

Neodym-bezogener Untergrund  
im SNO+ Experiment

Diplomarbeit  
Zur Erlangung des akademischen Grades  
Diplom-Physiker

vorgelegt von

Philipp Schrock

geboren in Pirna

Institut für Kern- und Teilchenphysik  
Fachrichtung Physik  
Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften  
der Technischen Universität Dresden  
2010

1. Gutachter: Prof. Dr. Kai Zuber

2. Gutachter: Jun.-Prof. Dr. Arno Straessner

Datum des Einreichens der Arbeit: 20.12.2010

## Kurzfassung

Diese Diplomarbeit ist im Rahmen der Suche nach dem neutrinolosen doppelten Betazerfalls des SNO+ Experiments angefertigt worden. SNO+ (Sudbury Neutrino Observatory Plus Szintillator) ist ein in Sudbury (Ontario, Kanada) angesiedeltes Experiment. Es befindet sich untertägig in einer Miene, in der es durch 6000 m. w. e. Felsgestein vor kosmischer Strahlung weitestgehend abgeschirmt ist. Des Weiteren ermöglicht die Verwendung ultrareiner Materialien die Suche nach dem neutrinolosen doppelten Betazerfall bei einem angemessen niedrigen Untergrundstrahlungsniveau.

Diese Arbeit konzentriert sich auf das Studium des Neodym-bezogenen Untergrunds im SNO+ Experiment. Dieser besteht hauptsächlich aus Neodymisotopen, wobei  $^{144}\text{Nd}$  eine Aktivität bis zu 10 kBq verursacht, und Verunreinigungen durch seltene Erden, die Aktivitäten in der Größenordnung von 1 Bq erzeugen. Des Weiteren wurde in dieser Arbeit die Aktivierung von Neodym durch kosmische Strahlung (Neutronen und Protonen) an der Erdoberfläche untersucht. Dadurch werden langlebige Nuklide gebildet, die später im Experiment Aktivitäten von etwa 1 mBq bilden. Dies ist in der Größenordnung der Untergrundstrahlung, die aus den primordialen Zerfallsreihen stammt. Ein Hauptbestandteil dieser Arbeit ist die durchgeführte Protonenbestrahlung an Neodym, bei der Wirkungsquerschnitte für die Produktion langlebiger Promethiumisotope, die bezüglich der kosmischen Aktivierung ausschließlich durch Protonen entstehen können, bestimmt wurden. Es werden alle experimentellen Phasen von den Vorbetrachtungen über die Herstellung der Targets bis hin zur Datenanalyse beschrieben. Die erlangten Daten sind von Bedeutung, da die meisten dieser Wirkungsquerschnitte bisher nur theoretisch bekannt sind und seither nicht experimentell verifiziert wurden.

## Abstract

This thesis's work fits in the SNO+ search for neutrinoless double beta decay. The SNO+ (Sudbury Neutrino Observatory Plus Scintillator) experiment is located underground in a mine near Sudbury (Ontario, Canada) where the 6000 m.w.e. rock over the laboratory acts as a shielding for cosmic rays. Furthermore, ultra clean material reduces the contamination due to impurities. This allows to search for the neutrinoless double beta decay of  $^{150}\text{Nd}$  with a reasonable low background.

This thesis is focused on the study of Neodymium-related background, which is mainly due to Neodymium isotopes itself, such as  $^{144}\text{Nd}$  which causes an activity up to 10 kBq, and to rare earth impurities with activities of the order of 1 Bq. The activation of Neodymium by cosmic rays (neutrons and protons) on the Earth's surface is also studied. This causes the production of long-living radioisotopes leading to activities around 1 mBq, which is of the order of the background resulting from primordial decay chains. An important part of this work is the Neodymium proton irradiation experiment performed to measure cross sections of long-living isotopes, which only can be produced by cosmic proton activation on Neodymium. All the experimental phases from the target preparation to sample analysis are described. The results obtained are important since up to now most of these cross sections are based only on theoretical values since no measurement was done.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Experimentelle Grundlagen zu SNO+</b>	<b>3</b>
2.1	Der doppelte Betazerfall . . . . .	3
2.2	Das SNO+ Experiment . . . . .	11
2.2.1	Aufbau . . . . .	11
2.2.2	Flüssiger Szintillator . . . . .	12
2.2.3	Neutrino physikalische Ziele . . . . .	14
2.3	Quellen für Untergrundstrahlung . . . . .	17
<b>3</b>	<b>Radioaktivität von Neodymproben</b>	<b>23</b>
3.1	Spezifische Aktivitäten von Neodymisotopen . . . . .	23
3.2	Verunreinigungen durch seltene Erden . . . . .	26
<b>4</b>	<b>Vorbetrachtungen zur kosmogenen Aktivierung von Neodym</b>	<b>29</b>
4.1	Motivation . . . . .	29
4.2	Berechnungsgrundlagen . . . . .	29
4.3	Atmosphärische Teilchenflüsse und Wirkungsquerschnitte . . . . .	31
4.4	Kosmogene Radionuklide . . . . .	33
4.4.1	Die Kriterien . . . . .	33
4.4.2	Die betrachteten Radionuklide . . . . .	34
<b>5</b>	<b>Kosmogene Aktivierung von Neodym</b>	<b>37</b>
5.1	Das Programm „ProdRate“ . . . . .	37
5.1.1	Aufbau und Funktionsweise . . . . .	37
5.1.2	Vergleich von Berechnungen . . . . .	38
5.1.3	Weiterentwicklung . . . . .	39
5.2	Produktionsraten und erwartete Aktivitäten . . . . .	40
<b>6</b>	<b>Vorbetrachtungen zu Bestrahlungsexperimenten</b>	<b>43</b>
6.1	Motivation . . . . .	43
6.2	Optimaler Energiebereich . . . . .	44
6.3	Optimale Targetdicke . . . . .	47
6.4	Passivierungsmethoden . . . . .	49
6.4.1	Motivation und Überblick . . . . .	49
6.4.2	Herstellung von Neutronentargets . . . . .	50
6.4.3	Überblick zur Herstellung von Protonentargets . . . . .	50

---

<b>7 Protonentarget</b>	<b>53</b>
7.1 Dickenmessung der Neodymfolie . . . . .	53
7.1.1 Photonenabsorption in Materie . . . . .	53
7.1.2 Der Messaufbau . . . . .	54
7.1.3 Messdaten und Auswertung . . . . .	56
7.2 Passivierung . . . . .	59
7.2.1 Galvanotechnische Abscheidung . . . . .	60
7.2.2 Einlaminierung von Neodym in Polyethylenfolien . . . . .	66
7.2.3 Ummantelung von Neodym mit Parylen . . . . .	67
7.3 Vorversuche . . . . .	68
<b>8 Protonenbestrahlung</b>	<b>71</b>
8.1 Targethalterung und Strahleinregeln . . . . .	71
8.1.1 Die verwendeten Targets . . . . .	71
8.1.2 Kollimation und Fokussierung des Strahls . . . . .	74
8.1.3 Anordnung der Targetfolien . . . . .	76
8.2 Bestrahlung . . . . .	79
8.3 Datennahme . . . . .	80
8.4 Analyse der Gammaspektren . . . . .	82
8.5 Auswertung der Kupfermonitore . . . . .	84
8.6 Auswertung der Neodymproben . . . . .	88
8.7 Schlussfolgerung und Ausblick . . . . .	95
<b>9 Zusammenfassung</b>	<b>97</b>
<b>A Solare Neutrinos im SNO+ Experiment</b>	<b>99</b>
<b>B Theoretische Wirkungsquerschnitte der kosmogenen Nuklide</b>	<b>103</b>
<b>C FitzPeaks</b>	<b>111</b>
<b>D Zusammenfassung systematischer Fehler</b>	<b>113</b>
<b>E Messwerttabelle</b>	<b>115</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>117</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>119</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>121</b>

# 1 Einleitung

Der neutrinolose doppelte Betazerfall ist ein hypothetischer Kernzerfall, dessen Beobachtung eine Evolution der modernen Physik bedeuten würde. Mit der Entdeckung dieses Zerfalls wäre nachgewiesen, dass es Elementarteilchen gibt, die ihre eigenen Antiteilchen sind. Dieses Erkenntnis gibt neue Einblicke in die Natur elementarer Bausteine unserer Materie und erweitert unser Verständnis von der Entstehung des Universums.

Dieser Zerfall ist zugleich eines der seltensten Ereignisse, das stattfinden kann. Für den Nachweis werden mehrere Kilogramm eines entsprechenden Isotops benötigt, damit ein einziger Zerfall in einem Jahr beobachtet werden kann. In entsprechenden Experimenten wird die Detektion von einer Reihe von Untergrundereignissen („Rauschen“) überdeckt, die aus Zerfällen von allgegenwärtigen, natürlichen Radionukliden stammen oder durch kosmische Strahlung verursacht werden.

SNO+ (Sudbury Neutrino Observatory Plus Szintillator) ist ein tief unter Tage gelegenes Experiment, das durch 2 km Felsgestein weitestgehend vor kosmischer Strahlung geschützt ist. Des Weiteren ermöglicht die Verwendung ultra-reiner Materialien ein angemessen niedriges Niveau an Untergrundstrahlung, womit die Erforschung des neutrinolosen doppelten Betazerfalls zugänglich gemacht wird. SNO+ wird dafür das chemische Element Neodym nutzen, welches zu den seltenen Erden (Lanthanoiden) gehört und zu 5,64 % das  $\beta\beta$ -zerfallende Isotop  $^{150}\text{Nd}$  enthält. In Kap. 2 wird eine Einführung in die Physik des doppelten Betazerfalls, in das SNO+ Experiment und in typische Quellen für Untergrundstrahlung gegeben.

In dieser Diplomarbeit werden Neodym-bezogene Radionuklide untersucht, die Untergrundereignisse im SNO+ Experiment erzeugen. Dazu gehören instabile Neodymisotope, die aufgrund ihrer langen Halbwertszeiten, die um viele Größenordnungen höher sind als das Alter des Universums (ca.  $10^{10}$  a), in der Natur vorkommen. Des Weiteren gibt es selbst in hochreinen Neodymproben stets Verunreinigungen durch andere seltene Erden. Auch unter diesen finden sich langlebige Radioisotope wieder, die Untergrundereignisse produzieren. In Kap. 3 wird aufgezeigt, welche Aktivitäten von Neodymisotopen und Lanthanoidverunreinigungen ausgehen.

Neodym ist während des Transportes und der Lagerung an der Erdoberfläche kosmischer Strahlung ausgesetzt. Durch diese Strahlung können langlebige Radionuklide produziert werden, die später während der Messphase weitere Untergrundereignisse erzeugen. In den Kap. 4 und 5 wird die Aktivierung von Neodym durch kosmische Strahlung behandelt. Hierbei gibt Kap. 4 einen Überblick über die Berechnungsgrundlagen und es wird beschrieben, welche Reaktionsprodukte potentielle Quellen für Untergrundstrahlung sind. Kap. 5 schließt an mit der Beschreibung des im Rahmen dieser Arbeit entstandenen

Programms *ProdRate*, das der Berechnung von Produktionsraten dient. Mit Hilfe dieses Programms werden Abschätzungen zu auftretenden Aktivitäten gemacht.

Für die Betrachtung der Aktivierung von Neodym durch kosmische Strahlung wird auf Datenbanken für Wirkungsquerschnitte zurückgegriffen, die auf theoretischen Berechnungsmodellen beruhen und zum Großteil nicht experimentell bestimmt wurden. Zur Verifizierung von Wirkungsquerschnittsdaten für verschiedene Reaktionen an Neodym wird in Kap. 6 betrachtet, welche Bestrahlungsexperimente durchzuführen sind und in welcher Weise eine Neodymprobe dafür präpariert werden muss. Die Targetpräparation ist hierbei von großer Bedeutung, da pures Neodym höchst reaktiv ist und sehr schnell an Luft oxidiert. Die Anfertigung der Neodymproben ist in Kap. 7 dargelegt. Kap. 8 behandelt die Bestrahlung des Neodyms mit Protonen zum Zwecke der Ermittlung von Wirkungsquerschnitten. Es werden dabei alle Phasen des Experiments vorgestellt: der Aufbau, die Berechnungsgrundlagen, die Durchführung und die Ergebnisse. Es werden hierbei erstmals experimentell Wirkungsquerschnitte für die Produktion von Promethiumisotopen aus  $^{nat}\text{Nd}$  ermittelt.

Die in dieser Arbeit verwendeten Daten zu natürlichen Isotopenhäufigkeiten sind aus der Karlsruher Nuklidkarte [Fir96] entnommen. Die aufgelisteten Halbwertszeiten  $T_{1/2}$ , die  $Q$ -Werte, die Energien der beim Kernzerfall emittierten spezifischen Gammastrahlung  $E_\gamma$  und deren relative Emissionswahrscheinlichkeiten  $Int$  (auch:  $\varepsilon$ ) stammen aus der Datenbank [Chu99]. Die physikalischen und chemischen Eigenschaften Dichte, elektrische und Wärmeleitfähigkeit, sowie die Schmelztemperaturen sind aus [Win10] entnommen. In den folgenden Kapiteln werden Referenzen zu diesen Größen nur dann angegeben, wenn sie von den hier genannten abweichen.

## 2 Experimentelle Grundlagen zu SNO+

### 2.1 Der doppelte Betazerfall

Der einfache Betazerfall ( $\beta^-$ -Zerfall) ist ein häufig in der Natur vorkommender Prozess, bei dem sich in einem Atomkern ein Neutron in ein Proton, ein Elektron und ein Elektronantineutrino umwandelt (2.1) [Bet08]. Auch der ladungskonjugierte Fall ( $\beta^+$ -Zerfall), d. h. die Umwandlung eines Protons in ein Neutron, ein Positron und ein Elektronneutrino (2.2), ist ein häufiger und wohlbekannter Prozess. Ebenso kann ein Elektroneneinfang ( $EC^1$ ) an einem Proton stattfinden (2.3) [Pov06].

$$\beta^- : n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e \quad (2.1)$$

$$\beta^+ : p \rightarrow n + e^+ + \nu_e \quad (2.2)$$

$$EC : p + e^- \rightarrow n + \nu_e \quad (2.3)$$

Diese Zerfälle finden in der Natur nur dann statt, wenn das Zerfallsprodukt auf einem energetisch niedrigeren Niveau liegt, d. h. die Masse niedriger ist [Pov06]. Die einfachste Parametrisierung der Kernmasse liefert die Bethe-Weizsäcker-Massenformel, die ausführlich in Kap. 2.3 in [Pov06] erklärt wird. Die Masse des Atomkerns entspricht dabei der Summe der Massen aller Nukleonen abzüglich der Bindungsenergie. Die Massenzahl  $A$ , das heißt die Anzahl aller Nukleonen im Kern, ändert sich bei Betazerfällen nicht.

Ein Prozess höherer Ordnung, der im Gegensatz zum einfachen Betazerfall stark unterdrückt und somit in der Regel nicht beobachtbar ist, ist der doppelte Betazerfall. Dabei findet die zeitgleiche Umwandlung zweier Neutronen in zwei Protonen, unter Emission von zwei Elektronen und zwei Elektronantineutrinos statt ( $2\nu\beta^-\beta^-$ ), (2.4). Für den  $2\nu\beta^+\beta^+$ -Zerfall (2.5) gilt dies analog [Pov06, Sch97]. Auch existiert der doppelte Elektroneneinfang ( $2EC$ ), (2.6) und der Betaplus-Elektroneinfang ( $\beta^+EC$ ) (2.7) [Doi93].

$$2\nu\beta^-\beta^- : (A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2 \cdot e^- + 2 \cdot \bar{\nu}_e \quad (2.4)$$

$$2\nu\beta^+\beta^+ : (A, Z) \rightarrow (A, Z - 2) + 2 \cdot e^+ + 2 \cdot \nu_e \quad (2.5)$$

$$2EC : (A, Z) + 2 \cdot e^- \rightarrow (A, Z - 2) + 2 \cdot \nu_e \quad (2.6)$$

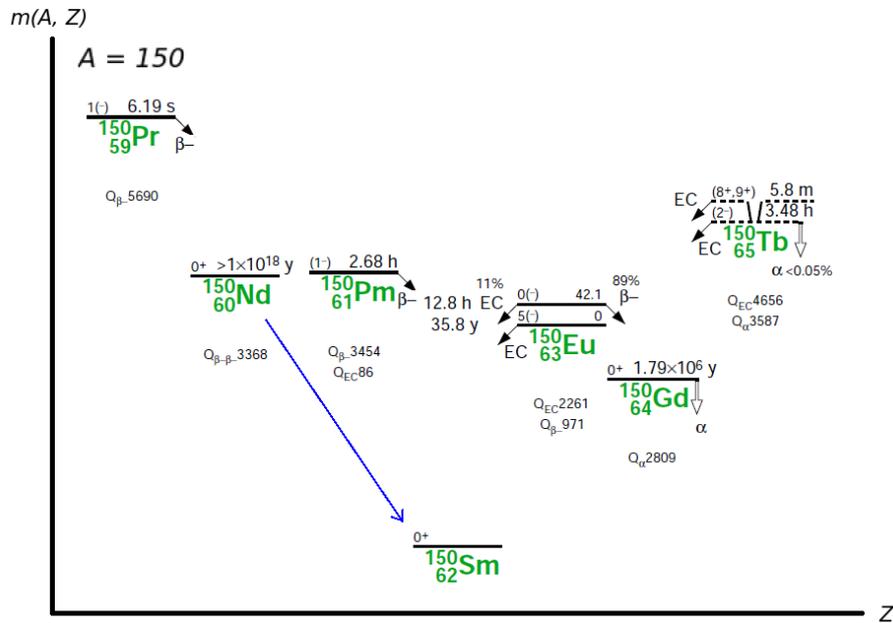
$$\beta^+EC : (A, Z) + e^- \rightarrow (A, Z - 2) + e^+ + 2 \cdot \nu_e \quad (2.7)$$

Bei Kernen mit gerader Protonenzahl  $Z$  und Neutronenzahl  $N$  (gg-Kerne) kann es vorkommen, dass der Grundzustand eines benachbarten Kerns gleicher Massezahl (isobarer Kern) energetisch höher liegt, der übernächste wiederum auf einem tieferen Energieniveau ist. Dann ist der einfache Betazerfall verboten und der doppelte Betazerfall ist beobachtbar. Am Beispiel des Energieniveauschemas für  $A = 150$  ist in Abb. 2.1 gezeigt, dass der Kern  $^{150}\text{Nd}$  nur den doppelten Betazerfall zu  $^{150}\text{Sm}$  durchlaufen kann.

---

<sup>1</sup> $EC$  = Electron Capture (engl.)

Der einfache Betazerfall in  $^{150}\text{Pm}$  ist energetisch verboten.



**Abbildung 2.1: Energieniveauschema für isobare Kerne mit  $A = 150$ :** Zu sehen sind die Massen isobarer Kerne mit der Massezahl  $A = 150$  in Abhängigkeit von der Kernladungszahl  $Z$ . Bei  $^{150}\text{Nd}$  kann der einfache  $\beta^-$ -Zerfall nicht stattfinden, da er energetisch verboten ist. Wohl aber findet der doppelte Betazerfall zu  $^{150}\text{Sm}$  statt. Das Schema ist aus [Fir96] entnommen.

In vereinzelt Fällen ist bei gg-Kernen sowohl der einfache als auch der doppelte Betazerfall energetisch möglich, der einfache jedoch aufgrund der involvierten Bahndrehimpulsübergänge bei der Kernumwandlung stark unterdrückt. Bei solchen Kernen ist ebenfalls der doppelte Betazerfall beobachtbar [Ell02]. Dies ist zum Beispiel bei  $^{48}\text{Ca}$  oder  $^{96}\text{Zr}$  der Fall. Bei beiden Nukliden ist der einfache  $\beta^-$ -Zerfall sechsfach verboten ( $0^+ \rightarrow 6^+$  Übergänge, vgl. [Fir96]), der doppelte Betazerfall hingegen wurde bei beiden Nukliden experimentell nachgewiesen [Bar09a].

Es gibt in der Natur 35 Nuklide, die die energetischen Voraussetzungen für den (aus-schließlichen)  $\beta^- \beta^-$ -Zerfall erfüllen. Sechs Weitere können den  $\beta^+ \beta^+$ -Zerfall, den  $2EC$  oder den  $\beta^+ EC$  durchlaufen [Boe92]. Bei einigen davon wurde der  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall bereits experimentell beobachtet, siehe z. B. [Bar09a].

Die Aktivität  $A_0$  eines Radionuklids ist gegeben durch

$$A_0 = N_0 \cdot \lambda = N_0 \cdot \frac{\ln 2}{T_{1/2}}, \quad (2.8)$$

wobei  $N_0$  die Anzahl der Atome eines Isotops,  $\lambda$  die Zerfallskonstante und  $T_{1/2}$  die Halbwertszeit des Isotops ist. Der doppelte Betazerfall findet typischerweise mit Halbwertszeiten  $T_{1/2}^{2\nu\beta\beta} = 10^{18} \dots 10^{24}$  a [Sch97] statt. Der experimentelle Nachweis ist aufwendig, da entsprechend große Stoffmengen nur kleine spezifische Aktivitäten

aufweisen ( $^{150}\text{Nd}$ :  $T_{1/2} = 9,2 \cdot 10^{18}$  a,  $A_0 = 10$  mBq·kg $^{-1}$ , siehe Kap. 3) und außerdem eine Vielzahl von Quellen für Untergrundstrahlung berücksichtigt werden muss, die das gesuchte Signal überdecken, siehe Kap. 2.3. Erstmals gelang der Nachweis des  $\beta\beta$ -Zerfalls 1967 anhand der Reaktionen  $^{82}\text{Se} \rightarrow ^{82}\text{Kr}$ ,  $^{128}\text{Te} \rightarrow ^{128}\text{Xe}$  und  $^{130}\text{Te} \rightarrow ^{130}\text{Xe}$ . Genutzt wurde dabei eine geochemische Methode zum Nachweis von Isotopenanomalien in Edelgasen, die in sehr alten selen- und tellurhaltigen Erzen eingeschlossen waren [Kir68].

Aus dem Studium eines bestimmten Zerfallskanals des doppelten Betazerfalls (der sog. neutrinolose doppelte Betazerfall, siehe unten) lassen sich neue Erkenntnisse über die Eigenschaften von Neutrinos gewinnen. Denn noch ungeklärt ist die fundamentale Frage, ob das Neutrino sein eigenes Antiteilchen ist (Majorana-Teilchen  $\nu = \bar{\nu}$ ), oder nicht (Dirac-Teilchen  $\nu \neq \bar{\nu}$ ). Bislang ist Ersteres prinzipiell möglich, da Neutrinos nicht masselos sind und dadurch mit einer geringen Wahrscheinlichkeit wie Antineutrinos mit Materie wechselwirken können. Eine genaue Erläuterung dieses Sachverhaltes setzt ein tiefgehendes Verständnis der schwachen Wechselwirkung voraus und ist nicht Bestandteil dieser Arbeit. Einen kurzen Abriss zu Majorana-Teilchen liefert [Pov06], ausführliche Beschreibungen sind in den Büchern [Boe92, Sch97] zu finden. Im Folgenden wird nur eine vereinfachte Beschreibung gegeben, die für das Verständnis dieser Arbeit ausreichend ist.

Vom  $\beta^-$ -Zerfall (2.1) lässt sich die folgende Reaktion ableiten:

$$\nu_e + n \rightarrow p + e^- . \quad (2.9)$$

Wenn das Neutrino ein Majorana-Teilchen ist, dann ist auch die folgende Reaktion möglich:

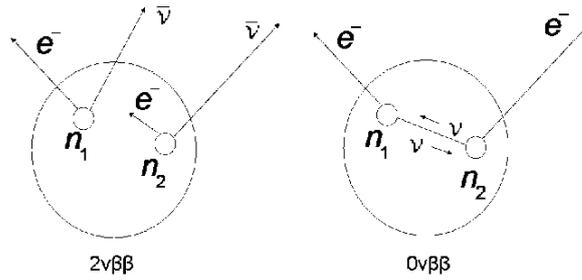
$$\bar{\nu}_e + n \rightarrow p + e^- . \quad (2.10)$$

Diese Reaktion widerspricht dem Standardmodell, da sie die Erhaltung der Leptonenzahl  $L$  verletzt, wobei für Leptonen ( $e^-, \nu_e, \mu^-, \nu_\mu, \tau^-, \nu_\tau$ )  $L = 1$  und für Antileptonen ( $e^+, \bar{\nu}_e, \mu^+, \bar{\nu}_\mu, \tau^+, \bar{\nu}_\tau$ )  $L = -1$  ist. Die Existenz der Reaktion (2.10) würde bezüglich des doppelten Betazerfalls bedeuten, dass das Antineutrino aus dem ersten Neutron (2.1) nach (2.10) mit dem zweiten Neutron reagieren kann. Das Resultat wäre

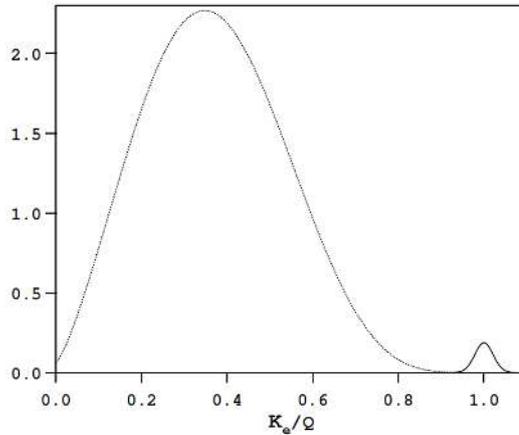
$$2n \rightarrow 2p + 2e^- . \quad (2.11)$$

Diese Zerfallsart wird aufgrund der fehlenden Neutrinoemission **neutrinoloser doppelter Betazerfall** genannt [Sch97]. Eine schematische Darstellung der beiden Zerfälle befindet sich in Abb. 2.2.

Das Summenenergiespektrum der beiden emittierten Elektronen (Abb. 2.3) weist für den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall ein Kontinuum auf, da stets ein Teil der Energie von den (fast) nicht wechselwirkenden Neutrinos weggetragen wird. Beim neutrinolosen Zerfallskanal überträgt sich die gesamte freiwerdende Energie  $Q$  auf die beiden Elektronen, was zu einer diskreten Linie im Spektrum führt. In der Praxis ist diese diskrete Linie stets aufgrund des Detektoraufösungsvermögens verbreitert [Ell02].



**Abbildung 2.2: Schematische Darstellung von doppelten Betazerfällen:** Links im Bild ist der  $\beta\beta$ -Zerfall mit Neutrinoemission zu sehen. Rechts agiert das Neutrino wie sein eigenes Antiteilchen (Majorana-Neutrino), so dass keine Neutrinoemission stattfindet. Bild aus [War10] entnommen.



**Abbildung 2.3: Summenenergiespektrum der beiden Elektronen bei doppelten Betazerfällen:** Die Gesamtenergie der beiden emittierten Elektronen  $K_e$  ist beim neutrinobegleiteten Zerfall kontinuierlich (gepunktete Linie), beim neutrिनolosen diskret (durchgezogene Linie, verbreitert aufgrund des Detektoraufösungsvermögens) bei der Gesamtenergie  $Q$  des Übergangs. Die Ordinate ist so skaliert, dass das Integral über die gepunktete Linie 1 ergibt [Ell02].

Bislang wurde der neutrिनolose doppelte Betazerfall nicht experimentell beobachtet. Lediglich eine (umstrittene) Evidence<sup>2</sup> von H. V. Klapdor-Kleingrothaus existiert für diesen Zerfall [Kla01]. Gemessene untere Grenzen für Halbwertszeiten liegen nach aktuellen Daten bei  $T_{1/2}^{0\nu\beta\beta} \geq 10^{24}$  a [Hal10]. Wird dieser Zerfall nachgewiesen, so ist zum einen gezeigt, dass das Neutrino ein Majorana-Teilchen ist. Zum anderen liefert die gemessene Halbwertszeit eine direkte Messgröße für die effektive Majoranamasse des Elektronenneutrinos  $\langle m_{\nu_e} \rangle$  [Sch97]:

$$\left(T_{1/2}^{0\nu}\right)^{-1} = G^{0\nu} \cdot |M^{0\nu}|^2 \cdot \left(\frac{\langle m_{\nu_e} \rangle}{m_e}\right)^2, \quad (2.12)$$

wobei  $G^{0\nu}$  der Phasenraumfaktor,  $M^{0\nu}$  das Kernmatrixelement des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls und  $m_e$  die Elektronenmasse ist. Die Phasenraumfaktoren hängen im Wesentlichen von der

<sup>2</sup>Evidence (engl.): Anzeichen, Anhaltspunkt. Im physikalischen Sinn ein Hinweis auf ein Ereignis, aber noch kein Beweis dafür.

freiwerdenden Energie  $Q$  ab und lassen sich dementsprechend genau berechnen [Boe92]. Die Kernmatrixelemente  $M^{0\nu}$  beschreiben quantenmechanisch den Übergang eines  $0\nu\beta\beta$ -zerfallenden Kernes in seinen Tochterkern. Hierbei wird für gegebene Anfangs- und Endzustände des Mutter- und Tochterkernes die Übergangsamplitude für alle möglichen Zwischenzustände (d. h. Zustände des Zwischenkerns) berechnet und aufsummiert. Da es sich bei diesen Kernen um Vielteilchensysteme handelt, muss bei dieser Berechnung auf Näherungen zurückgegriffen werden. Eine kurze theoretische Beschreibung dazu ist z. B. in [Rod10] zu finden.

Der neutrinobegleitete doppelte Betazerfall liefert diesen Zugang zur effektiven Neutrinomasse nicht. Hier berechnet sich die inverse Halbwertszeit aus

$$\left(T_{1/2}^{2\nu}\right)^{-1} = G^{2\nu} \cdot |M^{2\nu}|^2. \quad (2.13)$$

Durch das Studium dieses Zerfalls können Rückschlüsse auf die Matrixelemente gezogen werden.

Um in  $0\nu\beta\beta$ -Experimenten möglichst hohe Zählraten zu erzielen und damit den statistischen Fehler zu reduzieren, ist es günstig, wenn das Produkt  $G^{0\nu} \cdot |M^{0\nu}|^2$  so groß wie möglich ist. Im folgenden Abschnitt werden deshalb Phasenraumfaktoren und Matrixelemente experimentell relevanter Nuklide verglichen.

### Vergleich experimentell verwendeter Nuklide

Für die  $0\nu\beta\beta$ -Suche sind nur Nuklide mit einem  $Q$ -Wert über 2000 keV relevant, da sie entsprechend große Phasenraumfaktoren haben, was nach (2.8) und (2.12) wiederum zu hohen Aktivitäten führt. Auch sind mit steigendem  $Q$ -Wert immer weniger Quellen für Untergrundstrahlung von Belang [Hal10], wobei typische und SNO+-spezifische Untergrundquellen in Kap. 2.3 beschrieben sind. Ein Überblick der relevanten  $0\nu\beta\beta$ -Nuklide ist in Tab. 2.1 zu finden.

Für schwere Kerne, die stark deformiert sind, wie es zum Beispiel bei Neodymisotopen der Fall ist, sind Coulombkorrekturen bei der Berechnung der Phasenraumfaktoren von besonderer Bedeutung [Boe92]. In Abb. 2.4 sind die Phasenraumfaktoren der Nuklide aus Tab. 2.1 normiert auf  $^{76}\text{Ge}$  aufgetragen.  $^{110}\text{Pd}$  und  $^{124}\text{Sn}$  werden im Folgenden nicht weiter berücksichtigt, da sie in aktuellen Experimenten nicht genutzt<sup>3</sup>. Es ist zu sehen, dass  $^{150}\text{Nd}$  im Vergleich zu  $^{76}\text{Ge}$  einen etwa 33 mal größeren Phasenraumfaktor hat. Bezüglich der anderen genannten Nuklide ist er 3 bis 10 mal größer.

Bei den Übergangsmatrixelementen des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls ist die Berechnung für  $^{150}\text{Nd}$  aufgrund der starken Deformation des Kerns sehr kompliziert. Die gängigsten Modelle für die  $M^{0\nu}$  Berechnung, die *Quasiparticle Random Phase Approximation* (QRPA) und das *Schalenmodell* (SM) sind nur auf leicht deformierte Kerne anwendbar [Bar09b]. Abhilfe schafft das *Interacting Boson Model* (IBM-2) von F. Iachello [Iac87], mit dem auch

<sup>3</sup>Für  $^{110}\text{Pd}$  und  $^{124}\text{Sn}$  wurden bisher keine Werte für die Übergangsmatrixelemente nach der für diese Betrachtung relevanten Berechnungsmethode (IBM-2) ermittelt, siehe Abb. 2.5.

**Tabelle 2.1: Übersicht der für Experimente interessanten doppelt betazerfallenden Nuklide:** Aufgelistet sind alle Nuklide mit Q-Werten über 2000 keV. Die aufgezählten Experimente sind exemplarisch.

Nuklid	Q-Wert / keV	Experiment	Ref.
<sup>48</sup> Ca	4271	Candles	[Oga10]
<sup>76</sup> Ge	2040	Gerda	[Sch04]
<sup>82</sup> Se	2995	Nemo 3	[Hal10]
<sup>96</sup> Zr	3350		
<sup>100</sup> Mo	3034	Nemo 3	[Hal10]
<sup>110</sup> Pd	2013		
<sup>116</sup> Cd	2802	Cobra	[Zub01]
<sup>124</sup> Sn	2228		
<sup>130</sup> Te	2533	Cuore	[Hal10]
<sup>136</sup> Xe	2479	EXO	[Hal10]
<sup>150</sup> Nd	3367	SNO+	[Hal10]

$M^{0\nu}$  (<sup>150</sup>Nd) berechnet werden kann [Bar09b]. Eine graphische Darstellung der Matrixelemente für verschiedene Kernmassenzahlen  $A$  und unterschiedliche Berechnungsmethoden ist in Abb. 2.5 zu finden.

Es ist ersichtlich (Abb. 2.5), dass die Matrixelemente berechnet aus der QRPA und dem IBM-2 einen ähnlichen Verlauf mit steigendem  $A$  aufweisen, wobei die Werte aus der letzteren Berechnungsmethode stets etwas höher liegen. Die Abweichungen spiegeln die Unsicherheiten bei der Matrixelementberechnung wider. Da <sup>150</sup>Nd den größten Phasenraumfaktor aufweist und deswegen ein Vergleich mit diesem Nuklid von Interesse ist, werden im Folgenden die  $M^{0\nu}$  Werte aus dem IBM-2 verwendet, um das Produkt  $G^{0\nu} \cdot |M^{0\nu}|^2$  der oben genannten Nuklide zu vergleichen. Abb. 2.6 zeigt dieses Produkt für die hier betrachteten Nuklide normiert auf <sup>76</sup>Ge. Da dieses Produkt proportional zur inversen Halbwertszeit ist, siehe (2.12), ist es auch direkt proportional zur spezifischen Aktivität der Kerne (2.8).

Nach Abb. 2.6 ist für <sup>150</sup>Nd die höchste spezifische Aktivität zu erwarten. Sie wird knapp sechs mal höher sein als die des <sup>76</sup>Ge und etwa zwei- bis dreimal so hoch wie die der anderen Nuklide. Mit anderen Worten ist die Halbwertszeit von <sup>150</sup>Nd bei fester Majoranamasse des Elektronneutrinos  $\langle m_{\nu_e} \rangle$  um ein sechstel kleiner als bei <sup>76</sup>Ge. Daher ist von diesem Standpunkt aus <sup>150</sup>Nd das am besten geeignete Nuklid für die Suche nach dem neutrinolosen doppelten Betazerfall.

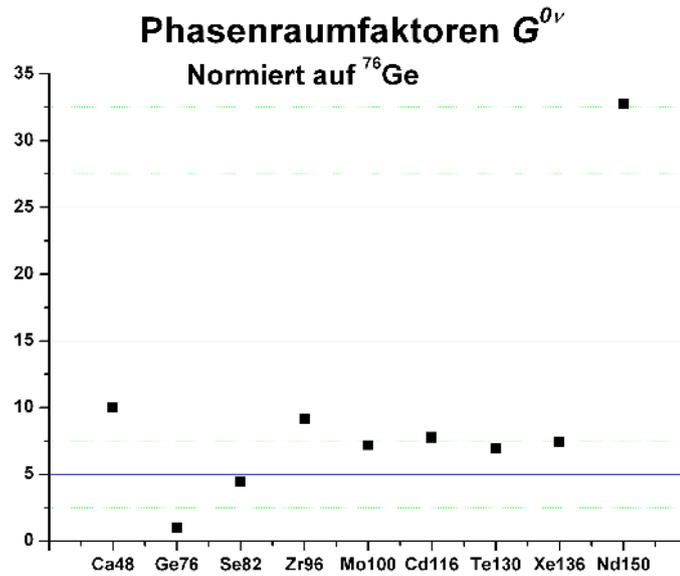


Abbildung 2.4: Phasenraumfaktoren  $G^{0\nu}$  der doppelt betazerfallenden Nuklide, die für  $0\nu\beta\beta$ -Experimente interessant sind: Die Faktoren enthalten bereits Coulombkorrekturen, sind aus [Boe92] entnommen und auf  $^{76}\text{Ge}$  normiert.

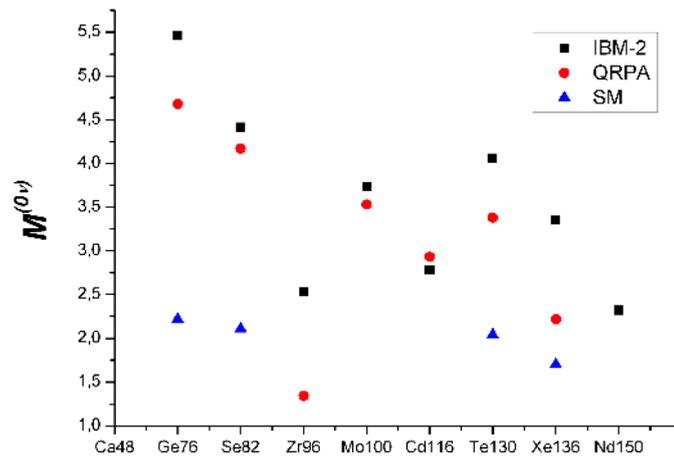


Abbildung 2.5: Matrixelemente aus verschiedenen Berechnungsmodellen im Vergleich: Das Schalenmodell (SM) und die Quasiparticle Random Phase Approximation (QRPA) sind im Gegensatz zum Interacting Boson Model (IBM-2) nicht auf stark deformierte Kerne, wie  $^{150}\text{Nd}$  anwendbar. Daten erhalten von F. Iachello, Emailkorrespondenz.

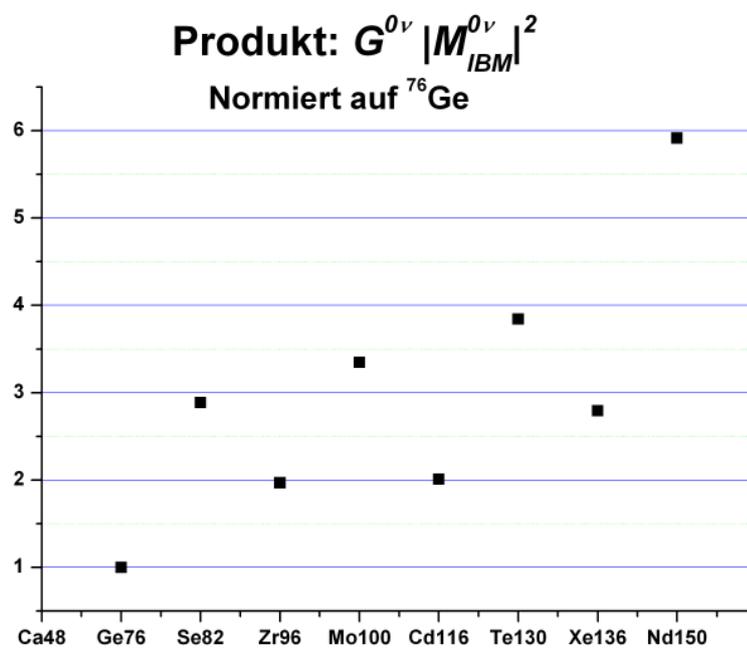
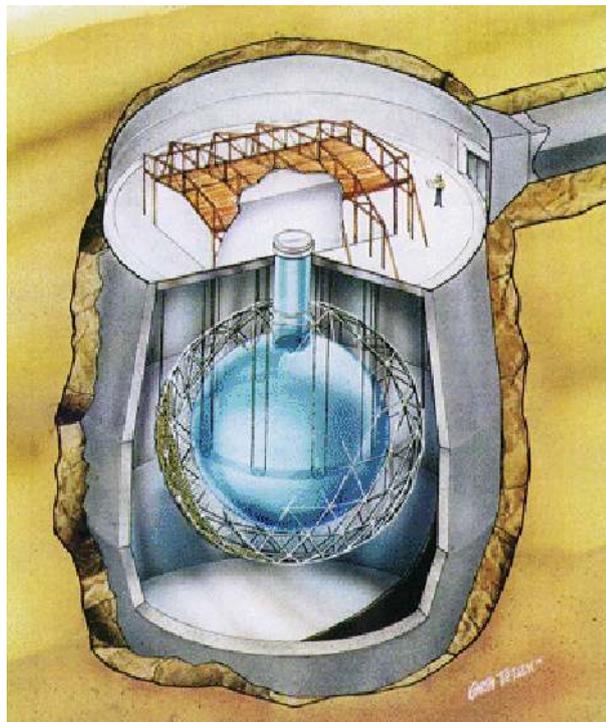


Abbildung 2.6: Das Produkt  $G^{0\nu} \cdot |M^{0\nu}|^2$  experimentell relevanter, doppelt betazerfallender Nuklide im Vergleich: Die Werte sind auf den von  $^{76}\text{Ge}$  normiert.

## 2.2 Das SNO+ Experiment

### 2.2.1 Aufbau

Das SNO+ Experiment ist der Nachfolger von SNO, dem Sudbury Neutrino Observatory, dessen Datennahme bis 2006 lief [SNO10]. Es befindet sich im SNOLAB [SNO09] bei Sudbury (Ontario), Kanada, etwa 100 km nördlich der großen Seen. Das Labor liegt in einer Nickelmine ca. 2 km unter der Erdoberfläche, was bei der örtlichen Bodenbeschaffenheit etwa 6000 Metern Wasseräquivalent (m. w. e.) entspricht [For04]. Die SNO+ Kollaboration besteht aus 18 Instituten in 5 Ländern mit insgesamt ca. 80 Mitarbeitern [Bil10].



**Abbildung 2.7: Aufbau des SNO/SNO+ Detektors:** Im Inneren ist der Akrylbehälter (blau) der ca. 780 t flüssigen Szintillator fassen kann. Umgeben ist er von einem Detektornetz aus ca. 9600 PMTs. Beides ist umgeben von ca. 7400 t Wasser.

Bei SNO+ wird der SNO Aufbau, zu sehen in Abb. 2.7, in modifizierter Weise genutzt. Den Kern des Detektors bildet eine Kugel aus lichtdurchlässigem Akryl (kurz AV<sup>4</sup>) mit einem Durchmesser von 12,1 m. Diese wird mit flüssigem Szintillator gefüllt und befindet sich in ca. 7400 t Wasser. Die AV muss dabei im Gegensatz zum SNO Experiment, bei dem sie mit schwerem Wasser gefüllt war, nach unten gehalten werden, da der flüssige Szintillator eine geringere Dichte als Wasser hat ( $\rho \approx 0,86 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  [Pee09]). Umgeben ist die AV von einem Hilfsgerüst, dem PSUP<sup>5</sup> (Durchmesser ca. 18 m), an dem ca. 9600 PMTs<sup>6</sup> installiert sind. Die PMTs decken 54 % des vollen Raumwinkels

<sup>4</sup>AV = Acrylic Vessel (engl.)

<sup>5</sup>PSUP = Photomultiplier Supporting System (engl.)

<sup>6</sup>PMT = Photomultiplier tube (engl.): Sekundärelektronenvervielfacher

ab [Man10]. Details zur AV und zum PSUP sind im technischen Bericht des SNO Detektors [Bog00] zu finden. Neben den Haltegurten der AV wird für SNO+ eine schnellere Ausleselektronik benötigt [Kra09], da es im Szintillator eine 50 bis 100 mal größere Lichtproduktion als im (schweren) Wasser geben wird [Che08]. Details zum flüssigen Szintillator sind in Kap. 2.2.2 beschrieben.

## 2.2.2 Flüssiger Szintillator

Der verwendete flüssige Szintillator basiert auf dem organischen Lösungsmittel „*lineares Alkylbenzol*“ (LAB). Dem beigemischt sind geringe Mengen  $\mathcal{O}(2 \text{ g}\cdot\text{l}^{-1})$  des Fluoreszenzmaterials PPO<sup>7</sup>, welches der Erhöhung der Lichtproduktion dient [Wri09]. Treten geladene Teilchen durch den Szintillator, so werden dessen Moleküle in höherenergetische Zustände angeregt. Beim Abregen wird Licht emittiert, das in Schauern aus der AV zu den PMTs gelangt und dort detektiert werden kann. Die beobachtbare Lichtmenge ist hierbei proportional zur von Teilchen deponierten Energie.

Die genutzte PPO-LAB Kombination weist Vorteile gegenüber anderen (organischen) flüssigen Szintillatoren auf. Die absorbierte Energie geladener Teilchen wird effizient in Licht umgewandelt (ca. 72 % Energietransfereffizienz von LAB auf PPO [Che07b], Lichtproduktion etwa 12400 Photonen pro MeV [Wri08]) und die Absorptionslänge des produzierten Lichts beträgt etwa 20 m (bei  $\lambda = 420 \text{ nm}$ ). Das LAB reagiert nicht chemisch mit der AV, hat einen verhältnismäßig hohen Flammpunkt (130 °C), eine geringe Toxizität und ist in großen Mengen zu niedrigen Preisen (ca. 1,60 USD pro Liter) verfügbar. Vor allem kann dieser Szintillator auch chemisch stabile Verbindungen mit Neodym eingehen [Wri09, Qui08, Che07a, Nov06].

Für die Messung von doppelten Betazerfällen ist Neodym ein weiterer Bestandteil des Szintillators. Es wird in einer organo-metallischen Lösung zu 0,1 % Massenanteil gebunden sein („Nd-LAB“). Neodym enthält in seiner natürlichen Isotopenzusammensetzung zu 5,64 % das Isotop <sup>150</sup>Nd. Die Möglichkeit der Anreicherung wird geprüft und die Machbarkeit ist derzeit unklar [Vir10]. Alle Betrachtungen in dieser Diplomarbeit werden deswegen für <sup>nat</sup>Nd durchgeführt.

Szintillatoren mit höherem Neodymmasseanteil sind herstellbar, jedoch führt dies zu einer stärkeren Absorption des emittierten Lichts, wobei diese mit  $\leq 10 \%$  bei 0,1 % Neodymmasse noch recht gering ist [Wri08]. Als Ausgangsstoff bei der Herstellung dient NdCl3, welches unter Bildung von Salzsäure (HCl) mit LAB zu „Nd-LAB“ synthetisiert wird. Das PPO wird anschließend hinzugefügt und es entsteht das Endprodukt „Nd-LS“<sup>8</sup> [Yeh09]. Der Prozess der Nd-LAB Synthese ist prinzipiell reversibel, dass heißt mittels HCl kann das Neodym wieder aus dem Szintillator entfernt werden. Mit geringen Mengen (wenige Liter) Nd-LAB wurde dies bereits erfolgreich getestet [Yeh09, Han09].

