

BESTIMMUNG
DER SPALTAUSBEUTE VON ^{60}Fe
AUS DER
SPALTUNG VON ^{235}U

DIPLOMARBEIT
von
ANGELIKA ELHARDT

Physikdepartment der Technischen Universität München

Institut E12

Prof. Dr. H.-J. Körner

Februar 1998

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde untersucht, inwieweit sich Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{60}Fe eignet, die Spaltausbeute der Masse 60 aus der neutroneninduzierten Spaltung von ^{235}U zu bestimmen.

Zur Probenherstellung wurde Eisen aus dem hochaktiven Abfall (HAWC) der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe extrahiert. Dieses Reservoir an Spaltfragmenten hat den Vorzug, daß kurzlebige Aktivitäten schon abgeklungen sind. Die dazu nötige chemische Methode wurde in Zusammenarbeit mit dem Institut für Radiochemie entwickelt und optimiert. Die Extraktion wurde in Karlsruhe in einer Heißen Zelle durchgeführt.

Für die Abschätzung des Untergrunds zum ^{60}Fe aus der Spaltung mußte der doppelte Neutroneneinfang am ^{58}Fe berücksichtigt werden. Alle anderen neutroneninduzierten Reaktionen zum ^{60}Fe haben wesentlich kleinere Wirkungsquerschnitte. Zur Abschätzung des Beitrags aus dem doppelten Neutroneneinfang wurde der bisher unbekannte Einfangsquerschnitt am ^{59}Fe bestimmt. Sein Wert für Neutronen mit einem Reaktorspektrum ist $(7,0 \pm 1,4)$ barn. Mit der ^{55}Fe -Aktivität im HAWC und einer Reihe von Spaltungs- und Aktivierungsprodukten wurde die Menge an Eisen rekonstruiert, die in den Reaktoren aktiviert worden war. Es ergab sich ein überraschend hoher Wert.

Die daraus abgeleitete Menge an ^{60}Fe aus der Aktivierung ist nicht signifikant kleiner als das Meßergebnis. Trotzdem kann für die Spaltausbeute eine obere Grenze angegeben werden. Diese berechnet sich aus der nachgewiesenen Zahl der ^{60}Fe -Atome und der Zahl der Spaltungen, die über die Aktivität von ^{137}Cs im HAWC gegeben ist. Es ergibt sich

$$Y_{60} < 1 \cdot 10^{-10} \quad .$$

Dieser Wert ist um zwei Größenordnungen kleiner als die Spaltausbeute von ^{69}Ni , dem leichtesten, bisher nachgewiesenen Kern aus der binären Spaltung von ^{235}U .

Mit den gewonnenen Erfahrungen, daß ein sehr empfindlicher Nachweis mit BMS und eine effiziente und saubere, chemische Abtrennung von Eisen aus einer komplexen und hochaktiven Lösung möglich ist, erscheint nun eine eigene Bestrahlung von ^{235}U , etwa im FRM, zur genauen Bestimmung der Spaltausbeute von Masse 60 durchführbar.

Inhaltsverzeichnis

1 Theorie und Motivation	1
1.1 Theorie der Kernspaltung	1
1.2 Besondere Arten der Kernspaltung	4
1.2.1 Ternäre Spaltung	4
1.2.2 Clusterradioaktivität	5
1.3 Motivation	5
2 Meßmethode	7
2.1 Bestimmung von Spaltausbeuten	7
2.1.1 Online-Messung	7
2.1.2 Offline-Messung	9
2.2 Prinzipielle Meßmethode	10
2.3 Auswahl des Nuklids	10
2.4 Erwartungswert für ^{60}Fe	13
2.5 Meßaufbau	13
2.5.1 Experimenteller Aufbau	13
2.5.2 BMS-Meßmethode	19
3 Probensuche und -präparation	21
3.1 Herkunft der Probe	23
3.1.1 Lebensgeschichte von Brennelementen	23
3.1.2 Prozeß der Wiederaufarbeitung	24
3.1.3 Zusammensetzung des HAWC	24
3.1.4 Abschätzung	25

3.2 Vorversuche zur Abtrennung von Eisen aus dem HAWC.....	26
3.2.1 Methode der Vorversuche.....	26
3.2.2 Getestete Trennverfahren.....	27
3.3 Abtrennung von Eisen mittels Festphasenextraktion	29
3.3.1 Prinzip.....	29
3.3.2 Ergebnisse aus den Vorversuchen.....	30
3.3.3 Abtrennung in Karlsruhe.....	31
3.3.4 Zusammensetzung der Eluatlösung	32
3.4 Probenpräparation.....	34
3.4.1 Feinreinigung	34
3.4.2 Herstellung der BMS-Probe.....	35
3.5 Erreichte Dekontaminationsfaktoren	35
4 Messung und Ergebnis	37
4.1 Messung.....	37
4.2 Abschätzungen zum Untergrund.....	39
4.2.1 Prinzipielles	39
4.2.2 CRUD	39
4.2.3 Mathematischer Formalismus.....	40
4.2.4 Vorgehensweise bei der Abschätzung	42
4.2.5 Ergebnis der Abschätzung	47
4.3 Schlußfolgerung aus Meßwert und Abschätzung	47
5 Diskussion und Ausblick.....	49
Tabellenverzeichnis	51
Abbildungsverzeichnis.....	52
Literaturverzeichnis	53
Danksagung.....	57

1 Theorie und Motivation

1.1 Theorie der Kernspaltung

O. Hahn und F. Straßmann entdeckten 1938 die Kernspaltung [HS39]. L. Meitner und R.O. Frisch gaben als erste eine korrekte Interpretation des zugrunde liegenden Prozesses [MF39, Fri39], und wenig später wurde von Bohr und Wheeler die theoretische Behandlung der Spaltung mit Hilfe des Tröpfchenmodells entwickelt [BW39].

Das Tröpfchenmodell ist Grundlage für den Potentialverlauf der Kernspaltung, wie er in Abbildung 1.1 dargestellt ist.

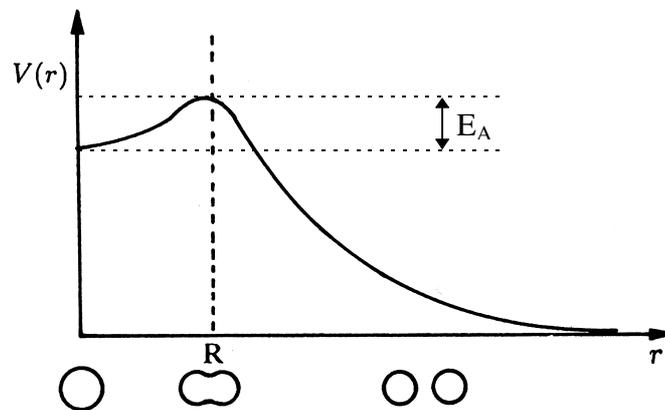


Abbildung 1.1: *Potentialverlauf bei der Kernspaltung nach dem Tröpfchenmodell*

Der zu spaltende Kern, der zu Beginn als sphärisch angenommen wird, wird langsam deformiert. Da zur Vergrößerung seiner Oberfläche gegen die Oberflächenspannung Arbeit geleistet werden muß, nimmt seine potentielle Energie zu und gleichzeitig die Coulombenergie ab. Schließlich schnürt sich der Tropfen ein und am Szissionspunkt trennen die Teile sich und fliegen auseinander. Damit es zu einer Spaltungsreaktion kommt, muß die Potentialbarriere des Kerns überwunden werden. Wird dem Kern dieser Energiebetrag E_A von außen zugeführt, spricht man von *induzierter Spaltung*. Ist die Potentialbarriere klein genug,

kann sie durchtunnelt werden. Diese Art der Spaltung wird *spontane Spaltung* genannt, wobei die Wahrscheinlichkeit dafür durch folgenden Ausdruck gegeben ist:

$$P \approx e^{-\frac{4\pi}{h}d\sqrt{2mE_A}} \quad (1.1)$$

wobei

- P = Wahrscheinlichkeit für spontane Spaltung
- m = reduzierte Masse der Spaltprodukte
- E_A = Aktivierungsenergie für die Spaltung
- d = Breite der Spaltbarriere

Der Ausdruck ist ähnlich der quantenmechanischen Durchdringungswahrscheinlichkeit von α -Teilchen beim α -Zerfall.

Als Beispiel seien die beiden Uranisotope ^{235}U und ^{238}U angeführt. Die Spaltschwelle für ^{235}U beträgt 6,8MeV, was in etwa der Bindungsenergie eines Neutrons im Grundzustand des Compoundkerns ^{236}U entspricht. Die Bindungsenergie eines Neutrons im ^{239}U beträgt dagegen nur 5,3MeV, während zur Überwindung der Spaltschwelle 7,1MeV nötig sind. Der Grund dafür ist, daß beim Neutroneneinfang an Kernen mit ungerader Neutronenzahl zusätzlich Paarungsenergie frei wird. Deswegen kann die Spaltung von ^{235}U schon durch thermische Neutronen eingeleitet werden, während für ^{238}U schnelle Neutronen benötigt werden.

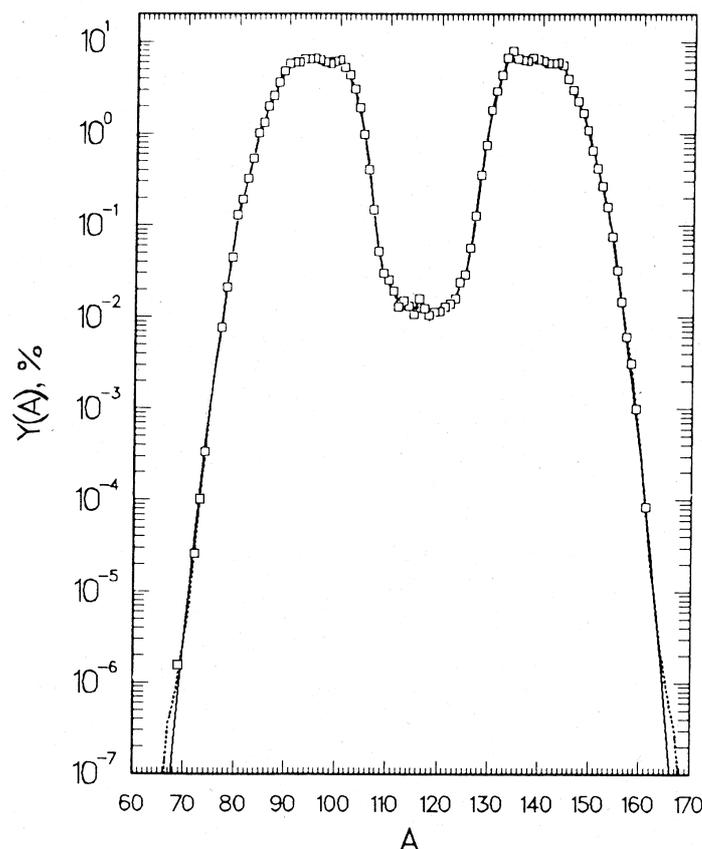


Abbildung 1.2: Massenverteilung der Spaltfragmente aus der thermischen ^{235}U -Spaltung; es ist die Spaltausbeute Y gegen die Massenzahl A aufgetragen (Experimentelle Werte; punktiert: Modellrechnung) [Wah88]

Bei der Spaltung entstehen zum überwiegenden Teil zwei Bruchstücke ähnlicher Masse, die den Hauptteil der bei der Spaltung frei werdenden Energie als kinetische Energie mitnehmen. Außerdem werden meist einige Neutronen frei gesetzt. In Abbildung 1.2 ist die Massenverteilung der Spaltprodukte aus der thermischen¹ ^{235}U -Spaltung dargestellt. Man sieht deutlich eine unsymmetrische Verteilung mit Massenschwerpunkten bei $A = 96$ und $A = 140$. Der Wert für Masse 69 ist zusätzlich eingetragen. ^{69}Ni ist der bisher leichteste Kern, für den bei der Spaltung von ^{235}U in zwei Bruchstücke die Spaltausbeute gemessen wurde. Die Spaltausbeute beträgt $1,4 \cdot 10^{-8}$ [SAB⁺89].

Die Massenverteilungen von unterschiedlichen Spaltsystemen zeigen eine starke Abhängigkeit von der Masse und der Anregungsenergie des spaltenden Kerns. Für Kerne im Gebiet des Poloniums ($Z = 84$) wird eine schmale, symmetrische Massenverteilung der Spaltfragmente beobachtet. Zum Radium ($Z = 88$) hin tritt zur symmetrischen eine asymmetrische Massenverteilung. Vom Thorium ($Z = 90$) bis zum Californium ($Z = 98$) ist die Massenverteilung asymmetrisch, bei ^{258}Fm ($Z = 100$) ist wieder, wie bei Radium, auch symmetrische Spaltung günstig. Zusätzlich wird beobachtet, daß mit zunehmender Anregungsenergie der spaltenden Compoundkerne die symmetrische Komponente wächst.

In der weiteren Arbeit wird nur noch auf die Spaltausbeute aus der Spaltung von ^{235}U durch Neutronen mit einer Energieverteilung, wie sie in einem Kernreaktor vorliegt, eingegangen.

Die theoretische Beschreibung von Phänomenen bei der Spaltung, wie z.B. symmetrische und asymmetrische Massenverteilungen, erfordern eine Kombination von Tröpfchenmodell und Schalenmodell. Diese Verfahren ergeben mehrdimensionale Flächen der potentiellen Energie des deformierten Kernsystems. Zur Anschauung ist in Abbildung 1.3 die potentielle Energieoberfläche von ^{240}Pu als Funktion der Deformation Q_{20} und der Asymmetrie Q_{30} dargestellt. Das 1. Minimum der potentiellen Energie stellt den Grundzustand des spaltenden Kerns dar. Das zweite Minimum, in dem sich der Kern schon in einem stärker deformierten Zustand befindet, ist ein metastabiler Zustand, der durch Durchtunneln der Barriere erreicht werden kann. Zu größeren Deformationen hin, bieten sich dem Kern zwei Möglichkeiten für seinen weiteren Weg zur Spaltung: über die Barriere nach dem 2. Minimum oder um die Barriere herum, wobei sich der Kern dann in Richtung zu größeren Asymmetrien bewegt. Die zweite Möglichkeit ist die energetisch günstigere und deswegen auch die wahrscheinlichere. Es wird also die asymmetrische Spaltung bevorzugt.

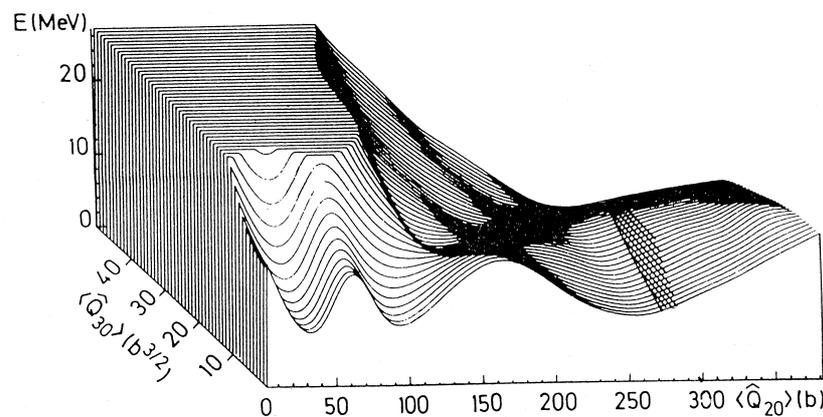


Abbildung 1.3: Energieoberfläche von ^{240}Pu als Funktion der Deformation Q_{20} und der Asymmetrie Q_{30} [BGG84]

¹ Unter "thermischer Spaltung" versteht man die durch thermische Neutronen induzierte Spaltung.

1.2 Besondere Arten der Kernspaltung

Bei der binären¹ Spaltung zerfällt ein schwerer Kern in zwei mittelschwere Kerne mit ähnlicher Masse (siehe Massenverteilung in Abbildung 1.2). Der zweite bevorzugte Zerfallsprozeß bei der Umordnung der Nukleonen eines Kerns ist der α -Zerfall. Dabei emittiert ein schwerer Kern einen Heliumkern. Es gibt aber noch andere Zerfallsprozesse, deren Wahrscheinlichkeit nur sehr viel geringer ist und die deswegen kaum beobachtet werden. Zwei von ihnen werden im folgenden näher erläutert:

1.2.1 Ternäre Spaltung²

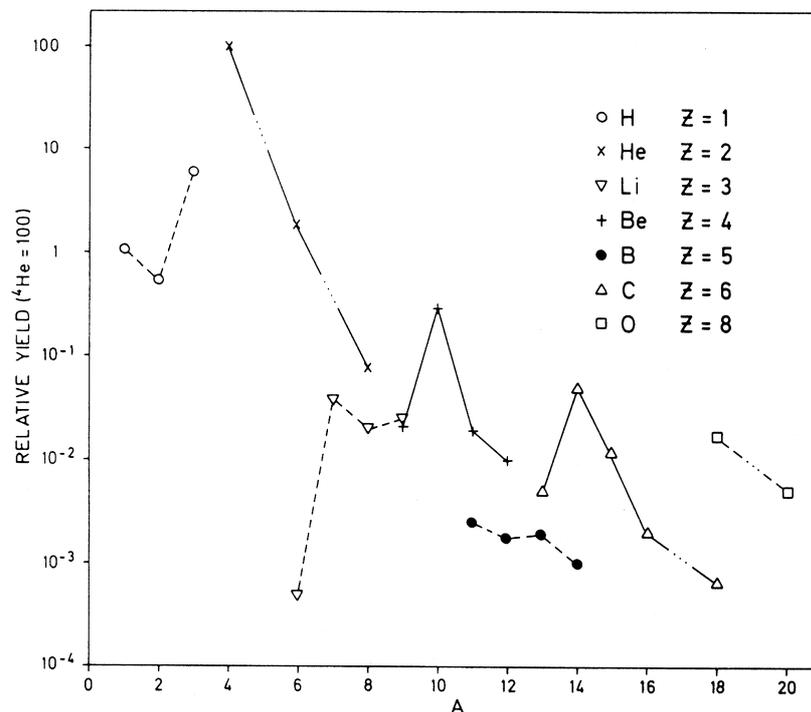


Abbildung 1.4: Ausbeuten der leichtesten Teilchen bei der ternären Spaltung von ^{235}U [Wag89]

R.D. Present erkannte 1941 erstmals, daß Kerne durch die Anregung mit thermischen Neutronen auch in drei Bruchstücke spalten können [Pre41]. G. Farwell, E. Segrè und C. Wiegand fanden 1944 experimentell langreichweitige ^4He -Kerne (long range alpha - LRA³) in Koinzidenz mit Spaltprodukten bei der Spaltung von ^{235}U und ^{239}Pu [FSW47]. Nur etwa einmal bei 400 Spaltungen entstehen drei Bruchstücke, zwei ähnlich schwere und ein sehr viel leichteres. Die häufigsten leichten Teilchen (90%) sind "hochenergetische" (wahrscheinlichste

¹ Es wird oft nur von Spaltung geredet, wenn die binäre Spaltung gemeint ist.

² Eine umständlichere, aber präzisere Bezeichnung für ternäre Spaltung ist "Spaltung in Begleitung leichter geladener Teilchen". Damit ist der Unterschied zur Emission von Neutronen bei der binären Spaltung eindeutig.

³ Die Bezeichnung langreichweitig dient zur Unterscheidung von den kurzreichweitigen α -Teilchen aus dem radioaktiven Zerfall, deren kinetische Energien typischerweise 5MeV betragen.

Energie 16MeV) Heliumkerne. Daneben werden auch alle Wasserstoffisotope sowie deutlich seltener auch schwere *leichte Teilchen* emittiert. In Abbildung 1.4 sind die bei der durch thermische Neutronen induzierten ternären Spaltung von ^{235}U beobachteten leichten Teilchen und ihre relativen Ausbeuten aufgetragen. Es ist üblich, die Ausbeute relativ zur Ausbeute von ^4He anzugeben. Das schwerste *leichte Teilchen*, das bisher gefunden wurde, ist ^{24}Ne aus der Spaltung von ^{233}U [WHJ⁺97]. Das schwerste nachgewiesene *leichte Teilchen* aus der Spaltung von ^{235}U ist ^{21}O mit einer Ausbeute¹ von $4,5 \cdot 10^{-2}$ bzw. ^{22}O mit einer Obergrenze für die Ausbeute von $2,0 \cdot 10^{-4}$ [MT96].

1.2.2 Clusterradioaktivität

Unter Clusterradioaktivität versteht man die spontane Emission von leichten Kernen, die größer als der Heliumkern sind. 1984 entdeckten Rose und Jones erstmals einen solchen Zerfall [RJ84]. Das radioaktive Nuklid ^{223}Ra wandelt sich nicht nur durch den dominierenden α -Prozeß um, sondern in seltenen Fällen auch durch die Emission von ^{14}C -Kernen. Die Wahrscheinlichkeit für diese Reaktion ist allerdings außerordentlich klein. Das Verhältnis zwischen ^{14}C -Emission und α -Umwandlung beträgt für ^{223}Ra nur etwa $8 \cdot 10^{-10}$. Seither war das Interesse der Kernphysiker groß, die Frage zu klären, ob ^{14}C der einzige radioaktive Kern ist, der von schweren Kernen emittiert wird. Schon Ende 1984 wurde die Emission von ^{24}Ne bei der Umwandlung von ^{233}U beobachtet. Das schwerste Cluster, das bis jetzt entdeckt wurde, ist der Kern ^{32}Si . Er wurde als erstes beim Zerfall von ^{238}Pu in zwei Bruchstücke beobachtet und zwar mit einer Ausbeute² von $(1,38 \pm 0,5) \cdot 10^{-16}$ [WSP⁺89]. Für ^{235}U sind die schwersten nachgewiesenen Kerne, die spontan emittiert werden, $^{24,25}\text{Ne}$ mit einer Ausbeute von jeweils $(8,06 \pm 4,32) \cdot 10^{-12}$ [TZK⁺89, BCG⁺91].

1.3 Motivation

Das bezüglich der Spaltung noch unerforschte Massengebiet der Spaltprodukte ist eingegrenzt durch die letzten Meßwerte der binären und der ternären Spaltung und außerdem der Clusterradioaktivität. Speziell für ^{235}U handelt es sich um das Massengebiet zwischen $A = 22$ und $A = 69$, in dem es noch keine experimentell bestimmten Spaltausbeuten gibt. Spaltfragmente mit einer Masse $A < 69$ sind also sehr interessant bezüglich ihrer Entstehung, wobei folgende theoretische Möglichkeiten zur Auswahl stehen:

1. Der betrachtete Kern entsteht bei einer extrem asymmetrischen Spaltung in zwei Bruchstücke, wobei das zweite Spaltprodukt entsprechend extrem schwer sein muß.
2. Der Kern entsteht bei der ternären Spaltung neben zwei schwereren Bruchstücken.

Es gibt noch keine umfassende Theorie zur Kernspaltung, die eine sichere Vorhersage zu Spaltausbeuten von Nukliden in beliebigem Massenbereich erlaubt.

Für den Massenbereich von $A = 69$ bis $A = 90$, also den Flügel der Doppelhöckerkurve zu kleinen Massen hin, gibt es einen empirisch gefundenen Zusammenhang zwischen Spaltaus-

¹ Die Ausbeute wird hier in Einheiten von 10^{-4} der ternären α -Ausbeute angegeben.

