

Technische Universität München

PHYSIK DEPARTMENT

Lehrstuhl E12

Spurenelementnachweis von Lithium in organischem Gewebe mit Neutronen

Diplomarbeit von

Josef Lichtinger

24. Juli 2010

Zusammenfassung

Lithium wird bei der Behandlung von affektiven Störungen, insbesondere bei der Manie und bei bipolaren Störungen (manisch-depressive Erkrankung), zur Stimmungsstabilisierung eingesetzt. Die genaue Wirkungsweise des Lithiums, kritische Konzentrationen und lokale Anreicherungen im Gehirn sind jedoch bisher noch ungeklärt. Daher soll die Konzentrationsverteilung von Lithium im menschlichen Gehirn mit und ohne Behandlung untersucht werden. Da Lithium anscheinend nur im ppb Bereich vorliegt und für medizinische Studien viele Proben untersucht werden müssen, sucht man nach einer möglichst genauen, aber auch einfachen Methode, mit der die notwendige Sensitivität erreichbar ist. Die Besonderheit von ${}^6\text{Li}$ besteht in seinem außerordentlich hohen Einfangquerschnitt für thermische Neutronen von 940 barn . Da die Reaktion ${}^6\text{Li} + n \rightarrow \alpha + T$ nur zwei Teilchen im Ausgangskanal besitzt, erhalten das alpha Teilchen (α) und das Tritium Teilchen (T) eine feste Energie von 2050 keV bzw. 2730 keV . Diese Energien liegen weit über der im Detektor deponierten Energie der β - und γ -Strahlung, die den typischen Untergrund in einem solchen Experiment darstellen. Die koinzidente Energiemessung beider Teilchen ist das zentrale Werkzeug, um Signale aus der Reaktion vom Untergrund zu unterscheiden. Zum koinzidenten Nachweis der Energien beider Teilchen wurde im Rahmen dieser Arbeit ein kompakter Detektoraufbau, bestehend aus zwei Silizium Detektoren und einem Probenhalter entwickelt. Um Untergrundquellen zu lokalisieren und statistische Fluktuationen auszugleichen wurden positionsempfindliche Detektoren verwendet. Die Messungen erfolgten an der Münchner Forschungsneutronenquelle FRM II am PGAA-Messplatz. Besondere Aufmerksamkeit galt der Probenherstellung und Präparation, die in Kapitel 4 diskutiert wird, da die α -Teilchen in Materie nur eine geringe Reichweite besitzen (ca. $1.30 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$). Aus diesem Grund wurden lediglich Gewebeschnitte mit einer Dicke von $10 \mu\text{m}$ hergestellt. Um die Massenbelegung der Proben weiter zu reduzieren, wurden diese gefriergetrocknet. Da die Gewebeprobe aufgrund der geringen Dicke nicht frei tragend sind, wurde ein Probenhalter entwickelt. Dieser Probenhalter besteht aus einem Aluminiumrahmen, der mit einer $25 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ dicken Kohlenstoffolie bespannt wurde. Er gibt den Gewebeprobe eine ausreichende Stabilität und ist doch dünn genug, dass die Teilchen ihn ohne nennenswerten Energieverlust durchdringen können. Um die Methode zu testen, wurden verschiedene Referenzproben erstellt, deren Lithiumgehalt es nachzuweisen galt. Bei einer bedampften Referenzprobe konnte selbst bei einer Dicke von nur $1.8 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ der Lithiumgehalt in wenigen Sekunden nachgewiesen werden. Diese Referenzprobe diente außerdem der Kalibrierung der Lithiummenge, wodurch diverse Fehlerquellen eliminiert wurden. Ferner war aufgrund der ortsabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeit eine Effizienzkorrektur nötig, die ebenfalls mit Hilfe der Referenzprobe realisiert wurde. Um die Effizienz zu optimieren, wurde ein zweites Detektorsystem, bestehend aus vier

nicht ortsauflösenden PIN-Dioden gefertigt.

Die Tests der Methode, die in Kapitel 5 diskutiert werden, verliefen sehr erfolgreich und die Nachweisgrenze zur Bestimmung von Lithium in organischem Gewebe konnte bereits mit diesem einfachen Detektoraufbau zu etwa 90 *ppb* angegeben werden. Mit einigen Verbesserungen, die in Kapitel 6 beschrieben werden, kann diese Grenze noch um etwa zwei Größenordnung gesenkt werden.

Inhaltsverzeichnis

1. Motivation	7
2. Nachweismethode	15
2.1. Energiebilanz	15
2.2. Die Dominanz der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaktion	18
2.3. Der Wirkungsquerschnitt der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaktion	20
2.4. Der Raumwinkel mit Koinzidenzbedingung	21
2.5. Grenzen der Methode	28
2.5.1. Untergrund	28
2.5.2. Dicke des Targets	30
2.5.3. Maximale Messzeit	32
3. Versuchsaufbau	35
3.1. Die Neutronenquelle FRM II	35
3.1.1. Die Kalte Quelle	37
3.1.2. Die Neutronenleiter	38
3.2. Die PGAA-Messstation	41
3.2.1. Probenkammer	44
3.2.2. Neutronenstrahlprofil	45
3.3. Detektoraufbau	46
3.3.1. Detektoren	47
3.3.2. Mechanische Anordnung	51
3.4. Auslese-Elektronik und Datenaufnahmesystem	54
4. Probenpräparation	57
4.1. Der Gewebeprobenhalter	57
4.2. Probenherstellung - Kryoschnitt	59
4.3. Gefriertrocknung	60
4.3.1. Aufbau und Durchführung der Gefriertrocknung	61
4.3.2. Trocknungsfaktor	63
4.4. Referenzproben	64
5. Versuchsdurchführung	67
5.1. Energiekalibrierung der Detektoren mit einer Alphaquelle	67
5.2. Erste Messungen am Neutronenstrahl	69
5.3. Eigenschaften der verbesserten Detektoraufbauten	74

5.4.	Besonderheiten der Messung mit den PSD	77
5.4.1.	Ortsabhängigkeit der Energiesumme eines PSD	77
5.4.2.	Zweidimensionale Ortsabhängigkeit der einzelnen Ortskoordinaten	80
5.4.3.	Normierung des Detektorsystems P	82
5.5.	Messung der Gewebeproben	83
5.6.	Apparative Grenzen der Methode	90
6.	Ausblick	93
6.1.	Verlängerung der Trocknungszeit	93
6.2.	Verbesserung der Detektor-Elektronik	93
6.3.	Steigerung der Effizienz	96
6.4.	Abschirmung des Neutronenhalo	97
6.5.	Spülung der Probenkammer mit Helium	98
6.6.	Neue Trägerfolien für die Gewebeproben	99
6.7.	Potential aller Verbesserungsschritte	100
Anhang		100
A.	Gegenfeldproblem	101
B.	Mathematicacode für die Raumwinkelberechnung	103

1. Motivation

Der medizinische Begriff der affektiven Störungen bezeichnet eine Gruppe von psychischen Krankheiten, bei denen der Affekt (die Stimmung) beeinträchtigt ist [KMP]. Unter diesen Begriff werden Depression, Manie und bipolare Störungen zusammengefasst. Das depressive Syndrom zeichnet sich vor allem durch abnorm gedrückte Stimmung, vermindertes Selbstwertgefühl, Interessenverlust, Antriebslosigkeit und rasche Ermüdbarkeit aus. Diese Störung kann über Jahre oder Jahrzehnte hinweg anhalten. Häufiger sind jedoch episodenhafte Verläufe, bei denen sich aus dem Normalbefinden heraus eine depressive Stimmung entwickelt. Diese hält im Durchschnitt etwa sechs Monate an und bildet sich dann weitgehend oder vollständig zurück [KMP]. Die Manie kennzeichnet vor allem eine gehobene Stimmung, die sich in Gereiztheit, Euphorie, Überaktivität, Unruhe, Ablenkbarkeit und Selbstüberschätzung manifestiert. Fälle, in denen ausschließlich manische Phasen auftreten, sind selten. Fast immer tritt nach einer Manie auch eine depressive Symptomatik auf. Wenn sich depressive und manische Phasen abwechseln, spricht man von einer bipolaren Störung. Depressive und bipolare Störungen haben insofern eine schlechte Prognose, da mindestens 10% der schwer depressiv Erkrankten ihr Leben durch Suizid beenden. Eine familiäre Häufung der affektiven Störung ist gesichert. Ist ein Elternteil an einer affektiven Störung erkrankt, beträgt die Erkrankungswahrscheinlichkeit für das Kind etwa 20% [KMP].

Die biologische Ursache der affektiven Störung ist noch weitgehend unbekannt. Es wird aber vermutet, dass sich affektive Störungen auf eine Störung im Informationsaustausch der Nervenzellen im Gehirn zurückführen lassen. Nachfolgend wird dieser Informationsaustausch beschrieben. Nervenzellen oder auch Neurone sind unterschiedlich in Form und Größe. Ihr Durchmesser variiert von $D = 4 \mu m$ (Körnerzellen des Kleinhirns) bis $D = 130 \mu m$ (Riesenpyramidenzellen des Großhirns) [LAT]. Abbildung 1.1 links zeigt ein typisches Neuron¹ (Nervenzelle). In der Mitte befindet sich der Zellkörper (Soma) mit dem Zellkern. Die Ausläufer des Zellkörpers (Dendriten) dienen der Informationsaufnahme. Das Axon, auch Neurit genannt, entspringt dem Zellkörper und dient der Signalweiterleitung an benachbarte Zellen. Es kann über einen Meter lang sein, z.B. bei Nervenzellen, die im Rückenmark liegen und deren Axone im Fuß enden [LAT]. Das Axon wird von der Myelinscheide umgeben, die ihm Schutz und Stabilität gibt. Die Myelinschicht wirkt wie eine Isolierung und sorgt für eine schnelle Signalübertragung zwischen Zellen, die zwischen Zellspalt (Synapse) erfolgt [BAP]. Abbildung 1.1 rechts zeigt eine Synapse². Zum Beispiel können sich Neurotransmitter in Speichervesikeln im präsynaptischen Endknopf des Axons befinden. Durch einen Nervenimpuls werden diese Neurotransmitter in

¹Originalbild von H el ene Fourni e (<http://graphisme-medical.fr>)

²Originalbild von Michael Shpilevsky (<http://shp.by.ru/spravka/neurosci>)

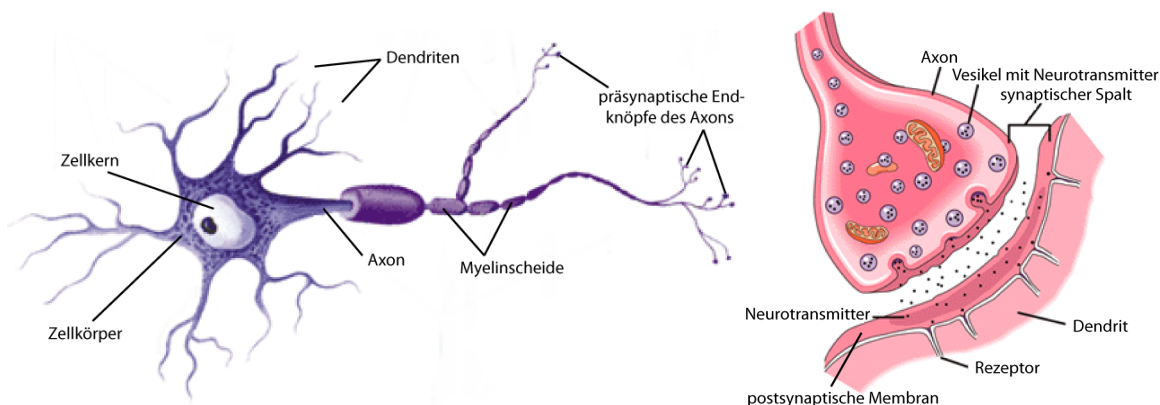


Abbildung 1.1.: Links: Aufbau einer Nervenzelle. Am Ende des Axons befinden sich die präsynaptische Endknöpfe, die bei einem Nervenimpuls Neurotransmitter absondern¹.

Rechts: Präsynaptischer Endknopf des Axons, synaptischer Spalt und postsynaptische Membran der Nachbarzelle. Zwischen den Zellen werden Signale dadurch übertragen, dass der Endknopf Neurotransmitter ausschüttet, die sich an den Rezeptoren der Nachbarzelle anlagern².

den synaptischen Spalt ausgeschüttet und diffundieren zur postsynaptischen Membran der Nachbarzelle. Dort lagern sie sich an die extrazellulären Rezeptoren der Dendriten an [BAP]. Erkennt der Neurotransmitter seinen Rezeptor, bilden beide einen Komplex. Am Rezeptor ist auf der Innenseite der Membran ein G-Protein (Guananyl-nucleotid-bindendes-Protein) gebunden. Dieses Protein setzt eine Signalkaskade in Gang, in der second messenger entstehen [BRP]. Diese leiten das Signal der Neurotransmitter in die Zelle weiter und verstärken es [KBA].

Es existieren zahlreiche biologische Modelle, die Erklärungsversuche für affektive Störungen liefern. Am weitesten verbreitet sind die Transmittertheorien, die direkten Bezug auf die pharmakologischen Behandlungen nehmen. Eine ausgesprochen populäre Transmittertheorie ist die Monoaminhypothese der Depression [KMP]. Sie nimmt als Grundlage depressiver Symptomatik einen synaptischen Mangel an Noradrenalin und Serotonin an. Hierbei handelt es sich um Neurotransmittern, die zur Gruppe der Monoamine gehören. Diese Annahme basiert auf den Befunden der reserpininduzierten Depression (Reserpin ist ein Alkaloid aus der indischen Pflanze Rauwolfia und kann Depressionen auslösen [APT]) und der stimmungsaufhellenden Wirkung von Noradrenalin und noradrenalin-agonistischer Substanzen. Obwohl die Monoaminhypothese die Wirkungsweise vieler Antidepressiva richtig beschreibt und in verschiedenen Hirnregionen von Suizidopfern ein reduzierter Serotoningehalt festgestellt wurde, soll sie in der Form eines synaptischen Transmittermangels eher nicht zutreffen [KMP]. Beispielsweise setzt die therapeutische Wirkung von Monoaminoxidase-Hemmern, kurz MAO-Hemmer, (Antidepressiva) in der Regel erst nach einigen Wochen ein, während sich eine durch sie bewirkte Normalisierung

des synaptischen Transmittergehaltes in wenigen Stunden einstellt. Zusätzlich verfügen hormonelle Systeme über eine bemerkenswerte Autoregulation. So würde beispielsweise eine verminderte Transmitterkonzentration durch eine lokale Erhöhung der Rezeptordichte ausgeglichen [AHB]. Folglich kann der Transmittermangel nicht die eigentliche biologische Ursache der depressiven Verstimmung sein. Mittlerweile wurden alternative Modelle entwickelt, in denen dies mit berücksichtigt wurde. Zum Beispiel wird in Dysregulationsmodellen angenommen, dass der Depression eine erhöhte Empfindlichkeit von Rezeptoren, speziell für Noradrenalin, zugrunde liegt [KMP]. Dies würde eine verstärkte Wiederaufnahme der Neurotransmitter in das präsynaptische Neuron bewirken, wodurch die Verfügbarkeit der Neurotransmitter im synaptischen Spalt reduziert würde [AHB]. Diese Theorie berücksichtigt den angenommenen Wirkungsmechanismus der Antidepressiva, die Herabregulierung der Rezeptorsensitivität. Die Abnormalität der Transmitterausschüttung wäre demnach nur sekundärer Natur.

Die Modelle der Manie und bipolaren Störungen sind nur wenig explizit formuliert. Bei der Manie geht man vor allem von der Überaktivität des noradrenergen Systems aus [KMP]. Unklar ist die Bedeutung von Serotonin für manische Phasen. Da jedoch die Gabe von L-Tryptophan, das im Körper zu Serotonin umgewandelt wird, nicht nur depressive, sondern auch manische Symptome mindert, wurde folgende Hypothese aufgestellt: Synaptischer Serotoninmangel bildet generell die Grundlage für affektive Labilität. Je nach Noradrenalinspiegel entstehen depressive oder manische Symptome [KMP]. Diese Theorie ist jedoch höchst spekulativ und wird durch die Dysregulationshypothese bereits teilweise überholt.

Lithium beeinflusst den menschlichen Körper in vielfältiger Weise. Wie Lithium im Zusammenhang mit affektiven Störungen wirkt, ist jedoch noch unbekannt. Es wird vermutet, dass Lithium indirekt über die Stimulierbarkeit von second messengern in die Zellkommunikation und den Zellstoffwechsel eingreift [BPM]. Dabei wird als wichtigster Mechanismus die Hemmung der Inositolphosphatase angesehen [RGN], über den wichtige Neurotransmitter wie Noradrenalin oder Serotonin ihre Signale an die Zelle weiterleiten. Bei der Inositolphosphatase aktivieren die G-Protein gekoppelten Rezeptoren das Enzym Phospholipase C. Dieses spaltet, das an der Innenseite der Zellmembran liegende, Phosphatidylinositolbiphosphat (PIP_2), wodurch der second messenger Inositoltriphosphat IP_3 erzeugt wird [BPM]. Lithium hemmt diese Signalkaskade und sorgt somit für eine Inositolverarmung [RGN]. Des Weiteren hemmt Lithium das Protein Glykogen-Synthase-Kinase-3 β (GSK-3 β) [AHB]. GSK-3 β beeinflusst eine Vielzahl zellulärer Funktionen. Bei bipolaren Störungen könnten GSK-3 β eine wichtige Rolle in der Regelung der Apoptose (physiologischer Zelltod) spielen. GSK-3 β wirkt apoptotisch, eine Reduzierung dieses Enzyms verhindert dadurch das Zellsterben [AHB]. Außerdem wird in Anlehnung an die Monosaminhypothese vermutet, dass Lithium eine vermehrte Noradrenalin-Freisetzung verursacht. Offenbar geschieht dies durch die Aufhebung des von Alpha-2-Rezeptoren vermittelten negativen Feedback-Mechanismus [BPM]. Extrazellulär fördert Lithium die Ausbildung von BDNF (brain-derived neurotrophic factor).

BDNF gehört zu den Neurotrophinen, die Entwicklung, Erhaltung und Regeneration von Neuronen und Nervenzellfortsätzen (Axone und Dendriten) fördern [LBP]. Stress vermindert die BDNF-Konzentration, wodurch strukturelle Veränderungen und eine Degeneration der Neuronen gefördert wird. Hier soll Lithium die Neuronen vor stressbedingten Veränderungen schützen [AHB]. Trotz der Vielzahl biochemischer Effekte des Lithiums lässt sich keine endgültige Aussage über den biologischen Wirkungsmechanismus in der Prophylaxe und Behandlung affektiver Störungen formulieren [RGN].

Erste Behandlungsversuche mit Lithiumsalzen wurden 1949 durchgeführt, als man entdeckte, dass Lithiumcarbonat die manisch-depressive Erkrankung positiv beeinflusst. Heute wird Lithium zur Prophylaxe bei manisch-depressiven Phasen und zur Therapie von Manien eingesetzt [EPT]. Bei unipolaren Depressionen findet Lithium als Antidepressiva-unterstützendes Präparat und ebenfalls bei der Prophylaxe erneuter Episoden Anwendung [AHB]. In der Lithiumtherapie wird die Lithiumkonzentration im Blut (bei lithiumunbelasteten Personen etwa $5 \frac{\mu g}{l}$ [FLM]) oft bis auf das Tausendfache angehoben. Bei prophylaktischer Anwendung wird ein Lithium-Serumspiegel von $4.2 - 5.6 \frac{mg}{l}$ angestrebt. Bei der Akuttherapie einer Manie sollte der Lithium-Serumspiegel bei $5.6 - 8.3 \frac{mg}{l}$ liegen [GNP]. Ab einem Lithium-Serumspiegel von $10 \frac{mg}{l}$ treten toxische Symptome wie z.B. Müdigkeit, Übelkeit, Erbrechen, psychomotorische Verlangsamung oder kognitive Verwirrtheit auf. Ein Lithiumgehalt über $20 \frac{mg}{l}$ wirkt häufig letal [GNP]. Da die therapeutische Breite (Verhältnis der therapeutischen zur toxischen Dosis) von Lithium sehr gering ist, ist eine regelmäßige Kontrolle bei einer Lithiummedikation unerlässlich. Lithiumsalze werden rasch vom Körper aufgenommen. In den Nieren, Muskeln, der Schilddrüse und im Skelett reichert sich Lithium mehr an als im Serum. Nach einer fünf- bis siebentägigen Therapie wird ein konstanter Serumspiegel erreicht und es stellt sich ein Ausgleich zwischen Resorption und Ausscheidung ein. Ein Ausgleich zwischen der Konzentration im Serum und Gehirn erfolgt jedoch erst nach acht Wochen bis sechs Monaten [EPT]. Nach dieser Zeit existiert eine Korrelation zwischen der Gehirn- und Serum-Lithiumkonzentration, die sich jedoch mit dem Alter des Patienten verändert [LRA]. Dies bestätigt eine Studie von Constance Moore und Christina Demopoulos, in der das Gehirn-zu-Serum-Lithiumverhältnis von 9 Kindern (Durchschnittsalter 13.4 Jahre) und 18 Erwachsenen (Durchschnittsalter 37.3 Jahre) bestimmt wurde (die Lithiumkonzentration im Gehirn wurde in vivo mittels Magnetresonanztomographie MRS gemessen). Die Probanden litten an bipolaren Störungen und wurden seit längeren mit Lithium behandelt. Es stellt sich heraus, dass das Gehirn-zu-Serum Verhältnis mit steigendem Alter der Probanden ansteigt. Bei der Gruppe der Kinder lag es bei $\frac{m_B(Li)}{m_S(Li)} = 0.58 \pm 0.24$, bei den Erwachsenen bei $\frac{m_B(Li)}{m_S(Li)} = 0.92 \pm 0.36$. Daraus ließe sich folgern, dass bei Kindern eine höhere Lithiumdosis injiziert werden muss, um im Gehirn eine therapeutische Wirkung zu erreichen. Was die Ausscheidung von Lithium aus dem Körper betrifft, so wird innerhalb von zwölf Stunden 50% des Serum-Lithiumgehalts renal (über die Nieren) ausgeschieden [EPT]. Der Rest wird langsam, über ein bis zwei Wochen abgebaut. Diese verzögerte Eliminationsphase ist auf eine zunehmende extra- und intrazelluläre Anreicherung bis zu einem konstantem Serumspiegel zurückzuführen.

Die stimmungsstabilisierende Wirkung von Lithium lässt sich auch an nicht an affektiven Störungen erkrankten Menschen beobachten. Dies wurde in einer Studie mit 24 (16 Männer und 8 Frauen) Probanden mit Drogenproblemen (Risikopersonen für psychische Labilität) in der Vergangenheit herausgefunden [SLO]. Die Versuchspersonen wurden zufällig in zwei Gruppen unterteilt. Während einer Gruppe täglich Hefe mit 400 μg Lithium verabreicht wurde, erhielt die andere Gruppe ein Placebopräparat. Alle Versuchspersonen beantworteten wöchentlich Fragen über ihren Gemütszustand. Die Stimmung der Lithiumgruppe stieg von Woche zu Woche an, während sich die Gemütsverfassung der Placebogruppe nicht veränderte.

Eine zu geringe Lithiumaufnahme soll generell eine negative Wirkung auf das menschliche Verhalten haben. Dies zeigt beispielsweise eine Studie, die den Lithiumgehalt des Trinkwassers mit der Kriminalitäts- und Suizidrate vergleicht [SLD]. In dieser Studie wurden 27 Texasstaaten in drei Gruppen (*A*, *B* und *C*), abhängig von der Lithiumkonzentration im Trinkwasser, unterteilt. Tabelle 1.1 zeigt die mittlere Lithiumkonzentration und die Konzentrationsintervalle dieser drei Gruppen [SLD]. Abbildung 1.2 links zeigt

Gebiet	mittlerer Lithiumgehalt in $\frac{\mu\text{g}}{\text{l}}$	Konzentrationsbereich in $\frac{\mu\text{g}}{\text{l}}$
<i>A</i>	5 ± 4	0 – 12
<i>B</i>	35 ± 15	13 – 60
<i>C</i>	123 ± 25	79 – 160

Tabelle 1.1.: Mittlere Lithiumkonzentration im Trinkwasser mit den Konzentrationsintervallen der drei Gruppen, in die 27 Texasstaaten eingeteilt wurden [SLD].

die Suizidrate pro 100 000 Einwohner von 1976 bis 1985 für die Bereiche mit niedriger (*A*) und hoher (*C*) Lithiumkonzentration im Trinkwasser [SLD]. Die Daten der Suizidraten stammen aus dem "US vital statistics" Handbuch, das vom U.S. Gesundheitsministerium herausgegeben wird. Die mittlere Suizidrate pro 100 000 Einwohner liegt in Gebieten mit niedriger Lithiumkonzentration bei 14.3 ± 1.3 , während die Suizidraten in Gebieten hoher Lithiumkonzentration mit 8.8 ± 0.84 signifikant geringer ausfällt. Abbildung 1.2 rechts zeigt die mittlere Kriminalitätsrate pro 100 000 Einwohner mit Fehlerbalken über einen Zeitraum von zehn Jahren für die in Tabelle 1.1 genannten Lithiumgebiete [SLD]. Deutlich ist die signifikante Korrelation zwischen Kriminalität und dem Lithiumgehalt im Trinkwasser zu erkennen. Die Kriminalitätsraten für die Jahre 1978 – 1987 wurden vom U.S. Justizministerium zur Verfügung gestellt. Folgt man dieser Studie, so wären bei ausreichender Lithiumaufnahme insbesondere suizidales und kriminelles Verhalten signifikant reduziert.

