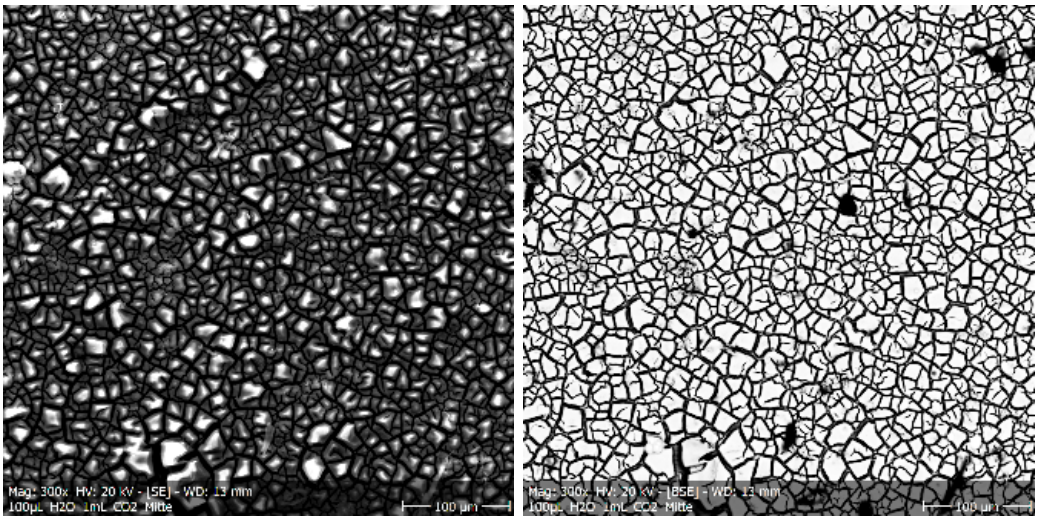


Abbildung 99: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-39 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-39 (100 μL D_2O und 1 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

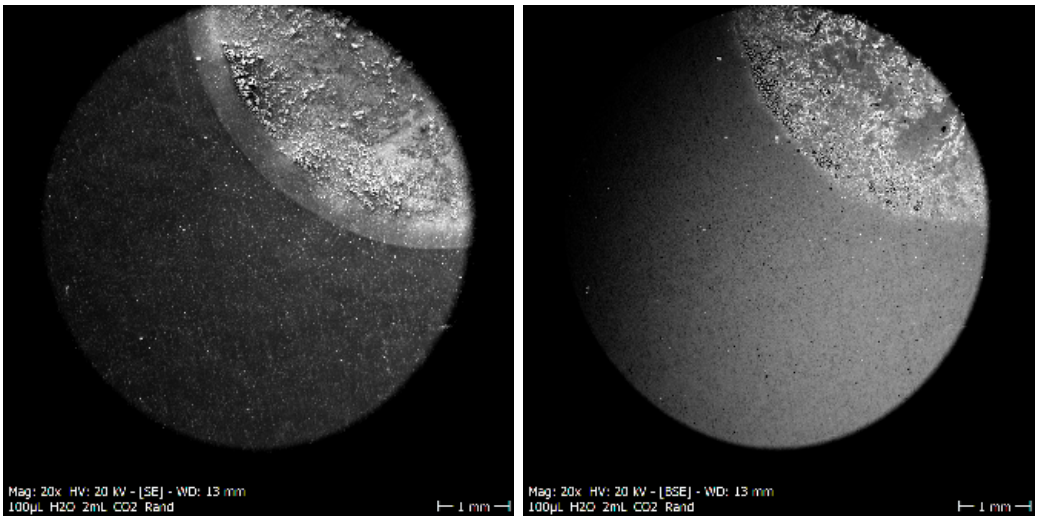


Abbildung 100: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

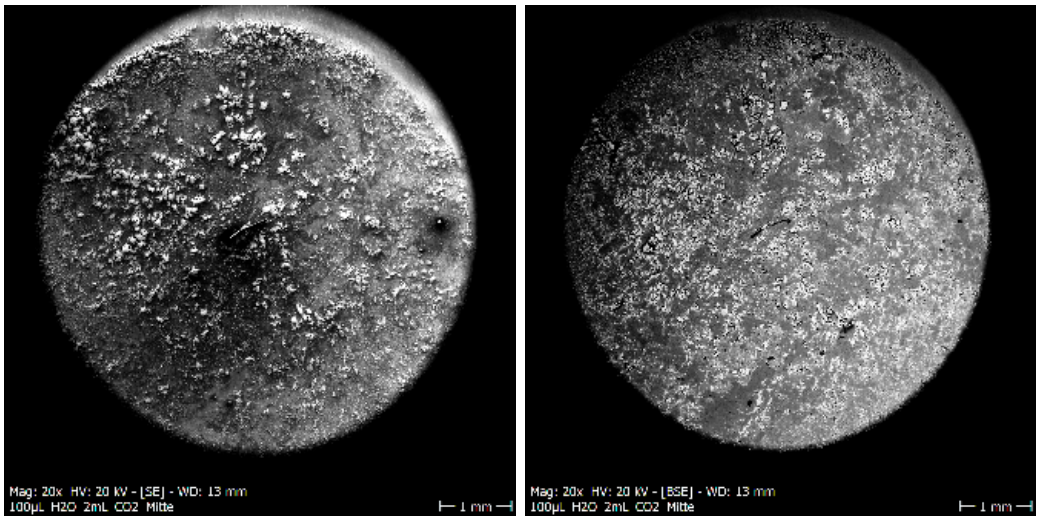


Abbildung 101: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

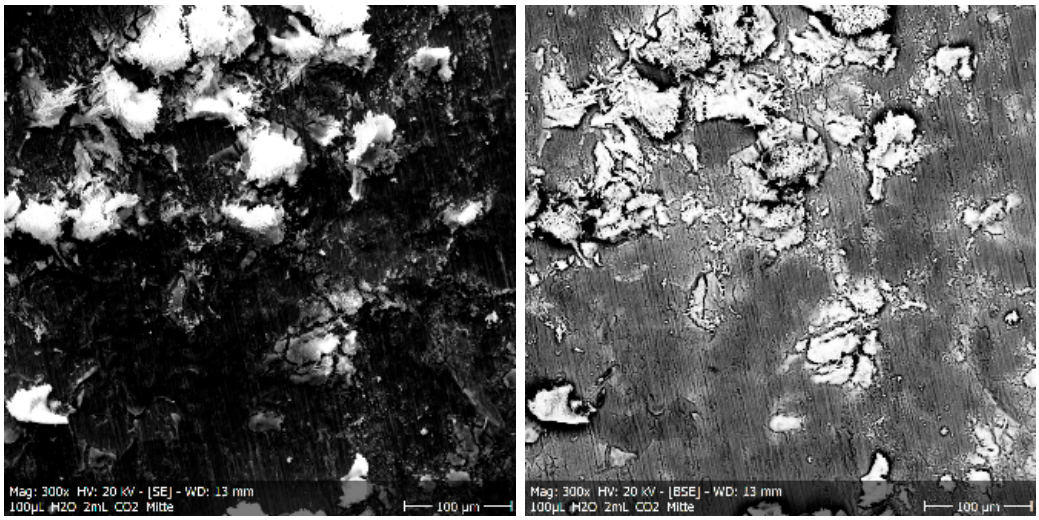


Abbildung 102: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

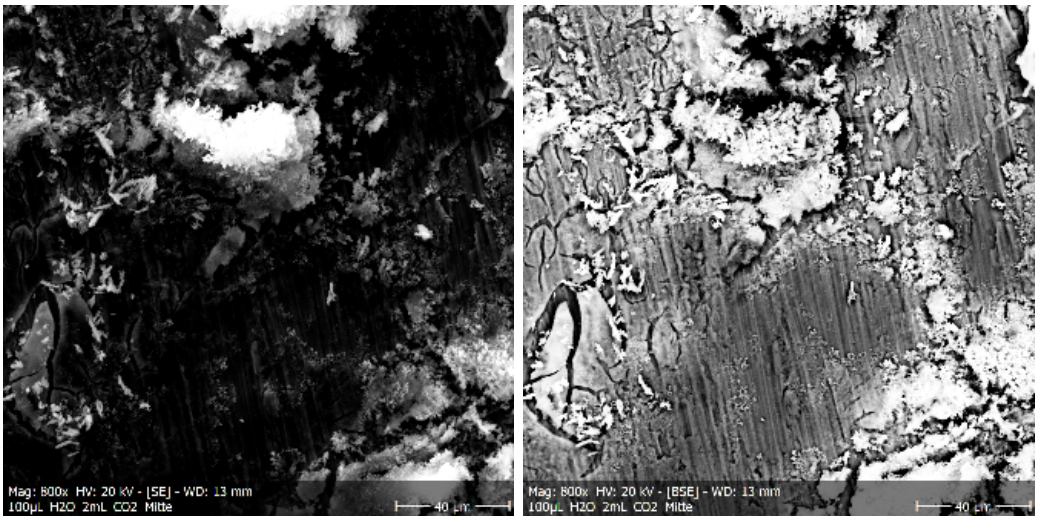


Abbildung 103: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 800-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-40 (100 μL D_2O und 2 mL CO_2) bei einer 800-fachen Vergrößerung.