<sup>7</sup>PPO = 2,5-Diphenyloxazol, auch Poly(Phenylen Oxid)

<sup>8</sup>LS = Liquid Scintillator (engl.): flüssiger Szintillator

Nachteilig bei der Verwendung von flüssigem Szintillator ist die niedrige Energieauflösung [Kno00]. Bei der Detektion von  $\beta\beta$ -Zerfällen können dadurch endpunktnahe Ereignisse des  $2\nu\beta\beta$ -Spektrums in den Energiebereich des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls vordringen, Abb. 2.8. Quantitativ berechnet sich das Verhältnis vom  $0\nu\beta\beta$ -Signal  $S$  zum  $2\nu\beta\beta$ -Untergrund  $B$  im Bereich des  $Q$ -Wertes aus [Ell02]

$$\frac{S}{B} = \frac{m_e}{7 \cdot Q \cdot \delta^6} \cdot \frac{T_{1/2}^{2\nu}}{T_{1/2}^{0\nu}}. \quad (2.14)$$

$m_e$  ist hier die Elektronenmasse,  $Q$  die freiwerdende Energie des  $\beta\beta$ -Zerfalls,  $T_{1/2}^{0\nu}$  und  $T_{1/2}^{2\nu}$  die Halbwertszeiten für den  $0\nu\beta\beta$  und den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall und  $\delta = \Delta E/Q$  die Energieauflösung mit Halbwertsbreite (FWHM<sup>9</sup>)  $\Delta E$  der  $0\nu\beta\beta$ -Energieverteilung. Die Energieauflösung geht hiernach mit der sechsten Potenz in das Verhältnis Signal-zu-Untergrund ein. Entsprechend nachteilig ist eine niedrige Auflösung. Bei SNO+ wird nach konservativen Schätzungen eine Energieauflösung im Bereich des  $Q$ -Wertes von 6,5 % erwartet [Ell02]. Im Vergleich dazu werden bei den Flüssigszintillatorexperimenten KamLAND-Zen<sup>10</sup> 9,5 % und EXO<sup>11</sup> 3,8 % erwartet. Bei Experimenten mit Festkörperdetektoren wie Gerda<sup>12</sup> oder Cuore<sup>13</sup> liegen die Auflösungen dagegen bei 0,2 %. Diese und weitere Beispiele sind in [Ell02] zu finden.

Die Lichtproduktion in Szintillatoren ist bei  $\alpha$ -Teilchen im Vergleich zu  $\beta$ -Teilchen mit gleicher Energie stark unterdrückt. Die Ursache dafür ist, dass  $\alpha$ -Teilchen sehr viel stärker abgebremst werden und damit deren Ionisations-, bzw. Anregungsdichte, also die Anzahl der pro Volumen angeregten Moleküle, entsprechend höher ist. Mit steigender Ionisationsdichte werden immer häufiger Zustände im Szintillator angeregt, bei deren Abregung keine Lichtemission stattfindet, sondern Wärme produziert wird. Diese Reduktion der Lichtproduktion wird **Quenching**<sup>14</sup> genannt [Kno00]. Typischerweise ist die Anzahl gebildeter Photonen für  $\alpha$ -Partikel eine Größenordnung kleiner als für  $\beta$ -Teilchen. Deswegen ist es üblich, für  $\alpha$ -Teilchen das  $\beta$ -Energieäquivalent anzugeben. Das Verhältnis von  $\alpha$ -Energie zum  $\beta$ -Energieäquivalent wird  $\alpha$ -Quenchingfaktor genannt [Eli97]. Die genauen Quenchingfaktoren sind abhängig von der Teilchenenergie und der Zusammensetzung des Szintillators. Entsprechende Messungen des SNO+ Szintillators sind an der TU Dresden in der SNO+ Arbeitsgruppe am Lehrstuhl für Kernphysik in Vorbereitung. In den folgenden Betrachtungen dieser Diplomarbeit wird stets angenommen, dass der  $\alpha$ -Quenchingfaktor für alle Energien 10 beträgt. Dies stimmt mit ersten Messungen von H. S. Wan Chan Tseung überein, die Quenchingfaktoren zwischen 8,0 und 10,8 ( $E_\alpha = 5, 5 \dots 7, 7$  MeV) ergaben [Wan09].

Die endgültige Zusammensetzung des flüssigen Szintillators kann noch leicht variieren. Folglich kann sich dessen Dichte und damit die Gesamtmasse geringfügig ändern, sie wird sich aber in der Größenordnung  $\mathcal{O}(780 \text{ t LS})$  befinden (bei einer Dichte von

<sup>9</sup>FWHM = Full Width at Half Maximum (engl.)

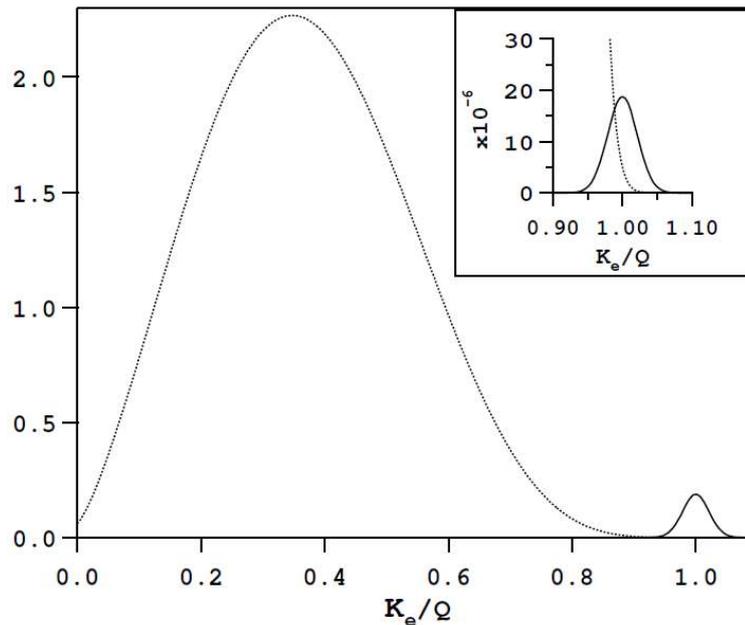
<sup>10</sup>KamLAND-Zen = Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutrino Detector - Xenon loaded

<sup>11</sup>EXO = Enriched Xenon Observatory

<sup>12</sup>Gerda = Germanium Detektor Array

<sup>13</sup>Cuore = Cryogenic Underground Observatory for Rare Events

<sup>14</sup>Quenching, von (to) quench (engl.): dämpfen



**Abbildung 2.8: Summenenergiespektrum und Auflösung bei doppelten Betazerfällen:** Zu sehen sind die Energiespektren des  $2\nu\beta\beta$  und des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls, vgl. Abb. 2.3. Das kleine Bild oben rechts zeigt, wie sich der  $2\nu\beta\beta$ -Endpunkt aufgrund der Verbreiterung durch die niedrige Energieauflösung mit  $0\nu\beta\beta$ -Ereignissen überlagert [E1102].

etwa  $0,86 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ). Die Ergebnisse dieser Arbeit werden, sofern nicht anders angegeben, auf 1000 t Nd-LS mit dem oben genannten Mischungsverhältnis normiert. Dadurch sind Unterschätzungen bezüglich der Masse ausgeschlossen und die Ergebnisse können später leicht an die endgültige Szintillatormasse angepasst werden.

### 2.2.3 Neutrinophysikalische Ziele

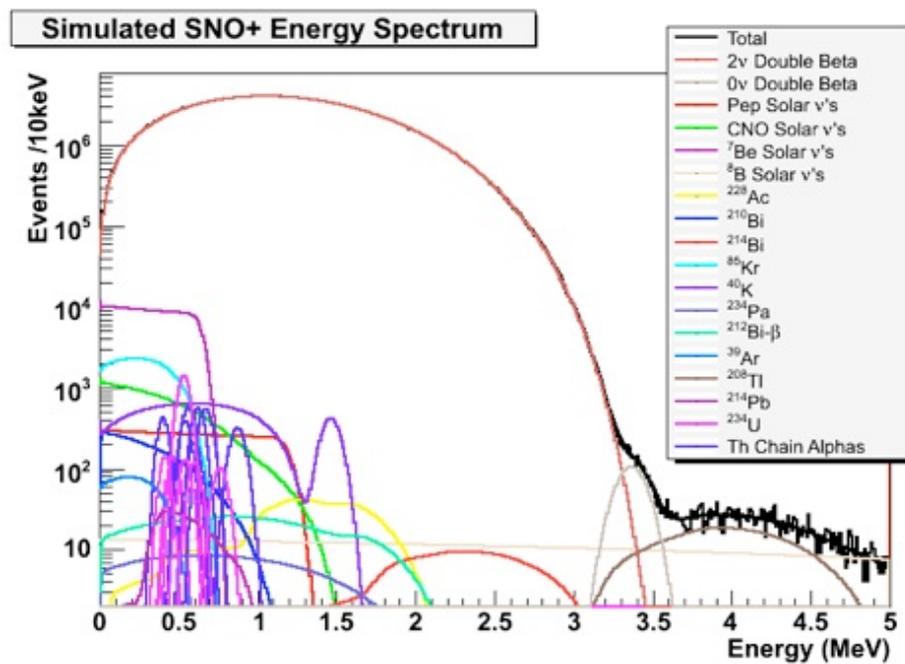
SNO+ verfolgt neben der Erforschung des neutrinolosen doppelten Betazerfalls eine Reihe weiterer neutrinophysikalischer Ziele. So wird das Experiment sensitiv auf solare Neutrinos, Geo- und Reaktorantineutrinos und auch, sofern sie während der Messung auftreten sollten, auf Supernovaneutrinos sein.

Es wird zwei Messphasen geben. Zum einen wird in der „**Neodymphase**“ die in Kap. 2.2.2 beschriebene organo-metallische Verbindung Nd-LS genutzt, um die Existenz des neutrinolosen doppelten Betazerfalls zu untersuchen. Des Weiteren wird es die „**solare Phase**“ geben, in der der flüssige Szintillator ohne Neodym genutzt wird. Dann ist der Detektor sensitiv auf niederenergetische solare Neutrinos, die in der Neodymphase vom  $2\nu\beta\beta$ -Untergrund des  $^{150}\text{Nd}$ -Zerfalls überdeckt werden. Aufgrund der sehr starken Abschirmung vor kosmischen Myonen (beschrieben in Kap. 2.3) durch das massive Felsgestein über dem Detektor ergibt sich für das SNO+-Experiment eine weltweit einmalige Voraussetzung für die Messung der monoenergetischen „pep“-Neutrinos ( $E_\nu = 1,44 \text{ MeV}$ ), die bei der Protonenfusion in der Sonne entstehen. Die solaren Neutri-

nos sind nicht Bestandteil dieser Diplomarbeit, dennoch ist wegen der wissenschaftlichen Bedeutung eine kurze Beschreibung zu dieser Thematik im Anhang A beigefügt.

Geo- und Reaktorantineutrinos können im Prinzip in beiden Messphasen durch eine „verzögerte Koinzidenz“ derer Reaktionsprodukte<sup>15</sup> detektiert werden. Für Geoneutrinos ist jedoch noch ungewiss, ob der Detektor in der Neodymphase hinreichend sensitiv ist, da sie mit  $E_{\nu,Geo} = 1,0...2,5$  MeV in das  $2\nu\beta\beta$ -Untergrundspektrum von  $^{150}\text{Nd}$  fallen [Man10, Wri09]. Sollten während der Datennahme Neutrinos von einer Supernova auf der Erde eintreffen, so können auch diese in beiden Phasen detektiert werden [Wri09]. Eine Beschreibung der neutrinophysikalischen Ziele, die mit Geo- und Reaktorantineutrinos, sowie mit Supernovaneutrinos verfolgt werden, ist z. B. in [Wri09] zu finden.

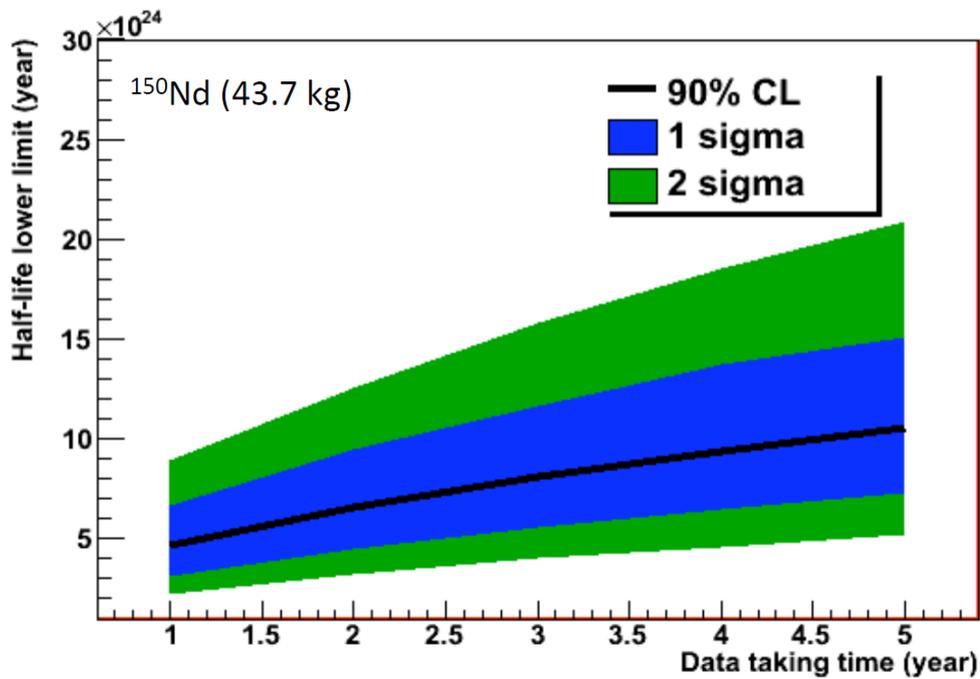
In Folgenden wird auf die Sensitivität des Experimentes auf den neutrinolosen doppelten Betazerfall eingegangen. In Abb. 2.9 ist eine Simulation des Energiespektrums zu sehen. Es ist zu sehen, dass die  $0\nu\beta\beta$ -Ereignisse von  $^{150}\text{Nd}$  durch andere Ereignisse überdeckt werden. Deren Ursprünge werden in Kap. 2.3 erläutert. Diese Untergrundereignisse begrenzen die Möglichkeit des Experiments, den neutrinolosen doppelten Betazerfall zu beobachten.



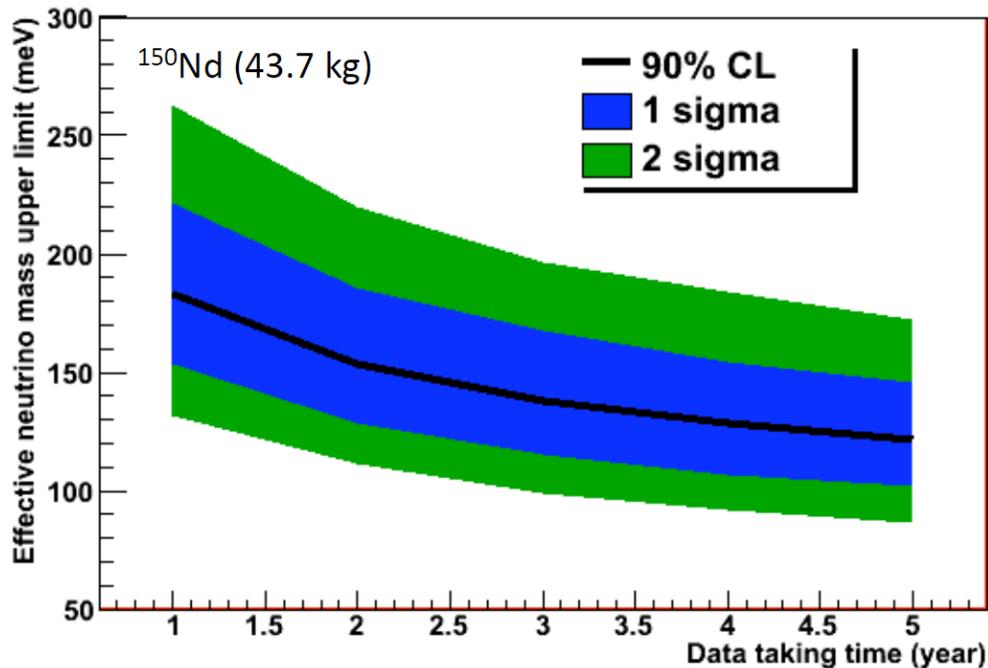
**Abbildung 2.9: SNO+ Energiespektrum:** Abgebildet ist eine Simulation des Energiespektrums des SNO+ Detektors in der Neodymphase. Zu sehen ist das breite Spektrum von  $0\nu\beta\beta$ -Ereignissen zwischen 3,1...3,6 MeV. Überdeckt werden die Ereignisse von  $2\nu\beta\beta$ -Endpunkttereignissen,  $^{208}\text{Tl}$ -Zerfällen,  $^{214}\text{Bi}$  und  $^8\text{B}$  solaren Neutrinos [Bil10].

<sup>15</sup>Elektronantineutrinos reagieren mit Protonen zu  $\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$ , wobei das Positron instantan annihiliert und das Neutron zunächst ca. 200  $\mu\text{s}$  lang abgebremst wird, bevor es durch eine Neutroneinfangreaktion detektiert wird [Wri09].

Die Abb. 2.10 und 2.11 zeigen, welche Halbwertszeiten, bzw. effektive Elektronneutrinomassen in Abhängigkeit von der Messzeit des Experiments (1..5 a) detektiert werden können. Unter der Annahme, dass das Matrixelement aus dem IBM-2 ( $M^{0\nu} = 2,5$ ) korrekt ist, können bei oben genannter Detektorauflösung  $0\nu\beta\beta$ -Ereignisse mit Halbwertszeiten bis zu  $10^{25}$  a vom Untergrund (Abb. 2.9) diskriminiert werden. Dies entspräche einer effektiven Neutrinomasse  $\langle m_{\nu_e} \rangle \approx 150$  meV (Abb. 2.11).



**Abbildung 2.10: Limits für die  $0\nu\beta\beta$ -Halbwertszeit:** Dargestellt ist, welche Halbwertszeiten in Abhängigkeit von der Messzeit für den neutrinolosen doppelten Betazerfall von  $^{150}\text{Nd}$  bei SNO+ gemessen werden können. Angenommen werden hierbei eine Gesamtmasse an  $^{150}\text{Nd}$  von 43,7 kg und das Matrixelement aus dem IBM-2,  $M^{0\nu\beta\beta}(^{150}\text{Nd}) = 2,5$  [Fat10].



**Abbildung 2.11: Limits für die effektive Neutrinomasse  $\langle m_{\nu_e} \rangle$ :** Dargestellt ist, welche effektiven Neutrinomassen in Abhängigkeit von der Messzeit bei SNO+ anhand des Zerfalls von  $^{150}\text{Nd}$  gemessen werden können. Angenommen werden hierbei eine Gesamtmasse an  $^{150}\text{Nd}$  von 43,7 kg und das Matrixelement aus dem IBM-2,  $M^{0\nu\beta\beta}(^{150}\text{Nd}) = 2,5$  [Fat10].

## 2.3 Quellen für Untergrundstrahlung

In Gebieten der Physik, in denen nach sehr seltenen Ereignissen wie  $\beta\beta$ -Zerfällen oder solaren Neutrinos gesucht wird, ist es von enorm hoher Bedeutung Quellen für Untergrundstrahlung zu kennen. Denn bei Detektoren gilt im Allgemeinen, dass die Zählrate proportional zur Zerfallsrate und invers proportional zur Quadratwurzel der Untergrundrate ist. Erstere ist bei solch seltenen Ereignissen beschränkt, was bedeutet, dass der Untergrund entsprechend stark reduziert werden muss.

Dieses Kapitel gibt zunächst einen allgemeinen Überblick über typische Quellen für Untergrundstrahlung und welche Maßnahmen ergriffen werden können, um die Quellstärken zu minimieren. Im Anschluss werden SNO+ spezifische Untergrundquellen zusammengefasst (Unterabschnitt „Untergrundquellen in SNO+“). Hierbei sind langlebige Radionuklide, die aus der Aktivierung des Neodyms an der Erdoberfläche durch kosmische Strahlung entstehen, bislang nicht ausführlich betrachtet worden. Neben den intrinsischen Strahlungsquellen des Neodyms (Kap. 3) ist die Produktion von **kosmogenen Radionukliden** Hauptbestandteil dieser Diplomarbeit. Im Unterabschnitt „Kosmische Strahlung“ dieses Kapitels wird eine Einführung in die Problematik gegeben. In Kap. 4 folgen die genauen Vorbetrachtungen, die für diese Arbeit notwendig sind.

Alle in den folgenden Unterabschnitten genannten Fakten stammen, sofern nicht anders angegeben, aus [Heu95].

### Uran, Thorium, Kalium

Die typischen Quellen für Untergrundstrahlung sind die primordialen Nuklide aus den Uran- und Thoriumzerfallsreihen sowie  $^{40}\text{K}$ . Typische Aktivitäten im Erdboden sind  $^{40}\text{K}$ :  $425 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,  $^{232}\text{Th}$ :  $44 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,  $^{238}\text{U}$ :  $18 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . Allein diese produzieren einen  $\gamma$ -Fluss an der Erdoberfläche von ca.  $10 \text{ cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  ( $E_\gamma > 50 \text{ keV}$ ). Alle anderen primordialen Nuklide sind dagegen vernachlässigbar.

Als Folge von Verunreinigungen mit primordialen Nukliden sind spezifische Aktivitäten in allen Baustoffen, Detektor- und Abschirmmaterialien nachweisbar. Photonen von außerhalb lassen sich sehr gut mit Blei abschirmen. Blei selbst weist aber spezifische Aktivitäten von  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22,3 \text{ a}$ ) auf, welches Teil der Uran-Radium Zerfallsreihe ist. Typische  $^{210}\text{Pb}$  Aktivitäten sind  $2500\dots 50000 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ , jedoch können diese im Rahmen moderner Bleiverarbeitungsverfahren bis auf  $0,4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  gesenkt werden.

### Radon

Das Edelgas Radon ist der einzige gasförmige Bestandteil aller natürlichen Zerfallsreihen. Es diffundiert aus festen Stoffen heraus, wobei besonders  $^{222}\text{Rn}$  aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe aufgrund seiner langen Lebensdauer ( $T_{1/2} = 3,82 \text{ d}$ ) auch aus tieferen Schichten an die Oberfläche gelangen kann. In Folge dessen strömen durchschnittlich  $1300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$   $^{222}\text{Rn}$  aus der kontinentalen Erdoberfläche in die Atmosphäre. Es ist damit die größte Quelle für Radioaktivität in der Luft. Die typische Radonaktivitätskonzentration liegt bei  $40 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  Luft. Der Anteil des ebenfalls radioaktiven  $^{220}\text{Rn}$  schwankt aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit ( $T_{1/2} = 55,6 \text{ s}$ ).

Ein sehr effektiver Schutz vor Radon in Festkörperdetektoren ist das Spülen der Detektor-kammer mit einem radonfreien Gas, üblicherweise Stickstoff. Dazu muss der Detektor in einer Hülle aufgebaut werden, durch die Radon nicht diffundieren kann, z. B. aus Metall.

Radon ist sehr gut in Wasser und organischen Lösungen löslich. Beispielsweise kann  $0,285 \text{ cm}^3$   $^{222}\text{Rn}$  in  $1 \text{ cm}^3$  Wasser oder  $12,8 \text{ cm}^3$  in  $1 \text{ cm}^3$  Benzol gelöst werden (bei  $T = 18 \text{ }^\circ\text{C}$  und  $1 \text{ atm}$  Partialdruck von  $^{222}\text{Rn}$ ). Bei Experimenten wie SNO+, die Benzol als Detektionsmaterial nutzen, kann das zu Aktivitätskonzentrationen von  $4500 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$   $^{222}\text{Rn}$  führen. Abhilfe hiergegen schaffen z. B. Stickstoffspülungen des flüssigen Szintillators [Ben08].

### Kosmische Strahlung

Die Atmosphäre unseres Planeten ist permanent primärer kosmischer Strahlung ausgesetzt. Abgesehen von Neutrinos, welche fast keine Wechselwirkungen eingehen, besteht diese zu 90 % aus Protonen, 9 % sind Alphateilchen und der Rest sind schwerere Kerne. Der Teilchenfluss beträgt etwa  $1000 \text{ m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ . Durch Wechselwirkungen dieser Teilchen mit den Molekülen der Atmosphäre werden eine große Anzahl sekundärer Teilchen

gebildet („sekundäre kosmische Strahlung“ oder „atmosphärische Strahlung“), die dann auf der Erdoberfläche eintreffen. So gelangen auch kurzlebige Partikel wie Neutronen ( $T_{1/2} = 614,6$  s) und hochrelativistische Myonen<sup>16</sup> auf die Erdoberfläche, die bei erdferner Entstehung (d. h. in der Sonne oder noch weiter entfernt) auf dem Weg durch das All zerfallen. Insgesamt besteht eine starke Abhängigkeit von der Höhe<sup>17</sup> über NN, ebenso wie von der geographischen Breite, vom Luftdruck und der Luftfeuchtigkeit [Zie98]. In Folge dessen schwanken die Teilchenflüsse auf der Erdoberfläche sehr stark. Im Durchschnitt ist folgendes Teilchenverhältnis auf Meereshöhe zu verzeichnen:

Geladene Pionen (1) : Protonen (13) : Elektronen (340) : Neutronen (480) : Myonen (1420).

Dabei ist der Pionfluss auf Normalnull  $1,34 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Auch kosmische Gammastrahlung trifft auf der Erde ein, jedoch beträgt deren Intensität auf Normalnull  $\leq 1$  % der Intensität der primordialen  $\gamma$ -Strahlung. Sie kann deswegen vernachlässigt werden.

Elektronen, Photonen und Protonen werden sehr gut von Bleiburgen oder ähnlichen Überbauten abgeschirmt. Myonen dringen sehr tief in Materie ein. Ihre Schwächung im Erdboden beträgt  $2 \text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Je nach Lage des jeweiligen Experiments können mehr oder weniger häufig in-situ<sup>18</sup> Aktivierungen stattfinden. Beispielsweise kann in organischem Szintillator die Reaktion  $^{12}\text{C}(\mu, n)^{11}\text{C}$  stattfinden, wodurch wiederum  $^{11}\text{C}$  Zerfälle ( $T_{1/2} = 20,39$  min,  $Q = 1982,5$  keV) im Detektor stattfinden und ein Neutron emittiert wird. Das Neutron kann durch Kernreaktionen weitere Untergründereignisse auslösen. Abhilfe gegen myoninduzierte Strahlung verschaffen Myonvetos und die Verlagerung des Detektors tief unter die Erdoberfläche, z. B. in eine Mine. Der vertikale Myonenfluss in Abhängigkeit von der Eindringtiefe ist in Abb. 2.12 zu sehen. Im SNOLAB in Sudbury ist von allen derzeit laufenden Experimenten der geringste Myonenfluss pro Quadratmeter und Steradian (bzw. im Detektor ca.  $70 \text{ d}^{-1}$ ) zu verzeichnen [For04].

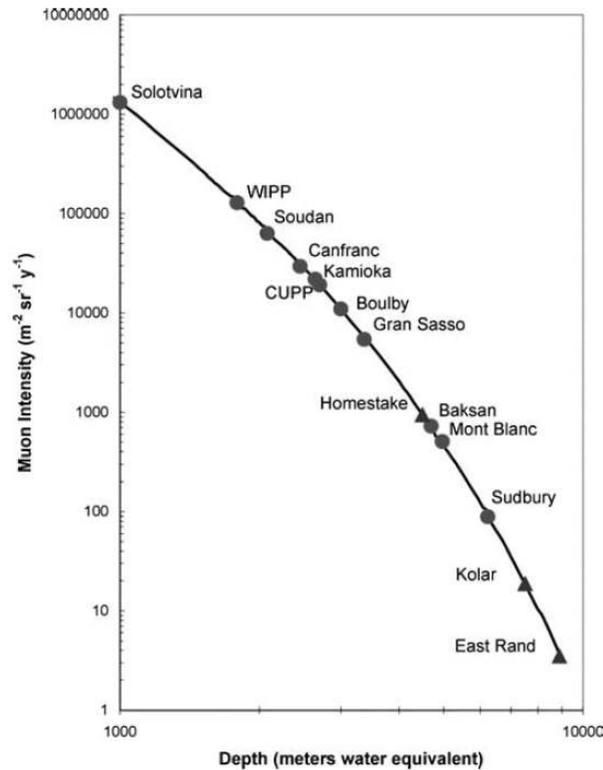
Neutronen werden im Erdboden meist durch inelastische Streuung mit typischerweise  $200 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$  geschwächt und können dabei Kernreaktionen hervorrufen. Dabei können langlebige Tochternuklide in hohen Raten erzeugt werden. Diese bilden später im Experiment eine weitere Quelle für Untergrundstrahlung. Beispielsweise wird permanent in der Atmosphäre  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} = 5730$  a,  $Q = 156,48$  keV) durch Neutroneneinfang an  $^{13}\text{C}$  erzeugt, was bei Experimenten, die organischen Szintillator benutzen, stören kann.

Myonen und Neutronen sind die beiden Teilchenarten, die den dominanten Teil des Untergrundes durch „kosmogene Aktivierung“ bilden. Neutronen bilden dabei an der Erdoberfläche langlebige Radionuklide in relevanten Mengen, während durch Myonen überwiegend in-situ Aktivierungen mit teilweise hohen  $Q$ -Werten stattfinden.

<sup>16</sup>Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von ruhenden Myonen  $T_{1/2} = 1,523 \mu\text{s}$  können nur hochrelativistische Myonen von der Atmosphäre auf den Erdboden gelangen [Sta11].

<sup>17</sup>Die Abhängigkeit von der Höhe ist beispielsweise daran zu sehen, dass Materialien nach einem 10 stündigen Flug in etwa die gleiche Aktivierung erfahren haben, wie nach einer 125 tägigen Exposition an der Erdoberfläche.

<sup>18</sup>In situ (lat.): vor Ort



**Abbildung 2.12: Vertikaler Myonenfluss in Abhängigkeit von der Eindringtiefe in Meter Wasseräquivalent (m. w. e.):** Die Kreise zeigen die Tiefen laufender Experimente, die Dreiecke frühere. Aus [For04]

### Künstliche Quellen für Untergrundstrahlung

Eine weitere Quelle für Untergrundstrahlung sind anthropogene Radionuklide, welche in der Atmosphäre auffindbar sind und im Wesentlichen aus Kernwaffentests, dem Reaktorunfall in Tschernobyl 1986 und aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen stammen. Erstere haben zu einer Erhöhung der  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  geführt. Deren Konzentrationen schwanken jedoch stark, weswegen Baumaterialien für Niederniveau-Messlabore auf deren spezifische Aktivitäten überprüft werden.

Vor allem durch die Wiederaufarbeitung abgebrannten Spaltmaterials werden jährlich  $30 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}_{(\text{Luft})}$  an  $^{85}\text{Kr}$  ( $T_{1/2} = 10,76 \text{ a}$ ,  $Q = 687,1 \text{ keV}$ ) freigesetzt. Das führte zu einem Anwachsen der Krypton Aktivität von einem vernachlässigbar kleinen Niveau im Jahre 1950 auf etwa  $1,5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}_{(\text{Luft})}$  im Jahre 2007, Tendenz steigend [Ahl09].

### Untergrundquellen in SNO+, direkter und indirekter Untergrund

Der doppelte Betazerfall des  $^{150}\text{Nd}$  hat einen hohen  $Q$ -Wert von  $3367,1 \text{ keV}$ . Es wird daher zwischen zwei Arten von Untergrundereignissen unterschieden. Zum einen gibt es Ereignisse, die im Energiebereich des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls von  $^{150}\text{Nd}$  liegen, also um  $3100 \dots 3600 \text{ keV}$ , siehe Abb. 2.9. Diese Ereignisse sind in erster Näherung nicht von den eigentlich gesuchten

$0\nu\beta\beta$ -Ereignissen unterscheidbar, überlagern sich also „direkt“ mit dem gesuchten Signal und werden fortin als **direkter Untergrund** bezeichnet. Hier fallen auch Quellen mit noch höherem  $Q$ -Wert hinein, da diese möglicherweise nur einen Teil ihrer Energie im Detektor deponieren. Bei SNO+ betrifft dies die Zerfälle von  $^{208}\text{Tl}$  ( $Q = 5001$  keV) aus der Thorium-Zerfallsreihe,  $^{214}\text{Bi}$  ( $Q = 3272$  keV) aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe,  $^8\text{B}$  Solarneutrinos ( $E_{max} = 14,6$  MeV) und Ereignisse aus dem  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall des  $^{150}\text{Nd}$ , die nahe des Endpunktes liegen [Che10, Fat10, Man09, Dem04, Chu99, Sch97]. Inwiefern direkt gefährliche Nuklide durch kosmogene Aktivierungen entstehen, wird in Kap. 4 untersucht.

Des Weiteren gibt es eine große Anzahl von Untergrundquellen, die zwar hohe Aktivitäten aufweisen, jedoch einen  $Q$ -Wert unter 3000 keV haben. Bei diesen besteht die Möglichkeit, dass sich ein solches Ereignis mit einem  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall des  $^{150}\text{Nd}$  zeitlich überlagert. Bei der Detektion sehen sie wie ein Ereignis mit der Summe beider Energien aus. Dieses Summationsereignis kann im Energiebereich des  $0\nu\beta\beta$ -Zerfalls liegen. Es wird als **pile-up**<sup>19</sup> bezeichnet und kann auch mit mehr als zwei Zerfällen stattfinden. Radionuklide, die nur zu pile-ups beitragen können, werden künftig als **indirekter Untergrund**, bzw. indirekt gefährlich, bezeichnet.

Zum indirekten Untergrund bei SNO+ gehören unter anderem die Nuklide der primordialen Zerfallsreihen (wie oben beschrieben). Bei speziellen Reinigungsverfahren konnte die SNO+ Kollaboration von den Erfahrungen anderer Experimente profitieren. So werden für die Reinigung des flüssigen Szintillators die Methoden des Experiments Borexino genutzt [Wri09]. Diese bestehen aus Destillierungen, Filtrationen, Stickstoffspülungen, Oberflächenreinigungen und Lagerung unter Tage [Ben08]. Die Verunreinigung durch  $^{238}\text{U}$  werden nach Erwartungen um acht Größenordnungen reduziert, und zwar auf  $10^{-15}$  g/g Nd was einer Zerfallsrate von  $1,55 \cdot 10^{-4}$  Bq in 780 t Szintillator entspricht [Che10].

Eine Zusammenfassung der für SNO+ indirekt gefährlichen Radionuklide, mit Ausnahme der kosmogenen, ist in [Che10] zu finden. Typische Aktivitäten sind dort mit  $\mathcal{O}(10^{-3} \dots 10^{-5}$  Bq) in 780 t Nd-LAB angegeben. Im folgenden Kapitel wird die von seltenen Erden ausgehende Untergrundstrahlung genauer beschrieben.

---

<sup>19</sup>Pile-up (engl.): der Aufstau; hier: Summation von Ereignissen



# 3 Radioaktivität von Neodymproben

## Motivation

Bevor die Aktivierung von Neodym durch kosmische Strahlung untersucht wird (Kap. 4 und 5), wird betrachtet welche spezifischen Aktivitäten vom Neodym selbst ausgehen. Dazu gehören zum einen die Aktivitäten von in der Natur vorkommenden, instabilen Neodymisotopen. Diese werden in Kap. 3.1 zusammengefasst. Zum anderen gibt es stets Verunreinigungen durch andere seltene Erden in Neodymproben, wobei es unter diesen ebenfalls in der Natur vorkommende, instabile Isotope gibt. Die aus den Verunreinigungen resultierenden, spezifischen Aktivitäten werden in Kap. 3.2 untersucht.

## Berechnungsgrundlage

Die Aktivität eines instabilen Isotops berechnet sich aus (2.8). Ist das Isotop Teil eines Isotopengemischs, so berechnet sich die Anzahl  $N_i$  des Isotops  $i$  aus [Fau05]

$$N_i = \frac{f_i \cdot m_{ges}}{m_i \cdot u}. \tag{3.1}$$

$m_{ges}$  ist hierbei die Gesamtmasse des Isotopengemischs in [kg],  $m_i$  die relative Atommasse des Isotops  $i$ ,  $u$  die atomare Masseneinheit ( $1,66 \cdot 10^{-27}$  kg) und  $f_i$  die natürliche Häufigkeit des Isotops  $i$ . Daraus ergibt sich die Aktivität  $A_i$  zu

$$A_i = \frac{f_i \cdot m_{ges}}{m_i \cdot u} \cdot \frac{\ln 2}{T_{1/2,i}}. \tag{3.2}$$

## 3.1 Spezifische Aktivitäten von Neodymisotopen

Neodym enthält in seiner natürlichen Zusammensetzung sieben Isotope (Tab. 3.1), davon sind vier instabil mit sehr langen Halbwertszeiten im Bereich  $T_{1/2} = 10^{15}$  a oder länger [Fir96, Boe92].

**Tabelle 3.1: Neodymisotope und deren natürliche Häufigkeiten  $f$**

Isotop	$^{142}\text{Nd}$	$^{143}\text{Nd}$	$^{144}\text{Nd}$	$^{145}\text{Nd}$	$^{146}\text{Nd}$	$^{148}\text{Nd}$	$^{150}\text{Nd}$
$f$ / %	27,13	12,18	23,80	8,30	17,19	5,76	5,64

Dabei ist  $^{144}\text{Nd}$  ein  $\alpha$ -Strahler [Fir96],  $^{146}\text{Nd}$ ,  $^{148}\text{Nd}$  und  $^{150}\text{Nd}$  sind doppel Betastrahler [Boe92]. Der Phasenraumfaktor des  $2\nu\beta\beta$ -Zerfalls von  $^{146}\text{Nd}$  ist elf Größenordnungen kleiner als der des  $^{150}\text{Nd}$  und mit seinem geringen  $Q$ -Wert von 56 keV [Boe92] ist dieser Zerfall völlig uninteressant als Untergrundquelle für SNO+.  $^{146}\text{Nd}$  wird deswegen im

Folgenden nicht weiter betrachtet.

Die Halbwertszeiten der Zerfälle von  $^{144}\text{Nd}$  und  $^{150}\text{Nd}$  sind gemessen worden. Die Messdaten sind samt Referenzen in Tab. 3.2 zu finden. Des Weiteren wurde der Zerfall von  $^{150}\text{Nd}$  in den ersten angeregten  $0^+$  Zustand des Tochterkerns  $^{150}\text{Sm}$  experimentell verifiziert [Bar10]. Dieser Zerfallskanal wurde Tab. 3.2 hinzugefügt. Für den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall von  $^{148}\text{Nd}$  ist eine Berechnung im Unterabschnitt „Der doppelte Betazerfall des  $^{148}\text{Nd}$ “ dieses Kapitels zu finden. Die ermittelte Halbwertszeit ist ebenfalls in Tab. 3.2 enthalten.

**Tabelle 3.2: Erwartete Aktivitäten von Neodymisotopen im SNO+ Experiment:** Angegeben sind die natürlichen Häufigkeiten  $f_i$ , die Zerfallsarten, die Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  mit Referenzen und die daraus resultierenden Aktivitäten  $A$  von Neodymisotopen. Bei den angegebenen Fehlern entspricht der erstgenannte dem statistischen und der zweitgenannte dem systematischen Fehler.

Isotop	$f_i / \%$	Zerfallsart	$T_{1/2} / \text{a}$	Ref.	$A$
$^{150}\text{Nd}$	5,64	$2\nu\beta\beta$	$(9, 2_{-0,22}^{+0,25} \pm 0, 62) \cdot 10^{18}$	[Bar09a]	$0,55 \text{ s}^{-1}$
$^{150}\text{Nd} (0_1^+)$	5,64	$(0\nu + 2\nu)\beta\beta$	$(1, 33_{-0,23}^{+0,36+0,27} \cdot 10^{20}$	[Bar10]	$127,9 \text{ h}^{-1}$
$^{148}\text{Nd}$	5,76	$2\nu\beta\beta$	$(1, 36 \pm 0, 10) \cdot 10^{21}$	Kap. 3.1	$13,9 \text{ h}^{-1}$
$^{144}\text{Nd}$	23,80	$\alpha$	$(2, 29 \pm 0, 16) \cdot 10^{15}$	[Fir96]	$9505,1 \text{ s}^{-1}$

Tab. 3.2 ist zu entnehmen, dass der  $\alpha$ -Zerfall des  $^{144}\text{Nd}$  mit einer Aktivität von etwa 10 kBq den mit Abstand höchsten Beitrag zur Untergrundaktivität liefert. Der  $Q$ -Wert ist mit 1905,2 keV ( $E_\alpha = 1830 \text{ keV}$ ) kleiner als der des  $^{150}\text{Nd}$  (vgl. Tab. 2.1) und aufgrund des Quenchings (vgl. Kap. 2.2.2) entspricht dies einem Ereignis mit ca. 180 keV  $\beta$ -Energieäquivalent. Die Strahlung des Isotops  $^{144}\text{Nd}$  bildet somit nur indirekte Untergrundstrahlung.

In organischem Szintillator können die  $\alpha$ -Teilchen aus dem  $^{144}\text{Nd}$ -Zerfall durch die Reaktion  $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$  Neutronen erzeugen. Der daraus resultierende Neutronenfluss im SNO+ Detektor beträgt jedoch nur  $100 \text{ a}^{-1}$ . Die Berechnung ist in [Loz10] zu finden. Dieser Neutronenfluss spielt lediglich für die Geoneutrino-messung eine Rolle, da hier Koinzidenzen zwischen  $e^+$ -Annihilationen und Neutroneneinfängen ( $n, \gamma$ ) gesucht werden [Wri09]. Die Berechnung ist in [Loz10] zu finden.

Die zweithöchste Aktivität kommt vom  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall des  $^{150}\text{Nd}$ . Dieser erzeugt ein  $\beta\beta$ -Spektrum mit Endpunkt bei 3367 keV. Der Beitrag des Zerfalls in den ersten angeregten Zustand von  $^{150}\text{Sm}$  addiert sich zur  $2\nu\beta\beta$ -Aktivität von  $^{150}\text{Nd}$  hinzu. Das ergibt eine Gesamtaktivität von 0,6 Bq für den  $2\nu\beta\beta$ -Untergrund des Isotops  $^{150}\text{Nd}$ .

Eine Abschätzung der Halbwertszeit des  $^{148}\text{Nd}$ , welche noch nicht experimentell beobachtet wurde<sup>1</sup>, ist im folgenden Unterabschnitt geschildert.

<sup>1</sup>Mündliche Mitteilung von K. Zuber

**Der doppelte Betazerfall des  $^{148}\text{Nd}$** 

$^{148}\text{Nd}$  ist in der Theorie ebenfalls ein doppelt betazerfallendes Isotop mit wohlbekanntem Phasenraumfaktor, angegeben in Tab. 3.3, [Boe92]. Dessen Halbwertszeit wurde bisher nicht nachgemessen und wird im Folgenden berechnet.

**Tabelle 3.3: Coulombkorrigierte Phasenraumfaktoren der doppelt betazerfallenden Isotope von natürlichem Neodym:** Zusätzlich angegeben sind die  $Q$ -Werte. Die Tabelle ist ein Auszug aus [Boe92].

Isotop	Q-Wert	$(G^{2\nu})^{-1}$	$(G^{0\nu})^{-1}$
$^{146}\text{Nd}$	56 keV	$2,06 \cdot 10^{29}$ a	$7,05 \cdot 10^{27}$ a·eV <sup>2</sup>
$^{148}\text{Nd}$	1928 keV	$9,35 \cdot 10^{17}$ a	$7,84 \cdot 10^{24}$ a·eV <sup>2</sup>
$^{150}\text{Nd}$	3367 keV	$8,41 \cdot 10^{15}$ a	$1,25 \cdot 10^{24}$ a·eV <sup>2</sup>

Die Berechnung der inversen Halbwertszeit erfolgt nach Gl. (2.13). Für die Matrixelemente  $|M^{2\nu}|$  hat Francesco Iachello Berechnungen basierend auf dem Interacting Boson Modell [Iac87] durchgeführt und dabei das Verhältnis

$$\frac{M^{2\nu}(^{148}\text{Nd})}{M^{2\nu}(^{150}\text{Nd})} = 0,859 \equiv r$$

ermittelt<sup>2</sup>. Aus diesem Verhältnis, den in Tab. 3.3 angegebenen Phasenraumfaktoren und der Halbwertszeit von  $^{150}\text{Nd}$ ,  $T_{1/2}^{(150)}$ , wird nun mittels (2.13) die Halbwertszeit von  $^{148}\text{Nd}$ ,  $T_{1/2}^{148}$ , berechnet. Da es sich in dieser Betrachtung ausschließlich um  $2\nu\beta\beta$ -Ereignisse handelt, wird bei der Herleitung der Index  $2\nu$  stets weggelassen. Die Indizes 148 und 150 stehen jeweils für das Isotop  $^{148}\text{Nd}$  und  $^{150}\text{Nd}$ . Es gilt

$$\frac{1}{T_{1/2}^{(150)}} = \frac{1}{(G_{150})^{-1}} \cdot |M_{150}|^2 \quad (3.3)$$

$$|M_{150}|^2 = \frac{(G_{150})^{-1}}{T_{1/2}^{(150)}}. \quad (3.4)$$

Mit dem Matrixelementverhältnis  $r$  gilt weiterhin

$$|M_{148}| = |M_{150}| \cdot r \quad (3.5)$$

$$\frac{1}{T_{1/2}^{(148)}} = \frac{1}{(G_{148})^{-1}} \cdot |M_{148}|^2 \quad (3.6)$$

$$\frac{1}{T_{1/2}^{(148)}} = \frac{1}{(G_{148})^{-1}} \cdot |M_{150}|^2 \cdot r^2 \quad (3.7)$$

$$T_{1/2}^{(148)} = (G_{148})^{-1} \cdot \frac{T_{1/2}^{(150)}}{(G_{150})^{-1}} \cdot \frac{1}{r^2} \quad (3.8)$$

<sup>2</sup>Schriftliche Mitteilung von F. Iachello; Berechnet wurden die absoluten Werte der Matrixelemente und deren Verhältnis, nur letzteres ist nach eigenen Angaben vertrauenswürdig, da für die absoluten Werte die Annahme  $g_A = 1$  getroffen wurde.

Alle Größen in (3.8) sind bekannt und es ergibt sich die in Tab. 3.2 angegebene Halbwertszeit für  $^{148}\text{Nd}$

$$T_{1/2}^{2\nu}(^{148}\text{Nd}) = 1,36 \cdot 10^{21} \text{ a.}$$

Zerfälle in angeregte Zustände des Tochterkerns  $^{148}\text{Sm}$  werden hier nicht berücksichtigt, da die entsprechenden Matrixelemente nicht bekannt sind.

Eine Abschätzung des Fehlers ergibt sich aus der Unsicherheit der Halbwertszeit von  $^{150}\text{Nd}$  zu

$$\frac{\Delta T_{1/2}^{(148)}}{T_{1/2}^{(148)}} = \frac{\Delta T_{1/2}^{(150)}}{T_{1/2}^{(150)}}. \quad (3.9)$$

$\Delta T_{1/2}^{(150)}$  errechnet sich hierbei aus der Quadratsumme aus statistischen und systematischen Fehler der Halbwertszeit  $T_{1/2}^{(150)}$  (Tab. 3.2). Aufgrund der geringen Abweichungen bei den statistischen Fehlern von  $T_{1/2}^{(150)}$  ergibt sich  $\Delta T_{1/2}^{(148)} = \begin{matrix} +0,0988 \\ -0,0972 \end{matrix} \approx \pm 0,10$ .

### 3.2 Verunreinigungen durch seltene Erden

Seltene Erden haben chemisch sehr ähnliche Eigenschaften. Folglich kommt in der Natur eine seltene Erde niemals allein vor, sondern stets in einem Gemisch aus allen seltenen Erden. Sie sind des Weiteren sehr unedel und reagieren vor allem mit Sauerstoff.

Es ist prinzipiell möglich Neodym, bzw. Verbindungen, von anderen Lanthanoiden zu trennen, jedoch verbleibt in jeder noch so reinen Neodymprobe ein geringer Anteil aller anderen seltenen Erden. Bei typischen Herstellungsprozessen sind Neodymverbindungen mit einem höheren Reinheitsgrad herstellbar als reines Neodym<sup>3</sup>. Der Anteil an Verunreinigungen ist bei Neodymverbindungen ungefähr in der Größenordnung 1 ppm<sup>4</sup>.

Bei SNO+ wird  $\text{NdCl}_3$  als Ausgangsstoff verwendet [Yeh09], weswegen für die weiteren Betrachtungen Verunreinigungswerte für Neodymverbindungen herangezogen werden. Ein Beispiel folgt (Tab. 3.4).