Unterstellt man Lithium eine Essentialität für den menschlichen Körper, so soll der physiologische Lithiumbedarf eines Menschen abhängig von der Salzaufnahme, der Häufigkeit und dem Ausmaß der körperlichen Belastung und anderen physiologischen Parametern sein [SLD]. Der Lithiumbedarf bei einem erwachsenen Menschen würde dann auf 100 μg pro Tag geschätzt [SLO]. Um die positiven Auswirkungen von Lithium zu

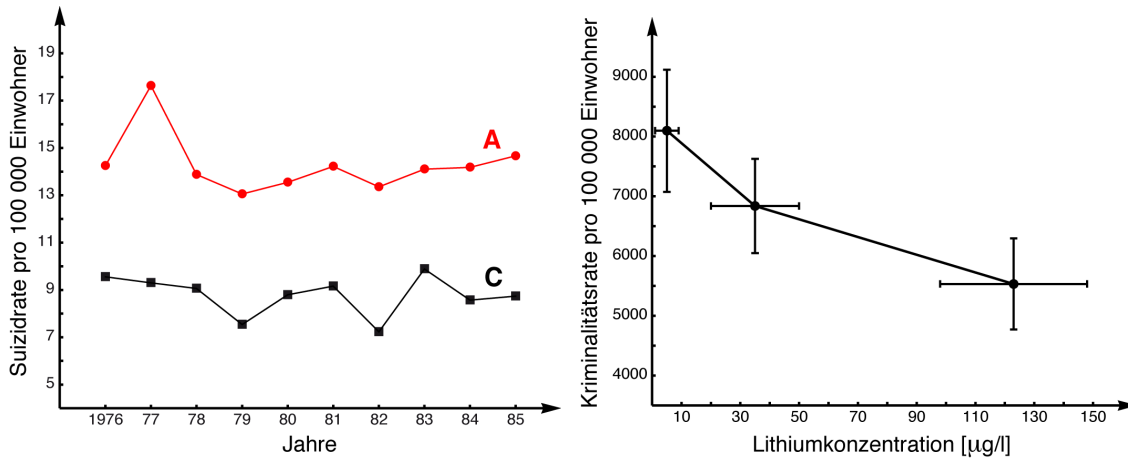


Abbildung 1.2.: Links: Suizidraten pro 100 000 Einwohner über einen Zeitraum von zehn Jahren bei hoher ($C : 79 - 160 \frac{\mu g}{l}$) und niedriger ($A : 0 - 12 \frac{\mu g}{l}$) Lithiumkonzentration im Trinkwasser [SLD]. Rechts: Mittlere Kriminalitätsrate (1978 – 1987) pro 100 000 Einwohner mit Fehlerbalken für Gebiete mit niedriger, mittlerer und hoher Lithiumkonzentration im Trinkwasser (siehe Tabelle 1.1) [SLD].

"nutzen", wären dann jedoch höhere Tagesdosen nötig. Basierend auf einer Studie, die die Lithiumaufnahme in verschiedenen Ländern fokussiert, wird eine Lithiumdosis von 1 mg pro Tag für einen 70 kg schweren Erwachsenen ($14.3 \frac{\mu g \text{ Li}}{\text{kg}}$) empfohlen [SLO]. Die U.S. Environmental Protection Agency (EPA) schätzt die tägliche Lithiumaufnahme eines 70 kg schweren Erwachsenen auf 0.65 mg bis 3.1 mg Lithium [SLO], abhängig von der Ernährung und dem Lithiumgehalt des Grundwassers. Der Grundwasser-Lithiumgehalt ist regionsabhängig und liegt zwischen null und $500 \frac{\mu g}{l}$ [ZMH]. Manche Mineralwässer, die als Heilwasser gelten, enthalten eine Lithiumkonzentration von über $10 \frac{mg}{l}$ ³. Getreide und Gemüse enthalten mit $0.5 - 3.4 \frac{mg}{kg}$ die größte Lithiumkonzentration der alltäglichen Nahrung. Fleisch besitzt nur einen geringen Lithiumgehalt ($\approx 12 \frac{\mu g \text{ Li}}{\text{kg}}$) [SLO]. Zu hohe Lithiumdosen, nahe an der toxischen Grenze (10 mg Lithium pro Liter Serum), zeigen einen negativen Einfluss. In einer Studie von H. Weingartner, M. Rudorfer und M. Linnoila wurde zehn jungen, freiwilligen Männern (21 – 27 Jahre) eine Woche eine Lithiumdosis von $1225 \pm 300 \text{ mg}$ pro Tag verabreicht [CLT]. Die Lithium-Serumkonzentration stieg in dieser Zeit auf $6.0 \pm 1.2 \frac{mg}{l}$ an. Die Probanden litten während der Lithiummedikation an Konzentrationsschwächen, Aufmerksamkeitsdefiziten und hatten Probleme etwas Neues zu erlernen. Für Lithiumunbelastete Menschen ist diese Lithiumkonzentration jedoch kaum erreichbar.

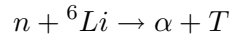
³11.80 mg Lithium pro Liter, aus Flyer der Bad Mergentheimer Albertquelle (<http://www.bad-mergentheim.de/index.cfm?fuseaction=gesundheit&rubrik=trinkquellen>)

Die Standardmethode, um den Lithiumgehalt einer Probe zu ermitteln, ist bis heute die Atomabsorptionsspektrometrie (AAS). Bei der AAS wird die zu untersuchende Probe durch Energiezufuhr in atomaren Dampf übergeführt. Dabei wird ein Teil der gesamten Atome entsprechend der Boltzmann-Verteilung in höhere Elektronenniveaus angeregt. Der überwiegende Teil des Atomdampfes befindet sich jedoch noch im Grundzustand. Strahlt man in diesen Atomdampf Emissionslinien von Lithium ein, so kommt es zur Resonanzabsorption und die in den Atomdampf eingestrahlte Lichtintensität wird abgeschwächt. Diese Extinktion wird gemessen [LTC]. Die Nachweisgrenze von Lithium mittels AAS liegt bei $5 \frac{ng}{cm^2}$ [FLM]. Mit dieser Methode lässt sich lediglich die mittlere Lithiumkonzentration einer größeren Probe (ca. $1 cm^3$) bestimmen. Lithiumgradienten und Bereiche mit höherer oder geringerer Konzentrationen können nicht ermittelt werden.

Viele Modelle für die Ursache von affektiven Störungen sind höchst spekulativ und die genaue Wirkungsweise von Lithium im Körper ist nach wie vor noch unbekannt. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher eine Methode entwickelt, die es ermöglicht, die Lithiumkonzentration von organischem Gewebe post-mortem bis in den Submillimeterbereich ortsaufgelöst zu bestimmen.

2. Nachweismethode

Die in dieser Arbeit beschriebene Methode zur Bestimmung des Lithiumgehaltes in organischem Gewebe basiert auf folgender Einfangreaktion:



Der ruhende ${}^6\text{Li}$ -Kern fängt ein kaltes Neutron mit einer mittleren kinetischen Energie von $\bar{E}_n = 1.83 \text{ meV}$ [PGA] ein und zerfällt in ein Alpha- und ein Tritiumteilchen. Abbildung 2.1 links zeigt die grafische Darstellung dieser Reaktion. Die besonders einfache Kinematik mit zwei fast gleich schweren Teilchen im Ausgangskanal erzeugt dabei ein einzigartiges Reaktionsmuster. Zum gleichzeitigen Nachweis der Energien von α - und Tritiumteilchen wurde ein kompakter Detektoraufbau, bestehend aus zwei sich gegenüberstehenden Detektoren und einem Probenhalter in der Mitte, konzipiert. Abbildung 2.1 rechts veranschaulicht das Schema der Versuchsanordnung. Um die Detektoren vor dem Neutronenstahl zu schützen, wurde der gesamte Aufbau gegenüber dem Neutronenstrahl um die z -Achse verdreht, so dass Targetebene (y - z -Ebene) und die Neutronenstrahlquerschnittsebene einen Winkel von $\theta = 65^\circ$ einschließen (siehe Abbildung 2.1 rechts).

2.1. Energiebilanz

Beim Neutroneneinfang des Lithium-6 Kerns, entsteht zunächst ein sogenannter Compoundkern, der aus 3 Protonen und 4 Neutronen zusammengesetzt ist. Dieser befindet sich meist in einem hoch angeregten Zustand. Die Anregungsenergie resultiert aus der Bindungsenergie des ${}^7\text{Li}$ -Kerns, der eine Bindungsenergie pro Nukleon von $\frac{BE}{A}({}^7\text{Li}) = 5.606 \text{ MeV}$ besitzt, während der ${}^6\text{Li}$ -Kern mit einer Bindungsenergie von $\frac{BE}{A}({}^6\text{Li}) = 5.332 \text{ MeV}$ [NND] pro Nukleon viel schwächer gebunden ist:

$$BE({}^7\text{Li}) - BE({}^6\text{Li}) = 7 \cdot 5.606 \text{ MeV} - 6 \cdot 5.332 \text{ MeV} = 7.250 \text{ MeV}$$

Der Compoundkernzustand ist nur sehr kurzlebig und zerfällt dann entweder in Tochterkerne oder geht durch γ -Emission in den Grundzustand des ${}^7\text{Li}$ -Kerns über. Abbildung 2.2 zeigt das Energieschema des ${}^7\text{Li}$ -Kerns.

Die Reaktion ${}^6\text{Li}(n, \alpha)T$ besitzt folgenden Q -Wert:

$$BE(\alpha) + BE(T) - BE({}^6\text{Li}) = 4 \cdot 7.074 \text{ MeV} + 3 \cdot 2.827 \text{ MeV} - 6 \cdot 5.332 \text{ MeV} = 4.785 \text{ MeV}$$

Diese Energie verteilt sich gemäß der Energie- und Impulserhaltung als kinetische Energie auf die beiden Reaktionsprodukte. Im Weiteren wird angenommen, dass die Teilchengeschwindigkeit der beiden Teilchen kleiner als $0.1c$ ist und deshalb nicht-relativistisch

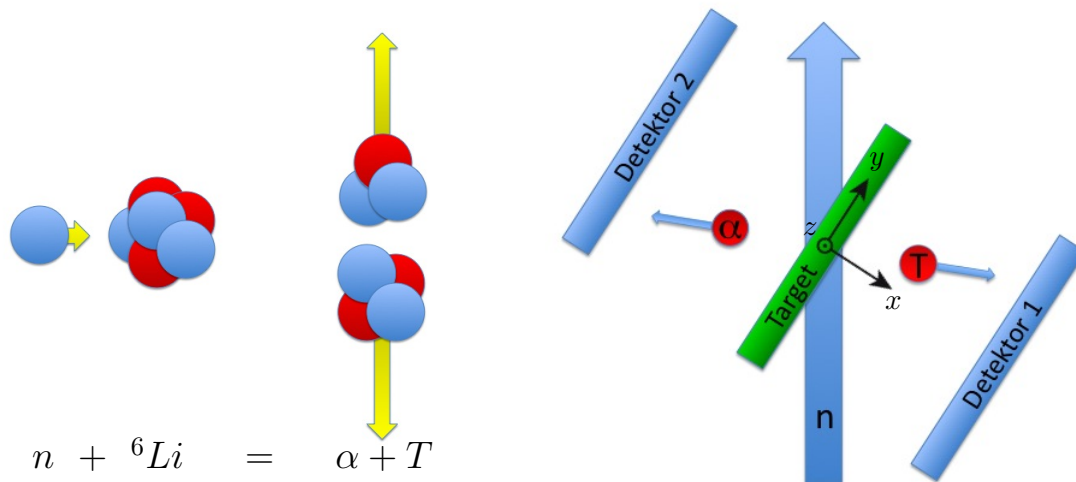


Abbildung 2.1.: Links: Graphische Darstellung der Reaktion ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$. Die Neutronen sind in blau und die Protonen in rot dargestellt.

Rechts: Das Grundkonzept des Experimentaufbaus: Der Neutronenstrahl trifft das Target mit den ${}^6\text{Li}$ -Kernen unter spitzem Winkel. Diese zerfallen in ein α - und ein Tritiumteilchen, welche von zwei parallel zum Target stehenden Detektoren nachgewiesen werden.

gerechnet werden kann. Mit der Energieerhaltung $E_\alpha + E_T = Q$ und der Impulserhaltung $\vec{p}_\alpha + \vec{p}_T = 0$ gilt (die Energie und der Impuls der Neutronen kann vernachlässigt werden, da die Neutronenenergie neun Größenordnungen unterhalb des Q -wertes liegt):

$$Q = E_\alpha^{\text{kin}} + E_T^{\text{kin}} = \frac{\vec{p}_\alpha^2}{2m_\alpha} + \frac{\vec{p}_T^2}{2m_T} = \frac{\vec{p}_\alpha^2}{2m_\alpha} + \frac{\vec{p}_\alpha^2}{2m_T} = \frac{\vec{p}_\alpha^2}{2m_\alpha} \left(1 + \frac{m_\alpha}{m_T}\right) = E_\alpha^{\text{kin}} \left(\frac{m_\alpha + m_T}{m_T}\right)$$

$$\Rightarrow E_\alpha^{\text{kin}} = \frac{m_T}{m_\alpha + m_T} Q = 2.056 \text{ MeV}$$

Entsprechend berechnet man für die kinetische Energie des Tritiumteilchens:

$$E_T^{\text{kin}} = \frac{m_\alpha}{m_T + m_\alpha} Q = 2.729 \text{ MeV}$$

Die Massen und Bindungsenergien der einzelnen Teilchen stammen aus der Datenbank des National Nuclear Data Center [AMT].

Für die Geschwindigkeit des Tritiums ergibt sich bei nicht-relativistischer Rechnung:

$$v = \sqrt{\frac{2E_T^{\text{kin}}}{m_T}} = 0.044c$$

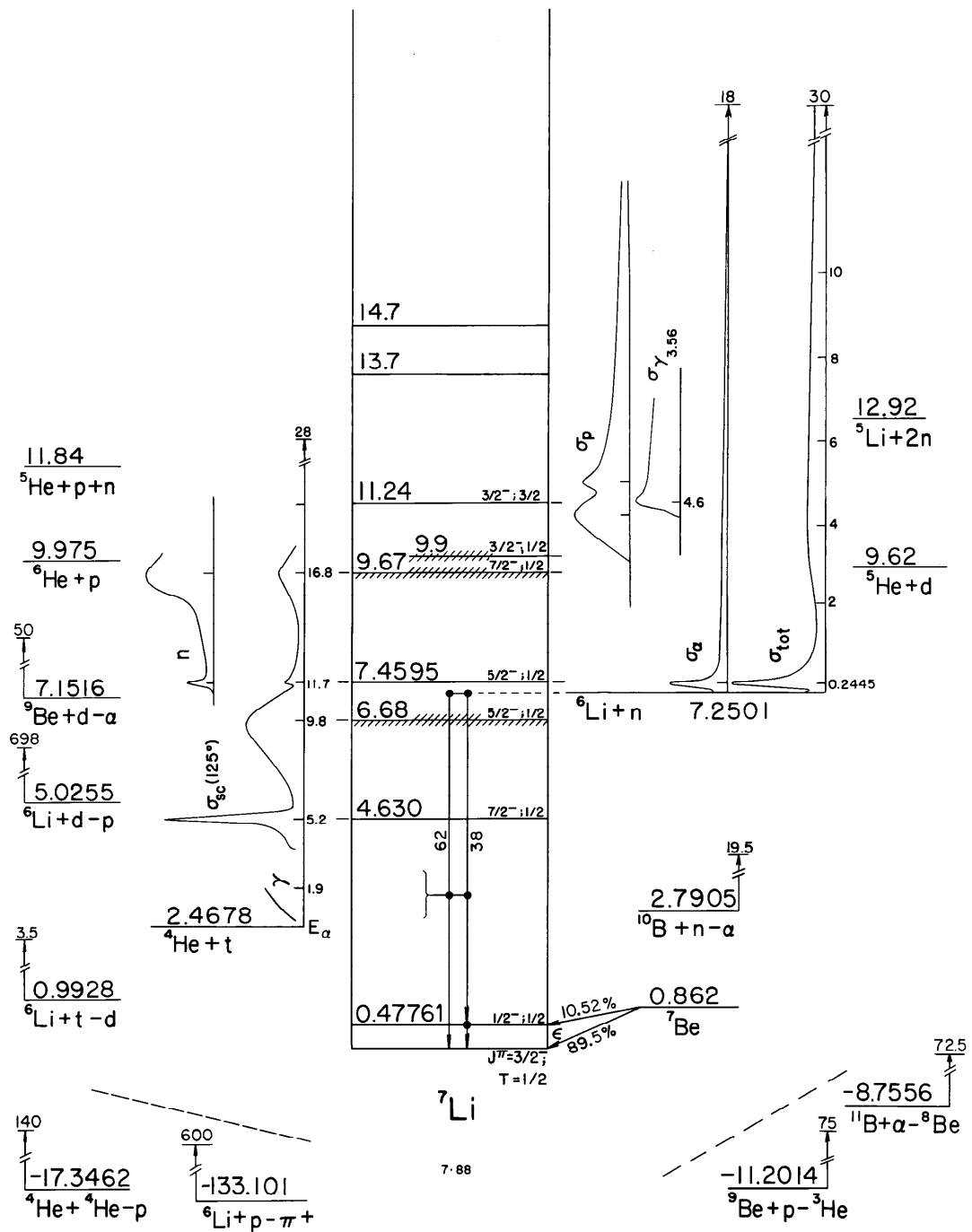


Abbildung 2.2.: Niveauschema des ${}^7\text{Li}$ -Kerns [E88]. Der Energienullpunkt ist hier auf den Grundzustand des ${}^7\text{Li}$ -Kerns gesetzt.

Das Tritiumteilchen besitzt lediglich etwa 4% der Lichtgeschwindigkeit, während das Alphateilchen noch langsamer ist, was die obige Annahme für eine nicht-relativistische Betrachtung rechtfertigt.

Da der Neutronenimpuls \vec{p}_n vernachlässigbar ist und der ${}^6\text{Li}$ Kern im Laborsystem ruht, werden das α - und das Tritiumteilchen unter 180° zueinander emittiert. Dies ist später sehr hilfreich bei der Rekonstruktion der Reaktionsorte (siehe Unterabschnitt 5.4.2).

2.2. Die Dominanz der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaktion

Die Reaktion mit Neutron und Lithium-6 Kern im Eingangskanal zeigt verschiedene Ausgangskanäle. Obwohl bei der ${}^6\text{Li}(n, \gamma){}^7\text{Li}$ -Reaktion $E1$ Übergänge beteiligt sind (siehe Abbildung 2.3), findet die Reaktion mit α und Tritium im Ausgangskanal annähernd zu 100% statt. Der Grund für die außergewöhnliche Stärke dieser Reaktion ist nur teilweise verstanden, da für leichte Kerne (Massenzahl $A < 25$) und kleine Projektilenergien keine allgemeine Theorie existiert [BWK]. Bei leichten Kernen geht die genaue Struktur des Kerns in die Reaktion mit ein, was zur Folge hat, dass für jede Kernreaktion eine eigene Betrachtung notwendig ist. Zusätzlich sind vereinfachende Annahmen, die bei schwereren

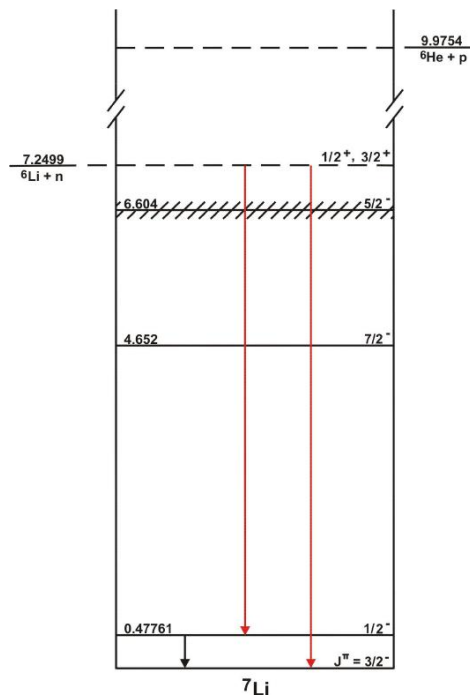


Abbildung 2.3.: Elektromagnetische Übergänge des $({}^6\text{Li} + n)$ -Compoundkerns in den ${}^7\text{Li}$ Kern¹.

¹Originalbild aus der Webpage des Triangle Universities Nuclear Laboratory (<http://www.tunl.duke.edu/nucldata/TNC/07Li.shtml>) (27.03.2010)

Kernen gemacht werden, nun nicht mehr möglich. Somit sind solche Probleme nur noch durch numerische Simulationen ("Few Body Systems") oder "coupled channel" Rechnungen (FRESCO²) lösbar, die aber deutlich über den Rahmen dieser Arbeit hinaus gehen. Hier soll dennoch eine einfache Abschätzung gegeben werden, die die außergewöhnliche Stärke der Reaktion erläutert.

Damit der angeregte Compoundkern zerfallen kann, muss zuerst ein α - und ein Tritiumteilchen gebildet werden. Im Alphateilchenmodell des Kerns [BWK] wird angenommen, dass sich ständig Alphateilchen im Kern bilden. Nach einer bestimmten Zeit zerfallen sie wieder in ihre Bestandteile und die Nukleonen des Alphateilchens bilden mit anderen Nukleonen neue Alphateilchen. Diese Annahme lässt sich rechtfertigen, da das Alphateilchen mit einer Bindungsenergie pro Nukleon von $\frac{BE}{A}({}^4\text{He}) = 7.07 \text{ MeV}$ sehr stark gebunden ist. Des Weiteren wird angenommen, dass die ${}^4\text{He}$ - und ${}^3\text{H}$ -Kerne durch homogene Kugeln beschrieben werden, in denen die gesamte Ladung der jeweiligen Teilchen enthalten ist. Der Radius dieser Kugeln kann in guter Näherung mit $r_i = 1.3 \cdot 10^{-15} \text{ m} \cdot \sqrt[3]{A_i}$ [MKK] abgeschätzt werden, wobei A_i die Massenzahl des jeweiligen Kerns ist. Damit ergibt sich für die Höhe des Coulomb-Potentials im Abstand $r = r_T + r_\alpha$ (in dem Kugelmodell können sich die beiden Teilchen nicht näher kommen) vom Zentrum des Tritiumteilchens:

$$V_c(r_T + r_\alpha) = \frac{1}{4 \pi \epsilon_0} \frac{Z_T Z_\alpha e^2}{r_T + r_\alpha} = 0.731 \text{ MeV}$$

Wie in Abschnitt 2.1 erläutert wurde, wird bei der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ -Reaktion eine Energie von 4.79 MeV frei. Das Alphateilchen besitzt also eine Anregungsenergie, die weit über der Coulombschwelle liegt.

Die Wahrscheinlichkeit für einen Alphazerfall lässt sich als Produkt zweier Faktoren angeben [MKK]:

$$\lambda = \lambda_0 T_\alpha$$

λ_0 ist die reduzierte Zerfallswahrscheinlichkeit. Sie ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Alphateilchen gebildet wird und dass es gegen die Potentialwand läuft. T_α ist die Wahrscheinlichkeit für das Durchdringen des Potentialwalls. T_α ist der dominante Faktor, der die Größenordnung von λ bestimmt [MKK]. Da die Anregungsenergie des Alphateilchens weit oberhalb des Maximums der Coulombschwelle liegt, geht T_α gegen 1 und damit λ gegen λ_0 . λ_0 wird typischerweise experimentell bestimmt. Im Alphateilchenmodell geht man davon aus, dass die Zeitskala, in der ein Alphateilchen im Kern existiert, viel länger ist als die Zeitskala, in der kein Alphateilchen existiert. Zusätzlich besitzt das Alphateilchen aufgrund der hohen Anregungsenergie eine große kinetische Energie, mit der es sich im Potentialtopf des Tritiumteilchens bewegt. Mit diesen Annahmen werden die zwei Beiträge zu λ_0 und damit die Zerfallswahrscheinlichkeit λ in ein α - und Tritiumteilchen sehr groß.

Obwohl die Theorie des Alphazerfalls in diesem Fall genau genommen nicht anwendbar ist (nur für schwere Kerne geeignet), liefert sie eine anschauliche Begründung für die außerordentliche Stärke der Reaktion mit α - und Tritium im Ausgangskanal.

²Software für "coupled channel" Rechnungen, von Ian Thompson (<http://www.fresco.org.uk>)

2.3. Der Wirkungsquerschnitt der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaktion

In Abschnitt 2.2 wurde erläutert, dass die Reaktion ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ dominant gegenüber allen anderen Reaktionen mit ${}^6\text{Li}$ und n im Eingangskanal ist. Daher können bei der Berechnung des Wirkungsquerschnittes alle anderen Reaktionen vernachlässigt werden und der Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\alpha\text{T}}$ der Reaktion ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ entspricht dem totalen Wirkungsquerschnitt.