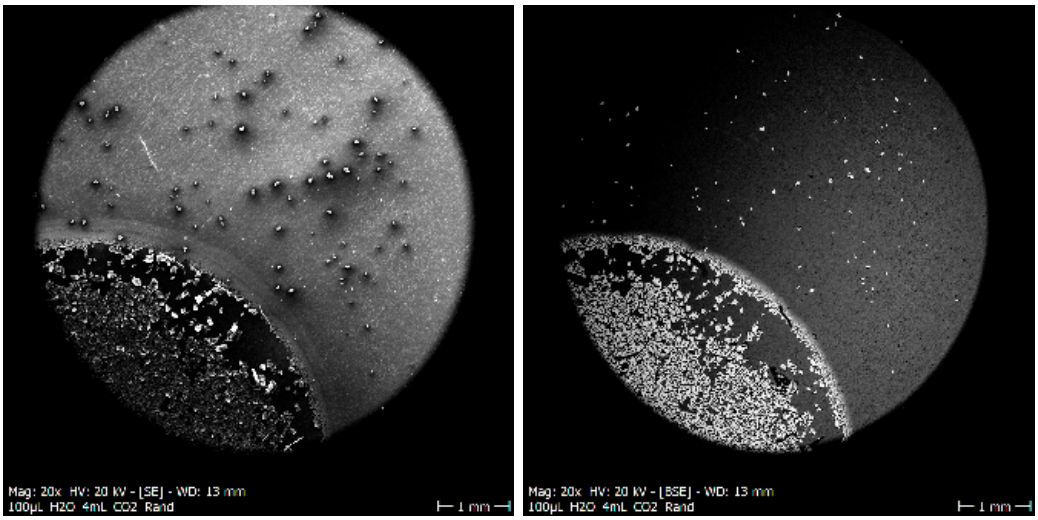


Abbildung 104: Links: SE-Aufnahme des Target-Randes von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme des Target-Randes von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

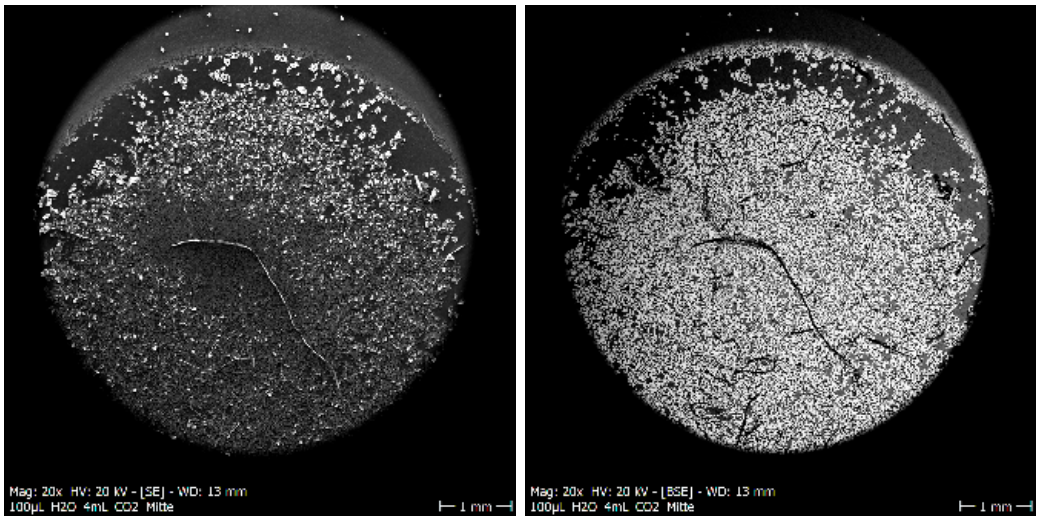


Abbildung 105: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

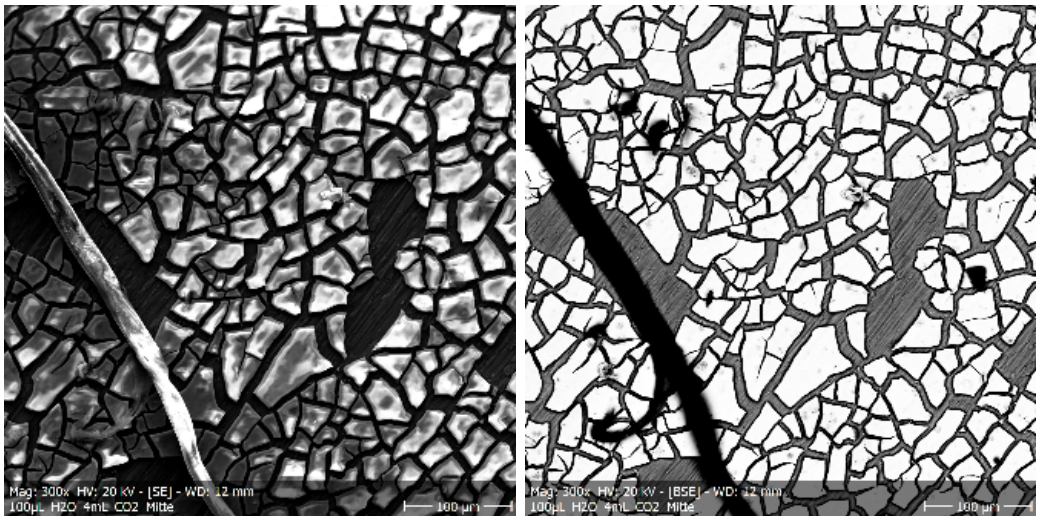


Abbildung 106: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

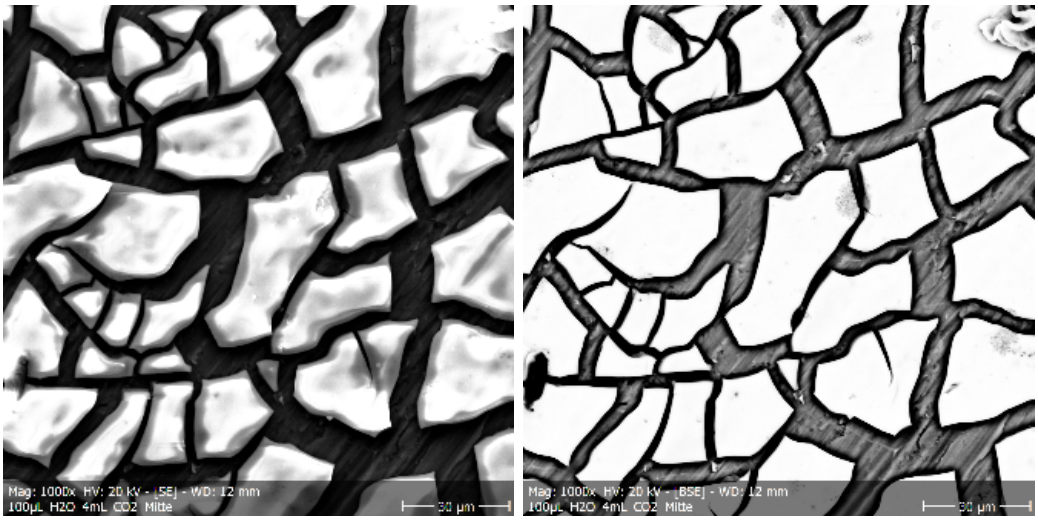


Abbildung 107: Links: SE-Aufnahme der Target-Mitte von RL-41 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Aufnahme der Target-Mitte von von RL-40 (100 μL D_2O und 4 mL CO_2) bei einer 1000-fachen Vergrößerung.