² Die Ausbeute bei der Clusterradioaktivität gibt meist das Verhältnis aus Wahrscheinlichkeit der Cluster-Emission zur Wahrscheinlichkeit für α -Zerfall an.

beute und Q-Wert der Spaltung von ^{235}U [Fau94]. In Abbildung 1.5 sieht man die Meßdaten der Spaltausbeuten für die Nuklide im Massenbereich zwischen 70 und 87 einfach logarithmisch aufgetragen gegen den jeweiligen Q-Wert der Spaltungsreaktion. Die Gerade stellt den Fit an die Meßpunkte dar und wird durch Gleichung (1.2) beschrieben.

$$\ln Y = 0,544 \cdot Q - 95,861 \quad (1.2)$$

Dabei ist

Y = Spaltausbeute in %

Q = Massendifferenz zwischen dem Zustand vor der Spaltung und dem Zustand danach in MeV

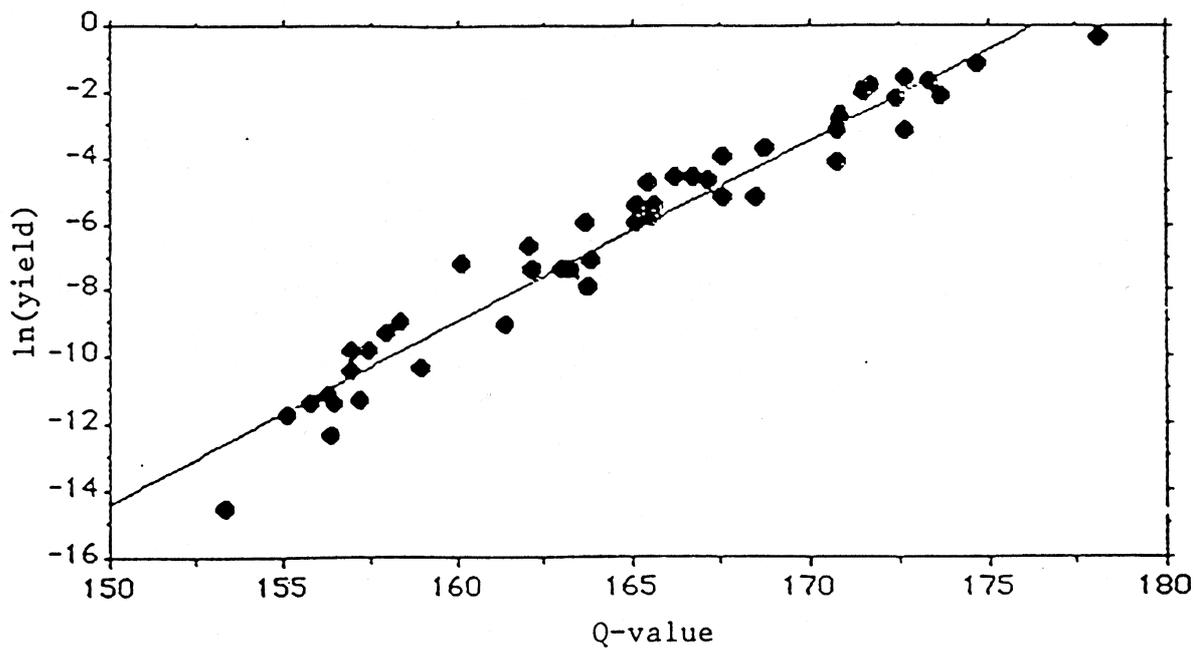


Abbildung 1.5: empirischer Zusammenhang zwischen Spaltausbeute und Q-Wert der Spaltungsreaktion; gültig für den Massenbereich $A < 90$ [Fau94]

Im Rahmen dieser Arbeit soll ein neuer Meßpunkt für Spaltausbeuten in dem noch unerforschten Massenbereich zwischen $A = 22$ und $A = 69$ geliefert werden. Mit Beschleuniger-massenspektrometrie (BMS), die kleinste Konzentrationen von Radionukliden nachweisen kann, sollte eine höhere Empfindlichkeit als mit üblichen Methoden erreichbar sein.

2 Meßmethode

2.1 Bestimmung von Spaltausbeuten

Prinzipiell gibt es zwei unterschiedliche Methoden zur Bestimmung von Spaltausbeuten, die im folgenden kurz vorgestellt werden sollen.

2.1.1 Online-Messung

Bei dieser Methode werden die Spaltprodukte direkt nach ihrer Entstehung analysiert. Dazu werden als Beispiel zwei Experimente beschrieben.

a) Experiment von Armbruster [Arm61]

Vor über 35 Jahren war Armbruster einer der ersten, die Spaltausbeuten bestimmt haben. Er hat dazu am FRM¹ ein Experiment aufgebaut, dessen Aufbau kurz beschrieben werden soll:

In einem Strahlrohr werden Neutronen aus dem Reaktor auf ein 20% angereichertes ²³⁵U-Target geschossen. Die dabei entstehenden Spaltprodukte werden untersucht, indem sie in einem gasgefüllten Magnetfeld nach ihrer Masse analysiert² und anschließend in einem CsI(Tl)-Szintillationszähler nachgewiesen werden. Die Verwendung eines gasgefüllten Magnetfeldes macht eine Massenanalyse möglich.

Für die magnetische Steifigkeit in einem Magnetfeld B gilt

$$B \cdot \rho \propto \frac{A \cdot v}{q} \quad (2.1)$$

wobei

$$q \propto v \cdot Z^{1/3} \quad (2.2)$$

¹ FRM: Forschungsreaktor München

² Diese relativ einfache Methode, bei der die Spaltprodukte durch ein mit Gas gefülltes Magnetfeld abgelenkt werden, ist zuerst von Fulmer und Cohen angewendet worden [CF58].

und

$B \cdot \rho$ = magnetische Steifigkeit

v = Geschwindigkeit der Spaltprodukte

Da die Schwankungen der Ionenladung der Spaltprodukte um den Wert q beträchtlich ist, würde jegliche Struktur einer Massenverteilung überdeckt werden. Durchlaufen die Teilchen allerdings ein mit Gas gefülltes Magnetfeld, so treten Umladungsstöße auf. Es stellt sich ein mittlerer Ladungszustand \bar{q} ein, dessen Schwankungsbreite mit zunehmender Zahl an Umladungsstößen abnimmt. Zusammen mit Gleichung (2.2) gilt deswegen für die magnetische Steifigkeit im gasgefüllten Magnetfeld:

$$B \cdot \rho \approx \text{const} \cdot A^{2/3} \quad (2.3)$$

$B \cdot \rho$ ist somit also nur mehr von der Masse abhängig, wobei die in kleinen Massenbereichen stets gültige Linearität zwischen A und Z verwendet wurde. Fährt man nun das Magnetfeld durch, analysiert man nach den verschiedenen Massen. In Abbildung 2.1 ist die Abhängigkeit der im Detektor registrierten Impulse pro Zeit von der magnetischen Steifigkeit aufgezeichnet. Diese Kurve ist der "Doppelhöckerkurve", wie sie in Abbildung 1.2 gezeigt ist, sehr ähnlich.

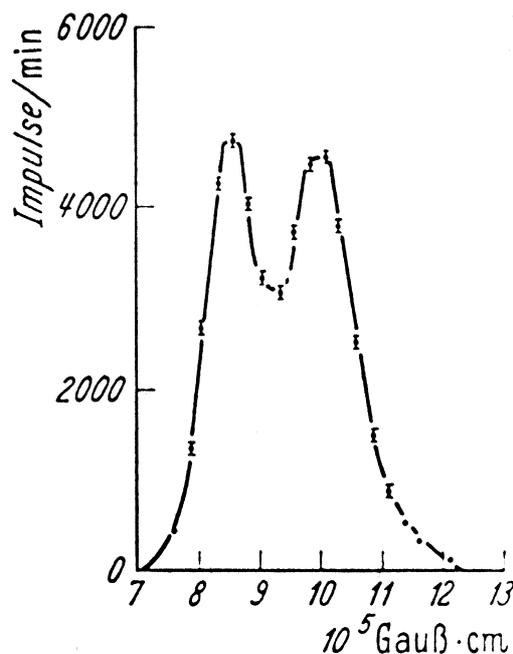


Abbildung 2.1: Verteilung der Spaltprodukte [Arm 61]

Die Massenauflösung mit dieser Methode wird durch folgende Faktoren begrenzt:

- Schwankungen der mittleren Ladung \bar{q}
- Abweichungen in der Proportionalität zwischen der mittleren Ladung \bar{q} und der Geschwindigkeit v
- Vielfachstreuung der Spaltprodukte, deren Anzahl mit abnehmender Energie der schweren Ionen stark ansteigt

b) Fragmentseparator LOHENGRIN

Der Fragmentseparator LOHENGRIN am ILL¹ in Grenoble dient zur Bestimmung der Isotopenausbeuten der mit thermischen Neutronen induzierten Kernspaltung [MSS⁺75]. Es werden Spaltausbeuten im asymmetrischen Massenbereich der binären Spaltung und außerdem die Ausbeuten von schweren *leichten Teilchen* aus der ternären Spaltung gemessen. Im folgenden wird der Meßaufbau kurz beschrieben. Ein Target aus einem spaltbaren Aktinidenisotop wird in einem Strahlrohr mit thermischen Neutronen bestrahlt. Die dabei entstehenden Spaltprodukte treten mit etwa 50 bis 110 MeV kinetischer Energie aus dem Target aus, verlieren dabei Hüllenelektronen und werden so auf etwa $q = 20^+$ ionisiert [MEW⁺70]. Die Ionen fliegen ungebremst in einem evakuierten Strahlrohr durch einen Ablenkmagneten, der sie nach dem Impuls pro Ionenladung horizontal separiert und anschließend durch einen Zylinderkondensator, wo sie vertikal nach dem Quotienten aus kinetischer Energie und Ionenladung separiert werden. Durch den Einsatz eines weiteren Magneten, dem RED²-Magneten, kann eine erneute Impulsanalyse stattfinden und außerdem eine Unterdrückung der im Separator gestreuten oder umgeladenen Ionen erzielt werden. Die nach ihrem Verhältnis von Masse zu Ionenladung separierten Spaltprodukte werden in einer Parallelplatten-Ionisationskammer [BBF88, HFF⁺93] nachgewiesen. Es wird ein Energieverlust- und ein Restenergiesignal aufgenommen. Die totale kinetische Energie erhält man durch einfache Summation von ΔE und E_{Rest} . Durch Kenntnis von A/q aus der Separation, der totalen kinetischen Energie und der Restenergie kann man auf die Masse, Ionenladung, Energie und Kernladungszahl der Spaltprodukte schließen und sie damit identifizieren. Die Spaltausbeute für den leichtesten Kern aus der binären Spaltung von ^{235}U ist am Fragmentseparator LOHENGRIN in Grenoble gemessen worden. Es handelt sich dabei um ^{69}Ni mit einer Ausbeute von $1,4 \cdot 10^{-8}$ [SAB⁺89].

2.1.2 Offline-Messung

Im Gegensatz zu der vorher erläuterten Methode bestrahlt man ein Target aus einem spaltbaren Nuklid, trennt mit radiochemischen Methoden das interessierende Spaltprodukt vom bestrahlten Target ab und kann dann seine Spaltausbeute über die Messung der Aktivität bestimmen. Es gibt nur sehr wenig experimentelle Daten für Spaltausbeuten im super-asymmetrischen Massenbereich ($A \leq 70$ bzw. $A \geq 160$), da die Messung von immer kleineren Ausbeuten immer effektivere radiochemische Trennschritte erfordert. Es ist nötig, Aktivitäten in der Größenordnung von wenigen Ereignissen pro Minute von einem bestrahlten Target abtrennen zu können. Das leichteste Spaltprodukt aus der neutroneninduzierten Spaltung von ^{235}U , dessen Spaltausbeute mit dieser Methode bestimmt wurde, ist ^{72}Cu , wobei die Spaltausbeute $(5,85 \pm 2,34) \cdot 10^{-6}$ % beträgt. Für ^{66}Ni und ^{67}Cu konnten jeweils Obergrenzen angegeben werden:

$$Y(^{66}\text{Ni}) \leq 4,60 \cdot 10^{-9} \% \quad \text{und} \quad Y(^{67}\text{Cu}) \leq 1,60 \cdot 10^{-8} \%$$

Die Unsicherheiten in diesem asymmetrischen Massenbereich liegen zwischen 20 und 40% [IBR⁺79].

¹ ILL: Institut Max von Laue - Paul Langevin

² RED: Reverse Energy Dispersion

2.2 Prinzipielle Meßmethode

Die prinzipielle Schwierigkeit bei Methode 2.1.1 und 2.1.2 ist, die Spaltprodukte mit sehr geringer Spaltausbeute über dem Untergrund nachzuweisen. Deswegen wurde für den Aufbau dieses Spaltproduktexperiments eine Kombination beider Methoden gewählt, die hier kurz beschrieben werden soll.

Zuerst werden Spaltprodukte gesammelt. Danach wird aus dem Nuklidgemisch das Isotop, dessen Spaltausbeute bestimmt werden soll, durch chemische Abtrennungsschritte isoliert. Durch diesen Schritt wird man den Untergrund aus Nukliden hoher Spaltausbeuten in erster Näherung los. Mit Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) können dann sehr empfindlich kleinste Konzentrationen eines Nuklids nachgewiesen werden. Besonders günstig ist, daß die zu messenden Nuklide in einem Beschleuniger eine definierte Energie erhalten. Im Vergleich dazu unterliegen die Spaltprodukte bei den Online-Messungen einer Geschwindigkeitsverteilung. Wie die Untergrundunterdrückung fremder Massen durch den Beschleuniger und das Detektorsystem funktioniert, wird in Kapitel 2.5 beschrieben. Es soll an dieser Stelle nur erwähnt werden, daß durch elektrostatische und magnetische Ablenkungen bis zum Detektor insbesondere die Isobare nicht abgetrennt werden können. Deswegen wird vor dem Detektor noch ein gasgefülltes Magnetfeld eingeschoben, mit dem eine sehr empfindliche Untergrundunterdrückung erreicht wird. Auf das gesamte Meßsystem wird im Kapitel 2.5 genauer eingegangen.

2.3 Auswahl des Nuklids

Das Nuklid, dessen Spaltausbeute, wie oben beschrieben, bestimmt werden kann, muß folgende Anforderungen erfüllen:

1. Es ist ein Radionuklid (RN) gesucht, dessen Halbwertszeit lang genug ist. Ein stabiles Nuklid kommt für die BMS nicht in Frage, da der natürliche Untergrund zu hoch ist. Wie in Kapitel 2.2 erläutert, wird aus vielen Spaltungen Material gesammelt, aus dem man dann das gewünschte Nuklid extrahiert. Während der Zeit der Aufbewahrung und Sammlung darf das Nuklid nur soweit zerfallen, daß es zum Zeitpunkt der Messung noch nachzuweisen ist.
2. Das Nuklid sollte nicht durch konkurrierende Reaktionen gebildet werden können. In Frage kommen Reaktionen wie z. B.:

stabil (n, γ) RN
 stabil (2n, γ) RN
 stabil (n, 2n) RN
 stabil (n, α) RN
 stabil (n, p) RN
 stabil (n, pn) RN

.....

3. Das Nuklid darf nicht abgeschirmt sein, d. h. es muß ein direktes Tochterelement eines primären Spaltprodukts sein.
4. Das Nuklid muß geeignet sein, um mit BMS gemessen werden zu können. Dafür kommen prinzipiell alle langlebigen Radionuklide mittlerer Masse in Frage, wobei mit dem empfindlichen Detektorsystem GAMS hier im Beschleunigerlabor folgende Nuklide in

anderen Zusammenhängen schon erfolgreich gemessen wurden: ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{59}Ni , ^{60}Fe , ^{129}I , u. a.

Sucht man nun die Nuklidkarte gezielt nach Nukliden ab, die die oben aufgezählten Anforderungen erfüllen, kommt man zu folgendem Ergebnis: ^{32}Si , ^{60}Fe , ^{182}Hf , ^{194}Os sind Isotope, die diese Bedingungen grundsätzlich erfüllen. In Tabelle 2.1 sind diese Nuklide und ihre Halbwertszeit zusammengestellt.

Nuklid	$T_{1/2}$
^{32}Si	172a
^{60}Fe	$1,5 \cdot 10^6$ a
^{182}Hf	$9 \cdot 10^6$ a
^{194}Os	6,0a

Tabelle 2.1: Nuklide, deren Spaltausbeute prinzipiell mit BMS gemessen werden kann und ihre Halbwertszeit

Von den prinzipiell möglichen Nukliden (s. Tabelle 2.1) wurde für diese Arbeit ^{60}Fe ausgewählt. Mit diesem Nuklid bietet sich die Möglichkeit, für den noch unerforschten Massenbereich der Spaltung von ^{235}U ($A = 22$ bis $A = 69$) einen neuen Meßwert zu liefern. Die Vorzüge von ^{60}Fe werden im folgenden kurz aufgeführt.

1. ^{60}Fe hat mit $1,5 \cdot 10^6$ Jahren eine so lange Halbwertszeit, daß es für den zu betrachtenden Zeitraum von einigen Jahrzehnten als stabil angenommen werden kann.
2. Anhand der Nuklidkarte in Abbildung 2.3 erkennt man, daß der Untergrund durch Neutronenreaktionen klein sein sollte. Die Wirkungsquerschnitte für einige störende Reaktionen sind in Abbildung 2.2 dargestellt.

Es ist ersichtlich, daß diese Wirkungsquerschnitte alle eine Energieschwelle im Bereich einiger MeV haben. Deswegen kann man diese Reaktionen als Konkurrenzreaktionen zur Spaltung für die Produktion von ^{60}Fe vernachlässigen. Eine Reaktion, die noch unerwähnt geblieben ist, ist der doppelte Neutroneneinfang am ^{58}Fe . ^{58}Fe ist ein stabiles Isotop, dessen natürliche Häufigkeit 0,28% beträgt. Der Einfangswirkungsquerschnitt für thermische Neutronen am ^{58}Fe ist 1,3barn, der für ^{59}Fe war bis jetzt nicht bekannt. Auf diese Konkurrenzreaktion und die Bedeutung für diese Arbeit wird in Kapitel 4 genauer eingegangen.

3. Das Verhältnis von Neutronen- zu Protonenzahl beim Kern ^{235}U liegt bei 1,55. Bei der Spaltung bilden sich bevorzugt wieder Kerne mit einem ähnlichen Verhältnis, d.h. sehr neutronenreiche Kerne. Durch β -Zerfall erreichen diese Kerne dann das Stabilitätstal. In der Zerfallsreihe von $A = 60$ ist ^{60}Ni das einzige stabile Nuklid, d.h. ^{60}Fe ist nicht abgeschirmt, ist also durch den β -Zerfall primärer Spaltprodukte mit der Masse 60 direkt zu erreichen.
4. ^{60}Fe eignet sich sehr gut zur Messung mit BMS. Besonders günstig ist, daß das störende Isobar ^{60}Ni zwei Kernladungen entfernt ist.

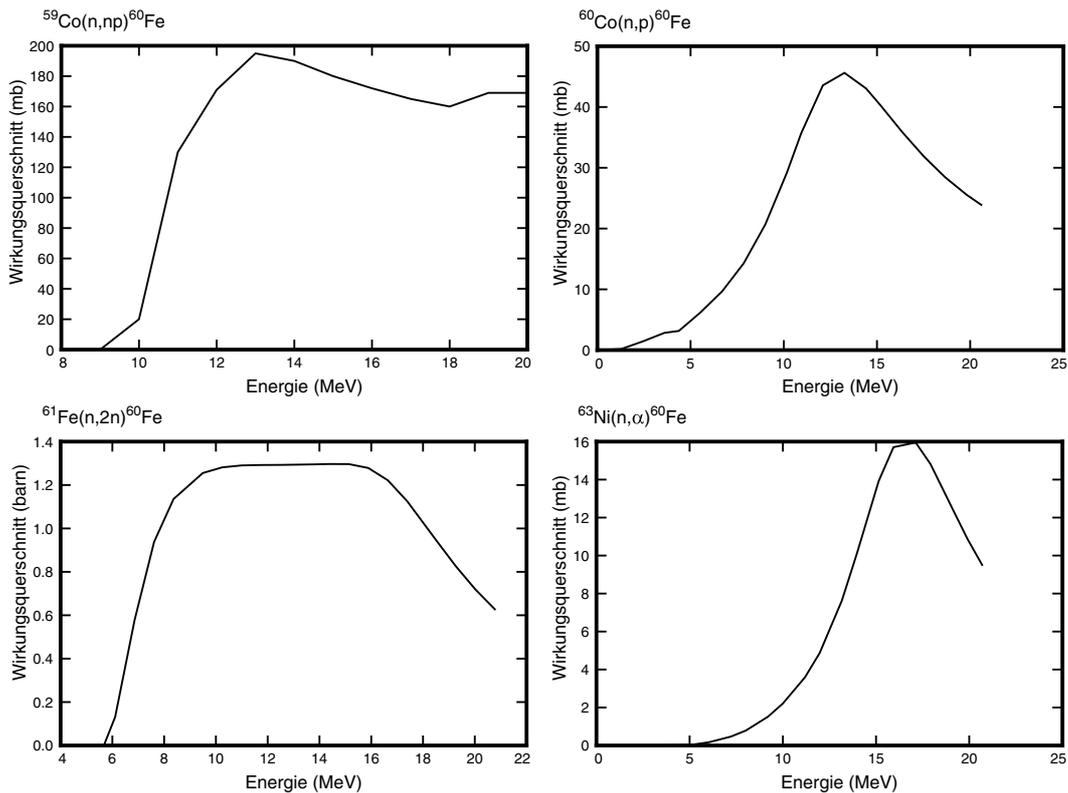


Abbildung 2.2: Wirkungsquerschnitte von Reaktionen, die durch Neutroneneinfang das Nuklid ^{60}Fe bilden. Der Wirkungsquerschnitt für $^{59}\text{Co}(n,np)^{60}\text{Fe}$ stammt aus der Datenbank ENDF/B-VI, die anderen aus der Datenbank ADL-3T. [Nuc97]

^{32}Si ist ein weiterer interessanter Kandidat für die Bestimmung seiner Spaltausbeute. Der Kern wurde schon beim Zerfall von ^{238}Pu in zwei Bruchstücke nachgewiesen, also bei einer extrem asymmetrischen Spaltung (s. Kapitel 1.2.2). Es wird außerdem vermutet, daß ^{32}Si ein schweres *leichtes Teilchen* aus der ternären Spaltung ist.

Die Nuklide ^{182}Hf und ^{194}Os sind wegen ihrer großen Masse mit BMS nur sehr schwer meßbar.