Der totale Wirkungsquerschnitt $\tilde{\sigma}_{tot}$ für die Reaktionen ${}^6\text{Li}(n, *)^*$ lässt sich mit dem optischen Theorem berechnen [QM2] :

$$\tilde{\sigma}_{tot} = -\frac{4\pi}{|\vec{k}|} \text{Im}(b) \quad (2.1)$$

b ist die Streulänge und k der Wellenvektor des einfallenden Neutrons. Die Streulänge b hängt von der Wellenfunktion im Kern ab. Sie ist daher schwierig zu berechnen und wird typischerweise experimentell bestimmt. Des Weiteren ist die Streuung spinabhängig. Der Neutronenfluss aus dem FRM II besteht aus unpolarisierten Neutronen. Somit sind sämtliche Spinkombinationen möglich, was zur Folge hat, dass bei der Streulänge die unterschiedlichen Spinstellungen berücksichtigt werden müssen. b_+ soll die Streulänge sein, wenn der ${}^6\text{Li}$ -Kernspin j_{Li} und der Neutronenspin j_n gleichgerichtet sind und b_- gibt die Streulänge bei antiparalleler Kopplung des Neutronenspins mit dem ${}^6\text{Li}$ -Spin an.

$$b = \begin{cases} b_+ & \text{Spins parallel} \\ b_- & \text{Spins antiparallel} \end{cases} \quad (2.2)$$

Die Kopplung wird mit Hilfe der Clebsch-Gordan-Koeffizienten $\langle j_n m_n j_{Li} m_{Li} | j_c m_c \rangle$ beschrieben. Sie sind die Entwicklungskoeffizienten, wenn aus der Basis der Einzeldrehimpulse (j_n und j_{Li}) in die Basis des Gesamtdrehimpulses (j_c) gewechselt wird. Das Quadrat eines jeden Clebsch-Gordan-Koeffizienten $\langle j_n m_n j_{Li} m_{Li} | j_c m_c \rangle^2$ gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass der Neutronenspin j_n (Spinstellung m_n) mit dem ${}^6\text{Li}$ -Spin j_{Li} (Spinstellung m_{Li}) zu dem Compoundkernspin j_c mit der Spinstellung m_c koppeln. Sind der ${}^6\text{Li}$ -Kernspin j_{Li} und der Neutronenspin j_n gleichgerichtet, ergibt sich für den Compoundkernspin $j_c = \frac{3}{2}$, und $j_c = \frac{1}{2}$ bei antiparalleler Kopplung.

Der messbare totale Wirkungsquerschnitt σ_{tot} ist der gemittelte totale Wirkungsquerschnitt $\langle \tilde{\sigma}_{tot} \rangle$. Bei der Mittelwertbildung ist es notwendig die Streulängen der einzelnen Spinstellungen mit dem Quadrat der Clebsch-Gordan-Koeffizienten zu gewichten. Dabei sind die Auswahlregeln $m_n + m_{Li} = m_c$ und $|j_{Li} - j_n| < j_c < |j_{Li} + j_n|$ der Clebsch-Gordan-Koeffizienten zu beachten [CGZ]:

$$\sigma_{tot} = \langle \tilde{\sigma}_{tot} \rangle = -\frac{4\pi}{|\vec{k}|} \text{Im}(\langle b \rangle) = -\frac{4\pi}{|\vec{k}|} \text{Im} \left(\frac{\sum_{m_n, m_{Li}} \langle \frac{1}{2} m_n 1 m_{Li} | \frac{3}{2} m_c \rangle^2 b_+ + \sum_{m_n, m_{Li}} \langle \frac{1}{2} m_n 1 m_{Li} | \frac{1}{2} m_c \rangle^2 b_-}{\sum_{m_n, m_{Li}} \langle \frac{1}{2} m_n 1 m_{Li} | \frac{3}{2} m_c \rangle^2 + \sum_{m_n, m_{Li}} \langle \frac{1}{2} m_n 1 m_{Li} | \frac{1}{2} m_c \rangle^2} \right) =$$

$$-\frac{4\pi}{|\vec{k}|} \text{Im} \left(\frac{4b_+ + 2b_-}{6} \right) = \frac{(148.8 \pm 7.63)\sqrt{eV}}{\sqrt{E_n}} \text{barn} = 3.479 \pm 0.178 \text{ kbarn} \quad (2.3)$$

wobei E_n die Neutronenenergie und $b_+ = (0.67 \pm 0.14) - i(0.08 \pm 0.01) \text{fm}$ und $b_- = (4.67 \pm 0.17) - i(0.62 \pm 0.02) \text{fm}$ die experimentell ermittelten Werte der spinabhängigen Streulängen [NSL] sind.

Der gemessene Reaktionsquerschnitt [E74] für kalte Neutronen ($E_n = 1.83 \text{ meV}$) mit α und Tritium im Ausgangskanal ist:

$$\sigma_{\alpha T} = \left(\frac{149.5\sqrt{eV}}{\sqrt{E_n}} + 0.696 \right) \text{ barn} = 3.495 \text{ kbarn}$$

Er kongruiert innerhalb der Fehlergrenzen mit dem berechneten Wert des totalen Wirkungsquerschnitts, was aufgrund der Dominanz der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)T$ -Reaktion gegenüber den Reaktionen (vgl. Abschnitt 2.2) mit anderen Ausgangskanälen auch zu erwarten war.

2.4. Der Raumwinkel mit Koinzidenzbedingung

Wie in Abschnitt 2.1 diskutiert wurde, besteht der besondere Vorteil im Nachweis der ${}^6\text{Li}(n, \alpha)T$ Reaktion darin, dass beide Teilchen unter 180° emittiert werden. Obwohl die Detektoren nahe am Target stehen, decken sie lediglich einen kleinen Raumwinkelbereich ab. Daher muss der Raumwinkel Ω , bzw. die Effizienz $\frac{\Omega}{4\pi}$ berechnet werden, um aus der gemessenen Reaktionsrate auf die wahre Reaktionsrate schließen zu können. Zusätzlich lässt sich mit dieser Berechnung die Detektorgeometrie bezüglich ihrer Effizienz optimieren.

Um den Raumwinkel zu berechnen, wird das Koordinatensystem so gewählt, dass die x -Achse die beiden Detektormittelpunkte enthält. Die y - z -Ebene soll parallel zu den Detektoroberflächen sein und sich im gleichen Abstand d von beiden Detektoren befinden (siehe Abbildung 2.1 rechts). Der Detektor-Target-Abstand d ist somit ausschließlich durch die x -Koordinate beschreibbar und das Target liegt in diesem Koordinatensystem in der y - z -Ebene.

Der Raumwinkel $\tilde{\Omega}$ ist wie folgt definiert [SOA]:

$$\tilde{\Omega} = \int_{S^*} \frac{\hat{r} \cdot d\vec{S}^*}{r^2} \quad (2.4)$$

wobei $\hat{r} = \frac{\vec{r}}{|\vec{r}|}$ der normierte Ortsvektor \vec{r} , $d\vec{S}^* = \vec{v}dS^*$ das differentielle Flächenelement des Detektors, \vec{v} der Normaleneinheitsvektor von dS^* und S^* die Fläche eines Detektors ist. Aufgrund der Wahl des Koordinatensystems reicht die Integration über die y - und z -Komponente aus, um die gesamte Detektorfläche zu berücksichtigen:

$$\tilde{\Omega} = \iint_{S^*} \frac{\vec{r} \cdot \vec{v}}{|\vec{r}|^3} dydz \quad (2.5)$$

Die Gleichungen (2.4) und (2.5) gelten, wenn der Emissionsort der Teilchen punktförmig und der Ursprung ist. Die Proben sind jedoch ausgedehnt, was eine Berücksichtigung der Reaktionsorte erfordert. Dies wird durch die Translation des Koordinatensystems auf den jeweiligen Emissionsort des Teilchens erreicht. Die Detektoren bleiben jedoch fest. Somit werden sie jedes Mal relativ zum Koordinatensystem verschoben. Das bedingt eine Anpassung der Integrationsgrenzen, abhängig von der Position des Koordinatenursprungs. Folglich wird auch $\tilde{\Omega}$ abhängig vom Emissionsort der Teilchen: $\tilde{\Omega} = \tilde{\Omega}(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}) = \tilde{\Omega}(0, \tilde{y}, \tilde{z}) = \tilde{\Omega}(\tilde{y}, \tilde{z})$, wobei $(\tilde{0}, \tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z})$ das ortsfeste Koordinatensystem ist, dessen Koordinaten den Emissionsort des jeweiligen Teilchens bzw. den Ursprung des $(0, x, y, z)$ -Koordinatensystem beschreiben.

Die Koinzidenzbedingung, kann durch eine reduzierte Detektorfläche S ausgedrückt werden. Diese reduzierte Detektorfläche ändert sich abhängig vom Reaktionsort. Beide Detektoren haben den gleichen Target-Detektorabstand d und sind in gleicher Höhe und Breite parallel zum Target ausgerichtet. Das Koinzidenzproblem kann daher aufgrund der Symmetrie auf zwei Dimensionen, z.B.: auf das \tilde{x} - \tilde{z} -Koordinatensystem, vereinfacht werden. Findet beispielsweise eine Reaktion bei $\tilde{z}_0 > 0$ statt (siehe Abbildung 2.4), ist aufgrund der Koinzidenzbedingung nicht die gesamte Detektorfläche S^* verfügbar. Der maximale Detektionsbereich im Detektor 1 wird nach oben durch $\frac{a}{2}$, wenn a die Detektorhöhe ist, und nach unten durch die Koinzidenzbedingung mit Detektor 2 begrenzt. Diese Koinzidenzbedingung bewirkt, dass im Detektor 1 nur derjenige "reduzierte" Bereich $[c, \frac{a}{2}] \subset S_1^*$ möglich ist, so dass für jeden Punkt $\xi \in [c, \frac{a}{2}]$ gilt: Die Gerade g , die die Strecke $\xi\tilde{z}_0$ enthält, muss die Detektorfläche S_2^* von Detektor 2 schneiden. Diese Bedingung liefert für $c = 2\tilde{z}_0 - \frac{a}{2}$ und man erhält für den reduzierten Detektorbereich in \tilde{z} -Richtung:

$$\left[2\tilde{z}_0 - \frac{a}{2}, \frac{a}{2} \right] \quad (2.6)$$

Der Detektorbereich $[-\frac{a}{2}, 2\tilde{z}_0 - \frac{a}{2}]$ kann nicht genutzt werden, da hier keine Koinzidenz mit Detektor 2 möglich ist (siehe Abbildung 2.4). Eine analoge Betrachtung für $\tilde{z}_0 < 0$ führt auf einen reduzierten Detektorbereich von:

$$\left[-\frac{a}{2}, \frac{a}{2} + 2\tilde{z}_0 \right] \quad (2.7)$$

Der Betrag der reduzierten Detektorhöhe ist also gegeben durch: $a - 2|\tilde{z}_0|$. Obige Überlegungen gelten aufgrund der Symmetrieeigenschaften auch für die \tilde{x} - \tilde{y} -Ebene. Der reduzierte Detektorbereich in \tilde{y} -Richtung ist somit gegeben durch:

$$\left[2\tilde{y}_0 - \frac{b}{2}, \frac{b}{2} \right] \quad (2.8)$$

für $\tilde{y}_0 > 0$ und

$$\left[-\frac{b}{2}, \frac{b}{2} + 2\tilde{y}_0 \right] \quad (2.9)$$

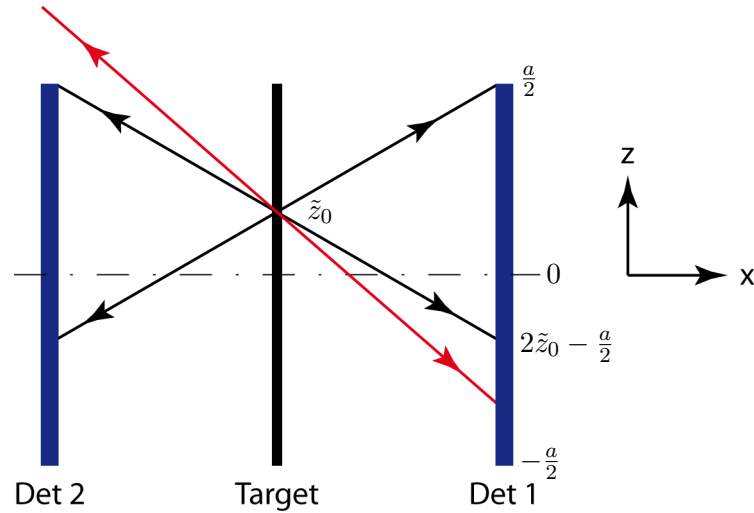


Abbildung 2.4.: Durch die Koinzidenzbedingung kann nicht die gesamte Detektorfläche genutzt werden. Es ist nur der Bereich von $2\tilde{z}_0 - \frac{a}{2}$ bis $\frac{a}{2}$ möglich. Trifft ein Teilchen unterhalb $2\tilde{z}_0 - \frac{a}{2}$ den Det 1 (rote Trajektorie), ist es Det 2 nicht möglich, den koinzidenten Partner nachzuweisen und das Ereignis wird nicht aufgenommen. Die beiden schwarzen Trajektorien grenzen den, für den Emissionsort \tilde{z}_0 , gerade noch möglichen Detektorbereich ein.

für $\tilde{y}_0 < 0$, wobei b die Breite der Detektoren und \tilde{y}_0 der Reaktionsort in \tilde{y} -Richtung ist. Der Betrag der reduzierten Detektorbreite ist also gegeben durch $b - 2|\tilde{y}_0|$. Ergo ergibt sich für den Betrag der reduzierten Detektorfläche S :

$$S = S(\tilde{y}_0, \tilde{z}_0) = (a - 2|\tilde{z}_0|) \cdot (b - 2|\tilde{y}_0|) \quad (2.10)$$

Für $\tilde{y} = \tilde{z} = 0$ entspricht S der Detektorfläche $S^* = a \cdot b$ und für $\tilde{y} = \pm \frac{a}{2}$, $\tilde{z} = \pm \frac{a}{2}$ wird die reduzierte Detektorfläche $S = 0$, was aufgrund der Koinzidenz auch zu erwarten ist.

Bei der Berechnung des Raumwinkels muss Detektor 1, der eine Koinzidenz mit Detektor 2 bildet, und Detektor 2, dessen Koinzidenzbedingung Detektor 1 vorgibt, berücksichtigt werden. Da beide Detektoren spiegelsymmetrisch zur \tilde{y} - \tilde{z} -Ebene angeordnet sind, ist es nicht notwendig zwischen den einzelnen reduzierten Detektorflächen S_1 und S_2 zu unterscheiden. Es reicht, wenn nur ein Detektor betrachtet und der berechnete Raumwinkel mit zwei multipliziert wird.

Der Raumwinkel $\tilde{\Omega}(\tilde{y}, \tilde{z})$ lässt sich für positive Emissionsorte ($\tilde{y} > 0$ und $\tilde{z} > 0$) mit Gleichung 2.5 und den Integrationsgrenzen (2.6) und (2.8), die die Koinzidenzbedingung berücksichtigen, wie folgt berechnen:

$$\tilde{\Omega}(\tilde{y}, \tilde{z}) = 2 \iint_S \frac{\vec{r} \cdot \vec{\nu}}{|\vec{r}|^3} dydz = 2 \int_{(2\tilde{z}-\frac{a}{2})}^{\frac{a}{2}} \int_{(2\tilde{y}-\frac{b}{2})}^{\frac{b}{2}} \frac{\vec{r} \cdot \vec{\nu}}{|\vec{r}|^3} dydz \quad (2.11)$$

Die Detektoren liegen in der \tilde{y} - \tilde{z} -Ebene, somit ist $\vec{\nu} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$. Der Ortsvektor ist gegeben

durch $\vec{r} = \begin{pmatrix} d \\ y \\ z \end{pmatrix}$. Somit ergibt sich für $\tilde{\Omega}(\tilde{y}, \tilde{z})$:

$$\begin{aligned} \tilde{\Omega}(\tilde{y}, \tilde{z}) &= 2 \int_{(2\tilde{z}-\frac{a}{2})}^{\frac{a}{2}} \int_{(2\tilde{y}-\frac{b}{2})}^{\frac{b}{2}} \frac{d}{(d^2 + y^2 + z^2)^{\frac{3}{2}}} dydz \\ &= 2 \arctan \frac{ab}{2d\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2}} + 2 \arctan \frac{b(a - 4\tilde{y})}{2d\sqrt{b^2 + 4d^2 + (a - 4\tilde{y})^2}} \\ &+ 2 \arctan \frac{a(b - 4\tilde{z})}{2d\sqrt{a^2 + 4d^2 + (b - 4\tilde{z})^2}} + 2 \arctan \frac{(a - 4\tilde{y})(b - 4\tilde{z})}{2d\sqrt{4d^2 + (a - 4\tilde{y})^2 + (b - 4\tilde{z})^2}} \quad (2.12) \end{aligned}$$

Die Detektoren sind spiegelsymmetrisch zur \tilde{x} - \tilde{y} -Ebene und zur \tilde{x} - \tilde{z} -Ebene. Daher erhält man den Raumwinkel für alle \tilde{y} und \tilde{z} (positive und negative) durch Anwenden des Betrags auf die Funktionsargumente ($\tilde{\Omega}(\tilde{y}, \tilde{z}) \rightarrow \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|)$). Abbildung 2.5 zeigt den Raumwinkel für $a = b = 10 \text{ mm}$ und einem Target-Detektor-Abstand von $d = 17.5 \text{ mm}$, wie er bei Experiment 2 verwendet wurde³.

Am Ursprung besitzt das Detektorsystem die maximale Effizienz von $\tilde{\Omega}(0, 0) = 0.604 \text{ Sr}$. Entlang der Koordinatenachsen fällt die Effizienz nahezu linear ab. Die rote Kurve in Abbildung 2.6 links³ oben visualisiert die Abnahme der Effizienz entlang der positiven \tilde{y} -Achse. Die blaue gestrichelte Linie zeigt eine Gerade, die durch die beiden Punkte $(0, \Omega(0, 0))$ und $(5, 0)$ verläuft. Beide Kurven liegen annähernd übereinander. Entlang der Diagonalen nimmt die Effizienz in etwa quadratisch ab (siehe Abbildung 2.6 links unten³). Die rote Kurve zeigt die Abnahme der Effizienz entlang der Diagonalen in positive \tilde{y} - und \tilde{z} -Richtung, während die blaue, gestrichelte Kurve eine Parabel mit dem Minimum bei $(5\sqrt{2}, 0)$ darstellt. Der quadratische Kurvenverlauf entlang der Diagonalen ist durch die Effizienzabnahme sowohl in \tilde{y} -Richtung, als auch in \tilde{z} -Richtung zu erklären. Aufgrund der anisotropen Effizienzabnahme, ergibt sich ein Kreuzmuster im Dichteplot des Raumwinkels (siehe Abbildung 2.6 rechts³), das ebenfalls in den aufgenommenen Spektren sichtbar ist (siehe Unterabschnitt 5.4.3). Der rote Bereich kennzeichnet eine hohe Effizienz, die zu kälteren Farben abnimmt.

³Plot wurde mit Wolfram Mathematica 6.020 angefertigt, Firma Wolfram (<http://www.wolfram.com/>)

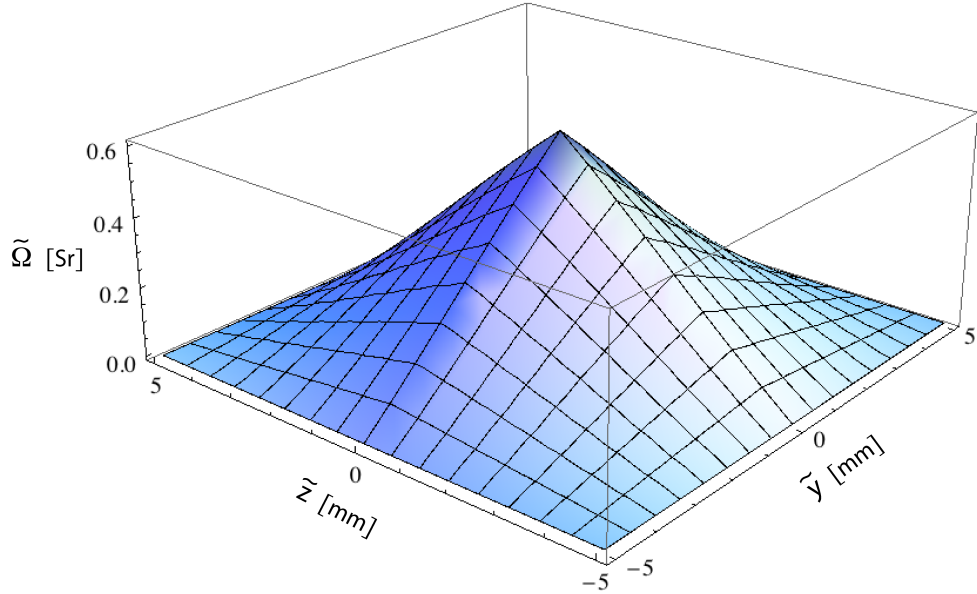


Abbildung 2.5.: Raumwinkelplot für $10 \times 10 \text{ mm}^2$ große Detektoren bei einem Target-Detektor-Abstand von $d = 17.5 \text{ mm}$.

Bei dem Experiment geht der mittlere Raumwinkel $\Omega = \left\langle \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|) \right\rangle_{\tilde{y}\tilde{z}}$ ein. Da alle Emissionsorte gleichberechtigt sind, lässt sich Ω durch das arithmetische Mittel der einzelnen Raumwinkel $\tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|)$ berechnen:

$$\Omega = \frac{\sum_i \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|)}{\sum_i 1}$$

wobei i der Index für das i -te Tupel $(\tilde{y}, \tilde{z})^T$ der Emissionsorte ist. $\sum_i 1$ gibt in dieser Notation die Gesamtzahl der Reaktionen an.

Beim Experiment gibt es sehr viele Teilchenreaktionen, die gleichmäßig über das Target verteilt sind. Daher kann in guter Näherung zur kontinuierlichen Betrachtung übergegangen werden.

$$\Omega \cong \lim_{i \rightarrow \infty} \frac{\sum_i \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|)}{\sum_i 1} = \frac{\iint_A \lambda(\tilde{y}, \tilde{z}) \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|) d\vec{A}}{\iint_A \lambda(\tilde{y}, \tilde{z}) d\vec{A}} = \frac{\iint_A \lambda(\tilde{y}, \tilde{z}) \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|) d\tilde{y} d\tilde{z}}{\iint_A \lambda(\tilde{y}, \tilde{z}) d\tilde{y} d\tilde{z}} \quad (2.13)$$

Die Flächenreaktionsdichte $\lambda(\tilde{y}, \tilde{z})$ kann eingeführt werden, da die Targetdicke klein gegenüber dem Target-Detektorabstand ist und somit die Ausdehnung des Targets in \tilde{x} -

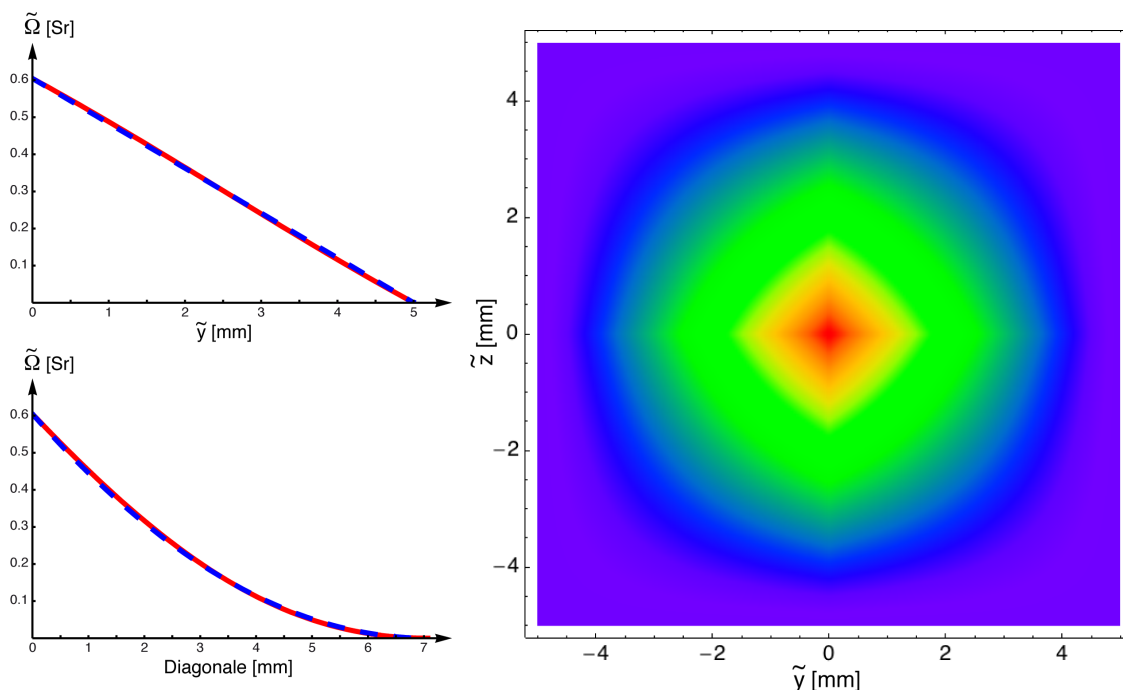


Abbildung 2.6.: Links: Die rote Kurven zeigen die Effizienzabnahme entlang der Koordinatenachsen (oben) und entlang der Diagonalen (unten). Die blauen, gestrichelten Kurven sind lineare und quadratische Funktionen. Sie stimmen fast exakt mit den roten Kurven überein³. Rechts: Dichteplot der Effizienz. Aufgrund der anisotropen Effizienzabnahme ist ein Kreuzmuster zu erkennen, das auch in den aufgenommenen Spektren erkennbar ist³.