Unter den Verunreinigungen gibt es wiederum instabile Isotope, die mit Halbwertszeiten  $T_{1/2} = \mathcal{O}(10^{10} \text{ a})$  (siehe Tab. 3.5) in der Natur vorkommen. Im Vergleich zu den Neodymisotopen ( $T_{1/2} = 10^{15} \dots 10^{21} \text{ a}$ ) sind diese aber eher kurzlebig. Im Folgenden werden die daraus resultierenden spezifischen Aktivitäten untersucht.

Den Betrachtungen liegen die Reinheitsangaben eines Herstellers von Neodymoxid, *Alfa Aesar*<sup>5</sup>, zugrunde. Die Werte sind in Tab. 3.4 zu finden. Im Vergleich zu anderen Proben können die Werte bis zu einem Faktor 3 abweichen. Als Vergleichsreferenz dient hierbei eine massenspektrometrische Analyse des *Ames Laboratory*<sup>6</sup>.

<sup>3</sup>Mündliche Mitteilung von A. Bund

<sup>4</sup>ppm = parts per million (engl.): Teile pro Million, gemeint ist ein Millionstel Teil vom Gesamten

<sup>5</sup>www.alfa.com

<sup>6</sup>Schriftliche Mitteilung von T. Riedemann

**Tabelle 3.4: Verunreinigungen von Neodymoxid:** Aufgelistet sind Herstellerangaben der Anteile am jeweiligen seltenen Erd Oxid (REO) im Verhältnis zur Gesamtmenge an seltenen Erd Oxiden (TREO). Die Angaben wurden umgerechnet in Anteile der seltenen Erden am gesamten Neodym  $p$ .

REO / TREO	Anteil	Element	Menge $p$
La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,35 ppm	La	0,35 ppm
CeO <sub>2</sub>	1,2 ppm	Ce	0,6 ppm
Pr <sub>6</sub> O <sub>11</sub>	0,2 ppm	Pr	0,6 ppm
Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,29 ppm	Sm	0,29 ppm
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,15 ppm	Eu	0,15 ppm
Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,9 ppm	Gd	0,9 ppm
Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub>	0,30 ppm	Tb	0,6 ppm
Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,15 ppm	Dy	0,15 ppm
Ho <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,18 ppm	Ho	0,18 ppm
Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,4 ppm	Er	0,4 ppm
Tm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,21 ppm	Tm	0,21 ppm
Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,30 ppm	Yb	0,30 ppm
Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,03 ppm	Lu	0,03 ppm

Basierend auf den Daten aus Tab. 3.4 wird berechnet, wie hoch die Aktivitäten der instabilen, in der Natur vorkommenden Lanthanoidisotope ist. Die Aktivität des Isotops  $j$  einer seltenen Erde berechnet sich aus

$$A_j = f_j \cdot \underbrace{\frac{\bar{m}}{m_j}}_{\approx 1} \cdot p_j \cdot \underbrace{\frac{m_{ges}}{\bar{m}_{Nd} \cdot u}}_{N_{Nd}} \cdot \frac{\ln 2}{T_{1/2,j}}. \quad (3.10)$$

Hierbei ist  $f_j$  die natürliche Häufigkeit des Isotops  $j$ ,  $\bar{m}$  die durchschnittliche Masse eines Isotops der Verunreinigung,  $m_j$  die atomare Masse des Isotops  $j$ ,  $p$  der Verunreinigungsgrad des Elements im Neodym,  $\bar{m}_{Nd}$  die durchschnittliche Masse eines Neodymisotops und  $T_{1/2,j}$  die Halbwertszeit des Isotops  $j$ . Es wird angenommen, dass  $\bar{m}/m_i \approx 1$ . Die Abweichungen aus dieser Abschätzung sind im Prozentbereich und gegenüber den Unsicherheiten der Verunreinigungsangaben  $p$  vernachlässigbar klein. Die Aktivitäten sind in Tab. 3.5 zusammengefasst.

**Tabelle 3.5: Erwartete Aktivitäten von seltenen Erd Isotopen in 1000 kg  $^{nat}\text{Nd}$ :** Die natürlichen Häufigkeiten, die Zerfallsarten samt  $Q$ -Werten, sowie die Halbwertszeiten stammen aus [Fir96].

Isotop	$f_j$	Zerfallsart	$Q$ -Wert	$T_{1/2}$	$A$
$^{176}\text{Lu}$	2.59 %	$\beta^-$	1192,8 keV	$3.85 \cdot 10^{10}$ a	$1,9 \text{ s}^{-1}$
$^{152}\text{Gd}$	0.20 %	$\alpha$	2204,6 keV	$1.08 \cdot 10^{14}$ a	$5,5 \text{ h}^{-1}$
$^{147}\text{Sm}$	14.99 %	$\alpha$	2310,5 keV	$1.06 \cdot 10^{11}$ a	$37,6 \text{ s}^{-1}$
$^{148}\text{Sm}$	11.24 %	$\alpha$	1986,0 keV	$7.00 \cdot 10^{15}$ a	$1,5 \text{ h}^{-1}$
$^{138}\text{La}$	0.09 %	$\beta^+/\beta^-$	1738/1044 keV	$1.05 \cdot 10^{11}$ a	$0,23 \text{ s}^{-1}$

Zu sehen ist, dass die  $\beta$ -Strahler  $^{138}\text{La}$  und  $^{176}\text{Lu}$  mit Aktivitäten der Größenordnung  $\mathcal{O}(1 \text{ Bq})$ , sowie der  $\alpha$ -Strahler  $^{147}\text{Sm}$  sogar mit etwa 40 Bq zur Untergrundstrahlung beitragen. Die Isotope  $^{148}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Gd}$  haben vergleichsweise geringe Aktivitäten. Alle Isotope stellen Quellen für indirekten Untergrund dar.

# 4 Vorbetrachtungen zur kosmogenen Aktivierung von Neodym

## 4.1 Motivation

In Kapitel 2.3 wurde erläutert, dass Stoffe an der Erdoberfläche kosmischer Strahlung ausgesetzt sind und in ihnen dadurch langlebige Nuklide gebildet werden können. Dominant sind dabei Aktivierungen durch Neutronen. Im Rahmen dieser Arbeit wird geprüft, welche Nuklide entstehen können und wie hoch deren spezifische Aktivität zu Beginn der Neodymphase von SNO+ sein wird. Anhand dieser Daten werden von E. Vazquez pile-up Studien durchgeführt, das heißt es wird simuliert, wie hoch der Einfluss einer Störaktivität auf die  $0\nu\beta\beta$ -Sensitivität ist.

In diesem Kapitel werden zunächst die mathematischen Grundlagen der kosmogenen Aktivierung zusammengestellt. Anschließend wird ein Überblick über die verwendeten Daten für kosmische Strahlungsflüsse und Wirkungsquerschnitte gegeben. Für die Ermittlung, welche Radionuklide für die kosmogene Aktivierung von Neodym in Betracht gezogen werden, werden zunächst die Kriterien erläutert. Abschließend werden in diesem Kapitel die zu betrachtenden Nuklide („Exspektanten“) präsentiert.

Für die Berechnungen der Produktionsraten, d. h. die Anzahl der pro kg und d erzeugten Nuklide, wurde eigens das Programm *ProdRate* geschrieben. In Kap. 5.1 wird dieses genau beschrieben. Damit werden in Kap. 5.2 die Produktionsraten berechnet und anschließend Abschätzungen zu den erwarteten Aktivitäten gemacht.

## 4.2 Berechnungsgrundlagen

Befindet sich ein Stoff in einem Strahlungsfeld, so gilt allgemein für die Produktionsrate eines Tochternuklids

$$R = N_t \cdot \int \sigma(E) \cdot \phi(E) dE. \quad (4.1)$$

Hierbei ist  $N_t$  die Anzahl der Targetisotope<sup>1</sup>,  $\sigma(E)$  der energieabhängige Wirkungsquerschnitt für die Produktion des Tochternuklids und  $\phi(E)$  der Fluss des Strahlungsfeldes. Besteht das Target nicht aus einem einzelnen Isotop, sondern aus einem Isotopengemisch, so addieren sich deren Beiträge zur Gesamtproduktionsrate

$$R = \sum_{i=1}^n \int N_i \cdot \sigma_i(E) \cdot \phi(E) dE. \quad (4.2)$$

---

<sup>1</sup>Target (engl.): „Ziel“, Fachausdruck für einen bestrahlten Kern, auch allgemeiner für ein bestrahltes Material benutzt

$n$  ist die Anzahl verschiedener Isotope des Targetelements. Bei bekannter natürlicher Häufigkeit der Targetisotope ist

$$N_i = \frac{N_A \cdot f_i}{A_i}. \quad (4.3)$$

$N_A$  ist hier die Avogadrokonstante,  $f_i$  die natürliche Häufigkeit und  $A_i$  die atomare Masse des Targetisotopes. Damit lässt sich (4.2) umstellen zu [Bac08]

$$R = \int N_A \cdot \left( \sum_{i=1}^n \frac{f_i}{A_i} \cdot \sigma_i(E) \right) \cdot \phi(E) dE. \quad (4.4)$$

Aus der Produktionsrate errechnet sich die Aktivität einer Probe gemäß

$$A_0 = R \cdot (1 - e^{(-\lambda \cdot t_{exp})}). \quad (4.5)$$

$t_{exp}$  ist die Zeit, die der Stoff dem Strahlungsfeld ausgesetzt ist und  $\lambda$  die Zerfallskonstante des Tochternuklids. Die Gleichung berücksichtigt den gleichzeitigen Zerfall der gebildeten Tochternuklide während der Exposition. Gemäß dem radioaktiven Zerfallsgesetz

$$A(t) = A_0 \cdot e^{(-\lambda \cdot t)} \quad (4.6)$$

berechnet sich damit die Aktivität des produzierten Materials nach einer bestimmten Abklingzeit  $t$  aus

$$A(t) = R \cdot (1 - e^{(-\lambda \cdot t_{exp})}) \cdot e^{(-\lambda \cdot t)}. \quad (4.7)$$

Die Herleitung ist in [Kli08] zu finden.

Zerfällt das Tochternuklid in einen weiteren instabilen Kern, der durch Bestrahlung nicht direkt gebildet werden kann, so gilt für die Änderung der Anzahl an Enkelkernen während der Exposition

$$\frac{dN_2}{dt} = R \cdot (1 - e^{(-\lambda_1 \cdot t)}) - \lambda_2 \cdot N_2. \quad (4.8)$$

Hierbei bezieht sich der Index 1 auf den bei der oben beschriebenen Bestrahlung entstehenden Tochterkern und 2 auf das Zerfallsprodukt dieses Kernes. Die weiteren Größen sind analog zu den oben beschriebenen. (4.8) nach  $t$  integriert ergibt die Aktivität des Enkelkerns nach der Exposition

$$A_0^{(2)} = R \cdot \left( 1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{(-\lambda_1 \cdot t_{exp})} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{(\lambda_2 \cdot t_{exp})} \right). \quad (4.9)$$

Nach der Bestrahlung wird die Zeitabhängigkeit der Aktivität des Enkelkerns beschrieben durch

$$A^{(2)}(t) = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_0^{(1)} (e^{(\lambda_1 \cdot t)} - e^{(\lambda_2 \cdot t)}) + A_0^{(2)} e^{(-\lambda_2 \cdot t)}. \quad (4.10)$$

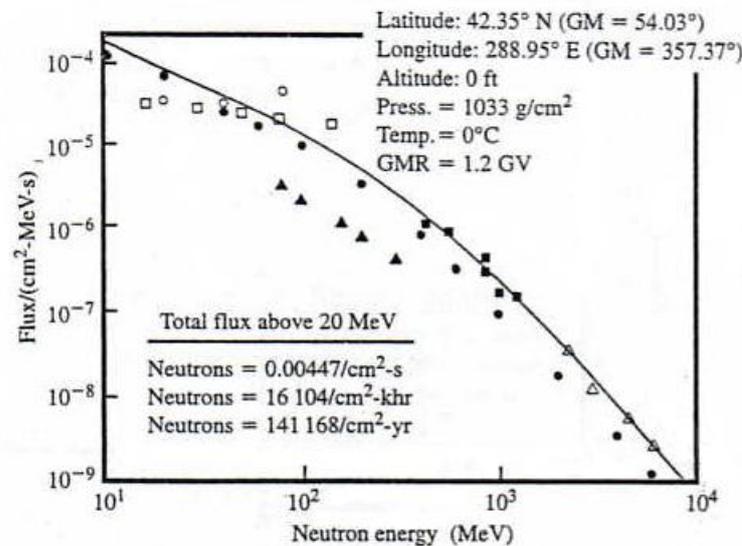
Diese Herleitung ist im Detail in [Fau05] beschrieben.

### 4.3 Atmosphärische Teilchenflüsse und Wirkungsquerschnitte

Zur Berechnung der Produktionsraten von kosmogen aktivierten Radionukliden mittels (4.4) sind Kenntnisse über die Strahlungsflüsse an der Erdoberfläche  $\phi(E)$  sowie die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_i(E)$  nötig. In diesem Kapitel wird beschrieben welche Daten, bzw. Datenbanken dafür herangezogen werden.

In Kap. 2.3 wurde erläutert, dass der dominante Prozess an der Erdoberfläche die Aktivierung durch atmosphärische Neutronen ist.

Deren Fluss wurde mehrfach experimentell bestimmt. Um eine hohe statistische Sicherheit zu erhalten und diverse Schwankungen des Flusses (Kap. 2.3) herauszumitteln, liegen typische Zeitspannen für Messungen im Bereich mehrerer Monate bis einiger Jahre. Die erste Messung des Flusses wurde in den 1950er Jahren vollzogen [Hes59]. In den 1970er Jahren folgten weitere Messungen, die später in der Arbeit von J. F. Ziegler [Zie98] zusammengefasst, bewertet und parametrisiert wurden. Sein Ergebnis ist in Abb. 4.1 graphisch dargestellt. (4.11) gibt die Parametrisierung des Neutronenflusses an. Sie ist gültig im Energiebereich 10 MeV...10 GeV und auf die geographische Lage von New York City normiert.

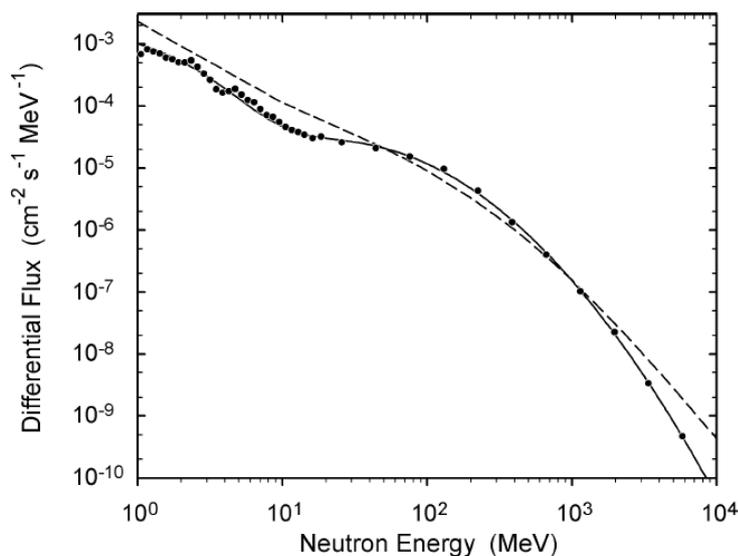


**Abbildung 4.1: Neutronenfluss auf der Erdoberfläche nach Ziegler:** Zu sehen sind die genutzten Messdaten und die daraus resultierende Parametrisierung [Zie98].

$$\phi_{Ziegler}(E) = 1,5 \cdot e^{-5,2752 - 2,6043 \ln E + 0,5985 \ln^2 E - 0,08915 \ln^3 E + 0,003694 \ln^4 E} \quad (4.11)$$

Während der durchgeführten Messungen, auf denen die Ziegler Parametrisierung beruht, erzeugten hochenergetische kosmische Protonen sekundäre Neutronen im Detektor. Dieser Effekt wurde bei der Parametrisierung nicht berücksichtigt, weswegen die Kurve als „gesamter Nukleonenfluss“ vorgeschlagen wurde [Zie98].

Zu Beginn des 21. Jahrhunderts wurde erneut eine Messung des atmosphärischen Neutronenflusses von M. S. Gordon *et al.* [Gor04] durchgeführt. Der abgedeckte Energiebereich reicht von thermischen bis zu schnellen Neutronen, d. h. von einigen meV bis hin zu 10 GeV. Für hochenergetische Protonen ( $E_P = 10 \text{ MeV} \dots 100 \text{ GeV}$ ) wurden Korrekturen bezüglich der Produktion sekundärer Neutronen in den Detektoren einbezogen. Diese waren stets kleiner als 6 %. Die Daten sind ebenfalls auf die Lage von New York City normiert und in Abb. 4.2 zu sehen. Für den Energiebereich  $E_n = 0,1 \text{ MeV} \dots 10 \text{ GeV}$  wurde eine analytische Funktion für den Neutronenfluss an die Messdaten angepasst (4.12). Die Messdaten im Energiebereich  $1,054 \cdot 10^0 \dots 1,5 \cdot 10^5 \text{ MeV}$  sind in [Gor04] tabelliert zu finden.



**Abbildung 4.2: Neutronenfluss auf der Erdoberfläche nach Gordon:** Zu sehen sind die Messdaten und die Parametrisierung. Die gestrichelte Linie zeigt die Parametrisierung nach einem anderen Modell, siehe [Gor04].

$$\begin{aligned} \phi_{Gordon, P}(E) = & 1,006 \cdot 10^{-6} e^{-0,35 \ln^2 E + 2,1451 \ln E} \\ & + 1,011 \cdot 10^{-3} e^{-0,4106 \ln^2 E - 0,667 \ln E} \end{aligned} \quad (4.12)$$

Für alle weiteren Betrachtungen wird, sofern nicht anders angegeben, die Parametrisierung des Neutronenflusses von Gordon (4.12) verwendet.

Wirkungsquerschnitte für eine Vielzahl von Reaktionen, insbesondere für Protonen und Neutronen als Projektile, sind über das Programm *Janis* [NEA08] verfügbar. Die darin enthaltene Datenbank *ExFor* enthält rein experimentelle Daten (siehe auch [NEA99]). Diese zeigt, dass für Neodym kaum Messpunkte vorhanden sind. Es muss folglich auf Datenbanken zurückgegriffen werden, die basierend auf Kernmodellen berechnet wurden. Eine sehr umfangreiche Bibliothek ist MENDL<sup>2</sup>, welche für Neutronen- [Shu95] und

<sup>2</sup>MENDL = Medium Energy Nuclear Data Library

Protonenaktivierungen [Shu98] erstellt wurde. Die Energiebereiche, für die die Daten verfügbar sind, beginnen bei 1 MeV, bzw. der Schwellenergie der jeweiligen Reaktion, und reichen bei der Neutronen- bis 100 MeV und bei der Protonendatenbank bis 200 MeV („mittlerer Energiebereich“).

Der Protonenfluss auf Normalnull beträgt im mittleren Energiebereich nur etwa 5 % des Neutronenflusses. Des Weiteren existieren keine zuverlässigen Daten für atmosphärische Protonenflüsse an der Erdoberfläche bei Energien unter einigen Hundert MeV [Gri01]. In Folge dessen werden quantitative Abschätzungen für Protonenaktivierungen nicht durchgeführt.

Aufgrund der wenigen experimentellen Daten für die Aktivierung von Neodym sowohl durch Neutronen als auch durch Protonen sind entsprechende Experimente wünschenswert. Die Messdaten helfen den Evaluierungsarbeitsgruppen ihre Wirkungsquerschnittsberechnungen zu präzisieren. Mit Neutronenaktivierungsdaten können zudem kosmogene Aktivierungen genauer berechnet werden. Vorbetrachtungen zu entsprechenden Experimenten sind im Kap. 6 beschrieben. Zuvor werden Aktivierungen von Neodym durch kosmische Strahlung untersucht.

## 4.4 Kosmogene Radionuklide

### 4.4.1 Die Kriterien

Ein aus Neodym produziertes Radionuklid stellt für das SNO+ Experiment eine nicht zu vernachlässigende Quelle für Untergrundstrahlung dar, wenn es die folgenden Kriterien erfüllt:

- Langlebigkeit:  $T_{1/2} > 20$  d
- Hohe Zerfallsenergie:
  - $Q$ -Wert  $> 3000$  keV (direkter Untergrund)
  - $Q$ -Wert  $> 200$  keV (indirekter Untergrund)
- Hohe Produktion:  $\sigma(^{nat}\text{Nd}(n,X)) > 1$  mb.

Die untere Grenze für die Halbwertszeit basiert auf der folgenden Annahme. Neodym wird während des Transportes an der Erdoberfläche durch kosmische Strahlung aktiviert. Anschließend wird es 6000 m. w. e. tief unter die Erdoberfläche in das SNOLAB gebracht, wo es vor kosmischer Strahlung und damit vor weiteren Aktivierungen abgeschirmt ist. Dort wird es mindestens zwei Monate abklingen<sup>3</sup>, bis es im Detektor ist und die Datennahme beginnen kann. In diesem Zeitraum sind alle instabilen Kerne mit  $T_{1/2} \leq 20$  d zu  $\geq 87,5$  % zerfallen. Diese kurzlebigen Kerne werden keinen signifikanten Beitrag zum Untergrund liefern und können vernachlässigt werden.

---

<sup>3</sup>Mündliche Mitteilung von K. Zuber

In den pile-up Studien wird davon ausgegangen, dass sich Untergrundereignisse mit dem  $2\nu\beta\beta$ -Zerfallsspektrum des  $^{150}\text{Nd}$  aufsummieren und dadurch das  $2\nu\beta\beta$ -Spektrum in den höherenergetischen Bereich verschieben. Je höher dabei die freiwerdende Energie des Untergrundereignisses ist, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass es ein Summationsereignis im  $0\nu\beta\beta$ -Energiebereich entsteht. Dies liegt daran, dass im Endpunkt des Spektrums des  $2\nu\beta\beta$ -Zerfalls nur noch wenige Ereignisse stattfinden, vgl. Abb. 2.3 und 2.9. Als untere Grenze für den  $Q$ -Wert eines Untergrundereignisses wird deshalb 200 keV angesetzt. Diese Grenze ist zunächst willkürlich gewählt, wird sich aber im Laufe späterer Betrachtungen als sinnvoll herausstellen (Kap. 5.2).

Kosmogene Radionuklide stellen eine signifikante Quelle für Untergrundstrahlung dar, wenn sie in großer Zahl produziert werden. Unter der Annahme, dass der Wirkungsquerschnitt  $\sigma = 1 \text{ mb}$ , der Neutronenfluss konstant bei  $\phi = 10^{-3} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  und das Target Neodym mit  $A = 144,24$  ist, ergibt sich nach (4.1)

$$\begin{aligned} R &= 0,36 \text{ d}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}, & \text{bzw.} \\ R &= 360 \text{ d}^{-1} & \text{(für 1000 kg Neodym).} \end{aligned}$$

Typische Größenordnungen für Produktionsraten kosmogener Aktivierungen liegen laut IDEA<sup>4</sup> bei  $\mathcal{O}(\geq 1 \text{ kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1})$  [IDE06]. Andernfalls sind die daraus resultierenden spezifischen Aktivitäten zu gering um einen signifikanten Beitrag zur Untergrundstrahlung zu liefern. Besonders bei indirekt gefährlichen Nukliden ist dann die Wahrscheinlichkeit einer Ereignissummutation vernachlässigbar klein. Bezüglich des Wirkungsquerschnittes werden zunächst nur die Reaktionen betrachtet, die mindestens  $\sigma = 1 \text{ mb}$  aufweisen. Es wird sich im Folgenden (Kap. 5.2) zeigen, dass diese Grenze sinnvoll gewählt ist.

Nach den genannten Kriterien werden im nächsten Unterkapitel Nuklide identifiziert, die mögliche Untergrundquellen bezüglich kosmogener Aktivierungen von Neodym darstellen.

#### 4.4.2 Die betrachteten Radionuklide

Nach den in Kap. 4.4.1 genannten Kriterien werden Nuklide gesucht, die für das SNO+ Experiment potentielle Untergrundquellen bezüglich der kosmogenen Aktivierung sind. Das dritte Kriterium, ein hoher Produktionsquerschnitt, wird nur von Nukliden erfüllt, die sich auf der Nuklidkarte, Abb. 4.3, in der Umgebung der Neodymisotope befinden. Den Datenbanken von *Janis* ist zu entnehmen, dass speziell Reaktionen wie  $(n,\gamma)$ ,  $(N,1\dots 4n)$ ,  $(N,pn)$  oder  $(N,\alpha)$ , wobei „N“ allgemein für ein Nukleon steht, entsprechend hohe Wirkungsquerschnitte aufweisen. Spallationsreaktionen, wie zum Beispiel die Produktion von Cs-Isotopen, treten nur mit sehr geringen Wechselwirkungsquerschnitten auf ( $\mathcal{O}(1 \text{ }\mu\text{b})$ ) und können deshalb vernachlässigt werden. Die entsprechenden langlebigen Nuklide mit hohen  $Q$ -Werten sind in Tab. 4.1 aufgeführt. Es zeigt sich, dass es einige Promethiumisotope gibt, die sehr langlebig sind, aber ausschließlich durch Protonenaktivierung entstehen. Für diese sind zwar quantitative Analysen nicht möglich, da der Protonenfluss an der Erdoberfläche nicht genau bekannt ist. Sie werden für spätere Betrachtungen dennoch in die Liste der Exspektanten aufgenommen.

Sm141 10.2 m 1/2+ *	Sm142 72.49 m 0+	Sm143 8.83 m 3/2+ *	Sm144 0+ 3.1 *	Sm145 340 d 7/2-	Sm146 1.03E+8 y 0+	Sm147 1.06E+11 y 7/2- $\alpha$ 15.0 *	Sm148 7E+15 y 0+ $\alpha$ 11.3 *	Sm149 2E15 y 7/2- $\alpha$ 13.8 *	Sm150 0+ 7.4 *	Sm151 90 y 5/2- $\beta$	Sm152 0+ 26.7 *
Pm140 9.2 s 1+ *	Pm141 20.90 m 5/2+ *	Pm142 40.5 s 1+ *	Pm143 265 d 5/2+ *	Pm144 363 d 5- *	Pm145 17.7 y 5/2+ *	Pm146 5.53 y 3- *	Pm147 2.6234 y 7/2+ *	Pm148 5.370 d 1- *	Pm149 53.08 h 7/2+ *	Pm150 2.68 h (1-)	Pm151 28.40 h 5/2+ *
Nd139 29.7 m 3/2+ *	Nd140 3.37 d 0+	Nd141 2.49 h 3/2+ *	Nd142 0+ 27.13 *	Nd143 7/2- 12.18 *	Nd144 2.29E+15 y 0+ $\alpha$ 23.80 *	Nd145 7/2- 8.30 *	Nd146 0+ 17.19 *	Nd147 10.98 d 5/2- *	Nd148 0+ 5.76 *	Nd149 1.728 h 5/2- *	Nd150 1E18 y 0+ 5.64 *
Pr138 1.45 m 1+ *	Pr139 4.41 h 5/2+ *	Pr140 3.39 m 1+ *	Pr141 5/2+ 100 *	Pr142 19.12 h 2- *	Pr143 13.57 d 7/2+ *	Pr144 17.28 m 0- *	Pr145 5.984 h 7/2+ *	Pr146 24.15 m (2-)	Pr147 13.4 m (3/2+)	Pr148 2.27 m 1- *	Pr149 2.26 m (5/2+)
Ce137 9.0 h 3/2+ *	Ce138 0+ 0.25 *	Ce139 137.640 d 3/2+ *	Ce140 0+ 88.48 *	Ce141 32.501 d 7/2- *	Ce142 5E+16 y 0+ 11.08 *	Ce143 33.039 h 3/2- *	Ce144 284.893 d 0+ *	Ce145 3.01 m (3/2)- *	Ce146 13.52 m 0+ *	Ce147 56.4 s (5/2-)	Ce148 56 s 0+ *
La136 9.87 m 1+ *	La137 6E4 y 7/2+ *	La138 1.05E+11 y 5+ *	La139 7/2+ 99.9098 *	La140 1.6781 d 3- *	La141 3.92 h (7/2+)	La142 91.1 m 2- *	La143 14.2 m (7/2+)	La144 40.8 s (3-)	La145 24.8 s *	La146 6.27 s 2- *	La147 4.015 s (3/2+, 5/2+)

Abbildung 4.3: Ausschnitt aus der Karlsruher Nuklidkarte: Zu sehen sind die sieben in der Natur vorkommenden Neodymisotope und die umliegenden Nuklide (Ordnungszahl  $Z = 57 \dots 62$ , Neutronenzahl  $N = 79 \dots 90$ ) [Fir96].

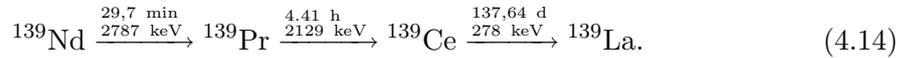
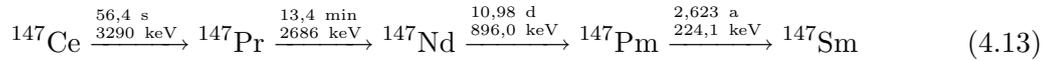
Tabelle 4.1: Exspektanten kosmogener Aktivierung: Zusammengestellt sind die Nuklide, die die Kriterien lange Halbwertszeit  $T_{1/2}$  und hoher  $Q$ -Werte erfüllen.

Nuklid	$T_{1/2}$	$Q / \text{keV}$
$^{143}\text{Pm}$	265 d	1041,4
$^{144}\text{Pm}$	363 d	2331,7
$^{146}\text{Pm}$	5,53 a	1472/1542
$^{147}\text{Pm}$	2,62 a	224,1
$^{148m}\text{Pm}$	41,3 d	2468
$^{139}\text{Ce}$	137,6 d	278
$^{141}\text{Ce}$	32,5 d	580,7
$^{144}\text{Ce}$	284,9 d	318,7
$^{138}\text{La}$	$10^{11}$ a	1738/1044

An den  $Q$ -Werten ist zu sehen, dass es keine langlebigen Nuklide gibt, die eine direkte Quelle für Untergrundstrahlung ( $Q > 3000 \text{ keV}$ ) darstellen. Es gibt jedoch einige indirekt gefährliche Kerne, deren Halbwertszeiten von einem Monat bis hin zu wenigen Jahren reichen.  $^{141}\text{Ce}$  und  $^{148m}\text{Pm}$  sind dabei die kurzlebigsten und würden binnen einiger Monate abklingen, falls sie in großen Mengen produziert werden. Nach 365 Tagen wäre nur noch  $2^{(-365/41,3)} \approx 0,22 \%$  der ursprünglichen Aktivität verbleibend. Auch  $^{138}\text{La}$ , welches bereits als Verunreinigung des Neodyms auftritt (vgl. Kap. 3), könnte durch kosmogene Aktivierung eine Aktivitätserhöhung erfahren. Ob sich diese signifikant erhöht, wird unter anderem im Folgenden untersucht.

<sup>4</sup>IDEA = Integrated Double-beta decay European Activities

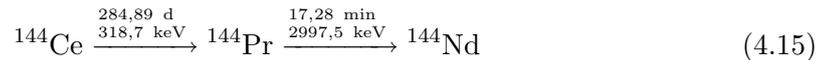
Ein weiteres Problem ist, dass einige Nuklide nicht nur direkt erzeugt werden können, sondern auch Tochterkerne kurzlebiger kosmogener Nuklide sein können. Dies betrifft die Isobare  $A = 147$  und  $A = 139$ :



Zu sehen ist, dass  ${}^{147}\text{Pm}$  das Produkt der Zerfallsreihen  ${}^{147}\text{Ce}$ ,  ${}^{147}\text{Pr}$  und  ${}^{147}\text{Nd}$  ist. Wenn diese drei kurzlebigen isobaren Kerne ebenfalls in großen Mengen durch kosmische Strahlung erzeugt werden, dann zerfallen sie binnen kurzer Zeit zu dem langlebigen  ${}^{147}\text{Pm}$ .

Analog gilt für  ${}^{139}\text{Ce}$ , dass es durch  ${}^{139}\text{Nd}$  und  ${}^{139}\text{Pr}$  gespeist werden kann. Auch hier wird der Einfluss dieser Nuklide auf dessen Aktivität untersucht.

Des Weiteren kann  ${}^{144}\text{Ce}$  einen entscheidenden Beitrag zur Untergrundstrahlung liefern. Es hat eine lange Halbwertszeit  $T_{1/2} = 285 \text{ d}$ . Sein Tochterkern  ${}^{144}\text{Pr}$  zerfällt mit einem  $Q$ -Wert von fast 3000 keV. Es liegt damit fast im Bereich direkter Untergrundstrahlung.



${}^{144}\text{Pr}$  emittiert beim Zerfall fast ausschließlich  $\beta$ -Strahlung. Mit 1,3 % sind Photonen mit  $E_\gamma = 696,51 \text{ keV}$  diejenigen mit der höchsten Intensität. Folglich erzeugt  ${}^{144}\text{Pr}$  im SNO+ Detektor ein  $\beta$ -Spektrum mit Endpunkt bei ca. 3000 keV.

Im folgenden Kapitel werden die Produktionsraten der genannten Nuklide berechnet und Abschätzungen zu deren Aktivitäten gemacht. Für ersteres wurde eigens ein Programm geschrieben, welches in Kap. 5.1 beschrieben wird. In Kap. 5.2 werden die Ergebnisse zusammengefasst und ausgewertet.

# 5 Kosmogene Aktivierung von Neodym

## 5.1 Das Programm „ProdRate“

### Einführung

Zur Berechnung der Produktionsrate eines Nuklids aus einem Gemisch von Targetisotopen wurde im Rahmen dieser Arbeit ein C++-Programm namens *ProdRate* geschrieben. Diesem werden die Isotopenzusammensetzung und die zugehörigen, energieabhängigen Wirkungsquerschnitte  $\sigma(E)$  für die Produktion des gesuchten Nuklids übergeben. Dabei sind die Datenpunkte  $\sigma(E)$  von den Energieabständen unabhängig. *ProdRate* berechnet mit den in Kap. 4.3 angegebenen Neutronenflüssen die Produktionsraten für das entsprechende Nuklid. Für Vergleichszwecke werden verschiedene Neutronenflüsse genutzt. Die genaue Arbeitsweise ist im nächsten Unterabschnitt beschrieben.

### 5.1.1 Aufbau und Funktionsweise

*ProdRate* ist in C++ geschrieben und verknüpft mit `root` [ROO09] Bibliotheken. Es besteht aus zwei Klassen (`ProdRate` und `Fluesse`), einer Hauptdatei (`main`) und einer Datei `makefile` [Ora04] zur Kompilierung. Die Eingaben werden in der Konsole oder per shell-script<sup>1</sup> getätigt.

Eingegeben wird zunächst der Name (das chemische Symbol) des Targetelements, sowie die Anzahl seiner Isotope. Anschließend werden abwechselnd Massenzahl (in u) und natürliche Häufigkeit (absolut) eines jeden Isotopes übergeben. Zum Schluss werden die Dateien übergeben, die die Wirkungsquerschnitte der jeweiligen Reaktion enthalten. Die Daten müssen im ASCII-Format<sup>2</sup> sein und zwei Spalten enthalten, die erste mit der Energie  $E$  in eV und die zweite mit dem zugehörigen Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  in barn. Dies entspricht der Standardformatierung von Dateien, die von *Janis* ausgegeben werden. Des Weiteren muss sichergestellt sein, dass die Daten den Energiebereich von 10 MeV bis 100 MeV abdecken, um die Approximation der Daten an den Bereichsgrenzen präzisieren zu können.

*ProdRate* benutzt (4.4) in der Form

$$R = \sum_{i=1}^n f_i \cdot \int \frac{N_A}{A_i} \cdot \sigma_i(E) \cdot \phi(E) dE. \quad (5.1)$$

Das Programm löst das Integral in (5.1) für jedes Targetisotop numerisch, multipliziert mit der entsprechenden Häufigkeit und addiert die resultierenden Einzelbeiträge zur Gesamtproduktionsrate. In  $\Delta E = 0,1$  MeV Schritten wird für die Energien 10,0...100,0 MeV

<sup>1</sup>shell-script (engl.): „Kommandoprozeduren“, eine Textdatei mit Eingabeaufforderungen für die Linux-Konsole

<sup>2</sup>ASCII = American Standard Code for Information Interchange

jeweils  $\sigma(E) \cdot \phi(E) \cdot \Delta E$  berechnet, wobei  $\phi(E)$  der kosmische Neutronenfluss (in  $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{MeV}^{-1}$ ) ist und aus (4.11) und (4.12) berechnet wird. Die Ergebnisse, die aus der Verwendung unterschiedlicher Flüsse resultieren, werden später verglichen.

Der Wert für den Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  für eine beliebige Energie  $E$  wird mit Hilfe eines Splines 3. Grades ermittelt. Das ist ein Polynom 3. Grades, welches an zwei benachbarte Datenpunkte angepasst wird und in nullter, erster und zweiter Ableitung stetig in das nächste Teilstück übergeht [Drm07]. In `root` ist hierfür die Klasse `TSpline3` [Car08] verfügbar. Sie enthält die Methode „`Double_t Eval(Double_t x)`“. Diese gibt für jeden beliebigen  $x$ -Wert den zugehörigen  $y$ -Wert zurück.

Ein solcher Spline wird auch durch die Messpunkte des atmosphärischen Neutronenflusses nach Gordon [Gor04] gelegt und für die Berechnung des Integrals in (5.1) genutzt. Die berechneten Werte werden mit denen verglichen, die aus der Parametrisierung der Neutronenflussdaten (4.12) resultieren. Dadurch wird überprüft, ob die Nutzung eines Splines eine geeignete Methode für die Dateninterpolation ist.

Bei der Verwendung von `TSpline3` ist darauf zu achten, dass Randeffekte auftreten. Wird ein Spline durch Datenpunkte im Bereich  $x_1 \dots x_n$  gelegt, wobei  $x_1 < x_2 < \dots < x_n$  ist, und soll  $y$  für  $x < x_1$  oder  $x > x_n$  zurückgegeben werden, dann berechnet `Eval()` einen theoretischen Wert, indem der Spline am Ende seines Definitionsbereiches stetig verlängert wird. Dies kann zu negativen ( $\sigma < 0$  b) oder exorbitant hohen ( $\sigma > 10^{300}$  b) Werten für den Wirkungsquerschnitt führen. Um solche falschen Interpolationen zu vermeiden ist es notwendig, dass die Datensätze für die Wirkungsquerschnitte den Energiebereich  $E_n = 10 \dots 100$  MeV abdecken.

Die Ausgabe der berechneten Produktionsraten unter Nutzung verschiedener Neutronenflüsse erfolgt in dieser Version als Text in der Konsole. Die drei Produktionsraten tragen die Bezeichnungen „Gordon, M“ für die Nutzung des Splines durch die Messpunkte von Gordon, „Gordon, P“ für dessen Parametrisierung und „Ziegler“ für die Parametrisierung von Ziegler.

### 5.1.2 Vergleich von Berechnungen

Um die Funktionalität des Programms zu testen und die Ergebnisse auf ihre Richtigkeit zu überprüfen, werden Berechnungen für die Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(n,2p\text{Xn})^{60}\text{Co}$  durchgeführt. Diese Reaktion ist gut erforscht und dient damit als geeignete Vergleichszahl für die Produktionsraten, vgl. [IDE06]. Die Ergebnisse verschiedener Gruppen sind in Tab. 5.1 zusammengefasst.

„Sem. emp.“ steht in dieser Tabelle für eine semiempirische Berechnungsmethode, siehe [Bac08]. Bei der Berechnung der IDEA [IDE06] wurden die Wirkungsquerschnittsdaten aus MENDL an vorhandene Messdaten angepasst, d. h. mit dem Faktor 1,4 multipliziert. Für die Vergleichbarkeit wurde der angegebene Wert hier wieder herausgerechnet. Der Energiebereich ist nicht genauer definiert.

**Tabelle 5.1: Vergleich verschiedener Berechnungen der Produktionsraten für die Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(n,2p\text{Xn})^{60}\text{Co}$ :** Die verwendeten Wirkungsquerschnittsdatenbanken und kosmischen Neutronenflüsse sind angegeben. Erläuterungen dazu sind in Kap. 4.3 und im Text. „Sem. emp.“ bezieht sich auf eine semi-empirische Berechnungsformel für Wirkungsquerschnitte, siehe [Bac08].

Ref.	$\sigma(E)$	$\phi(E)$	$E / \text{MeV}$	$R / (\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$
ProdRate	MENDL	Gordon, M	10...100	26,43
		Gordon, P	10...100	27,95
		Ziegler	10...100	51,58
Activia [Bac08]	Sem. emp.	[Arm73]	10...100	13,44
IDEA [IDE06]	MENDL	Ziegler	<100	58,43 <sup>a</sup>

<sup>a</sup>Die Wirkungsquerschnitte wurden mit einem Faktor 1,4 multipliziert, um sie an experimentelle Daten anzupassen, siehe Text. Die daraus resultierende Produktionsrate beträgt ursprünglich  $81,80 \text{ kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$  [IDE06].

Beim Programm *ProdRate* ist zu sehen, dass die Nutzung eines Splines durch die Messdaten von Gordon („Gordon, M“) zu einer leicht niedrigeren Produktionsrate führt als die Nutzung der Parametrisierung („Gordon, P“). Diese liegt in diesem Falle im Prozentbereich (5,4 %) <sup>3</sup> und ist im Vergleich zu den Abweichungen zu anderen Berechnungen vernachlässigbar.

Die Nutzung des Neutronenflusses von Ziegler in *ProdRate* führt hier fast zu einer Verdopplung der Produktionsrate. Verglichen mit dem Wert der IDEA Gruppe ergibt sich eine Abweichung von 11,7 %. Da der Neutronenfluss nach Gordon auf aktuellen Messdaten basiert, wird für weitere Betrachtungen dessen Parametrisierung („Gordon, P“) genutzt.

### 5.1.3 Weiterentwicklung

Die entwickelte Version von *ProdRate* stellt eine lauffähige Version dar, die die für diese Arbeit nötigen Zwischenergebnisse liefert und dabei den Entwicklungs- und Bedienungsaufwand in Grenzen hält. Eine Weiterentwicklung ist im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgesehen. Es werden aber im Folgenden Erweiterungsmöglichkeiten vorgestellt.

**WEITERE ATMOSPHERISCHE NEUTRONENFLÜSSE HINZUFÜGEN:** Die Klasse **Fluesse** kann durch weitere Parametrisierungen kosmischer Neutronenflüsse in Form einer neuen Methode erweitert werden. In der Hauptdatei **main** können diese aufgerufen und die Produktionsrate berechnet werden.

**AKTIVITÄT BERECHNEN:** Das Programm kann dahingehend erweitert werden, dass es nach Eingabe einer Aktivierungs- und Abklingzeit nach (4.7) die Aktivität des entsprechenden Nuklids berechnet. Hierzu ist die Kenntnis seiner Halbwertszeit nötig. Diese muss wahlweise bei der Dateneingabe mit angegeben oder einer noch anzulegenden Datenbank entnommen werden.

<sup>3</sup>Bei den folgenden Berechnungen sind die Abweichungen ähnlich groß oder kleiner.

AUSGABEDATEI SCHREIBEN: Die derzeit noch in der Konsole angegebenen Ergebnisse können in eine Ausgabedatei geschrieben werden. Als Datenformate bieten sich hierbei einfache ASCII-Textdateien oder die komplexeren .root-Dateien an.

UNTERBINDUNG VON RANDEFFEKTEN BEI SPLINES: Wie bereits beschrieben kann es bei der Verwendung von Splines zu falschen Interpolationen außerhalb des Definitionsbereichs der Energie bei den Wirkungsquerschnittsdaten kommen. Um dies zu verhindern kann eine automatische Prüfung eingebaut werden, die die kleinste und größte definierte Energie ermittelt. Für alle Werte außerhalb dieses Bereichs wird das Integral in (5.1) = 0 gesetzt.

ENERGIEBEREICH FESTLEGEN: Das Programm kann dahingehend erweitert werden, dass es den Benutzer den zu integrierenden Energiebereich, sowie die Breite eines jeden BINs wählen lässt. Zuvor ist die Implementierung der „Unterbindung von Randeffekten bei Splines“ nötig, um ein Verfälschen der Daten zu verhindern. Des Weiteren muss sichergestellt werden, dass die kosmischen Neutronenflüsse nicht außerhalb ihres Definitionsbereichs verwendet werden.

KAPSELUNG: Zur programmiertechnischen Optimierung kann das Programm, vor allem die Hauptdatei und die Klasse `ProdRate` weiter gekapselt werden. So könnte die Eingabeaufforderung sowie das Einlesen der Wirkungsquerschnitte in jeweils einer eigenen Klasse geschehen. Auch die bisher genannten Erweiterungen könnten in Form von zusätzlichen Klassen implementiert werden.

## 5.2 Produktionsraten und erwartete Aktivitäten

Nach den Vorbetrachtungen aus Kap. 4 und Kap. 5.1 werden nun Produktionsraten und Aktivitäten für die Exspektanten der kosmogenen Aktivierung von Neodym berechnet. In Tab. 5.2 sind die Ergebnisse zusammengefasst. Es wird dabei angenommen, dass Neodym einen Monat lang (30 d) an der Erdoberfläche kosmischer Neutronenstrahlung ausgesetzt ist. Von Interesse ist die Aktivität der langlebigen Radionuklide in 1000 kg Neodym nach 2 Monaten Abklingzeit, in Tab. 5.2 ist dies als „(30/60)“ bezeichnet. Die Anfangsaktivitäten unmittelbar nach der Strahlungsexposition sind ebenfalls mit angegeben und als „(30/0)“ gekennzeichnet.

Wenn die Halbwertszeiten der kurzlebigen Kerne einer Produktionskette vernachlässigbar klein sind gegenüber den langlebigen, dann addieren sich die Produktionsraten dieser kurzlebigen Nuklide näherungsweise direkt zu der des langlebigen Tochterkerns hinzu. Bei den hier betrachteten Produktionsketten ist diese Näherung anwendbar, da

$$T_{1/2}({}^{139}\text{Nd}) < T_{1/2}({}^{139}\text{Pr}) \ll T_{1/2}({}^{139}\text{Ce})$$

und

$$T_{1/2}({}^{147}\text{Ce}) < T_{1/2}({}^{147}\text{Pr}) \ll T_{1/2}({}^{147}\text{Nd})$$

sind (Tab. 5.2). Für die Produktion von  ${}^{147}\text{Pm}$  aus  ${}^{147}\text{Nd}$  werden (4.9) und (4.10) genutzt.

**Tabelle 5.2: Erwartete Produktionsraten und Aktivitäten kosmogen aktivierter Nuklide:** Genutzt werden Wirkungsquerschnitte aus MENDL und Parametrisierung des Neutronenflusses von Gordon. Angenommen werden eine Gesamtmasse von 1 t Neodym, 30 d Expositionszeit und jeweils 0 und 60 d Abklingzeit nach der Aktivierung, bezeichnet mit „(30/0)“ und „(30/60)“. Die Pfeile kennzeichnen Zerfallsketten.

	Nuklid	$T_{1/2}$	$Q/\text{keV}$	$R/(\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$	$A/\text{mBq}$ (30/0)	$A/\text{mBq}$ (30/60)
↑	Pm147	2,62 a	224,1		3,58	6,61
	Nd147	10,98 d	896,0	21,36	278,41	6,31
	Pr147	13,4 min	2686	4,25		
	Ce147	56,4 s	3290	0,21		
↑	Pr144	17,3 min	2997,5	(15,18)		
	Ce144	284,9 d	318,7	0,66	0,75	0,65
	Ce141	32,5 d	580,7	2,73	18,83	5,24
↓	Nd139	29,7 min	2787	42,66		
	Pr139	4,41 h	2129	29,87		
	Ce139	137,64 d	278	4,66	172,18	127,27
	La138	$10^{11}$ a	1738/1044	0,12		

Tab. 5.2 ist zu entnehmen, dass  $^{139}\text{Ce}$  die höchste erwartete Aktivität aufweist. Es wird dabei zum größten Teil indirekt durch  $^{139}\text{Pr}$  und  $^{139}\text{Nd}$  produziert.  $^{147}\text{Nd}$  hingegen wird überwiegend direkt aus  $^{nat}\text{Nd}$  produziert. Dessen Aktivität wird unmittelbar nach dem Ende der Expositionszeit mit ca. 280 mBq den größten Beitrag zur Untergrundstrahlung durch kosmische Aktivierung liefern. Es klingt jedoch binnen zwei Monaten auf ca. 6,3 mBq ab und erhöht dabei die Aktivität von  $^{147}\text{Pm}$  auf ca. 6,6 mBq. Dieses Isotop wird aufgrund der Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 2,62$  a eine entsprechend lange Zeit zur Gesamtaktivität beitragen. Die Aktivität von  $^{141}\text{Ce}$  verringert sich innerhalb von zwei Monaten von ca. 18,8 mBq auf ca. 5,2 mBq und würde binnen weniger Monate gänzlich abklingen.  $^{138}\text{La}$  wird keine signifikante Aktivierung durch kosmische Strahlung erfahren.