Ni 54	Ni 55	Ni 56	Ni 57	Ni 58	Ni 59	Ni 60	Ni 61	Ni 62	Ni 63	Ni 64
	212ms	6,075d	36,0h	68,08%	$7,5 \cdot 10^4$ a	26,22%	1,14%	3,63%	100a	0,97%
Co 53	Co 54	Co 55	Co 56	Co 57	Co 58	Co 59	Co 60	Co 61	Co 62	Co 63
247 ms 240 ms	1,48 min 193,2 ms	17,54h	77,26d	271,79d	8,94 h 70,86 d	100%	10,5 min 5,272 a	1,65h	14,0 min 1,5 min	27,5s
Fe 52	Fe 53	Fe 54	Fe 55	Fe 56	Fe 57	Fe 58	Fe 59	Fe 60	Fe 61	Fe 62
45,9 s 8,27 h	2,5 min 8,51 min	5,8%	2,73a	91,72%	2,2%	0,28%	44,503d	$1,5 \cdot 10^6$ a	6,0min	68s
Mn 51	Mn 52	Mn 53	Mn 54	Mn 55	Mn 56	Mn 57	Mn 58	Mn 59	Mn 60	Mn 61
46,2m	21 min 5,6 d	$3,7 \cdot 10^6$ a	312,2d	100%	2,58h	1,5min	65,3 s 3,0 s	4,6s	1,77 s 51 s	0,71s

Abbildung 2.3: Ausschnitt aus der Karlsruher Nuklidkarte [Kar95]

2.4 Erwartungswert für ^{60}Fe

Bevor nun näher auf den Meßaufbau und seine einzelnen Komponenten eingegangen wird, soll hier kurz angegeben werden, wieviel ^{60}Fe aus der Spaltung von ^{235}U erwartet wird. Extrapoliert man in Abbildung 1.2 die Kurve der Spaltausbeuten unter Annahme eines weiterhin exponentiellen Abfalls zu kleinen Massen hin, ergibt sich für Masse 60 eine Spaltausbeute von etwa $1 \cdot 10^{-13}$. Dies stellt allerdings eine ungenaue Methode dar.

Ein anderes Ergebnis erhält man mit der empirischen Formel von FAUST, Gleichung (1.2), die in Kapitel 1.3 vorgestellt wurde:

$$\ln Y = 0,544 \cdot Q - 95,861$$

Mit $Q = 138,51\text{MeV}$ für die Spaltung von ^{235}U ergibt sich für ^{60}Fe die Spaltausbeute zu $1,2 \cdot 10^{-11}$. Die für Masse 60 akkumulierte Spaltausbeute beträgt $2 \cdot 10^{-11}$. Der Q -Wert wurde mit folgender Gleichung berechnet [Fau94]:

$$Q = \Delta(^{236}\text{U}) - \Delta(f_1) - \Delta(f_2) \quad (2.4)$$

wobei

Δ = Massenüberschuß

$f_{1,2}$ = Spaltfragmente

2.5 Meßaufbau

Die Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) ist eine höchst empfindliche Methode, mit der langlebige Radionuklide in kleinsten Konzentrationen gemessen werden können. Bei dieser Methode werden die nachzuweisenden Nuklide durch ihre Masse und ihre Kernladungszahl identifiziert. Die dazu notwendigen kinetischen Energien von bis zu 200MeV pro Ion können mit dem Garching Tandem-VAN-DE-GRAAFF-Beschleuniger erreicht werden.

2.5.1 Experimenteller Aufbau

Der gesamte experimentelle Aufbau ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Auf einige Komponenten zwischen Ionenquelle und Detektor wird im weiteren genauer eingegangen.

a) Die Hochstromionenquelle

Der Vorteil eines Tandembeschleunigers, die Beschleunigungsspannung mehrfach ausnützen zu können, erfordert den Einschluß von negativen Ionen in den Beschleuniger.

Bei einer Hochstromionenquelle (Abbildung 2.5) [Mid83] wird aus einem beheizten Cäsiumreservoir Cäsiumdampf in die Quelle geleitet, der sich auf einem halbkugelförmig gewickelten Ionisator [KSU88, Urb86] aus Tantaldraht niederschlägt. Der aus Wolfram gefertigte Innenleiter des Tantaldrahts wird durch einen Strom von knapp 10A auf ungefähr 1000°C geheizt. Da die Ionisationsenergie von Cäsium mit $3,89\text{eV}$ [Wea70] niedriger ist als die Elektronenaustrittsarbeit von Tantal mit $4,1\text{eV}$ [MW75], kann Cäsium als positives Ion desorbieren und wird auf das gegenüber dem Ionisator auf -6kV liegende Target hin beschleunigt.

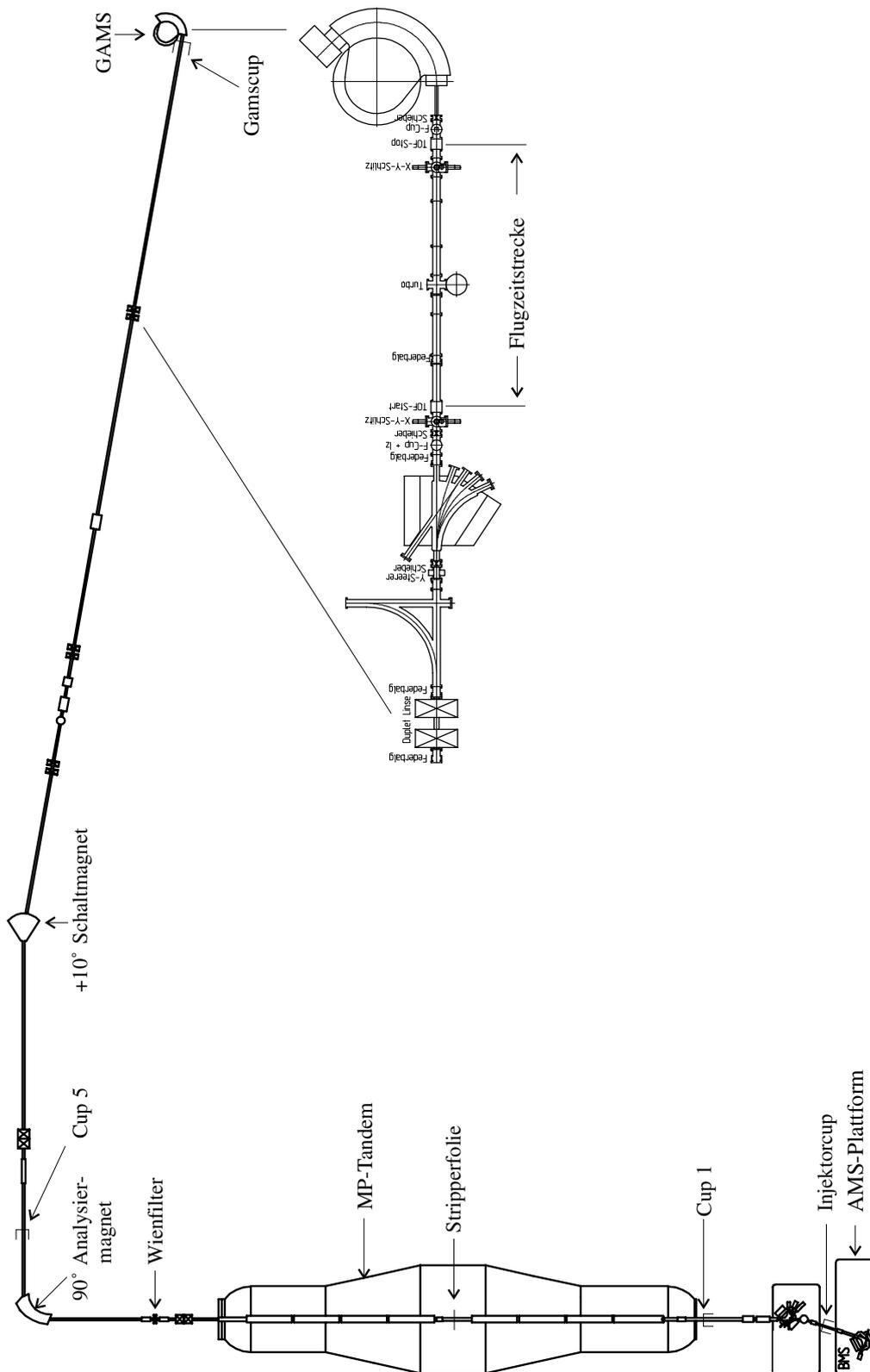


Abbildung 2.4: Experimenteller Aufbau (Tandem-VAN-DE-GRAAFF-Beschleuniger mit Quelle, Strahlführung und Detektorsystem GAMS)

Die auf 6kV beschleunigten Cs^+ -Ionen geben ihre Energie im Target ab, so daß neutrale Atome oder Moleküle, sowie positive und negative Ionen oder Molekülionen aus der Oberfläche herausgeschlagen werden. Bei diesem Prozeß können mehrfach positiv geladene Ionen gebildet werden, aber nur einfach negativ geladene. Die Ausbeute hängt u. a. von der jeweiligen Elektronenaffinität¹ ab. Nur Elemente, deren Elektronenaffinität größer als null ist, bilden überhaupt stabile negative Ionen. Im Fall von ^{60}Fe ist die Ausbeute des störenden Isobars ^{60}Ni ($E_A = 1,156\text{eV}$) [Smi82] gegenüber der von ^{60}Fe ($E_A = 0,16\text{eV}$) [Smi82] aus diesem Grund um den Faktor zwanzig größer. Deswegen verwendet man bei ^{60}Fe -Messungen Oxidionen ($E_A(\text{FeO}) = 1,49\text{eV}$) [Smi82], mit denen ähnliche Ströme im Vergleich zu Nickeloxiden erreicht werden können [SFKK95]. Somit erreicht man schon in der Quelle eine erste Isobarenunterdrückung. Die einfach negativ geladenen Ionen werden durch die 6kV Sputterspannung von der Targetoberfläche weg beschleunigt. Nach dem Ionisator unterliegen sie einer weiteren Potentialdifferenz von -28kV, so daß sie insgesamt mit 34kV extrahiert werden. Mit Hilfe des 90° -Injektormagneten wird eine erste Trennung der unterschiedlichen Massen, die in der Quelle gebildet werden, erreicht.

Für die magnetische Steifigkeit gilt dabei:

$$B \cdot \rho = \frac{\sqrt{2 E_{\text{Ex}} \cdot m}}{q \cdot e} \quad (2.5)$$

Dabei ist:

B = Magnetfeld des Injektormagneten

m = Ionenmasse

ρ = Bahnradius der Ablenkung

q = Ladungszustand (hier -1)

E_{Ex} = Extraktionsenergie (34 keV)

e = Elementarladung

Da alle Teilchen die gleiche Energie ($E_{\text{Ex}} = 34\text{keV}$) besitzen und außerdem in der Quelle nur einfach negativ geladene Ionen gebildet werden, hängt die akzeptierte Masse nur vom Injektor-Magnetfeld ab. Mit Hilfe eines Faradaycups nach dem Injektormagneten (Injektor-cup) kann das Magnetfeld für maximalen Ionenstrom optimiert werden.

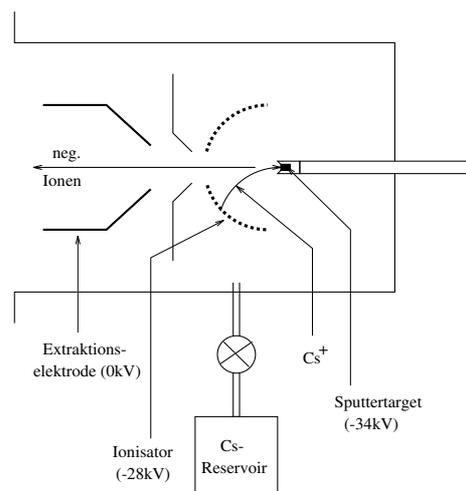


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau einer Hochstromionenquelle

¹ Elektronenaffinität: Energie, die frei wird, wenn man ein Elektron an ein freies, neutrales Atom oder Molekül anlagert.

b) Der Tandembeschleuniger

Nach der magnetischen 90°-Ablenkung wird der Strahl durch eine Vorbeschleunigung von $U_V = 150\text{kV}$ auf eine Gesamtenergie von $E_{\text{inj}} = E_{\text{Ex}} + E_V = 184\text{keV}$ pro Ion beschleunigt. Im Tandem werden die einfach negativen Molekül- und Atomionen durch eine am Terminal anliegenden Hochspannung U_T von ca. 13MV beschleunigt. Im Terminal ist eine ca. $4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicke Kohlenstoffolie angebracht, die die Molekülonen aufbricht. Allen negativ geladenen Ionen können beim Durchflug durch die Folie Elektronen abgestrippt werden. Dabei bildet sich eine Verteilung der Ladungszustände, die von der Energie der Ionen vor der Stripperfolie abhängt. Die nun mehrfach positiv geladenen Teilchen werden durch das gleiche Potential zum Tandemende hin weiterbeschleunigt.

Am Ausgang des Beschleunigers besitzen die Ionen mit der Ladung q die Energie

$$E = E_{\text{inj}} + \left(q + \frac{A}{M}\right) \cdot U_T \cdot e \quad (2.6)$$

wobei

A = Masse des interessierenden Atoms

M = Masse des eingeschossenen Atoms bzw. Moleküls

Für ^{60}Fe bei einer Terminalspannung von $U_T = 13\text{MV}$ sind die wahrscheinlichsten Ladungszustände nach dem Stripp-Prozeß und die daraus resultierenden Energien [Bea] in Tabelle 2.2 zusammengestellt.

Q	^{60}Fe bei $U_T = 13\text{MV}$	
	P_S [%]	E [MeV]
6^+	3,34	87,92
7^+	8,61	100,87
8^+	16,11	113,81
9^+	21,87	126,75
10^+	21,54	139,69
11^+	15,39	152,64
12^+	7,98	165,58
13^+	3,00	178,52
14^+	0,82	191,47
15^+	0,16	204,41

Tabelle 2.2: Strippwahrscheinlichkeiten P_S und Energien für verschiedene Ladungszustände [Bea]

Für die Auswahl des geeigneten Ladungszustands gilt, daß seine Energie und seine Wahrscheinlichkeit möglichst groß sein sollen. Der Ladungszustand sollte außerdem keinen gemeinsamen Teiler mit der interessierenden Masse ($A = 60$) haben, da der 90°-Magnet nach dem Tandembeschleuniger nach A/q analysiert und damit sonst eher störender Untergrund zum Detektor gelangen kann. Daher wurde bei dem Experiment für ^{60}Fe der Ladungszustand 11^+ gewählt.

c) Isobarentrennung durch das GAMS (gasgefülltes Analysiermagnet System)

Die bisher genannten Strahlführungselemente sind für die Abtrennung von Untergrund durch andere Massen und Ladungszustände verantwortlich. Das stabile Isobar ^{60}Ni , das mit 26% natürlicher Isotopenhäufigkeit als Verunreinigung (ppm) im Probenmaterial immer vorhanden ist, hat im gleichen Ladungszustand die nahezu gleiche magnetische und elektrische Steifigkeit wie ^{60}Fe und kann deswegen bis zum Detektor nicht von diesem getrennt werden.

Isobarentrennung

Bevor das Detektorsystem GAMS [Kni96, KFK97] näher erläutert wird, sollen prinzipielle Methoden zur Isobarentrennung aufgeführt werden. Mit der Darstellung ihrer Grenzen, wird die Notwendigkeit des GAMS deutlich.

In einer Ionisationskammer mit Frischgitter ist eine Trennung aufgrund des unterschiedlichen differentiellen Energieverlusts von ^{60}Fe und ^{60}Ni grundsätzlich möglich. Der Detektor kann aber nur eine maximale Zählrate von ca. 1kHz verarbeiten. Wegen des um ungefähr 5 Größenordnungen überwiegenden Nickeluntergrunds müßte man den Strom aus der Quelle stark reduzieren, was aber gleichzeitig eine starke Erhöhung der Meßzeit bedeutet. Man sollte also schon vor dem Detektor die Isobarenscheidung zwischen ^{60}Fe und ^{60}Ni vornehmen. Dabei würde gleichzeitig die gesamte Isobarenscheidung gegenüber einer Ionisationskammer erhöht werden.

Eine Möglichkeit, Isobare schon vor dem Detektor zu unterdrücken, ist die Methode des Nacktstrippens [RYS79]. Dabei werden die Isobare nachbeschleunigt und durch eine weitere Stripperfolie mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit vollständig ionisiert. Dadurch kann das Isobar mit der höheren Kernladungszahl einen für das andere Isobar nicht erreichbaren Ladungszustand annehmen und durch einen Ablenkmagneten von diesem getrennt werden. Diese Methode eignet sich z.B. zur Trennung von ^{36}Cl und ^{36}S [KKN83]. Für die Trennung von Eisen und Nickel ist die Methode nicht anwendbar, weil Nickel zwei Protonen mehr besitzt als Eisen und somit auch den Ladungszustand 26^+ annehmen kann.

Isobarentrennung im gasgefüllten Magneten

Durchlaufen die Ionen ein gasgefülltes Magnetfeld, so kommt es zu Stößen mit den Gaspartikeln, wobei die Ionen sowohl Elektronen verlieren als auch aufnehmen können.

Es stellt sich ein mittlerer Ladungszustand \bar{q} ein, dessen Abhängigkeit von Geschwindigkeit und Kernladungszahl der Projektionen durch folgende semiempirische Formel von R.O. Sayer [Say77] beschrieben werden kann:

$$\bar{q} = Z \cdot \left\{ 1 - 1,08 \cdot \exp \left[- 80,1 \cdot Z^{-0,506} \cdot \left(\frac{v}{c} \right)^{0,996} \right] \right\} \quad (2.7)$$

Aus dem Gleichgewicht zwischen Lorentz- und Zentrifugalkraft ergibt sich damit eine magnetische Steifigkeit

$$B \cdot \rho = \frac{m \cdot v}{\bar{q} \cdot e} \quad (2.8)$$

In Abbildung 2.6 ist für den Fall von ^{60}Fe und ^{60}Ni diese magnetische Steifigkeit gegen die Energie der Ionen aufgetragen.

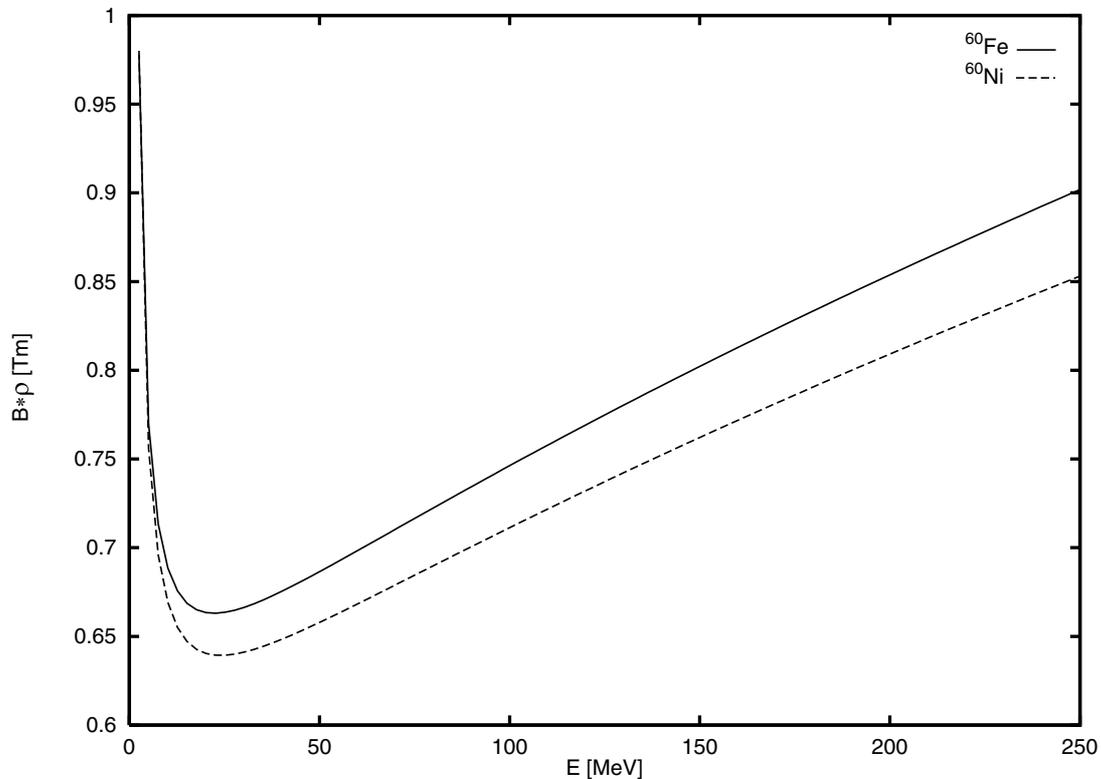


Abbildung 2.6: Magnetische Steifigkeit von ^{60}Fe und ^{60}Ni nach Gleichung (2.7) mit (2.8)

Durch die unterschiedliche Steifigkeit im Magnetfeld findet eine räumliche Trennung der beiden Isobare statt. Indem man ^{60}Ni aus dem Detektor ausblendet, kann man ^{60}Fe messen, ohne den Strom aus der Quelle zu reduzieren.

Die Breite der räumlichen Verteilung eines Ionenstrahls nach dem Durchlaufen eines gasgefüllten Magneten hängt von zwei konkurrierenden Prozessen ab. Einerseits nimmt die Breite aufgrund der besseren Statistik durch mehr Stöße mit dem Druck ab, andererseits steigt sie durch die Kleinwinkelstreuung mit dem Druck an. Die beste Trennung von ^{60}Fe und ^{60}Ni mit dem GAMS wurde mit Stickstoff bei ca. 11 mbar erreicht [Kni96].

Der Schwerionendetektor

Für den Nachweis der Ionen wird eine Gasionisationskammer mit Frischgitter verwendet (Abbildung 2.7). Dabei werden fünf Energieverlustsignale und durch die diagonale Teilung zweier Anodenstreifen zwei Ortssignale für jedes Ion registriert. Die Gesamtenergie wird unabhängig davon am Frischgitter abgenommen. Der Gasdruck im Detektor (ungefähr 30 mbar Isobutan) wird so lange verändert, bis man vom fünften (letzten) Energieverluststreifen kein Signal mehr erhält, d. h. das nachzuweisende Ion seine gesamte Energie im Detektor abgegeben hat. Zur Unterscheidung der Isobare, die z. B. durch Streuung an der Detektorfolie schräg eindringen und über ihren damit verlängerten Flugweg einen größeren Energieverlust

vortäuschen, wird der Einflugwinkel der einfallenden Ionen bestimmt. Den Winkel in horizontaler Richtung erhält man durch die Aufteilung des ersten und dritten Anodenstreifens, den in vertikaler Richtung durch den Zeitunterschied des Signals zwischen dem zweiten und vierten Anodenstreifen.

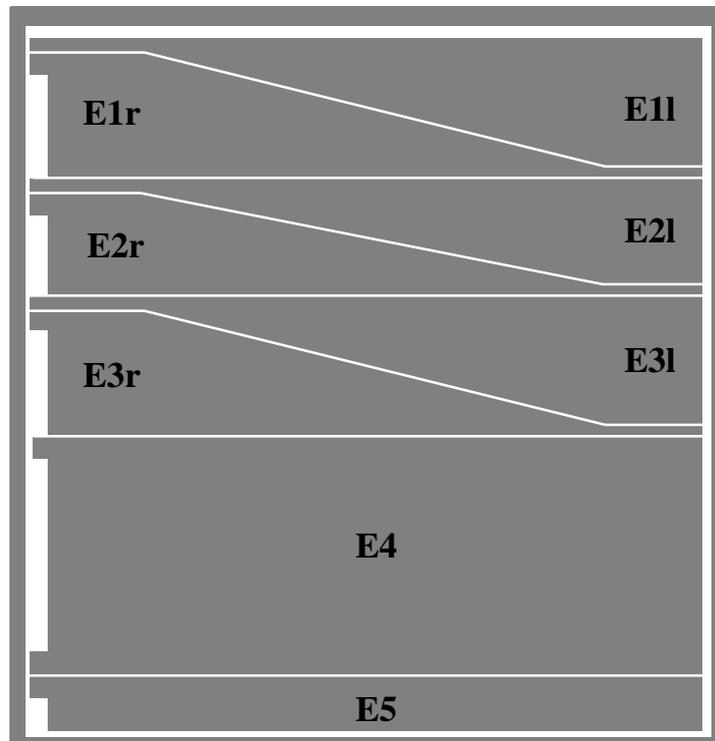


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau der Ionisationskammer und deren Anodenanordnung (E2r und E2l sind im Betrieb kurzgeschlossen)

2.5.2 BMS-Meßmethode

Vor Beginn der Messungen wird das Strahlführungssystem von der Quelle bis zum Detektor auf maximale Transmission¹ des ausgewählten Ladungszustands eines stabilen Nuklids (hier ^{54}Fe gleicher magnetischer Steifigkeit) eingestellt. Der makroskopisch meßbare Strom des stabilen Isotops ist proportional zur Zählrate der ^{60}Fe -Ionen im Detektor.