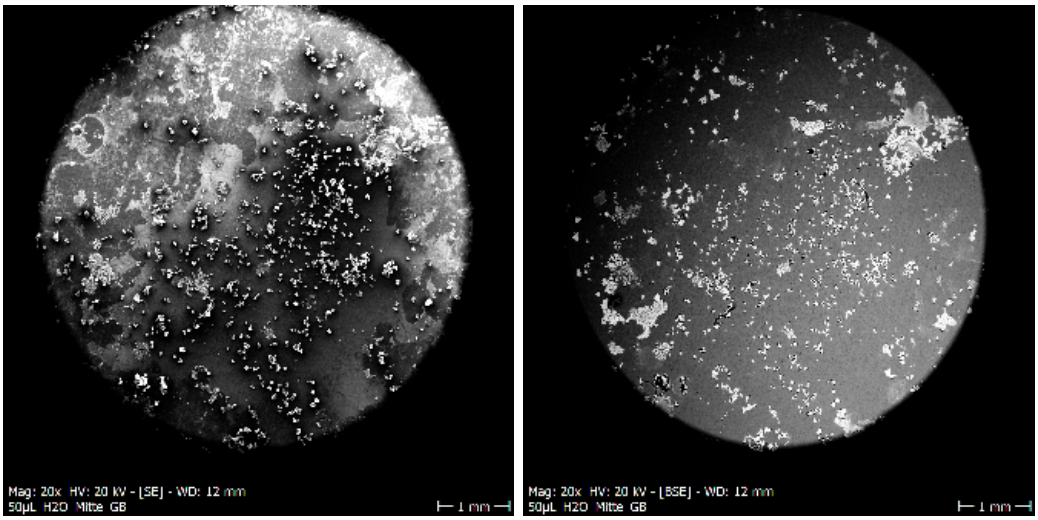


Abbildung 108: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-42 (50 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-42 (50 μL D_2O) bei einer 20-fachen Vegrößerung.

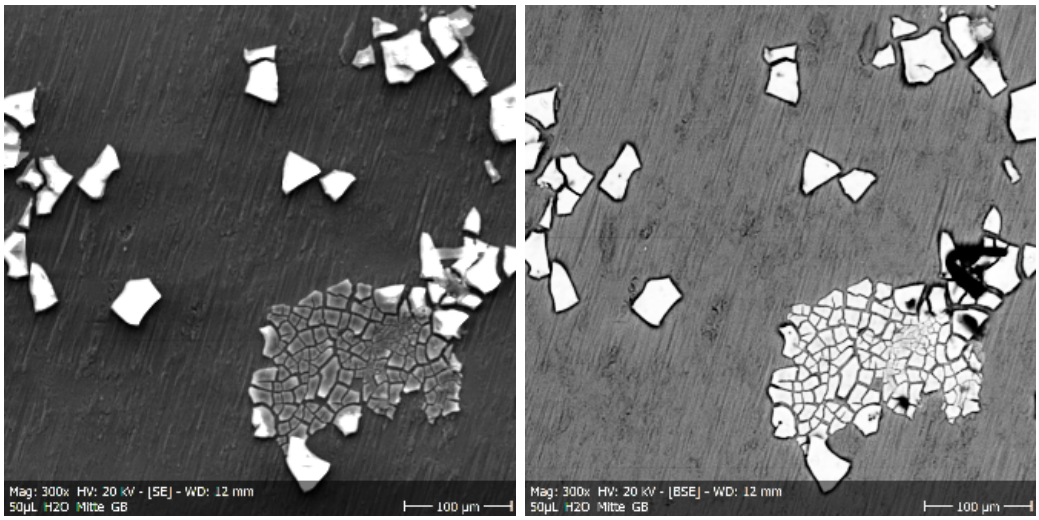


Abbildung 109: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-42 (50 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-42 (50 μL D_2O) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

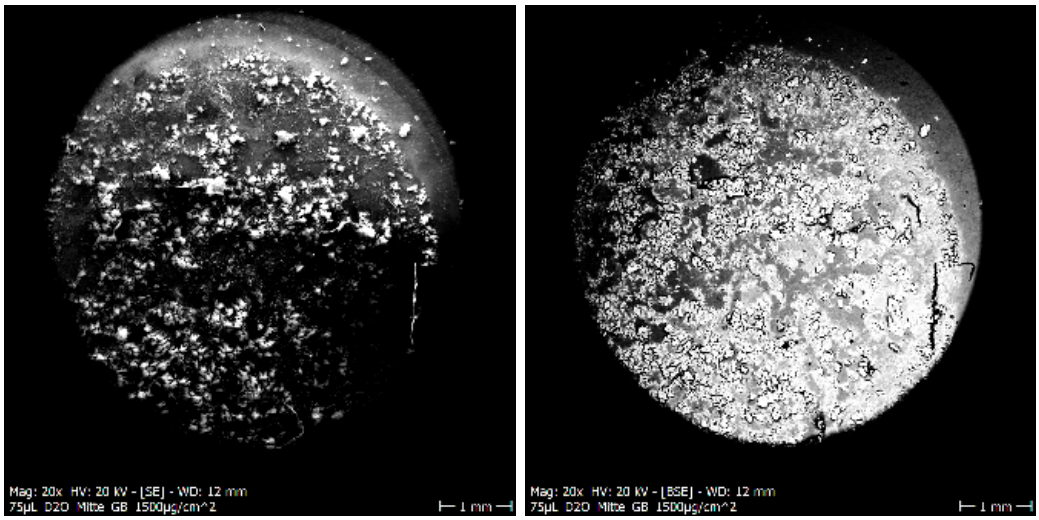


Abbildung 110: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-43 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 2 h) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-43 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 2 h) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

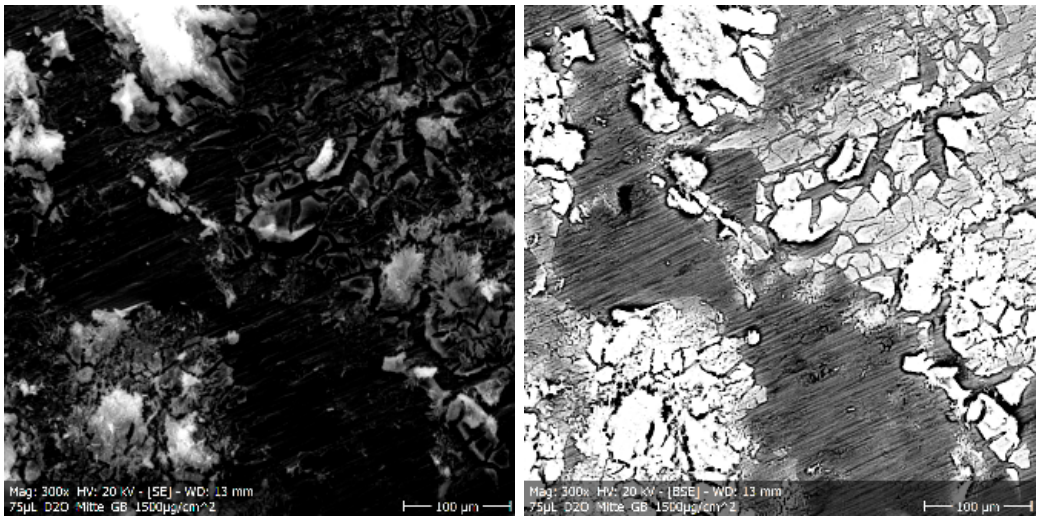


Abbildung 111: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-43 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 2 h) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-43 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 2 h) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

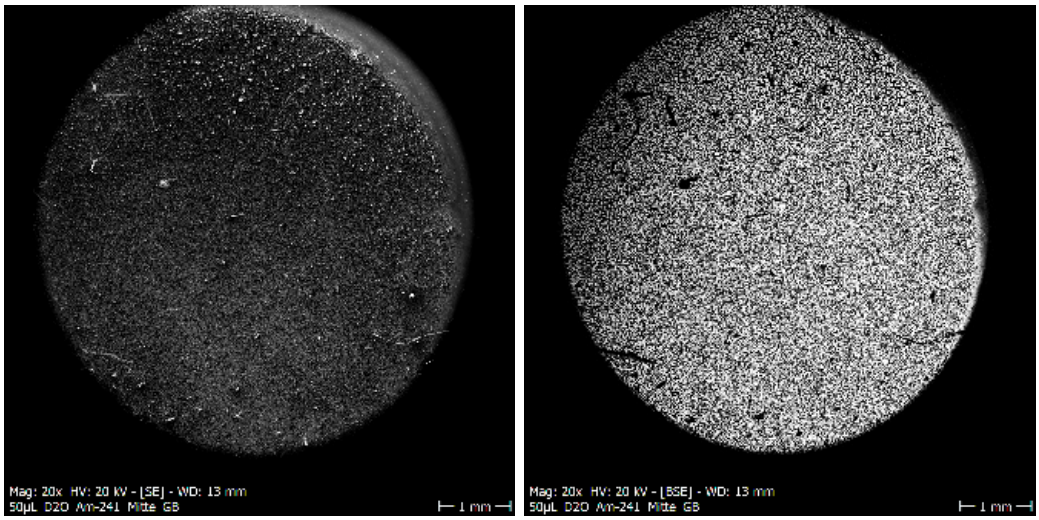


Abbildung 112: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-46 (50 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-46 (50 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