Die Produktionsrate und die daraus resultierende Aktivität von  $^{144}\text{Ce}$  ist im Vergleich zu den anderen genannten Nukliden gering. Es werden 2,3 Zerfälle pro Stunde erwartet. Diese Aktivität wird nicht binnen weniger Monate abklingen, da das Isotop mit  $T_{1/2} = 284,9$  d sehr langlebig ist. In Konsequenz wird es pro Stunde auch 2,3 Zerfälle von  $^{144}\text{Pr}$  geben, welches im SNO+ Detektor ein  $\beta$ -Spektrum mit Endpunkt bei 3000 keV erzeugen wird. Dies liegt nahe am Bereich direkter Untergrundereignisse, siehe Kap. 4.4.2.

Die erwarteten Aktivitäten der kosmogenen Radionuklide sind geringer als die der Neodymisotope und der Verunreinigungen durch seltene Erden. Diese betragen bis zu 1 Bq, vgl. Kap. 3. Im Vergleich zu den Aktivitäten primordialer Untergrundquellen (Kap. 2.3) erreichen die durch kosmische Strahlung entstandenen Nuklide Aktivitäten in der gleichen Größenordnung  $\mathcal{O}(1 \text{ mBq})$ .

Zusammenfassen sind für pile-up Studien die Nuklide  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  und  $^{144}\text{Ce}$  interessant, wobei letzteres durch sein Zerfallsprodukt einen direkten Einfluss auf die  $0\nu\beta\beta$ -Sensitivität haben kann.

# 6 Vorbetrachtungen zu Bestrahlungsexperimenten

## 6.1 Motivation

Die Wirkungsquerschnitte für Neutronenaktivierungen, mit denen in Kap. 5 gerechnet wurde, stammen aus der Datenbank MENDL. Diese basiert auf Berechnungen und ist für einen Teil der enthaltenen Reaktionen noch nicht nachgemessen worden (vgl. Kap. 4.3). Analog basieren die Daten vieler Protonenreaktionen auf Berechnungen, z. B. MENDL-2p [Shu98], ohne experimentelle Bestätigung. Messungen dieser Basisdaten sind sowohl speziell für die Aktivierung durch atmosphärische Strahlung als auch allgemein zur Überprüfung von Berechnungsmodellen interessant.

Um die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte experimentell zu studieren, ist deren Messung über einen breiten Energiebereich nötig. Für die kosmische Neutronenaktivierung ist der Energiebereich  $E_n = 10 \dots 100$  MeV interessant, da es für diesen Bereich zum einen anwendbare Daten für den Neutronenfluss gibt, wobei dieser oberhalb von 100 MeV stark abnimmt (vgl. Abb. 4.1 und 4.2), und zum anderen berechnete Wirkungsquerschnittsdaten existieren, die zum Vergleich von Experiment und Theorie herangezogen werden können (vgl. Kap. 4.3). Für Protonenaktivierungen sind berechnete Wirkungsquerschnittsdaten bis  $E_p = 200$  MeV verfügbar. Entsprechend groß kann auch der Messbereich sein, um Experiment und Theorie zu vergleichen.

Für den Nachweis langlebiger Nuklide ( $T_{1/2} = \mathcal{O}(1 \text{ a})$ ) ist eine Mehrfachverwendung eines Targets nicht möglich, da dieses mehrere Jahre abklingen muss, bevor es wieder für eine quantitative Analyse des gleichen Nuklids genutzt werden kann. Es ist folglich eine entsprechend große Anzahl von Targets nötig um bei einem Experiment oben genannte Energiebereiche in z. B. 1 MeV Schritten abzudecken.

Die Herstellung eines Neodymtargets ist allerdings nicht-trivial, da es eine hohe Reaktivität mit Sauerstoff aufweist und der Kontakt mit Luft und Wasser vermieden werden sollte. Es gibt verschiedene Techniken durch die Targets vor diesem Kontakt geschützt werden können. Einen Überblick über verschiedene Methoden gibt Kap. 6.4.

Ein Test einzelner Targets, bevor diese in großen Stückzahlen hergestellt werden, ist sinnvoll, um deren Anwendbarkeit im Bestrahlungsexperiment zu überprüfen. Bei diesen Tests sollen möglichst hohe Produktionsraten langlebiger Nuklide erzielt werden. Dazu wird zunächst in Kap. 6.2 für Protonen- und Neutronenbestrahlungen jeweils der Energiebereich ermittelt, für den die höchsten Produktionsraten der in Kap. 4 ermittelten, langlebigen Nuklide erwartet werden. Dem angeschlossen ist ein Überblick über die

Realisierbarkeiten von Bestrahlungen bei den ermittelten Energien.

Bei Protonen muss des Weiteren berücksichtigt werden, dass aufgrund der elektrischen Ladung des Protons dessen Energieverlust pro Wegstrecke im Targetmaterial sehr viel höher ist als bei Neutronen [Bet08]. In Kap. 6.3 wird ermittelt, wie dick ein Target für eine Protonenbestrahlung in Anbetracht des Energieverlustes und der damit verbundenen Wärmedeposition idealerweise sein sollte.

## 6.2 Optimaler Energiebereich

Für eine möglichst hohe Ausbeute an Tochternukliden bei einer Bestrahlung muss die Energie der Projektile so gewählt werden, dass der Wirkungsquerschnitt für die Produktion des entsprechenden Tochterkerns möglichst hoch ist. Da das hier verwendete Target  $^{nat}\text{Nd}$  aus sieben Isotopen besteht, kann das entsprechende Tochternuklid in der Regel aus mehr als einem dieser Neodymisotope produziert werden.

Die Produktionsrate ist nach (4.4)

$$R = \int \frac{N_A}{A} \cdot \underbrace{\left( \sum_{i=1}^n \frac{\bar{A}}{A_i} \cdot f_i \sigma_i(E) \right)}_{(*)} \cdot \phi(E) dE. \quad (6.1)$$

Der Faktor (\*) wurde hierbei mit der durchschnittlichen atomaren Masse  $\bar{A} = \sum_i A_i f_i$  erweitert, damit er die Einheit barn erhält.

(\*) wird nun für die in Tab. 4.1 genannten Nuklide ermittelt. Als Target wird  $^{nat}\text{Nd}$  genommen. Die in Kap. 4.4.2 genannten Produktionsketten für  $^{139}\text{Ce}$  und  $^{147}\text{Pm}$  werden ebenfalls berücksichtigt, da deren kurzlebige Nuklide ( $T_{1/2} \ll 20$  d) entsprechend schnell in die langlebigen zerfallen und damit indirekt zu deren Produktionsrate beitragen. Für beide Ketten wird für jedes Nuklid (\*) berechnet. Am Beispiel der  $^{139}\text{Ce}$  Produktion aus Neutronenbestrahlung von  $^{nat}\text{Nd}$  ist in Abb. 6.1 dargestellt, in welchen Energiebereichen die einzelnen Neodymisotope zur direkten Cerproduktion beitragen. In Abb. 6.2 sind die Beiträge (\*) für  $^{139}\text{Ce}$  und für die beiden Nuklide  $^{139}\text{Pr}$  und  $^{139}\text{Nd}$  separat dargestellt. Die Graphen der übrigen Nuklide sind im Anhang B zu finden.

Aus den Graphen wird abgelesen in welchen Energiebereichen der höchste Wirkungsquerschnitt und somit die höchste Produktionsrate zu erwarten ist. Eine tabellarische Zusammenfassung optimaler Energiebereiche für Bestrahlungsexperimente und erste Vorüberlegungen zu deren Realisierbarkeit sind im folgenden Abschnitt zu finden.

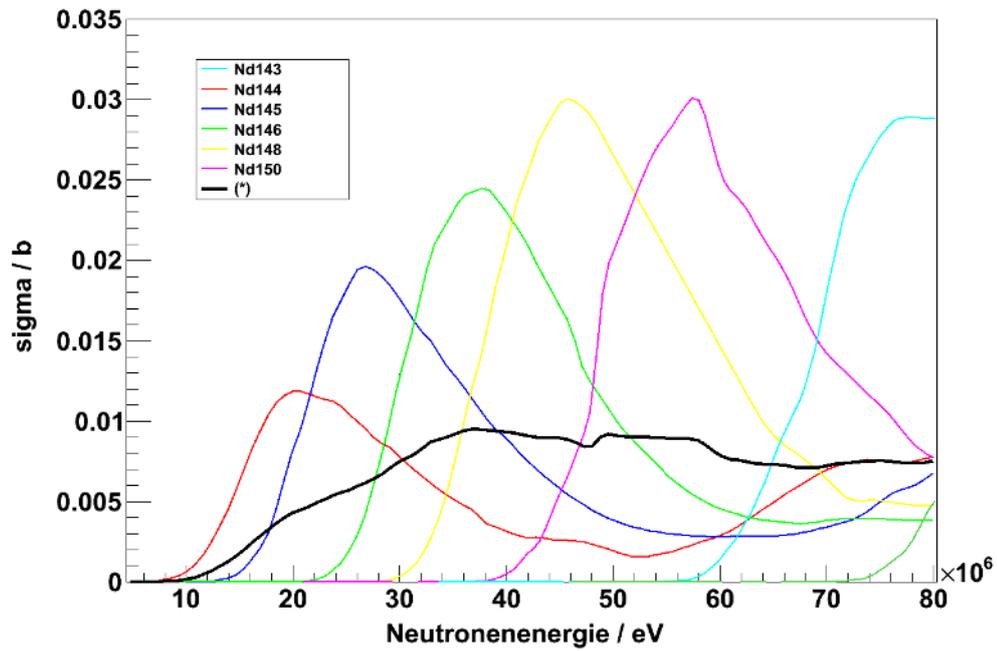


Abbildung 6.1: Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{139}\text{Ce}$  aus den Neodym-Isotopen: (\*) ist die gewichtete Summe nach (6.1).

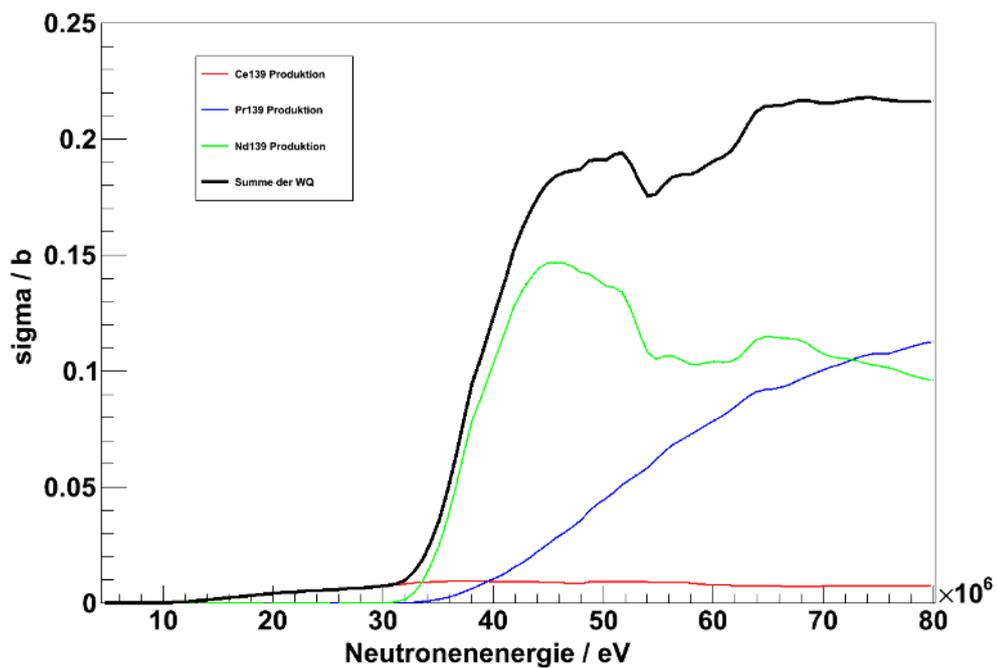


Abbildung 6.2: Wirkungsquerschnitte für die Produktion der Nuklide der  $^{139}\text{Ce}$ -Produktionskette: Zu sehen sind die Faktoren (\*) aus (6.1).

### Zusammenfassung optimaler Bestrahlungsexperimente

**Tabelle 6.1: Überblick optimaler Strahlenergien:** Aufgelistet sind die Nuklide, die aus  $^{nat}\text{Nd}$  produziert werden und der Energiebereich, in dem die Wirkungsquerschnitte am höchsten sind.

Projektil	Nuklid	$E$ / MeV
Neutron	$^{139}\text{Ce}$	20...100
	$^{139}\text{Pr}$	40...100
	$^{139}\text{Nd}$	34...100
	$^{141}\text{Ce}$	24...100
	$^{144}\text{Ce}$	(23)...40...100
	$^{147}\text{Ce}$	14...40, 55...100
	$^{147}\text{Pr}$	(14)...24...100
	$^{147}\text{Nd}$	9...17, 26...36
Proton	$^{143}\text{Pm}$	19...24
	$^{144}\text{Pm}$	20...30
	$^{146}\text{Pm}$	19...27
	$^{147}\text{Pm}$	28...36
	$^{148(m)}\text{Pm}$	18...29

Aus Tab. 6.1 geht hervor, dass der Energiebereich für ein Protonenexperiment mit größtmöglicher Ausbeute bei 24...28 MeV liegt. Ein Neutronenexperiment sollte im Energiebereich 30...100 MeV liegen, wobei oberhalb von 60 MeV die erwarteten Wirkungsquerschnitte für die  $^{139}\text{Ce}$  und die  $^{144}\text{Ce}$  Produktion wieder geringer werden. Eine Bestrahlung mit 14 MeV Neutronen an einem DT-Generator ist ebenfalls sinnvoll. Bei dieser Energie weist vor allem die (n,2n) Reaktion hohe Wirkungsquerschnitte auf (vgl. Datenbank [NEA08]), aber auch die (n, $\alpha$ ) Reaktion tritt auf. Diese Reaktionen an  $^{nat}\text{Nd}$  sind zu einem großen Teil gemessen worden (vgl. [NEA99]). Die Produktion des kurzlebigen  $^{147}\text{Ce}$  ( $T_{1/2} = 56,4$  s) wurde jedoch noch nicht experimentell beobachtet.

Zusammenfassend sind die folgenden Energiebereiche für Bestrahlungsexperimente optimal:

- 30...60 MeV Neutronen
- 14 MeV Neutronen
- 25 MeV Protonen

Schnelle Neutronen im Energiebereich 30...60 MeV können durch Spallation in Forschungseinrichtungen in Schweden (TSL<sup>1</sup>, Uppsala) und Südafrika (Timberlabs) erzeugt werden. In diesen Einrichtungen stand jedoch 2010 keine Strahlzeit zur Verfügung. Ein entsprechendes Experiment findet deshalb im Rahmen dieser Arbeit nicht statt.

<sup>1</sup>TSL = The Svedberg Laboratory

Die Erzeugung monoenergetischer Neutronen mit einer Energie von 14 MeV ist am DT-Generator in der Neutronenhalle der TU Dresden am Forschungszentrum Dresden-Rossendorf möglich. Der Generator erzeugt monoenergetische Neutronen durch die Fusion von Deuteronen mit Tritium  $t(d, n)^4He$ . Die dabei freiwerdende Energie ( $Q = 17,6$  MeV) verteilt sich auf die beiden Ejektile. Je nach Winkel des Neutrons zum Einfallswinkel des Deuterons beträgt seine Energie  $E_n = 13,5 \dots 14,5$  MeV [Kli08]. An der Anlage sind totale Neutronenflüsse bis zu  $\phi_{(4\pi)} = 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  möglich. Nach einer Bestrahlung muss die Luft in der Experimentierhalle 30 Minuten abklingen, da durch (n,2n)-Reaktionen der Neutronen mit dem Stickstoff der Luft  $^{13}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 9,965$  min) gebildet wird. Die Messung kurzlebiger Nuklide wie  $^{147}\text{Ce}$  ist nur dann möglich, wenn es eine Transportvorrichtung gibt, die die bestrahlte Probe binnen weniger Sekunden von der Neutronenquelle zum Detektor transportieren kann. Derzeit wird zu diesem Zweck eine Rohrpost in der Neutronenhalle installiert. Bis zum Spätsommer 2010 ist die Installation der Rohrpost nicht fertiggestellt worden. Die Messung des Wirkungsquerschnitts der  $^{147}\text{Ce}$  Produktion konnte deshalb im Rahmen dieser Arbeit nicht stattfinden.

Es gibt eine Reihe von Beschleunigeranlagen für Protonenstrahlen mit der oben angegebenen Energie. Beispielsweise betreiben große medizinische Einrichtungen Protonenbeschleuniger für die Herstellung von Radiopharmaka oder für die Strahlentherapie. Angefragt wurde bei R. Krücken von der TU München. Seine Arbeitsgruppe betreibt einen Tandembeschleuniger, der bis zu 30 MeV Protonen bei einem Fluss von maximal  $10^{10} \text{ s}^{-1}$  ( $\approx 1,6$  nA) liefert<sup>2</sup>. Der Strom von etwa 1 nA ist jedoch sehr gering und es ist an dieser Anlage im Jahr 2010 kaum Strahlzeit verfügbar (nur wenige Stunden). Eine Alternative ist die Zyklotronanlage in Řež bei Prag, welche Protonen auf bis zu 38 MeV beschleunigen kann, wobei Strahlströme bis zu einigen 10  $\mu\text{A}$  möglich sind [Dob10]. An dieser Anlage stand Strahlzeit für ein dreitägiges Experiment zur Verfügung.

### 6.3 Optimale Targetdicke

Protonen werden beim Durchgang durch Materie sehr viel stärker abgebremst als Neutronen. Während Neutronen nur durch elastische und inelastische Streuung, sowie Kernreaktionen wechselwirken, können Protonen aufgrund ihrer elektrischen Ladung auch Bremsstrahlung erzeugen, Atome ionisieren und durch elektrostatische Abstoßung an Kernen kinetische Energie abgeben [Bet08, Kli08]. Im Folgenden wird überprüft, welche Dicke ein Protonentarget idealerweise aufweisen sollte.

Nach (4.1) ist die Anzahl der produzierten Nuklide direkt proportional zu der Anzahl der Targetkerne. Folglich ist ein möglichst dickes Target wünschenswert. Andererseits führen dicke Targets zu einer Schwächung der Strahlenergie und damit zu einer größeren Energieunschärfe. Die optimale Dicke ist folglich ein Mittelmaß aus hoher Aktivierung und scharfer Energieauflösung.

---

<sup>2</sup>Mündliche Mitteilung von R. Krücken

Im Folgenden wird ein Protonenstrahl mit einer Energie  $E_P = 25$  MeV betrachtet. Typischerweise haben Targets bei solchen Strahlenergien eine Dicke von  $\mathcal{O}(10 \text{ }\mu\text{m})^3$ . Kommerzielle Lieferanten von seltenen Erden, wie zum Beispiel *Alfa Aesar*, bieten hochreine (99,9 %) Neodymfolien mit einer Dicke von 100  $\mu\text{m}$  oder größer an. Für dünnere Proben muss Neodym auf ein geeignetes Trägermaterial aufgetragen werden. Die Machbarkeit verschiedener Targetpräparationen, unter Berücksichtigung der hohen Reaktivität von Neodym mit Sauerstoff, wird in Kap. 6.4 erläutert. An dieser Stelle wird betrachtet wie hoch der Energieverlust des Protonenstrahls und die daraus resultierende Wärmeleistung in Neodymtargets verschiedener Dicken ist.

Ausgehend von der Angabe, dass 10  $\mu\text{m}$  eine typische Targetdicke ist, werden im Folgenden die Dicken 1, 10 und 100  $\mu\text{m}$  betrachtet. Der Energieverlust  $\Delta E$  von 25 MeV Protonen in Neodym wurde mit dem Programm *SRIM* [Zie10] berechnet.

Sofern der gesamte Energieverlust in Wärme umgewandelt wird, ist die im Neodym deponierte Leistung in [W] per Definition

$$P = \frac{\Delta E'}{t_{Str}}. \quad (6.2)$$

$t_{Str}$  ist dabei die Strahlzeit und  $\Delta E'$  der Energieverlust aller Protonen im Target in [J]. Dieser ist

$$\Delta E' = \Delta E \cdot e \cdot N_P, \quad (6.3)$$

wobei  $\Delta E$  der Energieverlust eines Protons in [eV],  $e$  die Elementarladung ( $1,602177 \cdot 10^{-19}$  C) und  $N_P$  die Anzahl der Protonen, die durch das Target treten, ist. Der Strom ist definiert als Ladung pro Zeit

$$I = \frac{Q}{t}. \quad (6.4)$$

Bei gegebenem Strahlstrom  $I$  in [A] ist

$$I = \frac{e \cdot N_P}{t_{Str}}. \quad (6.5)$$

(6.3) und (6.5) in (6.2) eingesetzt ergibt unmittelbar

$$P = \Delta E \cdot I. \quad (6.6)$$

Die Ergebnisse des Energieverlustes und der Wärmeleistung in Neodymproben verschiedener Dicken sind in Tab. 6.2 zusammengefasst. Als Strahlstrom wird zunächst 1  $\mu\text{A}$  angenommen. Dieser Wert ist von der Größenordnung her typisch für Protonenbestrahlungen und wird später dem Experiment entsprechend angepasst (Kap. 8).

Die Strahlschwächung in 10  $\mu\text{m}$  dicken Neodymschichten ist mit 0,31 % hinreichend klein. Somit besteht keine Notwendigkeit die Neodymtargets dünner zu wählen. 100  $\mu\text{m}$  dicke Neodymfolien weisen einen Energieverlust von 3,1 % auf. Entsprechend unsicher ist die mittlere Energie der Protonen in der Probe. Die Verwendung solch dicker Folien

<sup>3</sup>Schriftliche Mitteilung von O. Lebeda

**Tabelle 6.2: Vergleich verschiedener Foliendicken:** Angegeben ist der Energieverlust  $\Delta E$  und die Wärmeleistung  $\Delta P$  von 25 MeV Protonen in Neodymproben verschiedener Dicken  $d$ . Die Berechnungen des Energieverlustes wurden mit *SRIM* durchgeführt.

$d / \mu\text{m}$	$\Delta E / \text{MeV}$	$\Delta E/E$	$\Delta P / \text{mW}$
1	0,0078	0,03 %	7,8
10	0,0772	0,31 %	77,2
100	0,7810	3,12 %	781,0

ist nur dann zu empfehlen, wenn die Targetpräparation deutliche Vorteile gegenüber der Verwendung dünnerer Neodymschichten aufweist. Um die Wärmeleistung von 100  $\mu\text{m}$  Folien von 0,781 W abzuführen, sind Anpassungen im Experiment nötig, z. B. die Montage einer Wasserkühlung. Auch kann der Strahlstrom reduziert werden, um die Energiedeposition zu reduzieren. Prinzipiell sind Wärmeleistungen dieser Größenordnung in Bestrahlungsexperimenten beherrschbar<sup>4</sup>.

Zusammenfassend ist eine 10  $\mu\text{m}$  dicke Neodymschicht für die Protonenbestrahlung ideal. Gegebenenfalls kann auch eine Neodymschicht bis 100  $\mu\text{m}$  gewählt werden.

## 6.4 Passivierungsmethoden

### 6.4.1 Motivation und Überblick

Neodym ist ein unedele Metall. Es geht sehr starke Verbindungen mit Reduktionsmitteln ein. Speziell gebundener Sauerstoff wird aus Verbindungen, wie zum Beispiel Wasser, entzogen<sup>5</sup>. Neodymoxid selbst ist pulverförmig und somit für Bestrahlungsexperimente wenig geeignet, da im Falle einer Beschädigung des Behälters, in dem sich das Pulver befindet, das aktivierte Material sich unkontrollierbar verteilt und eine Reinigung der Experimentieranlage aufwendig und teuer ist<sup>6</sup>. Andere Verbindungen wie Neodymfluorid können gepresst werden, sind bei kommerziellen Herstellern aber erst ab einer Mindestdicke von 500  $\mu\text{m}$  erhältlich. Dies ist zu dick für ein Protonenbestrahlungsexperiment (vgl. Kap.6.3).

Bezüglich der eben geschilderten Pulverisierung des Neodyms bei der Oxidation wurden im Rahmen dieser Arbeit Beobachtungen an Neodymproben durchgeführt. Diese zeigten, dass pures Neodym an der Luft binnen wenigen Minuten weiße Stellen an der ansonsten dunkelgrauen Oberfläche bekommt. Nach einem Tag ist die Oberfläche vollständig weiß. Ein 100  $\mu\text{m}$  dickes Plättchen wurde binnen eines Monats brüchig und binnen dreier Monate komplett zu Pulver. Weitere Beobachtungen und Photos folgen in Kap. 7.2.

<sup>4</sup>Schriftliche Mitteilung von J. Štursa

<sup>5</sup>Mündliche Mitteilungen von S. Kaskel und A. Bund, sowie Sicherheitsdatenblatt MSDS des Herstellers *Alfa Aesar*

<sup>6</sup>Mündliche Mitteilung von K. Zuber

Neben den oben genannten strahlenschutztechnischen Bedenken bei der Handhabung von radioaktiven Pulvern kommt es zum Masseverlust, wenn das Oxid sich von der Neodymprobe ablöst. Die genaue Kenntnis der Masse (und damit der Anzahl an Targetisotopen) ist jedoch unabdingbar für eine quantitative Analyse bei Bestrahlungsexperimenten. In Folge dessen muss das Neodym durch eine nicht-reaktive Schicht vor Sauerstoffkontakt geschützt (**passiviert**) werden.

Im Folgenden wird betrachtet welche Arten der Passivierung im Rahmen dieser Arbeit genutzt werden sollen.

### 6.4.2 Herstellung von Neutronentargets

An der TU Dresden wurde von A. Klix und A. R. Domula ein Neodymtarget für ein Neutronenexperiment präpariert, indem eine hochreine Nd-Folie von *Alfa Aesar* (99,9 % rein, ca.  $25 \times 25 \times 0,1 \text{ mm}^3$ ) mit einem handelsüblichen Laminiergerät in Polyethylenfolie (PE) eingeschweißt wurde. Das Neodym wurde dazu wenige Minuten an die Luft gebracht um es zu schneiden und zu wiegen. Langfristig, d. h. über Monate hinweg, konnte die Plastikfolie das Neodym nicht vor der vollständigen Oxidation schützen. Jedoch wurde ein Masseverlust verhindert und ein Bestrahlungsexperiment samt Analyse konnte durchgeführt werden. Für zukünftige Neutronenaktivierungsexperimente ist dies eine hinreichend gut schützende Methode, die schnell und kostengünstig durchgeführt werden kann.

### 6.4.3 Überblick zur Herstellung von Protonentargets

Aufgrund des, im Vergleich zu Neutronen, hohen Energieverlustes von Protonen in Materie ist eine Polyethylenfolie nicht die optimale Wahl. PE ist nicht sehr hitzebeständig (Schmelztemperatur von PE-LD  $T_S = 100...130 \text{ °C}$  [Acr10]). Im Falle einer Nutzung muss der Strahlstrom heruntergeregelt werden, um Hitzeschäden zu vermeiden. Vortests dazu wurden im Rahmen dieser Studien vollzogen und sind in Kap. 7.3 beschrieben.

Vorüberlegungen zu verschiedenen Möglichkeiten der Ummantelung mit einem Metall sind in den folgenden Unterkapiteln zu finden. Besonderer Augenmerk liegt dabei auf den erzielten Dicken der Neodymschichten, den verwendeten Passivierungsmaterialien und deren nötige Dimensionierung für eine ausreichende Passivierung.

### Aufdampfung von Neodym auf ein Trägermaterial

Im *IFW Dresden*<sup>7</sup> wird mit dünnen Neodymschichten gearbeitet. Bei M. Seiert wurde angefragt, welche Methode verwendet wird und welche Dimensionen die Proben aufweisen.

Es wird mittels PLD<sup>8</sup> eine dünne Neodym- oder  $\text{NdCo}_5$ -Schicht, ca. 100 nm dick, auf ein Trägermaterial, z. B. Silizium, gedampft und mit einer noch dünneren Chromschicht, ca. 5...10 nm, vor Sauerstoffkontakt geschützt. Diese Methode funktioniert sehr gut, da die Neodymschicht sehr glatt ist und das Chrom porenfrei aufgetragen wird. Somit

<sup>7</sup>Leibnitz-Institut für Festkörper- und Werkstoffforschung Dresden

<sup>8</sup>PLD = Pulsed Laser Deposition, eine Aufdampftechnik, siehe z. B. [Dou94]

schützt es vollständig vor Sauerstoffkontakt. Es ist theoretisch machbar eine Neodymschicht bis maximal 1  $\mu\text{m}$  auf ein geeignetes Trägermaterial für die Protonenbestrahlung zu dampfen. Die maximal erreichbare Schichtdicke von 1  $\mu\text{m}$  ist jedoch zu gering für ein Protonenbestrahlungsexperiment (Kap. 6.3). Des Weiteren ist aufgrund der Nutzung eines Trägers die gleichzeitige Bestrahlung mehrerer Proben nicht möglich, da der Strahl im Trägermaterial sehr stark abgeschwächt oder gar ganz gestoppt wird. Außerdem muss die Aktivierung des Chroms und des Trägermaterials berücksichtigt werden.

#### **Aufdampfung einer Passivierungsschicht auf eine Neodymfolie**

Eine weitere Möglichkeit ist, ein Metall auf eine Neodymfolie (100  $\mu\text{m}$  dick) aufzudampfen. Dazu wurde bei O. Zimmer vom *Fraunhofer-IWS*<sup>9</sup> angefragt, ob PVD<sup>10</sup> hierfür eine geeignete Methode ist.

Es ist prinzipiell möglich eine dünne, glatte Metallschicht auf Neodym aufzutragen. Problematisch ist jedoch, dass das Haltern der Neodymfolie in der PVD-Anlage an der Luft geschieht. Die dabei entstehende Oxidschicht kann theoretisch wieder entfernt werden. Denn jeder Beschichtung muss eine Behandlung durch ein Plasma, bzw. Ionenbeschuss vorausgehen, um die Oberfläche zu säubern und damit die Haftung der Schicht zu gewährleisten. Die Temperaturbeständigkeit des Neodyms bei dieser Behandlung muss zuvor getestet werden. Aufgrund der Halterung in der Verdampfungsanlage kann die gesamte Neodymfolie nicht mit einem mal beschichtet werden. An den Stellen, an denen sich die Halterklemmen befinden, wird keine Beschichtung stattfinden. Folglich muss die Folie an der Luft gewendet werden, mit erneuter Oberflächenreinigung vor der Beschichtung. Als Folge dieser Mehrfachbehandlung wird die Passivierungsschicht sehr inhomogen und auch nicht dicker als 1  $\mu\text{m}$  sein. Es ist jedoch bei einer ca. 100  $\mu\text{m}$  dicken, gewalzten Folie sehr wahrscheinlich, dass die Oberfläche nicht glatt ist, sondern Unebenheiten der Größenordnung  $\mathcal{O}(1 \mu\text{m})$  aufweist. Eine Passivierungsschicht für eine solche Folie muss je nach Beschichtungsmaterial und -methode eine Dicke von 5...10  $\mu\text{m}$  aufweisen.

Das heißt, dass diese Methode für die Passivierung einer Neodymfolie ebenfalls ungeeignet ist.

#### **Galvanotechnische Abscheidung einer Passivierungsschicht auf eine Neodymfolie**

Gesucht wird eine Methode, mit der eine ca. 5  $\mu\text{m}$  starke Metallschicht auf eine raue Neodymoberfläche aufgebracht werden kann. Da Neodym elektrisch leitfähig ist ( $1,56 \cdot 10^6 \text{ A}\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{m}^{-1}$ ), bietet sich die Methode der Galvanotechnischen Abscheidung an. Hierbei wird die zu beschichtende Probe in eine Lösung des Beschichtungsmaterials getaucht und unter Spannung gesetzt. Durch die anliegende Spannung wird die Lösung ionisiert und das gewünschte Material scheidet sich an der Probe ab. Typische Schichtdicken sind 1...20  $\mu\text{m}$ . Weitere Informationen sind z. B. in [Moh69] zu finden.

<sup>9</sup>Fraunhofer-Institut für Werkstoff- und Strahltechnik Dresden

<sup>10</sup>PVD = Physical Vapor Deposition, eine Aufdampftechnik, siehe z. B. [Mah00]

In der Arbeitsgruppe *Elektrochemie* des Lehrstuhls für Physikalische Chemie der TU Dresden werden Galvanisierungen durchgeführt. Dort steht eine Handschuhbox, in der Argonatmosphäre herrscht, zur Verfügung. Auch besitzt diese Gruppe eine Reihe von Lösungen, die Aluminium, Kupfer, Silber und Gold als abscheidbares Material enthalten. Nach bisherigen Erfahrungen der Arbeitsgruppe können Kupfer und Silber glatte, porenfreie Oberflächen erzeugen. Mit Aluminium und Gold hat sie noch keine praktischen Erfahrungen.

In freundlicher Kooperation mit A. Bund und A. Ispas wird diese Methode an Neodym angewandt, um eine geeignete Passivierungsschicht aufzutragen. In Kap. 7.2.1 wird analysiert, welches Material geeignet ist und die Resultate dieses Verfahrens werden vorgestellt.

### **Zusammenfassung**

Nach den vorangegangenen Überlegungen zu verschiedenen Passivierungsmethoden mit metallischen Ummantelungen ist die geeignetste Methode die Galvanotechnische Abscheidung eines Metalls auf eine 100  $\mu\text{m}$  dicke Neodymfolie. Die Ummantelung wird in einer Stärke von 5...10  $\mu\text{m}$  benötigt. Es muss zunächst geprüft werden, welches Material sich für die Ummantelung eignet. Zur Auswahl stehen Aluminium, Kupfer, Silber und Gold. In Kap. 7 wird beschrieben, wie die Dicke der Neodymprobe mit und ohne Passivierungsschicht präzise vermessen werden kann, welche langlebigen Nuklide bei der Protonenbestrahlung in der Ummantelung entstehen, gegebenenfalls wie stark die Schwächung des Strahls in der Umhüllung ist und welche Resultate die Methode der Galvanotechnischen Abscheidung hervorbrachte.

# 7 Protonentarget

## 7.1 Dickenmessung der Neodymfolie

### Motivation

Für die Bestrahlung einer Neodymfolie mit Protonen ist es wichtig die genaue Dicke des Targets zu kennen, um den Energieverlust des Strahles berücksichtigen und Wirkungsquerschnitte ermitteln zu können, siehe Kap. 6. Die von kommerziellen Herstellern angebotenen Folien enthalten nur ungefähre Dickenangaben (hier 0,1 mm). Die für diesen Versuch gelieferten Folien sind eingeschweißt in Argonatmosphäre, um Verunreinigungen und Oxidation des Neodyms zu verhindern. Sie sollen während der Messung nicht aus der Verpackung entnommen werden.

Um dieser Rahmenbedingung zu genügen, werden  $\gamma$ -Absorptionsmessungen an den eingeschweißten Neodymfolien durchgeführt. Im Folgenden werden zunächst die nötigen Grundlagen zusammengefasst, anschließend der Messaufbau beschrieben und am Ende die Ergebnisse zusammengetragen.

### 7.1.1 Photonenabsorption in Materie

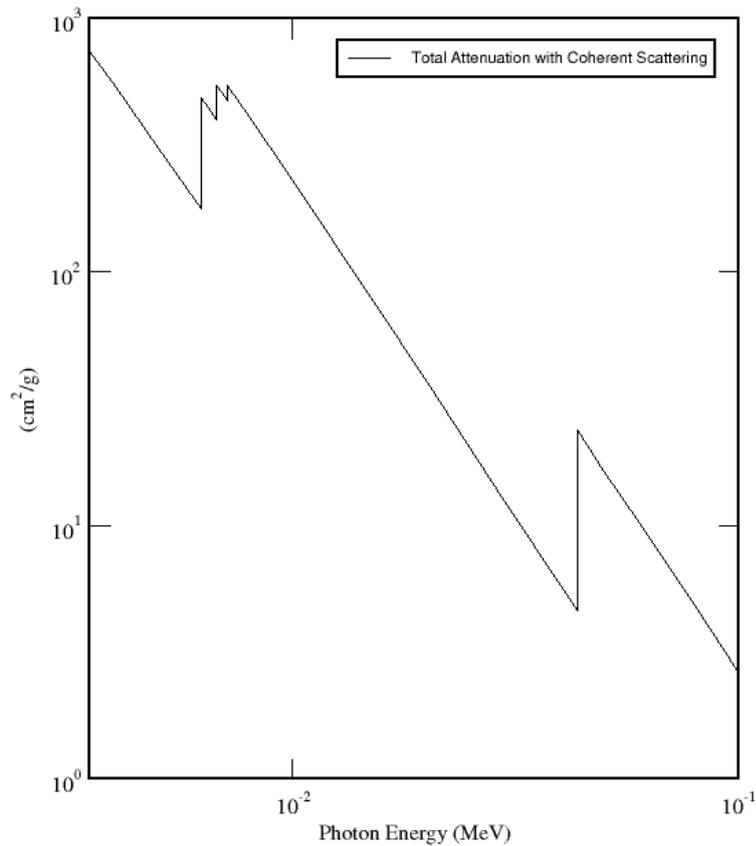
Der Intensitätsabfall eines Photonenstrahls in Materie wird durch das exponentielle Schwächungsgesetz beschrieben [Bet08]

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x}. \quad (7.1)$$

Hier stehen  $I_0$  und  $I$  für die Intensität des Photonenstrahls vor und nach der Durchdringung der Materie,  $x$  für die durchlaufene Strecke in der Materie und  $\mu$  für den Schwächungskoeffizienten. Letzterer ist in der Literatur häufig als Massenschwächungskoeffizient  $\mu/\rho$  angegeben. Dieser ist energieabhängig. Für Neodym ist diese Abhängigkeit in Abb. 7.1 graphisch dargestellt. Die Daten entstammen der berechneten Datenbank [Ber03]. Die Sprungstellen treten auf, wenn die Energie der Photonen groß genug ist, um tiefliegendere Schalen des Targetatoms zu ionisieren. Weitere Details dazu sind in [Bet08] zu finden.

Für die Absorptionsmessung ist es optimal eine Photonenquelle zu nutzen, deren Schwächungskoeffizient einen Intensitätsabfall  $I/I_0 \approx 0,5$  verursacht. Liegt dieser bei 1, ist die Schwächung zu schwach, bei 0 ist sie zu stark. Beide Fälle sind ungeeignet für eine präzise Bestimmung der Dicke  $x$ . Laut Herstellerangaben sind die zu vermessenden Neodymfolien ca. 100  $\mu\text{m}$  dick. Bei einer Dichte  $\rho_{Nd} = 7,00 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  ist der optimale Massenschwächungskoeffizient bei

$$\mu/\rho = \frac{\ln 2}{x \cdot \rho} \approx 10 \text{ cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}.$$



**Abbildung 7.1: Massenschwächungskoeffizient von Photonen in Neodym:** Die Daten sind aus [Ber03].

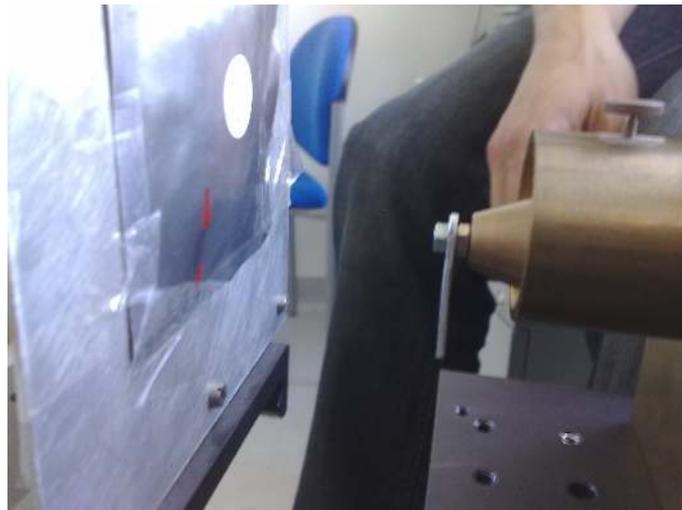
Aus [Ber03] ist zu entnehmen, dass optimale Massenschwächungskoeffizient bei  $E_\gamma \approx 33$  keV sowie  $E_\gamma \approx 60$  keV liegt. Eine geeignete Quelle für diese Messung ist demnach das Isotop  $^{241}\text{Am}$  ( $T_{1/2} = 432,2$  a). Es ist ein  $\alpha$ -Strahler, bei dessen Zerfall zu 35,9 % Gammastrahlung mit  $E_\gamma = 59,54$  keV und zu 2,40 %  $E_\gamma = 26,34$  keV emittiert wird. Weitere spezifische Gammastrahlung tritt mit vernachlässigbar kleinen Intensitäten ( $\leq 0,126$  %) auf. Eine entsprechende  $^{241}\text{Am}$ -Quelle ist hauseigen in der AG Strahlungsphysik vorhanden. In deren Labor fand die im Folgenden beschriebene Messung statt.

### 7.1.2 Der Messaufbau

Die Messungen erfolgen in einem Relativverfahren. Die Intensitäten  $I_0$  und  $I$  entsprechen hier den Zählraten der spezifischen Gammastrahlung der  $^{241}\text{Am}$ -Quelle im Detektor ohne und mit Neodym im Strahlengang. Die in Argonatmosphäre verpackte Neodymfolie wird zur Messung von  $I$  direkt vor die Quelle gespannt, zur Messung von  $I_0$  nur deren Verpackungsmaterial. Der Messaufbau ist in Abb. 7.2 zu sehen. Die durchleuchtete Fläche beträgt etwa  $20 \text{ mm}^2$ . Die Messung ergibt einen über diese Fläche gemittelten Wert für die Foliendicke.



(a) Im Vordergrund ist die  $^{241}\text{Am}$ -Quelle, eingespannt in eine Halterung, zu sehen. Davorgespannt ist die Neodymfolie in ihrer Verpackung, in der Argonatmosphäre herrscht. Im Hintergrund ist der Germanium-Detektor zu sehen.



(b) Zu sehen ist ein vergrößerter Ausschnitt der Quelle, die direkt vor die Verpackung der Neodymfolie gespannt ist.

**Abbildung 7.2: Messaufbau für die Bestimmung der Dicke der Neodymfolie**

Der Vorteil dieser Methode ist, dass sich systematische Unsicherheiten wie das Vollenergieanprechvermögen oder geometrische Effekte aufheben. Es werden zwei Zählraten gemessen, die nur noch statistischen Messunsicherheiten unterliegen. Die Messzeiten werden so gewählt, dass wenigstens  $10^6$  Ereignisse über dem Untergrund für die 59,54 keV Gammalinie im Spektrum zu verzeichnen sind. Damit liegt die statistische Messunsicherheit im Promille Bereich.

Als Detektor dient ein Gammaspektrometer von *Canberra* (Germanium-Detektor, Modell GL 0215R) und die Spektren werden mit *GammaVision* von *Ortec* aufgenommen und ausgewertet.

Bei Gammadetektoren werden aus dem Vorverstärker ankommende analoge Pulse mit einem ADC<sup>1</sup> in ein digitales Signal umgewandelt. Dieser kann Pulse nur einzeln verarbeiten. Während dieser Bearbeitungszeit ist der Detektor blind für weitere eintreffende Signale, die bei einer entsprechend hohen Quellstärke auftreten. Dieser Zeitraum wird als **Totzeit**  $t_{Tot}$  bezeichnet und kann wenige bis einige zehn Mikrosekunden betragen. In Folge dessen muss bei der Messzeit zwischen realer Messzeit (**Real-Time**)  $t_{real}$  und Lebenszeit des Detektors (**Live-Time**)  $t_{live}$  unterschieden werden, wobei gilt

$$t_{Tot} = t_{real} - t_{live}. \quad (7.2)$$

Die Totzeit sollte für quantitative Analysen je nach Gerät 30...50 % der realen Messzeit nicht übersteigen. Andernfalls erfasst der ADC die Größe und Form der vom Detektor ankommenden Pulse nicht mehr korrekt. Ausführliche Erläuterungen dazu sind in [Gil96] zu finden.

Die genutzte <sup>241</sup>Am-Quelle (hauseigene ID Am240) ist stark kollimiert und weist eine hohe Aktivität  $A \approx 3$  GBq auf. Zur Reduktion der Totzeit des Detektors wird sie in einem großen Abstand von ca. 3 m vom Detektor entfernt platziert. Dadurch wird die Rate der im Detektor eintreffenden Photonen reduziert und die Totzeit beträgt etwa 3 % der realen Messzeit.

Insgesamt wurden die Dicken von drei Neodymfolien auf diese Weise gemessen. Jede dieser Folien wurde für eine andere Art der Passivierung eingesetzt (Kap. 7.2).

### 7.1.3 Messdaten und Auswertung

Der Hauptaugenmerk der Auswertung des Gammaspektrums liegt auf dem Peak<sup>2</sup> bei 59,54 keV. Gammastrahlung dieser Energie wird in Neodym weniger stark absorbiert und die Quellintensität ist höher als die des 26,34 keV Peaks. Somit wird dessen statistische Unsicherheit stets kleiner sein. Die 26,34 keV Linie wird nur zu Vergleichszwecken herangezogen. Die Werte des (Massen-)Schwächungskoeffizienten der <sup>241</sup>Am-Photonen sind in Tab. 7.1 zusammengestellt.

<sup>1</sup>ADC = Analog-to-Digital-Converter (engl.): Analog-Digital-Wandler.

<sup>2</sup>Peak (engl.): „Spitze, Scheitelpunkt“, Fachausdruck für deutlich vom Untergrund unterscheidbare Spitzen in einem Spektrum.

**Tabelle 7.1: Massenschwächungskoeffizienten  $\mu/\rho$  von Photonen in Neodym:** Die Werte sind angegeben für die Photonen mit den Energien  $E_\gamma$  und den relativen Intensitäten  $Int$ , die beim  $^{241}\text{Am}$ -Zerfall emittiert werden.  $\mu$  ist der Schwächungskoeffizient für die genutzten Neodymproben. Die Massenschwächungskoeffizienten  $\mu/\rho$  sind aus der berechneten Datenbank [Ber03] entnommen.

$E_\gamma / \text{keV}$	$Int. / \%$	$\mu/\rho / \text{cm}^2\text{g}^{-1}$	$\mu / \text{mm}^{-1}$
59,54	35,9	10,5	7,35
26,34	2,40	17,6	12,32

Als Beispiel sind die Spektren von Folie I in Abb. 7.3 dargestellt. Zu sehen sind die Spektren (a) ohne Neodym und (b) mit Neodym zwischen Quelle und Detektor. Letzteres ist bezüglich der Messzeit auf die von Spektrum (a) normiert. Markiert sind in beiden Spektren die spezifischen Gammalinien der Quelle, vgl. Tab. 7.1.