Auch vor und nach jeder Einzelmessung wird der Strom der ^{54}Fe -Ionen am Cup1 (vor dem Tandem), am Cup5 (nach dem Analysiermagneten) und am GAMS-Cup (vor dem GAMS-Magneten) gemessen. So läßt sich immer die aktuelle Transmission bestimmen und eventuelle Veränderungen feststellen. Nachdem die Einstellungen der Strahlführung optimiert sind, werden der Injektormagnet und die Terminalspannung auf die Masse des Radionuklids ^{60}Fe umgestellt.

Da auf dem Weg von der Quelle bis zum Detektor ein Großteil der ^{60}Fe -Ionen verloren geht (typische Transmissionen sind einige Prozent), mißt man die Proben immer relativ zu Eichproben, deren $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$ -Konzentration bekannt ist.

¹ Transmission ist das Verhältnis aus Ereignissen im Detektor zu ^{60}Fe -Ionen, die in der Quelle losgeschickt werden.

Zur Bestimmung des Meßuntergrunds im Detektor werden ^{60}Fe -freie Proben, sogenannte Blanks, gemessen. Die durch sie erzeugten Signale, die im Detektor wie ^{60}Fe -Ereignisse erscheinen, werden von den aus den Meßproben erhaltenen Signalen abgezogen. Da bei den bestehenden Messungen die Blankmessungen keine Ereignisse zeigten, war es nicht nötig diesen Untergrund abzuziehen.

3 Probensuche und -präparation

In Kapitel 2 wurde die Meßmethode dargestellt und begründet, warum das Nuklid ^{60}Fe zur Bestimmung der Spaltausbeute mit BMS einzigartig geeignet ist. Nun wird abgeschätzt, wieviel Probenmaterial nötig ist, um die Spaltausbeute von ^{60}Fe mit BMS zu messen.

Die minimale Anzahl von ^{60}Fe -Atomen, die in einer Probe benötigt werden, um ein Ereignis im Detektor zu erzeugen, hängt von zwei Faktoren ab:

- Quelleneffizienz E

Sie sagt aus, wie viele Eisen-Atome in der Probe sein müssen, um ein FeO-Ion aus der Quelle zu erhalten. Es werden 10^{-3} bis 10^{-2} Eisenatome benötigt [Kor98].

- Transmission T

Sie gibt an, wie viele FeO-Ionen in den Tandem eingebracht werden müssen, um unter Berücksichtigung der Strippausbeuten und der Verluste entlang des Strahlengangs ein Eisen-Ion definierten Ladungszustands bis zum GAMS zu bekommen. Die Transmission bei $^{60}\text{Fe}^{11+}$ -Ionen beträgt einige Prozent.

Setzt man nun 100 detektierbare Ereignisse für eine Messung als minimal voraus, erhält man für die Anzahl der in der Probe benötigten ^{60}Fe -Atome

$$N(^{60}\text{Fe}) = \frac{100}{E \cdot T} \approx 10^6$$

Nachdem alles außer Eisen aus der bestrahlten Probe abgetrennt werden soll, damit Untergrundprobleme schon vor der Messung eingeschränkt sind (s. Kapitel 2.2), muß also noch ein Verlustfaktor aufgrund der chemischen Abtrennungsschritte berücksichtigt werden. Als sehr pessimistisch wird für die Abschätzung davon ausgegangen, daß die Hälfte der entstandenen ^{60}Fe -Atome für den Nachweis verloren gehen.

Um noch Spielraum in bezug auf die Anzahl der Ereignisse zu haben, sollen sich in der Probe ungefähr 10^7 ^{60}Fe -Atome befinden.

Zusammen mit der empirischen Spaltausbeute für Masse 60, die in Kapitel 2.4 zu $2 \cdot 10^{-11}$ angegeben ist, kann die Zahl der Spaltungen

$$n_{\text{fiss}} = \frac{N(^{60}\text{Fe})}{Y_{60}} \tag{3.1}$$

die für die Produktion von 10^7 ^{60}Fe -Atome nötig ist, berechnet werden. Für n_{fiss} ergibt sich $5 \cdot 10^{17}$.

Prinzipiell stehen nun zwei unterschiedliche Methoden zur Auswahl:

1. Wir bestrahlen selbst ein entsprechendes Uran-Target.
2. Wir greifen auf schon bestrahltes Material zurück.

Zur 1. Methode

Bei einer Bestrahlung am FRM kann für die Abschätzung mit einem mittleren thermischen Neutronenfluß von $\Phi = 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ gerechnet werden. Setzt man insgesamt ungefähr 300mg ^{235}U ein, ist eine Bestrahlungszeit von 7 Tagen nötig. In Tabelle 3.1 ist eine Auswahl von Nukliden zusammengestellt, die bei der Spaltung entstehen. Es sind jeweils die Aktivitäten der Nuklide direkt nach der Bestrahlung angegeben und nach einer Abklingzeit von einem Jahr. Es sind Nuklide mit relativ hoher Spaltausbeute und mittlerer Halbwertszeit¹ ausgewählt worden.

Nuklid	$T_{1/2}$	Y in %	A direkt	A 1Jahr
^{137}Cs	30,17a	6,236	$2,2 \cdot 10^9 \text{ Bq}$	$2,1 \cdot 10^9 \text{ Bq}$
^{90}Sr	28,64a	5,835	$2,2 \cdot 10^9 \text{ Bq}$	$2,1 \cdot 10^9 \text{ Bq}$
^{131}I	8,02d	2,885	$1,4 \cdot 10^{12} \text{ Bq}$	$2,8 \cdot 10^{-2} \text{ Bq}$
^{125}Sb	2,77a	0,028	$1,1 \cdot 10^8 \text{ Bq}$	$8,2 \cdot 10^7 \text{ Bq}$
^{95}Zr	64d	6,545	$4,0 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$	$7,6 \cdot 10^9 \text{ Bq}$
^{85}Kr	10,76a	1,327	$1,3 \cdot 10^9 \text{ Bq}$	$1,2 \cdot 10^9 \text{ Bq}$

Tabelle 3.1: Eine Auswahl an Nukliden, ihre Halbwertszeit und die Aktivität direkt nach der Bestrahlung und nach einem Jahr

Anhand dieser Tabelle ist zu erkennen, daß es im Zeitrahmen dieser Diplomarbeit nicht möglich ist, ein Urantarget selber zu bestrahlen und es danach so lange abklingen zu lassen, bis sinnvoll damit gearbeitet werden kann.

Zur 2. Methode

Nachfragen innerhalb des Physikdepartments und auch in Grenoble haben ergeben, daß kein bestrahltes ^{235}U -Target, das für diesen Zweck geeignet wäre, zur Verfügung steht. Eine Einrichtung, in der Spaltprodukte aus der Spaltung von Kernbrennstoffen wie ^{235}U gesammelt werden, ist eine Wiederaufarbeitungsanlage. Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK), zu der über das Institut für Radiochemie (RCM) ein sehr guter Kontakt besteht, war gerne bereit, das Projekt "Spaltausbeute der Masse 60" mit der Bereitstellung von Probenmaterial zu unterstützen.

¹ Nuklide mit kleiner Halbwertszeit (Minuten, Stunden) sind schnell wieder zerfallen. Nuklide mit großer Halbwertszeit (100 Jahre und mehr) bauen eine entsprechend kleinere Aktivität auf.

3.1 Herkunft der Probe

Die WAK wurde in der technischen Auslegung und Größe als Versuchsanlage so konzipiert, daß eine Übertragung der Betriebserfahrung auf eine große industrielle Anlage möglich ist. Mit ihrer Errichtung und dem Betrieb wurden Erfahrungen für die Planung, den Bau und Betrieb der geplanten deutschen Wiederaufarbeitungsanlage in Wackersdorf (WAA) gesammelt. Nachdem das Projekt WAA im Sommer 1989 eingestellt wurde, wurde auch die Pilotanlage WAK Ende 1990 für die Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen geschlossen.

Insgesamt wurden in den 20 Jahren Betrieb der WAK (von 1971 bis Ende 1990) 200t Brennstoff mit einem mittleren Abbrand¹ von 20 GWd/t aufgearbeitet.

Die Brennelemente stammen aus kommerziellen Leichtwasserreaktoren und Forschungsreaktoren, wobei diese Forschungsreaktoren zur Erprobung von Reaktormaterialien dienten und nicht dafür ausgelegt waren, einen hohen Neutronenfluß zu liefern. Somit sind Anreicherung des Brennstoffs und Neutronenfluß vergleichbar mit den Werten für Leichtwasserreaktoren.

Um die Herkunft der Probe zu verdeutlichen, soll zuerst kurz der Weg der Brennelemente von der Zeit im Reaktor bis zu ihrer Aufarbeitung beschrieben werden und dann der Prozeß der Wiederaufarbeitung selbst erläutert werden.

3.1.1 Lebensgeschichte von Brennelementen

Hier sollen nun schrittweise die einzelnen Stationen eines Brennelements in seinem "Leben" bis zu seiner Wiederaufarbeitung geschildert werden.

Die technischen Daten, die hierbei verwendet werden, beziehen sich auf kommerzielle Leichtwasserreaktoren.

Der Brennstoff (meist UO_2) ist in Form von sogenannten Pellets² in Brennstäbe eingefüllt. Diese Brennstäbe sind Rohre aus Zircaloy³, die drei bis vier Meter lang sind und einen Durchmesser von ca. einem cm haben. Mehrere Brennstäbe, typischerweise etwa 300, werden bündelweise zu Brennelementen zusammengefaßt. Die Brennelemente sind direkt von Wasser umgeben, das gleichzeitig als Kühlmittel und Moderator dient. Nach der Bestrahlungszeit im Reaktor werden die Brennelemente in einem Abklingbecken gelagert. Die Dauer der Zerfalls- und Kühlperiode der ausgebrannten Brennelemente vor der Aufarbeitung wird im wesentlichen vom Zerfall der Schwermetalle ^{239}U über ^{239}Np zu ^{239}Pu und dem Zerfall der Spaltprodukte ^{131}I und ^{133}Xe bestimmt.

Nach der Verweildauer im Reaktor enthalten die Brennstäbe außer den Kernbrennstoffen Uran und Plutonium, die nicht vollständig verbrannt werden, die Spaltprodukte und Aktivierungsprodukte, die durch Reaktorneutronen gebildet wurden.

¹ Der Abbrand gibt die thermische Energie in GWd pro Tonne Kernbrennstoff an, die während der Einsatzzeit in Tagen im Reaktor abgegeben wird.

² Zylinderförmige, bleistiftdicke Brennstofftabletten

³ Zircaloy ist eine Legierung mit dem Hauptbestandteil Zirkon; weiter sind 1,5% Zinn, 0,1 bis 0,15% Eisen, 0,1% Chrom und 0,05% Nickel enthalten [KV69].

3.1.2 Prozeß der Wiederaufarbeitung

Bei der Wiederaufarbeitung werden aus abgebrannten Reaktor-Brennelementen die nicht vollständig abgebrannten Kernbrennstoffe Uran und Plutonium abgetrennt.

Wie das im einzelnen geschieht, wird im folgenden kurz erläutert. Genauere Ausführungen dazu sind in [Bau78] nachzulesen.

Die Brennelemente werden in die einzelnen Brennstäbe zerlegt, die dann mechanisch durch eine hydraulische Schere in ca. 5cm lange Stücke geschnitten werden. Diese Brennstabstücke werden in Salpetersäure erhitzt, wobei Spaltprodukte und Kernbrennstoffe in Lösung gehen. Das Hüllrohrmaterial ist in dieser Säure nicht löslich und wird als fester radioaktiver Abfall beseitigt. Im PUREX-Verfahren¹ werden die Kernbrennstoffe Uran und Plutonium von den Spaltprodukten in einem mehrstufigen Extraktionsprozeß abgetrennt. Als Produkte fallen bei der Wiederaufarbeitung konzentrierte Uran- und Plutoniumlösungen an sowie die Spaltprodukte, die nach wie vor in Salpetersäure gelöst sind. Diese Spaltproduktlösung ist Abfall und wird in der WAK bis zur Verglasung² gelagert. In der Fachsprache wird diese Lösung HAWC³ genannt.

3.1.3 Zusammensetzung des HAWC

Für einen Überblick sollen hier einige chemische und physikalische Eigenschaften der Spaltproduktlösung aufgeführt werden. Die Grundlage bildet eine 4M Salpetersäure, in der hauptsächlich Spaltprodukte gelöst sind. Eine Analyse des gefilterten HAWC zeigt mit kleinen Abweichungen die Doppelhöckerkurve der Spaltung. Abweichungen sind unter anderem mit Niederschlägen und schwer löslichen Feststoffen im HAWC zu erklären. Der Feststoffgehalt im HAWC beträgt 10-15g/l. Außer den Spaltprodukten befinden sich im HAWC noch Transurane, Prozeßchemikalien und Korrosionsprodukte. Die noch im HAWC vorliegenden Transurane konnten durch den PUREX-Prozeß nicht vollständig abgetrennt werden. Die Korrosionsprodukte sind während des Wiederaufarbeitungsprozeß und bei der Lagerung aus den Edelstahlbehältern herausgelöst worden. Dabei stellt das Eisen mit 5g/l einen großen Anteil dar. Das HAWC, das sich aufgrund der Nachzerfallswärme der Spaltprodukte aufheizt, muß ständig gekühlt werden; es wird auf einer Temperatur von ungefähr 30°C gehalten. Da täglich 10-30l Salpetersäure (Gesamtinhalt des Vorratsbehälters ungefähr 20000l) durch Verdampfung und radiolytische Zersetzung verloren gehen, muß in regelmäßigen Abständen neue Salpetersäure hinzugegeben werden, um einen stabilen Zustand zu erhalten. [Sto97, BSW⁺93]

Die Gesamtaktivitäten⁴ im HAWC betragen nach [WAK97]:

¹ PUREX: Plutonium-Uran-Rückgewinnung durch Extraktion

² Bei der Verglasung wird die Spaltproduktlösung in Glasblöcke eingeschmolzen.

³ HAWC: high active waste concentrate

⁴ Das Referenzdatum bei den Aktivitätsangaben ist jeweils Juli 1997.

α -Aktivität	$1,43 \cdot 10^{11} \text{ Bq}/\ell$
β -Aktivität	$1,1 \cdot 10^{13} \text{ Bq}/\ell$
γ -Aktivität	$4,6 \cdot 10^{12} \text{ Bq}/\ell$

Die Aktivitäten einzelner Nuklide im HAWC, die mit γ -Spektroskopie bestimmt wurden, können Tabelle 3.2 entnommen werden.

Nuklid	Aktivität in Bq/ ℓ
^{137}Cs	$4,3 \cdot 10^{12}$
^{134}Cs	$7,2 \cdot 10^{10}$
^{155}Eu	$2,6 \cdot 10^{10}$
^{154}Eu	$8,4 \cdot 10^{10}$
^{125}Sb	$8,7 \cdot 10^9$
Pu	$\approx 3 \cdot 10^9$ [Sto97]
^{241}Am	$4,8 \cdot 10^{10}$

Tabelle 3.2: Hauptaktivitätsträger im HAWC und ihre Aktivität [WAK97]

3.1.4 Abschätzung

Mit den Daten des HAWCs kann abgeschätzt werden, wieviel ^{60}Fe erwartet wird. Aus der Aktivität von ^{137}Cs (s. Tabelle 3.2) kann zusammen mit der Spaltausbeute für Masse 137 die Zahl der Spaltungen n_{fiss} bestimmt werden. Damit kann die Zahl der ^{60}Fe -Atome, die man aufgrund der empirischen Spaltausbeute für ^{60}Fe erwartet, berechnet werden. Man erhält

$$N(^{60}\text{Fe}) = 1,9 \cdot 10^{12} \ell^{-1}$$

Dabei ist für die Spaltausbeute $Y_{60} = 2 \cdot 10^{-11}$ eingesetzt worden (s. Kapitel 2.4).

Am Anfang dieses Kapitels ist erwähnt, daß für eine sinnvolle BMS-Messung mit vorheriger Chemie etwa 10^7 ^{60}Fe -Atome benötigt werden.

Bei einer BMS-Messung wird immer das Verhältnis Radionuklid zu stabilem Isotop in der Probe gemessen. Es ist also auch interessant, dieses Verhältnis abzuschätzen. Es ist bekannt, daß die Konzentration an stabilem Eisen im HAWC $5\text{g}/\ell$ (s. Kapitel 3.1.3) beträgt. Damit kann folgendes Verhältnis angegeben werden:

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})}{N(\text{Fe})} = 3,5 \cdot 10^{-11}$$

Mit dem Aufbau am Beschleunigerlabor liegt die Nachweisgrenze für ^{60}Fe bei etwa $1 \cdot 10^{-15}$. Die Abschätzungen zeigen, daß es sinnvoll ist, im Karlsruher HAWC ^{60}Fe zu suchen.

3.2 Vorversuche zur Abtrennung von Eisen aus dem HAWC

Prinzipiell stand nun die Frage an, wie das Eisen aus dem HAWC isoliert werden kann. Dazu sollten mögliche Verfahren zur Eisen-Abtrennung auf ihre Effektivität hin untersucht werden. Die Abtrennung sollte dann mit der erfolgreichsten Methode in der WAK in Karlsruhe stattfinden, da dort die Einrichtungen für das Arbeiten mit radioaktiven Stoffen (wie Heiße Zellen, Handschuhboxen, Manipulatoren, ...) vorhanden sind und die Möglichkeit zur Beseitigung von radioaktivem Abfall zur Verfügung stand.

Die Vorversuche konnten im Institut für Radiochemie in Garching durchgeführt werden. Bei der Auswahl der Trennverfahren mußten folgende Kriterien berücksichtigt werden:

1. Eine möglichst gute Abtrennung der Hauptaktivitätsträger sollte gewährleistet sein.
2. Die Methode sollte möglichst einfach sein, damit sie auch unter erschwerten Bedingungen, wie Arbeiten in einer Box mit Manipulatoren, funktioniert. Die Methode zur Abtrennung sowie die dafür notwendigen Arbeitsgeräte und Chemikalien mußten mit Karlsruhe abgesprochen werden.

3.2.1 Methode der Vorversuche

Im Institut für Radiochemie steht ein Spaltprodukt-Simulat zur Verfügung, das für die Vorversuche verwendet werden konnte [Kre92].

In diesem Simulat sind die Spaltprodukte soweit möglich durch ihre natürlichen nicht radioaktiven Isotope ersetzt und in 2,5M Salpetersäure gelöst¹. Dies entspricht einer Abfalllösung, wie sie auch in Karlsruhe nach der extraktiven Uran-Spaltprodukt-Trennung vorliegt.

Insgesamt wurden drei verschiedene Verfahren, mit denen Eisen aus dem HAWC abgetrennt werden kann, untersucht. Zu Beginn soll die prinzipielle Vorgehensweise bei den Vorversuchen beschrieben werden.

Für jedes Verfahren wurde das HAWC-Simulat eingesetzt, wobei durch Zugabe von Eisennitratsalz² die gleiche Konzentration von Eisen-Ionen in der Lösung, wie sie in Karlsruhe vorliegt, erreicht wurde. Um die Abtrennung schrittweise mitverfolgen zu können, wurden zusätzlich verschiedene Tracer dazugegeben. Für einen ersten Überblick sind in Tabelle 3.3 die verwendeten Tracer und ihre jeweilige Halbwertszeit aufgeführt.

Um Aufschluß über die Eisen-Abtrennung zu gewinnen, wurde das Radionuklid ⁵⁵Fe eingesetzt. ⁵⁵Fe zerfällt durch Elektroneneinfang. Die danach ausgesendete 5,9keV-Röntgenlinie wurde mit Hilfe eines Flüssigszintillationszählers nachgewiesen.

Für die Abtrennung der β - und γ -Strahler wurde ein Gemisch aus radioaktiven Nukliden, die im HAWC vorkommen, verwendet. Es wurden Standardlösungen mit den Nukliden ⁶⁰Co, ¹²⁵Sb, ¹³⁷Cs, ¹⁵²Eu und ¹⁵⁴Eu benutzt, wobei die Aktivitätsverhältnisse der einzelnen Nuklide

¹ Das nur radioaktiv existierende Element Technetium sowie die Transurane wurden weggelassen. Auf die Zugabe von Prozeßchemikalien und Korrosionsprodukten wurde ebenfalls verzichtet.

² Die chemische Formel dafür lautet $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$.

untereinander den Aktivitäten in Karlsruhe nachgebildet wurden. Detektiert wurden diese Nuklide mit einem Germanium-Detektor.

Nuklid	$T_{1/2}$ in Jahren	nachgewiesene Strahlung
^{55}Fe	2,73	Röntgen
^{137}Cs	30,17	γ
^{155}Eu	4,76	γ
^{154}Eu	8,8	γ
^{125}Sb	2,77	γ
^{60}Co	5,27	γ
^{239}Pu	$2,41 \cdot 10^4$	α
^{241}Am	432,2	α

Tabelle 3.3: Nuklide, die als Tracer eingesetzt wurden, ihre Halbwertszeit und die Art der nachgewiesenen Strahlung

Als Vertreter der α -Strahler wurden die Nuklide ^{239}Pu und ^{241}Am ausgewählt. Die ausgesendeten α -Teilchen mit den Energien 5,157MeV für ^{239}Pu und 5,486MeV für ^{241}Am wurden mit einem Flüssigszintillationszähler nachgewiesen.