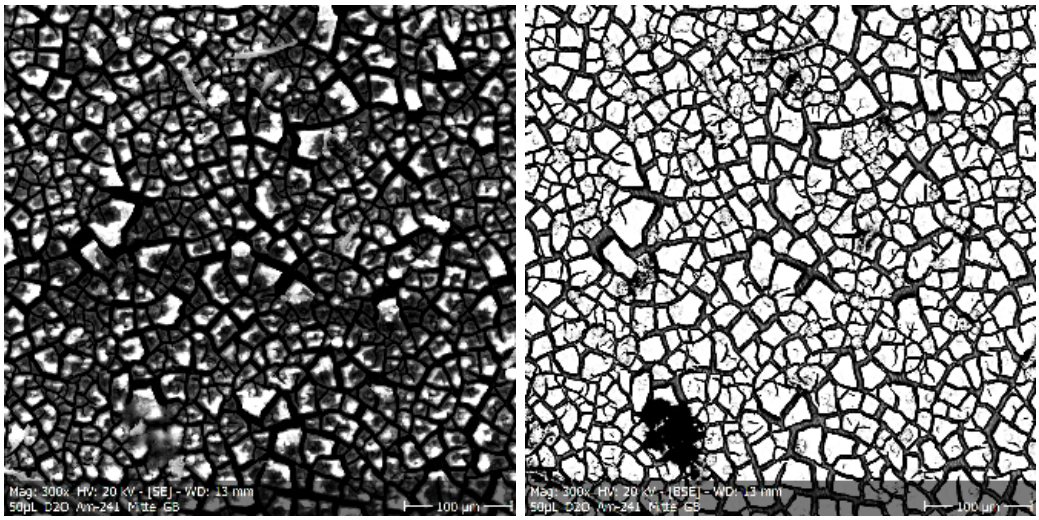


Abbildung 113: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-46 (50 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-46 (50 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

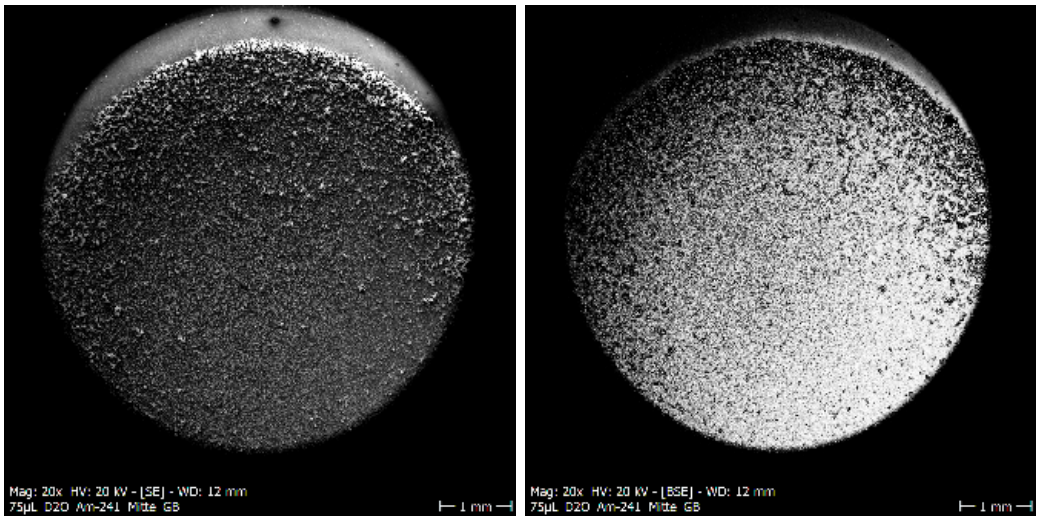


Abbildung 114: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-47 (75 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-47 (75 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

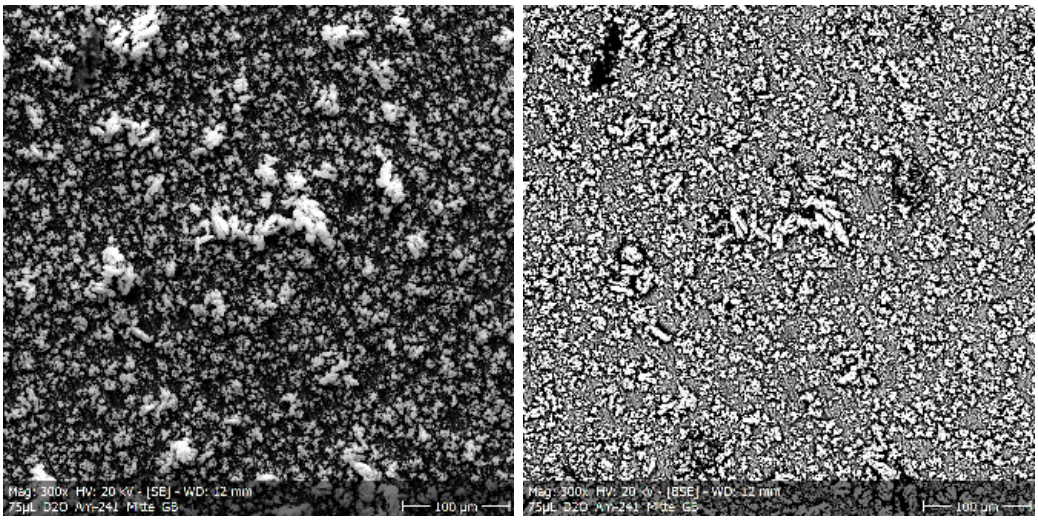


Abbildung 115: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-47 (75 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 300-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-47 (50 μL D_2O und 10 μL einer ^{241}Am-Lösung) bei einer 300-fachen Vergrößerung.

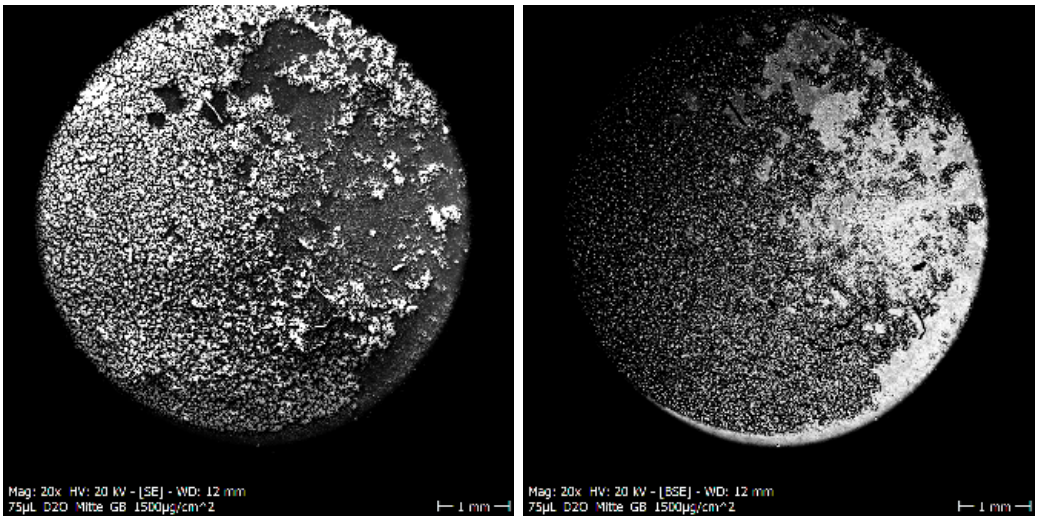


Abbildung 116: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-48 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 4 h) bei einer 20-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-48 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 4 h) bei einer 20-fachen Vergrößerung.