Bei der Auswertung der Peaks mit *GammaVision* werden in jedem Spektrum die gleichen ROIs<sup>3</sup> verwendet. Das Programm berechnet die Nettopeakfläche  $N_{(0)}$ , d. h. die totale Anzahl an registrierten Ereignissen in der ROI abzüglich der Untergrundereignisse. Daraus berechnet sich

$$I_{(0)} = N_{(0)}/t_{live}. \quad (7.3)$$

Nach (7.1) ist die Dicke  $x$  der Neodymfolie dann

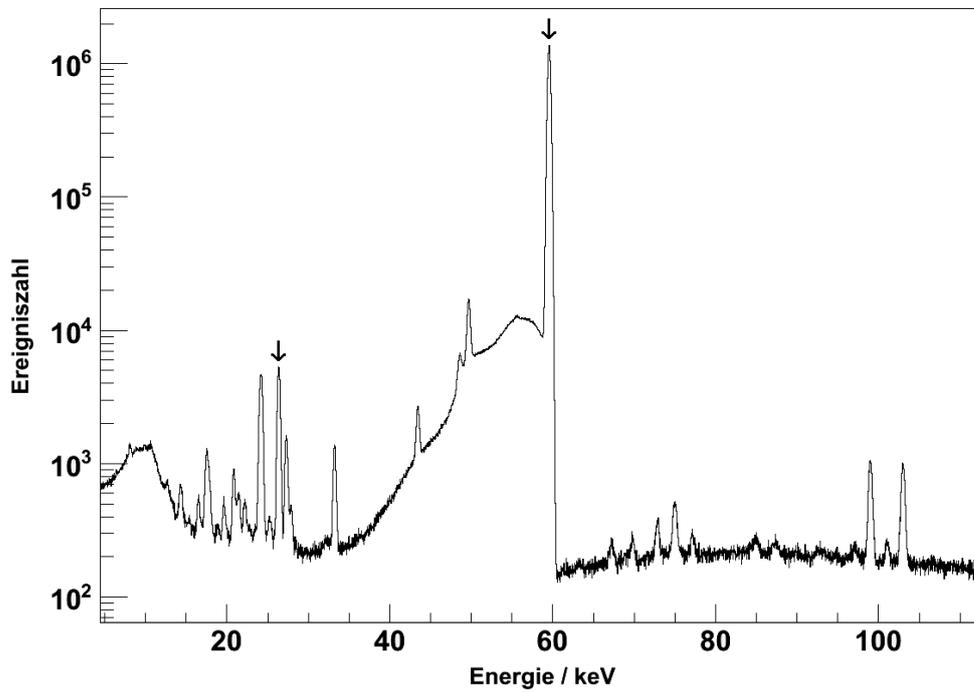
$$x = \frac{1}{\mu} \cdot \ln \left( \frac{I_0}{I} \right). \quad (7.4)$$

Die Messdaten sind in Tab. 7.2 und die Ergebnisse der Messungen in Tab. 7.3 zusammengefasst. Die angegebenen Fehler definieren den Vertrauensbereich  $1\sigma$ .

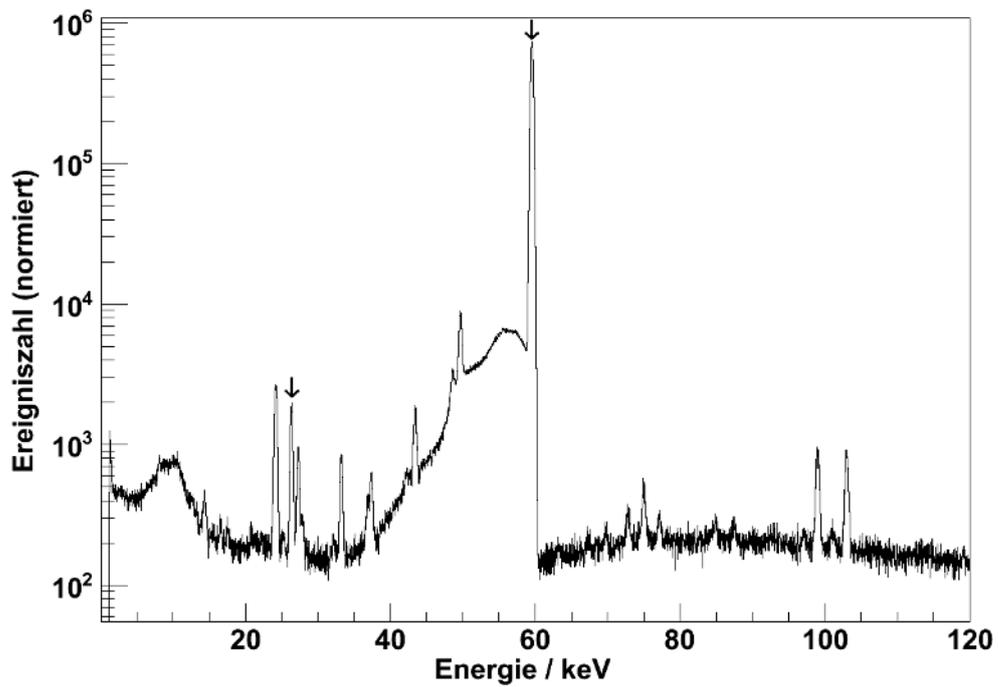
**Tabelle 7.2: Messdaten der Photonenabsorptionsmessung:**  $N_0$  und  $N$  sind die Nettopeakflächen der jeweiligen Gammalinien im Spektrum ohne und mit Neodym.

Folie	$E_\gamma / \text{keV}$	$N_0$	$t_{live} / \text{s}$	$N$	$t_{live} / \text{s}$
I	59,54	$24780199 \pm 5863$	155075	$5771616 \pm 2828$	67551
	26,34	$74547 \pm 415$	155075	$11173 \pm 200$	67551
II	59,54	$1470910 \pm 1428$	11877	$3034281 \pm 2192$	53185
	26,34	$4503 \pm 103$	11877	$5090 \pm 153$	53185
III	59,54	$1215486 \pm 1374$	11210	$2827678 \pm 2108$	57893
	26,34	$3438 \pm 102$	11210	$4598 \pm 156$	57893

<sup>3</sup>ROI = Region of Interest (engl.): „Interessierender Bereich“, gemeint ist der Energiebereich im Spektrum, in dem der Peak liegt und der für die Auswertung von Interesse ist.



(a) Spektrum ohne Neodym



(b) Spektrum mit Neodym (normiert auf die Messzeit von Spektrum (a))

Abbildung 7.3: Spektren der Absorptionsmessung der Neodymfolie I

**Tabelle 7.3: Messergebnisse der Photonenabsorptionsmessung:**  $I_0$  und  $I$  sind die Zählraten der jeweiligen Gammalinien im Spektrum ohne und mit Neodym.  $x$  ist die Dicke der Neodymfolie mit einem Fehler im  $1\sigma$  Vertrauensbereich.

Folie	$E_\gamma / \text{keV}$	$I_0 / \text{s}^{-1}$	$I / \text{s}^{-1}$	$x / \mu\text{m}$
I	59,54	159,79	85,44	$85,18 \pm 0,07$ (0,08 %)
	26,34	0,48	0,17	$84,3 \pm 1,5$ (1,78 %)
II	59,54	123,85	57,05	$105,5 \pm 0,2$ (0,19 %)
	26,34	0,38	0,17	$108,4 \pm 4,3$ (3,97 %)
III	59,54	108,42	48,84	$108,50 \pm 0,26$ (0,24 %)
	26,34	0,31	0,08	$110,0 \pm 5,2$ (4,73 %)

Der Ergebnistabelle 7.3 ist zu entnehmen, dass die Dicken um bis zu  $15 \mu\text{m}$  von der Herstellerangabe abweichen. Die Messungen aus dem  $59,54 \text{ keV}$  Peak weisen wie erwartet wesentlich geringere Fehler auf, da die statistischen Unsicherheiten entsprechend kleiner sind. Innerhalb ihrer  $1\sigma$  Fehlergrenzen stimmen die Werte aus den beiden Peaks stets überein. Für spätere Berechnungen werden, aufgrund der kleineren Unsicherheit, nur die Werte aus den  $59,54 \text{ keV}$  Peaks benutzt. Im Folgenden wird kurz zusammengefasst, wie die Fehler berechnet werden.

### Fehlerrechnung

Die fehlerbehafteten Größen sind  $\Delta N$  und  $\Delta N_0$ . Mit (7.3) gilt

$$\frac{\Delta I_{(0)}}{I_{(0)}} = \frac{\Delta N_{(0)}}{N_{(0)}}. \quad (7.5)$$

Bei statistischen Fehlern addieren sich die Quadrate der einzelnen Beiträge zum Quadrat des Gesamtfehlers. Die einzelnen Fehlerbeiträge ergeben sich aus den partiellen Ableitungen [Cow98]. Für (7.4) bedeutet dies

$$(\Delta x)^2 = \left( \frac{\partial x}{\partial I_0} \cdot \Delta I_0 \right)^2 + \left( \frac{\partial x}{\partial I} \cdot \Delta I \right)^2, \quad (7.6)$$

mit

$$\frac{\partial x}{\partial I_0} \cdot \Delta I_0 = \frac{1}{\mu} \cdot \frac{\Delta I_0}{I_0} = \frac{1}{\mu} \cdot \frac{\Delta N_0}{N_0} \quad (7.7)$$

$$\frac{\partial x}{\partial I} \cdot \Delta I = -\frac{1}{\mu} \cdot \frac{\Delta I}{I} = -\frac{1}{\mu} \cdot \frac{\Delta N}{N}. \quad (7.8)$$

## 7.2 Passivierung

In Kap. 6.4 wurde motiviert, dass das zur Bestrahlung eingesetzte Neodym vor Sauerstoffkontakt geschützt werden muss, da es andernfalls oxidiert. Das wiederum führt zur Pulverisierung, womit ein Masseverlust der Neodymprobe einhergeht. Als am besten geeignete Passivierungsmethode wurde in Kap. 6.4 die Galvanotechnische Abscheidung eines Metalles auf Neodym ermittelt. Das Vorgehen und die Resultate sind im folgenden

Unterkapitel beschrieben. Des Weiteren wurden Neodymproben in Polyethylenfolien einlaminiert (Kap. 7.2.2). Kurz vor der Durchführung des Bestrahlungsexperimentes ergab sich die Möglichkeit einer weiteren Methode der Passivierung, die Ummantelung mit einer Schicht aus Parylen<sup>4</sup>. Diese ist in Unterkapitel 7.2.3 beschrieben. Um die Beständigkeit der Proben, bzw. der Schutzschichten, im Protonenstrahl zu testen, wurden Vorversuche durchgeführt. Diese sind in Kap. 7.3 beschrieben.

## 7.2.1 Galvanotechnische Abscheidung

### Verwendetes Material

In Kap. 6.4 wurde genannt, dass als Passivierungsmaterialien Aluminium, Kupfer, Silber und Gold zur Verfügung stehen. Um die Eignung der Materialien zu prüfen, wird betrachtet, welche langlebigen Nuklide bei der Bestrahlung mit 25 MeV Protonen entstehen, wie hoch der Energieverlust im Material sein wird und welche thermische Beständigkeit (Wärmeleitfähigkeit zum Wärmeabtransport, Schmelztemperatur) es hat.

Bei der Bestrahlung sollen Wirkungsquerschnitte für die Produktion langlebiger Nuklide aus Neodym ermittelt werden. Entstehen im Passivierungsmaterial ebenfalls langlebige Nuklide in großen Mengen, so können sich diese mit den gesuchten Ereignissen im Gammaskpektrum überlagern. Es wird im Folgenden nach möglichen produzierten Nukliden gesucht, die Halbwertszeiten von  $T_{1/2} \geq 20$  d und hohe Produktionsquerschnitte aufweisen. In Kap. 4.4.2 wurde gezeigt, dass 25 MeV Protonen in Neodym vor allem für die Reaktionen  $(p,1\dots4n)$ ,  $(p,pn)$  und  $(p,\alpha)$  hohe Wirkungsquerschnitte aufweisen. Die Betrachtung beschränkt sich daher auf diese Reaktionen. Nuklidkartenausschnitte der Passivierungsmaterialien sind in Abb. 7.4 zu finden. Die daraus entnommenen langlebigen Reaktionsprodukte sind in Tab. 7.4 mit Halbwertszeit,  $Q$ -Wert und Wirkungsquerschnitt zusammengefasst. Die Wirkungsquerschnitte stammen überwiegend aus MENDL [Shu95]. Nur für die Reaktionsdaten von Gold wurde auf TENDL<sup>5</sup> [THA08] zurückgegriffen, da hierfür in MENDL keine Daten vorhanden sind. Einige Reaktionen finden nicht statt, da die Schwellenergie  $E_S$  (aus [Kom10]) nicht erreicht wird.

Tab. 7.4 ist zu entnehmen, dass in allen vier Materialien langlebige Nuklide entstehen können. Einige dieser Nuklide werden zusätzlich als Zerfallsprodukt eines kurzlebigen Nuklids gebildet. In Kupfer und Silber bilden sich Nuklide mit Halbwertszeiten von einigen Hundert Tagen und hohen  $Q$ -Werten. Auch in Gold wird das langlebige Isotop  $^{195}\text{Au}$  gebildet, welches vor allem durch das kurzlebige  $^{195}\text{Hg}$  gespeist wird. Es emittiert jedoch beim Zerfall kaum Gammastrahlung. Mit einer relativen Intensität von 10,9 % ist das Photon mit  $E_\gamma = 98,8$  keV das markanteste beim Zerfall von  $^{195}\text{Au}$ . In Aluminium wird das Isotop  $^{26}\text{Al}$ , überwiegend direkt, gebildet. Es ist mit einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 7,17 \cdot 10^5$  a sehr langlebig und wird bei gleicher produzierter Menge nur einen Bruchteil der Aktivität eines Nuklids mit einem Jahr Halbwertszeit bilden. Aus Sicht der Materialaktivierung sind Aluminium und Gold am besten geeignet.

<sup>4</sup>Parylen = Poly(para-Xylylen)

<sup>5</sup>TENDL = THALYS-based Evaluated Nuclear Data Library

<b>Si25</b> 220 ms 5/2+	<b>Si26</b> 2.234 s 0+	<b>Si27</b> 4.16 s 5/2+	<b>Si28</b> 0+
EC <sub>p</sub>	EC	EC	92.23
<b>Al24</b> 2.053 s 4+	<b>Al25</b> 7.183 s 5/2+	<b>Al26</b> 7.4E+5 y 5+	<b>Al27</b> 5/2+
EC <sub>α</sub> *	EC	EC	100
<b>Mg23</b> 11.517 s 3/2+	<b>Mg24</b> 0+	<b>Mg25</b> 5/2+	<b>Mg26</b> 0+
EC	78.99 *	10.00	11.01 *

(a) Nuklidkartenausschnitt Aluminium

<b>Zn61</b> 89.1 s 3/2-	<b>Zn62</b> 9.186 h 0+	<b>Zn63</b> 38.47 m 3/2-	<b>Zn64</b> 0+	<b>Zn65</b> 244.26 d 5/2-	<b>Zn66</b> 0+
EC	EC	EC	48.6	EC	27.9
<b>Cu60</b> 23.7 m 2+	<b>Cu61</b> 3.333 h 3/2-	<b>Cu62</b> 9.74 m 1+	<b>Cu63</b> 3/2-	<b>Cu64</b> 12.700 h 1+	<b>Cu65</b> 3/2-
EC	EC	EC	69.17	EC,β	30.83
<b>Ni59</b> 7.6E+4 y 3/2-	<b>Ni60</b> 0+	<b>Ni61</b> 3/2- *	<b>Ni62</b> 0+	<b>Ni63</b> 100.1 y 1/2-	<b>Ni64</b> 0+
EC	26.223	1.140	3.634	β-	0.926

(b) Nuklidkartenausschnitt Kupfer

<b>Cd105</b> 55.5 m 5/2+	<b>Cd106</b> 0+ *	<b>Cd107</b> 6.50 h 5/2+	<b>Cd108</b> 0+ *	<b>Cd109</b> 462.6 d 5/2+	<b>Cd110</b> 0+ *
EC	1.25 *	EC	0.89 *	EC	12.49 *
<b>Ag104</b> 69.2 m 5-	<b>Ag105</b> 4E29 d 1/2- *	<b>Ag106</b> 23.96 m 1+ *	<b>Ag107</b> 1/2- *	<b>Ag108</b> 2.37 m 1+ *	<b>Ag109</b> 1/2- *
EC	EC	EC,β *	51.839	EC,β *	48.161
<b>Pd103</b> 16.991 d 5/2+	<b>Pd104</b> 0+ *	<b>Pd105</b> 5/2+ *	<b>Pd106</b> 0+ *	<b>Pd107</b> 6.5E+6 y 5/2+ *	<b>Pd108</b> 0+ *
EC	11.14	22.33	27.33	β	26.46

(c) Nuklidkartenausschnitt Silber

<b>Hg194</b> 520 y 0+	<b>Hg195</b> 9.9 h 1/2- *	<b>Hg196</b> 0+ *	<b>Hg197</b> 61.14 h 1/2- *	<b>Hg198</b> 0+ *
EC	EC	0.15 *	EC	9.97 *
<b>Au193</b> 17.65 h 3/2- *	<b>Au194</b> 38.02 h 1- *	<b>Au195</b> 186.09 d 3/2+ *	<b>Au196</b> 6.183 d 2- *	<b>Au197</b> 3/2+ *
EC	EC	EC	EC,β *	100 *
<b>Pt192</b> 0+ *	<b>Pt193</b> 50 y 1/2- *	<b>Pt194</b> 0+ *	<b>Pt195</b> 1/2- *	<b>Pt196</b> 0+ *
0.79	EC	32.9	33.8	25.3

(d) Nuklidkartenausschnitt Gold

Abbildung 7.4: Nuklidkartenausschnitte der vier zur Verfügung stehenden Passivierungsmaterialien

Tab. 7.5 fasst die Eigenschaften der vier Elemente bezüglich Temperaturbeständigkeit und Energieverlust zusammen. Der Energieverlust eines 25 MeV Protonenstrahls in einer 10 µm dicken Schicht des jeweiligen Materials wurde mit *SRIM* berechnet. Aluminium hat eine geringere Temperaturbeständigkeit als die anderen drei Metalle, welche hier ähnlich gute Eigenschaften aufweisen. Andererseits ist die Protonenstrahlschwächung in Aluminium dreimal geringer als in Kupfer und Silber und viermal geringer als in Gold.

Zusammenfassend ist jedes der vier Materialien geeignet für die Ummantelung von Neodym. Aluminium erweist sich als das vorteilhafteste bezüglich Materialaktivierung und Protonenstrahlschwächung. Silber ist aufgrund der größten erwarteten Aktivierungen am wenigsten geeignet. Im Folgenden wird die Machbarkeit einer Ummantelung mit dem jeweiligen Material getestet.

**Tabelle 7.4: Aktivierungen des Passivierungsmaterials:** Aufgelistet sind langlebige Nuklide, die aus dem jeweiligen Targetisotop gebildet werden können. Die angegebenen kurzlebigen Nuklide zerfallen in langlebige.

Target	Produkt	$T_{1/2}$	$Q / \text{keV}$	$\sigma / \text{mb}$	Bem.
$^{27}\text{Al}$	$^{26}\text{Al}$	$7,17 \cdot 10^5 \text{ a}$	4004,14	278	
	$^{26}\text{Si}$	2,2 s	5066	1,7	
$^{65}\text{Cu}$	$^{65}\text{Zn}$	244,15 d	1351,9	34,5	
$^{107}\text{Ag}$	$^{105}\text{Ag}$	41,3 d	1345	14,3	
	$^{105}\text{Cd}$	55,5 m	2738	110	
$^{109}\text{Ag}$	$^{109}\text{Cd}$	462,6 d	214	28,5	
	$^{108m}\text{Ag}$	418 a	1918	68,5	
	$^{105}\text{Ag}$	41,3 d	1345	-	$E_S = 34,3 \text{ MeV}$
	$^{105}\text{Cd}$	55,5 m	2738	-	$E_S = 37,6 \text{ MeV}$
$^{197}\text{Au}$	$^{195}\text{Au}$	186,09 d	226,8	k. A.	
	$^{195}\text{Hg}$	9,9 h	1510	1070	(TENDL)

**Tabelle 7.5: Eigenschaften der Passivierungsmaterialien:** Angegeben sind die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$ , die Schmelztemperatur  $T_S$ , sowie der mit *SRIM* berechnete Energieverlust  $\Delta E$  in 10  $\mu\text{m}$  Schichtdicke.

Element	$\lambda / \text{W} \cdot \text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$	$T_S / ^\circ\text{C}$	$\Delta E / \text{keV}$
Al	234	660	45
Cu	398	1083	122
Ag	430	961	125
Au	320	1064	188

## Die Durchführung

Die Galvanotechnische Abscheidung einer Metallschicht auf das Neodymtarget wurde in freundlicher Kooperation von A. Ispas der Arbeitsgruppe Elektrochemie der TU Dresden unter Leitung von A. Bund durchgeführt. Die Versuche fanden im Juni und Juli 2010 in deren Laborräumen statt. Unter Argonatmosphäre wird das Neodym (Folie I) seiner Verpackung entnommen und in  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  große Stücke geschnitten. Der Neodymverschnitt<sup>6</sup> wird für Vortests, in denen die Haftung der Materialien an Neodym getestet wird, genutzt.

<sup>6</sup>Die ursprünglichen Abmaße der Neodymfolien sind  $25 \times 25 \text{ mm}^2$ .

Im Folgenden wird berichtet, wie die Arbeitsgruppe vorgegangen ist. Die Informationen stammen aus mündlichen und schriftlichen Mitteilungen von A. Ispas.

Für die Abscheidung selbst wird ein Stück Neodym an einer Krokodilklemme befestigt und in eine (wasserfreie) Salzlösung getaucht, in der sich das entsprechende Beschichtungsmaterial befindet. In die Lösung wird eine zweite Elektrode getaucht. Durch Anlegen einer schwachen Spannung  $\mathcal{O}(-1 \text{ V})$  dissoziiert das Metall aus der Salzlösung und setzt sich am Neodym ab. An der Stelle, an der das „Krokodil“ befestigt ist, kommt es jedoch nicht zur Abscheidung. Um die Auflagefläche ebenfalls zu beschichten, wird die Klemme gelöst, an einer anderen Stelle wieder befestigt und die Probe nochmals galvanisiert.

Zuerst wurde die Beschichtung mit Aluminium versucht. Jedoch zeigt sich keinerlei Haftung des Aluminiums am Neodym. Es wurde mit verschiedenen Salzlösungen und bei verschiedenen Spannungen, sowie verschiedenen Zeitspannen unter Potential getestet, ohne dass eine entsprechende Schicht zu sehen war. Auch die Erhöhung der Temperatur von Raumtemperatur auf  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  ergab keine Verbesserung. Aluminiumschichten auf Neodym aufzutragen wurde in Folge dessen nicht weiter verfolgt.

Das Auftragen von Kupfer unter konstanter Spannung ergab ein nur stellenweises Anhaften. Ursache könnten Spannungsspitzen an der unebenen Oberfläche des Neodyms sein. Die Nutzung eines gepulsten Stromes zeigte eine Verbesserung. Dadurch ergab sich eine Verteilung des Kupfers auf der gesamten Oberfläche, die jedoch insgesamt immer noch inhomogen und möglicherweise nicht porenfrei passiviert ist. Auch war die Adhäsion zwischen Kupfer und Neodym schwach. Durch kräftiges Wischen konnte das Kupfer stellenweise wieder entfernt werden. Zur Verbesserung der Haftung wurde vor der Galvanisierung PEDOT<sup>7</sup>, ein elektrisch leitfähiges Polymer, auf das Neodym aufgetragen. Das PEDOT selbst wies jedoch ebenfalls eine nur schwache Adhäsion am Neodym auf. Insgesamt wurden drei Neodymproben vollständig mit Kupfer beschichtet, zwei davon mit PEDOT als Zwischenschicht.

Gold bildete ähnlich wie Kupfer durch gepulsten Strom eine Ummantelung der gesamten Oberfläche. Es färbte sich während der Abscheidung schwarz, teilweise mit weißen Stellen. Die Ursache dessen ist unbekannt und wird im Folgenden nicht genauer untersucht.

---

<sup>7</sup>PEDOT = Polyethylendioxythiophen

Das Resultat dieser Arbeit sind vier Neodymproben. Probe „1“ mit einer Kupferschicht, „2“ mit einer Goldschicht, „3“ und „4“ mit Kupfer und einer vorrangegangenen Beschichtung mit PEDOT. Die genauen Gesamtdicken der Ummantelungen können unter Kenntnis der Dicke des Neodyms mit der in Kap. 7.1 beschriebenen Methode gemessen werden<sup>8</sup>. Zuvor wird geprüft, ob die Ummantelungen das Neodym vor der Oxidation schützen.

### **Test der Passivierungseigenschaften**

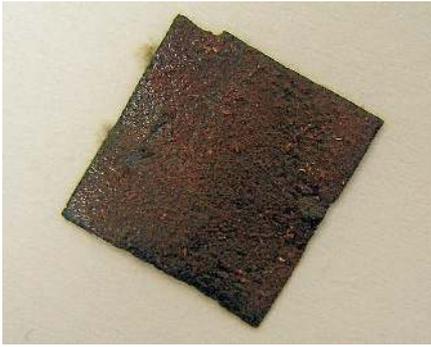
Die Proben wurden ab dem 13. August 2010 Luft ausgesetzt um etwaige Veränderungen zu beobachten. Photos von diesem Tag und vom 16. August 2010 sind in Abb. 7.5 zusammengestellt.

Bei Probe 1 löste sich während dieser drei Tage das Kupfer vom Neodym ab. Probe 2 verfärbte sich nahezu komplett weiß und die Oberfläche weist mehrere kleine brüchige Stellen auf. Probe 3 verfärbte sich ins Schwarze und die Oberfläche ist geplatzt. Bei Probe 4 kam es zu einer grau-weiß gefleckten Färbung, sowie einer Aufrauung und Rissbildung an der Oberfläche.

Es ist deutlich zu sehen, dass alle vier Proben innerhalb dieser drei Tage chemische Reaktionen eingegangen sind, die zu deren Unbrauchbarkeit führten. Die Methode der Galvanotechnischen Abscheidung ist folglich in dieser Form ungeeignet für die Passivierung des Neodyms.

---

<sup>8</sup>Auf eine Durchführung dieser Messung wird verzichtet, da sich diese Methode als ungeeignet herausstellte.



(a) Probe 1, Cu-beschichtet, am 13.08.2010



(b) Probe 1, Cu-beschichtet, am 16.08.2010



(c) Probe 2, Au-beschichtet, am 13.08.2010



(d) Probe 2, Au-beschichtet, am 16.08.2010



(e) Probe 3, Cu+PEDOT-beschichtet, am 13.08.2010



(f) Probe 3, Cu+PEDOT-beschichtet, am 16.08.2010



(g) Probe 4, Cu+PEDOT-beschichtet, am 13.08.2010



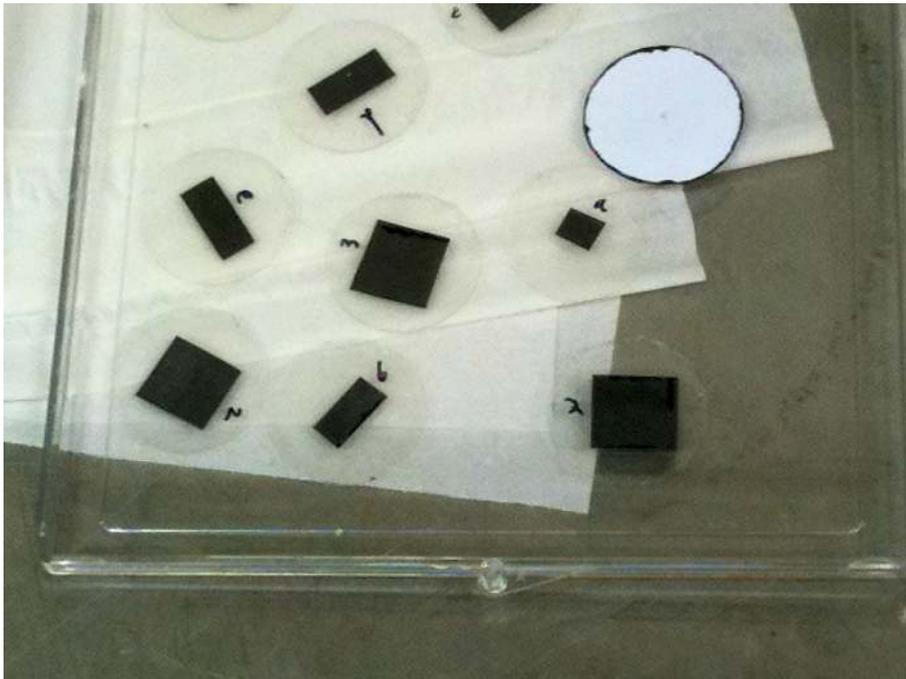
(h) Probe 4, Cu+PEDOT-beschichtet, am 16.08.2010

**Abbildung 7.5: Photos der metallbeschichteten Neodymproben am ersten Tag nach der Entnahme aus der Argonatmosphäre und nach drei Tagen an der Luft**

### 7.2.2 Einlaminiert von Neodym in Polyethylenfolien

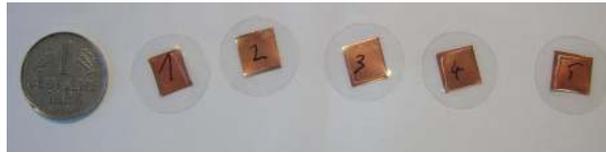
Wie in Kap. 6.4.2 beschrieben ist eine weitere Möglichkeit des Schutzes der Neodymfolie vor Massenverlust durch Oxidation das Einlaminiert in Polyethylenfolie. Es ist jedoch unbekannt, wie sich die PE-Folie in einem Protonenstrahl bezüglich ihrer Schutzzeigenschaften verhält. Um dies zu testen werden fünf Kupferstücke mit den gleichen Abmaßen wie die Nd-Proben auf die gleiche Weise präpariert. Diese werden in einem Vorversuch im Protonenstrahl getestet. Die Verwendung von Kupfer ist dabei wesentlich kostengünstiger und reduziert somit den finanziellen Schaden im Falle einer Beschädigung der Proben. Der Vorversuch wird in Kap. 7.3 beschrieben.

Die Laminierung erfolgt analog der Methode in Kap. 6.4.2. Das Neodym (Folie III) wird der Verpackung entnommen, auf ca.  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  geschnitten und mit einem handelsüblichen Laminiergerät einlaminiert. Die Laminierbögen sind insgesamt  $160 \mu\text{m}$  dick, d. h. pro Seite ist eine  $80 \mu\text{m}$  starke Schutzschicht auf dem Neodym. Anschließend werden die Proben mit einem Durchmesser von  $20 \text{ mm}$  ausgestant<sup>9</sup>. Die fertigen Proben sind in Abb. 7.6 zu sehen. Der Verschnitt der Neodymfolie wird ebenfalls einlaminiert, um ihn gegebenenfalls für Vorversuche nutzen zu können. Die fünf Kupferfolien werden auf die gleiche Weise präpariert. Die fertigen Proben sind in Abb. 7.7 dargestellt.



**Abbildung 7.6: Einlaminierte Neodymproben:** Zu sehen sind die Proben unmittelbar nach der Laminierung. Die größeren, quadratischen, mit arabischen Zahlen nummerierten Stücke sind die eigentlichen Proben. Die kleineren, mit Buchstaben markierten Stücke sind aus dem Verschnitt der Neodymfolie.

<sup>9</sup>Diese Maße sind optimal für die Targethalterung der Experimentieranlage, siehe Kap. 8.1.



**Abbildung 7.7: Einlaminierte Kupferproben:** Die fünf Kupferstücke haben die gleichen Abmaße wie die Neodymproben und sind für Vorversuche gedacht.

### 7.2.3 Ummantelung von Neodym mit Parylen

Während der laufenden Vorversuche mit den einlaminierten Kupferfolien ergab sich die Möglichkeit eine Neodymfolie mit Parylen zu beschichten. Es handelt sich hierbei um einen Kunststoff, der chemisch inert und porenfrei ist und somit ideale Korrosionsschutz Eigenschaften besitzt. Es wird typischerweise mittels CVD<sup>10</sup> aufgetragen. Weitere Informationen sind z. B. in [Mue06] zu finden.

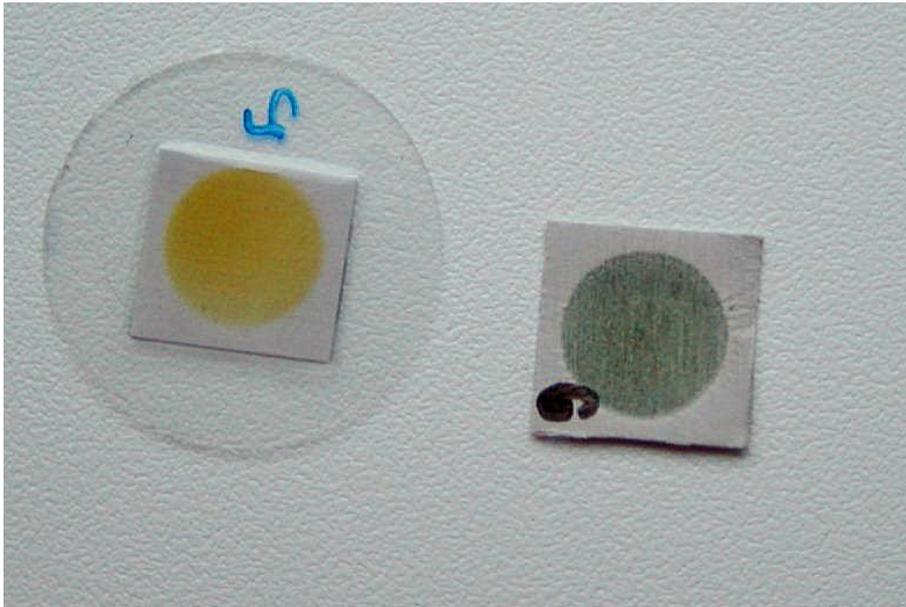
Die Parylenummantelung der Neodymfolie (Folie II) wurde in freundlicher Zusammenarbeit von A. Fauler vom *Freiburger Materialforschungszentrum (FMF)* der *Albert-Ludwigs-Universität Freiburg* veranlasst. Im Folgenden ist eine Zusammenfassung der Herstellung beschrieben. Die Informationen stammen aus mündlichen und schriftlichen Mitteilungen von A. Fauler.

In einer Handschuhbox mit Argonatmosphäre wird das Neodym aus seiner Verpackung entnommen und zurechtgeschnitten. Während des Transports von der Handschuhbox in die CVD Anlage kommt es kurzzeitig, etwa eine Minute, mit Luft in Kontakt. Danach wird unter Vakuum die Beschichtung vollzogen. Dabei liegt die Neodymfolie in einer toasterähnlichen, vertikalen Schublade. An den Auflagepunkten kommt es zu einer weniger starken Schichtdicke. Technisch bedingt sind derzeit an dieser Anlage Dicken von mehr als 3  $\mu\text{m}$  Parylen (pro Seite) nicht möglich. An der Auflagefläche ist die Schichtdicke etwa 1  $\mu\text{m}$ .

Es wurden nach diesem Verfahren zwei Folien Neodym, je  $10 \times 10 \text{ mm}^2$ , und fünf Folien Kupfer der gleichen Dimensionierung hergestellt. Die Kupferfolien dienen wieder Vorversuchen, in denen die Beständigkeit der Beschichtung im Protonenstrahl getestet wird.

In Abb. 7.8 sind die einlaminierte Neodymprobe „2“ und die parylenummantelte Neodymprobe „6“ etwa zwei Monate nach der Bestrahlung (Kap. 8) zu sehen. Probe 2 ist vollständig oxidiert. Die sichtbare Verfärbung ist während der Bestrahlung an der PE-Folie entstanden. Probe 6 ist an der bestrahlten Stelle nicht vollständig oxidiert, die Ränder hingegen sind weiß. Die Probe hat ihre Form beibehalten und ist im Gegensatz zu unbehandelten Proben nicht zu Pulver zerfallen (vgl. Kap. 6.4.1).

<sup>10</sup>CVD = Chemical Vapor Deposition (engl.): chemische Gasphasenabscheidung



**Abbildung 7.8: Neodymproben nach der Bestrahlung:** Zu sehen sind eine einlamierte Neodymprobe („2“) und eine parylenummantelte Neodymprobe („6“) etwa zwei Monate nach der Bestrahlung. Probe 2 ist vollständig oxidiert. Probe 6 ist an der bestrahlten Stelle nicht vollständig oxidiert und sie hat ihre Form beibehalten, siehe Text.

### 7.3 Vorversuche

Vor der Bestrahlung der einlamierten, bzw. parylenbeschichteten Neodymproben werden an den entsprechenden Kupferproben Vorversuche durchgeführt.

Ziel ist es, die Beschädigung der Ummantelung durch den Protonenstrahl zu untersuchen. Damit die Ummantelung das Neodym bestmöglich vor Oxidation schützt, dürfen während der Bestrahlung keine Beschädigungen entstehen, die das Eintreten von Sauerstoff und das Austreten von Neodym zulassen.

#### Einlamierte Kupferfolien

Der Vorversuch an den einlamierten Kupferfolien wurde Anfang September 2010 von J. Štursa an der Anlage durchgeführt, an der auch der Hauptversuch stattfindet (siehe Kap. 8). Es folgt sein Bericht zu den Vorversuchen.

Zunächst wurden zwei der Kupferfolien („1“ und „3“) bestrahlt, jeweils in einem Stapel bestehend aus

- einem Strahlmonitor und einer Vakuumsfolie aus Kupfer (10  $\mu\text{m}$  und 22,7  $\mu\text{m}$ ),
- einer einlamierten Kupferprobe („1“, bzw. „3“),
- einer dicken Silberfolie (250  $\mu\text{m}$ ) als Abschluss, an deren Rückseite sich eine Wasserkühlung befindet.

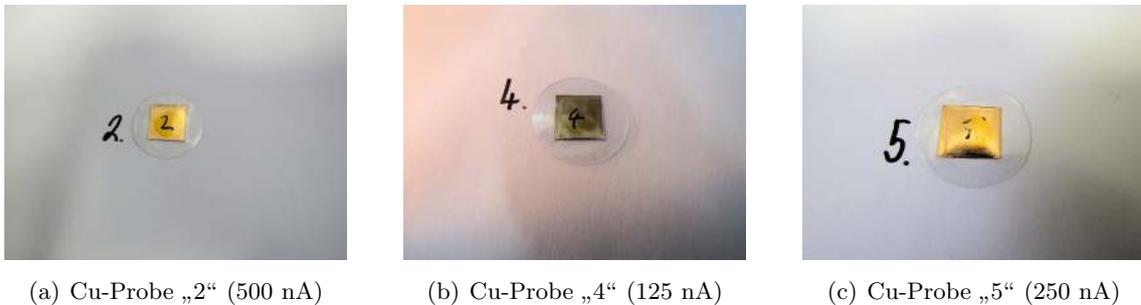
Die eingestellte Energie des Protonenstrahls betrug 28 MeV und der Strahlstrom 500 nA. Das Resultat war, dass beide Vakuumkupferfolien beschädigt wurden, sowie die PE-Ummantelung der Probe „1“ aufplatzte. Der Grund hierfür ist wahrscheinlich der Gaseinschluss zwischen dem PE und dem Kupfer. Durch die Bestrahlung kam es zu einer Entgasung und schließlich zur Beschädigung.

Es wurde anschließend die Strahlmonitorfolie durch eine HAVAR Folie (50  $\mu\text{m}$ ) ersetzt, eine hochfeste, unmagnetische Legierung, die der Abschwächung von Brennpunkten innerhalb des Protonenstrahls dient. Beim ansonsten gleichen Stapelaufbau wie oben wurden diese mit 29 MeV Protonen wie folgt getestet:

1. Probe „2“ bei 500 nA
2. Probe „4“ bei 125 nA
3. Probe „5“ bei 250 nA

Die Resultate waren wesentlich besser. Bei den Proben „4“ und „5“ waren keine Beschädigungen erkennbar. Im ersten Falle von Probe „2“ ist eine optische Einschätzung nicht eindeutig. Eine Beschädigung kann nicht ausgeschlossen werden. Das Resultat des Vorversuches ist, dass die einlamierten Proben bei niedrigen Strahlströmen bis 300 nA einsetzbar sind.

Bilder der Proben „2“, „4“ und „5“ sind in Abb. 7.9 dargestellt.



**Abbildung 7.9: Laminierte Kupferproben nach der Protonenbestrahlung:** Angegeben sind die Probennummern und die verwendeten Strahlströme. Die Proben „4“ und „5“ weisen keine Beschädigung auf. Bei Probe „2“ kann eine Beschädigung nicht ausgeschlossen werden.

### Parylenummantelte Kupferfolien

Unmittelbar vor dem Hauptexperiment dieser Arbeit (Kap. 8) wurden Vortests an den mit Parylen beschichteten Kupferproben durchgeführt. Der Aufbau ist analog zu dem der Vorversuche der einlamierten Kupferproben „2“, „4“ und „5“ (siehe oben). Es werden drei parylenummantelte Proben bestrahlt. Der höchste Strahlstrom wird bei der Probe „3“<sup>11</sup> mit 1000 nA eingestellt. Beschädigungen sind nicht erkennbar, siehe Abb. 7.10. Dies könnte daran liegen, dass sich keine Luft zwischen der Kupfer- und der Parylenschicht befindet.



**Abbildung 7.10: Parylenbeschichtete Kupferprobe nach der Protonenbestrahlung:** Es ist die schwache Verfärbung zu sehen, die der Protonenstrahl an der Parylenschicht hinterlassen hat.

### Das Resultat

Im Vergleich zur Einlaminierung in Polyethylen ist die Ummantelung mit Parylen die geeignetere Methode der Passivierung. Sie schützt die Probe besser vor Oxidation und ist resistenter gegenüber Beschädigungen durch den Protonenstrahl.

<sup>11</sup>Beide Sätze von jeweils fünf PE- und parylenummantelten Kupferproben werden mit den Indizes 1 bis 5 versehen. Verwechslungen sind aufgrund der optischen Unterschiede der Proben und der zeitlichen Trennung beider Vorversuche ausgeschlossen.

# 8 Protonenbestrahlung

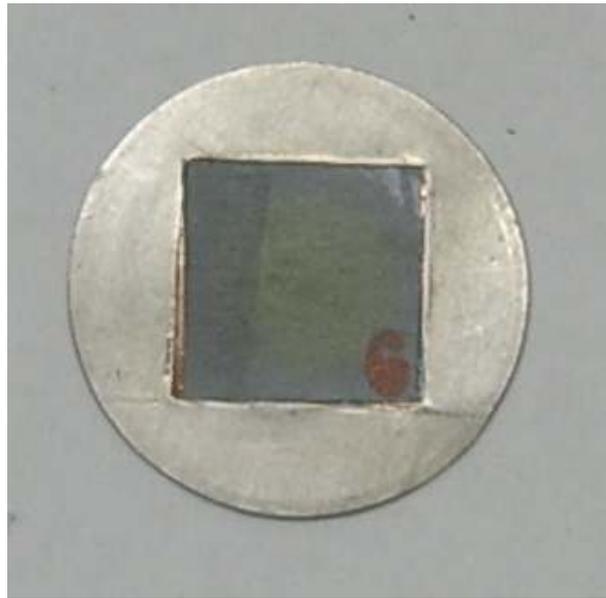
Um die bisher fast nur theoretisch bekannten Wirkungsquerschnitte  $\sigma(^{nat}\text{Nd}(p,X))$  experimentell zu bestimmen, wurden im Rahmen dieser Arbeit im September 2010 Protonenbestrahlungen von Neodymfolien durchgeführt. Das Experiment fand im *Nuclear Physics Institute der Academy of Sciences of the Czech Republic*, kurz ASCR (NPI), in Řež bei Prag statt. Die Anlage verfügt über ein Zyklotron, das unter anderem einen Protonenstrahl mit einer Energie von 5,4...38 MeV bereitstellen kann. Eine ausführliche Beschreibung der Anlage befindet sich in [Dob10].

## 8.1 Targethalterung und Strahleinregeln

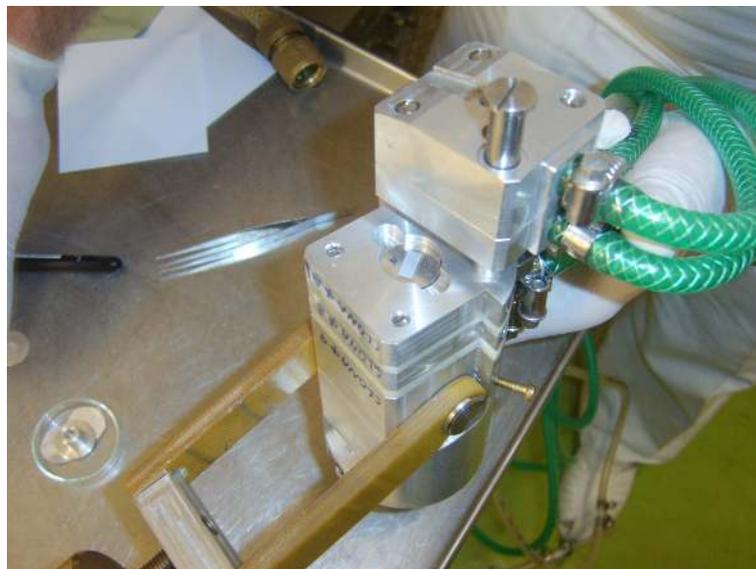
### 8.1.1 Die verwendeten Targets

Für die Bestrahlung wurden sechs Neodymfolien mit Abmaßen von ca.  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  präpariert. Um deren Oxydation an der Luft zu vermeiden, wurden vier davon in PE-Folien eingeschweißt und die anderen beiden mit einer Parylenschicht überzogen. Die genauen Passivierungsmethoden sind in Kap. 7.2 beschrieben.

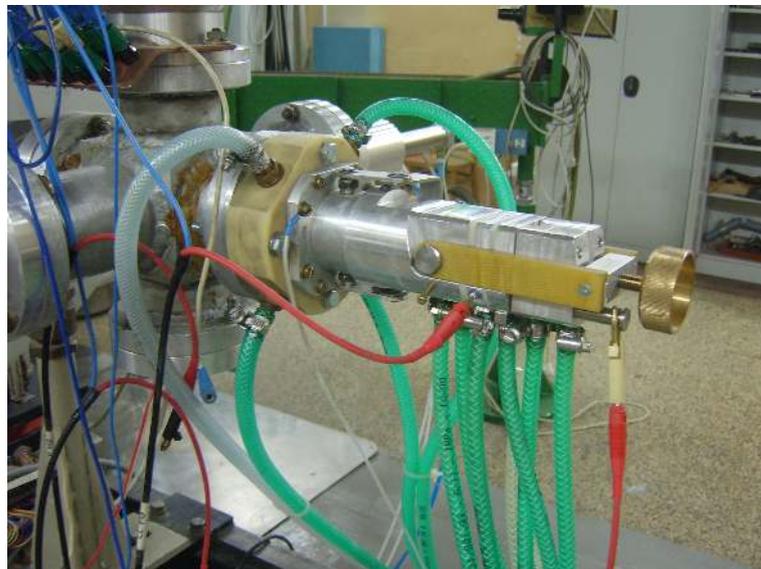
Für die Bestrahlung werden Proben in einer Vorrichtung gehalten, die für kreisförmige Folien mit einem Durchmesser von 20 mm ausgelegt ist. Die PE ummantelten Neodymfolien wurden daher nach der Laminierung mit dieser Geometrie aus dem laminierten Bogen ausgestanzt (Abb. 7.6). Die parylenbeschichteten Neodymfolien wurden in einen entsprechenden Rahmen aus Aluminium gelegt, um sie im Targethalter zu fixieren (Abb. 8.1). In den Abb. 8.2 und 8.3 ist die Halterung im geöffneten, bzw. im montierten Zustand zu sehen.



**Abbildung 8.1: Die Neodymprobe Nd6:** Sie ist  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  groß, mit einer  $3 \mu\text{m}$  dünnen Parylenschicht überzogen und liegt in einem Aluminiumrahmen mit 20 mm Durchmesser. Das Bild wurde nach der Bestrahlung aufgenommen. Deshalb ist eine leichte Verfärbung in der Mitte der Probe zu sehen.



**Abbildung 8.2: Die Targethalterung (offen):** Zu sehen ist die geöffnete Targethalterung, betrachtet von ihrer Rückseite. Mittig ist die zylinderförmige Einbuchtung für die zu bestrahlenden Proben zu sehen. Die Zylinderachse liegt in Strahlrichtung. Rechts im Bild sind Schläuche für die Wasserkühlung. In der Halterung befindet sich die einlamierte Neodymprobe „e“ (vgl. Abb. 7.6), welche ausschließlich für Testzwecke gedacht ist. Direkt unterhalb der Probe sind drei Aluminiumblöcke zu sehen, die als Kollimatoren dienen, siehe Text.