Um die meßtechnischen Probleme zu umgehen, die sich ergeben, wenn die Aktivität eines Nuklidgemischs bestimmt werden soll, wurden die einzelnen Gruppen von Tracern getrennt voneinander behandelt. Prinzipiell können sowohl α - wie auch β/γ -Strahler mit einem Flüssigszintillationszähler nachgewiesen werden. Elektronen der β -Strahler verursachen allerdings wegen ihres kontinuierlichen Energiespektrums im Flüssigszintillationszähler sehr breite Signale. Bei einer Überlagerung von Signalen verschiedener Nuklide können die einzelnen Nuklide nicht mehr identifiziert werden. Die α -Energien von Plutonium und Americium können im Flüssigszintillationszähler nicht aufgelöst werden. Deswegen wurde jedes Trennverfahren viermal durchgeführt, jeweils unter Zugabe eines der folgenden Tracer:

^{55}Fe , β - und γ -Strahler, ^{239}Pu , ^{241}Am

3.2.2 Getestete Trennverfahren

Insgesamt wurden drei Verfahren ausprobiert, mit denen Eisen aus dem HAWC isoliert werden kann. Die ersten beiden Methoden sollen nur kurz beschrieben und ihre Nachteile aufgezeigt werden. Die dritte Methode, die in Karlsruhe angewendet wurde, wird dann ausführlicher in Kapitel 3.3 behandelt.

a) $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Fällung und anschließende HEXON-Extraktion

Methode

Durch tropfenweise Zugabe von 30%iger Natronlauge in die HAWC-Simulatrlösung wird das Eisen als Eisenhydroxid $\text{Fe}(\text{OH})_3$ – ein brauner, flockiger Niederschlag – ausgefällt. Damit sich der Niederschlag schneller absetzt, wird die Lösung zentrifugiert. Die überstehende Lösung wird abpipettiert und verworfen. Der Niederschlag wird für die nachfolgende Flüssig-Flüssig-Extraktion in 9M Salzsäure aufgelöst. Diese Lösung wird zusammen mit dem gleichen Volumen der organischen Flüssigkeit Methylisobutylketon (MIBK)¹ in einen Scheidetrichter gefüllt. Aufgrund der unterschiedlichen Dichten der beiden Flüssigkeiten, liegen zwei unterschiedliche Phasen vor. Bei der Extraktion gehen die Eisenionen von der wässrigen Phase (Salzsäure) in die organische Phase (MIBK) über, weil sie abhängig von der Konzentration der Salzsäure mit den MIBK-Molekülen Komplexe eingehen. Die Salzsäure wird verworfen. Durch Zugabe von Wasser in den mit MIBK gefüllten Scheidetrichter werden die Komplexe wieder aufgebrochen und die Eisenionen gehen wieder in die wässrige Phase (Wasser) über. Dampft man diese Lösung bis zur Trockne ein, so liegt das abzutrennende Eisen in einem Mischzustand aus Eisenhydroxid und Eisenoxid vor.

Probleme

Die Dekontaminationsfaktoren waren noch nicht zufriedenstellend. Bei dieser Methode wurde in der gereinigten Eisenfraktion noch fast 3% des eingesetzten ^{60}Co und 11% des ^{239}Pu gefunden.

Für die HEXON-Extraktion muß die Probe in Salzsäure vorliegen. Da Salzsäure Edelstahl korrodiert, ist sie in Karlsruhe nicht erwünscht.

b) Fe_2S_3 -Fällung und anschließende HEXON-Extraktion

Methode

Zu der HAWC-Simulatrlösung wird so viel Ammoniaklösung gegeben, daß der pH-Wert der Lösung zwischen 3 und 4 liegt, wobei der pH-Wert mit Indikatorpapier bestimmt wird. Danach wird in der Lösung Thioacetamid² gelöst. Sobald die Lösung alkalisch ist, was durch Zugabe von Ammoniumcarbonat erreicht wird, fällt Eisen als Eisensulfid, ein schwarzer Niederschlag, aus. Nach Zentrifugation der Lösung wird die überstehende Flüssigkeit abpipettiert. Das Eisen im Niederschlag wird durch eine HEXON-Extraktion isoliert, wie sie in Abschnitt (a) von Kapitel 3.2.2 beschrieben ist.

Probleme

Bei dieser Methode kam es zu präparativen Schwierigkeiten. Die Salzsäure stellt das gleiche Problem dar, wie in Abschnitt (a) von Kapitel 3.2.2 beschrieben.

¹ MIBK ist auch unter dem Trivialnamen Hexon bekannt.

² Die chemische Formel für Thioacetamid lautet CH_3CSNH_2 .

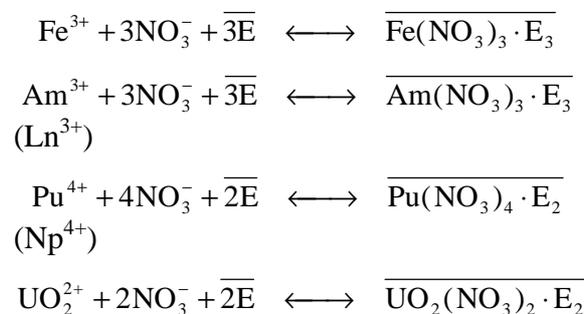
c) Festphasenextraktion

Für die Beschreibung dieser Abtrennungsmethode wird auf Kapitel 3.3 verwiesen.

3.3 Abtrennung von Eisen mittels Festphasenextraktion

3.3.1 Prinzip

Bei dieser Art von Extraktion liegt das Extraktionsmittel als Feststoff vor. Es kann Ionen aus einer Lösung an sich binden, indem das Extraktionsmolekül mit dem jeweiligen Ion einen Komplex bildet. Die Wahrscheinlichkeit für eine Komplexbildung ist abhängig von der chemischen Wertigkeit, in der die Ionen vorliegen und der Stärke der Säure, in der die Ionen gelöst sind. Die Komplexbildung verläuft nach folgenden Gleichgewichtsreaktionen:



Dabei steht E für das Extraktionsmolekül.

Bei diesem Versuch wurde als Extraktionsmittel der organische Stoff Oktylphenyl-N, N-di-Isobutyl Carbamoylphosphin Oxid, abgekürzt CMPO, eingesetzt¹. Das Harz CMPO arbeitet im salzsauren sowie auch im salpetersauren Milieu, wobei letzteres für die gewünschte Abtrennung in Karlsruhe von Vorteil ist, da das HAWC in Salpetersäure vorliegt und so direkt eingesetzt werden konnte. CMPO dient in der Regel als Extraktionsmittel für die Abtrennung von Aktiniden, besonders von Americium, aus Nuklidgemischen. Liegt eine hohe Konzentration an dreiwertigen Eisenionen vor, so kommt es zu einer Konkurrenzreaktion, bei der Americium verdrängt wird und stattdessen bevorzugt Eisenionen mit den CMPO-Molekülen Komplexe eingehen. Folgende Abbildungen werden von EICHROM zur Verfügung gestellt. Aufgetragen ist der Adsorptionskoeffizient k' gegen die Stärke der Salpetersäure. k' gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der die Ionen mit dem CMPO-Molekül einen Komplex eingehen. Für viele Nuklide waren die Abtrennungseigenschaften durch CMPO bisher nicht bekannt.

Bei der Festphasenextraktion wird das Extraktionsmittel, das oben beschriebene Harz, in eine Säule gefüllt und dann die Probe aufgetragen. Durch Einstellung der entsprechenden Säurestärke erreicht man, daß bestimmte Ionen ungehindert über das Harz laufen und andere zurückgehalten werden. Für die Abtrennung von Eisen aus dem HAWC wurden folgende Säurestärken verwendet: Die Ausgangslösung des HAWC stellt man so ein, daß sie 8M ist. In diesem Zustand trägt man sie auf die mit CMPO befüllte Säule auf. Bei dieser Säurestärke gehen bevorzugt die Eisenionen einen Komplex mit den CMPO-Molekülen ein. Diese Komplexe werden mit 2M Salpetersäure wieder aufgebrochen, wodurch das Eisen von der Säule eluiert wird [Wal97].

¹ Es wurde CMPO von der Firma EICHROM verwendet, die den Namen TRU Resin[®] verwendet.

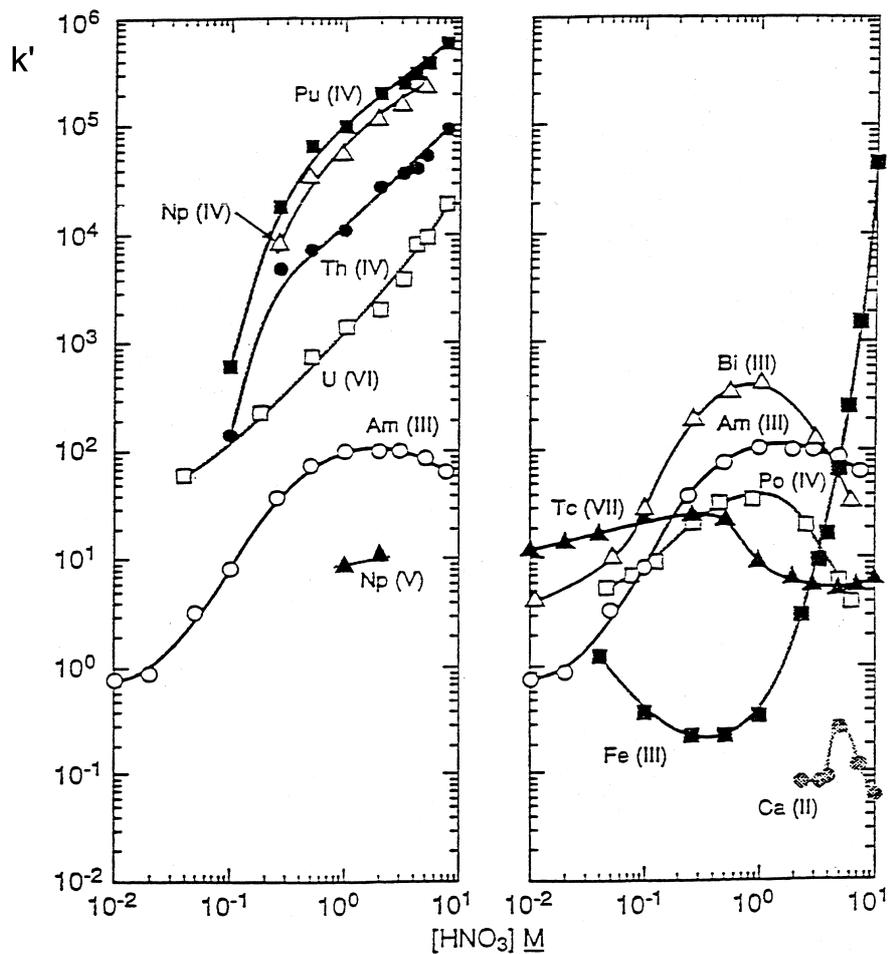


Abbildung 3.1: Abhängigkeit des Adsorptionskoeffizienten k' von der Säurestärke \underline{M} [EIC95]

3.3.2 Ergebnisse aus den Vorversuchen

Die Vorversuche in Garching und eine Testabtrennung in Karlsruhe ergaben folgende Ergebnisse:

Pro Gramm CMPO können aus der realen HAWC-Lösung etwa 3mg Eisen extrahiert werden. Die nachfolgenden Volumenangaben beziehen sich auf Glassäulen, deren Abmessungen in Kapitel 3.3.3 beschrieben werden, befüllt mit 3g CMPO je Säule. Es empfiehlt sich, die Säule nach dem Auftragen der Probe mit 50-100ml 8M Salpetersäure zu spülen. In einem Vorversuch wurde in 10ml-Schritten insgesamt 100ml Salpetersäure für das Spülen der Säule verwendet. Dabei gingen knapp die Hälfte des eingesetzten Eisens verloren, weil es schon vor der Elution mit von der Säule gewaschen wurde. Die Aktivitätsmenge auf der Säule ließ sich durch jeden Schritt weiter verringern. Tabelle 3.4 zeigt, wie sich der Gesamtverlust des Eisens auf die einzelnen Schritte aufteilt.

Schritt-Nummer	Anteil am gesamten Fe-Verlust
1	64%
2	12%
3	6%
4-10	< 5%

Tabelle 3.4: Aufteilung des gesamten Eisenverlusts beim Spülen der Säule

Mit 2M Salpetersäure wird das Eisen von der Säule eluiert. Bei einem Vorversuch ergab sich, daß schon 20ml Salpetersäure reichen, um über 99% des Eisens von der Säule zu spülen; bei jeder weiteren Elution würde man nur den Eintrag von radioaktiven Nukliden, die sich noch auf der Säule befinden, in die Eluatlösung vergrößern.

Tabelle 3.5 gibt einen Überblick über das Verhalten der radioaktiven Nuklide, die bei den Vorversuchen als Tracer eingesetzt wurden. Für diese Ergebnisse wurde getrennt aufgefangen, was beim Spülen durch die Säule gelaufen ist (*Vorlauf*) und das Eluat. Beide Fraktionen wurden gemessen, wobei die Annahme gemacht wurde, daß sich der fehlende Anteil, der weder im *Vorlauf* noch im Eluat gefunden wurde, noch auf der Säule befindet.

Nuklid	Vorlauf	Säule	Eluat
⁵⁵ Fe	der Rest	-	ca. 3mg pro g CMPO
¹³⁷ Cs	≈ 100 %	-	0,1 %
¹⁵² Eu	≈ 77 %	der Rest	-
¹⁵⁴ Eu	≈ 78 %	der Rest	-
¹²⁵ Sb	-	100 %	-
⁶⁰ Co	≈ 87 %	der Rest	-
²³⁹ Pu	≈ 100 %	-	0,2 %
²⁴¹ Am	0,07 %	≈ 100 %	0,03 %

Tabelle 3.5: Verhalten der Tracernuklide in den Vorversuchen

Die Ergebnisse, die in den Vorversuchen erzielt wurden, dienen nur als Anhaltspunkte. Das reale HAWC stellt eine viel aktivere und komplexere Matrix dar, als bei den Vorversuchen simuliert werden konnte. So war die Abtrennung der Aktivitätsträger nicht so effektiv wie man anhand der Zahlen aus Tabelle 3.5 erwartet hätte; es befand sich im Eluat z. B. Europium (s. dazu Kapitel 3.3.4).

3.3.3 Abtrennung in Karlsruhe

Für die Abtrennung von Eisen aus dem HAWC wurden 5 Glassäulen (Länge 24cm, Innendurchmesser 0,8cm) eingesetzt. Jede Säule wurde mit 3g CMPO befüllt. Zu diesem Zweck wurde das Harz in 8M Salpetersäure aufgeschlämmt und in die Säulen gefüllt, wobei sorgfältig darauf geachtet wurde, daß sich in der Harzschicht keine Luftblasen bilden. Oben und unten wurden die Säulen mit Glaswolle verschlossen, um das Harz zu fixieren. Anschließend wurden die vorbereiteten Säulen in die Heiße Zelle eingeschleust, in der die Extraktion stattfinden sollte. Die weiteren Arbeitsschritte konnten nur noch mit Manipulatoren durchgeführt werden. Jede Säule wurde in der Box mit 20ml 8M Salpetersäure konditioniert. Die einzusetzenden 20ml des vorher filtrierten HAWC wurden mit 40ml 10M Salpetersäure versetzt. Die somit entstandene 8M Lösung wurde in gleichen Teilen auf die 5 Säulen verteilt. Es wurde eine Durchlaufgeschwindigkeit von ca. 0,2 ml/min eingestellt. Anschließend wurde jede Säule mit 70ml 8M Salpetersäure gespült, wobei die durchgelaufene Lösung verworfen wurde. Das auf der Säule befindliche Eisen wurde mit jeweils 20ml 2M Salpetersäure eluiert und aufgefangen. Nach einer Analyse dieser Eluatlösung, bei der Aktivität und Eisengehalt bestimmt wurde (s. dazu Kapitel 3.3.4), konnte die Eluatlösung nach Garching transportiert werden. Für diese Untersuchungen wurden 2ml des Eluats gebraucht.

3.3.4 Zusammensetzung der Eluatlösung

Die Eluatlösung bestand aus 98ml 2M Salpetersäure, in denen sich 41,85mg Eisen befanden. Es konnten etwa 2mg Eisen pro ml HAWC-Lösung extrahiert werden, also 40% des eingesetzten Eisens. Die Gesamtaktivität der Eluatlösung, die mit einem Germanium-Detektor bestimmt wurde, betrug $8,1 \cdot 10^6$ Bq. Die Nuklide, die noch nachgewiesen werden konnten, sind in Tabelle 3.6 zusammengestellt.

^{137}Cs	$3,4 \cdot 10^6$ Bq
^{134}Cs	$5,1 \cdot 10^4$ Bq
^{154}Eu	$2,1 \cdot 10^6$ Bq
^{155}Eu	$7,4 \cdot 10^5$ Bq
^{241}Am	$1,2 \cdot 10^6$ Bq
^{106}Ru	$7,3 \cdot 10^4$ Bq

Tabelle 3.6: Nuklide, die in der Eluatlösung nachgewiesen wurden

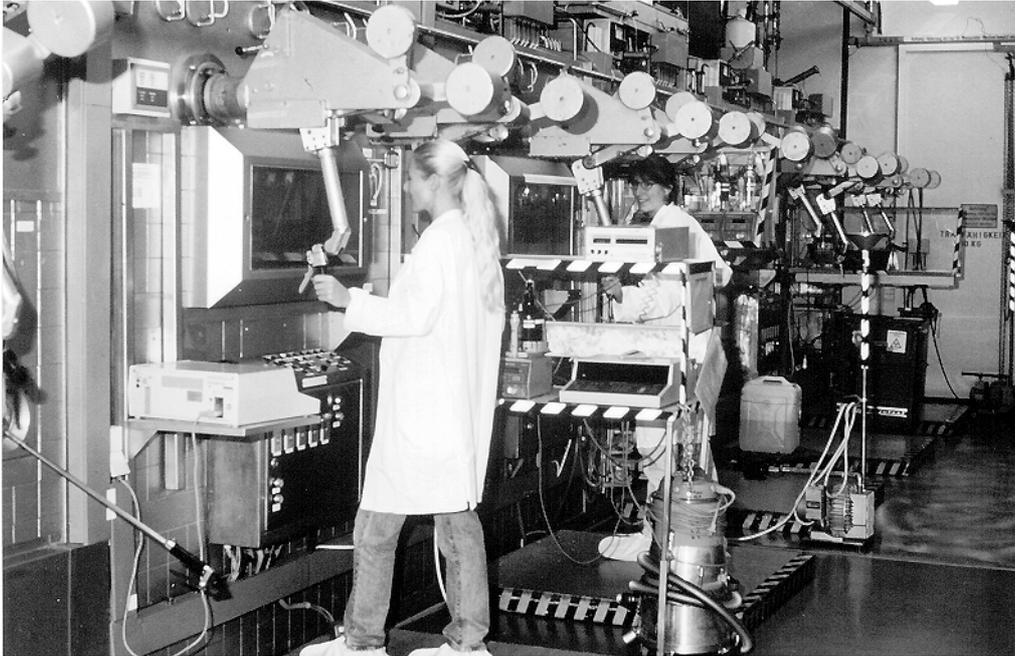


Abbildung 3.2: HA¹-Labor in der WAK mit Manipulatoren und Heißen Zellen, wo die Abtrennung stattgefunden hat

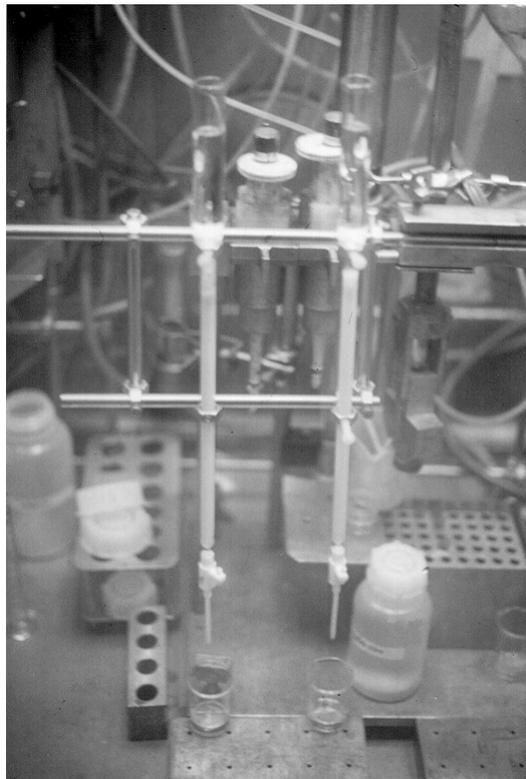


Abbildung 3.3: Photo durch die 30cm dicke Bleiglasscheibe in die HA-Box; im Vordergrund zwei der Säulen, die für die Abtrennung von Eisen aus dem HAWC verwendet wurden; unten die Bechergläser zum Auffangen der Lösung

¹ HA: Hochaktiv

3.4 Probenpräparation

3.4.1 Feinreinigung

Eine weitere chemische Behandlung der Eluatlösung, wie wir sie aus Karlsruhe mitgenommen haben (s. dazu Kapitel 3.3.4), war aus folgenden zwei Gründen notwendig:

1. die vorhandene Aktivität sollte noch weiter reduziert werden
2. das störende Isobar ^{60}Ni sollte abgetrennt werden

Die beiden Abtrennungsschritte, die im folgenden genauer erklärt werden, stellen bewährte Methoden dar, mit denen speziell die Elemente Eisen, Nickel und Cobalt voneinander getrennt werden können.

Für die Herstellung einer Probe, die mit BMS gemessen werden kann, wurden 23ml der Eluatlösung verwendet. Diese wurden zunächst mehrmals mit 65%iger Salpetersäure abgeraucht, um organische Komponenten vom Eluieren der CMPO-Säule zu zerstören¹. Der Rückstand wurde in 3,4M Salzsäure aufgenommen und über eine Säule gegeben, die mit dem Ionentauscherharz DOWEX 50Wx8 gefüllt ist. Während das Eisen ungehindert die Säule passiert, wird Nickel auf der Säule zurückgehalten. Erst mit 10M Salzsäure könnten die Nickelionen von der Säule gewaschen werden. Der Durchlauf dieser Säule (Eisenionen in 3,4M Salzsäure gelöst) wird eingedampft und der Rückstand in 7,1M Salzsäure wieder aufgenommen. Diese Lösung wird zusammen mit dem gleichen Volumen Diisopropylether in einen Scheidetrichter gegeben. Bei der Extraktion gehen Eisenionen von der wässrigen Phase (Salzsäure) in die organische Phase (Diisopropylether) über. Aus der organischen Phase wurde Eisen mit Wasser rückextrahiert. Nach dem Eindampfen dieser Lösung liegt das Eisen als Gemisch aus Eisenhydroxid und Eisenoxid – ein rot-braunes Pulver – vor.

Folgende Nuklide konnten nach den beiden chemischen Abtrennungsschritten im Probenmaterial noch nachgewiesen werden:

Nuklid	Aktivität in Bq
^{55}Fe	$1 \cdot 10^5$
^{137}Cs	$1 \cdot 10^3$
^{134}Cs	$0,2 \cdot 10^2$
^{154}Eu	$0,3 \cdot 10^2$
^{241}Am	$1,1 \cdot 10^2$

Tabelle 3.7: Die Nuklide und ihre Aktivität, die in der gereinigten Eluatlösung, aus der die BMS-Probe gefertigt wurde, noch nachgewiesen werden konnten.

Den größten Anteil der Aktivität trägt das Nuklid ^{55}Fe . Durch chemische Trennungsschritte kann dessen Aktivität nicht weiter verringert werden, da eine Isotopentrennung durch chemische Schritte nicht möglich ist.

¹ Organische Moleküle können die Ausbildung von Phasengrenzen bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion verhindern.

3.4.2 Herstellung der BMS-Probe

Das Probenmaterial, dessen chemische Aufbereitung in Kapitel 3.4.1 beschrieben ist, wird zur Verbesserung der thermischen Leitfähigkeit mit hochreinem, pulverförmigen Silber¹ vermischt. Ein geeignetes Verhältnis zwischen Eisen- und Silberpulver ist ungefähr 2 zu 3 [Kni97]. Das Probenmaterial wird in einen zylindrischen Targethalter (Durchmesser 5,9mm) aus Silber² gepreßt, in dessen Mitte ein Loch (Durchmesser 2,1mm und Tiefe ca. 1mm) gebohrt wurde. Den geringsten Nickel-Untergrund aus den Targethaltern würde man mit Targethaltern aus Blei erreichen [Sch96]. Da aber Blei sehr weich ist, könnten nur Targethalter mit einer Bleifüllung verwendet werden. Als Kompromiß zwischen dem Aufwand der Targetherstellung und des zu erwarteten Ni-Untergrunds einigte man sich auf die Verwendung von Targethaltern aus massivem Silber.