Richtung vernachlässigbar ist. Des Weiteren wird angenommen, dass $\lambda(\tilde{y}, \tilde{z}) = \lambda$ ortsunabhängig ist. Diese Annahme gilt, wenn der Neutronenstrahl das Target gleichmäßig bestrahlt und sich die ${}^6\text{Li}$ -Teilchendichte über das gesamte Target nicht ändert, was in guter Näherung sicher erfüllt ist. A ist die aktive Targetfläche, die in der \tilde{y} - \tilde{z} -Ebene liegt. Sie gibt die koinzidenzfähigen Bereiche des Targets an, da es je nach Größe und Form des Targets Gebiete geben kann, an denen keine Koinzidenz möglich ist und diese von der Integration auszuschließen sind. Die aktive Targetfläche A wird wie folgt definiert: \mathbb{A}^* , $\mathbb{S}^*_{\tilde{y}\tilde{z}}$ seien die Mengen aller Punkte $(\tilde{y}_0, \tilde{z}_0)$ (im Koordinatensystem Tilde), die in A^* , $S^*_{\tilde{y}\tilde{z}}$ liegen. $A^* := A^*(\tilde{y}, \tilde{z})$ ist die gesamte Targetfläche und $S^*_{\tilde{y}\tilde{z}} := S^*_{\tilde{y}\tilde{z}}(\tilde{y}, \tilde{z})$ ist die Projektion der gesamten Detektorfläche $S^*(\tilde{y}, \tilde{z})$ in die \tilde{y} - \tilde{z} -Ebene. Dann ist die Menge aller Punkte $(\tilde{y}_0, \tilde{z}_0)$, die in der aktiven Targetfläche A liegen gegeben durch:

$$\mathbb{A} = \mathbb{A}^* \cap \mathbb{S}^*_{\tilde{y}\tilde{z}}$$

Das bedeutet, die aktive Targetfläche A soll die Targetfläche A^* sein, wenn A^* kleiner als $S^*_{\tilde{y}\tilde{z}}$ ist, ansonsten soll A gleich $S^*_{\tilde{y}\tilde{z}}$ sein. Abbildung 2.7 zeigt ein Beispiel einer aktiven

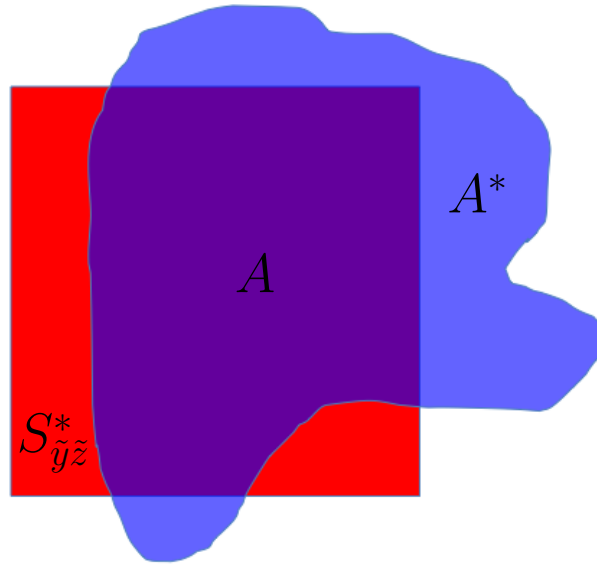


Abbildung 2.7.: Die Targetfläche A^* (blau) befindet sich in der $\tilde{y} - \tilde{z}$ -Ebene. Die rote Fläche $S_{\tilde{y}\tilde{z}}^*$ ist die Projektion der Detektoren in die $\tilde{y} - \tilde{z}$ -Ebene. Der Schnitt aus beiden Flächen ist die aktive Targetfläche A (violett).

Targetfläche A . Der violette Bereich ist koinzidenzfähig. Findet eine Reaktion außerhalb des Randes der projizierten Detektorfläche $S_{\tilde{y}\tilde{z}}^*$ statt (blaue Bereich), kann diese Reaktion aufgrund der Koinzidenzbedingung nicht aufgenommen werden.

Mit obigen Annahmen lässt sich Gleichung 2.13 wie folgt vereinfachen:

$$\Omega = \frac{1}{A} \iint_A \tilde{\Omega}(|\tilde{y}|, |\tilde{z}|) d\tilde{y}d\tilde{z} \quad (2.14)$$

Um Ω zu berechnen, muss A bekannt sein, das sich von Probe zu Probe ändert. In vielen Fällen waren die Gewebeproben sehr groß, so dass die Targetfläche A^* größer als die Detektorfläche S^* war. In diesem Fall lässt sich die Raumwinkelberechnung vereinfachen, indem die Beträge der Funktionsargumente von $\tilde{\Omega}$ weggelassen werden und nur über den positiven Bereich von A integriert wird. Um den mittleren Raumwinkel zu erhalten, ist es, aufgrund der Beschränkung auf den positiven Integrationsbereich, nötig, das Integrationsergebnis mit vier zu multiplizieren. Die identische Vereinfachung ist ebenfalls möglich, wenn das Target symmetrisch zur y - und zur z -Achse ist. Für den Fall dass die Targetfläche A^* größer als $S_{\tilde{y}\tilde{z}}^*$ ist, ergibt sich ein mittlerer Raumwinkel von $\Omega = 0.151$ (siehe Anhang B), wobei die Detektormaße $a = b = 10 \text{ mm}$ und ein Target-Detektorabstand von $d = 17.5 \text{ mm}$ eingesetzt wurden⁴. Die mittlere Effizienz des Detektorsystems ist in diesem Fall $\frac{\Omega}{4\pi} = 1.2\%$. Bei dieser Detektorkonfiguration werden also 1.2% aller ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaktionen aufgezeichnet.

⁴Die beiden Integrale von Ω wurden mit Wolfram Mathematica 6.020 gelöst, Firma Wolfram (<http://www.wolfram.com/>)

2.5. Grenzen der Methode

Obwohl kein Teil des Detektoraufbaus direkt vom Neutronenstrahl erfasst wird, kann die Materieaktivierung nicht vollständig verhindert werden. Der Grund dafür ist, dass der Neutronenstrahl das Target und gestreute Neutronen die umliegende Materie treffen. Vor allem der Halo des Neutronenstrahls erzeugt viele Untergrundreaktionen, da dieser den Alurahmen und die Teflonkonstruktion aktiviert. Dabei entstehen Untergrundteilchen (vor allem β - und γ -Teilchen), deren Energieverlust in einem dünnen ($300\ \mu\text{m}$) Siliziumdetektor weit unter dem der zu messenden α - und Tritiumteilchen liegen. Ist die Untergrundrate hoch, kann es aber zu "Pile Up" Effekten kommen, bei dem zwei Teilchen zeitnah in einem Detektor landen und die Summe beider Teilchen aufgezeichnet wird. Dieser Effekt und zufällige Koinzidenzen der α - oder Tritiumteilchen mit dem Untergrund erzeugen, obwohl nur niederenergetischer Untergrund zu erwarten ist, Untergrundeinträge bei hohen Energien, die die Messung limitieren. Daher muss das Material, aus dem die Bauteile gefertigt werden, in Hinsicht auf eine minimale Neutronenaktivierung gewählt werden.

Die Reichweite der α - und Tritiumteilchen in Materie ist begrenzt. Folglich ist es notwendig die Dicke der Probenträgern zu minimieren, damit die Teilchen mit möglichst wenig Energieverlust zu den Detektoren gelangen.

Weitere Punkte, die diese Methode limitieren, sind die endliche Messzeit und der Neutronenfluss, aber auch die Integrationszeit der Detektorsignale, die für eine hochauflösende Energiemessung erforderlich ist.

2.5.1. Untergrund

Um ein möglichst gutes Signal-zu-Untergrundverhältnis zu erreichen, ist es notwendig für den gesamten Aufbau nur Materialien mit geringen Neutroneneinfangquerschnitten zu verwenden. Des Weiteren sollen diese Materialien, wenn sie durch Neutroneneinfang aktiviert wurden, schnell wieder abklingen, damit die Wartezeit vor einem Probenwechsel möglichst kurz ist. In Tabelle 2.1 wurden die maßgeblichen Elemente, aus denen die Detektorkonstruktion und Probenkammer bestehen, mit natürlichem Vorkommen [KNK] und Neutroneneinfangquerschnitt [JAN] ($E_n = 1.83\ \text{meV}$) zusammengefasst. Zusätzlich wurden die Halbwertszeiten [KNK] der beim Neutroneneinfang entstehenden Elemente, die beim Zerfall emittierte Strahlung [KNK] und die Tochterprodukte mit aufgelistet.

Um die Untergrundrate zu minimieren wurde für den gesamten Aufbau, so weit es möglich war, Polytetrafluorethylen (PTFE) verwendet (siehe Unterabschnitt 3.3.2), da dies ausschließlich aus Fluor und Kohlenstoff besteht. Das zu 100% natürlich vorkommende ^{19}F eignet sich aufgrund des sehr kleinen Neutroneneinfangquerschnitts und der kurzen Halbwertszeit außerordentlich gut für Anwendungen mit Neutronen (siehe Tabelle 2.1). Das ^{12}C (nat. Vorkommen: 98.93%) ist ebenfalls unkritisch, da es durch Neutroneneinfang in das stabile ^{13}C übergeht. Aus dem ^{13}C entsteht durch Neutroneneinfang ein ^{14}C -Kern, der durch β^- -Emission in das stabile ^{14}N zerfällt. Diese Reaktion ist ebenfalls unproblematisch, da die Halbwertszeit dieses Zerfalls sehr groß und dadurch die Aktivität sehr gering ist. Aufgrund des natürlichen Vorkommens von lediglich 1.07% ist diese

Element	nat. Vorkommen in %	σ in barn	$T_{\frac{1}{2}}$	emittierte Strahlung	Zerfallsprodukt
^{19}F	100	$35 \cdot 10^{-3}$	11.0 s	β^{-}, γ	^{20}Ne
^{13}C	1.07	$5.1 \cdot 10^{-3}$	5730 a	β^{-}	^{14}N
^{27}Al	100	0.86	2.25 min	β^{-}, γ	^{28}Si
^{26}Mg	11.01	0.14	9.46 min	β^{-}, γ	^{27}Al
^{14}N	99.64	6.8	≈ 0	p	^{14}C
^{10}B	19.9	$14.2 \cdot 10^3$	≈ 0	$\alpha, (\gamma)$	7Li
6Li	7.59	$3.50 \cdot 10^3$	≈ 0	α	3H

Tabelle 2.1.: Die maßgeblichen Elemente der Detektorkonstruktion und der Probenkammer mit ihrem natürlichem Vorkommen und dem Neutroneneinfangquerschnitt σ [JAN]. $T_{\frac{1}{2}}$ gibt die Halbwertszeit [KNK] des Elements nach dem Neutroneneinfang an. " ≈ 0 " soll dabei ausdrücken, dass der Zerfall instantan nach dem Neutroneneinfang erfolgt.

Reaktion nochmals um einen Faktor 100 unterdrückt (siehe Tabelle 2.1).

Bauteile, die eine höhere Stabilität benötigen, wurden aus $AlMg_3$ gefertigt. Die Neutroneneinfangquerschnitte von Aluminium und Magnesium liegen bei 0.1 – 1 barn und die Halbwertszeiten der daraus entstehenden Elemente liegen in der Größenordnung von 10 min (siehe Tabelle 2.1). Daher wurde bei der Konstruktion des Aufbaus (siehe Unterabschnitt 3.3.2) darauf geachtet, dass diese Teile so weit wie möglich vom Neutronenstrahl entfernt platziert wurden.

Alle im Detektoraufbau enthaltenen Elemente gehen durch Neutroneneinfang und anschließendem radioaktiven Zerfall in stabile Elemente über. Daher entsteht keine weitere Strahlung durch Folgereaktionen. Obwohl diese Materialien einen sehr kleinen Neutroneneinfangquerschnitt aufweisen, wurde während des Experimentes bei einer Triggerschwelle von 370 keV eine β - und γ -Rate von etwa 14 kHz pro Detektor gemessen (siehe Abschnitt 5.2), die größtenteils aus der Aktivierung des PTFE und des Aluminiums resultiert.

Eine weitere Untergrundquelle ist der Luftstickstoff. Das zu 99.64% natürlich vorkommende ^{14}N zerfällt durch Neutroneneinfang in ein Proton und einen ^{14}C -Kern (siehe Tabelle 2.1). Die Reaktion besitzt einen Q -Wert von 627 keV [ELN]. Diese Energie verteilt sich entsprechend der einzelnen Massen auf die Teilchen im Ausgangskanal und kann in den Detektoren deponiert werden. Besonders die Protonen ($E_p = 585$ keV) können die α - und Tritiumeinträge durch "Pile Up" stark verfälschen.

Zusätzlich ist neben den Teilchenreaktionen eine elastische Streuung der Neutronen an den verschiedenen Elementen möglich. Aufgrund der elastischen Streuung können die vom Neutronenstrahl weiter entfernten Bereiche ebenfalls aktiviert werden. Besonders Wasserstoff, das im Wasser der Gewebeprobe enthalten ist, besitzt mit $\sigma_H^{str}(E_n = 1.83$ meV) = 88 barn [JAN] einen großen Streuquerschnitt. Um die Neutronenstreuung in den Gewebeprobe zu minimieren und die Probendicke zu maximieren (siehe

Unterabschnitt 2.5.2), wurden die Gewebeprouben getrocknet (siehe Abschnitt 4.3).

Eine weitere Untergrundquelle ist die, mit einem ${}^6\text{LiF}$ -Polymer ausgekleidete, Probenkammer (siehe Unterabschnitt 3.2.1). Das ${}^6\text{Li}$ dieses Polymers erzeugt durch Neutroneneinfang, mit der gleichen Reaktion wie auch in den Gewebeprouben, α - und Tritiumteilchen. Es ist notwendig diese Untergrundteilchen gegenüber dem Detektoraufbau abzuschirmen (siehe Unterabschnitt 3.3.2), da ansonsten zufällige Koinzidenzen mit anderen Untergrundteilchen das Signal zu Untergrundverhältnis reduzieren.

Wie in Unterabschnitt 3.3.1 beschrieben, werden für einen Detektoraufbau Leiterplatten benötigt. Diese Platinen wurden aus FR2 Material gefertigt, dessen Basis Papier ist. Papier ist aufgrund seiner Bestandteile unkritisch für die Anwendung mit Neutronen. Die Basis des standard FR4 Material besteht aus Glasfasergewebe, das wiederum Bor enthält. ${}^{10}\text{B}$ fängt mit einem außerordentlich hohen Wirkungsquerschnitt von $\sigma_{10\text{B}}(E_n = 1.83 \text{ meV}) = 14.2 \text{ kbarn}$ ein Neutron ein und zerfällt in ein Alphateilchen und einen ${}^7\text{Li}$ -Kern (siehe Tabelle 2.1). Der ${}^7\text{Li}$ -Kern geht dabei zu 6% in den Grundzustand und in etwa 94% aller Fälle in den ersten angeregten Zustand ($E_1 = 0.478 \text{ MeV}$) über. Die Reaktion besitzt einen Q -Wert von $Q = 2.792 \text{ MeV}$ [ELN]. Diese Energie verteilt sich entsprechend der jeweiligen Massen auf die Teilchen im Ausgangskanal. Die Alphateilchen ($E_0(\alpha) = 1776 \text{ keV}$ bzw. $E_1(\alpha) = 1473 \text{ keV}$) würden mit einer hohen Effizienz, da sich die Leiterplatten sehr nahe an den Detektoren befinden, hochenergetische Einträge in den Spektren verursachen. Folglich war es erforderlich borhaltige Materialien bei der Fertigung des Detektoraufbaus zu vermeiden. Eine Bor-Verunreinigung auf dem Target stellt aufgrund des koinzidenten Zerfalls in ein Alphateilchen und einen Lithiumkern, die mit der gleichen Effizienz wie auch die α - und Tritiumteilchen im Detektor nachgewiesen werden, ebenfalls eine erhebliche Untergrundquelle dar.

Zufällige Koinzidenzen von hochenergetischen Untergrundteilchen, mit Alpha- oder Tritiumteilchen aus dem Target oder der Probenkammerwand, führen zu Einträgen, die nahe an den α - und Tritiumkoinzidenzhäufungen liegen. Folglich kann es vorkommen, dass die "echten" Einträge nicht mehr von den Untergrundeinträgen separierbar sind und somit das Signal zu Untergrundverhältnis reduziert wird. In diesem Fall wäre die, in dieser Arbeit entwickelten, Methode durch den Untergrund limitiert und eine Lithiumbestimmung bei geringer Konzentration unmöglich.

2.5.2. Dicke des Targets

Damit die α - und Tritiumteilchen von der Probe in die Detektoren gelangen, müssen sie eine Reihe von verschiedenen Materialien durchqueren, in denen sie unterschiedlich viel Energie verlieren. Um einen Lithiumzerfall aufzuzeichnen, ist es aufgrund der Koinzidenzbedingung notwendig, dass immer beide Teilchen zu den Detektoren gelangen. Die Alphateilchen verlieren auf gleicher Strecke etwa vier mal mehr Energie als die Tritiumteilchen, da die Ladung des Projektils in etwa quadratisch in den Energieverlust eingeht. Folglich ist die Probendicke durch den Energieverlust der Alphateilchen limitiert. Tabelle 2.2 zeigt die Reichweiten und "Stopping Power" der α - und Tritiumteilchen

α -Teilchen			
Energie in MeV	Geschwindigkeit $\frac{v}{c}$	Energieverlust $\frac{dE}{dx}$ in $\frac{MeV}{mg/cm^2}$	Reichweite in $\frac{mg}{cm^2}$
2.050	0.0332	1.34	1.30
1.845	0.0315	1.42	1.15
1.640	0.0297	1.50	1.01
1.435	0.0277	1.60	0.877
1.230	0.0257	1.70	0.752
1.025	0.0235	1.80	0.635
0.8200	0.0210	1.89	0.524
0.6150	0.0182	1.93	0.417
0.4100	0.0148	1.87	0.309
0.2050	0.0105	1.59	0.192
Tritiumteilchen			
Energie in MeV	Geschwindigkeit $\frac{v}{c}$	Energieverlust $\frac{dE}{dx}$ in $\frac{MeV}{mg/cm^2}$	Reichweite in $\frac{mg}{cm^2}$
2.730	0.0442	0.245	7.34
2.457	0.0419	0.262	6.26
2.184	0.0395	0.282	5.25
1.911	0.0370	0.306	4.32
1.638	0.0342	0.335	3.47
1.365	0.0313	0.372	2.69
1.092	0.0280	0.421	2.00
0.8190	0.0242	0.491	1.40
0.5460	0.0198	0.599	0.888
0.2730	0.0140	0.742	0.480

Tabelle 2.2.: Reichweiten und "Stopping Power" $\frac{dE}{dx}$ der α - und Tritiumteilchen in Kohlenstoff bei verschiedenen Energien, die mit dem Programm "eneloss" (basierend auf den Ziegler Tabellen [ZIE]) berechnet wurden. Die Werte wurden für Kohlenstoff berechnet und sind daher nur grobe Anhaltspunkte.

für verschiedene Energien. Diese Reichweiten wurden mit dem Programm "eneloss"⁵ berechnet. Als absorbierendes Material wurde Kohlenstoff verwendet, da Kohlenstoff die Basis von organischem Gewebe und aller verwendeten Werkstoffe ist. Da die Materialien nicht aus reinem C bestehen, sind die Reichweiten in Tabelle 2.2 nur eine Näherung und können um etwa 10% abweichen. Innerhalb dieser Fehlergrenzen besitzen die α - bzw. Tritiumteilchen lediglich eine maximale Reichweite von $1.30 \frac{mg}{cm^2}$ bzw. $7.34 \frac{mg}{cm^2}$ (siehe Tabelle 2.2) auf.

Nach der Erzeugung des Alphateilchens durch den neutroneninduzierten Lithiumzerfall,

⁵Unix Programm zur Berechnung der "Stopping Power" und Reichweiten von Ionen in Materie - Basiert auf den Ziegler Tabellen [ZIE]

verlässt es die Probe mit der Dicke d und durchdringt, je nach Emissionsrichtung, den Probenhalter. Dieser muss daher so konzipiert werden, dass das Teilchen möglichst wenig Energie verliert. In Abschnitt 4.1 wird beschrieben, wie der Gewebeprobenhalter aufgebaut ist. Er wurde so weit optimiert, dass er für die Alphateilchen lediglich eine Dicke von $0.03 \frac{mg}{cm^2}$ besitzt. Um vom Target zum Detektor zu gelangen, legen die Teilchen in der Targetkammer eine Strecke von $17.5 mm$ zurück. Um einerseits den Energieverlust zu minimieren, andererseits aber eine ausreichende Durchschlagsfestigkeit für die Detektorspannung zu gewährleisten wurde ein Kammerdruck von ca. $50 mbar$ (siehe Kapitel 5) gewählt. Diese Strecke entspricht einer effektiven Weglänge von $0.13 \frac{mg}{cm^2}$. Bevor die Teilchen ihre Restenergie im Detektor deponieren, durchqueren sie zuvor eine ca. $35 nm \approx 0.01 \frac{mg}{cm^2}$ dicke Anti-Reflexionsschicht (siehe Unterabschnitt 3.3.1), die den Detektor für optische Anwendungen optimiert.

Die minimale, im Detektor deponierte, Energie soll über dem niederenergetischen Untergrund liegen, da dieser eine hohe Erzeugungsrate besitzt. Aufgrund dessen kann es zu zufälligen Koinzidenzen mit α - oder Tritiumteilchen kommen, wodurch hochenergetische Untergrundeinträge erzeugt werden (siehe Unterabschnitt 2.5.1). Fällt die Alphaenergie aufgrund des Energieverlustes in Materie sehr weit ab, können die "echten" Einträge nicht mehr von den Untergrundeinträgen separiert werden und die Nachweisgrenze für Lithium wird durch den Untergrund limitiert. Aus diesem Grund wurde mit dem Spektrum in Abbildung 5.3 oben, das in Experiment 1 aufgenommen wurde, eine Minimalenergie von $1000 keV$ festgelegt.

Unter Berücksichtigung der obigen Verluste und der Mindestenergie von $1000 keV$, beträgt die maximale Dicke der Gewebeproben $1.3 \frac{mg}{cm^2} - 0.8 \frac{mg}{cm^2} = 0.5 \frac{mg}{cm^2}$ (Kohlenstoff äquivalent). Mit der Dichte von Fettgewebe ($\rho_{Fett} = 0.90 \frac{g}{cm^3}$ [EBF]), die die Dichte des Gehirngewebes am besten beschreibt, ergibt sich eine maximale Dicke der Gewebeproben von $5.6 \mu m$.

Um diese maximal mögliche Dicke zu erhöhen und Neutronenstreuung am Wasser der Proben zu vermindern, werden die Gewebeproben getrocknet (siehe Abschnitt 4.3). Der Massenverlust durch das Trocknen ist sehr unterschiedlich, wie aus Tabelle 4.2 ersichtlich ist. Aus diesem Grund wird bei der Berechnung der maximalen Dicke der Gewebeproben ein Trocknungsfaktor von drei angenommen, da dieser bei allen Proben sicher erreicht wurde. Durch die Reduktion der Massenbelegung aufgrund der Trocknung, ist also eine Gewebeprobendicke von ca. $15 \mu m$ möglich. Bei dieser Dicke sollten die α - und Tritiumeinträge gerade noch von den Untergrundeinträgen separierbar sein. Um sicherzustellen, dass sich bei ersten Experimenten die α - und Tritiumeinträge eindeutig vom Untergrund abheben, sollte eine Gewebeprobendicke von $d = 10 \mu m$ gewählt werden.

2.5.3. Maximale Messzeit

Zum Nachweis der Lithiumkonzentration in einer Probe steht in einer endlichen Messzeit nur eine endliche Menge an Neutronen zur Verfügung. Die Messzeit definiert daher die absolute Grenze der Messung am PGAA Messplatz am FRM II.

Für die Reaktionsrate R gilt:

$$R = \phi \sigma n_t^* A d \quad (2.15)$$

wobei ϕ der Neutronenfluss, σ der Neutroneneinfangquerschnitt des ${}^6\text{Li}$ -Kerns, n_t^* die Teilchendichte der ${}^6\text{Li}$ -Kerne der Probe, A die Probenfläche und d deren Dicke ist. Der neutroneninduzierte Zerfall in ein α - und Tritiumteilchen findet nur bei ${}^6\text{Li}$ statt. Die Isotopenhäufigkeit von ${}^6\text{Li}$ in der Natur ist lediglich 7.59% [KNK]. Da man aber an der gesamten Lithiumkonzentration, unabhängig vom jeweiligen Isotop, interessiert ist, muss dieser Faktor mit berücksichtigt werden: $n_t = \frac{n_t^*}{0.0759}$. Wobei n_t die Teilchendichte der Lithiumkerne (${}^{\text{nat}}\text{Li}$) ist. Da im Experiment die Detektoren nicht den gesamten Raumwinkelbereich von 4π abdecken, ist es notwendig die Effizienz $\frac{\Omega}{4\pi} = 1.2\%$ des Detektorsystems zu berücksichtigen (siehe Abschnitt 2.4). Wobei Ω der durch die Detektoren abgedeckte Raumwinkel ist. Damit ergibt sich für Gleichung 2.15:

$$R = \phi \sigma n_t A d \frac{\Omega}{4\pi} 0.0759 \quad (2.16)$$

Für die Flächendichte λ_t des Targetmaterials gilt:

$$\lambda_t = \frac{M n_t d}{N_A}$$

wobei M die molare Masse, N_A die Avogadro-Konstante, n_t die Teilchendichte und $n_t \cdot d$ die Flächenteilchendichte der ${}^{\text{nat}}\text{Li}$ -Kerne beschreibt. Mit der Flächendichte λ_t lässt sich Gleichung 2.16 wie folgt umformen:

$$R = \phi \sigma \frac{\lambda_t}{M} N_A A \frac{\Omega}{4\pi} 0.0759 \quad (2.17)$$

Damit die Messung ein Ergebnis mit einem statistischen Fehler von 10% nicht überschreitet, was an dieser Stelle als Messgrenze definiert wird, werden mindestens 100 gemessene Lithiumereignisse benötigt. Wenn man sich weiter eine maximale Messzeit von 24 h vorgibt, ergibt das eine aufgenommene Reaktionsrate von $R \approx 10^{-3} \frac{1}{s}$. Mit einer Probenfläche von $A = 1 \text{ cm}^2$, dem maximalen thermischen Äquivalent des Neutronenflusses von $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ (siehe Abschnitt 3.2) und dem thermischen Neutroneneinfangquerschnitt $\sigma_{{}^6\text{Li}}(E_n = 25 \text{ meV}) = 940 \text{ barn}$ von ${}^6\text{Li}$ ergibt das eine minimale, noch nachweisbare Lithiumflächendichte von:

$$\lambda_t = \frac{4\pi R M}{0.0759 N_A \phi \sigma A \Omega} = 2.4 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}$$

Wenn die Methode nicht durch andere Faktoren limitiert ist, wie zum Beispiel dem Untergrund, der natürlich auch den statistischen, aber vor allem den systematischen Fehler beeinflusst, eignet sich die koinzidente α - und Tritiummessung zum Nachweis von Lithium bis zu einer Konzentration von:

$$\frac{m_{\text{Li}}}{m_{\text{Probe}}} = \frac{\lambda_t}{d \cdot \rho_{\text{Fett}}} = \frac{2.4 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}}{10 \mu\text{m} \cdot 0.90 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}} = 2.6 \text{ ppb}$$

Die Nachweisgrenze dieser Methode liegt etwa einen Faktor zwei unterhalb der Lithiumkonzentration eines gesunden Menschen (Literaturwert: $5 \frac{ng}{ml}$ [FLM]). Die Bestimmung der Lithiumkonzentration in diesen Gewebeproben sollte somit kein Problem darstellen. Durch weitere Verbesserungen, speziell in der Raumwinkel Akzeptanz, kann diese Nachweisgrenze noch weiter gesenkt werden (siehe Abschnitt 6.3). Besonders Proben von mit Lithium behandelten Personen, deren Lithiumgehalt laut Literatur bis um drei Größenordnungen angehoben wurde, lassen sich mit dieser Methode problemlos vermessen. Bei diesen Proben sollte sogar eine Messzeit von wenigen Minuten ausreichen, um ein Ergebnis mit einem statistischen Fehler unter 10% zu erhalten. Die Nachweisgrenze der Lithiummessung mittels dem koinzidenten α - und Tritiumnachweis ist mit der Nachweisgrenze der Atom-Absorptions-Spektroskopie ($0.5 \frac{ng}{cm^3}$ [FLM]), die die Standardmethode zum Lithiumnachweis in organischem Gewebe darstellt, vergleichbar (siehe Kapitel 1). Mit der AAS können jedoch lediglich integrale Messungen durchgeführt werden, bei denen die Gewebestruktur zerstört wird. Während sich diese Methode für den orts aufgelösten Nachweis kleinster Lithiumstrukturen im Gehirn eignet. Folgedessen eignet sich diese Methode, um eine Lithiumkarte des menschlichen Gehirns zu erstellen. Diese soll dazu beitragen, die genaue Wirkungsweise und den Wirkungsort des Lithiums zu verstehen.