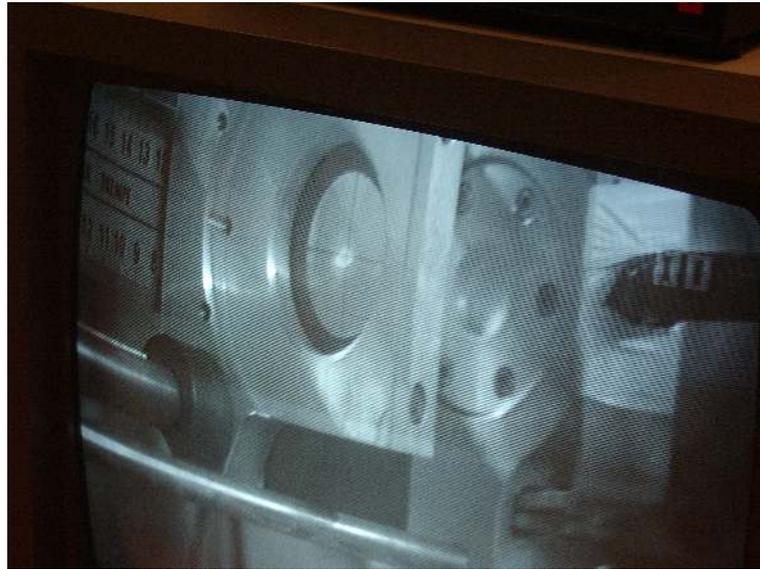
**Abbildung 8.3: Die Targethalterung (montiert):** Zu sehen ist die Halterung fertig montiert am Ende der Extraktionsleitung des Zyklotrons. Der Protonenstrahl trifft von links in Richtung der Zylinderachse auf das Target.

### 8.1.2 Kollimation und Fokussierung des Strahls

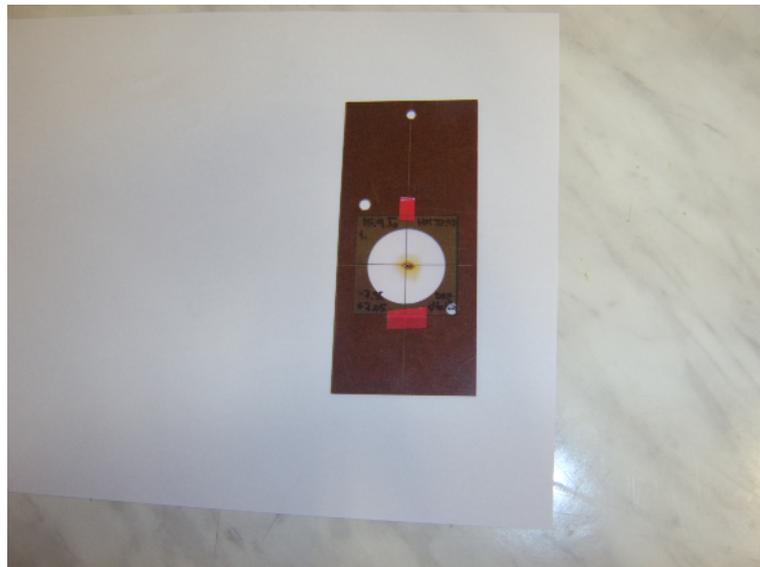
Da die Neodymtargets eine Fläche von  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  besitzen, muss der Protonenstrahl auf eine entsprechend kleine Fläche fokussiert werden. Hierzu wurden zum einen Kollimatoren am Targethalter montiert und zum anderen der Strahl selbst auf eine Fläche von 6...8 mm Durchmesser eingeregelt. Der Fokus darf nicht über die Ränder der Neodymfolie hinausgehen, da zur Monitorierung Kupferfolien mit 20 mm Durchmesser eingesetzt werden. Würde der Strahl nur zum Teil auf das Neodym und in Gänze auf das Kupfer treffen, so wäre eine quantitative Auswertung der Kupferfolien aufgrund der unterschiedlichen Protonenflüsse nicht mehr für die Monitorierung geeignet.

Als Kollimatoren dienen drei Aluminiumblöcke (Abb. 8.2), der erste mit einem Lochdurchmesser von 9 mm, die nachfolgenden beiden jeweils mit einem 8 mm Loch. Sie stellen sicher, dass der Protonenstrahl vollständig auf Neodym trifft.

Die Feineinstellung des Strahls wird im Vorfeld der Bestrahlung mit Hilfe einer Fokussierfolie aus Polyethylen durchgeführt. Diese wird im Strahlgang außerhalb der Extraktionsleitung des Zyklotrons platziert. Nach der Beschleunigung der Protonen auf die gewünschte Extraktionsenergie wird die Fokussierung durch Quadrupolmagnete vorgenommen. Anschließend wird die Extraktionsleitung geöffnet und der Protonenstrahl trifft auf die Fokussierfolie, welche dadurch luminesziert. Dies kann zum einen direkt über einen Bildschirm beobachtet werden (Abb. 8.4) zum anderen brennt sich nach einigen 10 Sekunden ein Fleck in der Folie ein, welcher später bzgl. der Strahlgeometrie ausgewertet wird (Abb. 8.5). Sobald die gewünschte Fokussierung auf 6...8 mm Durchmesser erreicht ist, ist der Protonenstrahl einsatzbereit. Jedoch sei an dieser Stelle erwähnt, dass die Strahlintensität nicht homogen innerhalb des Fokuses ist, was eventuell zu Beschädigungen des Targets führen kann.



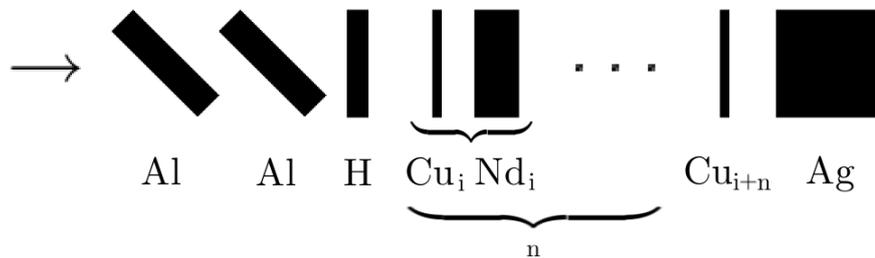
**Abbildung 8.4: Online-Monitor:** Über einen Bildschirm kann der Brennpunkt des Protonenstrahls direkt während des Einregeln beobachtet werden. Mittig ist die durch den Protonenstrahl verursachte Lumineszenz der PE-Fokussierfolie zu sehen, rechts daneben das Ende der Extraktionsleitung des Zyklotrons, aus der der Protonenstrahl tritt.



**Abbildung 8.5: Offline-Monitor:** Zu sehen ist die Fokussierfolie nach dem Einbrennen eines Fleckes durch den Protonenstrahl.

### 8.1.3 Anordnung der Targetfolien

Für die Bestrahlung werden die Neodymproben mit Kupfermonitoren in Stapeln im Targethalter platziert. Eine schematische Darstellung dieses Stapel ist in Abb. 8.6 zu sehen.



**Abbildung 8.6: Schematische Anordnung eines Stapels im Targethalter:** Von Links trifft der Protonenstrahl ein, der zunächst auf zwei Aluminiumfolien im  $45^\circ$ -Winkel trifft (Dicke je  $55\ \mu\text{m}$ , effektive Dicke  $78\ \mu\text{m}$ ), gefolgt von einer HAVAR-Folie „H“ ( $50\ \mu\text{m}$ ). Anschließend werden ein oder mehrere Paare Kupferfolie-Neodymfolie ( $10\ \mu\text{m}$  und  $100\ \mu\text{m}$ ) platziert, bevor mit einer weiteren Kupferfolie ( $10\ \mu\text{m}$ ) und einem Silberstopper ( $250\ \mu\text{m}$ ) abgeschlossen wird, vgl. Tab. 8.1.

Um eventuelle Brennpunkte innerhalb des Strahlfokuses zu vermeiden, bzw. abzuschwächen, werden zunächst zwei Aluminiumfolien (Dicke je  $55\ \mu\text{m}$ ) in einem Winkel von  $45^\circ$  zur Einfallsrichtung des Protonenstrahls und eine HAVAR-Folie ( $50\ \mu\text{m}$ ) platziert. Die effektiven Dicken der Aluminiumfolien betragen durch den eingestellten Winkel  $78\ \mu\text{m}$ . Danach folgt eine Kupferfolie als Strahlmonitor und eine Neodymprobe. Je nach Bedarf und Zielsetzung können nun weitere Kupfer-Neodympaare folgen. Abgeschlossen wird der Stapel mit einer weiteren Kupferfolie und ein bis zwei  $250\ \mu\text{m}$  dicken Silberfolien, in der der Protonenstrahl gänzlich gestoppt wird. Die Rückseite des Silbers wird mit Wasser gekühlt. Die Kupferfolien dienen als Monitor für die Strahlenergie und den -strom. Deren Auswertung wird in Kap. 8.5 beschrieben.

Es wurden vier solcher Stapel bestrahlt, der erste mit einer PE ummantelten Neodymfolie und ohne Kupfermonitor vor dem Silberstopper, der zweite mit den drei verbleibenden, einlamierten Neodymfolien und die letzten beiden Stapel mit jeweils einer parylenummantelte Neodymfolie. Die Indizierung der Folien erfolgte als fortlaufende Durchnummerierung der Kupfer-Neodym Paare. Das heißt, die erste Neodymfolie erhält die Bezeichnung „Nd1“, der vorangegangene Kupfermonitor „Cu1“. Beim zweiten Stapel erhalten die Neodymfolien die Bezeichnungen „Nd2...4“ und die Kupferfolien „Cu2...4“ und die abschließende Kupferfolie wird als „Cu5“ bezeichnet. Konsequenterweise wird das Schema beibehalten, dass Neodymfolie und vorangegangener Kupfermonitor den gleichen Index bekommen. Folglich werden die letzten beiden Neodymproben als „Nd6“ und „Nd8“ bezeichnet.

Die Stapel sollen einen Protonenenergiebereich von ca. 22...28 MeV in den Neodymproben abdecken. Die jeweilige Extraktionsenergie muss dabei höher liegen, da der Strahl bereits in den beiden Aluminium- und der HAVAR-Folie Energie verliert. Mit Hilfe von Simulationen<sup>1</sup> wurden die nötigen Extraktionsenergien des Protonenstrahls, sowie die mittleren Strahlenergien  $\bar{E}$  und Stahlschwächungen  $\Delta E$  und die Wärmeleistung  $\Delta W$  am Ende jeder einzelnen Schicht ermittelt. Die Ergebnisse sind in Tab. 8.1 angegeben.

---

<sup>1</sup>Die Simulationen wurden durchgeführt von J. Štursa

**Tabelle 8.1: Bestrahlungsparameter der Stapel:** Angegeben ist eine Übersicht der im Targethalter platzierten Stapel mit Extraktionsenergie des Protonstrahls, sowie erwarteten mittleren Energien  $\bar{E}$ , Energieverlusten  $\Delta E$  und Wärmeleistungen  $\Delta W$  am Ende der jeweiligen Schicht. Die Daten basieren auf Simulationen von J. Štursa.

Stapel 1	Extraktionsenergie 29,8 MeV										
Schicht	Al	Al	HAVAR	Cu1	Nd1 + PE						Ag
Dicke	78 $\mu\text{m}$	78 $\mu\text{m}$	50 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	108,5 $\mu\text{m}$						250 $\mu\text{m}$
$\bar{E}$ / MeV	29,5	29,19	28,66	28,54	27,81						
$\Delta E$ / MeV	0,3	0,31	0,53	0,12	0,73						
$\Delta W$ / W	0,09	0,093	0,159	0,036	0,219						
Stapel 2	Extraktionsenergie 28,8 MeV										
Schicht	Al	Al	HAVAR	Cu2	Nd2 + PE	Cu3	Nd3 + PE	Cu4	Nd4 + PE	Cu5	Ag
Dicke	78 $\mu\text{m}$	78 $\mu\text{m}$	50 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	108,5 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	108,5 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	108,5 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	250 $\mu\text{m}$
$\bar{E}$ / MeV	28,49	28,17	27,62	27,51	26,75	26,63	25,85	25,73	24,93	24,81	
$\Delta E$ / MeV	0,31	0,32	0,55	0,11	0,76	0,12	0,78	0,12	0,8	0,12	
$\Delta W$ / W	0,093	0,096	0,165	0,033	0,228	0,036	0,234	0,036	0,24	0,036	
Stapel 3	Extraktionsenergie 24,9 MeV										
Schicht	Al	Al	HAVAR	Cu6	Nd6 + Par					Cu7	Ag
Dicke	78 $\mu\text{m}$	78 $\mu\text{m}$	50 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	105,5 $\mu\text{m}$					10,6 $\mu\text{m}$	250 $\mu\text{m}$
$\bar{E}$ / MeV	24,59	24,23	23,61	23,48	22,65					22,51	
$\Delta E$ / MeV	0,345	0,36	0,62	0,13	0,83					0,14	
$\Delta W$ / W	0,207	0,216	0,372	0,078	0,498					0,084	
Stapel 4	Extraktionsenergie 23,4 MeV										
Schicht	Al	Al	HAVAR	Cu8	Nd8 + Par					Cu9	Ag
Dicke	78 $\mu\text{m}$	78 $\mu\text{m}$	50 $\mu\text{m}$	10,6 $\mu\text{m}$	105,5 $\mu\text{m}$					10,6 $\mu\text{m}$	250 $\mu\text{m}$
$\bar{E}$ / MeV	23,05	22,68	22,03	21,89	21,01					20,87	
$\Delta E$ / MeV	0,37	0,37	0,65	0,14	0,88					0,14	
$\Delta W$ / W	0,22	0,22	0,39	0,08	0,53					0,08	

## 8.2 Bestrahlung

Mit den in Kap. 8.1 beschriebenen Strahleinstellungen und Targetaufbau wurden die Neodymproben bestrahlt. Die Vortests mit Kupferfolien (Kap. 7.3) ergaben für die Polyethylenschicht einen maximalen Strahlstrom von 300 nA, andernfalls kommt es zu sichtbaren Beschädigungen an der Schutzschicht. Bei der Parylenbeschichtung konnte der Strom problemlos bis auf 1  $\mu\text{A}$  erhöht werden, ohne sichtlichen Schaden hervorzurufen.

Die Strahlzeiten für die Stapel 1 und 2 werden auf jeweils 60 min (bei 300 nA) festgesetzt. Nach dieser Zeit werden ausreichend hohe Aktivitäten erwartet. Die Stapel 3 und 4 werden 30 min bei 600 nA bestrahlt. In allen vier Fällen ist die Wärmeleistung in den Proben gering ( $\leq 0,5$  W, vgl. Tab. 8.1).

Aus der Kenntnis der Strahlgeometrie und der  $\lambda$ -parameter ergibt sich die Produktionsrate zu

$$R = \frac{m_{ges}}{A \cdot u} \cdot \sigma \cdot \phi \quad (8.1)$$

$$= \frac{r_S^2 \pi d \rho}{A_{Nd} \cdot u} \cdot \sigma \cdot \frac{I}{e} \quad (8.2)$$

Dabei ist  $r_S$  der Strahlradius,  $d$  die Dicke des Targets,  $\rho$  und  $A$  die Dichte und das Atomgewicht des Targetmaterials,  $u$  die atomare Masseneinheit,  $\sigma$  der Wirkungsquerschnitt und  $I/e$  die Anzahl der Elementarladungen, d. h. Protonen, die bei gegebenem Strom  $I$  pro Sekunde auf das Target treffen. Mit den gegebenen Werten  $I = 300$  nA,  $r_S = 8$  mm,  $d = 100$   $\mu\text{m}$ ,  $\rho = 7,00$   $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ,  $A = 144,24$  und unter der Annahme, dass der Wirkungsquerschnitt  $\sigma = 100$  mb ist, beträgt die Produktionsrate  $R = 275$  kBq. Für verschiedene Halbwertszeiten können damit Anfangsaktivitäten nach (4.5) berechnet werden. Eine Abschätzung für vier Promethiumisotope mit sehr kurzer bis sehr langer Lebensdauer und einer Strahlzeit von 60 min ist in Tab. 8.2 zu finden.

**Tabelle 8.2: Erwartete Anfangsaktivitäten:** Angegeben sind die Anfangsaktivitäten  $A_0$  von Promethiumisotopen verschiedener Lebensdauern. Angenommen wird eine Produktionsrate von  $275 \cdot 10^3$   $\text{s}^{-1}$  und eine Strahlzeit von 60 min, siehe Text.

Isotop	$T_{1/2}$	$A_0$ / Bq
$^{141}\text{Pm}$	20 min	$240 \cdot 10^3$
$^{148}\text{Pm}$	5 d	$1,6 \cdot 10^3$
$^{143}\text{Pm}$	265 d	30
$^{146}\text{Pm}$	5,53 a	4

Mit Aktivitäten im kBq-Bereich für die kurzlebigen, bzw. im Bq-Bereich für langlebige Isotope liegen alle erwarteten Aktivitäten im gut messbaren Bereich.

Nach der Bestrahlung muss zunächst die aktivierte Luft in der Zyklotronhalle abklingen, sowie Luft in die Vakuumröhre zwischen Strahlgang und Targethalter gefüllt werden. Erst dann kann die Zyklotronhalle betreten und der Targethalter entfernt und geöffnet werden. Zwischen dem Ende der Bestrahlung und dem Start der Messung vergeht dadurch eine

Zeit von mindestens 20 Minuten. Folglich ist es nicht möglich Nuklide mit Halbwertszeiten von bis zu wenigen Minuten zu detektieren.

Eine Zusammenfassung der Bestrahlungsdaten ist in Tab. 8.3 zu finden.

**Tabelle 8.3: Zusammenfassung der Bestrahlungsdaten:** Angegeben sind das Datum, sowie Start- und Endzeit der Bestrahlung, die resultierende Strahlzeit  $t_{irr}$ , der Strahlstrom  $I$  und die Extraktionsenergie des Strahls  $E_{Ext}$ .

Stapel	Datum	Startzeit	Endzeit	$t_{irr}$ / h	$I$ / nA	$E_{Ext}$ / MeV
1	15.09.10	11:04	12:04	1,0	300	29,8
2	16.09.10	08:37	09:37	1,0	300	28,8
3	16.09.10	11:10	11:40	0,5	600	24,9
4	23.09.10	08:29	08:59	0,5	600	23,4

## 8.3 Datennahme

### Aufnahme der $\gamma$ -Spektren

Nach der Bestrahlung in Řež werden vor Ort  $\gamma$ -Spektren der Neodym- und Kupferfolien aufgenommen. Dies geschieht mit einem Gammaskpektrometer von *Canberra*, Typ GC2019, und dem Programm *Genie<sup>TM</sup> 2000*, welches ebenfalls von *Canberra* ist.

Für jede Nd-Probe werden drei Spektren aufgenommen. Zunächst ein Kurzzeitspektrum, um Nuklide mit kurzen Halbwertszeiten, d. h.  $T_{1/2} = \mathcal{O}$ (einige 10 Minuten), zu detektieren. Ein Beispiel hierfür ist  $^{141}\text{Pm}$  mit  $T_{1/2} = 20$  min. Nach einigen Stunden Abklingzeit wird erneut gemessen, um längerlebige Nuklide zu identifizieren (z. B.  $^{150}\text{Pm}$ ,  $T_{1/2} = 2,68$  h). Nach einigen Tagen wird dann ein letztes Spektrum aufgenommen, um langlebige Nuklide ( $T_{1/2} \geq 5$  d) zu analysieren.

### Reduktion der Totzeit

Kurz nach der Bestrahlung weisen die Neodymproben sehr hohe Aktivitäten auf. Dies führt dazu, dass die Totzeit im Verhältnis zur realen Messzeit in den Prozentbereich ansteigen kann. In jedem Falle muss die Totzeit beim verwendeten Detektor unter 40 % bleiben, da ansonsten der Detektor keine verlässlichen Daten liefert<sup>2</sup>. Um die Zahl der Photonen, die pro Zeit auf den Detektor treffen, zu verringern, wird der Abstand Quelle-Detektor mit einer vorgefertigten Halterung entsprechend groß eingestellt. Der Abstand beträgt 1000 mm, siehe Abb. 8.7. Für die späteren Messungen, bei denen die Aktivität geringer ist, wird dieser Abstand auf 600 mm, bzw. auf 200 mm verringert. Im Folgenden werden die drei Geometrien als „1000mm“, „600mm“ und „200mm“ bezeichnet.

<sup>2</sup>Mündliche Mitteilung von O. Lebeda



**Abbildung 8.7: Der HP-Ge Gammadetektor:** Zu sehen ist die Bleiburg, in der sich der Germaniumdetektor befindet. Darauf platziert sind die verschiedenen Abstandhalter.

### Effizienzkalibrierung

Neben der Energiekalibrierung, also der Energie-Kanal-Beziehung, welche für den genutzten Detektor mit einer Präzision von etwa 1 keV bekannt ist, ist die Kenntnis der Beziehung Zerfallsrate-Zählrate für eine quantitative Analyse der Spektren unabdingbar. Dieser Zusammenhang, das **absolute Vollenergieansprechvermögen**, ist energie- und geometrieabhängig, jedoch unabhängig vom emittierenden Nuklid [Gil96]. Die Kalibrierung des absoluten Vollenergieansprechvermögens, kurz **Effizienzkalibrierung** genannt, wurde von O. Lebeda für die drei genutzten Detektorgeometrien durchgeführt. Die Kalibrierungskurven sind in Abb. 8.8 dargestellt. Durch Anpassen eines Polynoms 5. Grades (8.3) an die Messpunkte werden die Kalibrierungskurven parametrisiert.

$$y = a \cdot x^5 + b \cdot x^4 + c \cdot x^3 + d \cdot x^2 + e \cdot x + f \quad (8.3)$$

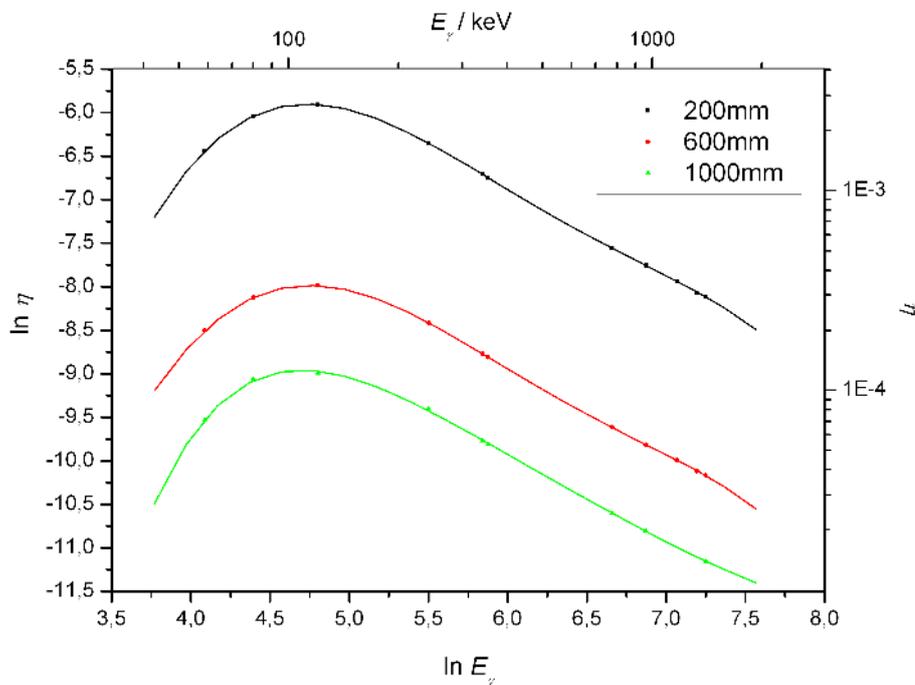
Hier sind  $x = \ln E_\gamma$  der natürliche Logarithmus der Photonenenergie  $E_\gamma$  und  $y = \ln \eta$  der des Vollenergieansprechvermögens  $\eta$ . Die Werte der einzelnen Parameter sind in Tab. 8.4 zu finden. Die Kalibrierkurven sind in Abb. 8.8 dargestellt.

Die Genauigkeit dieser Kalibrierungen liegt bei

$$\frac{\Delta\eta}{\eta} = 3 \text{ \%}.$$

**Tabelle 8.4: Parameter der Effizienzkalibrierung (8.3):** Daten erhalten von O. Lebeda, Emailkorrespondenz.

Geometrie	a	b	c	d	e	f
1000mm	0,01601707	-0,52366862	6,87892333	-45,31991221	148,53727815	-201,35528607
600mm	-0,01574851	0,39501318	-3,64689689	14,37455974	-18,96305078	-14,39686238
200mm	-0,01066818	0,24297257	-1,84402799	3,79409137	11,73744770	-47,52228374



**Abbildung 8.8: Effizienzkalibrierung:** Zu sehen sind die Effizienzkalibrierungskurven für die drei genutzten Geometrien. Aufgetragen ist der natürliche Logarithmus des absoluten Vollenergieansprechvermögens  $\eta$  über dem natürlichen Logarithmus der Energie der Gammastrahlung  $E_\gamma$ . Oben und rechts im Bild sind zur Verdeutlichung logarithmische Skalen für  $E_\gamma$  und  $\eta$  eingefügt. An die abgebildeten Messpunkte wurde das Polynom (8.3) angepasst.

## 8.4 Analyse der Gammaskpektren

### Analysesoftware

Zur Analyse der  $\gamma$ -Spektren in Dresden wurde das frei verfügbare Programm *FitzPeaks* [Fit09] genutzt. Dieses enthält eine vollautomatische Funktion, die Peaks im Spektrum findet, eine ROI festlegt, eine Gaußfunktion an den Peak anpasst und den

Untergrund abzieht. Ein Bildschirmphoto der Bedienoberfläche des Programms ist im Anhang C zu finden. Der interessierende Wert dieser Analyse ist die Nettopeakfläche  $Net$ . Bei *Genie 2000* hingegen muss für jeden Peak manuell die ROI festgelegt werden, was ein erheblicher zeitlicher Mehraufwand ist.

Um die Qualität der automatischen Peakanalyse von *FitzPeaks* zu überprüfen, werden einige ausgewählte Linien aus dem Spektrum „Nd1\_1000mm“ mit beiden Programmen ausgewertet und die Ergebnisse verglichen. Drei Beispiellinien sind in Tab. 8.5 aufgelistet.

**Tabelle 8.5: Vergleich der Peakanalysen der Programme *FitzPeaks* und *Genie 2000*:** Untersucht werden drei Beispiellinien aus dem Spektrum „Nd1\_1000mm“. „Spitze Kanal“ bezeichnet die Lage des Scheitelpunktes im Kanal,  $E_\gamma$  die zugehörige Energie,  $Net$  die Nettopeakflächen der entsprechenden Linien und  $\sigma_{Net}$  ist der jeweilige  $1\sigma$  Fehler.

<i>FitzPeaks</i>				<i>Genie 2000</i>			
Spitze Kanal	$E_\gamma$ keV	$Net$	$\sigma_{Net}$ %	Spitze Kanal	$E_\gamma$ keV	$Net$	$\sigma_{Net}$ %
672,9	194,2	74358	1,4	481,9	193,6	75134	0,9
3081,5	886,3	23532	1,4	2890,5	886,4	23520	1,1
4255,0	1223,4	32120	1,0	4064,0	1223,9	32139	0,8

Zu erkennen ist, dass die Nettopeakflächen innerhalb ihrer  $1\sigma$  Fehlergrenzen übereinstimmen. In Konsequenz kann *FitzPeaks* zur Datenanalyse herangezogen werden.

### Berechnungsgrundlage

Für die Ermittlung der Wirkungsquerschnitte ist die Kenntnis der Anfangsaktivität des identifizierten Isotops nötig. Diese berechnet sich nach (2.8), wobei sich  $N_0$  aus der Nettopeakfläche  $Net$  des produzierten Nuklids ergibt:

$$Net = N_0 \cdot \varepsilon \cdot \eta \cdot f_c \cdot f_m \cdot f_t \cdot k \quad (8.4)$$

mit

$$f_c = e^{(-\lambda \cdot t_c)} \quad (8.5a)$$

$$f_m = (1 - e^{(-\lambda \cdot t_{real})}) \quad (8.5b)$$

$$f_t = \frac{t_{live}}{t_{real}} \quad (8.5c)$$

$$k = (1 - e^{(-\mu \cdot d)}) / \mu d, \quad (8.5d)$$

wobei  $\varepsilon$  die relative Intensität der Gammalinie und  $\eta$  das absolute Vollenergieansprechvermögen für die entsprechende Detektorgeometrie ist. Durch den Faktor  $f_c$  wird das Abklingen der Aktivität zwischen dem Ende der Bestrahlung und dem Beginn der Messung berücksichtigt, sowie durch  $f_m$  das Abklingen während der Messung selbst.

$t_c$  ist hierbei die Abklingzeit zwischen dem Ende der Bestrahlung und dem Beginn der Messung und  $t_{real}$  die reale Messzeit.  $f_t$  ist die Totzeitkorrektur, die  $t_{live}$ , die aktive Messzeit des Detektors, enthält. Da das Neodym mit 100  $\mu\text{m}$  verhältnismäßig dick ist, ist bei diesem Experiment vor allem im Falle kleiner Photonenenergien ( $E_\gamma < 300 \text{ keV}$ ) die Korrektur der Selbstabschirmung  $k$  nötig. In  $k$  fließen  $\mu$ , die Schwächungslänge von Photonen im Quellmaterial, und  $d$ , die Dicke des Quellmaterials, ein. Nach der in Kap. 7.1 beschriebenen Berechnung ergibt sich für 300 keV Photonen nach Durchlaufen einer 100  $\mu\text{m}$  Neodymschicht ein Intensitätsabfall auf 98,487 %. Bei höheren Photonenenergien wird diese geringer und kann vernachlässigt werden. Weiterführende Informationen zu (8.4)...(8.5d) sind in [Rei03, Gil96] zu finden.

Bei Kenntnis der Anfangsaktivität und der Strahlparameter berechnet sich der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  aus

$$\sigma = A_0 \cdot \frac{A \cdot z \cdot e}{d \cdot \rho \cdot N_A \cdot I \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_{irr}})}. \quad (8.6)$$

Hierbei ist  $A$  die Atommasse des Targetelements,  $z$  die Ladungszahl des Projektils (für Protonen ist  $z = 1$ ),  $e$  die Elementarladung ( $1,602177 \cdot 10^{-19} \text{ C}$ ),  $d$  die Dicke der Targetfolie,  $\rho$  die Dichte des Targetmaterials,  $N_A$  die Avogadrokonstante ( $6,022137 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ ),  $I$  der Strom des Protonenstrahls und  $t_{irr}$  die Bestrahlungsdauer [Leb10].

Mit diesen Vorkenntnissen wird nun in Kap. 8.5 die Auswertung der Spektren der Kupfermonitore bzgl. der Strahlenergie und des -stromes sowie in Kap. 8.6 die der Neodymfolien bzgl. der Produktionsquerschnitte beschrieben.

## 8.5 Auswertung der Kupfermonitore

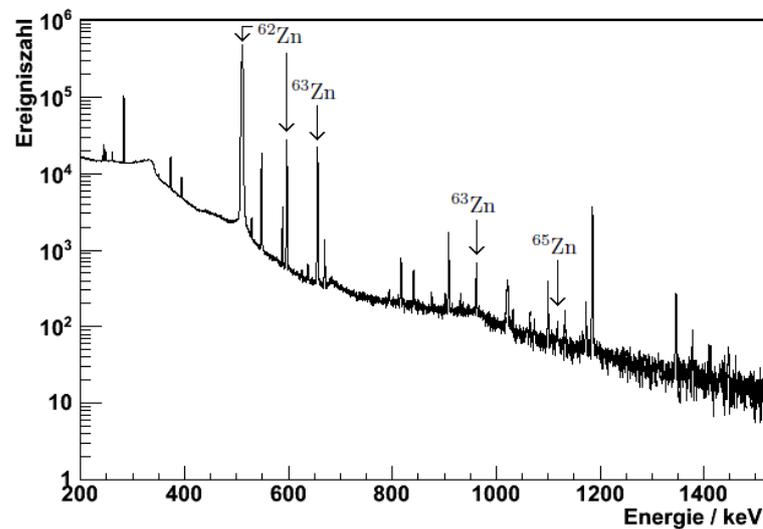
Die Kupfermonitore können sowohl zur Ermittlung der Energie des Protonenstrahls, als auch zur Bestimmung seines Stromes genutzt werden. In diesem Kapitel wird zunächst die Methode genauer beschrieben und anschließend bei den bestrahlten Kupferfolien angewandt.

### Aktivierung von Kupfer

Bei der Bestrahlung von Kupfer mit Protonen entstehen das kurzlebige  $^{63}\text{Zn}$  ( $T_{1/2} = 38,1 \text{ min}$ ), das längerlebige  $^{62}\text{Zn}$  ( $T_{1/2} = 9,187 \text{ h}$ ) und das langlebige  $^{65}\text{Zn}$  ( $T_{1/2} = 244,1 \text{ d}$ ). Einen Überblick über spezifische Gammastrahlung der Zn-Isotope gibt Tab. 8.6. Ein Beispielspektrum der Kupferfolie Cu1 ist in Abb. 8.9 zu finden.

**Tabelle 8.6: Übersicht zu den Zn-Isotopen, die bei der Bestrahlung von  $^{nat}\text{Cu}$  entstehen:** Angegeben sind die jeweilige Halbwertszeit  $T_{1/2}$ , die Energien der spezifischen Gammastrahlung  $E_\gamma$  und die Emissionswahrscheinlichkeiten der Gammastrahlung  $\varepsilon$ . Die Daten sind aus [Leb10] entnommen.

Isotop	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ keV	$\varepsilon$ %
$^{62}\text{Zn}$	9,187 h	548,35	15,2
		596,56	25,7
$^{63}\text{Zn}$	38,1 min	669,62	8,4
		962,06	6,6
$^{65}\text{Zn}$	244,15 d	1115,55	50,75



**Abbildung 8.9: Gammaskpektrum der Kupferfolie Cu1:** Das Spektrum wurde ca. 4 h nach der Bestrahlung aufgenommen. Zu sehen sind die charakteristischen Linien von  $^{62}\text{Zn}$ ,  $^{63}\text{Zn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ .

### Ermittlung der Energie und des Stromes

Werden aus einem Target während einer Bestrahlung zwei verschiedene Nuklide gebildet („a“ und „b“), so kann aus (8.6) das Verhältnis deren Wirkungsquerschnitte gebildet und gekürzt werden zu

$$\frac{\sigma_a}{\sigma_b} = \frac{A_0(a)}{A_0(b)} \cdot \frac{1 - e^{(-\lambda_b \cdot t_{irr})}}{1 - e^{(-\lambda_a \cdot t_{irr})}}. \quad (8.7)$$

Die Aktivitäten  $A_0$  der aus Kupfer produzierten Zinkisotope werden aus den gemessenen Nettopeakflächen mittels (8.4) und (2.8) berechnet. Die Zerfallskonstanten  $\lambda$  und die Strahlzeit  $t_{irr}$  sind bekannt. Das gemessene Verhältnis der Produktionsquerschnitte wird mit Referenzwerten aus [IAE07], deren Energieabhängigkeiten sehr gut bekannt sind, verglichen (vgl. Abb. 8.10). Daraus ergibt sich unmittelbar die Energie der Protonen in dem Kupfermonitor.

Nach der Ermittlung der Energie wird durch anwenden von (8.6) auf eines der Zn-Isotope der Strom  $I$  berechnet.

### Analyse des aktivierten Kupfers

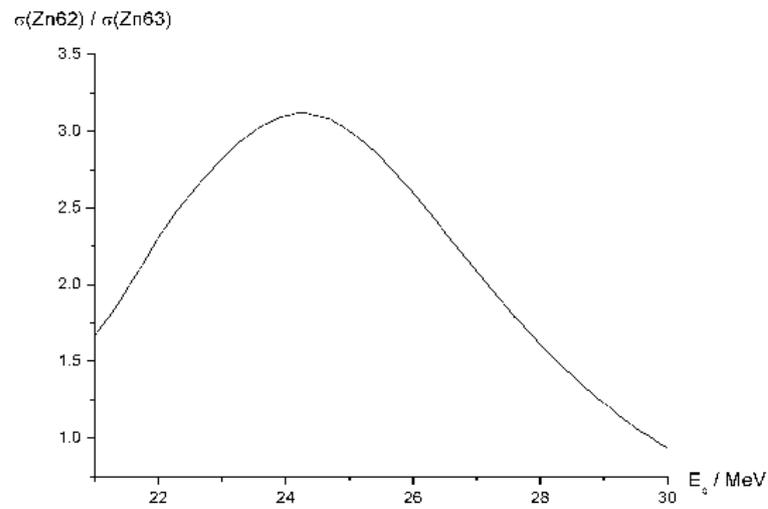
Für die Ermittlung der Energie aus aktivierten Kupfermonitoren werden, wie bei Protonenexperimenten üblich, die spezifischen Aktivitäten der langlebigen Isotope  $^{62}\text{Zn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  verwendet [Leb10]. Dadurch ist keine Aufnahme von Kurzzeitspektren der Kupferfolien nötig und der Detektor kann für die Kurzzeitspektrometrie der Neodymproben genutzt werden.

Bis Ende November 2010 ist die Langzeitspektrometrie aller Kupferfolien nicht abgeschlossen worden. Die genauen Strahlenergien konnten deshalb nicht berechnet werden. In einigen der aufgenommenen Kupferspektren konnten zwar die Linien des kurzlebigen  $^{63}\text{Zn}$  identifiziert werden, jedoch nicht in allen. Alle in dieser Arbeit angegebenen Messdaten der Protonenbestrahlung von Neodym sind deshalb vorläufige Ergebnisse. Es werden die in den Simulationen (Tab. 8.1) ermittelten Energien genutzt. Als Energieungenauigkeit wird  $\Delta E = 0,2 \text{ MeV}$  angenommen. Dies sind typische Abweichungen zwischen experimentellen und simulierten Daten<sup>3</sup>.

Für die Spektren, in denen  $^{63}\text{Zn}$  identifiziert wurde, werden die Energien und die daraus resultierenden Strahlströme nach der oben beschriebenen Methode berechnet. Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{62}\text{Zn}$  und  $^{63}\text{Zn}$  ist in Abb. 8.10 dargestellt. Doppeldeutigkeiten bei der Ermittlung der Energie, die nahe des Scheitelpunktes auftreten können, werden ausgeschlossen indem berücksichtigt wird, dass bei jedem Stapel die Energiedifferenz zwischen zwei Kupferfolien etwa  $0,8 \text{ MeV}$  beträgt und die Folie, die sich weiter vorn im Strahlengang befindet (Abb. 8.6), von höherenergetischen Protonen aktiviert wird. Die Ergebnisse einschließlich der Werte aus den Simulationen sind in Tab. 8.7 zusammengefasst.

---

<sup>3</sup>Mündliche Mitteilung von J. Štursa



**Abbildung 8.10: Referenzdaten für die Kupferaktivierung:** Zu sehen ist das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{62}\text{Zn}$  und  $^{63}\text{Zn}$  aus  $^{nat}\text{Cu}$  [IAE07]. Die Werte dienen als Vergleichswert zur Ermittlung der Protonenenergie.

**Tabelle 8.7: Zusammenstellung theoretischer und experimenteller Werte für die Energie und den Strom des Protonenstrahls:** Angegeben sind für die jeweiligen Kupfermonitore die Energie  $E_{th}$  aus den Simulationen (Tab. 8.1), die Strahlströme  $I_{th}$  aus Tab. 8.3, sowie die zugehörigen experimentellen Werte (soweit vorhanden, siehe Text).

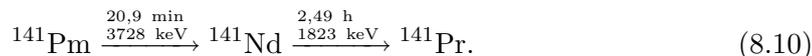
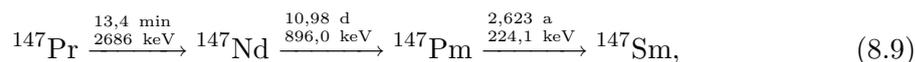
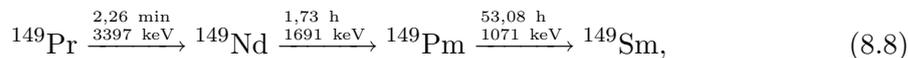
<i>Folie</i>	$E_{th}$ MeV	$E_{exp}$ MeV	$I_{th}$ nA	$I_{exp}$ nA
Cu1	28.60	29.8	300	295.78
Cu2	27.56	28.8	300	328.12
Cu3	26.69	26.8	300	303.64
Cu4	25.79		300	
Cu5	24.87		300	
Cu6	23.55	22.0	600	631.89
Cu7	22.51		600	
Cu8	21.96	21.63	600	586.39
Cu9	20.94	20.88	600	563.4

## 8.6 Auswertung der Neodymproben

### Identifikation der entstandenen Nuklide

Für die Analyse der Neodymspektren werden, wie in Kap. 8.4 beschrieben, zunächst die Peaks der aufgenommenen Spektren bezüglich ihrer energetischen Lage und der Nettopeakfläche analysiert. Die Gammalinien werden bezüglich ihrer Energie mit den Linien verglichen, die charakteristisch für den Zerfall bestimmter Nuklide sind. Es gibt teilweise Überlappungen zwischen den Linien verschiedener Nuklide, was in der quantitativen Analyse berücksichtigt werden muss. Andere Nuklide emittieren beim Zerfall (fast) keine Gammastrahlung, wie zum Beispiel  $^{147}\text{Pm}$  ( $T_{1/2} = 2,623$  a,  $Q = 224,1$  keV), welches nur zu 0,0028 % Gammastrahlung mit  $E_\gamma = 121,22$  keV emittiert. Das ist zu gering für einen Nachweis mittels Gammaskopie.

Auch gibt es ganze Produktionsketten wie sie in Kap. 4.4.2 bereits für Reihen mit langlebigen Nukliden ( $T_{1/2} > 20$  d) genannt wurden. Bei diesem Experiment sind folgende Zerfallsketten anzufinden:



Im Folgenden wird erläutert, welche Nuklide analysiert werden.

### Die zu analysierenden Nuklide

Der Hauptaugenmerk dieser Arbeit liegt auf der Produktion von Promethiumisotopen. Es sind die einzigen langlebigen Kerne, die ausschließlich durch Protonen direkt aus Neodym gebildet werden können. Alle Neodym-, Praseodym- und Cerisotope können prinzipiell auch durch Neutronenbestrahlung entstehen. Im Bezug auf die kosmische Aktivierung von Neodym wird die Protonenaktivierung nur eine untergeordnete Rolle spielen, wenn zeitgleich eine Neutronenaktivierung stattfindet, da der Neutronenfluss etwa 20 mal höher ist und Neutronen tiefer in Materie eindringen (Vgl. Kap. 4.3). Zwar ist eine quantitative Analyse der anderen, identifizierten Nuklide ebenfalls wünschenswert, jedoch würde sie den zeitlichen Rahmen dieser Arbeit weit überschreiten und wird deshalb Bestandteil nachfolgender Studien sein.

Von den produzierten Promethiumisotopen sind nicht alle quantitativ analysierbar.  $^{142}\text{Pm}$  ist mit  $T_{1/2} = 40,5$  s zu kurzlebig und zerfällt in das stabile  $^{142}\text{Nd}$ .  $^{145}\text{Pm}$  ist langlebig ( $T_{1/2} = 17,7$  a) und emittiert nur niederenergetische Photonen mit geringen Intensitäten ( $E_\gamma = 72,5$  keV,  $\varepsilon = 1,2$  %). Gleiches gilt für  $^{147}\text{Pm}$  (siehe oben).  $^{149}\text{Pm}$  ist zwar identifiziert worden, jedoch wird es durch die Zerfallskette (8.8) produziert, dessen erstes Glied  $^{149}\text{Pr}$  nicht analysierbar ist, da es zu kurzlebig ist ( $T_{1/2} = 2,26$  min).

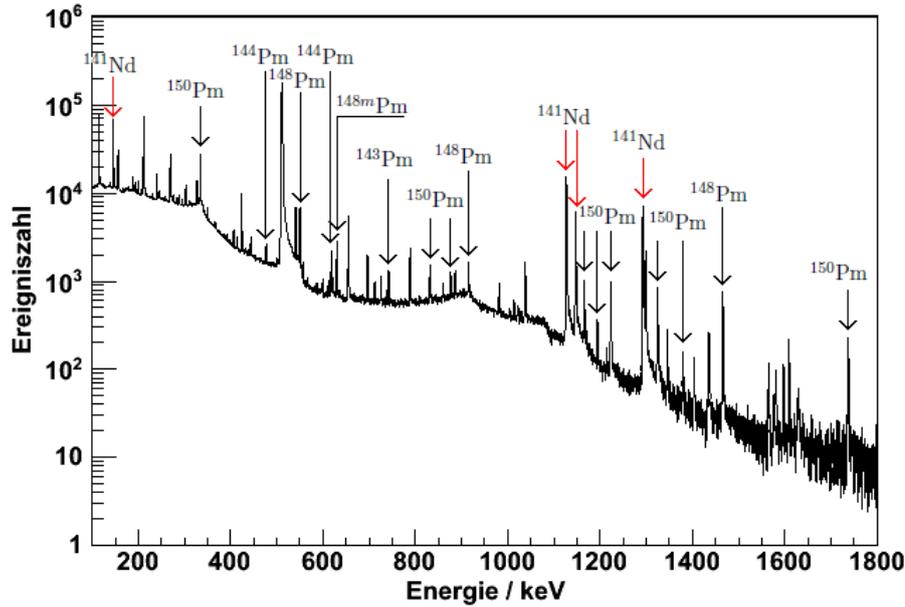
Die Analyse beschränkt sich folglich auf die in Tab. 8.8 zusammengefassten Isotope. Die angegebene spezifische Gammastrahlung tritt mit hinreichend großer Intensität auf und überlagert sich in den Spektren nicht mit der Gammastrahlung anderer Nuklide. Lediglich die Photonen mit  $E_\gamma = 741,98$  keV von  $^{143}\text{Pm}$  werden von den Photonen einiger kurzlebiger Nuklide,  $^{150}\text{Pm}$  ( $T_{1/2} = 2,67$  h),  $^{145}\text{Pr}$  ( $T_{1/2} = 5,98$  h) und  $^{146}\text{Pr}$  ( $T_{1/2} = 24,15$  min), überlagert.  $^{143}\text{Pm}$  ist dadurch nur in den Langzeitspektren ( $t_c > 1$  d) eindeutig identifizierbar.

**Tabelle 8.8: Liste der analysierten Promethiumisotope:** Die Photonen mit der angegebenen Energie wurden identifiziert und überlagern sich nicht mit den Gammas anderer produzierter Nuklide. Die Werte stammen aus [Chu99].

<i>Isotop</i>	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ / keV	$\varepsilon$ / %
$^{141}\text{Pm}$	$20,90 \pm 0,05$ min	$886,22 \pm 0,05$	$2,44 \pm 0,12$
$^{143}\text{Pm}$	$265 \pm 7$ d	$741,98 \pm 0,04$	39
$^{144}\text{Pm}$	$363 \pm 14$ d	$618,01 \pm 0,03$	$98,6 \pm 1,0$
$^{146}\text{Pm}$	$5,53 \pm 0,50$ a	$453,88 \pm 0,06$	$65 \pm 2$
$^{148}\text{Pm}$	$5,37 \pm 0,09$ d	$1465,12 \pm 0,03$	22
$^{148m}\text{Pm}$	$41,29 \pm 0,11$ d	$725,67 \pm 0,09$	$32,7 \pm 0,3$
$^{150}\text{Pm}$	$2,68 \pm 0,02$ h	$333,97 \pm 0,12$	68

### Analyse

In Abb. 8.11 ist als Beispiel das Spektrum „Nd6\_200mm.1“ zu sehen. Es wurde 3 Stunden und 5 Minuten nach der Bestrahlung aufgenommen. Die wichtigsten spezifischen Gammalinien sind markiert und in der Regel in mehr als einem der Spektren zu finden. Für die Analyse wird das Spektrum verwendet, welches die jeweils geringste statistische Unsicherheit aufweist.