3.5 Erreichte Dekontaminationsfaktoren

In Tabelle 3.8 ist dargestellt, wie wirkungsvoll die Aktivitätsträger in den einzelnen Schritten abgetrennt werden konnten. In der zweiten Spalte sind die Dekontaminationsfaktoren aufgelistet, die bei der Eisen-Abtrennung mit Festphasenextraktion in Karlsruhe erreicht wurden. Die dritte Spalte gibt die Zahlen für die Feinreinigung in Garching an, die letzte Spalte stellt die Dekontaminationsfaktoren dar, die durch alle chemischen Schritte erreicht wurden.

Nuklid	HAWC → Eluat	Eluat → Probenmaterial	HAWC → Probenmaterial
¹³⁷ Cs	$2,5 \cdot 10^4$	$7,0 \cdot 10^2$	$1,8 \cdot 10^7$
¹³⁴ Cs	$2,8 \cdot 10^4$	$6,8 \cdot 10^2$	$1,9 \cdot 10^7$
¹⁵⁴ Eu	$8,0 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^4$	$1,0 \cdot 10^7$
²⁴¹ Am	$8,0 \cdot 10^2$	$2,3 \cdot 10^3$	$1,9 \cdot 10^6$

Tabelle 3.8: *Dekontaminationsfaktoren*

Für eine anschauliche Demonstration sind im folgenden zwei Spektren aus der Flüssigszintillationsmessung gezeigt, die nicht zu einer quantitativen Auswertung dienen sollen. Für α -Strahler und β/γ -Strahler wurden unterschiedliche Verstärkereinstellungen verwendet. In Abbildung 3.4 ist das Spektrum der Eluatlösung, wie sie nach der Abtrennung in Karlsruhe vorlag, gezeigt. Man erkennt eine breite Verteilung, die durch das Gemisch der β -Strahler, die noch vorhanden sind (s. Kapitel 3.3.4), verursacht wird. Charakteristisch zu identifizieren ist darin nur das Nuklid ¹³⁷Cs durch den schmalen Peak am Ende der Verteilung. Dieser Peak wird durch die Konversionselektronen des 662keV Zustands des Tochternuklids ¹³⁷Ba^m (Elektronenenergie 634keV) verursacht. Ein Spektrum der noch vorhandenen α -Strahler

¹ Ag-Pulver: Johnson Matthey, 99,9995%

² Ag: DEGUSSA, 99,999%

(s. Kapitel 3.3.4) erscheint im selben Bild als schmaler Peak, wobei dieser Peak hauptsächlich durch die 5,5MeV α -Teilchen von ^{241}Am gebildet wird. Abbildung 3.5 zeigt das Spektrum des in Garching gereinigten Eluats, aus dem die Probe für die BMS-Messung gefertigt wurde. Man erkennt nur noch einen Peak, der hauptsächlich vom nicht weiter abzutrennenden ^{55}Fe (s. Kapitel 3.4.1) stammt (Elektroneneinfang, $^{55}\text{Mn K}_{\alpha}$, $E = 5,9\text{keV}$). Die breite Verteilung ist bis auf den minimalen Untergrund verschwunden, d. h. die störenden Nuklide konnten größtenteils abgetrennt werden. Die kleine Erhebung bei Kanal 750 deutet auf ^{137}Cs hin, das noch mit einer kleinen Restaktivität – verglichen mit der ^{55}Fe -Aktivität – in der Probe verblieben ist (s. Kapitel 3.4.1). ^{241}Am , das im gereinigten Eluat ebenfalls in sehr geringen Mengen noch zu finden war (s. Kapitel 3.4.1), ist in diesem Spektrum nicht zu sehen, weil für diese Messung eine zu geringe Probenmenge eingesetzt wurde.

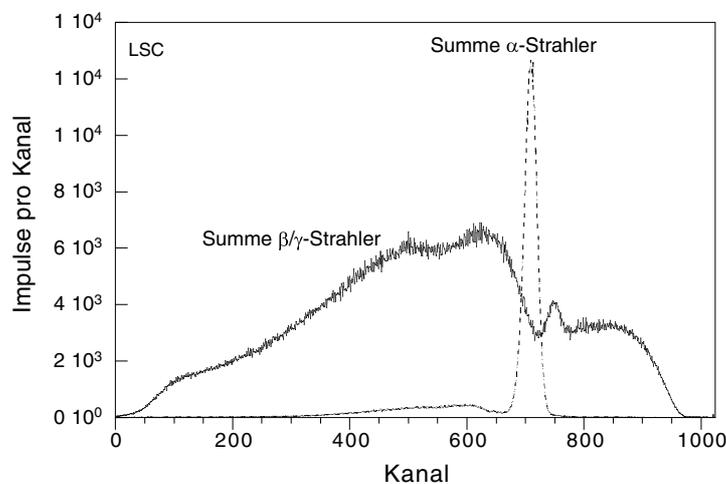


Abbildung 3.4: *Spektrum einer Flüssigszintillationsmessung der Eluatlösung*

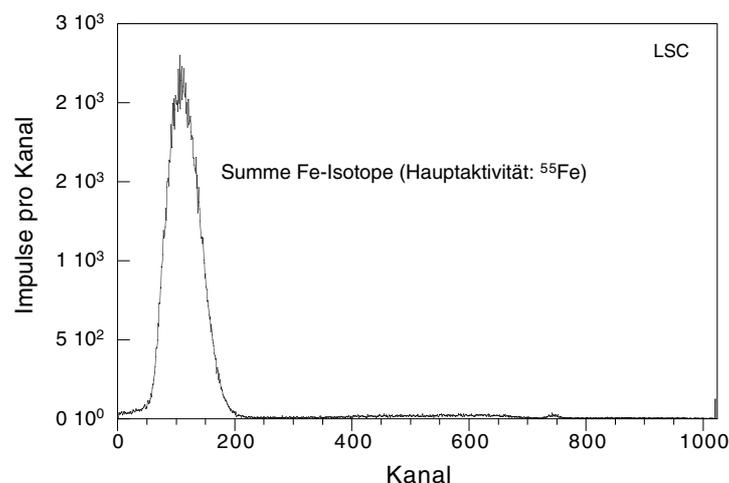


Abbildung 3.5: *Spektrum einer Flüssigszintillationsmessung der gereinigten Eluatlösung*

4 Messung und Ergebnis

4.1 Messung

Die Probe, deren Herkunft und Aufbereitung in Kapitel 3 dargestellt ist, wurde mit Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) vermessen. Dabei wurde bei einer Terminalspannung von $U_T = 13\text{MV}$ der Ladungszustand 11^+ für ^{60}Fe gewählt. Wie schon in Kapitel 2.5.2 erwähnt, wird vor und nach jeder Einzelmessung der Strom eines stabilen Isotops des zu messenden Radionuklids gemessen. In diesem Fall wurde ^{54}Fe gewählt. Bei einer Terminalspannung von $U_T = 13,06\text{MV}$ besitzt das Isotop ^{54}Fe im Ladungszustand 10^+ die selbe magnetische Steifigkeit wie $^{60}\text{Fe}^{11+}$. Um also zwischen den Einstellungen für ^{54}Fe und ^{60}Fe zu wechseln, muß nur die Terminalspannung und der Injektormagnet verändert werden.

Abbildung 4.1 zeigt zwei Spektren der letzten ^{60}Fe -Strahlzeit, in denen jeweils das 4. Energieverlustsignal gegen den Ort aufgetragen ist. Die Meßzeit der Probe (unteres Bild) betrug 120s bei einem mittleren ^{54}Fe -Strom am Cup1 von 23,2nA. Es ergaben sich 516 ^{60}Fe -Ereignisse. Die Transmission wird durch eine vor oder nach der Messung durchgeführten Eichung bestimmt. Hierfür wurde eine Eichprobe [Sch96] mit der Konzentration von $N(^{60}\text{Fe})/N(\text{Fe}) = (1,04 \pm 0,22) \cdot 10^{-11}$ verwendet. Es ergab sich eine Transmission zwischen dem Einschub in den Beschleuniger und dem Nachweis im Detektor von 1%. In Abbildung 4.1 oben ist das Spektrum eines Blanks, einer Probe ohne ^{60}Fe , gezeigt. Die Meßzeit betrug dabei 2040s bei einem mittleren ^{54}Fe -Strom am Cup1 von 156,6nA. Obwohl die Meßzeit knapp 20mal und der Eisenstrom knapp 7mal größer ist als bei der Meßprobe, wurden keine ^{60}Fe -Ereignisse im Detektor registriert. Besonders zu erwähnen ist, daß die Ergebnisse ohne Setzen von Softwarefenstern gewonnen werden konnten, da die Probe bezogen auf den Untergrund so sauber war.

Mit Gleichung (4.1) kann die Konzentration der Meßprobe berechnet werden:

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})}{N(\text{Fe})} = \frac{\text{counts} \cdot e \cdot 5,8\%}{I_{54} \cdot t \cdot T} \quad (4.1)$$

wobei

counts = ^{60}Fe -Ereignisse im Detektor
 I_{54} = mittlerer ^{54}Fe -Strom am CUP1
 t = Meßzeit

T = Transmission
 e = Elementarladung

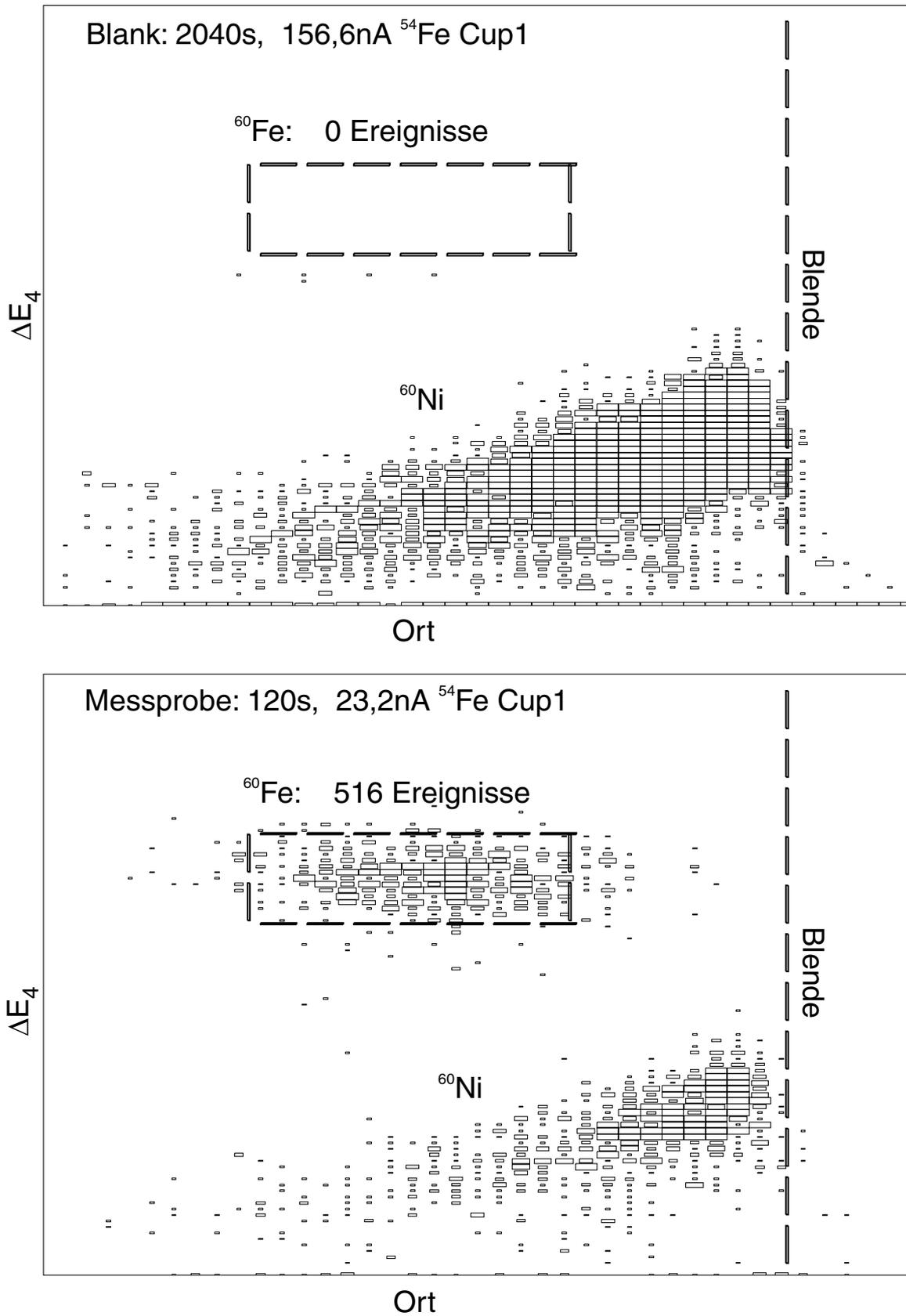


Abbildung 4.1: Spektren, in denen der Energieverlust ΔE_4 gegen den Ort aufgetragen ist
 oben: Messung eines Blanks
 unten: Messung der Meßprobe

Für die Konzentration der Meßprobe kann damit folgender Wert angegeben werden:

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})}{N(\text{Fe})} = (2,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-10}$$

Die Unsicherheiten bei dem Meßwert setzen sich wie folgt zusammen:

- 10% systematischer Fehler bei der Messung
- 4% statistischer Fehler der Messung
- 20% bei der Eichung

Somit kommt man auf einen Gesamtfehler von 23%.

Bei der BMS wird immer das Verhältnis von Radionuklid zum stabilen Element in der Probe gemessen. Besonders weil der Meßwert um eine Größenordnung höher liegt als erwartet (s. Kapitel 3.1.4) ist es nun wichtig, zu wissen, aus welchen einzelnen Komponenten die Meßprobe zusammengesetzt ist. Beim stabilen Eisen handelt es sich hauptsächlich um das Eisen, das während des Aufarbeitungsprozesses in der WAK aus den Behältern herausgelöst wurde (s. Kapitel 3.1.3). Nur ein geringer Teil könnte aus den Reaktoren kommen, was in Abschnitt (c) von Kapitel 4.2.4 abgeschätzt werden soll. ^{60}Fe stammt einerseits aus der Spaltung, kann aber eventuell auch durch andere Kanäle entstanden sein. Reaktionen, wie (n, γ) , (n, p) , ... wurden schon in Kapitel 2.3 behandelt und für einen Beitrag zum Untergrund ausgeschlossen. Bleibt noch, den Anteil an ^{60}Fe aus dem doppelten Neutroneneinfang am ^{58}Fe abzuschätzen.

4.2 Abschätzungen zum Untergrund

Im folgenden soll der Weg aufgezeigt werden, wie der Anteil von ^{60}Fe aus der Aktivierung am insgesamt nachgewiesenen ^{60}Fe abgeschätzt wurde.

4.2.1 Prinzipielles

^{60}Fe kann durch doppelten Neutroneneinfang am ^{58}Fe nur dann im Reaktor entstehen, wenn stabiles Eisen in Kernnähe zur Verfügung steht. Interessant für den Meßwert ist das ^{60}Fe , das auf diesem Weg entstanden ist, nur dann, wenn es irgendwie in die WAK gelangt ist und zusammen mit dem ^{60}Fe aus der Spaltung in der Spaltproduktlösung vorliegt.

In diesem Zusammenhang ist bedeutsam, daß es an Brennelementen zu Ablagerungen kommen kann, die in Fachkreisen unter dem Namen CRUD¹ bekannt sind.

4.2.2 CRUD

Da es zu diesem Thema nur sehr wenig zugängliche Literatur gibt, war zu Beginn der Diplomarbeit nicht deutlich, wie stark diese Ablagerungen aus Reaktoren Einfluß auf den Meßwert haben würden. Die Informationen zu CRUD, besonders Entstehung und Zusammensetzung, die im folgenden Abschnitt zusammengestellt sind, konnten zum größten Teil durch

¹ CRUD: Chalk River Unidentified Deposit

private Mitteilungen von Mitarbeitern des Instituts für Radiochemie in Erfahrung gebracht werden [Kle98, KSL97, Nee97].

In Leichtwasserreaktoren wird zur Kühlung (und auch als Moderator) deionisiertes Wasser eingesetzt, das im primären Kühlwasserkreislauf in direkten Kontakt mit den Brennelementen im Reaktorkern kommt. Deionisiertes Wasser ist chemisch sehr aggressiv, bietet aber den Vorteil, daß es selbst wenig Verunreinigungen beinhaltet, die durch Reaktorneutronen aktiviert werden können. Der große Nachteil aber ist die Aggressivität, denn im Laufe der Zeit löst das deionisierte Wasser aus den Komponenten des Kühlwasserkreislaufs Moleküle heraus. Kühlwasserrohre sind aus Edelstahl gefertigt, so daß unter den Korrosionsprodukten hauptsächlich folgende Elemente gefunden werden: Eisen, Nickel, Chrom, Mangan, Kupfer und Kobalt. Die Zusammensetzung variiert je nach verwendetem Stahl, wobei Eisen immer den größten Anteil darstellt. Kobalt wird wegen seines hohen Neutroneneinfangsquerschnitts als Zugabe zum Stahl vermieden, allerdings werden auch Spurenelemente aktiviert und deswegen wird auch ^{60}Co im CRUD gefunden. Die Ionen werden zusammen mit dem Kühlwasser durch den Reaktor gepumpt und kommen zwangsläufig auch am Reaktorkern vorbei. Dort können die Elemente aktiviert werden. Zum Teil schlagen sie sich als Oxide an den heißen Brennstäben nieder. Ein anderer Teil der bestrahlten Korrosionsprodukte verläßt zusammen mit dem Kühlwasser den Reaktorkern und setzt sich teilweise an anderen Stellen ab. Diese Ablagerungen sind vor allem bei Inspektions-/Wartungs- und Reparaturarbeiten sehr ungünstig, da sie z. B. aufgrund von ^{60}Co ($T_{1/2} = 5,27\text{a}$) eine hohe Strahlenbelastung für das Personal darstellt.¹ Die Korrosionsprodukte, die sich auf den Brennstäben anlagern, bilden eine sehr harte, gelb-braune Schicht.

4.2.3 Mathematischer Formalismus

Das Problem der Produktion von ^{60}Fe durch doppelten Neutroneneinfang kann mathematisch in folgenden drei Differentialgleichungen dargestellt werden:

$$\frac{dN_{58}}{dt} = -\frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sigma_{58} \cdot \Phi \cdot N_{58} \quad (4.2)$$

$$\frac{dN_{59}}{dt} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sigma_{58} \cdot \Phi \cdot N_{58} - \left(\frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sigma_{59} \cdot \Phi + \lambda_{59} \right) \cdot N_{59} \quad (4.3)$$

$$\frac{dN_{60}}{dt} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sigma_{59} \cdot \Phi \cdot N_{59} - \lambda_{60} \cdot N_{60} \quad (4.4)$$

wobei

N_{58} = Anzahl der Atome ^{58}Fe

N_{59}, N_{60} analog

σ_{58} = Wirkungsquerschnitt für den Einfang von thermischen Neutronen am ^{58}Fe

σ_{59} analog

λ_{59} = Zerfallskonstante von ^{59}Fe

λ_{60} analog

Φ = thermischer Neutronenfluß

¹ ^{60}Co hat aufgrund seiner Halbwertszeit eine hohe spezifische Aktivität.

Die Lösung dieser drei voneinander abhängigen Differentialgleichungen lautet:

$$N_{60}(t) = \frac{\pi}{4} \cdot \sigma_{58} \cdot \sigma_{59} \cdot \Phi^2 \cdot N_{58} \cdot \left[\frac{1}{C_1} e^{-\sigma_{58} \cdot \Phi \cdot t} + \frac{1}{C_2} e^{-(\sigma_{59} \cdot \Phi + \lambda_{59})t} + \frac{1}{C_3} e^{-\lambda_{60}t} \right] \quad (4.5)$$

mit

$$C_1 = \left[(\sigma_{59} \cdot \Phi + \lambda_{59}) - \sigma_{58} \cdot \Phi \right] \cdot \left[\lambda_{60} - (\sigma_{58} \cdot \Phi) \right]$$

$$C_2 = \left[(\sigma_{58} \cdot \Phi) - (\sigma_{59} \cdot \Phi + \lambda_{59}) \right] \cdot \left[\lambda_{60} - (\sigma_{59} \cdot \Phi + \lambda_{59}) \right]$$

$$C_3 = \left[(\sigma_{58} \cdot \Phi) - \lambda_{59} \right] \cdot \left[(\sigma_{59} \cdot \Phi + \lambda_{59}) - \lambda_{60} \right]$$

In Abbildung 4.2 ist die Produktion von ^{60}Fe gemäß der Gleichung (4.5) gegen die Bestrahlungszeit t_B in Einheiten der Halbwertszeit von ^{59}Fe aufgetragen.

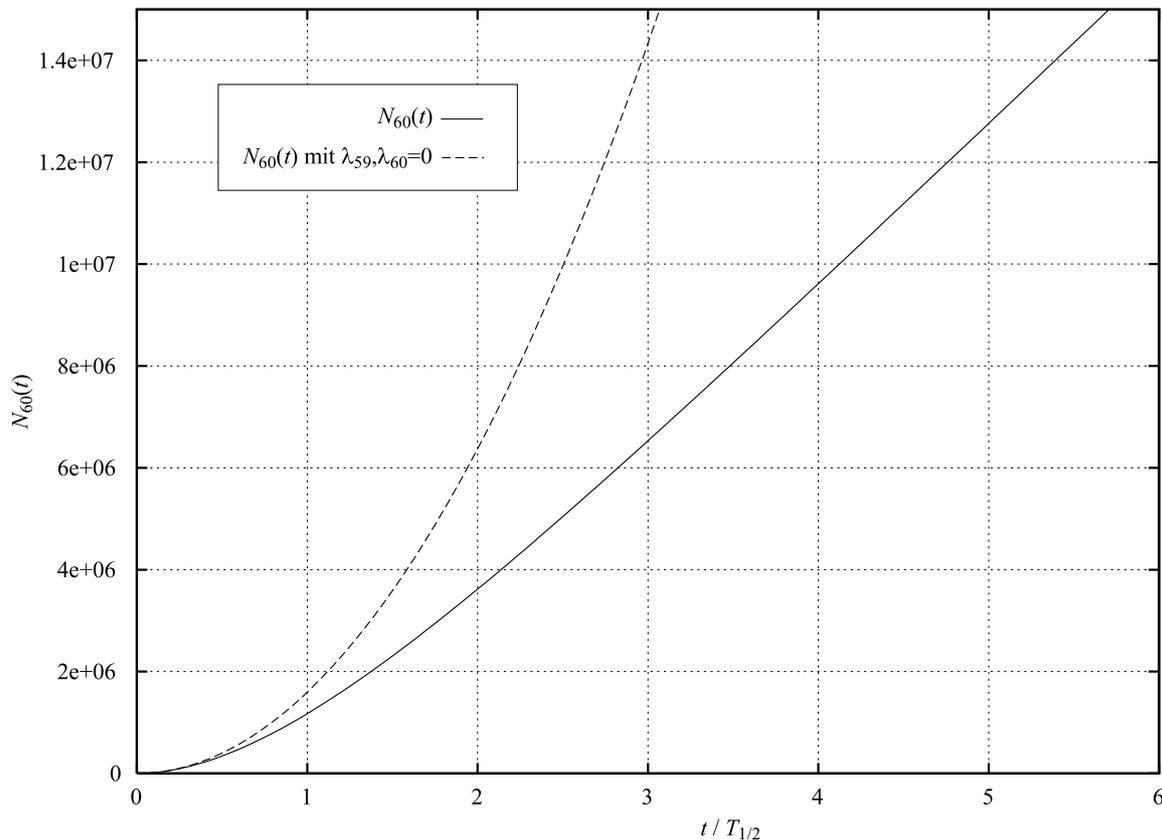


Abbildung 4.2: Produktion von ^{60}Fe nach Gleichung (4.5) und zum Vergleich die Produktion von ^{60}Fe bei vernachlässigtem Zerfall von ^{59}Fe und ^{60}Fe ($\lambda_{59}, \lambda_{60}=0$). Für dieses Beispiel wurden folgende Parameter in (4.5) eingesetzt: $\Phi=2,3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$; $m(\text{Fe})=3 \cdot 10^{-3} \text{ mg}$

Es ist erkennbar, daß die Produktion von ^{60}Fe durch den doppelten Neutroneneinfang am ^{58}Fe für kleine Bestrahlungszeiten gegenüber der Halbwertszeit von ^{59}Fe ($T_{1/2} = 44,5\text{d}$) quadratisch mit der Zeit anwächst, während sie dann für spätere Zeiten nur noch linear ansteigt. Der

Grund für den linearen Verlauf ist, daß die Aktivität von ^{59}Fe nach einigen Halbwertszeiten ihren Sättigungswert erreicht, d. h. ^{59}Fe liegt dann in konstanter Konzentration vor und es wird genauso viel ^{59}Fe gebildet wie in der gleichen Zeit zerfällt; die Produktion von ^{59}Fe ist also nicht mehr zeitabhängig, sondern nur mehr die von ^{60}Fe .