3. Versuchsaufbau

Die Experimente zur Entwicklung des koinzidenten α - und Tritiumnachweises, wurden am Messplatz der Prompten Gamma-Strahl-Aktivierungs-Analyse (kurz PGAA) im Forschungsreaktor FRM II durchgeführt. Dieser Messplatz nutzt kalte Neutronen ($E_n = 1.83 \text{ meV}$), die mit Hilfe eines Sekundärmoderators (Kalte Quelle) weiter gekühlt werden und über Neutronenleiter zum Messplatz gelangen. Bei den Experimenten wurden lediglich der Neutronenstrahl und die Probenkammer des PGAA-Messplatzes verwendet. Der restliche Detektoraufbau und die Probenhalter wurden speziell an das einzigartige Reaktionsmuster des neutroneninduzierten Lithiumzerfalls angepasst. Insgesamt wurden drei Detektorsysteme für zwei Experimente entwickelt, wobei in einem die Effizienz maximiert und in einem anderen eine Ortsauflösung der Proben realisiert wurde.

3.1. Die Neutronenquelle FRM II [FRM]

Der FRM II ist ein Strahlrohr-Reaktor mit einer thermischen Nennleistung von 20 MW. Der Reaktor dient der Erzeugung langsamer Neutronen, die über Strahlrohre und Neutronenleiter zu den Experimenten gelangen. Das Konzept basiert auf dem Einsatz eines Kompaktkerns, der ein einziges zylinderförmiges Brennelement beinhaltet, das 113 Brennstoffplatten enthält. Das Brennelement hat einen Anreicherungsgrad von 93% ^{235}U und enthält ca. 8 kg Uran. Mit dieser Uranmenge ist ein Dauerbetrieb von 60 Tagen möglich. Das Brennelement befindet sich im Zentrum eines mit 3.9 m^3 Schwerwasser D_2O gefüllten Moderatortanks (siehe Abbildung 3.1 links¹). Aufgrund der kompakten Bauweise des Brennelements verlassen mehr als 70% der Neutronen die Uranzone und die thermische ($E_n = 25 \text{ meV}$) Neutronenflussdichte nimmt im Abstand von 12 cm ein Maximum von $8 \cdot 10^{14} \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ an. Hier beginnen die meisten der 13 Strahlrohre, die aus einer neutronentransparenten Aluminiumlegierung bestehen. Im Reaktor sind die Strahlrohre tangential zum Brennelement angeordnet (siehe Abbildung 3.1 rechts²), wodurch der Anteil schneller Neutronen im Strahl drastisch reduziert wird. In die Strahlrohre sind Kollimatoren eingesetzt, die Größe, Form und Divergenz des Neutronenstrahls festlegen. Diese Kollimatoren bestehen aus einem neutronenundurchlässigem Material und lassen eine Neutronenstrahlgröße von etwa $120 \times 80 \text{ mm}^2$ zu. Geregelt wird der Reaktor über einen zentralen Regelstab aus Hafnium im Inneren des Brennelements, der zur Kompensation des Abbrandes während der 60 Tage nach oben herausgezogen wird. Dieser Regelstab, der den Reak-

¹Foto aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/technik/reaktor/bilder/index.html>) (26.12.2009)

²Originalgrafik aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/technik/reaktor/strahlrohre/index.html>) (26.12.2009)

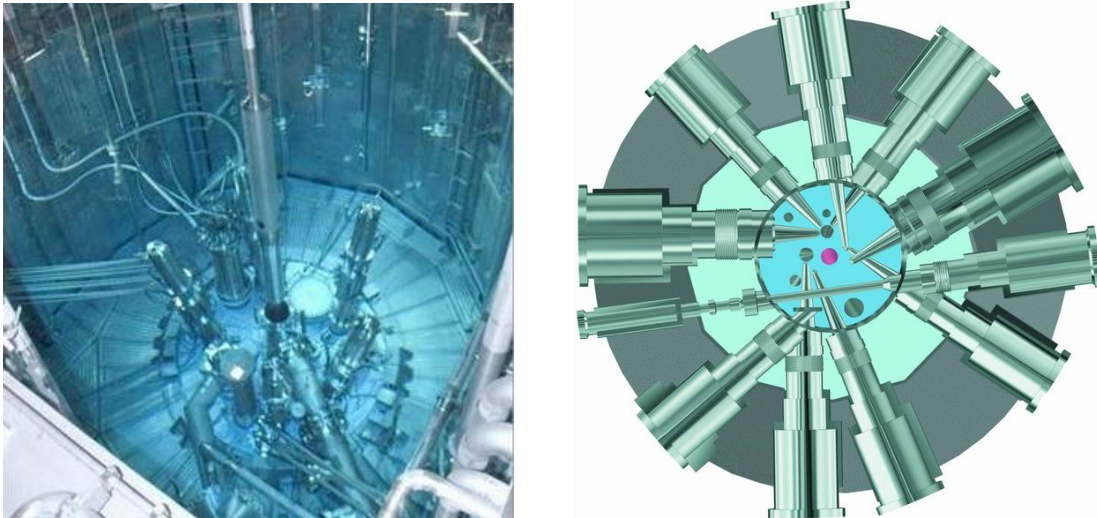


Abbildung 3.1.: Links: Moderatortank vom Beckenrand. Bei Betrieb ist das Becken mit normalem Wasser H_2O geflutet².
Rechts: Horizontaler Schnitt durch das Reaktorbecken. Im Zentrum befindet sich das Brennelement (rot)¹.

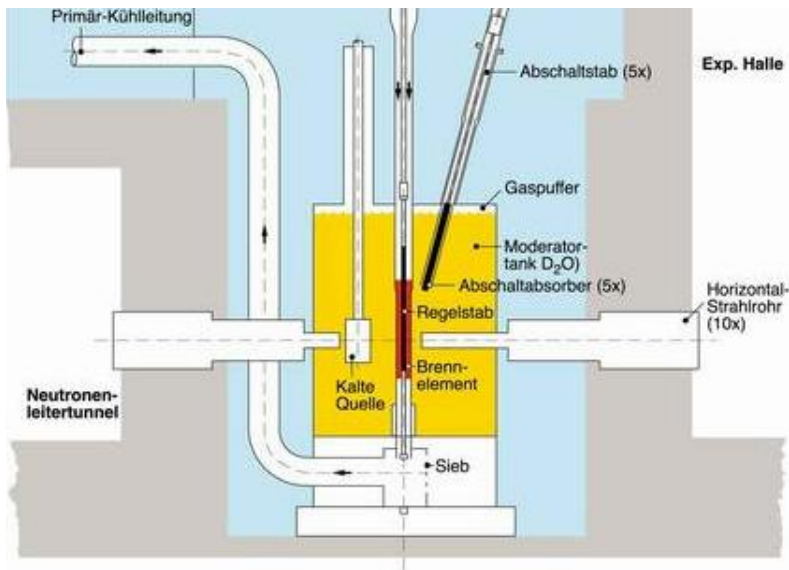


Abbildung 3.2.: Die aktiven Sicherheitseinrichtungen, Kühlkreislauf und Abschalt-system sorgen für den sicheren Betrieb des FRM II. Der Kühlkreislauf ist dabei in den primären, sekundären und tertiären Kreislauf unterteilt. Das Abschalt-system besteht aus den zwei voneinander unabhängigen Systemen, dem zentralen Regelstab und den fünf zusätzlichen Abschaltstäben³.

tor im kritischen Zustand hält, kann bei Bedarf den Reaktor abschalten. Zusätzlich gibt es noch ein unabhängiges System aus fünf Hafnium-Abschaltstäben im Moderatortank, die den Reaktor im Notfall ebenfalls unterkritisch machen (siehe Abbildung 3.2³). Die Kühlung erfolgt mit einem Durchsatz von $1000 \frac{m^3}{h}$ mittels voll entsalztem, 37° warmen leichtem Wasser H_2O (Primärkreislauf), das sich beim Durchströmen des Brennelements auf ca. 53° erhitzt (siehe Abbildung 3.2). Insgesamt wird in drei Kreisläufen gekühlt, wobei nur das tertiäre System Wärme an die Atmosphäre abgibt.

3.1.1. Die Kalte Quelle

Fast für die Hälfte aller Experimente am FRM II, wie auch bei diesem Experiment, werden kalte Neutronen benötigt. In weiteren 40% aller Fälle finden thermische Neutronen Anwendung. Der Rest fällt auf sehr kalte, ultrakalte, heiße und schnelle Neutronen (bei der Spaltung entstehende Neutronen). In Tabelle 3.1 sind die Energiebereiche, Geschwindigkeiten und Wellenlängen der unterschiedlichen Neutronenarten zusammengefasst [FVT]. Die Energie der Neutronen E_n am Reaktorkern ist über mehr als 10 Zehnerpotenzen verteilt. Um im jeweiligen Energiebereich eine möglichst hohe Neutronenflussdichte zu erhalten, zeigen einige Strahlrohre auf sogenannte Energiewandler, dessen Aufgabe es ist, die Neutronenenergie den experimentellen Anforderungen anzupassen. Durch diese Nachmoderation wird das Flussmaximum zu niedrigeren Energien (Kalte Quelle) oder zu höheren Energien (Heiße Quelle) verschoben. Abbildung 3.4 links⁴ zeigt das Neutronspektrum mit und ohne Sekundärmoderation.

Die Kalte Quelle erzeugt ein Spektrum niederenergetischer Neutronen, der einer Maxwell-Verteilung, zentriert um etwa 5 meV , zugrunde liegt. Dieser Zusatzmoderator besteht aus ca. 16 l flüssigem, 25 K kaltem Deuterium D_2 . Das D_2 wird durch Neutronenmoderation aufgeheizt. Der entstehende Deuteriumdampf wird mit einem Durchfluss von $15 \frac{g}{s}$ im Wärmetauscher (Kühlleistung: 5 kW), der mit flüssigem Helium gekühlt wird, wieder

Neutronenart	Energie E in eV	Geschwindigkeit v in $\frac{m}{s}$	Wellenlänge λ in \AA
Ultrakalt (UCN)	$1 \cdot 10^{-9} - 3 \cdot 10^{-7}$	< 7	> 500
Sehr kalt (VCN)	$23 \cdot 10^{-7} - 5 \cdot 10^{-5}$	$7 - 100$	> 40
Kalt (CN)	$5 \cdot 10^{-5} - 10 \cdot 10^{-3}$	$100 - 1400$	$40 - 3$
Thermisch	$25 \cdot 10^{-3}$	2200	2
Epithermisch / Heiß	$0.1 - 1$	$4400 - 14 \cdot 10^3$	$1 - 0.3$
Schnell	> 1	$> 14 \cdot 10^3$	< 0.3

Tabelle 3.1.: Neutronenarten mit zugehörigen Energieintervallen, Geschwindigkeiten und Wellenlängen [FVT].

³Originalgrafik aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/technik/reaktor/brennelement/index.html>) (26.12.2009)

⁴Diagramm aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/technik/sekundaere-strahlquellen/index.html>) (26.12.2009)

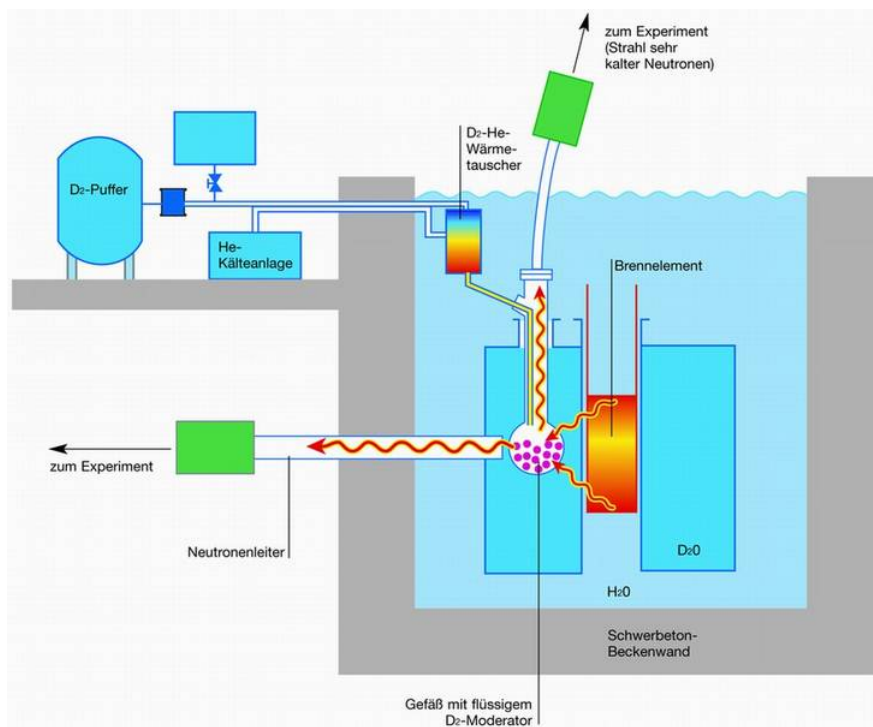


Abbildung 3.3.: Schema der Kalten Quelle am FRM II⁴.

kondensiert. Das Moderatorgefäß besteht aus Zirkaloy und einer Aluminiumlegierung, das ihn widerstandsfähig und neutronendurchlässig macht. Ein vertikales Strahlrohr taucht direkt in das Moderatorgefäß ein und ermöglicht die Gewinnung von sehr kalten Neutronen mit einer mittleren Energie von ca. $200 \mu eV$ (siehe Abbildung 3.3⁵). Die mittlere Flussdichte in der Kalten Quelle beträgt etwa $9.1 \cdot 10^{13} \frac{1}{cm^2 s}$.

3.1.2. Die Neutronenleiter

Die im Brennelement freigesetzten Neutronen werden mittels Neutronenleiter, den bis zu $100 m$ entfernten Experimenten in der Experimentierhalle und der Neutronenleiterhalle, zugeführt. Abbildung 3.5 zeigt den Grundriss des Reaktorgebäudes mit den umliegenden Hallen. Die Ziffern zeigen die Standorte der Messstationen, an denen die Neutronen unabhängig von den anderen Messplätzen zur Verfügung stehen. Die Neutronenleiter schließen sich den Strahlrohren an, die alleine für diese großen Distanzen nicht geeignet wären, da bei großen Entfernungen die Strahldivergenz sehr groß und damit die Intensität des Neutronenstrahls sehr klein wird. Die Neutronenstrahlführung in den Neutronenleitern basiert auf dem Prinzip der Totalreflexion und der Bragg-Reflexion. Bei der Totalreflexion werden langsame Neutronen an einer dünnen Schicht aus Nickelmetall re-

⁵Originalgrafik aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/technik/sekundaere-strahlquellen/kalte-quelle/index.html>) (26.12.2009)

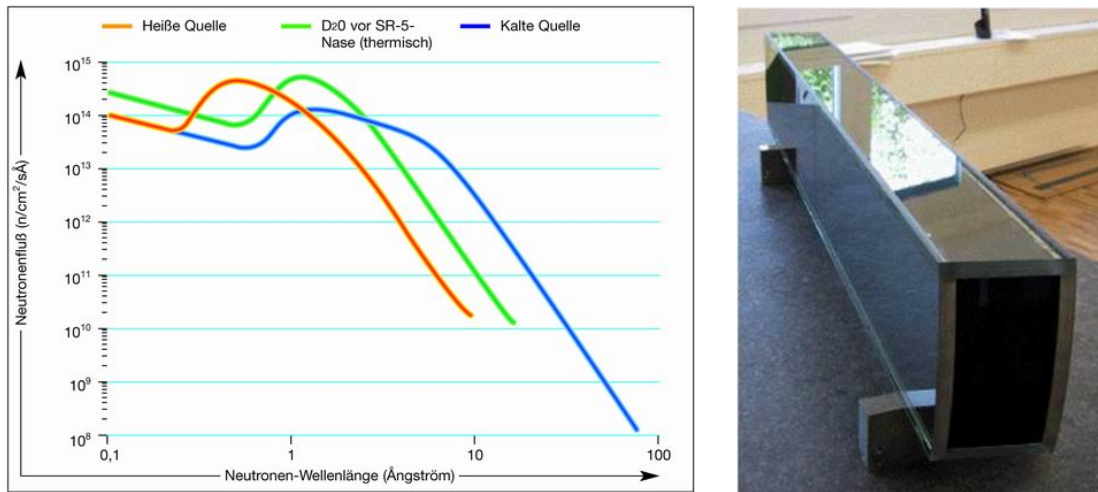


Abbildung 3.4.: Links: Neutronenspektrum an den Sekundärquellen (Rot, Blau) und ohne Sekundärquellen (Grün)⁵.

Rechts: Neutronenleiterrohr, das die Neutronen zu den Experimenten führt. Das beschichtete Glas des Neutronenleiters kann Neutronen zu mehr als 100 m vom Reaktor entfernte Experimente leiten⁶.

flektiert, sofern die Normalkomponente der Neutronengeschwindigkeit v_{\perp} zur Oberfläche kleiner als $\sqrt{\frac{2U_F}{m_n}}$ ist. U_F bezeichnet dabei das Fermipotential des reflektierenden Materials ($U_F(^{58}\text{Ni}) = 335 \text{ neV}$ [FVT]). Damit eine Totalreflexion möglich ist, müssen die Neutronen also einen Grenzwinkel, mit dem sie auf die Reflexionsoberfläche treffen, unterschreiten. Dieser Grenzwinkel beträgt bei ^{58}Ni und kalten Neutronen ($E_n = 5 \text{ meV}$) etwa 0.5° . Bei der Bragg-Reflexion an einem Einkristall können Neutronen zwar um größere Winkel, aber nur in bestimmten, sehr kleinen Energieintervallen abgelenkt werden. Dabei kommen sogenannte Superspiegel zum Einsatz, die aus Vielschichten mit unterschiedlichen Gitterebenenabständen aufgebaut sind. Mit diesen Superspiegeln lässt sich der Energiebereich, in dem reflektiert wird, vergrößern und störende Neutronenenergien herausfiltern. Die Reflexionsschichten werden auf sehr glatte und ebene Glasplatten aufgebracht. Sie werden mit der sog. "m"-Nummer charakterisiert, wobei mit steigender Nummer ebenfalls der Verspiegelungsgrad steigt. Am FRM II werden ausschließlich $m = 3$ (aktueller Standard) Superspiegel eingesetzt. Die beschichteten Glasplatten werden zu rechteckigen Rohren zusammengefügt und evakuiert. Der Querschnitt dieser Neutronenleiter liegt bei einigen Quadratzentimeter (siehe Abbildung 3.4 rechts⁶). Durch Krümmung der Neutronenleiterbahn (typischer Radius einige Kilometer) kann bei hinreichender Länge (20 m bis 50 m) ein annähernd monoenergetischer Neutronenstrahl erzeugt werden.

⁶Foto aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/technik/strahlfuehrung-der-neutronen/neutronenleiter/index.html>) (26.12.2009)

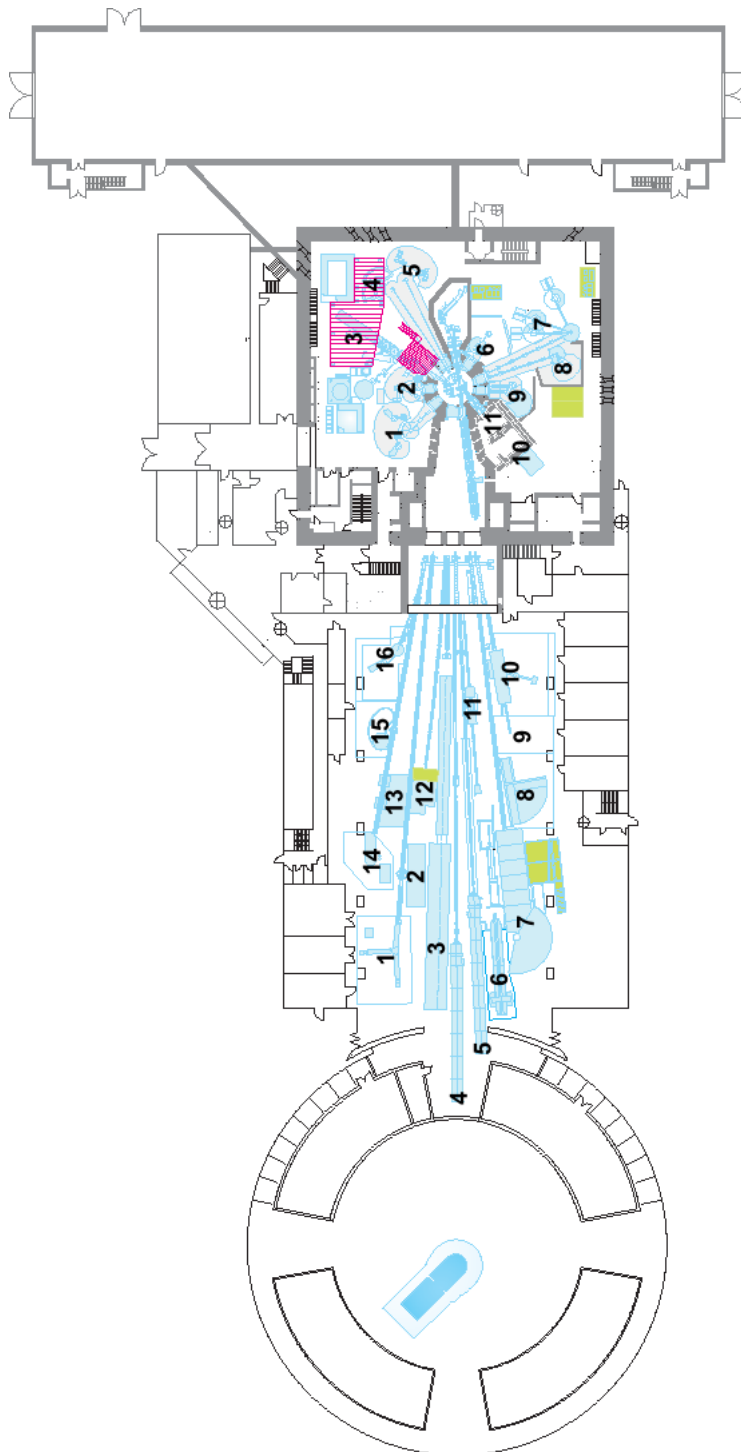


Abbildung 3.5.: Übersicht über das Reaktorgebäude des FRM II. Die Nummern im Grundriss kennzeichnen die einzelnen Messstationen. Der PGAA-Messplatz trägt die Ziffer 12 [PGA].

3.2. Die PGAA-Messstation [PGA]

Die Messstation der Prompten Gamma-Strahl-Aktivierungs-Analyse (Nr. 12 in Abbildung 3.5⁷), an der diese Versuchsreihe durchgeführt wurde, befindet sich in der Neutronenleiterhalle. Abbildung 3.6 zeigt ein Foto der Neutronenleiterhalle und der PGAA-Messstation. Der Messaufbau befindet sich in einem Bunker, um die, bei der Messung austretende, Strahlung abzuschirmen. Die Kontrollstation des PGAA liegt in einer Kabine über dem Betonbunker. Die blaue Leiterbahn, die in den Bunker des PGAA mündet, beinhaltet den mit Blei ummantelten Neutronenleiter. Der Krümmungsradius der 52 m langen Neutronenleiterbahn, der deutlich zu erkennen ist, bedingt mindestens eine Reflexion der Neutronen an den Leiterspiegeln. Durch Reflexionsverluste reduziert sich die mittlere Neutronenenergie von 5 meV (nach der Kalten Quelle) auf 1.83 meV (Wellenlänge $\lambda = 6.7\text{\AA}$). Durch die Absenkung der mittleren Energie wird ebenfalls der Neutronenfluss reduziert. Um dennoch einen möglichst hohen Fluss zu erreichen, sind die



Abbildung 3.6.: PGAA-Messstation aus der Sicht des Reaktorkernes. Die Krümmung des Neutronenleiters (blaue Bahn) ist sehr gut zu erkennen. Die annähernd parallelen Bahnen sind ebenfalls Neutronenleiterbahnen, die Neutronen zu anderen Experimenten führen.