**Abbildung 8.11: Spektrum der Neodymfolie Nd6:** Zu sehen ist das Gammaskpektrum „Nd6.200mm.1“, welches nach einer Abklingzeit von etwa 3 h aufgenommen wurde. Markiert sind spezifische Gammalinien der Nuklide  $^{141}\text{Pm}$ ,  $^{144}\text{Pm}$ ,  $^{148}\text{Pm}$ ,  $^{150}\text{Pm}$  und  $^{141}\text{Nd}$ . Die übrigen markanten Linien gehören zu Neodym- und Praseodymisotopen, die nicht in dieser Arbeit analysiert werden.

### Fehlerrechnung

Die fehlerbehafteten Größen bei der Berechnung des Wirkungsquerschnittes sind die Nettopeakfläche  $Net$ , die relative Emissionswahrscheinlichkeit der  $\gamma$ -Strahlung  $\varepsilon$ , die Effizienz des Detektors  $\eta$ , die Dicke der Neodymfolie  $d$ , der Strahlstrom  $I$  und die Halbwertszeit  $T_{1/2}$ . Der statistische Fehler ergibt sich aus der Nettopeakfläche

$$\frac{\Delta\sigma_{stat}}{\sigma} = \frac{\Delta Net}{Net}. \quad (8.11)$$

Der systematische Fehler wird für diese vorläufige Analyse in vereinfachter Weise berechnet. Es wird die Quadratsumme der relativen Fehler der einzelnen Größen gebildet

$$\frac{\Delta\sigma_{syst}}{\sigma} = \sqrt{\left(\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\eta}{\eta}\right)^2 + \left(\frac{\Delta d}{d}\right)^2 + \left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\Delta T_{1/2}}{T_{1/2}}\right)^2}. \quad (8.12)$$

Eine Zusammenfassung der Werte dieser Fehlergrößen ist im Anhang D zu finden. Mit  $\Delta\eta/\eta = 3\%$  liefert die Quantennachweiswahrscheinlichkeit des Detektors den größten Beitrag zum systematischen Fehler.

Der Beitrag der Halbwertszeit zum Gesamtfehler von  $\sigma$  wurde hierbei abgeschätzt. Der exakte Beitrag ergibt sich aus der Ableitung von (8.6) nach  $T_{1/2}$  [Cow98]:

$$\Delta\sigma_{(T_{1/2})} = \frac{\partial\sigma}{\partial T_{1/2}} \cdot \Delta T_{1/2}, \quad (8.13)$$

$$\frac{\Delta\sigma_{(T_{1/2})}}{\sigma} = \lambda \cdot t_{irr} \cdot \frac{\Delta T_{1/2}}{T_{1/2}}. \quad (8.14)$$

Der Faktor  $\lambda \cdot t_{irr}$  ( $t_{irr} = 30 \dots 60$  min) ist für kurze Halbwertszeiten  $T_{1/2} = \mathcal{O}(60$  min) etwa 1 und kann vernachlässigt werden. Für längere Halbwertszeiten wird der Faktor kleiner als 1 und das Vernachlässigen führt zu einer Überschätzung des Fehlers.

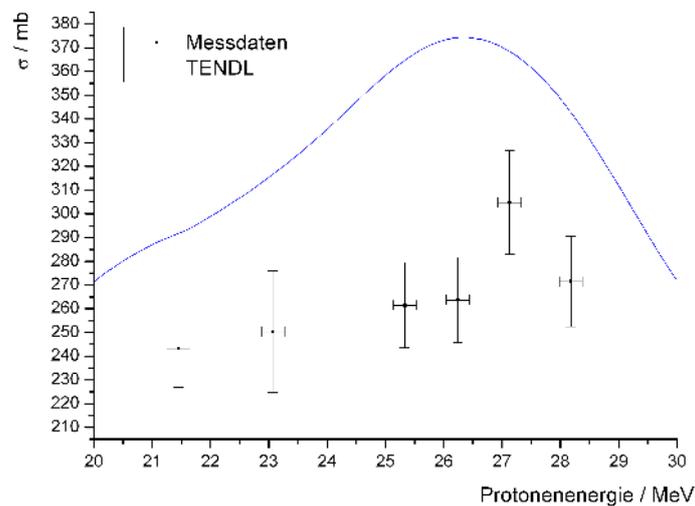
Der Gesamtfehler des Wirkungsquerschnitts ergibt sich aus der Quadratsumme des statistischen und des systematischen Fehlers

$$\Delta\sigma = \sqrt{(\Delta\sigma_{stat})^2 + (\Delta\sigma_{syst})^2}. \quad (8.15)$$

### Zusammenstellung der Ergebnisse

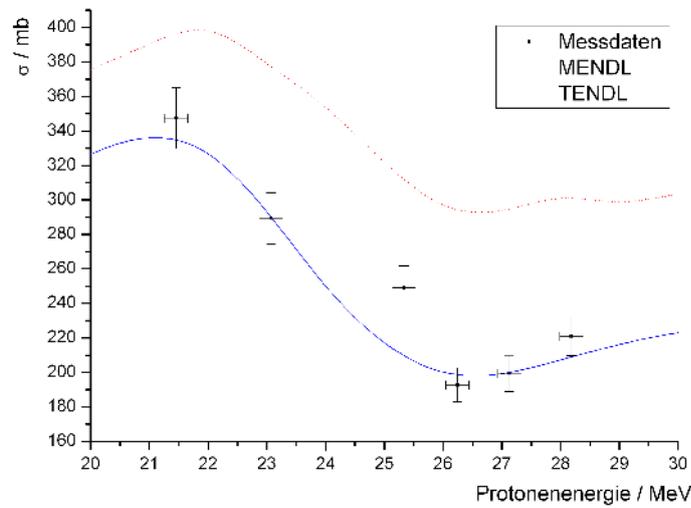
Die Abb. 8.12 bis 8.18 zeigen die gemessenen Wirkungsquerschnitte für die Produktion von Promethiumisotopen aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Zum Vergleich sind die theoretischen Werte als Funktion der Energie  $E_P$  eingezeichnet. Die Messdaten sowie die theoretischen Werte sind im Anhang E in Tab. E.1 tabelliert zu finden.

Im Juni 2010 wurde eine neue Version von *Janis* veröffentlicht [NEA10]. In diese Version ist die Datenbank TENDL implementiert, welche unter anderem theoretische Wirkungsquerschnitte für die Protonenaktivierung von Neodymisotopen enthält. Die Daten sind aktueller als die aus MENDL<sup>4</sup>. Es werden für den Vergleich von theoretischen und experimentellen Daten für alle betrachteten Reaktionen die TENDL-Daten genutzt. Bei den langlebigen Promethiumisotopen werden zusätzlich die bisher genutzten MENDL-Daten angegeben.

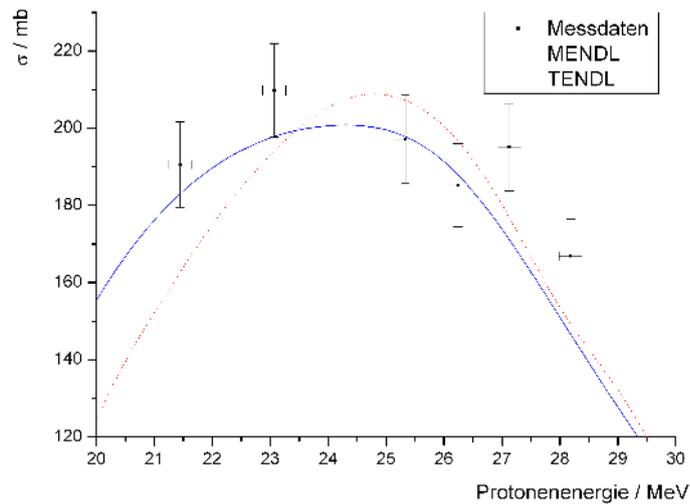


**Abbildung 8.12:**  $^{141}\text{Pm}$  Produktion: Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{141}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurve zeigt die theoretisch erwarteten Werte aus der Datenbank TENDL.

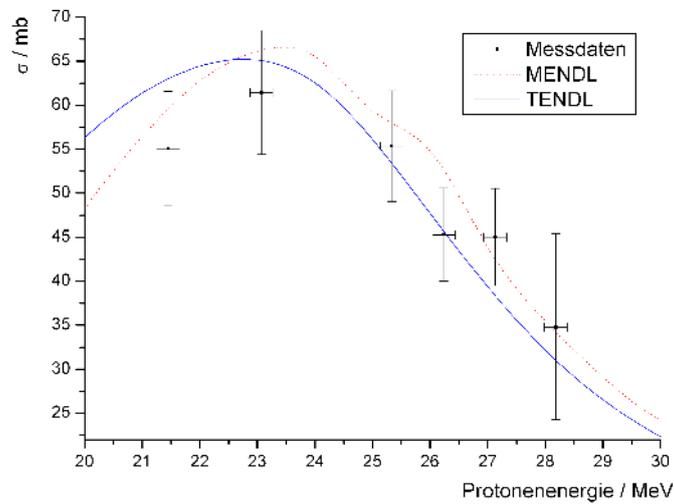
<sup>4</sup>Schriftliche Mitteilung von E. Dupont



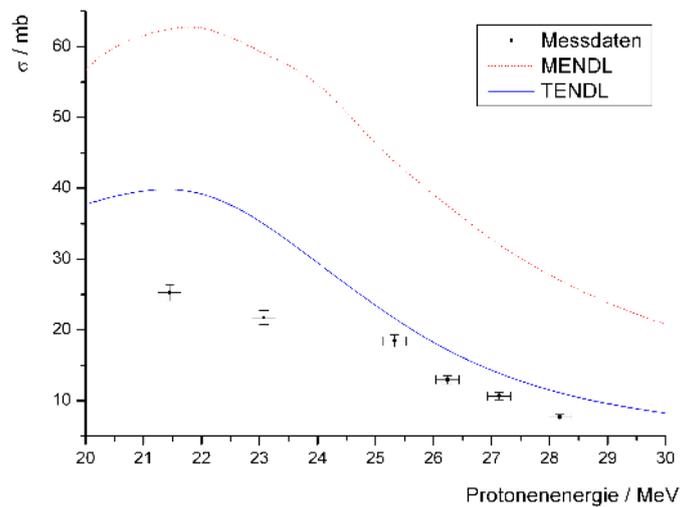
**Abbildung 8.13:  $^{143}\text{Pm}$  Produktion:** Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{143}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurven zeigen die theoretisch erwarteten Werte aus den Datenbanken TENDL und MENDL.



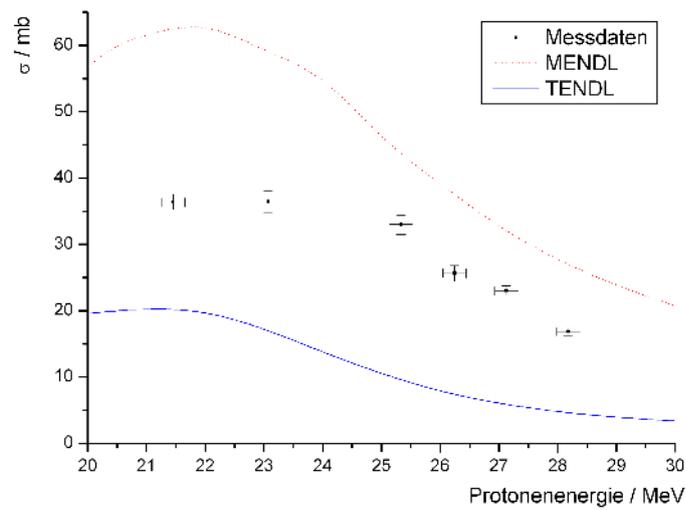
**Abbildung 8.14:  $^{144}\text{Pm}$  Produktion:** Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{144}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurven zeigen die theoretisch erwarteten Werte aus den Datenbanken TENDL und MENDL.



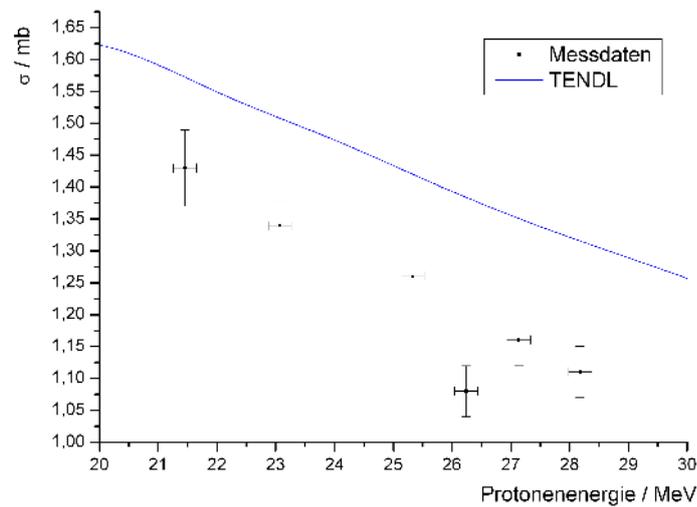
**Abbildung 8.15:  $^{146}\text{Pm}$  Produktion:** Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{146}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurven zeigen die theoretisch erwarteten Werte aus den Datenbanken TENDL und MENDL.



**Abbildung 8.16:  $^{148}\text{Pm}$  Produktion:** Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{148}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurven zeigen die theoretisch erwarteten Werte aus den Datenbanken TENDL und MENDL.



**Abbildung 8.17:**  $^{148m}\text{Pm}$  Produktion: Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{148m}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurven zeigen die theoretisch erwarteten Werte aus den Datenbanken TENDL und MENDL.



**Abbildung 8.18:**  $^{150}\text{Pm}$  Produktion: Abgebildet sind die gemessenen Daten der Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{150}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Die Kurve zeigt die theoretisch erwarteten Werte aus der Datenbank TENDL.

## 8.7 Schlussfolgerung und Ausblick

Für die langlebigen Promethiumisotope  $^{143}\text{Pm}$  (Abb. 8.13),  $^{144}\text{Pm}$  (Abb. 8.14) und  $^{146}\text{Pm}$  (Abb. 8.15) stimmen die Messdaten innerhalb ihrer Fehlergrenzen mit den theoretischen Werten aus TENDL überein. Die MENDL-Daten liegen in der Regel höher als die aus TENDL und weisen vor allem für  $^{143}\text{Pm}$  deutliche Abweichungen von den Messdaten auf.

Bei den kurzlebigen Isotopen  $^{141}\text{Pm}$  (Abb. 8.12) und  $^{150}\text{Pm}$  (Abb. 8.18) sind die Messdaten um 15...20 % kleiner als die TENDL Daten. Die experimentellen und theoretischen Kurven zeigen einen ähnlichen Verlauf mit der Energie und weichen nur um einen konstanten Faktor ab.

$^{148m}\text{Pm}$  (Abb. 8.17) und  $^{148}\text{Pm}$  (Abb. 8.16) weichen jeweils um eine Faktor 2 von den TENDL Daten ab, wobei der gemessene Wirkungsquerschnitt von  $^{148m}\text{Pm}$  höher ist als der aus TENDL und der von  $^{148}\text{Pm}$  stets geringer. Das Produktionsverhältnis von  $^{148m}\text{Pm}$  zu  $^{148}\text{Pm}$  beträgt bei dieser Messung

$$\frac{\sigma(^{nat}\text{Nd}(p, Xn)^{148m}\text{Pm})}{\sigma(^{nat}\text{Nd}(p, Xn)^{148}\text{Pm})} \approx 2.$$

Eine ältere Messung mit einem Target aus angereichernten Neodym (95,44 %  $^{148}\text{Nd}$ ) ergab im gleichen Energiebereich [Aum77]

$$\frac{\sigma(^{148}\text{Nd}(p, n)^{148m}\text{Pm})}{\sigma(^{148}\text{Nd}(p, n)^{148}\text{Pm})} \approx 1,3.$$

Für eine Untersuchung dieser Diskrepanz ist eine Messung der Produktion von  $^{148(m)}\text{Pm}$  mit angereicherntem Neodym  $^{150}\text{Nd}$  erforderlich. Im Vergleich zu TENDL ergaben jedoch beide Messungen eine höhere Produktion von  $^{148(m)}\text{Pm}$ . Damit stehen die theoretischen Daten, die hier etwa einen Faktor 0,5 aufweisen, im Widerspruch zu beiden Messungen.

Aus den bestehenden Spektren können ebenfalls die Produktionsquerschnitte von mehreren Neodym- und Praseodymisotopen ermittelt werden. Dies wird Bestandteil zukünftiger Tätigkeiten sein. Des Weiteren können nach der in dieser Arbeit genutzten Vorgehensweise weitere Neodymproben in anderen Energiebereichen (5,4...38 MeV an der Anlage in Řež) bestrahlt werden. Das Abdecken eines breiteren Energiebereichs ermöglicht präzisere Vergleiche von theoretischen und experimentellen Daten.

Die hier ermittelten Daten sind die ersten experimentellen Wirkungsquerschnittsmessungen der Produktion von Promethiumisotopen aus  $^{nat}\text{Nd}$ . Als einzige Vergleichsmessung dient die Produktion von  $^{148}\text{Pm}$  aus  $^{148}\text{Nd}$  [Aum77]. Die Werte der  $^{150}\text{Pm}$  Produktion entsprechen, unter Berücksichtigung der natürlichen Isotopenhäufigkeit, der direkten Produktion aus  $^{150}\text{Nd}$ , da dies der einzige Produktionskanal aus  $^{nat}\text{Nd}$  ist. Bei den übrigen Nd-Isotopen ist die Neutronenzahl zu gering.

Alle erhaltenen Messdaten dienen als Vergleichswerte für verschiedene theoretische Berechnungsmodelle und ermöglichen Rückschlüsse auf die entsprechenden Kernmodelle.



## 9 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden spezifische Aktivitäten untersucht, die aus 1000 kg Neodym in seiner natürlichen Isotopenzusammensetzung stammen und Quellen für Untergrundstrahlung bei der Suche nach dem neutrinolosen doppelten Betazerfall des SNO+ Experiments sind. Unterschieden wird hierbei zwischen direktem und indirektem Untergrund. Ersterer überlagert unmittelbar  $0\nu\beta\beta$ -Ereignisse von  $^{150}\text{Nd}$  ( $Q$ -Wert 3367 keV). Indirekter Untergrund kann durch energetische Aufsummierung im Detektor vor allem mit  $2\nu\beta\beta$ -Ereignissen (pile-up)  $0\nu\beta\beta$ -Signale überdecken. Es hat sich herausgestellt, dass alle betrachteten Strahlungsquellen nur indirekten Untergrund bilden.

In Kap. 3 wurden Aktivitäten von seltenen Erden ermittelt. Der  $\alpha$ -Strahler  $^{144}\text{Nd}$  ( $\beta$ -Energieäquivalent 180 keV) bildet mit einer Aktivität von etwa 10 kBq die intensivste Quelle. Der  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall von  $^{150}\text{Nd}$  in den Grundzustand und den ersten angeregten Zustand des Tochterkerns  $^{150}\text{Sm}$  bildet mit 0,6 Bq die Basis für pile-ups. Für den  $2\nu\beta\beta$ -Zerfall von  $^{148}\text{Nd}$  ( $Q$ -Wert 1928 keV) wurde eine Abschätzung der Halbwertszeit gemacht, aus der eine Aktivität von etwa 30 mBq resultiert. Verunreinigungen durch andere seltene Erden in Neodym bilden weitere Untergrundquellen. Diese gehören mit Aktivitäten von 37,6 Bq ( $^{147}\text{Sm}$ ), sowie 1,9 Bq ( $^{176}\text{Lu}$ ) und 0,23 Bq ( $^{138}\text{La}$ ) zu den Quellen mit der höchsten Intensität. Im Vergleich dazu sind Untergrundquellen, die aus den primordialen Uran- und Thoriumzerfallsreihen stammen, mit erwarteten Aktivitäten  $\leq 1$  mBq verhältnismäßig gering.

Der Hauptaugenmerk dieser Arbeit lag auf der Aktivierung von Neodym durch kosmische Strahlung an der Erdoberfläche. Betrachtet wurde hier die Produktion langlebiger Radionuklide, die während des Transports des Neodyms an der Erdoberfläche gebildet werden und während der Messphase von SNO+ über einen langen Zeitraum Untergrundstrahlung emittieren. Der dominante Prozess ist hierbei die Aktivierungen durch atmosphärische Neutronen. Es zeigte sich bei den Vorbetrachtungen, dass es eine Reihe von langlebigen Promethiumisotopen mit hohen  $Q$ -Werte gibt. Sie wurden aufgrund dieser Eigenschaften (Langlebigkeit, hoher  $Q$ -Wert) in die Betrachtungen einbezogen, obwohl sie ausschließlich durch Protonenaktivierung gebildet werden können, was im Vergleich zur Aktivierung durch atmosphärische Neutronen ein untergeordneter Prozess ist. Eine quantitative Aktivierungsabschätzung wurde für diese Isotope aufgrund des schlecht bekannten Protonenflussspektrums an der Erdoberfläche nicht durchgeführt.

Für die Berechnung der Produktionsraten die aus atmosphärischen Neutronenaktivierungen resultieren, wurde ein C++ Programm namens *ProdRate* geschrieben (Kap. 5). Mit den damit berechneten Produktionsraten wurden Aktivitäten potenzieller Quellen für Untergrundstrahlung abgeschätzt.  $^{139}\text{Ce}$  ( $T_{1/2} = 137,6$  d,  $Q = 278$  keV) bildet hierbei mit 127 mBq die größte Aktivität.  $^{147}\text{Pm}$  ( $T_{1/2} = 2,62$  a,  $Q = 224,1$  keV) ist der langlebigste

Exspektant. Er wird nicht direkt durch Neutronenbestrahlung aus  $^{nat}\text{Nd}$  gebildet, ist aber das Produkt einer Zerfallsreihe bestehend aus  $^{147}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pr}$  und  $^{147}\text{Nd}$ . Aus der Produktion dieser Nuklide durch atmosphärische Neutronen liefert  $^{147}\text{Pm}$  eine Aktivität von 6,6 mBq.  $^{144}\text{Ce}$  ( $T_{1/2} = 284,9$  d,  $Q = 318,7$  keV) trägt mit 2,3 Zerfällen pro Stunde zum Untergrund bei. Dessen kurzlebige Zerfallsprodukt  $^{144}\text{Pr}$  ( $T_{1/2} = 17,28$  min) hat mit 2997,5 keV den höchsten  $Q$ -Wert aller betrachteten Nuklide und bildet annähernd eine Quelle für direkten Untergrund. Die drei Nuklide  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  und  $^{144}\text{Pr}$  sind die bedeutendsten Untergrundquellen, die aus kosmischer Aktivierung stammen und werden in zukünftige pile-up Studien von E. Vazquez aufgenommen. Die Aktivität von  $^{147}\text{Pm}$  liegt dabei in der Größenordnung der Aktivitäten aus den primordialen Zerfallsreihen,  $^{139}\text{Ce}$  liegt zwei Größenordnungen darüber und  $^{144}\text{Pr}$  eine darunter.

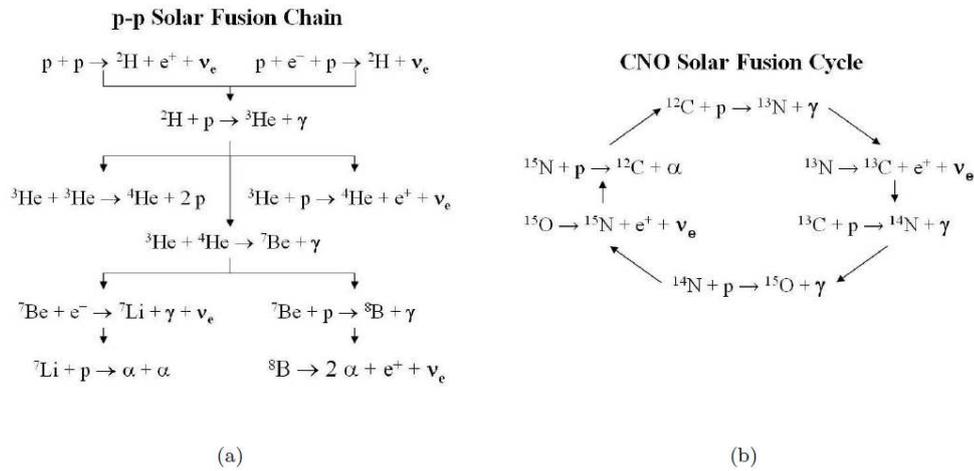
Die in dieser Arbeit genutzten Wirkungsquerschnittsdatenbanken sind rein theoretischer Natur und wurden größtenteils nicht experimentell verifiziert. Aus diesem Grund wurden in Kap. 6 Vorbetrachtungen zu Neutronen- und Protonenaktivierungsexperimenten zusammengestellt. Hierbei wurde betrachtet, bei welchen Strahlenergien die höchsten Produktionsraten erzielt werden, wie dick eine Neodymprobe idealerweise sein sollte und wie Neodym vor der Oxidation zu schützen ist. Die vorgeschlagenen Neutronenexperimente bei Energien  $E_n = 40 \dots 100$  MeV, sowie mit monochromatischen 14 MeV Neutronen konnten im Rahmen dieser Diplomarbeit nicht durchgeführt werden, da die nötige Strahlzeit, bzw. speziell erforderliche experimentelle Aufbauten nicht zur Verfügung standen. Die Voraussetzungen für eine Protonenaktivierungsanalyse waren gegeben und ein entsprechendes Experiment wurde durchgeführt (Kap. 8).

Bevor das Protonenbestrahlungsexperiment durchgeführt werden konnte, musste ein geeignetes Target hergestellt werden. In Kap. 7 wurde zunächst beschrieben, wie die exakte Dicke der verwendeten Neodymfolie mit einem Fehler im Promillebereich bestimmt wurde. Anschließend wurden drei verschiedene Passivierungsmethoden studiert, wobei sich als geeignete Methode die Beschichtung mit einem porenfreien Kunststoff (Parylen) herausstellte. Hierbei werden dünne Schichten aus Parylen auf Neodym abgeschieden. Dadurch wird das Neodym hinreichend gut vor Sauerstoffkontakt geschützt.

Beim durchgeführten Aktivierungsexperiment (Kap. 8) wurden sechs Neodymproben ( $^{nat}\text{Nd}$ ) mit Protonen im Energiebereich  $E_P = 21 \dots 29$  MeV bestrahlt. Betrachtet wurde die Produktion von Promethiumisotopen. Hierbei wurden erstmals Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{141}\text{Pm}$ ,  $^{143}\text{Pm}$ ,  $^{144}\text{Pm}$ ,  $^{146}\text{Pm}$ ,  $^{148}\text{Pm}$ ,  $^{148m}\text{Pm}$  und  $^{150}\text{Pm}$  aus  $^{nat}\text{Nd}$  experimentell bestimmt. Lediglich die Produktion von  $^{148(m)}\text{Pm}$  aus  $^{148}\text{Nd}$  wurde bisher untersucht. Die ermittelten Daten dienen der Charakterisierung des Neodyms, d. h. die auf Kernmodellen beruhenden theoretischen Wirkungsquerschnitte können an diese Messdaten angepasst werden. Aufgrund der noch nicht abgeschlossenen Auswertung der Kupfermonitore, mit denen der Strom und die Energie des Protonenstrahls bestimmt wird, sind die hier erhaltenen Messdaten vorläufige Ergebnisse.

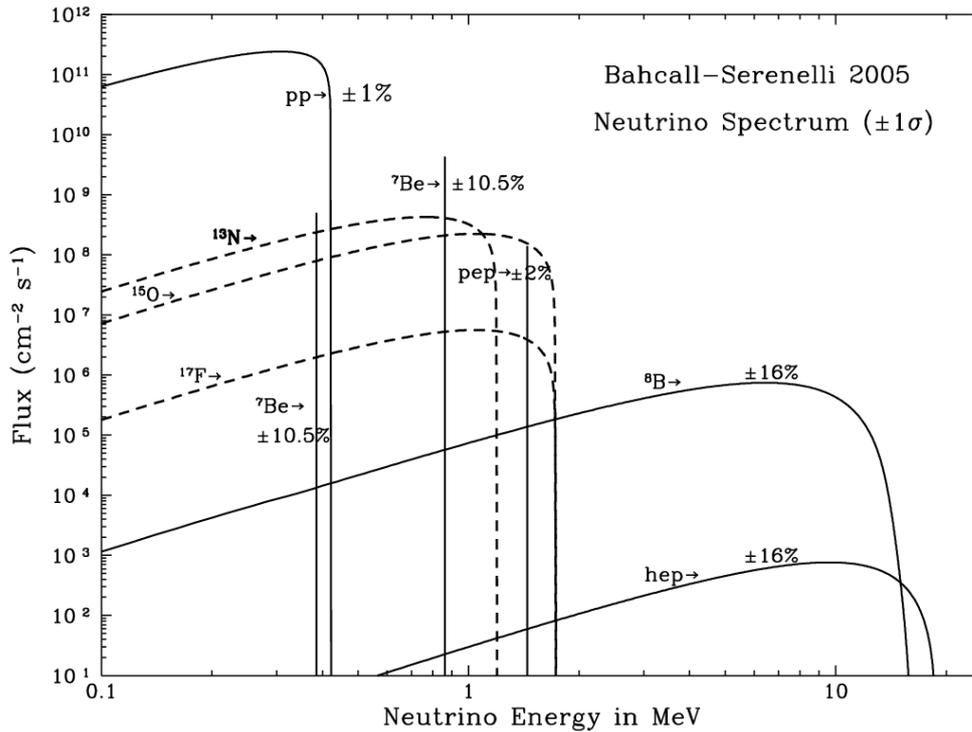
# A Solare Neutrinos im SNO+ Experiment

Im Inneren der Sonne wird durch Kernfusionen Energie erzeugt. Die dabei ablaufenden Prozesse sind in Abb. A.1 dargestellt. Der dominante Prozess ist die pp-Kette, bei der Protonen (p) zu Helium (He) und dieses weiter zu Beryllium (Be) und Bor (B) verschmelzen. Diese Fusionskette liefert ca. 99 % der Energieproduktion der Sonne. Der verbleibende Energieproduktionsbeitrag geht auf den CNO-Zyklus zurück. Bei diesen Prozessen entsteht eine große Anzahl von Elektronenneutrinos  $\nu_e$ . Die Neutrinos werden nach ihrem Entstehungsprozess benannt (pp, pep, hep,  ${}^7\text{Be}$ ,  ${}^8\text{B}$ , CNO) [Wri09].



**Abbildung A.1: Solare Fusionsprozesse:** Durch die abgebildeten Fusionsreaktionen wird Energie in der Sonne produziert. Die pp-Kette (a) hat hierbei den größten Anteil. Beim CNO-Zyklus (b) sind nur die wichtigsten Reaktionen gezeigt. Das Bild ist aus [Wri09] entnommen.

Neutrinos können aufgrund der Tatsache, dass sie nur schwach wechselwirken, aus dem Inneren der Sonne bis zur Erde gelangen. Die Energiespektren der verschiedenen solaren Neutrinos sind in Abb. A.2 dargestellt. Es ist zu sehen, dass der Neutrinofluss mit höher werdender Energie geringer wird. Die größte Intensität weisen dabei pp-Neutrinos auf, deren Fluss auf der Erde etwa  $6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  beträgt. Der gesamte Neutrinofluss ist etwa  $6,6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  [Sch97].



**Abbildung A.2: Energiespektren solarer Neutrinos:** Zu sehen sind die Energiespektren der solaren Neutrinos auf der Erde. Im Bild angegeben sind die relativen Unsicherheiten des jeweiligen Elektronneutrino­flusses in Bezug auf den theoretisch berechneten Fluss. Das Bild ist aus [Pri10] entnommen.

Eine Reihe von Experimenten, die den solaren Elektronneutrino­fluss auf der Erde gemessen haben, registrierten nur einen Teil der erwarteten Zählrate. So ermittelte als erstes das Experiment *Homestake*<sup>1</sup> [Cle98], dessen Datennahme von 1970 bis 1994 lief und das Neutrinos mit Energien  $E_\nu > 814$  keV detektierte, nur etwa ein Drittel des erwarteten Neutrino­flusses. Weitere Experimente ergaben ähnliche Ergebnisse [Man10]. Die Erklärung dieses als „solares Neutrino­problem“ bekannt gewordenen Phänomens besteht darin, dass Neutrinos ihren Flavour<sup>2</sup> ändern können, dass heißt sie „oszillieren“ von Elektronneutrinos zu Myon- oder Tauneutrinos und tragen somit nicht mehr zum Elektronneutrino­fluss bei. Diese Oszillationen sind aufgrund der vorhandenen Masse von Neutrinos möglich. Eine genaue mathematische Beschreibung dieses Sachverhaltes ist in [Sch97] zu finden.

Gelöst wurde das solare Neutrino­problem durch das SNO-Experiment (Datennahme bis 2006). Es war sensitiv auf alle drei Neutrino­flavour, womit der Gesam­neutrino­fluss bestimmt werden konnte. Die Messung basiert auf einer Idee von H. H. Chen, nachzulesen in [Che85]. Mit dem bei SNO gemessenen Verhältnis von Elektron- zu Gesam­neutrino­fluss von 0,35 wurden Neutrino­oszillationen bestätigt [Wri09, Aha08].

<sup>1</sup>Homestake Experiment, benannt nach dem Durchführungsort, der Homestake Gold Mine, South Dakota, USA

<sup>2</sup>Flavour (engl.): „Geschmack“, bzgl. Neutrinos ein Fachausdruck für die drei Neutrino­arten Elektron-Neutrino  $\nu_e$ , Myon-Neutrino  $\nu_\mu$  und Tau-Neutrino  $\nu_\tau$

Es wird zwischen der Oszillation im Vakuum und in Materie (MSW<sup>3</sup>-Oszillation) unterschieden, wobei die Elektronendichte der Materie Einfluss auf die Flavormischung hat. Die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Elektronneutrino nach Durchlaufen einer bestimmten Strecke als Elektronneutrino ankommt, wird **Neutrino Überlebenswahrscheinlichkeit**  $P_{ee}$  genannt.

Die Überlebenswahrscheinlichkeit solarer Neutrinos ist bei niedrigen Energien ( $E_\nu \lesssim 500$  keV) und bei hohen Energien ( $E_\nu \gtrsim 6$  MeV) untersucht worden. In Abb. A.3 ist  $P_{ee}$  in Abhängigkeit von der Neutrinoenergie im Übergangsbereich von Materie- zu Vakuumoszillation aufgetragen. In der Übergangsregion ( $E_\nu \approx 0,5 \dots 6,0$  MeV) sind deutliche Abweichungen vom Standard MSW Modell („LMA<sup>4-1</sup>“) und einem nicht Standard Neutrino-Materie Wechselwirkungsmodell („LMA-0“) zu sehen [Fri04].

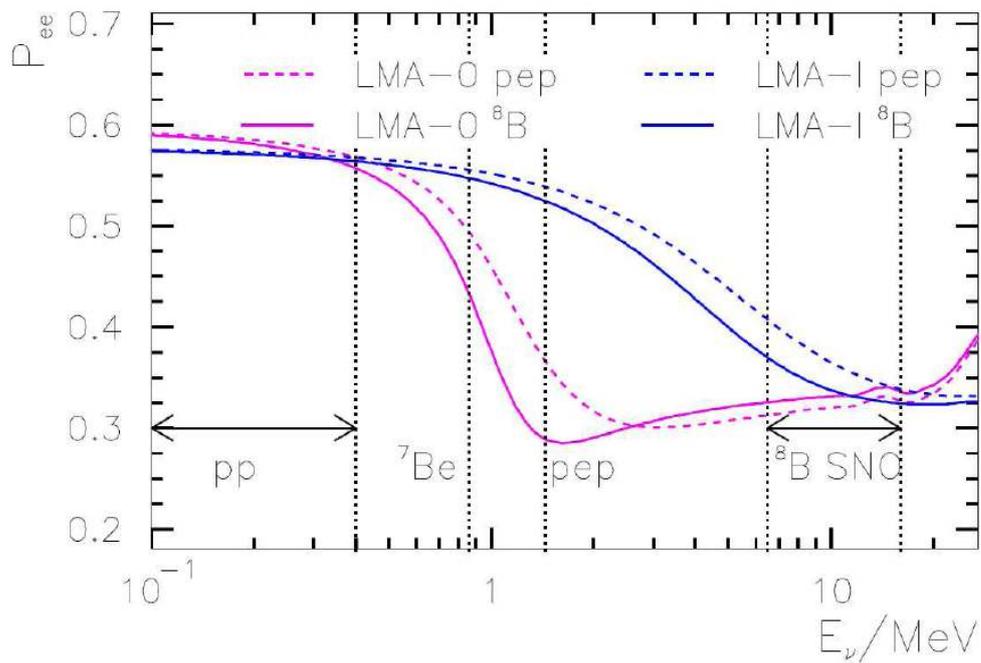
Die Übergangsregion wurde bislang nicht präzise studiert. Das SNO+ Experiment wird während der solaren Messphase (ohne Neodym) vor allem sensitiv auf pep-Neutrinos sein. Diese sind monoenergetisch mit  $E_\nu = 1,44$  MeV und erweisen sich aufgrund ihrer diskreten Energie und ihres wohlbekanntes Flusses<sup>5</sup> im Bereich der größten Abweichung beider Modelle als besonders geeignet für die Untersuchung von Neutrinooszillationen im Übergangsbereich von Materie zu Vakuum [Man10, Fri04, Wri09].

---

<sup>3</sup>MSW = S. Mikheyev, A. J. Smirnow und L. Wolfenstein, die Verfasser der theoretischen Beschreibung des Neutrino-Materie-Effekts

<sup>4</sup>LMA = Large Mixing Angle (engl.): großer Mischungswinkel

<sup>5</sup>Die Unsicherheit des pep-Neutrinoflusses beträgt  $\pm 2$  % bezüglich des theoretischen Flusses, siehe Abb. A.2.



**Abbildung A.3: Neutrino Überlebenswahrscheinlichkeit:** Abgebildet sind zeitlich gemittelte Überlebenswahrscheinlichkeiten solarer Elektroneneutrinos nach einem nicht-Standard Neutrino-Materie Wechselwirkungsmodell („LMA-0“) und nach dem Standard MSW Modell. Im Übergangsbereich von niedriger zu hoher Energie sind deutliche Abweichungen zu sehen. Die pep-Neutrinos liegen energetisch in diesem Übergangsbereich. [Fri04]

## B Theoretische Wirkungsquerschnitte der kosmogenen Nuklide

Wirkungsquerschnitte für Neutronenprojekte

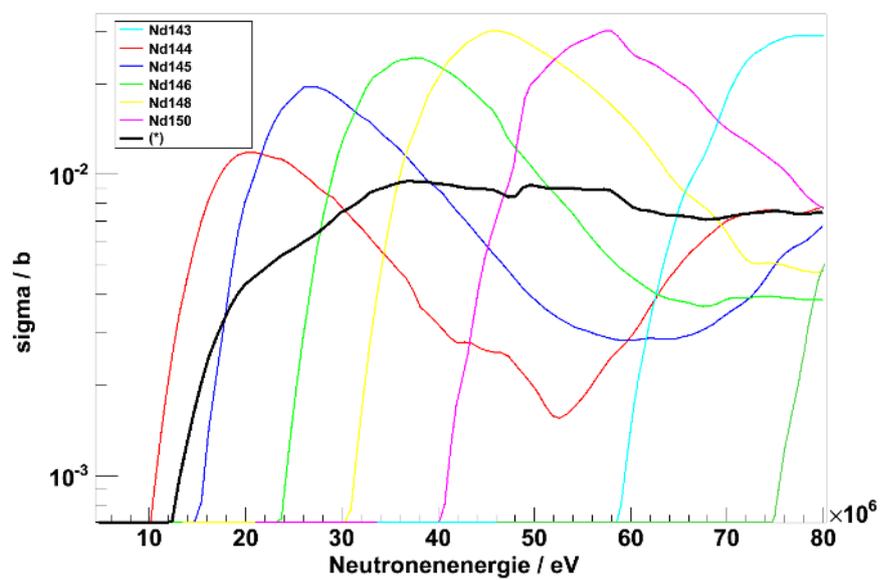
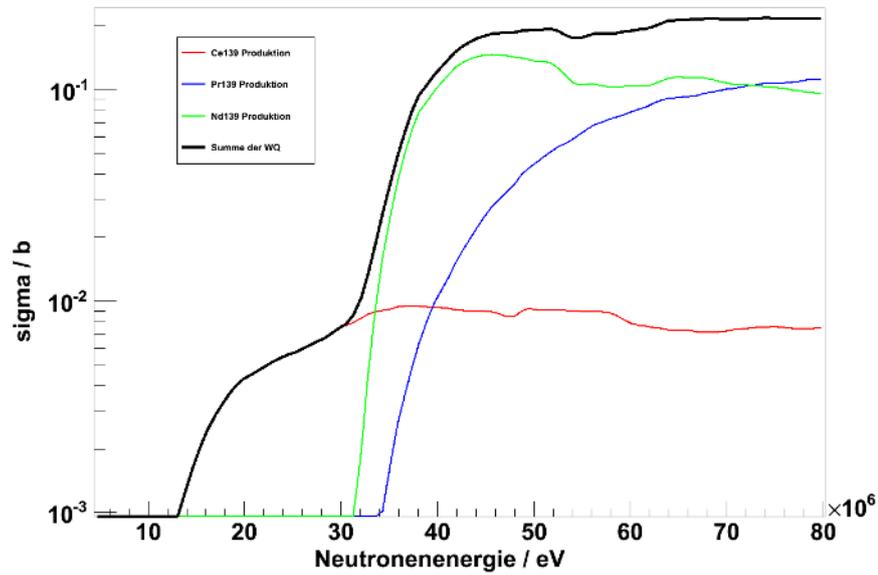
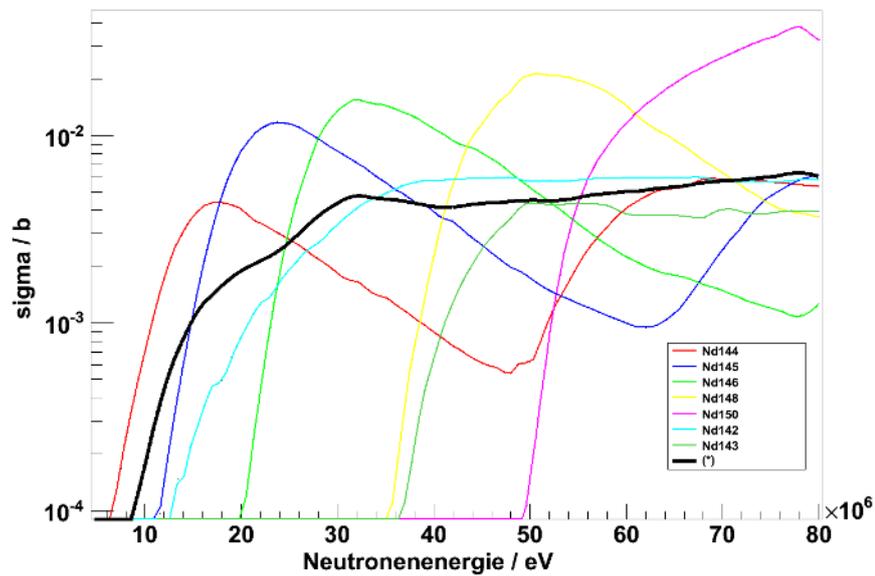


Abbildung B.1: Wirkungsquerschnitte für die  $^{139}\text{Ce}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

Abbildung B.2: Wirkungsquerschnitte für die  $^{139}\text{Ce}$  ProduktionsketteAbbildung B.3: Wirkungsquerschnitte für die  $^{141}\text{Ce}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

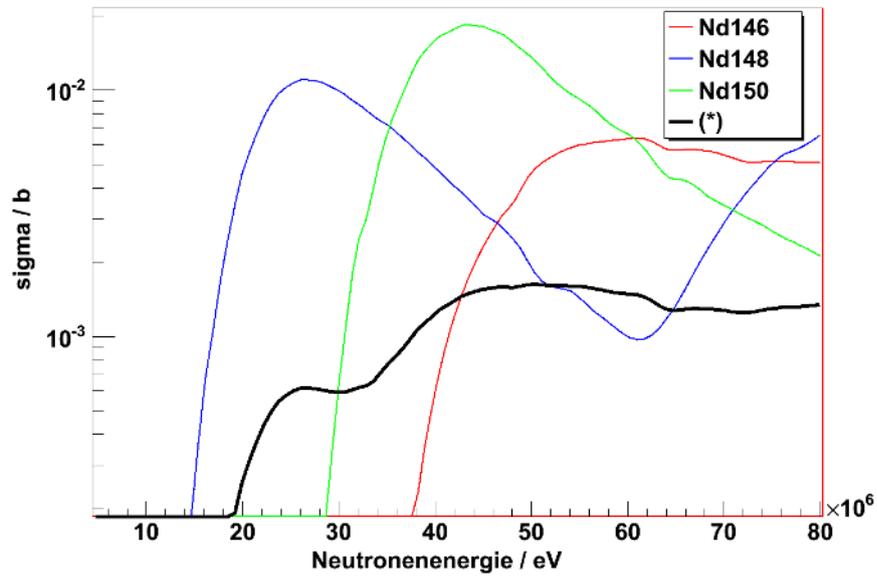


Abbildung B.4: Wirkungsquerschnitte für die  $^{144}\text{Ce}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

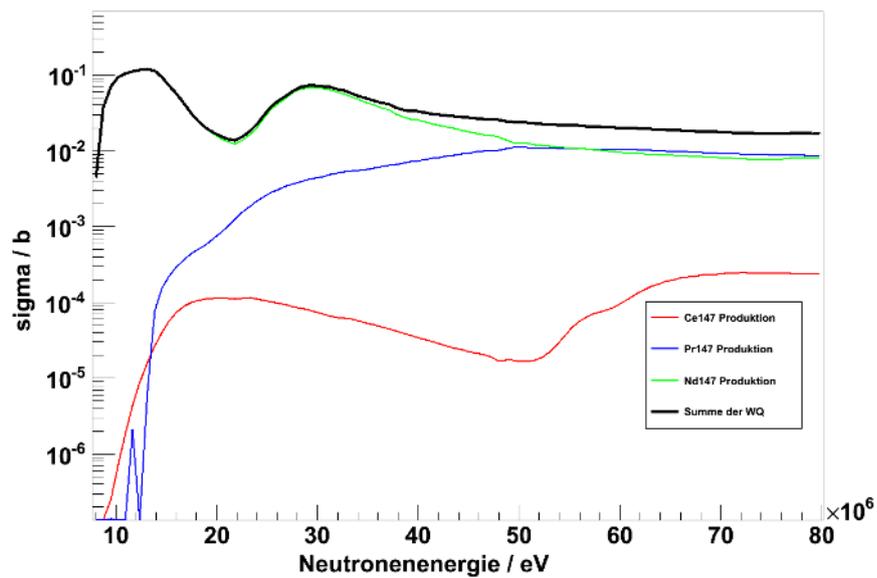


Abbildung B.5: Wirkungsquerschnitte für die  $^{147}\text{Pm}$  Produktionskette

## Wirkungsquerschnitte für Protonenprojekte

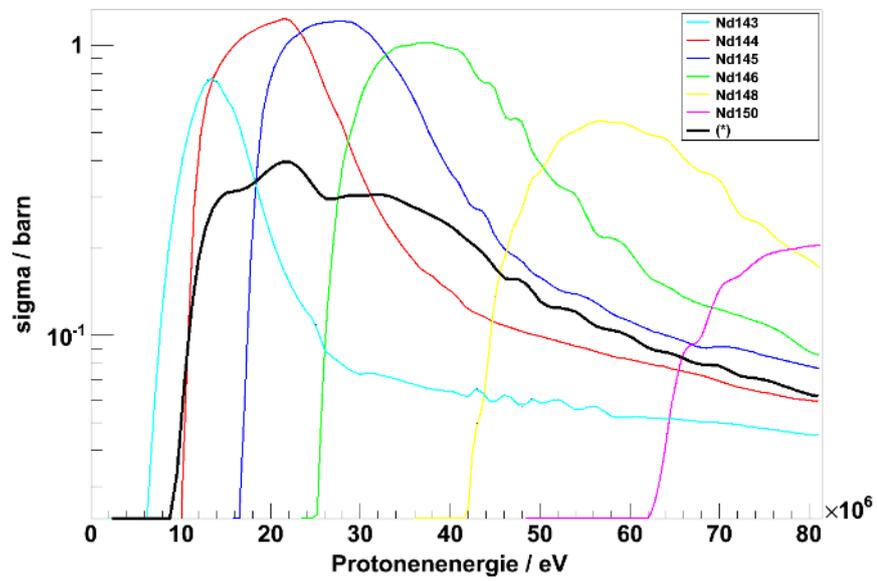


Abbildung B.6: Wirkungsquerschnitte für die  $^{143}\text{Pm}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

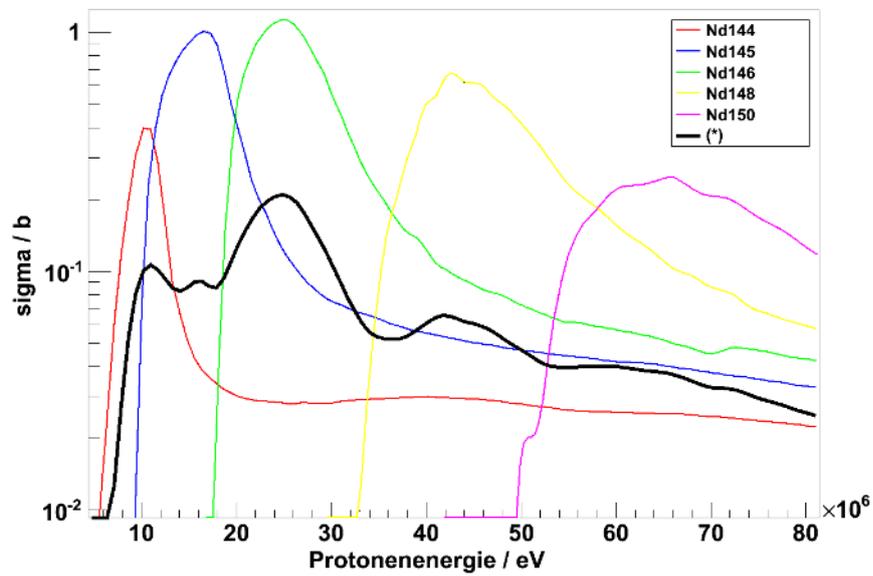


Abbildung B.7: Wirkungsquerschnitte für die  $^{144}\text{Pm}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

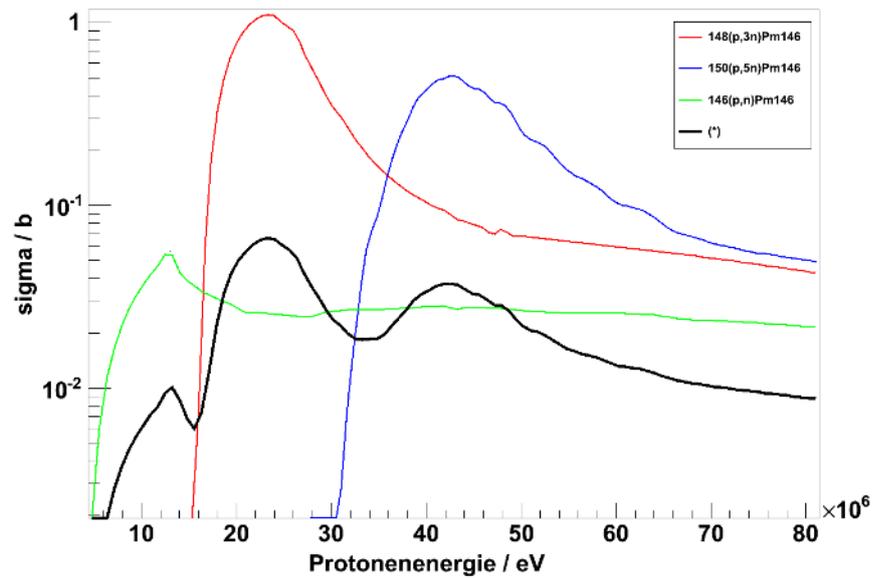


Abbildung B.8: Wirkungsquerschnitte für die  $^{146}\text{Pm}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

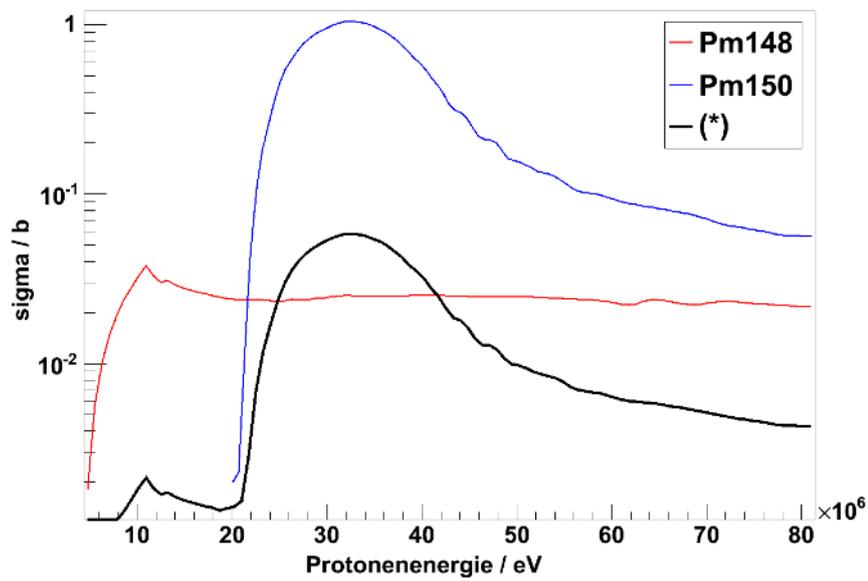


Abbildung B.9: Wirkungsquerschnitte für die  $^{147}\text{Pm}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.