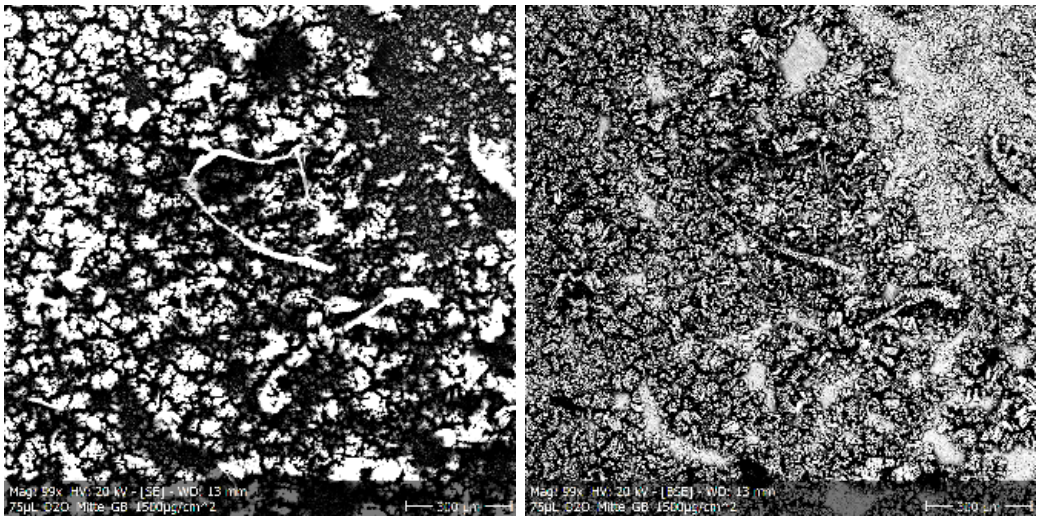
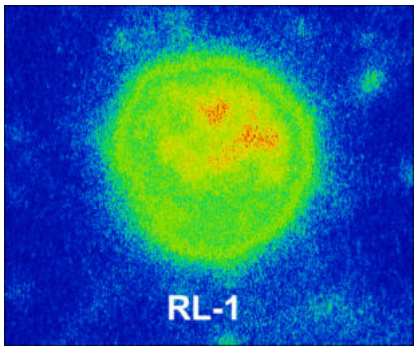


Abbildung 117: Links: SE-Bild der Target-Mitte von RL-48 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 4 h) bei einer 99-fachen Vergrößerung.
Rechts: BSE-Bild der Target-Mitte von RL-48 (75 μL D_2O, Reaktionsdauer 4 h) bei einer 99-fachen Vergrößerung.

Autoradiogramme



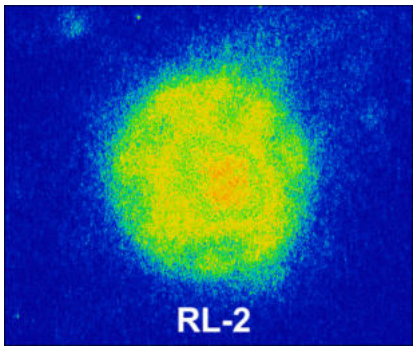
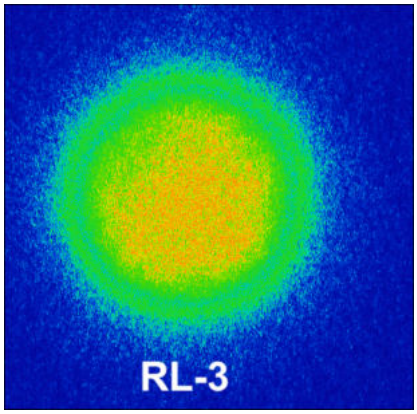


Abbildung 118: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-1 und RL-2. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



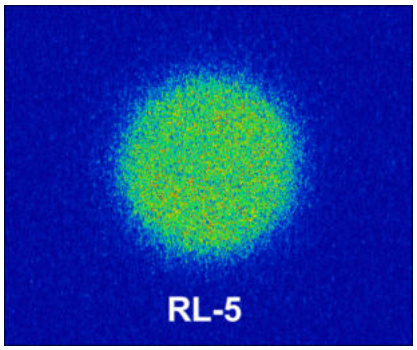
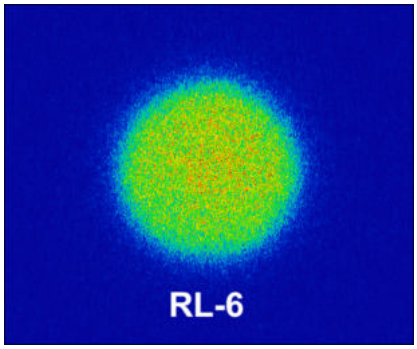


Abbildung 119: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-3 und RL-5. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



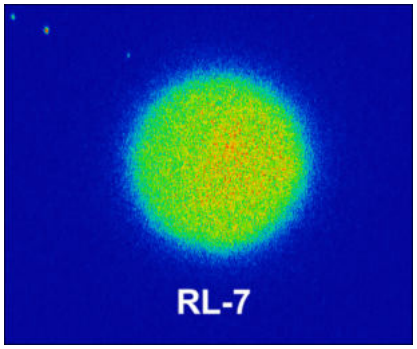
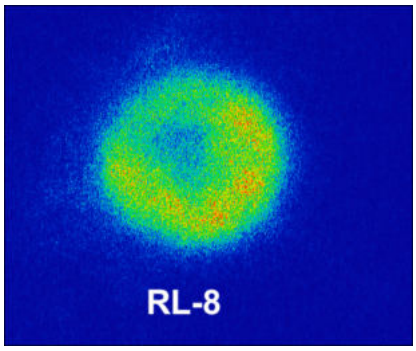


Abbildung 120: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-6 und RL-7. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



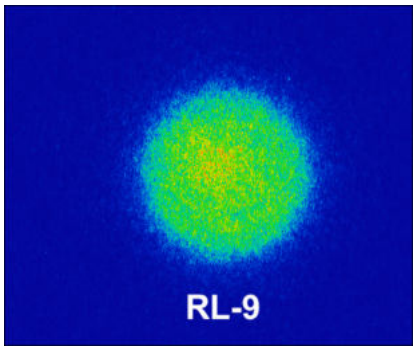
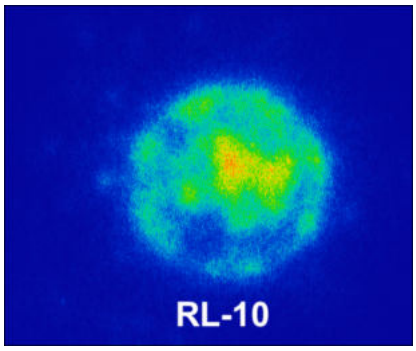


Abbildung 121: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-8 und RL-9. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



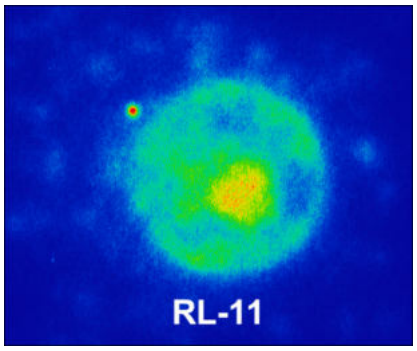
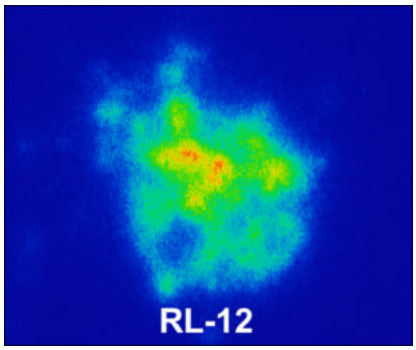


Abbildung 122: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-10 und RL-11. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



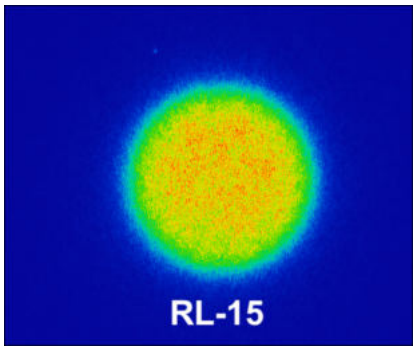
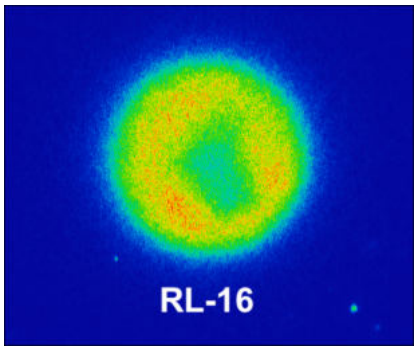


Abbildung 123: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-12 und RL-15. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