⁷Originalgrafik aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/wissenschaftliche-nutzung/index.html>) (26.12.2009)

letzten 7 m der Neutronenleiterbahn elliptisch fokussierend. Das Strahlprofil besitzt am Ende der Neutronenstrahlführung eine Größe von $28 \times 62 \text{ mm}^2$. Der gemessene Neutronenfluss beträgt dort etwa $\phi = 6 \cdot 10^9 \pm 6\% \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$. Der Neutronenfluss ϕ wird am PGAA als thermisches Äquivalent angegeben. Dabei bedeutet thermisches Äquivalent, dass der kalte Neutronenfluss mit Gleichung 2.3 (siehe Abschnitt 2.3) auf ein Wirkungsquerschnitt äquivalent von thermische Neutronen umgerechnet wurde, um bei Berechnungen den thermischen Einfangquerschnitt verwenden zu können.

Abbildung 3.7 oben⁸ zeigt schematisch den Aufbau der PGAA. Der Neutronenstrahl tritt im Neutronenleiter von rechts in den PGAA-Bunker ein. In Abbildung 3.7 unten⁹ ist auf den PGAA-Messplatz gezoomt. Der Aufbau ist gespiegelt gegenüber der oberen Abbildung dargestellt. Die blaue Leiterbahn (Elliptical guide) stellt das Ende der 52 m langen, außerhalb dem PGAA-Bunker liegenden, Neutronenleiterbahn dar, die ebenfalls auf dem Foto in Abbildung 3.6 zu sehen ist. Dieser Leiterbahn schließt sich eine elliptisch fokussierende Nase an (rot), die ebenfalls aus neutronenleitenden Spiegeln gefertigt wurde und mit einer Bleiabschirmung (in Abbildung 3.7 die grünen und blauen Flächen hinter der elliptischen Nase) umgeben ist. Während die blaue Leiterbahn evakuiert ist, ist die elliptische Nase mit Luft bei Umgebungsdruck gefüllt. Der Zweck der Nase ist es, den Querschnitt des Neutronenstrahls zu verkleinern und damit den Neutronenfluss zu erhöhen. Durch diese Fokussierung wird ein Neutronenfluss von $2 \cdot 10^{10} \pm 6\% \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ mit einem Strahlprofil von $4 \times 11 \text{ mm}^2$ am Probenort erreicht. Wenn die Messungen es erfordern, kann diese Nase entfernt werden. In diesem Fall besitzt der Neutronenstrahl am Probenort eine Größe von $14 \times 38 \text{ mm}^2$ und der Neutronenfluss beträgt $\phi = 7.3 \cdot 10^9 \pm 6\% \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$. Die Messungen in dieser Versuchsreihe wurde mit der elliptischen Nase durchgeführt, um einen möglichst hohen Neutronenfluss am Probenort zu erreichen. Abgeschlossen wird die Nase durch einen Flansch, an dem sich unterschiedliche Absorber befestigen lassen. Solche Neutronenabsorber sind nötig, da aufgrund der elliptischen Fokussierung Teile des Neutronenstrahls stark gestreut werden. Folglich bildet sich ein großer Neutronenhalo, der die Materie in der Probenkammer aktiviert. Um diese Aktivierung zu minimieren, wurde bei diesen Experimenten ein konischer Absorber aus einem ${}^6\text{LiF}$ -Polymer verwendet. Abbildung 3.8 zeigt diesen Kollimator, der mit einem Aluminium-Klebeband am Ende des Neutronenleiters fixiert wurde. Mit einfachsten Mitteln konnte hier ein sehr gutes Ergebnis erreicht werden. Um einen schnellen Umbau verschiedener Absorber zu ermöglichen, befindet sich der gesamte Messaufbau auf Schienen. Nach dem Absorber legen die Neutronen wenige mm ohne Neutronenleiter in der Umgebungsluft zurück. Anschließend treten sie durch ein Fenster, das mit einer 50 μm dicken Zirkoniumfolie abgedichtet wurde, in die Probenkammer (schmaler grün-blauer Zylinder in Abbildung 3.7) ein, die den Detektorsetup mit dem Probenhalter beinhaltet. Der maximale, am Probenort mögliche, Neutronenfluss von $\phi = 2 \cdot 10^{10} \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ kann mit drei unterschiedlichen Abschwächern, die individuell kombinierbar sind, bis auf $\phi = 5 \cdot 10^8 \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ reduziert werden. Der im Moment maximal zulässige Neutronenfluss beträgt aufgrund unzureichender Abschirmung ledig-

⁸Originalgrafik aus der Webpage des FRM II (<http://www.frm2.tum.de/wissenschaftliche-nutzung/bestrahlung/pgaa/index.html>) (26.12.2009)

⁹Originalgrafik von Lea Canella

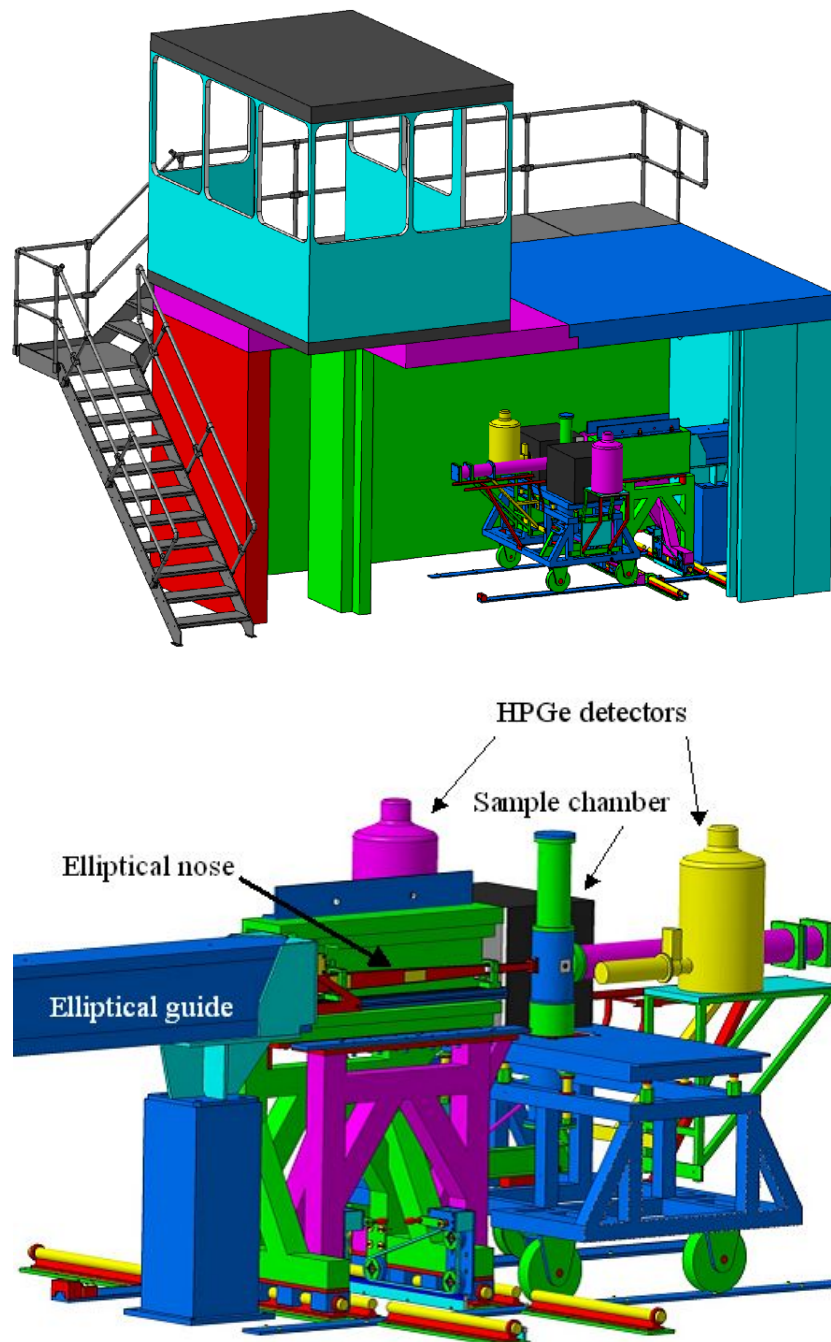


Abbildung 3.7.: Oben: PGAA Kontrollstation mit dem darunterliegenden Bunker. Der Neutronenstrahl tritt von rechts in den PGAA-Bunker ein⁸.
 Unten: Zoom auf den Messplatz im Bunker. Der Aufbau ist gegenüber der obigen Abbildung gespiegelt⁹.

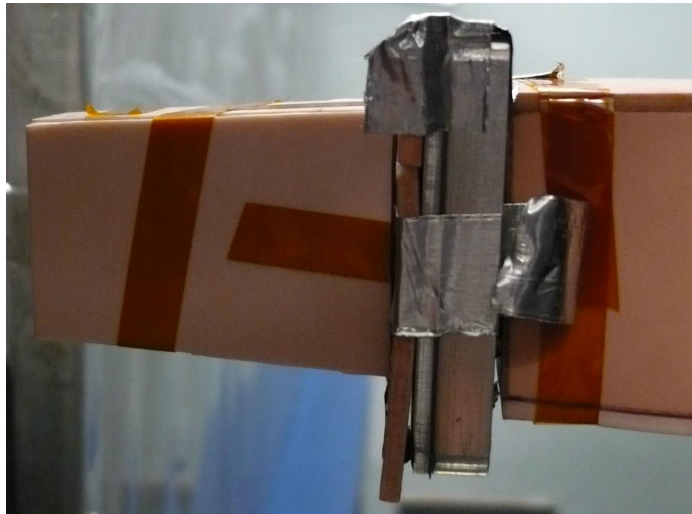


Abbildung 3.8.: Die konische Blende aus einem ${}^6\text{LiF}$ -Polymer schirmt gestreute Neutronen außerhalb der aktiven Fläche von $8 \times 18 \text{ mm}^2$ ab.

lich $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$.

Der Probenkammer schließt sich der sogenannte "Beamstop" aus Borcarbid (CB_4) an, um den Neutronenstrahl durch die Reaktion ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$ restlos zu absorbieren. Bei der Neutronenabsorption entsteht außerdem β - und γ -Strahlung. Um die Beamstop-Strahlungsquelle so weit wie möglich von den Germaniumdetektoren der PGAA (pink- und gelbfarbenen Zylinder in Abbildung 3.7), die bei diesen Experimenten keine Anwendung finden, zu entfernen, wurde der Beamstop um etwa ein Meter nach hinten verlagert. Der Beamstop ist mit der Probenkammer über ein horizontales Rohr verbunden (pink dargestellt in Abbildung 3.7 unten). Durch diese "T"-förmige Probenkammer-Beamstop-Konstruktion schützt die Bleiabschirmung der Probenkammer (schwarze Würfel in Abbildung 3.7 oben und unten) einen Germaniumdetektor der PGAA (linker Detektor in Abbildung 3.7 unten) vor der Beamstop-Strahlung. Der andere Detektor wird mit einer separaten Bleiabschirmung, die auf dem virtuellen Bild nicht zu sehen ist, vor der Beamstop-Strahlung geschützt.

3.2.1. Probenkammer

Die Probenkammer besteht aus einem zylinderförmigen Aluminiumrohr, das einen Innendurchmesser von 111 mm und eine Gesamthöhe von ca. 1 m besitzt (grün- blaufarbener Zylinder in Abbildung 3.7 unten). Auf halber Höhe verengt sie sich um ca. 1 mm . Auf diese Stufe kann ein Schienensystem aus Aluminium gesetzt werden, das die sogenannte Targetleiter mit den sechs Messpositionen führt. Das Schienensystem wurde so konstruiert, dass die Front der PTFE-Leiter gegenüber dem Neutronenstrahlquerschnitt um $\theta = 45^\circ$ verdreht ist. Abbildung 3.14 links zeigt einen Schnitt durch die Probenkam-

mer (braun) mit dem Schienensystem (grau) und der Targetleiter (cyan) aus PTFE mit den sechs Messpositionen. In jeder dieser sechs Messpositionen kann ein quadratischer PTFE-Rahmen mit Innenspannweite von 50 mm und Rahmenstärke von $8 \times 8\text{ mm}^2$ eingesetzt werden (weiß in Abbildung 3.14 rechts). Am Grund der Probenkammer ist ein Elektromotor integriert, mit dem die Targetleiter vertikal verfahrbar ist. Die automatische Höhensteuerung, die aus der Kontrollstation des PGAA möglich ist, erlaubt den Probenwechsel während des Betriebes.

Die Probenkammer ist mit einem ${}^6\text{LiF}$ Polymer ausgekleidet, das durch die Reaktion ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ verhindert, dass gestreute Neutronen aus der Probenkammer austreten. Diese ${}^6\text{LiF}$ Abschirmung ist für diese Versuchsreihe problematisch (siehe Unterabschnitt 2.5.1), da sie bei Neutronenkontakt die gleichen Teilchen erzeugt, die in den Experimenten nachgewiesen werden sollen. Um diese Untergrundteilchen abzuschirmen, wurde ein 0.1 mm dicker PTFE-Schirm um die Detektoranordnung gespannt (siehe Unterabschnitt 3.3.2). Eine dicke Bleiabschirmung um die Probenkammer und den Neutronenleiter verhindert das Austreten von Sekundärstrahlung.

Um Untergrundreaktionen der Neutronen mit dem Luftstickstoff und den Energieverlust der Teilchen in der Luft zu minimieren, ist an die Probenkammer eine Vakuumpumpe angeschlossen. Mit dieser Pumpe kann in der Probenkammer und dem horizontalen Beamstoprohr ein Unterdruck bis in den $m\text{bar}$ -Bereich erzeugt werden.

3.2.2. Neutronenstrahlprofil

Um die Verteilung der Neutronen am Targetort kennen zu lernen, wurden während der Experimente einige Aufnahmen des Neutronenstrahlprofils mit einer $57 \times 76\text{ mm}^2$ großen photoempfindlichen Platte gemacht. Die Photoplatte wurde dazu jeweils ca. 20 s mit einem Neutronenfluss von $\phi = 2 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ belichtet. Abbildung 3.9 zeigt das Strahlprofil aus einer dieser Aufnahmen. Um die Dimensionen des Neutronenstrahls zu verdeutlichen wurde ein Pfeil, dessen Länge 5 mm beträgt, mit abgebildet. Das Bild gibt ausschließlich Auskunft über das Strahlprofil. Die Information über die absolute Intensität des Neutronenstrahls ist nur sehr begrenzt, da die Skalierung der Schwärzung nicht bekannt ist. Folglich kann mit diesem Bild keine Aussage über den absoluten Fluss des Neutronenstrahls getroffen werden.

Das Foto des Neutronenstrahlprofils zeigt das Flussmaximum. Dieser Bereich ist von einem großen Neutronenhalo umgeben, da der ${}^6\text{LiF}$ -Kollimator (siehe Abbildung 3.8) nur bedingt die Divergenz des Neutronenstrahls einschränkt. Zusätzlich wird der Neutronenstrahl durch elastische Streuung an der Luft wieder aufgeweitet. Dieser Halo ist aufgrund der kurzen Belichtungszeit nicht zu sehen. Das Muster in dem Strahlprofil ist ein Interferenzmuster und resultiert aus der Bragg- und Totalreflexion der Neutronen an den Superspiegeln des Neutronenleiters. Unterschiedliche Aufnahmen mit verschiedenen Abschwächerkombinationen zeigten, dass die Abschwächer, mit denen der maximale Neutronenfluss am Probenort reduziert werden kann, das Strahlprofil nicht verändern. Das Neutronenstrahlprofil in Abbildung 3.9 erscheint für die Target Detektoranordnung in Pfeilrichtung gestreckt, da die Targetebene gegenüber der Profilebene um den Win-

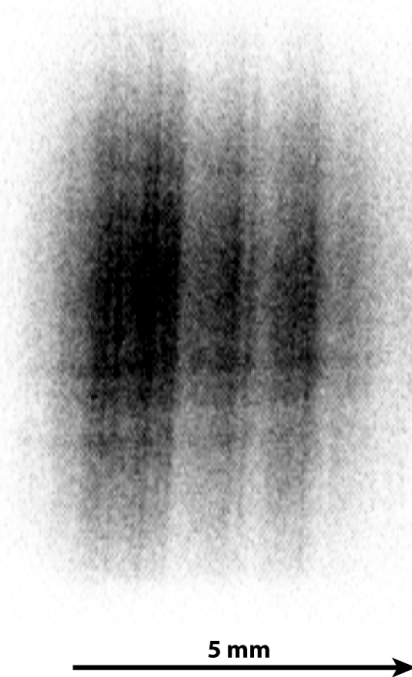


Abbildung 3.9.: Das Profil des Neutronenstrahls am PGAA im FRM II, aufgenommen mit einer photoempfindlichen Platte

kel θ verdreht ist. In Experiment 1 bzw. 2, in dem $\theta = 45^\circ$ bzw. $\theta = 65^\circ$ war (siehe Unterabschnitt 3.3.2), erscheint das Neutronenstrahlprofil also um den Faktor $\sqrt{2}$ bzw. $\frac{1}{\cos(65^\circ)} = 2.366$ breiter als in Abbildung 3.9 dargestellt. Die Höhe des Neutronenstrahls ändert sich durch die Drehung nicht.

3.3. Detektoraufbau

Für Messungen des Lithiumgehalts von Proben finden lediglich der Neutronenstrahl und die Probenkammer mit Targetleiter der PGAA-Station Anwendung. Ansonsten werden eigene Detektoraufbauten verwendet, die der einzigartigen Reaktion der ${}^6\text{Li}$ -Kerne mit den Neutronen angepasst wurden. Insgesamt wurden drei verschiedene Detektorsysteme für zwei Experimente entwickelt. In Experiment 1, das die grundsätzliche Anwendbarkeit dieser Methode klären sollte (siehe Kapitel 5), wurde Detektorsystem *S* (Single) verwendet. Dieser Detektoraufbau besteht aus zwei PIN-Dioden, die jeweils vor und hinter dem Target platziert wurden. Für Experiment 2, an dem bereits erste Messungen der Gewebeproben durchgeführt wurden (siehe Kapitel 5), wurden zwei Detektorsysteme

(P und D) für verschiedene Anwendungen entwickelt. In Detektoraufbau P (PSD) wurden positionsempfindliche Detektoren verwendet. Der Zweck dieses Detektorsystems ist Untergrundquellen aufzuspüren und von den Proben eine ortsabhängige Konzentrationsinformation zu liefern. Detektorsystem D (Double) besteht aus vier PIN-Dioden, um die aktive Fläche des Detektorsystems und damit die Effizienz zu optimieren und eine möglichst kurze Messzeit zu ermöglichen.

3.3.1. Detektoren

Um die grundsätzliche Anwendbarkeit der Methode und mögliche Untergrundprozesse zu studieren, wurde vor der Vermessung der Gewebeprobe ein Testexperiment (Experiment 1) durchgeführt (siehe Abschnitt 5.2). Für dieses Experiment wurde Detektorsystem S entwickelt, das zwei $11 \times 11 \text{ mm}^2$ PIN-Dioden mit einer aktiven Fläche von $10 \times 10 \text{ mm}^2$ verwendet. Eine PIN-Diode (Positive Intrinsic Negative Diode) besitzt zwischen der p- und n-Zone eine hochohmige Schicht aus selbstleitendem (intrinsisch) oder sehr schwach dotiertem Material. Diese i-Schicht vergrößert die Raumladungszone, in der Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband angeregt werden können, gegenüber einem pn-Übergang [WGK]. Durch die an die Anode angelegte Spannung von

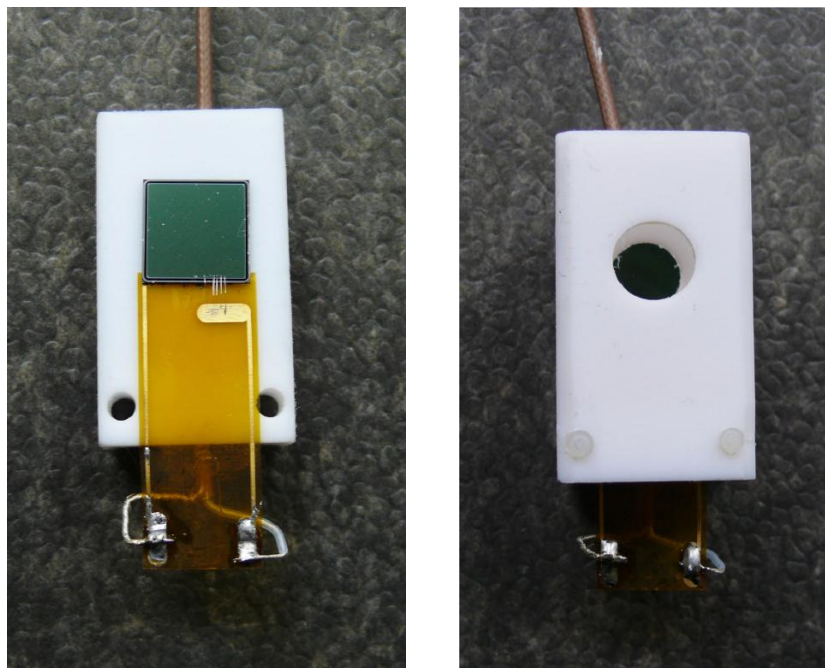


Abbildung 3.10.: Links: Die PIN-Diode mit der flexiblen Kaptonplatine auf der Rückseite des Detektorgehäuses.
Rechts: Die Detektorbox aus PTFE. Durch das Kollimatorloch ($D = 8 \text{ mm}$) ist die Siliziumdiode erkennbar.

$U = -75 V$, wird die Diode in Sperrrichtung betrieben und die Raumladungszone noch weiter vergrößert. Bei einem Teilcheneinschlag entstehen Elektronen-Loch-Paare, die in der Raumladungszone driften und über die Kontakte abfließen. Die PIN-Dioden sind mit Silberleitkleber auf jeweils einer flexiblen, $50 \mu m$ dicken Polyimid-Platine befestigt. Die Detektoroberseite wurde mit einem $25 \mu m$ dicken Aluminiumdraht an eine Leiterbahn der Platine gebondet. Die Platine ist über ein geschirmtes Kabel mit dem Vorverstärker (siehe Abschnitt 3.4) verbunden. Abbildung 3.10 links zeigt die Platine mit dem Detektor. Die Diode liegt auf dem Deckel des Detektorgehäuses (siehe Unterabschnitt 3.3.2), das sie vor Untergrundstrahlung schützt. Abbildung 3.10 rechts zeigt den Detektor im Polytetrafluorethylen-Gehäuse.

Für Experiment 2 wurden zwei alternative Detektorsysteme entwickelt. Im Detektorsystem P wurden PSD (Position Sensitive Detector¹⁰) verwendet, die eine Ortsauflösung der Proben ermöglichen. Die positionsempfindlichen Detektoren werden hauptsächlich für Anwendungen mit UV-Licht im Wellenlängenbereich von $200 - 400 nm$ verwendet. Sie können aber ebenfalls als Teilchendetektoren eingesetzt werden [PDC]. Die PSD bestehen aus Si-PIN-Fotodioden mit konstanten Oberflächenwiderständen (bei Dunkelheit ca. $10 k\Omega$ [DSP]). Auf Ober- und Unterseite des Detektors befinden sich jeweils zwei parallele Kontaktstreifen. Diese stehen orthogonal zueinander (siehe Abbildung 3.11 links¹¹) und erlauben eine Auslese in x - und y -Richtung. Eine nicht leitende, $35 nm$ dicke Anti-Reflexionsschicht auf der Detektorfront optimiert den Detektor für optische Anwendungen [DSP]. Der PSD befindet sich in einem $25 \times 21 mm^2$ [DSP] großen Keramikgehäuse, auf dessen Rückseite acht Anschlusspins (zwei Pins pro Kanal) befestigt sind. Ein Pin pro Kanal wurde zum Transfer der Detektorsignale zum Vorverstärker verwendet. Die restlichen vier Pins dienen der Befestigung des PSD am PTFE-Gehäuse, die den Detektor vor Untergrundstrahlung schützt (siehe Unterabschnitt 3.3.2). Standardmäßig schließt eine Glasscheibe den PSD im Keramikgehäuse ein, die in diesem Fall entfernt wurde, damit die α - und Tritiumteilchen in den Detektor gelangen können. Abbildung 3.11 zeigt rechts den PSD im Keramikgehäuse¹².