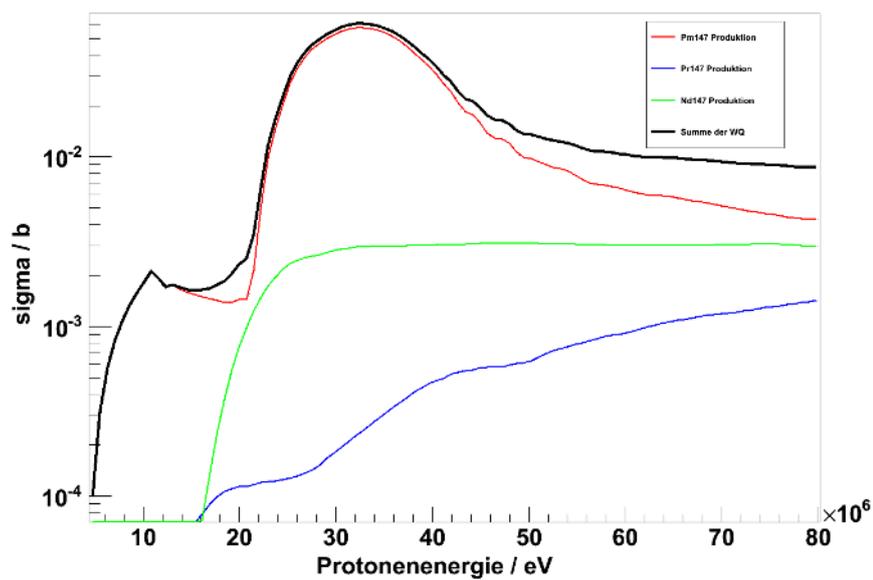


Abbildung B.10: Wirkungsquerschnitte für die  $^{147}\text{Pm}$  Produktionskette

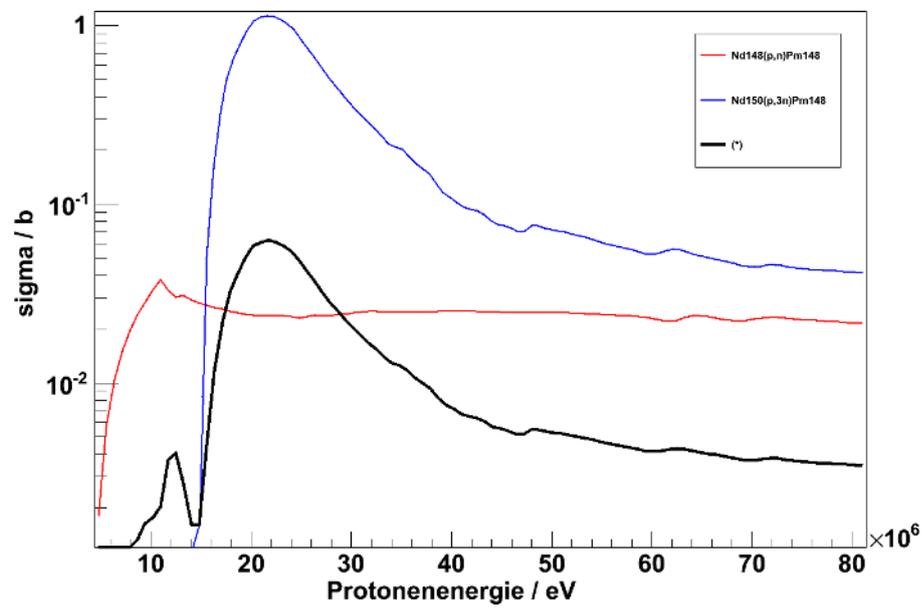


Abbildung B.11: Wirkungsquerschnitte für die  $^{148}\text{Pm}$  Produktion: (\*) ist das Integral aus (6.1), Kap. 6.2.



## C FitzPeaks

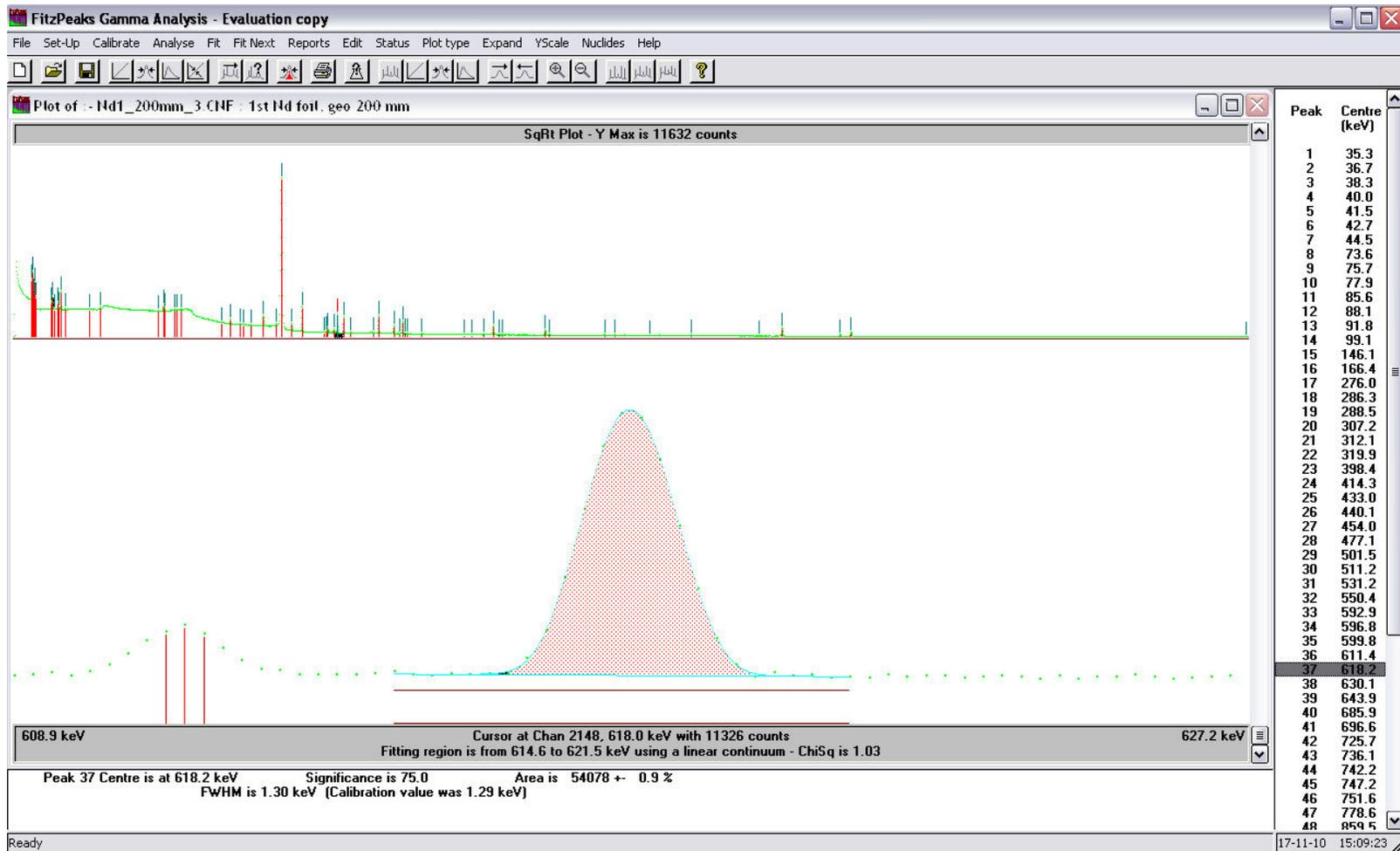


Abbildung C.1: *FitzPeaks* Bedienoberfläche: Zu sehen das Spektrum „Nd1.200mm.3“. Eine Gaussfunktion ist an den Peak bei 618,2 keV angepasst worden. Unten im Bild sind die Analysedaten der Anpassung zu sehen. Oben im Bild ist das gesamte Spektrum dargestellt. Rechts im Bild sind die vom Programm gefundenen Peaks tabelliert. Das Programm ist bei [Fit09] zu finden.

## D Zusammenfassung systematischer Fehler

**Tabelle D.1: Systematische Fehler:** Zusammengefasst sind die systematischen Fehler der Dicke  $d$  und der eintreffenden Protonen pro Sekunde  $I'$  für die jeweiligen Neodymproben. Hierbei ist  $I' = I/e$  der Strahlstrom  $I$  geteilt durch die Elementarladung  $e$ .

<i>Probe</i>	$d / \mu\text{m}$	$\Delta d / \mu\text{m}$	$I' / \text{s}^{-1}$	$\Delta I' / \text{s}^{-1}$
Nd1	108,50	0,26	$1,79 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{10}$
Nd2	108,50	0,26	$1,93 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{10}$
Nd3	108,50	0,26	$2,05 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{10}$
Nd4	108,50	0,26	$1,98 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{10}$
Nd6	105,5	0,2	$3,69 \cdot 10^{12}$	$2,4 \cdot 10^{10}$
Nd8	105,5	0,2	$3,58 \cdot 10^{12}$	$2,4 \cdot 10^{10}$

**Tabelle D.2: Systematische Fehler:** Zusammengefasst sind die systematischen Fehler der Halbwertszeit  $T_{1/2}$ , der Gammaintensität  $\varepsilon$  und der Detektoreffizienz  $\eta$  für die analysierten Promethiumisotope.

<i>Isotop</i>	$T_{1/2}$	$\Delta T_{1/2}$	$\varepsilon / \%$	$\Delta\varepsilon / \%$	$\eta$	$\Delta\eta$
$^{141}\text{Pm}$	20,90 min	0,05 min	2,44	0,12	$222,92 \cdot 10^{-5}$	$6,69 \cdot 10^{-5}$
$^{143}\text{Pm}$	265 d	7 d	39		$261,57 \cdot 10^{-5}$	$7,85 \cdot 10^{-5}$
$^{144}\text{Pm}$	363 d	14 d	98,6	1,0	$319,96 \cdot 10^{-5}$	$9,60 \cdot 10^{-5}$
$^{146}\text{Pm}$	5,53 a	0,50 a	65	2	$435,99 \cdot 10^{-5}$	$1,31 \cdot 10^{-5}$
$^{148}\text{Pm}$	5,37 d	0,09 d	22		$134,67 \cdot 10^{-5}$	$4,04 \cdot 10^{-5}$
$^{148m}\text{Pm}$	41,29 d	0,11 d	32,7	0,3	$272,38 \cdot 10^{-5}$	$8,17 \cdot 10^{-5}$
$^{150}\text{Pm}$	2,68 h	0,02 h	68		$592,99 \cdot 10^{-5}$	$17,79 \cdot 10^{-5}$



## **E Messwerttabelle**

**Tabelle E.1: Messwerte der Neodymbestrahlung:** Angegeben sind die mittleren Protonenenergien in den Neodymfolien  $E_P$ , das jeweilige Spektrum, aus dem die Messdaten entnommen sind, die Nettopeakflächen  $Net$  mit den zugehörigen statistischen Unsicherheiten  $\Delta Net$ , die berechneten Anfangsaktivitäten  $A_0$ , die statistischen und systematischen Fehler  $\Delta\sigma_{stat}$  und  $\Delta\sigma_{syst}$ , die Wurzel der Quadratsumme beider Fehler  $\Delta\sigma$ , die theoretischen Werte aus den Datenbanken MENDL und TENDL  $\sigma_{(MENDL)}$  und  $\sigma_{(TENDL)}$ , sowie das Verhältnis aus den experimentellen und den TENDL Daten  $\sigma_{exp}/\sigma_{(TENDL)}$ .

Isotop	$E_P$ / MeV	Spektrum	$Net$	$\Delta Net$ / %	$A_0$ / Bq	$\sigma_{exp}$ / mb	$\Delta\sigma_{stat}$ / mb	$\Delta\sigma_{syst}$ / mb	$\Delta\sigma$ / mb	$\sigma_{th}$ (MENDL) / mb	$\sigma_{th}$ (TENDL) / mb	$\sigma_{exp}/\sigma_{th}$
$^{141}\text{Pm}$	28,18	Nd1_1000mm	23532	1,4	$5,24 \cdot 10^7$	271,48	3,02	18,86	19,1		342	0,79
	27,13	Nd2_600mm	7730	2,9	$1,61 \cdot 10^8$	304,78	8,84	19,94	21,81		366	0,83
	26,24	Nd3_600mm	13065	1,9	$1,48 \cdot 10^8$	263,68	5,01	17,25	17,96		374	0,71
	25,33	Nd4_1000mm	12559	2,0	$1,42 \cdot 10^8$	261,54	5,23	17,13	17,91		364	0,72
	23,07	Nd6_200mm.1	3503	7,9	$1,80 \cdot 10^8$	250,32	19,78	16,36	25,67		317	0,79
	21,45	Nd8_1000mm	24522	1,3	$1,72 \cdot 10^8$	243,22	3,2	16,09	16,41		292	0,83
$^{143}\text{Pm}$	28,18	Nd1_200mm.4	44279	0,9	$1,34 \cdot 10^4$	221,08	2,43	11,17	11,43	301	209	1,06
	27,13	Nd2_200mm.3	43399	0,9	$1,33 \cdot 10^4$	199,48	1,8	10,31	10,47	295	199	1
	26,24	Nd3_200mm.3	44532	0,9	$1,37 \cdot 10^4$	192,77	1,73	9,74	9,89	294,5	198	0,97
	25,33	Nd4_200mm.3	55507	0,8	$1,71 \cdot 10^4$	248,92	1,98	12,61	12,76	313	211	1,18
	23,07	Nd6_200mm.3	58345	0,8	$1,80 \cdot 10^4$	289,41	2,32	14,6	14,78	377	288	1
	21,45	Nd8_200mm.3	68172	0,7	$2,10 \cdot 10^4$	347,49	2,43	17,53	17,7	396,00	334	1,04
$^{144}\text{Pm}$	28,18	Nd1_200mm.3	54078	0,9	$7,51 \cdot 10^3$	166,86	1	9,45	9,5	149	146	1,14
	27,13	Nd2_200mm.3	113022	0,5	$9,51 \cdot 10^3$	195,08	0,98	11,28	11,32	175	170	1,15
	26,24	Nd3_200mm.3	114018	0,6	$9,60 \cdot 10^3$	185,25	1,11	10,71	10,77	197,00	187	0,99
	25,33	Nd4_200mm.3	117128	0,5	$9,87 \cdot 10^3$	197,1	0,99	11,42	11,46	207	197	1
	23,07	Nd6_200mm.3	112773	0,5	$9,52 \cdot 10^3$	209,78	1,05	12,12	12,17	194,5	198	1,06
	21,45	Nd8_200mm.3	99617	0,6	$8,39 \cdot 10^3$	190,57	1,14	11,01	11,07	163	182	1,05
$^{146}\text{Pm}$	28,18	Nd1_200mm.3	3056	12,6	$2,75 \cdot 10^2$	34,81	4,39	9,61	10,57	34	31	1,12
	27,13	Nd2_200mm.3	4254	7,1	$3,94 \cdot 10^2$	45,02	3,2	4,51	5,53	42	38	1,18
	26,24	Nd3_200mm.3	4553	6,0	$4,22 \cdot 10^2$	45,3	2,72	4,54	5,29	53	45,5	1
	25,33	Nd4_200mm.3	5376	5,6	$4,99 \cdot 10^2$	55,37	3,1	5,51	6,32	58	53	1,04
	23,07	Nd6_200mm.3	5404	5,6	$5,01 \cdot 10^2$	61,44	3,44	6,15	7,05	66,2	65	0,95
	21,45	Nd8_200mm.3	4701	6,3	$4,36 \cdot 10^2$	55,06	3,47	5,51	6,51	60	63	0,87
$^{148}\text{Pm}$	28,18	Nd1_200mm.2	15286	1,8	$2,29 \cdot 10^4$	7,68	0,14	0,36	0,39	27	11	0,7
	27,13	Nd2_200mm.2	20647	1,3	$3,50 \cdot 10^4$	10,65	0,14	0,49	0,51	32	14	0,76
	26,24	Nd3_200mm.2	26250	1,1	$4,52 \cdot 10^4$	12,94	0,14	0,6	0,62	37,5	17	0,76
	25,33	Nd4_200mm.3	31728	1,0	$6,39 \cdot 10^4$	18,46	0,2	0,86	0,88	44	22	0,84
	23,07	Nd6_200mm.2	62928	0,8	$6,65 \cdot 10^4$	21,74	0,17	1	1,01	59	35	0,62
	21,45	Nd8_200mm.2	73216	0,6	$7,51 \cdot 10^4$	25,25	0,15	1,16	1,17	62,5	39,8	0,63
$^{148m}\text{Pm}$	28,18	Nd1_200mm.3	13302	1,8	$6,55 \cdot 10^3$	16,8	0,3	0,52	0,60	27	4,6	3,65
	27,13	Nd2_200mm.3	30552	1,1	$9,86 \cdot 10^3$	23,02	0,25	0,71	0,75	32	6,00	3,84
	26,24	Nd3_200mm.3	35749	1,0	$1,17 \cdot 10^4$	25,62	0,26	1,15	1,18	37,5	7,4	3,46
	25,33	Nd4_200mm.3	44237	0,9	$1,45 \cdot 10^4$	32,98	0,3	1,43	1,46	44	9,5	3,47
	23,07	Nd6_200mm.3	43596	0,9	$1,45 \cdot 10^4$	36,43	0,33	1,57	1,6	59	17	2,14
	21,45	Nd8_200mm.3	43084	0,9	$1,41 \cdot 10^4$	36,41	0,33	1,13	1,18	62,5	20,1	1,81
$^{150}\text{Pm}$	28,18	Nd1_200mm.2	267791	1,7	$4,43 \cdot 10^4$	1,11	0,02	0,04	0,04		1,31	0,85
	27,13	Nd2_200mm.1	49009	1,7	$1,65 \cdot 10^5$	1,16	0,02	0,04	0,04		1,35	0,86
	26,24	Nd3_200mm.1	56529	1,5	$1,61 \cdot 10^5$	1,08	0,02	0,03	0,04		1,38	0,78
	25,33	Nd4_200mm.1	73020	1,5	$1,80 \cdot 10^5$	1,26	0,02	0,04	0,04		1,41	0,89
	23,07	Nd6_200mm.1	80697	1,6	$1,85 \cdot 10^5$	1,34	0,02	0,04	0,04		1,5	0,89
	21,45	Nd8_200mm.1	122526	2,8	$1,91 \cdot 10^5$	1,43	0,04	0,05	0,06		1,56	0,92

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Energieniveauschema für die Isobaren $A = 150$ . . . . .	4
2.2	Doppelter Betazerfall . . . . .	6
2.3	Energiespektrum des doppelten Betazerfalls . . . . .	6
2.4	Phasenraumfaktoren . . . . .	9
2.5	Matrizelemente . . . . .	9
2.6	Das Produkt $G^{0\nu} \cdot  M^{0\nu} ^2$ . . . . .	10
2.7	Der SNO+ Detektor . . . . .	11
2.8	Energieauflösung des doppelten Betazerfalls . . . . .	14
2.9	SNO+ Energiespektrum . . . . .	15
2.10	Limits für die $0\nu\beta\beta$ -Halbwertszeit . . . . .	16
2.11	Limits für die effektive Neutrinomasse $\langle m_{\nu_e} \rangle$ . . . . .	17
2.12	Vertikaler Myonenfluss . . . . .	20
4.1	Neutronenfluss, Ziegler . . . . .	31
4.2	Neutronenfluss, Gordon . . . . .	32
4.3	Nuklidkartenausschnitt . . . . .	35
6.1	$\sigma_{th}({}^{nat}\text{Nd}(n,X){}^{139}\text{Ce})$ . . . . .	45
6.2	$\sigma_{th}$ ${}^{139}\text{Ce}$ Produktionskette . . . . .	45
7.1	Photonenabsorption im Neodym . . . . .	54
7.2	Aufbau für Dickenmessung der Nd-Folie . . . . .	55
7.3	Spektren der Dickenmessung der Nd-Folie I . . . . .	58
7.4	Nuklidkartenausschnitte . . . . .	61
7.5	Photos der metallbeschichteten Neodymproben . . . . .	65
7.6	Einlamierte Neodymproben . . . . .	66
7.7	Einlamierte Kupferproben . . . . .	67
7.8	Neodymproben zwei Monate nach der Bestrahlung . . . . .	68
7.9	Vorversuch zur PE-Ummantelung . . . . .	69
7.10	Vorversuch zur Parylenummantelung . . . . .	70
8.1	Neodymprobe Nd6 . . . . .	72
8.2	Targethalterung, offen . . . . .	72
8.3	Targethalterung, montiert . . . . .	73
8.4	Strahlfokussierung, Bildschirm . . . . .	75
8.5	Strahlfokussierung, Folie . . . . .	75
8.6	Anordnung der Stapel im Targethalter . . . . .	76
8.7	Detektor mit Halterungen . . . . .	81
8.8	Effizienzkalibrierung . . . . .	82

8.9	Gammapektrum der Kupferfolie Cu1 . . . . .	85
8.10	Referenzdaten für die Kupferaktivierung . . . . .	87
8.11	Spektrum der Probe Nd6 . . . . .	90
8.12	$^{141}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	91
8.13	$^{143}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	92
8.14	$^{144}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	92
8.15	$^{146}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	93
8.16	$^{148}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	93
8.17	$^{148m}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	94
8.18	$^{150}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	94
A.1	Solare Fusionsprozesse . . . . .	99
A.2	Energiespektren solarer Neutrinos . . . . .	100
A.3	Neutrino Überlebenschwahrscheinlichkeit . . . . .	102
B.1	Wirkungsquerschnitte: $^{139}\text{Ce}$ Produktion . . . . .	103
B.2	Wirkungsquerschnitte: $^{139}\text{Ce}$ Produktionskette . . . . .	104
B.3	Wirkungsquerschnitte: $^{141}\text{Ce}$ Produktion . . . . .	104
B.4	Wirkungsquerschnitte: $^{144}\text{Ce}$ Produktion . . . . .	105
B.5	Wirkungsquerschnitte: $^{147}\text{Pm}$ Produktionskette . . . . .	105
B.6	Wirkungsquerschnitte: $^{143}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	106
B.7	Wirkungsquerschnitte: $^{144}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	107
B.8	Wirkungsquerschnitte: $^{146}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	107
B.9	Wirkungsquerschnitte: $^{147}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	108
B.10	Wirkungsquerschnitte: $^{147}\text{Pm}$ Produktionskette . . . . .	108
B.11	Wirkungsquerschnitte: $^{148}\text{Pm}$ Produktion . . . . .	109
C.1	<i>FitzPeaks</i> Bedienoberfläche . . . . .	112

# Tabellenverzeichnis

2.1	Doppelt betazerfallende Nuklide und Experimente . . . . .	8
3.1	Natürliche Häufigkeiten der Neodymisotope . . . . .	23
3.2	Aktivitäten von Neodymisotopen . . . . .	24
3.3	Phasenraumfaktoren von Neodymisotopen . . . . .	25
3.4	Verunreinigungen von Neodymoxid . . . . .	27
3.5	Aktivitäten von Verunreinigungen durch seltene Erden . . . . .	28
4.1	Potentiell gefährliche, kosmogene Radionuklide . . . . .	35
5.1	Vergleich von Berechnungen von Produktionsraten . . . . .	39
5.2	Erwartete Produktionsraten und Aktivitäten kosmogener Nuklide . . . . .	41
6.1	Überblick optimaler Strahlenergien . . . . .	46
6.2	Energieverlust in Neodymproben . . . . .	49
7.1	Photonenabsorption in Neodym . . . . .	57
7.2	Messdaten zur Photonensorption . . . . .	57
7.3	Messergebnisse der Photonensorption . . . . .	59
7.4	Passivierungsmaterialaktivierungen . . . . .	62
7.5	Eigenschaften der Passivierungsmaterialien . . . . .	62
8.1	Bestrahlungsparameter der Stapel . . . . .	78
8.2	Erwartete Anfangsaktivitäten von Promethiumisotopen . . . . .	79
8.3	Bestrahlungsdaten . . . . .	80
8.4	Parameter der Effizienzkalibrierung . . . . .	82
8.5	Vergleich von Peakanalysen . . . . .	83
8.6	Daten der Zn-Isotope für die Monitorierung . . . . .	85
8.7	Messdaten der Kupfermonitore . . . . .	87
8.8	$\gamma$ -Energien der analysierten Promethiumisotope . . . . .	89
D.1	Systematische Fehler - Proben . . . . .	113
D.2	Systematische Fehler - Isotope . . . . .	113
E.1	Messwerte der Neodymbestrahlung . . . . .	116



# Literaturverzeichnis

- [Acr10] Acros Organics (Herausgeber). *Sicherheitsdatenblatt (MSDS) Poly(ethylene), low density, average M.W. 50.000*. 2010. Abgerufen am 19. Feb. 2010.  
URL <http://search.be.acros.com/msds?for=acro2\&sup=ACROS\&lang=DE\&server=www.acros.be\&search=17850>
- [Aha08] B. Aharmim *et. al.*. *An Independent Measurement of the Total Active 8B Solar Neutrino Flux Using an Array of 3He Proportional Counters at the Sudbury Neutrino Observatory*. Phys. Rev. Lett. 101(2008) 111301. doi: 10.1103/PhysRevLett.101.111301.
- [Ahl09] J. Ahlswede, S. Hebel, M. Kalinowski und O. Ross. *Update of the global Krypton-85 emission inventory*. Occasional Paper (2009), 9.  
URL [http://www.znf.uni-hamburg.de/0cPaper\\_No9.pdf](http://www.znf.uni-hamburg.de/0cPaper_No9.pdf)
- [Arm73] T. Armstrong, K. Chandler und J. Barish. *Calculations of Neutron Flux Spectra Induced in the Earth's Atmosphere by Galactic Cosmic Rays*. Journal of Geophysical Research - Space Physics 78(1973), 16.
- [Aum77] D. C. Aumann und W. Gückel. *Absolute cross section and isomeric cross-section ratios for the  $^{148}\text{Nd}(d,2n)$ ,  $^{148}\text{Nd}(p,n)$  and  $^{146}\text{Nd}(\alpha,pn)$  reactions producing the isomeric pair  $^{148}\text{Pm}^{m,g}$* . Phys. Rev. C (1977).
- [Bac08] J. Back und Y. Ramachers. *ACTIVIA: Calculation of isotope production cross-sections and yields*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 586(2008), 2 286 . doi:10.1016/j.nima.2007.12.008.
- [Bar09a] A. Barabash und the Nemo Collaboration. *NEMO 3 double beta decay experiment: Latest results*. Journal of Physics: Conference Series 173(2009), 1 012008.  
URL <http://stacks.iop.org/1742-6596/173/i=1/a=012008>
- [Bar09b] J. Barea und F. Iachello. *Neutrinoless double- $\beta$  decay in the microscopic interacting boson model*. Phys. Rev. C 79(2009), 4 044301. doi:10.1103/PhysRevC.79.044301.
- [Bar10] A. S. Barabash, P. Hubert, A. Nachab und V. Umatov. *Investigation of beta beta decay in Nd-150 and Nd-148 to the excited states of Sm-150 and Sm-148*. J. Phys. Conf. Ser. 203(2010) 012130. doi:10.1088/1742-6596/203/1/012130.
- [Ben08] J. Benziger, L. Cadonati *et. al.*. *A scintillator purification system for the Boraxino solar neutrino detector*. Nucl. Inst. Meth. A 587(2008), 2-3 277 . doi: DOI:10.1016/j.nima.2007.12.043.

- [Ber03] M. J. Berger, J. Chang *et. al.*. *XCOM: Photon Cross Sections Database*. NIST, 2003. Version 3.1.  
URL <http://www.nist.gov/physlab/data/xcom/index.cfm>
- [Bet08] K. Bethge. *Kernphysik*. Springer, 2008, 3. Aufl..
- [Bil10] S. Biller *et. al.*. *SNO+ (offizielle Internetseite)* (2010). Stand: 09. Sept. 2010.  
URL <http://snoplus.phy.queensu.ca/Home.html>
- [Boe92] F. Boehm und P. Vogel. *Physics of Massive Neutrinos*. Cambridge University Press, 1992.
- [Bog00] J. Boger *et. al.*. *The Sudbury Neutrino Observatory*. Nucl. Instrum. Meth. A449(2000) 172. doi:10.1016/S0168-9002(99)01469-2.
- [Car08] F. Carminati. *class TSpline3*. 2008.  
URL <http://root.cern.ch/root/html522/TSpline3.html>
- [Che85] H. H. Chen. *Direct Approach to Resolve the Solar-Neutrino Problem*. Phys. Rev. Lett. 55(1985), 14 1534. doi:10.1103/PhysRevLett.55.1534.
- [Che07a] M. Chen. *LAB Scintillator*. SNO+ internal note (2007). DocDB 11-v1.
- [Che07b] M. Chen. *Scintillator Review*. SNO+ internal note (2007). DocDB 62-v1.
- [Che08] M. Chen. *SNO+ (2008)*. Konferenzbericht.  
URL <http://geonu.snolab.ca/talks/chen.pdf>
- [Che10] M. C. Chen und H. M. O’Keeffe. *Expected radioactive backgrounds in the SNO+ experiment*. SNO+ internal note (2010). DocDB 507-v2.
- [Chu99] S. Y. F. Chu, L. P. Ekström und R. B. Firestone. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search, Version 2.0*. 1999.  
URL <http://nucleardata.nuclear.lu.se/nucleardata/toi/>
- [Cle98] B. T. Cleveland *et. al.*. *Measurement of the solar electron neutrino flux with the Homestake chlorine detector*. Astrophys. J. 496(1998) 505. doi:10.1086/305343.
- [Cow98] G. Cowan. *Statistical Data Analysis*. Oxford University Press, 1998.
- [Dem04] W. Demtröder. *Experimentalphysik 4*. Springer, 2004, 2. Aufl..
- [Dob10] J. Dobeš. *Nuclear Physics Institute of the ASCR - laboratoy portrait*. Nuclear Physics News International 20(2010), 1.
- [Doi93] M. Doi und T. Kotani. *Neutrinoless Modes of Double Beta Decay*. Progress of Theoretical Physics 89(1993), 1 139. doi:10.1143/PTP.89.139.  
URL <http://ptp.ipap.jp/link?PTP/89/139/>
- [Dou94] B. C. Douglas und K. H. Graham. *Pulsed Laser Deposition Of Thin Films*. John Wiley & Sons, 1994.

- [Drm07] M. Drmota, B. Gittenberger, G. Karigl und A. Panholzer. *Mathematik für Informatik*, Bd. 17 von *Berliner Studienreihe zur Mathematik*. Heldermann Verlag, 2007.
- [Eli97] F. Elisei, F. Gatti *et. al.*. *Measurements of liquid scintillator properties for the Borexino detector*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 400(1997), 1 53 . doi:DOI:10.1016/S0168-9002(97)00933-9.
- [Eli02] S. R. Elliott und P. Vogel. *Double beta decay*. Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 52(2002) 115. doi:10.1146/annurev.nucl.52.050102.090641.
- [Fat10] N. Fatemi-Ghomi. *Sensitivity study of the several double beta decay isotopes*. SNO+ internal note (2010). DocDB 568-v1.
- [Fau05] G. Faure und T. M. Mensing. *Isotopes - Principles and Applications*. John Wiley & Sons, Inc., 2005, 3. Aufl..
- [Fir96] R. B. Firestone und V. S. Shirley. *Table of Isotopes*. Wiley Interscience, 1996.
- [Fit09] J. Fitzgerald (Herausgeber). *FitzPeaks Gamma Analysis and Calibration Software*. 2009.  
URL <http://www.jimfitz.demon.co.uk/fitzpeak.htm>
- [For04] J. A. Formaggio und C. J. Martoff. *Backgrounds To Sensitive Experiments Underground*. Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 54(2004), 1 361. doi:10.1146/annurev.nucl.54.070103.181248.
- [Fri04] A. Friedland, C. Lunardini und C. Pena-Garay. *Solar neutrinos as probes of neutrino - matter interactions*. Phys. Lett. B594(2004) 347. doi:10.1016/j.physletb.2004.05.047.
- [Gil96] G. Gilmore und J. Hemingway. *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, 1996.
- [Gor04] M. S. Gordon, P. Goldhagen *et. al.*. *Measurement of the Flux and Energy Spectrum of Cosmic-Ray Induced Neutrons on the Ground*. IEEE Transactions on Nuclear Science 51(2004) 3427. doi:10.1109/TNS.2004.839134.
- [Gri01] P. Grieder. *Cosmic Rays at Earth*. Elsevier, 2001.
- [Hal10] C. Hall. *How can we search for double beta decay*. SSI - SLAC Summer Institute (2010). Vortrag.  
URL <http://www-conf.slac.stanford.edu/ssi/2010/Hal1080610.pdf>
- [Han09] S. Hans. *Metal-Loaded Liquid Scintillator*. SNO+ internal note (2009). DocDB 415-v1.
- [Hes59] W. N. Hess, H. W. Patterson, R. Wallace und E. L. Chupp. *Cosmic-Ray Neutron Energy Spectrum*. Phys. Rev. 116(1959), 2 445. doi:10.1103/PhysRev.116.445.

- [Heu95] G. Heusser. *Low-Radioactivity Background Techniques*. Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 45(1995).
- [Iac87] F. Iachello und A. Arima. *The Interacting Boson Model*. Cambridge University Press, 1987.
- [IAE07] IAEA (Herausgeber). *Charged-particle cross section database for medical radioisotope production*. 2007. IAEA - International Atomic Energy Agency. URL <http://www-nds.iaea.org/medical/>
- [IDE06] IDEA (Herausgeber). *Upgrades in computational codes for studying cosmogenic activation in Double Beta Decay experiments*. 2006. IDEA - Integrated Double-beta decay European Activities. URL [http://idea.dipscfm.uninsubria.it/frontend/docs/reports/report\\_upgrade\\_codes.pdf](http://idea.dipscfm.uninsubria.it/frontend/docs/reports/report_upgrade_codes.pdf)
- [Kir68] T. Kirsten, O. A. Schaeffer, E. Norton und R. W. Stoenner. *Experimental Evidence for the Double-Beta Decay of  $Te^{130}$* . Phys. Rev. Lett. 20(1968), 23 1300. doi:10.1103/PhysRevLett.20.1300.
- [Kla01] H. V. Klapdor-Kleingrothaus, A. Dietz, H. L. Harney und I. V. Krivosheina. *Evidence for Neutrinoless Double Beta Decay*. Mod. Phys. Lett. A16(2001) 2409. doi:10.1142/S0217732301005825.
- [Kli08] A. Klix. *Neutronenphysik*. TU Dresden, WS 07/08. Skriptum zur Vorlesung.
- [Kno00] G. F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, Inc., 2000, 3. Aufl..
- [Kom10] S. Y. Komarov. *Calculator and Graph Engine for Atomic Nuclei Parameters and Nuclear Reactions and Radioactive Decays Features*. 2010. CDFE - Centr Dannykh Fotoyadernykh Eksperimentov (Zentrum für experimentelle photonukleare Daten). URL [http://cdfe.sinp.msu.ru/services/calc\\_thr/calc\\_thr.html](http://cdfe.sinp.msu.ru/services/calc_thr/calc_thr.html)
- [Kra09] C. Kraus. *detector electronics - short*. SNO+ internal note (2009). DocDB 242-v1.
- [Leb10] O. Lebeda und M. Fikrle. *New measurement of excitation functions for (d,x) reactions on natMo with special regard to the formation of  $^{95m}Tc$ ,  $^{96m+g}Tc$ ,  $^{99m}Tc$  and  $^{99}Mo$* . Applied Radiation and Isotopes 68(2010), 12 2425 . doi: 10.1016/j.apradiso.2010.07.007.
- [Loz10] V. Lozza, P. Schrock und K. Zuber. *Neutron production due to  $^{144}Nd$  decay*. SNO+ internal note (2010). DocDB 598-v1.
- [Mah00] J. E. Mahan. *Physical Vapor Deposition of Thin Films*. John Wiley & Sons, 2000.
- [Man09] J. Maneira. *External Background*. SNO+ internal note (2009). DocDB 259-v1.

- [Man10] J. Maneira. *Physics Goals and Challenges of SNO+* (2010). Vortrag am IKTP, TU Dresden vom 30. Nov. 2010.
- [Moh69] J. B. Mohler. *Electroplating and Related Processes*. Chemical Publishing Co., 1969.
- [Mue06] M. Mueller. *Beschichtungen mit Parylen* (2006).  
URL <http://www.igb.fraunhofer.de/www/gf/grenzflmem/plasma/anlagen/dt/Parylene.html>
- [NEA99] NEA (Herausgeber). *ExFor (Experimental Nuclear Reaction Data)*. OECD Nuclear Energy Agency, 1999.  
URL <http://www.nea.fr/dbdata/x4/>
- [NEA08] NEA (Herausgeber). *JANIS (Java-based nuclear information software)*. OECD Nuclear Energy Agency, 2008. Version 3.0.1 (Feb. 2008).  
URL <http://www.nea.fr/janis>
- [NEA10] NEA (Herausgeber). *JANIS (Java-based nuclear information software)*. OECD Nuclear Energy Agency, 2010. Version 3.2 (Jun. 2010).  
URL <http://www.nea.fr/janis>
- [Nov06] V. Novikov. *Scintillator Development for SNO+*. SNO+ internal note (2006). DocDB 319-v1.
- [Oga10] I. Ogawa, T. Kishimoto *et. al.*. *Study of  $48\text{Ca}$  double beta decay with CANDLES*. Journal of Physics: Conference Series 203(2010), 1 012073.  
URL <http://stacks.iop.org/1742-6596/203/i=1/a=012073>
- [Ora04] A. Oram und S. Talbott. *Manging Projekts with make*. O'Reilly, 2004.  
URL <http://oreilly.com/catalog/make3/book/index.csp>
- [Pee09] S. Peeters. *SNO+ : Scintillator, calibration and its rich neutrino physics program*. INTERNATIONAL SCHOOL OF NUCLEAR PHYSICS (2009). Vortrag.  
URL <http://crunch.ikp.physik.tu-darmstadt.de/erice/2009/sec/talks/monday/peeters.pdf>
- [Pov06] B. Povh, K. Rith, C. Scholz und F. Zetsche. *Teilchen und Kerne*. Springer, 2006, 7. Aufl..
- [Pri10] Princeton University (Herausgeber). *John Bahcall*. 2010. Zuletzt abgerufen am 02. Dez. 2010.  
URL <http://www.sns.ias.edu/~jnb/>
- [Qui08] S. E. Quirk. *Purification of Liquid Scintillator and Monte Carlo Simulations of Relevant Internal Backgrounds in SNO+*. Queen's University, 2008. Masterarbeit.

- [Rei03] R. Reifarth, C. Arlandini *et. al.*. *Stellar Neutron Capture on Promethium: Implications for the s-Process Neutron Density*. The Astrophysical Journal 582(2003), 2 1251.  
URL <http://stacks.iop.org/0004-637X/582/i=2/a=1251>
- [Rod10] T. R. Rodriguez und G. Martinez-Pinedo. *Neutrinoless double beta decay studied with configuration mixing methods* (2010). Artikel eingereicht, arXiv: 1012.1783.
- [ROO09] ROOT Development Team (Herausgeber). *ROOT*. 2009. Version 5.24.00.  
URL <http://root.cern.ch>
- [Sch97] N. Schmitz. *Neutrino Physik*. Teubner Studienbücher, 1997.
- [Sch04] S. Schönert *et. al.*. *Gerda - A new  $^{76}\text{Ge}$  double beta decay experiment at LNGS* (2004).  
URL [www.mpi-hd.mpg.de/gerda/reportsLNGS/LoI.pdf](http://www.mpi-hd.mpg.de/gerda/reportsLNGS/LoI.pdf)
- [Shu95] Y. N. Shubin, V. P. Lunev, A. Y. Konobeyev und A. I. Ditjuk. *Cross-section data library MENDL-2 to study activation as transmutation of materials irradiated by nucleons of intermediate energies*. report INDC(CCP)-385 (International Atomic Energy Agency) (1995).
- [Shu98] Y. N. Shubin, V. P. Lunev, A. Y. Konobeyev und A. I. Ditjuk. *MENDL-2P - Proton Reaction data library for Nuclear activation (Medium Energy Nuclear Data Library)*. IAEA-NDS-204, Nuclear Data Section, IAEA, Vienna (1998).
- [SNO09] SNOLAB Team (Herausgeber). *SNOLAB (offizielle Internetseite)*. 2009. Stand: 2009.  
URL <http://www.snolab.ca/>
- [SNO10] SNO Collaboration (Herausgeber). *The Sudbury Neutrino Observatory (offizielle Internetseite)*. 2010. Stand: 13. Apr. 2009.  
URL <http://www.sno.phy.queensu.ca/>
- [Sta11] T. Stanev. *High Energy Cosmic Rays*. Springer, 2011.
- [THA08] THALYS Team (Herausgeber). *TALYS*. 2008.  
URL <http://www.talys.eu/home/>
- [Vir10] C. Virtue. *Nd Enrichment updates*. SNO+ internal note (2010). DocDB 561-v1.
- [Wan09] H. S. Wan Chan Tseung. *Quenching and Energy Resolution*. SNO+ internal note (2009). DocDB 307-v1.
- [War10] U. of Warwick (Herausgeber). *Double Beta Decay*. 2010. Abgerufen am 05. Mai 2010.  
URL <http://www2.warwick.ac.uk/fac/sci/physics/research/epp/exp/detrd/czt/cobra/betadecay.gif>
- [Win10] M. Winter. *WebElements: the periodic table on the web*. 2010. Zuletzt abgerufen am 21. Nov. 2010.  
URL <http://www.webelements.com/>

- [Wri08] A. J. Wright. *The Scintillation and Optical Properties of Linear Alkyl Benzene*. SNO+ internal note (2008). DocDB 219-v1.
- [Wri09] A. J. Wright. *Robust Signal Extraction Methods and Monte Carlo Sensitivity Studies for the Sudbury Neutrino Observatory and SNO+ Experiments*. Doktorarbeit, Queen's University, Ontario, Canada, 2009.
- [Yeh09] M. Yeh. *Nd-LS Synthesis and Purification*. SNO+ internal note (2009). DocDB 395-v1.
- [Zie98] J. F. Ziegler. *Terrestrial cosmic ray intensities*. IBM J. Res. Dev. 42(1998), 1 117. doi:<http://dx.doi.org/10.1147/rd.421.0117>.
- [Zie10] J. F. Ziegler. *The Stopping and Range of Ions in Matter* (2010). URL [www.srim.org](http://www.srim.org)
- [Zub01] K. Zuber. *COBRA—double beta decay searches using CdTe detectors*. Physics Letters B 519(2001), 1-2 1 . doi:10.1016/S0370-2693(01)01056-5.



## **Erklärung**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Philipp Schrock  
Dresden, Dezember 2010