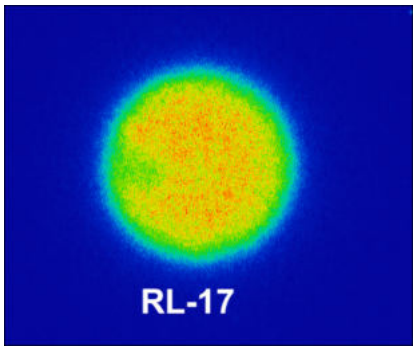
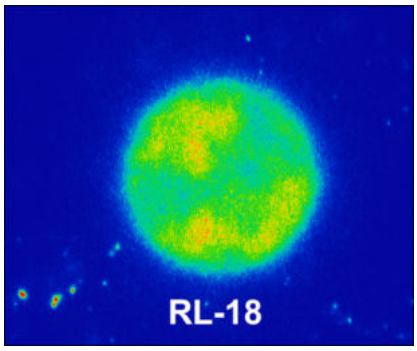


Abbildung 124: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-16 und RL-17. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



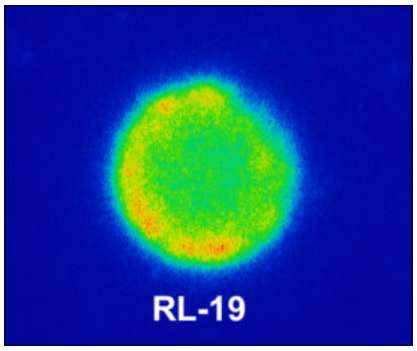
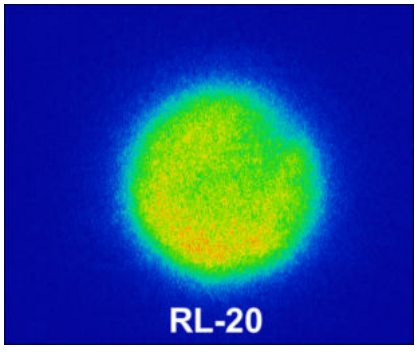


Abbildung 125: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-18 und RL-19. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



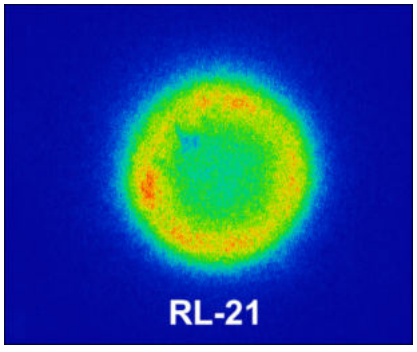


Abbildung 126: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-20 und RL-21. Erstellt mit Gwyddion 2.55.

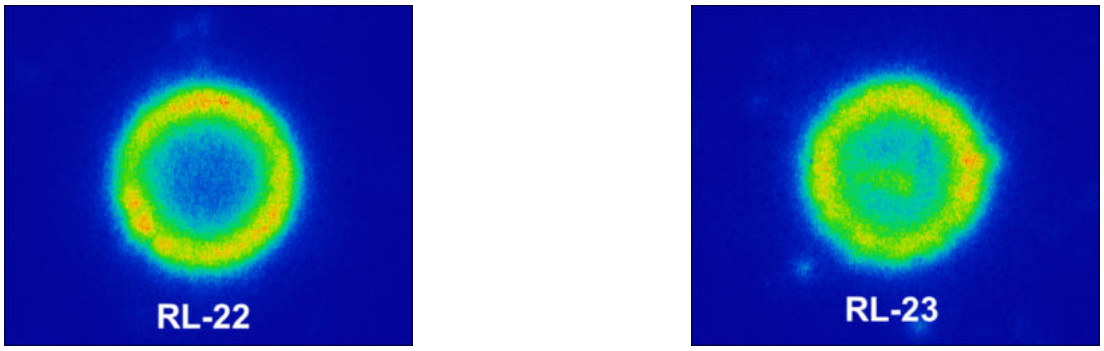


Abbildung 127: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-22 und RL-23. Erstellt mit Gwyddion 2.55.

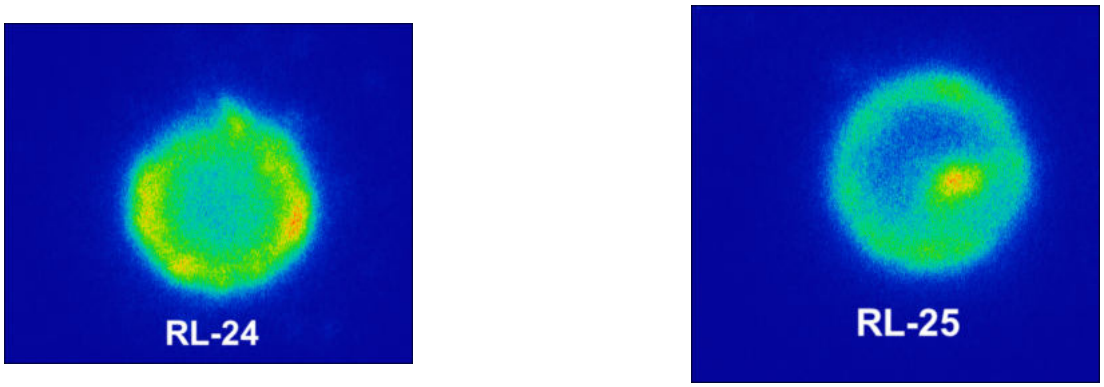


Abbildung 128: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-24 und RL-25. Erstellt mit Gwyddion 2.55.

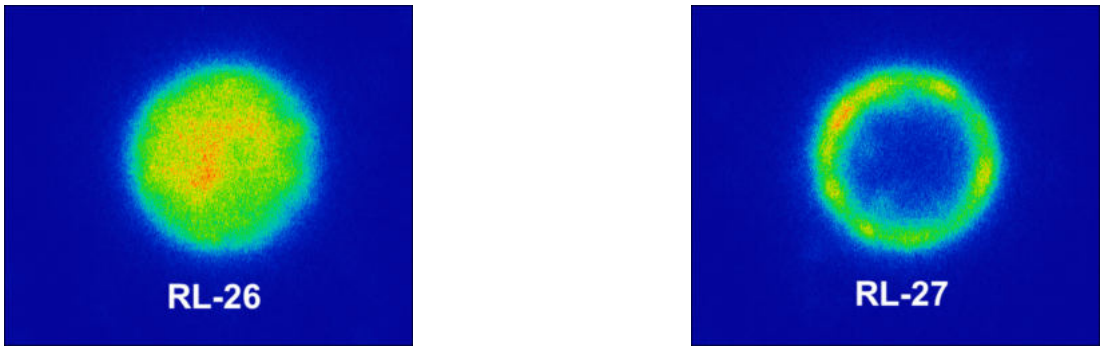
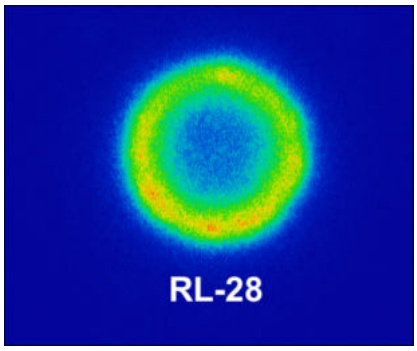


Abbildung 129: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-26 und RL-27. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



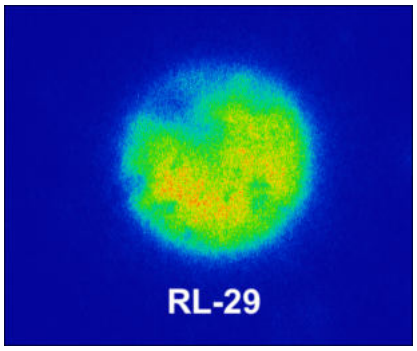
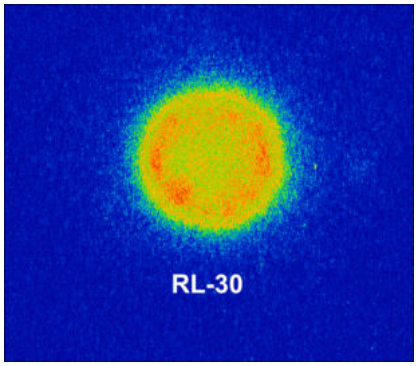


Abbildung 130: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-28 und RL-29. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