Beim Teilcheneinschlag in die $10 \times 10 mm^2$ große, aktive Fläche des Detektors werden in der Raumladungszone Elektronen-Loch-Paare erzeugt, indem Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband angehoben werden (Bandlücke: $1.12 eV$). Die Raumladungszone lässt sich durch Anlegen einer Spannung von $U = -25 V$ an der Anode (x_1 - und x_2 -Kontaktstreifen) bis an die Detektoroberflächen ausdehnen. Die Totschicht, in der keine Elektronenanregung möglich ist, beträgt damit lediglich ca. $100 nm$ [PDC]. Die Elektronen driften zur Kathode (Detektorrückseite), während sich die "Löcher" zur Anode (Detektorfront) bewegen. Durch die homogene Widerstandsschicht ist der abfließende Ladungsträgerstrom indirekt proportional zum Abstand des Einschlagsortes des Teil-

¹⁰2L10UV_SU7 von der Firma SiTek ELECTRO OPTICS (<http://www.sitek.se/>) mit ihrer deutschen Vertretung durch Firma LASER COMPONENTS (<http://www.lasercomponents.com/de/>) (30.11.2009)

¹¹Originalgrafik von der Firma Sitek (<http://www.sitek.se/>) (30.11.2009)

¹²Foto von der Firma Lasercomponents (<http://www.lasercomponents.com/de/produkt/zweidimensionale-silizium-psds/>) (30.11.2009)

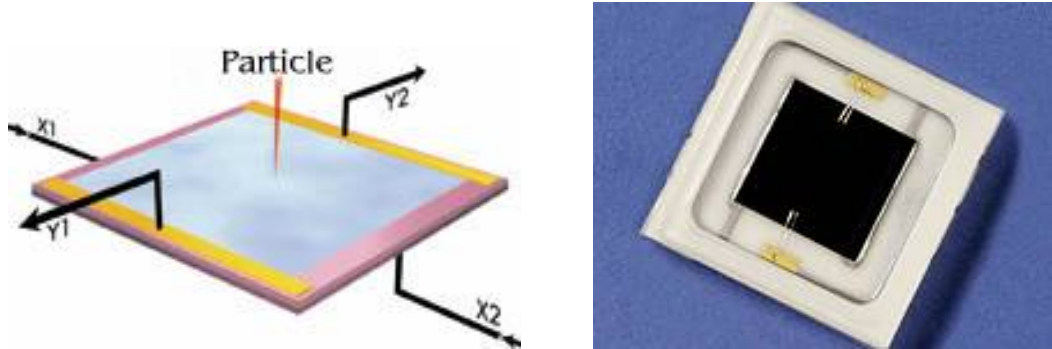


Abbildung 3.11.: Links: Schematische Darstellung eines PSD. Trifft ein Teilchen die aktive Fläche des Detektors, kann über Widerstandsteilung auf Vorder- und Rückseite der Einschlagsort des Teilchens, in beiden Richtungen, bestimmt werden¹¹.

Rechts: PSD im Keramikgehäuse¹².

chens zu den Kontaktstreifen (siehe Abbildung 3.11 links). Die Stromteilung ist bis zu einer Abweichung von maximal $0.8\% \hat{=} 80 \mu m$ [DSP] linear (die Angaben zur Nicht-Linearität beschränken sich auf einen aktiven Bereich von $8 \times 8 mm^2$. Ein $1 mm$ breiter Randstreifen wurde von dieser Angabe ausgeschlossen [PUM]). Aus den Amplituden der Einzelsignale kann der Einschlagsort des Teilchens mit folgenden einfachen Gleichungen rekonstruiert werden:

$$x = \frac{L_x}{2} \cdot \frac{E_{x_1} - E_{x_2}}{E_{x_1} + E_{x_2}} \quad y = \frac{L_y}{2} \cdot \frac{E_{y_1} - E_{y_2}}{E_{y_1} + E_{y_2}} \quad (3.1)$$

Wobei $L_x = 10 mm$ bzw. $L_y = 10 mm$ die Ausdehnung der aktiven Detektorfläche in x - bzw. in y -Richtung ist und E_i , $i \in \{x_1, x_2, y_1, y_2\}$ die gemessene Energie am jeweiligen Detektorkontakt bezeichnet. Die berechnete Position ist unabhängig von der Energie des einfallenden Teilchens. Die Kapazität der Diode beträgt laut Hersteller typischerweise $90 pF$ (maximal $110 pF$) [DSP]. Damit lässt sich eine mittlere Anstiegszeit (10% - 90%) eines Signals zu $\tau = 2 \frac{2.2 R C}{\pi^2} = 401 ns$ berechnen [PUM]. Aufgrund der Proportionalität zum Widerstand ($\tau \propto R$), besitzen die Signale der PSD eine ca. 20 mal längere Anstiegszeit als die der Silizium-Dioden ohne Ortsauflösung. Ferner ist sie, aufgrund der unterschiedlichen Signalamplituden, ortsabhängig. Der Leckstrom wurde vom Hersteller bei einer Raumtemperatur von $23^\circ C$ mit $100 nA$ (maximal $500 nA$) [DSP] angegeben. Bei einer Zunahme der Temperatur um $7^\circ C$ verdoppelt er sich [PUM]. Bei Experiment 2 stieg der Leckstrom zeitweise stark an (siehe Anhang A). Da eine Temperaturerhöhung aufgrund des Neutronenstrahls unwahrscheinlich erscheint, wird der temporäre Leckstromanstieg auf Aufladungseffekte im Guard-Ring-Bereich der Detektoren zurückgeführt (vgl. Anhang A). Das Problem wurde gelöst, indem an die Kathode eine positive Spannung von $U = +25 V$ und nicht, wie vom Hersteller empfohlen, eine negative Spannung an die Anode angelegt wurde.

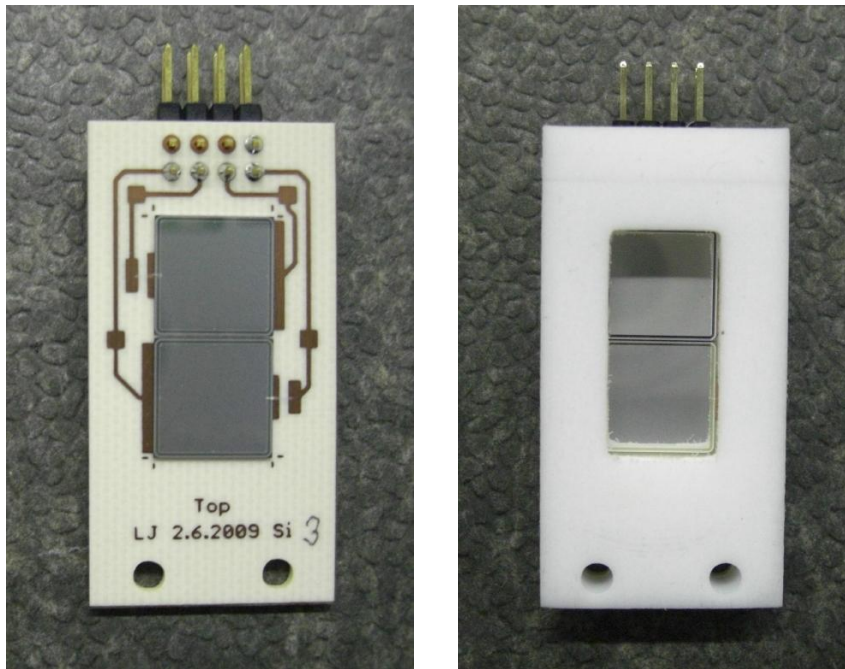


Abbildung 3.12.: Links: Leiterplatte aus FR2 Material mit den beiden Silizium Dioden. Rechts: Detektorbox aus Teflon mit der $10 \times 21 \text{ mm}^2$ großen Blende. Die Leiterplatte schließt das PTFE-Gehäuse ab. Die Verschiebung zwischen Detektor und Blende entsteht durch Parallaxenfehler beim Fotografieren.

Neben Detektorsystem P wurde für Experiment 2 noch ein zweites Detektorsystem (D) entwickelt. Bei dieser Messapparatur wurde die Effizienz optimiert, indem jeweils zwei PIN-Dioden, wie sie auch im Experiment 1 verwendet wurden, in vertikaler Richtung mit möglichst kleinem Abstand auf einer Platine befestigt wurden. Die Detektorfront wurde wieder mit einem $25 \mu\text{m}$ dicken Aluminiumdraht an die Leiterbahnen kontaktiert. Die Leiterplatte wurde mit dem CAD Programm Eagle¹³ konstruiert. Gefertigt wurde sie vom Elektroniklabor aus FR2 Material, denn FR4 Standardmaterial enthält Bor, das sich für diese Messungen nicht eignet (siehe Unterabschnitt 2.5.1). Aufgrund der größeren aktiven Fläche der Detektoren verbessert sich die Effizienz des Detektorsystems D gegenüber dem Detektorsystem P um etwa einen Faktor 2 – 3 (abhängig von der Größe der Proben). Durch die Verringerung des Target-Detektor-Abstandes und der exakten Anpassung der Kollimatoröffnungen an die aktive Fläche des Detektors, konnte die Effizienz noch weiter gesteigert werden (siehe Unterabschnitt 3.3.2). Insgesamt wurde die Effizienz gegenüber Detektorsystem S um etwa einen Faktor 20 verbessert. Abbildung 3.12 links zeigt die Leiterplatte mit den beiden Silizium Dioden.

¹³Eagle 560, Firma Cadsoft (<http://www.cadsoft.de/>)

3.3.2. Mechanische Anordnung

In den beiden, hier gezeigten Experimenten wurden jeweils konzeptionell sehr ähnliche Detektoraufbauten verwendet. Aufbau 1 bildet die Basis von Detektorsystem *S* und fand lediglich bei Experiment 1 Anwendung. Aufbau 2 stellt die Basis von Detektorsystem *P* und *D* dar und wurde für Experiment 2 entwickelt. Ausgangspunkt beider Detektoraufbauten ist der PTFE-Rahmen mit einem Innendurchmesser von 50 mm und Rahmenstärke von $8 \times 8\text{ mm}^2$. Dieser Rahmen kann in eine der sechs Messpositionen der PGAA-Targetleiter eingesetzt werden (siehe Unterabschnitt 3.2.1). In beiden Experimenten wurde jeweils die von oben dritte Messposition der Targetleiter genutzt.

Abbildung 3.13 zeigt Detektorsystem *S* mit dem PTFE-Rahmen aus Richtung des Neutronenstrahls. Das, am PTFE-Rahmen befestigte, Grundgestell wurde so konzipiert, dass der Target-Detektor-Abstand kontinuierlich variiert werden konnte. Dieses Konzept erwies sich jedoch als unvorteilhaft, da es Probleme mit der Arretierung des Detektorgehäuses gab (die Detektorboxen hatten immer einen gewissen Freiheitsgrad in dem sie beweglich waren). Die PIN-Dioden befinden sich jeweils in einem PTFE-Gehäuse mit einer Wandstärke von 1 mm . Durch diese Detektorboxen werden die Detektoren vor der Untergrundstrahlung geschützt, die durch Neutronenaktivierung der umliegenden Materie erzeugt wird. Das Gehäuse besitzt an seiner Front, in der Höhe der PIN-Dioden, eine Kollimatoröffnung ($D = 8\text{ mm}$), durch die α - und Tritiumteilchen aus der Probe zu den Detektoren gelangen können (siehe Abbildung 3.10 rechts). Auf der Rückseite wird

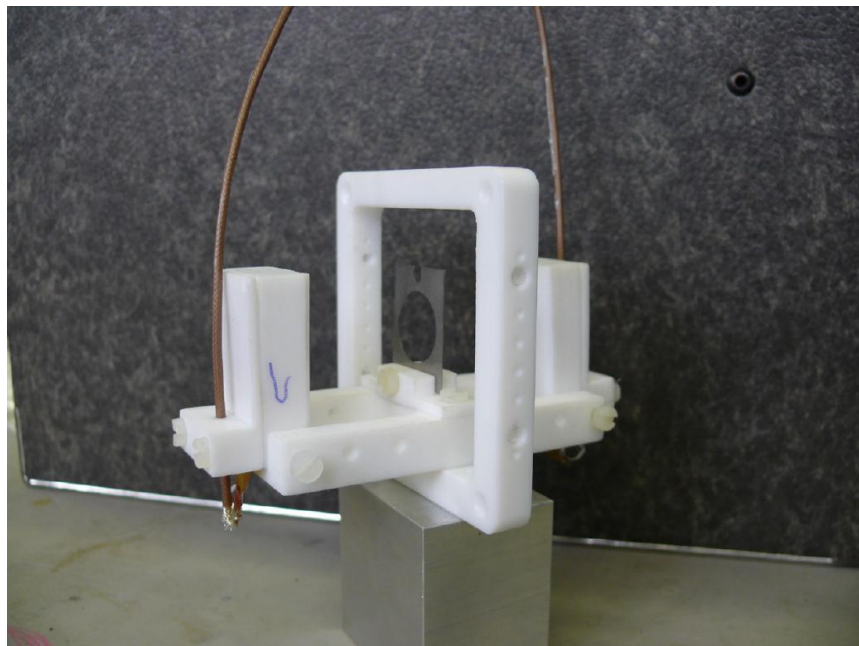


Abbildung 3.13.: Detektor- und Probenhalterung, die in Experiment 1 verwendet wurden, aus der Richtung des Neutronenstrahls.

das Gehäuse durch einen 1 mm dicken Deckel abgeschlossen. Dieser Deckel besitzt ein Nase, in dem eine Kabelführung integriert ist. Diese soll die Detektorkabel fixieren, um die nach unten aus dem Detektorgehäuse stehenden flexiblen Platinen vor Leiterbahnbrüchen zu schützen. Zwischen den beiden Detektoren ist der Targethalter angebracht, der den Aluminiumrahmen mit Targets substrat (siehe Abschnitt 4.1) und Probe zentriert und fixiert. Der gesamte Aufbau wurde so weit wie möglich aus PTFE gefertigt, da sich diese Bauteile sehr nahe am Neutronenstrahl befinden und Polytetrafluorethylen bei Neutronenkontakt nur wenig aktiviert wird (siehe Unterabschnitt 2.5.1).

Für Experiment 2 wurde ein neuer Detektoraufbau entwickelt, der mit wenigen Handgriffen von Detektorsystem *P* in das Detektorsystem *D* umgerüstet werden kann. In diesem Aufbau wurde der Target-Detektor-Abstand von 30 mm, wie er primär in Aufbau 1 verwendet wurde, auf 17.5 mm verringert, da sich in Experiment 1 herausstellte, dass die Detektoren durch den Neutronenstrahl nicht beschädigt werden (siehe Abschnitt 5.2). In Folge dessen verbessert sich die Effizienz von Detektorsystem *P* und *D* gegenüber Detektorsystem *S* um etwa einen Faktor drei. Aufgrund der Verringerung des Target-Detektor-Abstandes wurde es notwendig, den Aufbau um weitere 20° zu drehen, so dass die Targetebene mit der Querschnittsfläche des Neutronenstrahls einen Winkel von $\theta = 65^\circ$ einschließt. Mit dieser Maßnahme wird eine Beschädigung der Detektoren verhindert und eine Aktivierung des Detektorgehäuses minimiert. Abbildung 3.14 links zeigt den schematischen Aufbau der Probenkammer¹⁴ mit dem Schienensystem (hellgrau), in dem die Teflonleiter (cyan) vertikal verfahrbar ist, aus der Sicht des Neutronenstrahls. In der dritten Messposition wurde der PTFE-Rahmen mit Detektorsystem *P* montiert. Rechts wurde auf das Detektorsystem gezoomt. Fast alle Bauteile von Aufbau 2 wurden, wie auch in Aufbau 1, aus Polytetrafluorethylen gefertigt, um Untergrundreaktionen weitgehend zu minimieren (siehe Unterabschnitt 2.5.1). Einzig der Targetrahmen (grau) wurde aus einem 0.2 mm dicken Reinstaluminiumblech gefertigt (siehe Abschnitt 4.1), da er eine höhere Stabilität benötigt. In Experiment 1 stellte sich heraus, dass das Maximum des Neutronenstrahls in horizontaler Richtung um etwa 4 mm von der Mitte der Messposition abweicht. Aus diesem Grund wurde der gesamte Aufbau, mittels Langlöcher im zentralen Bauteil (rot), horizontal variabel gestaltet. Maximal war eine Verschiebung von ± 5 mm möglich. An dem zentralen Bauteil, das an den Polytetrafluorethylen-Rahmen (weiß) geschraubt wurde, werden die Detektorboxen (gelb) befestigt. Die vorstehende Nase am oberen Rand der gelben Gehäuse fungieren als Kabelführung. Die dunkelblaue Blende vor dem Detektorgehäuse schützt den PSD vor Untergrundstrahlung aus Richtung des Targets. Die 10×10 mm² große Öffnung der Blende wurde exakt dem Detektor angepasst, was die Effizienz, gegenüber Detektorsystem *S*, um einen Faktor drei steigert. Folglich besitzt Detektorsystem *P* eine, um knapp eine Größenordnung, höhere Effizienz als Detektorsystem *S*. Der Targethalter (grün) wird auf dem zentralen Bauteil befestigt. Der Aluminiumrahmen (grau) wird mittels eines Klemmklötzchens an dem Targethalter zentriert und fixiert. In Experiment 1 verursachten die α - und Tritiumteilchen aus dem

¹⁴wurde mit Pro/ENGINEER Wildfire 4.0 konstruiert, Firma Parametric Technology Corporation (<http://www.ptc.com/>)

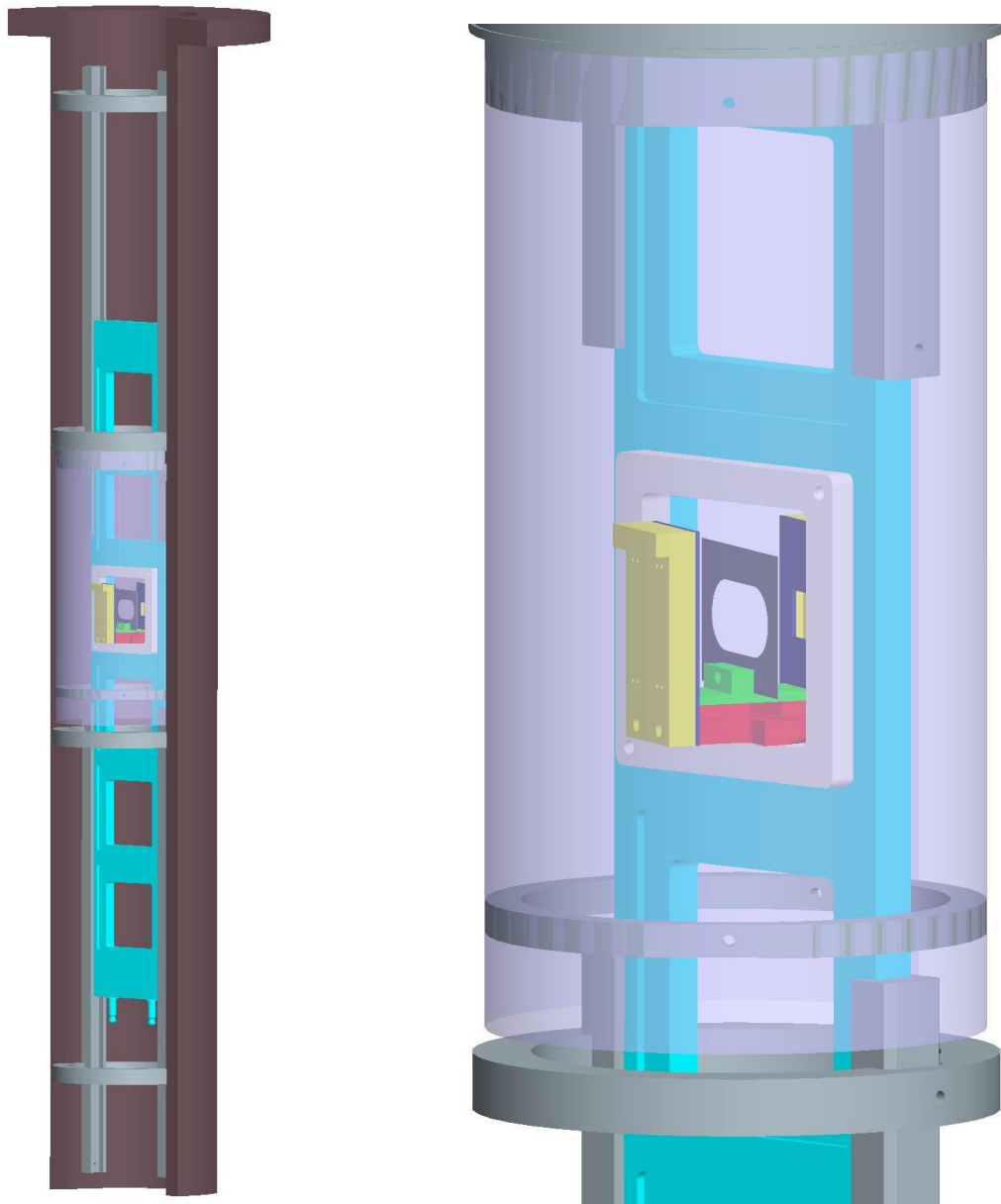


Abbildung 3.14.: Links: PGAA Targetkammer mit Detektorsystem P aus der Sicht des Neutronenstrahls.

Rechts: Detektoraufbau im Detail. Der quadratische Teflonrahmen wurde um 45° zur Neutronenstrahlfront gedreht. Der restliche Aufbau ist um weitere 20° verdreht, so dass die Querschnittsfläche des Neutronenstrahls mit der Targetebene einen Winkel von 65° einschließt¹⁴.

⁶LiF-Polymer der Probenkammerwand (siehe Unterabschnitt 2.5.1) viele hochenergetische Untergrundeinträge in den Spektren (siehe Abbildung 5.3 oben in Abschnitt 5.2). In Anbetracht dessen wurde eine Aluminiumkonstruktion, bestehend aus zwei Ringen mit einem Außendurchmesser von 105 mm, gefertigt. Diese Aluminiumringe spannen um den gesamten Aufbau eine 0.1 mm dicke Polytetrafluorethylenfolie (violetter Überzug in Abbildung 3.14), die unerwünschte α - und Tritiumteilchen aus der Probenkammerwand abschirmt. Um Neutronenreaktionen mit der PTFE-Folie zu vermeiden, wurden zwei, $30 \times 40 \text{ mm}^2$ große Öffnungen in die Folie geschnitten, die den Neutronenstrahl ohne Berührung ein- und austreten lassen.

Um Detektorsystem *P* in Detektorsystem *D* umzurüsten, müssen lediglich die Detektorgehäuse (gelb) mit den Blenden (dunkelblau) entfernt werden. Anschließend lassen sich die Detektorgehäuse (siehe Abbildung 3.12 rechts) und die Platinen (siehe Abbildung 3.12 links), auf der jeweils die zwei PIN-Dioden befestigt sind, von Detektorsystem *D* am zentralen Bauteil montieren.

3.4. Auslese-Elektronik und Datenaufnahmesystem

Die Detektorsignale aus den beiden Detektoren wurden dem MSI-8¹⁵ Modul übergeben. Dieses Modul, das zur Vermeidung von Störungen mit der Probenkammer geerdet wurde, ist eine 8-Kanal-Vorverstärker-Shaper-Box, in der für jeden Kanal ein Timing-Filter-Verstärker integriert ist. Die Shapingzeit wurde in beiden Experimenten auf $2 \mu\text{s}$ (FWHM) eingestellt. Die Verstärkung (VV) wurde so gewählt, dass die Signale der Alpha-Teilchen von ²⁴⁴Cm mit einer Energie von $E_\alpha = 5.805 \text{ MeV}$ (siehe Abschnitt 5.1) eine Amplitude von etwa 7 V besitzen. Die acht Shaperausgänge wurden mit einem "Peak Sensing" ADC¹⁶ (= Analog to Digital Converter) verbunden. Dieser ADC digitalisiert die analogen Daten und speichert jedes Event in seinem Zwischenspeicher ab. Der ADC wird in einem VME-Bussystem¹⁷ betrieben, das mit einem PowerPC¹⁸ (= Performance optimization with enhanced RISC Performance Chip) gesteuert wird. Der PowerPC liest den Zwischenspeicher des ADC aus und schreibt die Daten auf die Festplatte eines portablen Rechners, wobei das Triggermodul TRIVA5¹⁹ die Datenauslese des ADC koordiniert. Der PowerPC wird von dem mobilen Rechner mit dem Datenaufnahme-Programm MARaBOU (= MBS and ROOT Based Online Offline Utility) gesteuert, das am Maier-Leibnitz-Laboratorium der Universitäten München entwickelt wurde. Dieses Programm speichert die Messdaten in einer ROOT-Datei²⁰. Um die Messdaten online zu betrachten, wurden in der Software verschiedene Histogramme angelegt. Zur Datenanalyse kann die angelegte ROOT-Datei nach dem Experiment wieder aufgerufen werden um neue Histo-

¹⁵MSI-8, Firma Mesytec (<http://www.mesytec.de/>)

¹⁶V785, Firma Caen (<http://www.caen.it/>)

¹⁷UEV 6021, Firma Plein & Baus (<http://www.wiener-d.de/>)

¹⁸PowerPC, Firma CES (<http://www.ces.ch/>)

¹⁹VME Trigger Synchronisations- Modul vom GSI (http://www.gsi.de/informationen/wti/ee/elekt_entwicklung/VME.html)

²⁰Analysepaket auf C++ Basis, die am CERN entwickelt wurde (<http://root.cern.ch/drupal/>)

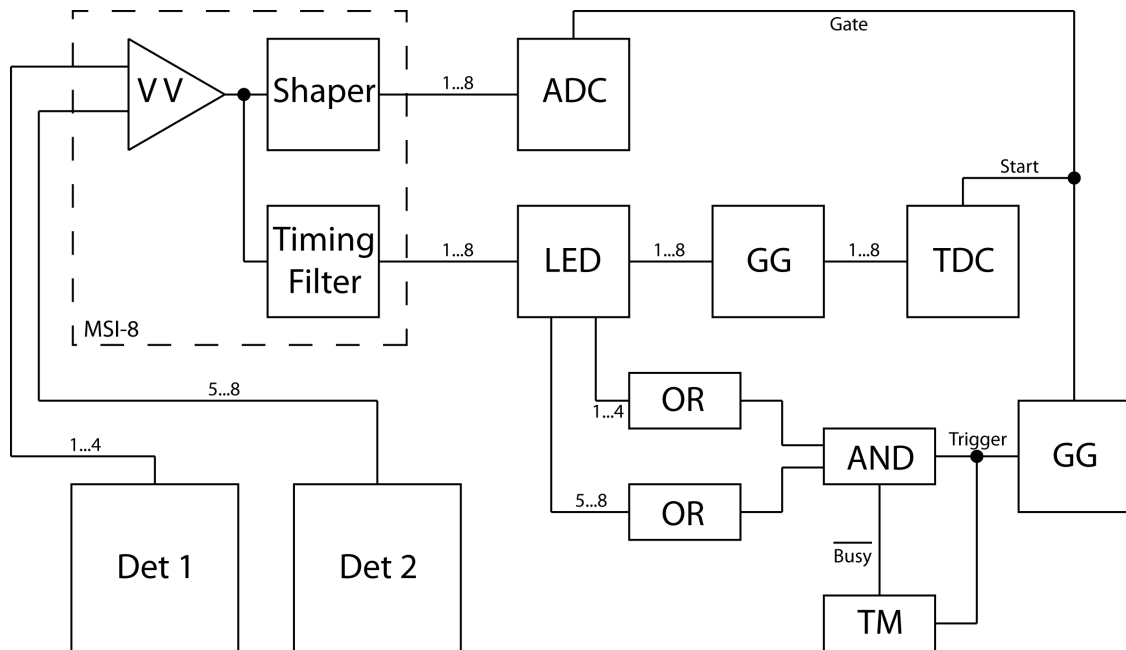


Abbildung 3.15.: Schematischer Aufbau der Elektronik

gramme und Filter anzulegen.