Für die weitere Diskussion sind genau diese beiden Grenzfälle interessant:

Kurze Bestrahlungszeiten t_B gegenüber der Halbwertszeit von ^{59}Fe

Für diesen Fall kann das Verbrennen von ^{59}Fe sowie der radioaktive Zerfall von ^{59}Fe und ^{60}Fe vernachlässigt werden.

Mit diesen Näherungen vereinfacht sich Gleichung (4.5) zu

$$N_{60}(t) = \frac{1}{2} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot \sigma_{58} \cdot \sigma_{59} \cdot N_{58} \cdot \Phi^2 \cdot t^2 \quad (4.6)$$

Große Bestrahlungszeiten t_B gegenüber der Halbwertszeit von ^{59}Fe

Für diesen Fall wird das Verbrennen von ^{59}Fe und der radioaktive Zerfall von ^{60}Fe vernachlässigt. Der radioaktive Zerfall von ^{59}Fe wird dagegen berücksichtigt.

Mit diesen Näherungen wird Gleichung (4.5) zu

$$N_{60}(t) = \frac{\pi}{4} \cdot \sigma_{58} \cdot \sigma_{59} \cdot \frac{1}{\lambda_{59}} N_{58} \cdot \Phi^2 \cdot t \quad (4.7)$$

4.2.4 Vorgehensweise bei der Abschätzung

Für die Diskussion zum Untergrund durch ^{60}Fe aus der Aktivierung kann Gleichung (4.7) angewendet werden, weil die Zeiten, die für die Betrachtung des Problems in Frage kommen, im Bereich mehrerer Halbwertszeiten von ^{59}Fe liegen (s. dazu Abschnitt (b) in Kapitel 4.2.4, in dem t_B abgeschätzt wird).

Im folgenden wird schrittweise aufgezeigt, wie die einzelnen Parameter, die noch unbekannt waren, abgeschätzt wurden.

a) Der Wirkungsquerschnitt für den Einfang von Neutronen am ^{59}Fe zum ^{60}Fe

Die Kenntnis dieses Wirkungsquerschnitts ist auch für andere Zusammenhänge sehr aufschlußreich, so z. B. für die Berechnung von ^{60}Fe aus stellaren Prozessen.

Der Wirkungsquerschnitt war bisher noch nicht bekannt. Was in den neuesten Nuklidkarten eingetragen ist (<10barn), stellt den (n, α)-Wirkungsquerschnitt vom ^{59}Fe zum ^{56}Cr dar [WPF89].

Experimentelles Vorgehen

Zur Bestimmung des Wirkungsquerschnitts wurde 1,07 mg metallisches, in ^{58}Fe angereichertes Eisen im Forschungsreaktor FRM bestrahlt. Die Bestrahlungszeit betrug 24 Stunden. Das Eisen war folgendermaßen zusammengesetzt, wobei die natürliche Isotopenhäufigkeit jeweils in Klammern mit angegeben ist:

^{54}Fe	2,0%	(5,8%)
^{56}Fe	35,8%	(91,7%)
^{57}Fe	3,8%	(2,2%)
^{58}Fe	58,4%	(0,28%)

Da die Bestrahlungszeit klein gegenüber der Halbwertszeit von ^{59}Fe ist, kann für die Berechnung des unbekanntenen Wirkungsquerschnitts σ_{59} die Gleichung (4.6) verwendet werden.

Durch Aktivierung der Eisen-Probe wurden im wesentlichen die Isotope ^{55}Fe und ^{59}Fe erzeugt. Ihre jeweilige Aktivität¹ in der Probe ist im folgenden angegeben:

$$^{55}\text{Fe} \quad (7,20 \pm 0,07) \cdot 10^3 \text{ Bq}$$

$$^{59}\text{Fe} \quad (2,30 \pm 0,02) \cdot 10^6 \text{ Bq}$$

Um die Strahlenbelastung der Experimentatoren und der BMS-Anlage so gering wie sinnvoll möglich zu halten, wurde mit der weiteren Behandlung der bestrahlten Probe fast sechs Monate gewartet. Nach dieser Abklingzeit hat sich die Aktivität des kürzerlebigen ^{59}Fe ($T_{1/2} = 44,5\text{d}$) um mehr als eine Größenordnung verringert.

Bevor die Probe auf ihren ^{60}Fe -Gehalt vermessen werden konnte, mußte sie aus folgenden Gründen zuerst noch chemisch behandelt werden:

1. Die zu vermessende Probe soll in oxidischer Form vorliegen, nicht als Metall, da der Einschub von Eisenoxidionen in den Beschleuniger bevorzugt wird. Die Begründung dafür ist in Abschnitt (a) von Kapitel 2.5.1 angegeben [SFKK95].
2. Das störende Isobar ^{60}Ni sollte abgetrennt werden.

Das bestrahlte metallische Eisen wurde zusammen mit 2mg Eisenoxid², das als Carrier zugegeben wurde, in einer Mischung aus 5ml 65%ige Salpetersäure und 15ml 10M Salzsäure aufgelöst, um zu erreichen, daß Eisen als dreiwertiges Ion vorliegt. In der Lösung wurde mit einem Reinst-Germanium-Detektor die Aktivität von ^{59}Fe zu $(1,50 \pm 0,02) \cdot 10^5 \text{Bq}$ bestimmt. Zur Fe-Ni-Trennung wurde die Methode "Flüssig-Flüssigextraktion mit Diisopropylether" gewählt, die bereits in Kapitel 3.4.1 beschrieben wurde. Die Lösung, die man am Schluß dieser Extraktion erhält, wurde eingedampft. Als Endprodukt liegt dann ein Mischzustand aus Eisenhydroxid und Eisenoxid als rot-braunes Pulver vor.

Die Probe wurde mit BMS vermessen, wobei sich folgender Wert ergab:

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})}{N(^{58}\text{Fe})} = (1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-11}$$

Der Neutronenfluß wurde über die Aktivität von ^{59}Fe zu $(1,91 \pm 0,02) \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bestimmt. Der Wert weicht um etwa 30% von dem im Bestrahlungsauftrag angegebenen Wert ab, was im Rahmen der üblichen Unsicherheiten liegt.

Damit kann für den Wirkungsquerschnitt von ^{59}Fe zu ^{60}Fe folgender Wert angegeben werden:

$$\sigma_{59} = (7,0 \pm 1,4) \text{ barn}$$

¹ Die Aktivitäten wurden mit Hilfe der sechs Monate später gemessenen ^{59}Fe -Aktivität berechnet.

² Fe(III)oxid-Pulver: Johnson Matthey, 99,998%

Dieser Wirkungsquerschnitt beinhaltet nicht nur den Einfang von thermischen Neutronen, sondern auch von Neutronen mit größeren Energien. Eine Bestrahlung von metallischem Eisen in einer Cadmiumumhüllung¹ würde einen Wert für den Einfang von epithermischen Neutronen liefern. Durch Subtraktion von obigem Wert könnte der rein thermische Anteil des Wirkungsquerschnitts bestimmt werden. Für die Abschätzung des Untergrunds durch ⁶⁰Fe aus der Aktivierung ist aber gerade günstig, daß der Wirkungsquerschnitt aller Neutronen mit typischem Reaktorspektrum berücksichtigt wird.

b) Neutronenfluß Φ , Bestrahlungszeit t_B und Abklingzeit t_A

Für die Rekonstruktion von Neutronenfluß, Bestrahlungszeit im Reaktor und Abklingzeit standen die Analysedaten des HAWCs zur Verfügung. In Karlsruhe werden halbjährlich außer der Temperatur, Füllstand und Feststoffdichte des HAWCs auch die Aktivität einer Auswahl von Nukliden bestimmt. Außerdem werden die Gewichtsprozent der Uranisotope und der Plutoniumisotope, die im HAWC nachgewiesen werden, angegeben.

In einem einfachen Modell wurde die "*Lebensgeschichte*" folgender Nuklide im Reaktor bis zu ihrer Einlieferung in die WAK simuliert: ¹⁰⁶Ru, ¹²⁵Sb, ¹⁴⁴Ce, ¹⁵⁵Eu, ¹⁵⁴Eu und ¹³⁴Cs.

Dazu wurde für jedes Nuklid einzeln eine Bilanzgleichung aufgestellt, in der folgende Komponenten berücksichtigt werden:

1. Produktion durch

- Spaltung, wobei die Zahl der Spaltungen über die Aktivität von ¹³⁷Cs festgelegt wurde
- Aktivierung durch thermische Neutronen
- Aktivierung durch epithermische Neutronen, wobei für den epithermischen Neutronenfluß das 0,3-fache des thermischen Flusses angenommen wurde

2. Zerstörung durch

- radioaktiven Zerfall während der Zeit im Reaktor und während der Abklingzeit
- Einfang eines thermischen Neutrons, wobei der "normale" Einfangsquerschnitt eingesetzt wurde
- Einfang eines epithermischen Neutrons, wobei das Resonanzintegral wie ein Wirkungsquerschnitt verwendet wurde

Mit den Bilanzgleichungen, die sich somit ergeben, sollte der Zeitraum zwischen der Aufenthaltsdauer der Nuklide im Reaktor bis zu ihrem ersten Nachweis in der HAWC-Lösung abgedeckt werden. Es wird angenommen, daß die Aktivitäten aller Nuklide zur Zeit $t = 0$ gleich null sind. Es wird für jeden Monat die Aktivität jedes Nuklids berechnet und mit dessen gemessenen Aktivitätswert verglichen. Der Zeitraum *ein Monat* ist dabei genügend klein, so daß das Problem iterativ gelöst werden kann. Für die Uranisotope werden die Ergebnisse in relativen Zahlen angegeben, so daß also für die Abschätzung kein absoluter Wert für den Zeitpunkt $t = 0$ vorliegen muß.

Die unbekannt Parameter in den Bilanzgleichungen sind der Neutronenfluß Φ im Reaktor, die Bestrahlungszeit t_B im Reaktor und die Abklingzeit t_A bis zur Wiederaufarbeitung. Diese werden so lange variiert, bis die berechneten Aktivitäten der Nuklide zur Zeit $t = t_B + t_A$ bestmöglichst mit dem Ergebnis der 1. Analyse des HAWCs übereinstimmen.

¹ Cadmium hat einen sehr großen Einfangsquerschnitt für thermische Neutronen

Mit folgenden Werten

$$\Phi = 2,3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

$$t_B = 2,5 \text{ Jahre}$$

$$t_A = 4 \text{ Jahre}$$

ergaben sich für die Spalt- und Aktivierungsprodukte die Ergebnisse, die in Tabelle 4.1 zusammengestellt sind.

Nuklid	$T_{1/2}$	cal/mess
^{106}Ru	1,02a	26%
^{125}Sb	2,77a	38%
^{144}Ce	0,78a	111%
^{155}Eu	4,76a	32%
^{154}Eu	8,8a	29%
^{134}Cs	2,06a	99%

Tabelle 4.1: Nuklide, die für die Rekonstruktion von Φ , t_B und t_A herangezogen wurden, ihre Halbwertszeit und die erreichte Übereinstimmung mit den gemessenen Daten

Für Uran wurden in der Simulation folgende Ergebnisse erreicht:

Aus der Fluenz $\Phi \cdot t_B$ kann berechnet werden, daß das eingesetzte ^{235}U bis auf 29% abgebrannt ist. Das entspricht in etwa einem mittleren Abbrand für den Brennstoff, der in der WAK aufgearbeitet wurde, wie er in Kapitel 3.1 angegeben ist [Mün80].

Der berechnete Wert für das Verhältnis von ^{235}U zu ^{236}U stimmt zu 84% mit dem in der WAK gemessenen Verhältnis überein.

Die Gründe, warum für die Abschätzung zum Untergrund durch ^{60}Fe aus dem doppelten Neutroneneinfang diese Werte für Φ , t_B und t_A verwendet wurden, sind im folgenden aufgelistet:

1. Sie stellen die normalen Werte für kommerzielle Leichtwasserreaktoren dar und decken sich mit den Vorhersagen [Sto97].
2. Die berechneten Daten für Uran stimmen gut mit den in Karlsruhe gemessenen überein. In die Berechnung der Uranisotope geht kein radioaktiver Zerfall ein.
3. Die berechneten Daten für die Cäsiumisotope stimmen optimal mit den gemessenen überein. Das Isotop ^{137}Cs , dessen Halbwertszeit so groß ist, daß es für den betrachteten Zeitraum ($t_A + t_B$) als stabil angesehen werden kann, stellt einen Vertreter der Spaltprodukte dar. Das Isotop ^{134}Cs ist ein Vertreter der Aktivierungsprodukte. Die Zahl der Spaltungen, die für die Simulation eingesetzt wurde, wurde durch die Aktivität von ^{137}Cs und der Spaltausbeute für Masse 137 ausgedrückt.

c) Masse Eisen $m(\text{Fe})$

Es mußte rekonstruiert werden, wieviel stabiles Eisen während der Bestrahlungszeit der Brennelemente einer Neutronenbestrahlung ausgesetzt war und zusammen mit den Brennelementen (also mit ^{60}Fe aus der Spaltung) in die WAK geliefert wurde. Diese Abschätzung wurde über die ^{55}Fe -Aktivität vorgenommen, die in der Eluatlösung gemessen wurde (s. Kapitel 3.3.4). Hierbei ist zu erwähnen, daß die HAWC-Probe aus einem Aufbewahrungsbehälter in Karlsruhe stammt, mit dessen Füllung erst 1987 begonnen wurde und der nur noch vier Jahre mit Abfall aus der Wiederaufarbeitung von insgesamt 40t Brennstoff befüllt wurde.

Mit einem einfachen Modell wurde rekonstruiert, wieviel bestrahltes Eisen während der vier Jahre in die WAK geliefert sein mußte, um die heute meßbare ^{55}Fe -Aktivität zu erzeugen. Dabei wurden folgende Annahmen gemacht:

1. Die Masse Eisen $m(\text{Fe})$, die mit diesem Modell berechnet werden soll, liegt vom Bestrahlungszeitpunkt $t_B = 0$ als feste Schicht auf den Brennelementen vor und ist dort die volle Bestrahlungszeit t_B lang dem Neutronenfluß ausgesetzt.
2. Pro Jahr wird zweimal Abfall aus der Wiederaufarbeitung in die Behälter gefüllt.
3. Das Aktivierungsprodukt ^{55}Fe , das zusammen mit den anderen Korrosionsprodukten außen an den Brennstäben haftet, wird im gleichen Verhältnis geliefert, wie das Spaltprodukt ^{137}Cs , dessen halbjährliche Aktivität bekannt ist.

Mit diesem Modell ergibt sich, daß sich in dem Behälter, aus dem die ^{60}Fe -Probe stammt, 1,2kg stabiles, bestrahltes Eisen befindet. Es ist also etwa 1% des im HAWC befindlichen Eisens (5g/l, siehe Kapitel 3.1.3) bestrahltes Eisen.

Bei einer Unsicherheit der Abklingzeit t_A von 20%, macht man einen Fehler von etwa 25% in der Berechnung der Aktivität von ^{55}Fe . Da die Abklingzeit mit einem Modell bestimmt wurde, das viele Radionuklide berücksichtigt (s. Abschnitt (b) in Kapitel 4.2.4), ist ein größerer Fehler in der Abklingzeit eher unwahrscheinlich. Die größte Unsicherheit bei diesem einfachen Modell besteht darin, daß das zeitliche Verhalten der Korrosionsprodukte aus dem CRUD vollkommen unbekannt ist. Die Annahme, die hier gemacht wurde, daß die gesamte Masse stabiles Eisen $m(\text{Fe})$ vom Bestrahlungszeitpunkt $t_B = 0$ auf den Brennstäben vorlag, ist sicherlich zu einfach. Theoretisch sind viele verschiedene Möglichkeiten denkbar: Das Eisen könnte sich z. B. kontinuierlich mit der Zeit anlagern, oder es könnte sich nach einiger Zeit ein Sättigungswert einstellen, oder die gebildete Schicht auf den Brennelementen könnte sich mit der Zeit auch zum Teil wieder abbauen. Aus diesem Grund ist die oben abgeschätzte, mit Neutronen bestrahlte Eisenmenge nur ungenau bekannt und könnte auch einen Faktor zwei größer sein. Bezieht man die 1,2kg Eisen auf die Masse Brennstoff, dessen Aufarbeitungsrückstand in dem Tank lagert (etwa 40t) und macht dabei die vereinfachende Annahme, daß sich die Korrosionsprodukte wie Eisen in einer gleichmäßigen Schicht auf die Brennstäbe legt, ergibt sich für die Schichtdicke dieser Ablagerung auf den Brennstäben 30 bis $40\mu\text{g}/\text{cm}^2$. In der Tat werden in der einschlägigen Literatur [Nee97] Ablagerungen in dieser Größenordnung angegeben, was das relativ einfache Modell zur Abschätzung der Eisenmenge im CRUD rechtfertigt.

4.2.5 Ergebnis der Abschätzung

Setzt man die Werte für σ_{59} , Φ , t_B , t_A , und $m(\text{Fe})$, die in Kapitel 4.2.4 hergeleitet wurden, in Gleichung (4.5) ein, ergibt sich für die Anzahl der ^{60}Fe -Atome aus dem doppelten Neutroneneinfang, die sich in dem Tank unserer Probe befinden,

$$N(^{60}\text{Fe})^{n,\gamma} \approx 6 \cdot 10^{16}$$

Auf die Gesamtmenge an stabilem Eisen im Tank bezogen (19050ℓ HAWC mit einer Eisenkonzentration von 5g/ℓ) kann man folgendes Verhältnis angeben:

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})^{n,\gamma}}{N(\text{Fe})} \approx 6 \cdot 10^{-11}$$

Alle Größen, die in Kapitel 4.2.4 abgeschätzt wurden, sind fehlerbehaftet, besonders der zeitliche Ablauf der Eisen-Aktivierung. Deswegen soll das obige Verhältnis nur als Anhaltspunkt verstanden werden.

4.3 Schlußfolgerung aus Meßwert und Abschätzung

Die BMS-Messung der Probe ergab (s. Kapitel 4.1)

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})}{N(\text{Fe})} = (2,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-10}$$

Es wurde angenommen, daß das nachgewiesene ^{60}Fe einerseits bei der Spaltung von ^{235}U und andererseits aus dem doppelten Neutroneneinfang am ^{58}Fe gebildet werden konnte.

Die Abschätzung, wieviel ^{60}Fe aus dem doppelten Neutroneneinfang gebildet wurde, ergibt folgendes Verhältnis (s. Kapitel 4.2.5)

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})^{n,\gamma}}{N(\text{Fe})} \approx 6 \cdot 10^{-11}$$

Unter Berücksichtigung der eventuell größeren Unsicherheit in der Untergrundabschätzung, kann nicht gesagt werden, daß sich Meßwert und Untergrund signifikant unterscheiden. Es könnte auch sein, daß das im HAWC gefundene ^{60}Fe hauptsächlich aus doppeltem Neutroneneinfang stammt. Es kann aber sicher der Meßwert als obere Grenze für die Konzentration durch Spaltung gebildeter ^{60}Fe -Kerne angesehen werden:

$$\frac{N(^{60}\text{Fe})^{\text{fiss}}}{N(\text{Fe})} < 2 \cdot 10^{-10}$$

In Kapitel 3.1.4 wurde dieses Verhältnis zu $3,5 \cdot 10^{-11}$ abgeschätzt.

Die Gesamtzahl der Spaltungen ist über die Aktivität von ^{137}Cs gegeben. Somit kann für die Spaltausbeute der Masse 60 folgende Obergrenze berechnet werden:

$$Y_{60} < 1 \cdot 10^{-10}$$

Die laut FAUST erwartete Spaltausbeute ist $2 \cdot 10^{-11}$ (s. Kapitel 2.4).

Der neue Wert für die Spaltausbeute von Masse 60 ist in die Massenverteilung der Spaltprodukte aus der ^{235}U -Spaltung eingetragen (s. Abbildung 4.3).