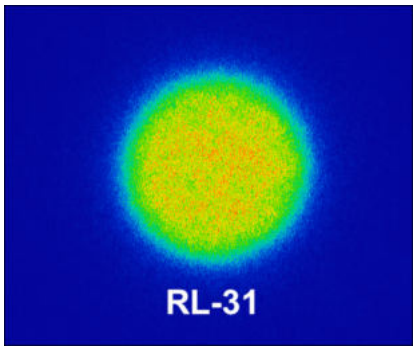
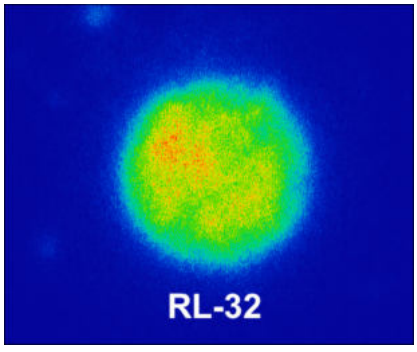


Abbildung 131: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-30 und RL-31. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



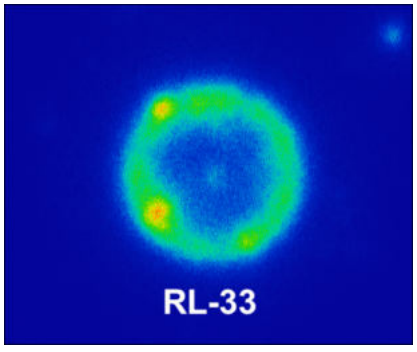
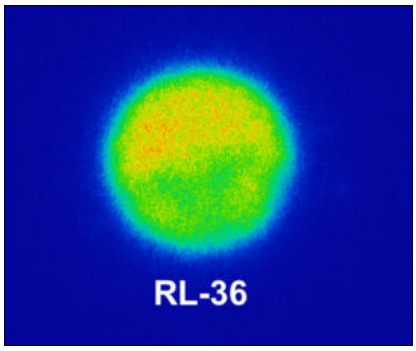


Abbildung 132: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-32 und RL-33. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



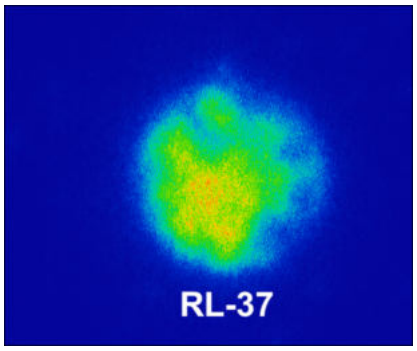
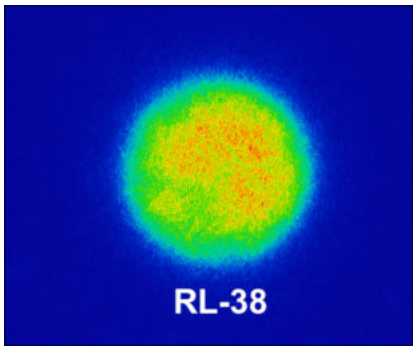


Abbildung 133: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-36 und RL-37. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



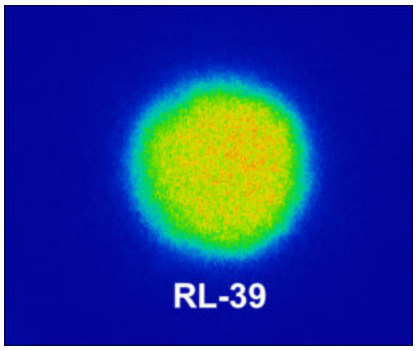
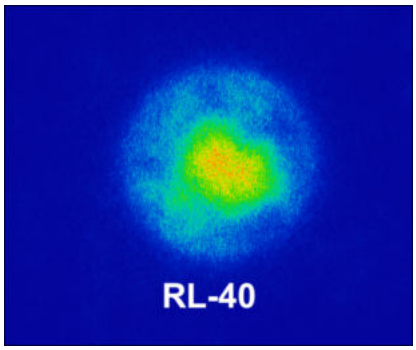


Abbildung 134: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-38 und RL-39. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



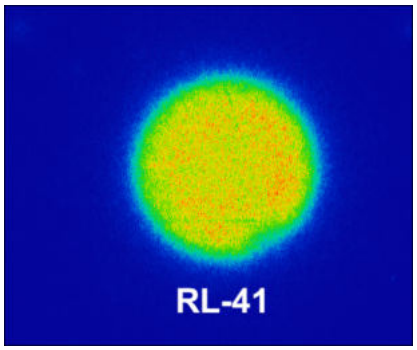
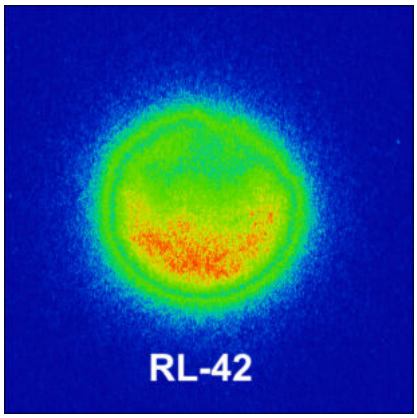


Abbildung 135: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-40 und RL-41. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



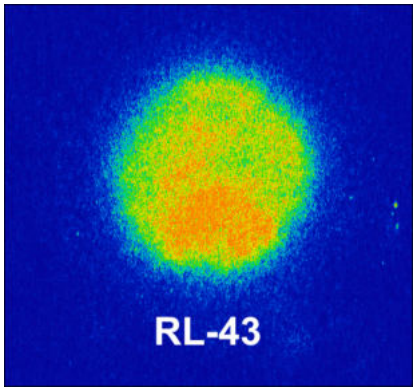
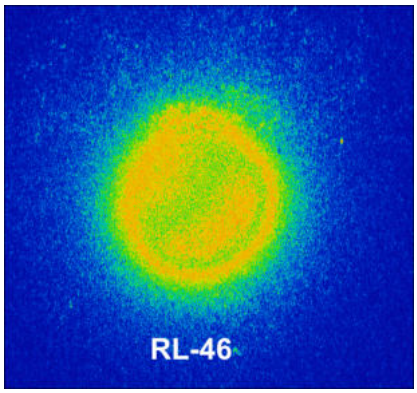


Abbildung 136: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-42 und RL-43. Erstellt mit Gwyddion 2.55.



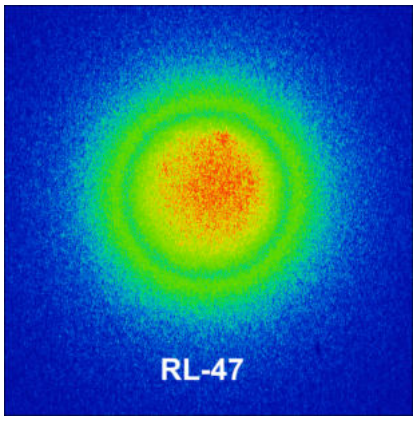


Abbildung 137: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-46 und RL-47. Erstellt mit Gwyddion 2.55.

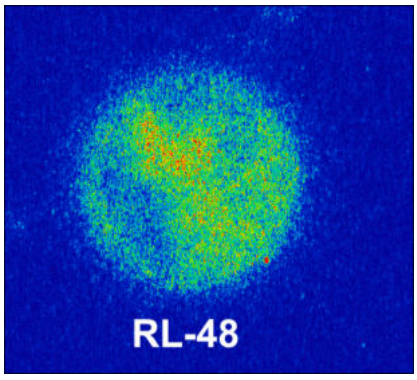


Abbildung 138: Autoradiogramme der Target-Oberflächen von RL-48. Erstellt mit Gwyddion 2.55.

γ-Spektrum

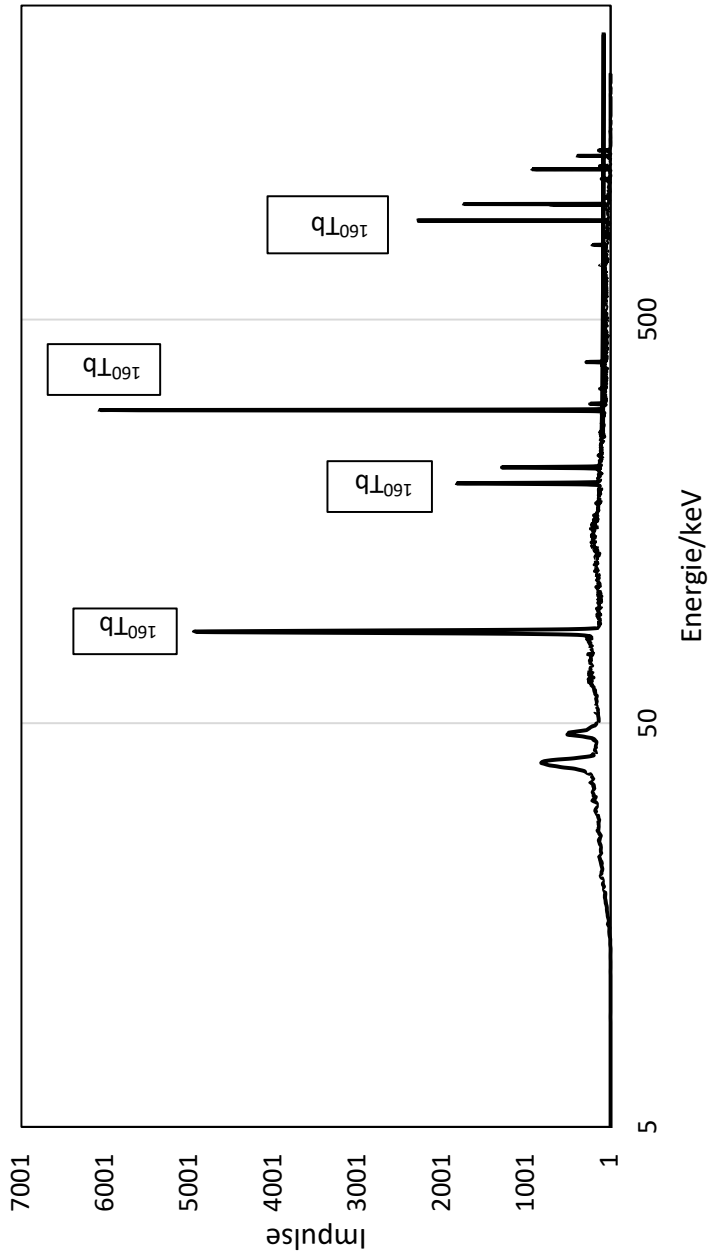


Abbildung 139: γ-Spektrum der ^{160}Tb-Stammlösung.

Messwerte

Tabelle 7: Reaktionslösungen (RL), ihre Volumina an Stammlösung (SL), D_2, CO_2-haltiger Lösung (Lsg.) und ^{241}Am, die dazugehörigen Anfangs (U_A)-und Endspannungen (U_E) und die Gehälter an H_2O und O_2 innerhalb der Glovebox.

RL	V(SL)/ μL	V(D_2O)/ μL	V(CO_2)/ mL	V(^{241}Am)/ μL	U_A/ keV	U_E/ keV	H_2O/ ppm	O_2/ ppm
RL-1	150	0	0	0	0.76	1.10	< 1	1
RL-2	10	0	0	0	0.49	0.51	< 1	2
RL-3	150	1000	0	0	0.11	0.20	< 1	2
RL-4	150	15	0	0	0.49	0.75	< 1	1
RL-5	150	30	0	0	0.41	0.48	< 1	2
RL-6	150	50	0	0	0.39	0.31	< 1	1
RL-7	150	100	0	0	0.25	0.28	< 1	2
RL-8	150	75	0	0	0.40	0.32	< 1	1
RL-9	150	0	1	0	0.54	0.89	< 1	1
RL-10	150	0	2	0	0.25	0.44	< 1	1
RL-11	150	0	4	0	0.35	0.56	< 1	1
RL-12	150	0	6	0	0.47	0.37	< 1	1
RL-13	150	0	8	0	0.24	0.30	< 1	2
RL-14	150	0	10	0	0.34	0.30	< 1	1
RL-15	150	50	1	0	0.32	0.48	< 1	1
RL-16	150	50	2	0	0.19	0.69	< 1	1
RL-17	150	50	4	0	0.16	0.69	< 1	2
RL-18	150	50	6	0	0.18	0.53	< 1	2
RL-19	150	50	8	0	0.19	0.38	< 1	2
RL-20	150	75	1	0	0.19	0.39	< 1	4
RL-21	150	75	2	0	0.20	0.35	< 1	3
RL-22	150	75	4	0	0.14	0.32	< 1	2
RL-23	150	75	6	0	0.18	0.40	< 1	1
RL-24	150	75	8	0	0.14	0.36	< 1	1
RL-25	150	100	1	0	0.13	0.81	< 1	2
RL-26	150	100	2	0	0.17	0.39	< 1	1
RL-27	150	100	4	0	0.13	0.40	< 1	1
RL-28	150	100	6	0	0.16	0.41	< 1	3
RL-29	150	100	8	0	0.14	0.47	< 1	4
RL-30	150	50	0	0	0.30	0.36	-	-
RL-31	150	75	0	0	0.18	0.39	-	-
RL-32	150	100	0	0	0.29	0.43	-	-
RL-33	150	50	1	0	0.27	0.58	-	-
RL-34	150	50	2	0	0.23	0.51	-	-
RL-35	150	50	4	0	0.10	0.92	-	-
RL-36	150	75	1	0	0.26	0.58	-	-
RL-37	150	75	2	0	0.16	0.47	-	-
RL-38	150	75	4	0	0.23	0.61	-	-
RL-39	150	100	1	0	0.24	0.35	-	-
RL-40	150	100	2	0	0.17	0.40	-	-
RL-41	150	100	4	0	0.21	0.56	-	-
RL-42	450	50	0	0	0.10	0.37	< 1	3
RL-43	450	75	0	0	0.16	0.24	< 1	2
RL-46	150	50	0	10	0.14	0.33	< 1	1
RL-47	150	75	0	10	0.37	0.29	< 1	2
RL-48	450	75	0	0	0.29	0.11	< 1	2

Literatur

[1] W. Parker, R. Falk, *Nuclear Instruments and Methods* **1962**, *16*, 355–357.

[2] K. Eberhardt, M. Schädel, E. Schimpf, P. Thörle, N. Trautmann, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment* **2004**, *521*, 208–213.

[3] *The chemistry of the actinide and transactinide elements*, (Hrsg.: L. R. Morss, N. M. Edelstein, J. Fuger), Springer, Dordrecht, **2006**.

[4] IAEA Nuclear Data Section, `https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html` (besucht am 29. 12. 2021).

[5] A. Vascon, *Molecular plating of thin lanthanide layers with improved material properties for nuclear applications*, **2013**.

[6] E. Riedel, C. Janiak in *Anorganische Chemie*, De Gruyter Inc, Berlin, **2011**, S. 358.

[7] E. Riedel, C. Janiak in *Anorganische Chemie*, De Gruyter Inc, Berlin, **2011**, S. 369.

[8] E. Riedel, C. Janiak in *Anorganische Chemie*, De Gruyter Inc, Berlin, **2011**, S. 278–317.

[9] R. W. Cargill, F. W. Getzen, E. Gryzlova, W. Hayduk, Hefter G. T., Mather A. E., R. Paterson, M. Salomon, M.-T. Saugier-Cohen Adad, P. Scharlin, D. G. Shaw, R. P. T. Tomkins, J. Vanderdeelen, D. A. Wiesenberg, Y. P. Yampol'skii in, **1992**, S. 50.

[10] F. Rösch in *Nuclear- and radiochemistry / Rösch*, De Gruyter Textbook, De Gruyter Inc, Berlin und Boston, **2016**, S. 77–93.

[11] J. Lechner, Introduction to gamma spectroscopy; Einfuehrung in die Gammaspektroskopie, **2007**.

[12] G. Choppin, J.-O. Liljenzin, J. Rydberg in *Radiochemistry and nuclear chemistry*, Butterworth-Heinemann, Woburn, MA, **2002**, S. 212–217.

[13] D. Arnold, K. Debertin, A. Heckel, G. Kanisch, H. Wershofen, C. Wilhelm in *Grundlagen der Gammaspektrometrie*, **2018**, S. 5–10.

[14] F. Rösch in, De Gruyter Textbook Ser, De Gruyter Inc, Berlin/Boston, **2014**, S. 151–160.

[15] Eidgenössische technische hochschule Zürich, Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie, **2013**, `https://www.analytik.ethz.ch/vorlesungen/radiochemie/WWmitMaterie.pdf` (besucht am 29. 12. 2021).

[16] B. Povh, K. Rith, C. Scholz, F. Zetsche, W. Rodejohann in, Springer-Lehrbuch, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, **2013**, S. 31–33.

[17] H. von Seggern, *Brazilian Journal of Physics* **1999**, *29*, 254–268.

[18] E. Macherauch, H.-W. Zoch in, Springer-Verlag, **2011**, S. 289–292.

[19] Merck, 2-Propanol, `https://www.merckmillipore.com/DE/de/product/2-Propanol,MDA_CHEM-109634#anchor_Produktinformationen` (besucht am 26. 12. 2021).

[20] Merck, 1-Butanol, `https://www.merckmillipore.com/DE/de/product/1-Butanol,MDA_CHEM-101990` (besucht am 26. 12. 2021).