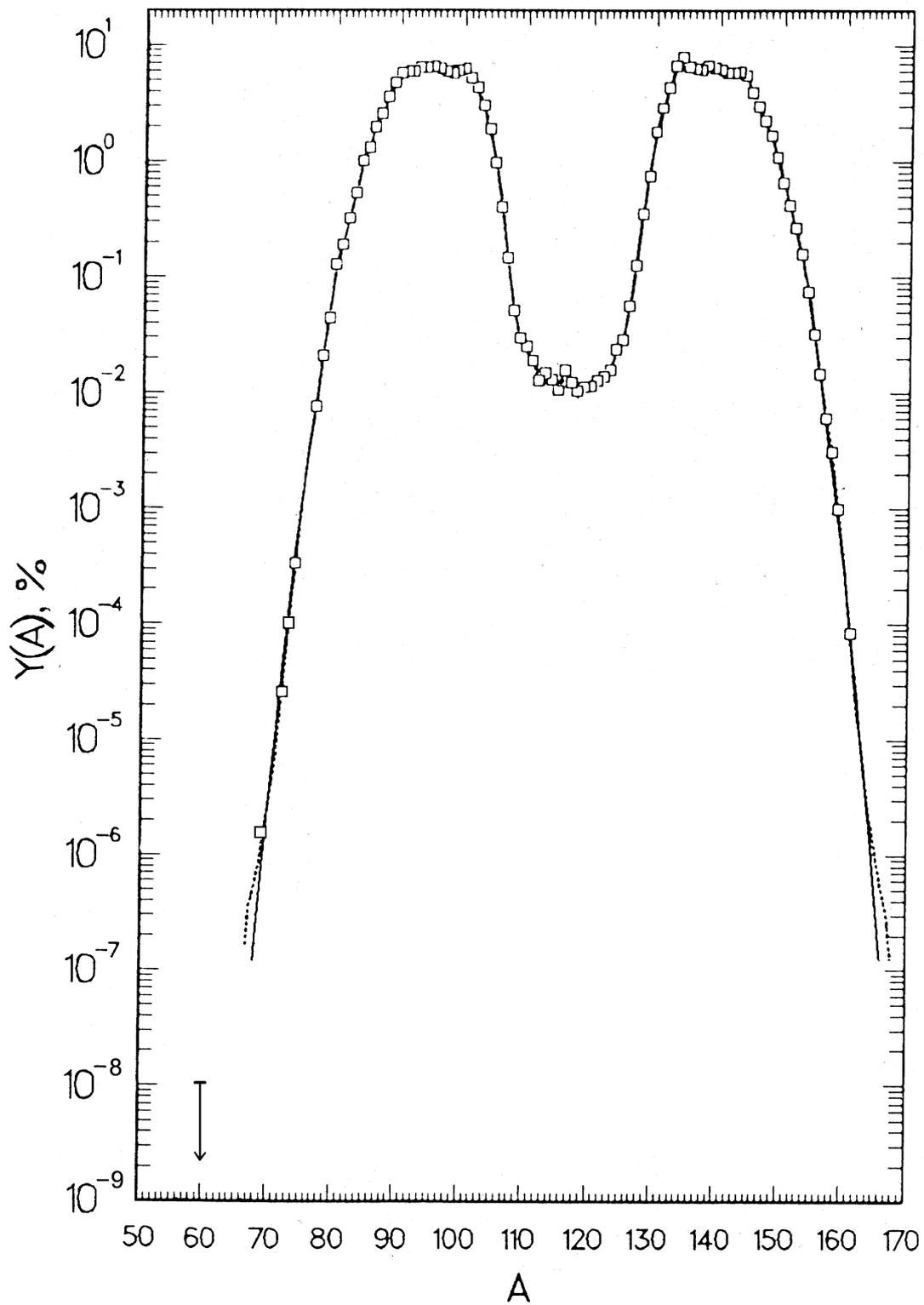


Abbildung 4.3: Massenverteilung der Spaltprodukte aus der ^{235}U -Spaltung mit neuem Meßwert. Der Pfeil soll andeuten, daß der neue Meßwert als obere Grenze verstanden werden soll.

5 Diskussion und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit konnte eine Obergrenze für die Spaltausbeute von Masse 60 angegeben werden.

$$Y_{60} < 1 \cdot 10^{-10}$$

Dieser Wert liegt zwei Größenordnungen unter dem Wert für die Spaltausbeute von ^{69}Ni , dem bisher leichtesten nachgewiesenen Kern aus der neutroneninduzierten Spaltung von ^{235}U (s. Kapitel 1.1). Die Empfindlichkeit, die mit den herkömmlichen Methoden zur Bestimmung von Spaltausbeuten erreicht wurde, kann mit der Methode, die in dieser Arbeit vorgestellt wurde, bei weitem übertroffen werden. Prinzipiell ist die Idee, durch den Nachweis von ^{60}Fe in geeigneten Proben auf die Spaltausbeute zu schließen, sehr gut und verwirklichtbar. Die momentane Nachweisgrenze für ^{60}Fe liegt bei etwa $1 \cdot 10^{-15}$, somit können also noch um 4-5 Größenordnungen geringere ^{60}Fe -Konzentrationen nachgewiesen werden. Der Grund, daß der Meßwert und die direkt damit verbundene Spaltausbeute höher als erwartet sind, ist durch den hohen Untergrund aus doppeltem Neutroneneinfang am ^{58}Fe gegeben. Die Eisenkonzentration in Reaktorkernnähe, die für den Untergrund verantwortlich ist, wurde zu Beginn der Arbeit unterschätzt. Wie schon in Kapitel 4.2.2 erwähnt, sind die zugänglichen Literaturstellen zu diesem Thema sehr begrenzt und enthalten oft nur qualitative Aussagen.

Es konnte trotz der Unwägbarkeiten ein Meßwert in dem asymmetrischen Massenbereich ($A < 90$) geliefert werden. Jetzt gilt es, dieses interessante Gebiet auf der Basis von geeigneteren Proben, genauer zu untersuchen.

Um die Spaltausbeute für Masse 60 mit BMS zu messen, war das Probenmaterial aus der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen nicht optimal. Wie schon am Anfang von Kapitel 3 aufgeführt, gibt es auch die Möglichkeit, selbst ein ^{235}U -Target zu bestrahlen. In Kapitel 3 wurde diese Idee allerdings verworfen, da die Aktivität der Spalt- und Aktivierungsprodukte direkt nach der Spaltung so hoch ist (s. Tabelle 3.1), und eine weitere Behandlung der Probe erst nach einer genügend langen Abklingzeit möglich ist. Diese Zeit hätte den zeitlichen Rahmen dieser Diplomarbeit überschritten. In der Arbeit wurde allerdings gezeigt, daß eine genügend effektive Abtrennung der Aktivitätsträger mit den nötigen Einrichtungen möglich ist. Deswegen kann die Idee der Bestrahlung wieder aufgegriffen werden. Die Bedingungen müssen dabei so gewählt werden, daß die Konkurrenzreaktion zum ^{60}Fe durch doppelten Neutroneneinfang zu vernachlässigen ist.

Es werden nun die Bedingungen für die Bestrahlung von ^{235}U am FRM aufgeführt.

1. Es wäre einfach, für einen ausreichend kleinen Eisengehalt im Reaktor zu sorgen. Das Problem "CRUD" tritt am FRM nicht auf. Dieser Reaktor ist ein Schwimmbadreaktor, bei dem "stehendes" Wasser zur Kühlung und auch zur Abschirmung verwendet wird. In kommerziellen Reaktoren ist das Kühlwassersystem eine große Anlage, in der Wasser fließt, also in Bewegung ist und Ablagerungen transportieren kann. Außerdem stellt der FRM eine wesentlich kleinere Reaktoranlage als ein kommerzieller Reaktor dar, d.h. die Menge an Korrosionsprodukten könnte nicht so groß werden. Wenn nun zur Bestrahlung ein ^{235}U -Target, dessen Eisenverunreinigung sehr klein ist, ausgewählt wird, so kann der störende Untergrund aus doppeltem Neutroneneinfang minimiert werden.
2. Es sollte so wenig Uran wie möglich für die Bestrahlung verwendet werden. Die einzusetzende Masse Uran, die in Kapitel 3 mit 300mg angegeben ist, kann durch Erhöhung der Bestrahlungszeit reduziert werden. Für die Auswahl von Uranmenge und Bestrahlungszeit muß ein Kompromiß gefunden werden. Die Uranmenge sollte möglichst klein sein, einerseits aus sicherheitstechnischen Gründen und andererseits wegen der entstehenden aktiven Nuklide, die bei der Spaltung entstehen. Die Bestrahlungszeit dagegen darf nicht so groß gewählt werden, daß die Produktion von ^{60}Fe durch Aktivierung überwiegt.

Vorgehen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde gezeigt, daß eine effiziente chemische Abtrennung von Eisen aus einer komplexen und aktiven Lösung möglich ist. Deswegen kann der zusätzliche Faktor für eventuelle Verluste durch chemische Abtrennungsschritte in der Zahl der nötigen ^{60}Fe -Atome vernachlässigt werden. Es sollten also für eine Konzentrationsbestimmung 10^6 ^{60}Fe -Atome in der Probe vorliegen (s. Anfang von Kapitel 3). Das sind, wenn man die empirische Spaltausbeute für Masse 60 (s. Kapitel 2.4) zur Berechnung einsetzt, $5 \cdot 10^{16}$ Spaltungen. Bei einem mittleren Neutronenfluß von $2,0 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ müßte man dazu z. B. 3mg ^{235}U 7 Tage lang bestrahlen. Mit einer Eisenverunreinigung im Urantarget von 10ppm, was eine pessimistische Voraussage darstellt, würden während der 7 Tage Bestrahlungszeit etwa $2 \cdot 10^2$ ^{60}Fe -Atome aus doppeltem Neutroneneinfang am ^{58}Fe produziert. Das sind vier Größenordnungen weniger als ^{60}Fe -Atome, die aus der Spaltung erwartet werden. Die Abtrennung der störenden Nuklide kann im Institut für Radiochemie durchgeführt werden. Vor den chemischen Abtrennungsschritten muß der Probe noch wenige mg Eisenoxid als Carrier zugegeben werden.

Tabellenverzeichnis

2.1: Nuklide, deren Spaltausbeute prinzipiell mit BMS gemessen werden kann und ihre Halbwertszeit	11
2.2: Strippwahrscheinlichkeiten P_S und Energien für verschiedene Ladungszustände	16
3.1: Eine Auswahl an Nukliden, ihre Halbwertszeit und die Aktivität direkt nach der Bestrahlung und nach einem Jahr	22
3.2: Hauptaktivitätsträger im HAWC und ihre Aktivität.....	25
3.3: Nuklide, die als Tracer eingesetzt wurden, ihre Halbwertszeit und die Art der nachgewiesenen Strahlung.....	27
3.4: Aufteilung des gesamten Eisenverlusts beim Spülen der Säule	31
3.5: Verhalten der Tracernuklide in den Vorversuchen.....	31
3.6: Nuklide, die in der Eluatlösung nachgewiesen wurden	32
3.7: Die Nuklide und ihre Aktivität, die in der gereinigten Eluatlösung noch nachgewiesen werden konnten	34
3.8: Dekontaminationsfaktoren	35
4.1: Nuklide, die für die Rekonstruktion von Φ , t_B und t_A herangezogen wurden, ihre Halbwertszeit und die erreichte Übereinstimmung mit den gemessenen Daten.....	45

Abbildungsverzeichnis

1.1: Potentialverlauf bei der Kernspaltung nach dem Tröpfchenmodell.....	1
1.2: Massenverteilung der Spaltfragmente aus der thermischen ^{235}U -Spaltung	2
1.3: Energieoberfläche als Funktion der Deformation Q_{20} und der Asymmetrie Q_{30}	3
1.4: Ausbeuten der leichtesten Teilchen bei der ternären Spaltung von ^{235}U	4
1.5: Empirischer Zusammenhang zwischen Spaltausbeute und Q -Wert.....	6
2.1: Verteilung der Spaltprodukte	8
2.2: Wirkungsquerschnitte von Reaktionen, die durch Neutroneneinfang ^{60}Fe bilden.....	12
2.3: Ausschnitt aus der Karlsruher Nuklidkarte	12
2.4: Experimenteller Aufbau	14
2.5: Schematischer Aufbau einer Hochstromionenquelle	15
2.6: Magnetische Steifigkeit von ^{60}Fe und ^{60}Ni	18
2.7: Schematischer Aufbau der Ionisationskammer und deren Anodenanordnung	19
3.1: Abhängigkeit des Adsorptionskoeffizienten k' von der Säurestärke M	30
3.2: HA-Labor in der WAK mit Manipulatoren und Heißen Zellen.....	33
3.3: Photo durch die 30cm dicke Bleiglasscheibe in die HA-Box.....	33
3.4: Spektrum einer Flüssigszintillationsmessung der Eluatlösung	36
3.5: Spektrum einer Flüssigszintillationsmessung der gereinigten Eluatlösung	36
4.1: Spektren, in denen der Energieverlust ΔE_4 gegen den Ort aufgetragen ist.....	38
4.2: Produktion von ^{60}Fe und zum Vergleich die Produktion von ^{60}Fe bei vernachlässigtem Zerfall von ^{59}Fe und ^{60}Fe	41
4.3: Massenverteilung der Spaltprodukte aus der ^{235}U -Spaltung mit neuem Meßwert	48

Literaturverzeichnis

- [Arm61] P. Armbruster. Massenseparator für die Massentrennung von Spaltprodukten. *Nukleonik* **3** (1961) 189
- [Bau78] F. Baumgärtner (Hrsg.). *Chemie der Nuklearen Entsorgung. Teil I-III*. Karl Thiemig, München (1978,1980)
- [BBF88] J.P. Bocquet, R. Brissot und H. Faust. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **A267** (1988) 466
- [BCG⁺91] R. Bonetti, C. Chiesa, A. Guglielmetti, C. Migliorino, A. Cesana, M. Terrani und P.B. Price. Neon radioactivity of uranium isotopes. *Physical Review* **C44** (1991) 888
- [Bea] BEAM, Rechenprogramm des Beschleunigerlabors München.
- [BGG84] J.F. Berger, M. Girod und D. Gogny. Microscopic analysis of collective dynamics in low energy fission. *Nuclear Physics*, **A428** (1984) 29c
- [BSW⁺93] R. Berg, U. Schaarschmidt, M. Weishaupt und D. Fang. Characterization of high level waste concentrate. *Proceedings of the Waste Management Symposia*. Tucson, Arizona (1993) 951
- [BW39] N. Bohr und J. Wheeler. *Physical Review* **56** (1939) 426
- [CF58] B.L. Cohen and C.B. Fulmer. Fission-fragment mass separator and the nuclear charge distribution of fission fragments of a single mass. *Nuclear Physics* **6** (1958) 547-560
- [EIC95] EICHROM Industries Inc. *EICHROM Analytical Products Description*. Produktinformation des Herstellers zu TRU resin, (1995)
- [Fau94] H. Faust. Exotic Isotope Production from Nuclear Fission. *ILL Report 94FAIT* (1994)
- [Fri39] O.R. Frisch. *Nature* **143** (1939) 276
- [FSW47] G. Farwell, E. Segrè und C. Wiegand. *Physical Review* **71** (1941) 327
- [HFF⁺93] M. Hesse, H. Faust, G. Fioni, M. Groß und F. Gönnerwein. Proc. Workshop on High Resolution Spectroscopy of Fission Fragments, Neutrons and γ -Rays. Ed. H. Maerten et al., *Report FZR-93.08* (1993) 31
- [HS39] O. Hahn und F. Straßmann. *Naturwissenschaften* **27** (1939) 11 und 89

- [IBR⁺79] R.H. Iyer, V.K. Bhargava, V.K. Rao, S.G. Marathe and S.M. Sahakundu. Evidence for the occurrence of new shoulders in low-energy-fission mass distribution. *Proceedings of an international symposium on physics and chemistry of fission (1979)*. IAEA, Vienna **2** (1980) 311
- [Kar95] *Karlsruher Nuklidkarte* (1995)
- [KFK97] K. Knie, T. Faestermann and G. Korschinek. AMS at the Munich gas-filled analysing magnet system GAMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B123** (1997) 128
- [KKN83] P. Kubik, G. Korschinek, and E. Nolte. Accelerator mass spectrometry with completely stripped ³⁶Cl ions at the Munich postaccelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **1** (1983) 59
- [Kle98] F. Klein. Institut für Radiochemie. *Persönliche Mitteilung* (1998)
- [Kni96] K. Knie. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarensparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten*. Dissertation, TU München (1996)
- [Kni97] K. Knie. TU München. *Persönliche Mitteilung* (1997)
- [Kor98] G. Korschinek. TU München. *Persönliche Mitteilung* (1998)
- [Kre92] K.-D. Krebs. *Aerosolbildung aus flüssigem und festem hochradioaktivem Abfall aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen*. Dissertation, TU München (1992)
- [KSL97] F. Klein, W. Stöwer, C. Lierse. Analysis of Zircaloy Claddings and Corrosion Deposits (CRUD) from Boiling Water Reactors. *Proceedings of the 3rd International Seminar on Radioactive Waste Products*. Würzburg (1997)
- [KSU88] G. Korschinek, J. Sellmair, and A. Urban. A study of different ion sources for the use in the ²⁰⁵Pb experiment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **A271** (1988) 328
- [KV69] A. Klusmann und H. Völcker. *Brennelemente von Kernreaktoren*. Karl Thiernig, München (1969) 40
- [MEW⁺70] E. Moll, H. Ewald, H. Wollnik, P. Armbruster, G. Fiebig, H. Lawin. Proc. Intern. Conf. on Electromagnetic isotope separators. *Marburg Report BMBW-FB K70-28* (1970) 241
- [MF39] L. Meitner und O.R. Frisch. *Nature* **143** (1939) 276
- [Mid83] R. Middleton. A versatile high intensity negative ion source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **A241** (1983) 139-150
- [MSS⁺75] E. Moll, H. Schrader, G. Siegert, J.P. Bocquet, G. Bailleul, J.P. Gautheron, J. Greif, G.I. Crawford, C. Chauvin, H. Ewald, H. Wollnik, P. Armbruster, G. Fiebig, H. Lawin und K. Sistemich. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **123** (1975) 615
- [MT96] M. Mutterer und J.P. Theobald. Particle-accompanied fission. D.N. Poenaru (Hrsg.). *Nuclear Decay Modes*, Chapter 12. IOP Publishing (1996) 498
- [Mün80] E. Münch (Hrsg.). *Tatsachen über Kernenergie*. W. Girardet, Essen (1980) 71

- [MW75] R. Müller and H.W. Wassmuth. Zur Diskriminierung isobarer Kernreaktionsprodukte mit Hilfe positiver und negativer Oberflächenionisation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **A127** (1975) 225
- [Nee97] K.-H. Neeb. *The Radiochemistry of Nuclear Power Plants with Light Water Reactors*. Walter de Gruyter, Berlin New York (1997)
- [Nuc97] T-2 Nuclear Information Service, Los Alamos National Laboratory: Nuclear Data Viewer. URL: <http://www.t2.lanl.gov/data/ndviewer.html>. *Online Nuclear Data Service* (3.07.1997)
- [Pre41] R.D. Present. *Physical Review* **59** (1941) 466
- [RJ84] H.J. Rase and G.A. Jones. A new kind of natural radioactivity. *Nature*, London **307** (1984) 245
- [RYS79] G.M. Raisbeck, F. Yiou, and C. Stephan. ^{26}Al measurement with a cyclotron. *Journal of Physics (Paris)* **40** (1979) L241
- [SAB⁺89] J.L. Sida, P. Armbruster, M. Bernas, J.P. Boquet, R. Brissot and H.R. Faust. Mass, charge and energy distributions in very asymmetric thermal fission of ^{235}U . *Nuclear Physics*, **A502** (1989) 233c-242c
- [Say77] R.O. Sayer. Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data. *Revue de Physique Appliquee* (1977) 1543
- [Sch96] C. Schmidt. *Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{60}Fe* . Diplomarbeit, TU München (1996)
- [SFKK95] C. Schmidt, T. Faestermann, K. Knie, and G. Korschinek. AMS with ^{60}Fe . *Jahresbericht des Beschleunigerlaboratoriums der Universität und der TU München* (1995)
- [Smi82] B.M. Smirnov. *Negative Ions*. McGraw-Hill (1982)
- [Sto97] A. Stollenwerk. Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe. *Persönliche Mitteilung* (1997)
- [TZK⁺89] S.P. Tretyakova, Y.S. Zamyatnin, V.N. Kovantsev, Y.S. Korotkin, V.L. Mikheev und G.A. Timofeev. Observation of nucleon clusters in the spontaneous decay of ^{234}U . *Zeitschrift für Physik* **A333** (1989) 349
- [Urb86] A. Urban. *Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca* . Diplomarbeit, TU München (1986)
- [Wag89] C. Wagemans. Light particle-accompanied fission. D.N. Poenaru und M.S. Ivascu (Hrsg.). *Particle Emission from Nuclei*, Volume **III**, Chapter 3. CRC Press (1989)
- [Wah88] A.C. Wahl. *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **39, No. 1** (1988) 15
- [WAK97] Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe. Ergebnisse der Analyse des HAWCs, 2. Halbjahr 1997, *Datenblätter* (1997)
- [Wal97] T. Walter. CANBERRA PACKARD, Dreieich. *Persönliche Mitteilung* (Fax vom 20.05.1997)
- [Wea70] R.C. Weast, editor. *Handbook of Chemistry and Physics*. The Chemical Rubber Co., 51st edition (1970)

- [WHJ⁺97] M. Wöstheinrich, M. Hesse, P. Jesinger, F. Gönnerwein und H. Faust. Bestimmung von Ausbeuten ternärer Teilchen bei $^{233}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$. *Verhandlungen DPG*, (VI) **32** (1997) 30
- [WPF89] F.W. Walker, J.R. Parrington and F. Feiner. *Nuclides and Isotopes*. General Electric Company, San Jose (USA), 14th Edition (1989)
- [WSP⁺89] S. Wang, D. Snowden-Ifft, P.B. Price, K.J. Moody und E.K. Hulet. Heavy-fragment radioactivity of ^{238}Pu : Si and Mg emission. *Physical Review* **C39** (1989) 1647

Danksagung

Abschließend möchte ich allen Leuten danken, die mich während meiner Diplomarbeit unterstützt haben und die dafür gesorgt haben, daß dieses Jahr eine sehr schöne und lehrreiche Zeit war.

Besonderen Dank an

- Herrn Prof. Dr. H.-J. Körner für die Überlassung dieses interessanten und sehr abwechslungsreichen Themas.
- Herrn Dr. T. Faestermann für seine nette Betreuung in physikalischen sowie organisatorischen Fragen und seine geduldige und feinfühlig Art.
- Herrn Dr. G. Korschinek für seine Diskussionsbereitschaft und seinen steten Ratschlag, bei Problemlösungen immer den "roten Faden" im Auge zu behalten.
- Herrn Dr. K. Knie, der mit seiner oft unkonventionellen Art Probleme anzugehen manches gedankliche Chaos wieder in Ordnung brachte.
- Herrn U. Koester, der mich oft mit interessanten Zahlen versorgt hat.
- Herrn Dr. R. Henkelmann für die freundliche Aufnahme im Institut für Radiochemie (RCM) und die Abwicklung aller organisatorischen Probleme.
- Herrn Dr. C. Lierse (RCM) für die interessanten Gespräche und für seine Begleitung bei meinem ersten Besuch in der WAK.
- Frau A. Stippschild (RCM), die mich so geduldig in die Geheimnisse der Radiochemie eingeführt hat, und mit der ich auf unseren Dienstreisen nach Karlsruhe einen Haufen Spaß hatte.
- Herrn Dr. A. Stollenwerk (WAK) für die Möglichkeit, dieses Projekt in der WAK durchzuführen und für sein Interesse und die Zeit, die er dem Thema entgegengebracht hat.
- Herrn E. Spaderna (WAK) und Herrn B. Tatzel (WAK) für die nette Aufnahme in ihrem HA-Labor und ihre Hilfe bei der Abtrennung.
- Herrn Prof. Dr. E. Nolte und den (teilweise ehemaligen) Mitgliedern der BMS-Gruppe Frau E. Beck und Frau U. Heim sowie den Herren B. Heisinger, F. Kubo, S. Massonet, T. Schätz, Dr. C. Steinhausen, C. Wallner und C. Winkelhofer für die nette Atmosphäre bei Kaffeerunden, Festen und Ausflügen.
- Alle Mitarbeiter des Tandemlabors.

- Herrn G. Rugele, der mir während diesem Jahr ein treuer Wegbegleiter war, und mit dem ich die Endphase unserer Diplomarbeiten unter das Motto "geteiltes Leid ist halbes Leid" stellen konnte.
- Patrick, nicht nur wegen seines unermüdlichen Ehrgeizes, die äußere Form meiner Diplomarbeit auch dann noch zu verbessern, wenn sie schon perfekt ist.

Vielen Dank vor allem an meine Eltern, die mir dieses Studium ermöglicht haben.