Das Triggersignal wurde mit den Timing-Filter-Signalen nach dem schematischen Aufbau in Abbildung 3.15 gebildet. Der Aufbau wurde für Detektoraufbau *P* erstellt, da dieser in Experiment 2 primär verwendet wurde (siehe Abschnitt 5.3). Ein Leading-Edge-Discriminator²¹ (LED) erzeugt aus den Timing-Filter-Signalen des MSI-8 logische Rechteckimpulse im NIM-Standard (= Nuclear Instrumentation Standard). Die Triggerschwelle, die die minimale Signalamplitude bestimmt, wurde während Experiment 1 (Detektoraufbau *S*) auf $450 \text{ mV} \approx 370 \text{ keV}$ eingestellt. In Experiment 2 musste die Triggerschwelle aufgrund der kleinen Signalamplituden von Detektorsystem *P* auf $150 \text{ mV} \approx 125 \text{ keV}$ abgesenkt werden (siehe Abschnitt 6.2). Das schnellste Signal eines Detektors wird mittels einer Or-Schaltung ermittelt. Die Or-Schaltung entfiel bei Detektorsystem *S*, da jeder Detektor nur ein Signal besaß. In Detektorsystem *D* ermittelt die Or-Schaltung das schnellste Signal der beiden PIN-Dioden einer Detektorplatte. Ansonsten stimmt der in Abbildung 3.15 gezeigte schematische Aufbau der Elektronik mit der Elektronik von Detektorsystem *S* und *D* überein. Aus den beiden Signalen nach der Or-Schaltung wird mittels einer Logik-Einheit²² (AND) das Triggersignal erzeugt. Liegt an beiden Eingängen des Logik-Moduls ein Signal an, wird der Ausgang freigegeben. Die Signale wurden vom Discriminator auf eine Breite von 200 ns eingestellt. Sind also beide Detektorsignale um weniger als 200 ns verzögert, passiert das langsamere der beiden

²¹Model 705, Firma Phillips Scientific (<http://www.phillipsscscientific.com/>)

²²4-Fold Logic Unit Model 365AL, Firma LeCROY (<http://www.lecroy.com/>)

Signale die AND-Schaltung. Während der Auslesezeit ($\approx 100 \mu s$), kann der ADC keine neuen Daten aufnehmen und das Triggermodul (TM) sperrt den Ausgang des Logik-Moduls, unabhängig welche Signale an den Eingängen anliegen. Das Triggersignal wird von einem Gate-Generator²³ (GG) auf $2 \mu s$ aufgeweitet. Dieses Signal definiert im ADC das Gate. Es wird ebenfalls dem TDC²⁴ (= Time to Digital Converter) übergeben, wobei die fallende Flanke alle Kanäle des TDC startet (Common Start).

Jedes einzelne Timing-Filter-Signal des MSI-8 wird von einem Gate-Generator²⁵ verzögert und stoppt seinen eigenen, vom Triggersignal gestarteten, TDC-Kanal. Die Verzögerung der acht Zeitsignale wurde so eingestellt, dass die Selbstkoinzidenzhäufung um ca. $250 ns$ gegenüber dem Triggersignal verzögert sind. Die Zeit des selbstkoinzidenten Signals, die im TDC-Spektrum eingetragen wird, wird ausschließlich von der Elektronik (z.B. Kabellänge und eingestellte Verzögerung) bestimmt. Diese Zeitsignale können in der Datenanalyse verwendet werden, um die Spektren von Untergrundeinträgen zu bereinigen (siehe Abschnitt 5.2).

²³Octal Gate Generator Model GG8000

²⁴V775, Firma Caen (<http://www.caen.it/>)

²⁵GG8010, Firma ORTEC (<http://www.ortec-online.com/>)

4. Probenpräparation

In Unterabschnitt 2.5.2 wurde gezeigt, dass die α - bzw. Tritiumteilchen eine maximale Reichweite von $1.30 \frac{mg}{cm^2}$ bzw. $7.34 \frac{mg}{cm^2}$ (siehe Tabelle 2.2) haben. Um den Energieverlust der Alphateilchen in den Gewebeproben zu reduzieren, wurden diese getrocknet. Damit der Trocknungsvorgang für die Gewebeproben möglichst schonend abläuft, wurde eine Gefriertrocknungsanlage angefertigt, die in Abschnitt 4.3 vorgestellt wird. Die Teilchen müssen neben dem organischen Gewebe aber noch weitere Materie durchdringen, in der sie ebenfalls Energie verlieren. Folglich ist es notwendig, diese zusätzlich zu durchdringende Materie so weit wie möglich zu verringern. Dies wurde einerseits mit einem reduzierten Luftdruck von 50 mbar (siehe Kapitel 5) in der Messkammer realisiert und andererseits durch die Konstruktion eines Gewebeprobenhalters, der für einen minimalen Energieverlust optimiert wurde. Mit diesen Maßnahmen kann eine Probendicke von $10 \mu\text{m}$ (siehe Unterabschnitt 2.5.2) erreicht werden. Neben den Gewebeproben werden für die Kalibrierung des Detektorsystems (siehe Abschnitt 5.4) Referenzproben benötigt, die eine definierte Lithiumkonzentration enthalten.

4.1. Der Gewebeprobenhalter

Aufgrund der geringen Dicke der Gewebeproben, ist ihre Struktur nicht stabil genug, um freitragend über mehrere Quadratzentimeter aufgespannt zu werden. Das bedingt die Verwendung eines Probensubstrates, das auf einen Probenhalter aufgespannt wird und das eine Liste von Anforderungen zu erfüllen hat:

- Das Probensubstrat muss flächig sein, bzw. eine sehr feinmaschige Struktur besitzen, um den Gewebeproben eine strukturelle Stabilität zu geben.
- Die Dicke des Probensubstrates muss so gering sein, dass es die α - und Tritiumteilchen ohne nennenswerten Energieverlust durchdringen können.
- Das Material des Probensubstrates darf einen nur sehr kleinen Einfangquerschnitt für Neutronen haben, damit die dadurch entstehende Untergrundstrahlung gering bleibt.
- Die instabilen Elemente, die durch Neutroneneinfang aus dem Probensubstrat, aber auch aus dem Material der Probenhalterung entstehen, dürfen höchstens eine Halbwertszeit in der Größenordnung von Minuten aufweisen, um den Messplatz nicht zu kontaminieren und einen raschen Wechsel der Targets zu ermöglichen.

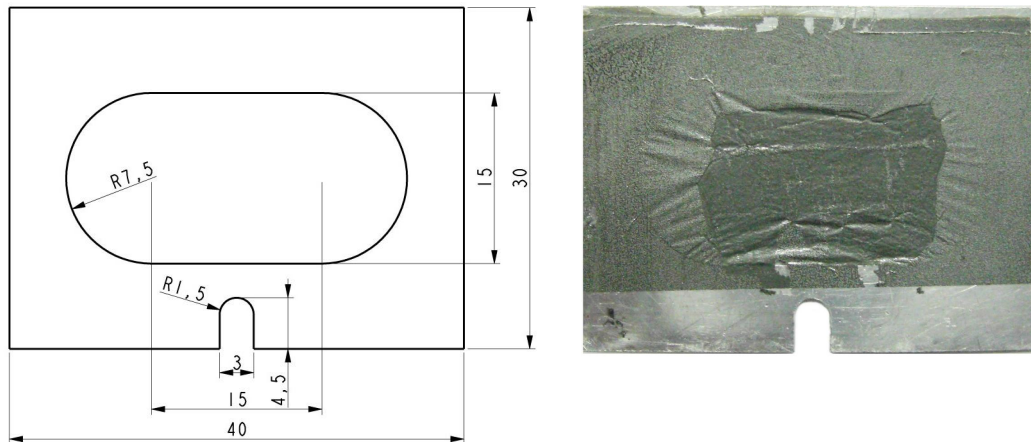


Abbildung 4.1.: Links: Konstruktionszeichnung des 0.2 mm dicken Targetrahmens, der aus Reinstaluminium gefertigt wurde.
 Rechts: Targetrahmen, der mit einer Kohlenstofffolie bespannt wurde. Auf dem Targetsubstrat befindet sich eine 10 µm dicke Gewebeprobe.

Unter Beachtung dieser Vorgaben wurde der Gewebeprobenhalter aus einem 0.2 mm dicken, $40 \times 30 \text{ mm}^2$ großen Reinstaluminiumblech, das einen Aluminiumgehalt von mind. 99.999% aufweist, gefertigt. ^{27}Al eignet sich, wie schon in Unterabschnitt 2.5.1 erwähnt, für Anwendungen mit Neutronen, da der Neutroneneinfangquerschnitt klein ($\sigma_{\text{Al}}(E_n = 1.83 \text{ meV}) = 0.86 \text{ barn}$) und die Halbwertszeit von ^{28}Al ($T_{\frac{1}{2}} = 2.25 \text{ min}$) kurz ist. Die Dicke von 0.2 mm ist nötig, um dem Gewebeprobenhalter eine Mindeststabilität zu geben. In dem Aluminiumblech befindet sich zentriert ein 15 mm hohes und 30 mm breites Langloch (siehe Abbildung 4.1 links). Dieser Durchbruch wurde so konzipiert, dass der Neutronenstrahl, unter Berücksichtigung des Drehwinkels der Targetebene zu der Neutronenstrahlquerschnittsebene ($\theta = 65^\circ$, siehe Kapitel 2), den Aluminiumrahmen nicht berührt. Die 3 mm breite und 4.5 mm hohe Aussparung am unteren Rand des Aluminiumrahmens dient der Zentrierung des Targetrahmens im Targethalter des Detektorsystems (siehe Unterabschnitt 3.3.2). Der Targetrahmen wurde mit einer $25 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ dicken Kohlenstofffolie bespannt, die die Probe trägt. Obwohl sich die Kohlenstofffolie direkt im Neutronenstrahl befindet, erzeugt sie aufgrund der geringen Dicke und dem sehr kleinen Neutroneneinfangquerschnitt ($\sigma_{^{12}\text{C}}(E_n = 1.83 \text{ meV}) = 7.3 \text{ mbarn}$) nur wenig Untergrundteilchen (siehe Unterabschnitt 2.5.1). Das Targetsubstrat ist dick genug, um zusammen mit dem Targetrahmen aus Aluminium der Gewebeprobe genug Stabilität zu geben und es ist zugleich dünn genug, damit die α - und Tritiumteilchen mit geringem Energieverlust zum Detektor gelangen. Abbildung 4.1 rechts zeigt den bespannten Targetrahmen mit einer 10 µm dicken Gewebeprobe.

4.2. Probenherstellung - Kryoschnitt

Der Energieverlust der geladenen Teilchen in der Probe ist die wesentliche Limitierung der in Kapitel 2 beschriebenen Methode. Folglich ist eine gewissenhafte und konstant reproduzierbare Probenherstellung essentiell. Die Gewebeschnitte werden mittels einer Kryoschnittanlage, einem sog. Mikrotom, im Labor der Rechtsmedizin München hergestellt. Abbildung 4.2 zeigt die Kryoschnittanlage, die sich in einem isolierten Gehäuse befindet. Das Innere dieses Gehäuses kann auf eine frei wählbare Temperatur gekühlt werden. Damit eine Herstellung von dünnen Gewebeproben möglich wird, werden größere Teile des Gewebes auf eine Temperatur von $T = -20^{\circ}\text{C}$ tiefgefroren. Um die Proben zu schneiden, was ausschließlich durch die Konsistenzänderung aufgrund des Einfrierens möglich ist, werden sie mit einem Kleber, der unter dem Gefrierpunkt wirksam wird, an einem Teller (1) befestigt. Dieser Teller wird an einem beweglichen Zylinder (2) fixiert, der sich von außen mittels einer Kurbel in Doppelpfeilrichtung bewegen lässt. Bei jeder halben Kurbelumdrehung ändert sich die Bewegungsrichtung des Zylinders. Am unteren Umkehrpunkt wird der Zylinder (2) entgegen der Richtung des einfachen Pfeils etwas zurückgezogen. Bei weiterer Betätigung der Kurbel bewegt sich der Zylinder nach oben. Am oberen Umkehrpunkt wird er in Pfeilrichtung, gegenüber der vorherigen Schnittpo-

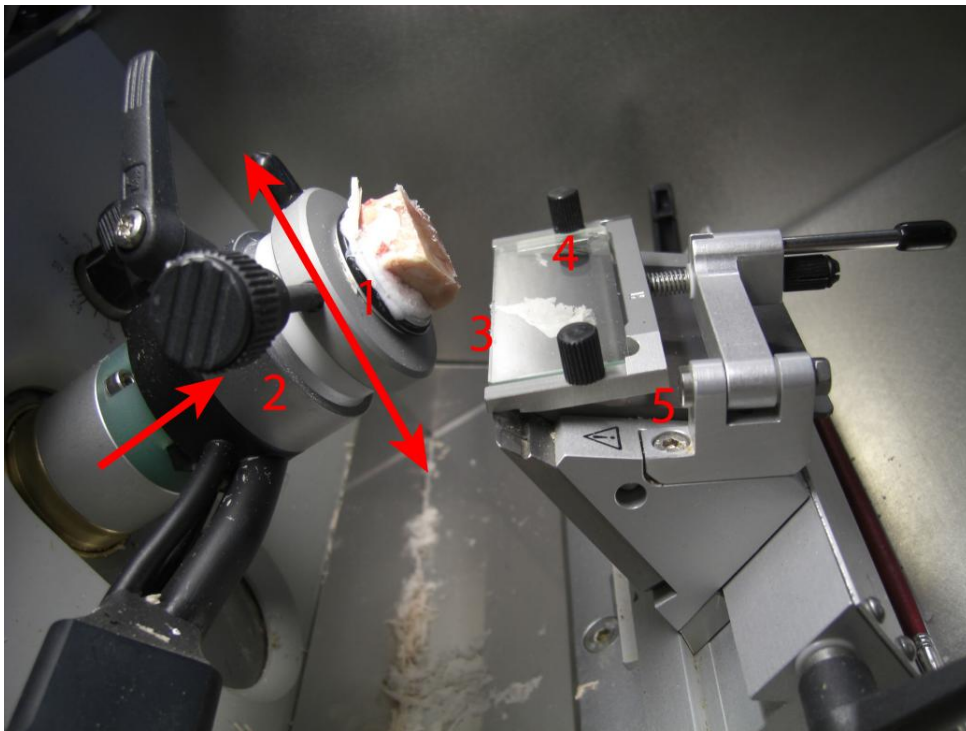


Abbildung 4.2.: Das Innere der Kryoschnittanlage. Dieser Bereich wurde auf -20°C abgekühlt. Die Gewebeprobe lässt sich in Doppelpfeilrichtung bewegen, wobei bei jeder Abwärtsbewegung eine $10\ \mu\text{m}$ dicke Probe "abgehobelt" wird.

sition, um einen fest eingestellten Wert (in diesem Fall $10\ \mu\text{m}$) weiter ausgefahren und die Abwärtsbewegung beginnt. In Bewegungsrichtung ist ein scharfes Messer (3) befestigt. Dieses schneidet bei jeder Kurbelumdrehung eine Gewebeprobe mit einer Dicke von $d = 10\ \mu\text{m}$ von dem aufgeklebten Stück ab. Die Glasscheibe (4) über dem Messer verhindert ein Aufrollen des dünnen Gewebeschnittes und führt diesen auf die darunter liegende Ablage (5). Die Scheibe lässt sich entfernen um freien Zugang auf die geschnittene Probe zu ermöglichen. Von der Ablage aus wird der tiefgefrorene Gewebeschnitt auf das Kohlenstoffsubstrat aufgebracht. Der Aluminiumrahmen mit der Kohlenstoffolie hat Raumtemperatur. Bei Berührung mit der dünnen, kalten Gewebeprobe klebt diese an der Kohlenstoffolie fest, indem sie sich erwärmt und ihre ursprüngliche, feuchte Konsistenz annimmt. Dieses "ankleben" muss zügig geschehen, da die dünne Kohlenstoffolie, aufgrund ihrer geringen Wärmekapazität, sehr schnell die Temperatur der Kryoschnittanlage annimmt und dann der Gewebeschnitt nicht mehr an der Kohlenstoffolie haftet. Die Dicke der Gewebeprobe ist sehr empfindlich auf Temperaturschwankungen innerhalb der Kryoschnittanlage. Wird z.B. ein Gewebeschnitt entnommen, erhöht sich die Temperatur im Innern um ein bis zwei Grad Celsius. Diese Temperaturerhöhung führt aufgrund der Anomalie des Wassers zu einer Kontraktion des Eises in der Gewebeprobe, was eine geringere Probendicke beim nächsten Schnittprozess zur Folge hat. Um eine einheitliche Probendicke zu gewährleisten, war nach der Entnahme einer Gewebeprobe eine Wartezeit von etwa einer Minute erforderlich, in der die Temperatur wieder auf $T = -20^\circ\text{C}$ sank. Nach dieser Wartezeit konnten weitere Gewebeproben hergestellt werden.

4.3. Gefriertrocknung

Für den Energieverlust von α - und Tritiumteilchen beim Durchgang durch Materie ist vor allem die Massenbelegung der Probenschicht entscheidend (siehe Unterabschnitt 2.5.2). Um den Energieverlust zu minimieren, wurden die Proben daher getrocknet. Zusätzlich gewährleistet die Trocknung eine konstante Probendicke während der Messung, da aufgrund des Vakuums in der Probenkammer das Wasser aus den Gewebeproben verdunsten würde. Während des Trockenvorgangs ziehen sich die Gewebeproben zusammen und es entstehen Risse. Um eine möglichst schonende Trocknung zu erreichen, wurde eine Gefriertrocknungsanlage konstruiert, die nach folgenden, einfachen Prinzip funktioniert: Die Proben werden unter den Gefrierpunkt abgekühlt. Anschließend wird der Gasraum um die Probe evakuiert. Nachdem der Druck in der Vakuumkammer unter den Dampfdruck von Eis fällt, sublimieren die H_2O -Eiskristalle aus der Probe, ohne in den flüssigen Zustand überzugehen. Tabelle 4.1 zeigt den Dampfdruck von Wasser / Eis für verschiedene Temperaturen. Die Gefriertrocknung oder auch Lyophilisation ist eine besonders schonende Trocknung, die biologische, chemische und strukturelle Eigenschaften des zu trocknenden Produktes nicht verändert. Effekte wie Degradation des biologischen Materials verringern sich bei der Lyophilisation maßgeblich [GTR]. Eine Verringerung der Lithiumkonzentration aufgrund der Trocknung ist nicht zu befürchten, da das Lithium im menschlichen Körper als Salz vorliegt und der gesamte Salzgehalt der Probe im Lyophilisat zurückbleibt [EKP].

Temperatur in $^{\circ}C$	Dampfdruck in $mbar$	Temperatur in $^{\circ}C$	Dampfdruck in $mbar$
30	42.4	-5	4.37
20	23.4	-10	2.60
10	12.4	-15	1.81
5	8.72	-20	1.03
0	6.11	-25	0.69

Tabelle 4.1.: Dampfdruck von Wasser / Eis bei verschiedenen Temperaturen [BAK].

4.3.1. Aufbau und Durchführung der Gefriertrocknung

Während des Trocknungsvorgangs befindet sich die Gewebeprobe in einer Vakuumkammer. Diese besteht aus einem Zylinder mit einem Innendurchmesser $D_i = 10\text{ cm}$ und einer Höhe $H = 4\text{ cm}$. Im Deckel der Vakuumkammer ist ein Schauglas integriert, um das Verhalten der Probe während des Trocknungsvorgangs zu beobachten. Abbildung 4.3 unten zeigt die, durch das Schauglas fotografierte, Vakuumkammer. Die 3 mm dicke, $40 \times 60\text{ mm}^2$ große Kühlplatte (1) aus gut wärmeleitendem ($\lambda_{Al} = 237 \frac{J}{msK}$) Aluminiumblech kühlt den Aluminiumrahmen mit der Gewebeprobe (2). Die Aluminiumplatte wird von einem $30 \times 30\text{ mm}^2$ großen Peltier-Elementes¹ gekühlt, das die Temperatur über eine dünne Schicht Vakuumsfett² überträgt. Dieses Thermoelement besitzt eine Wärmeleistung von $P = 27\text{ W}$ und die maximale Temperaturdifferenz zwischen den beiden Seiten beträgt $\Delta T = 60^{\circ}C$. Die vom Peltier-Element benötigte Nennspannung von $U = 8.5\text{ V}$ liefert ein handelsübliches Netzgerät. Der maximale Stromfluss liegt bei $I = 4.6\text{ A}$. Die Unterseite des Thermoelements ist ebenfalls über eine dünne Schicht Vakuumsfett mit dem Aluminiumboden der Vakuumkammer verbunden, der die entstehende Wärme abführt. Aufgrund der schlechten Wärmeleitfähigkeit der Edelstahl-Kammerwand kommt es auf der warmen Seite des Peltier-Elementes zum Wärmestau, der die Temperatur der kalten Seite limitiert. Aus diesem Grund wird der Boden der Probenkammer mittels flüssigem Stickstoff gekühlt. Durch die Stickstoffkühlung erreicht das Peltier-Element auf der kalten Seite eine Temperatur von $T = -30^{\circ}C$. Bei fehlender Kühlung sind nur Temperaturen um den Gefrierpunkt möglich. Abbildung 4.3 oben zeigt den Aufbau der Gefriertrocknung. Hinter der Vakuumkammer befindet sich ein rechteckiger Behälter, der den flüssigen Stickstoff enthält. Der Wärmekontakt mit dem Boden der Vakuumkammer wurde mittels einem Aluminiumvollzylinder ($D = 3\text{ cm}$) hergestellt. Rechts oben in Abbildung 4.3 sind das Netzteil des Peltier-Elementes und ein kommerzielles Multimeter³ zu sehen. Mit dem Multimeter wird der, in der Aluminium-Kühlfläche ((1) in Abbildung 4.3 unten) integrierte, PT100 Temperaturfühler⁴ (3) ausgelesen. Das Thermometer basiert auf der Widerstandsänderung von Platin bei Temperaturänderungen. Es besitzt bei $T = 0^{\circ}C$ einen

¹Peltier-Element 7105, Firma Conrad (<http://www.conrad.de/ce/>)

²Silicon Hochvakuumfett, Firma Wacker Chemie (<http://www.wacker.com/cms/de/home/index.jsp>)

³Multimeter MY 64, Firma Mastech (<http://www.p-mastech.com/>)

⁴Einschraub-Platin Temperatursensor, Typ W-GJK (SCH), Pt 100, Firma Conrad (<http://www.conrad.de/ce/>)

4. Probenpräparation

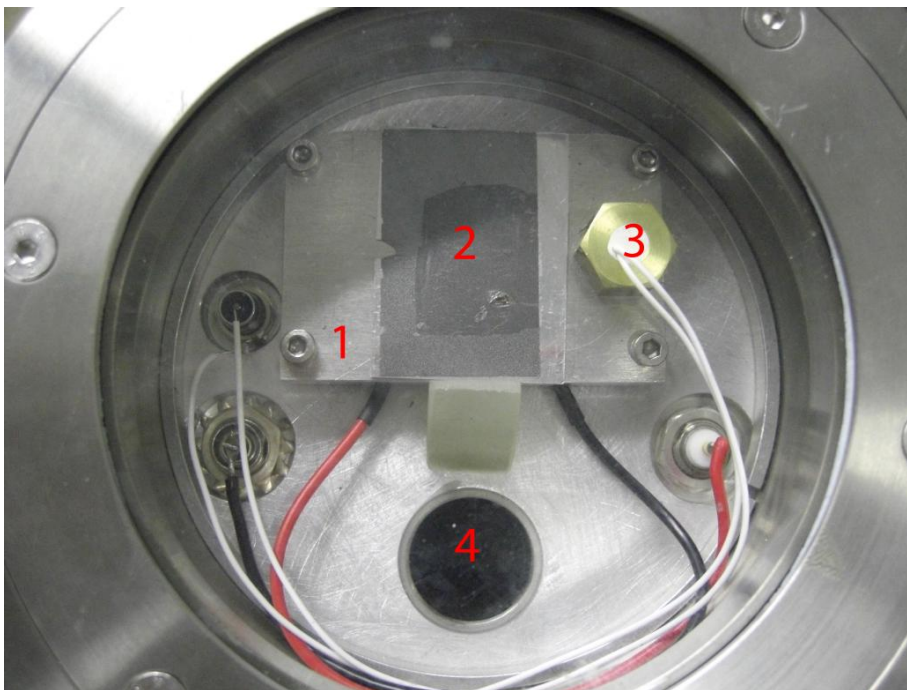
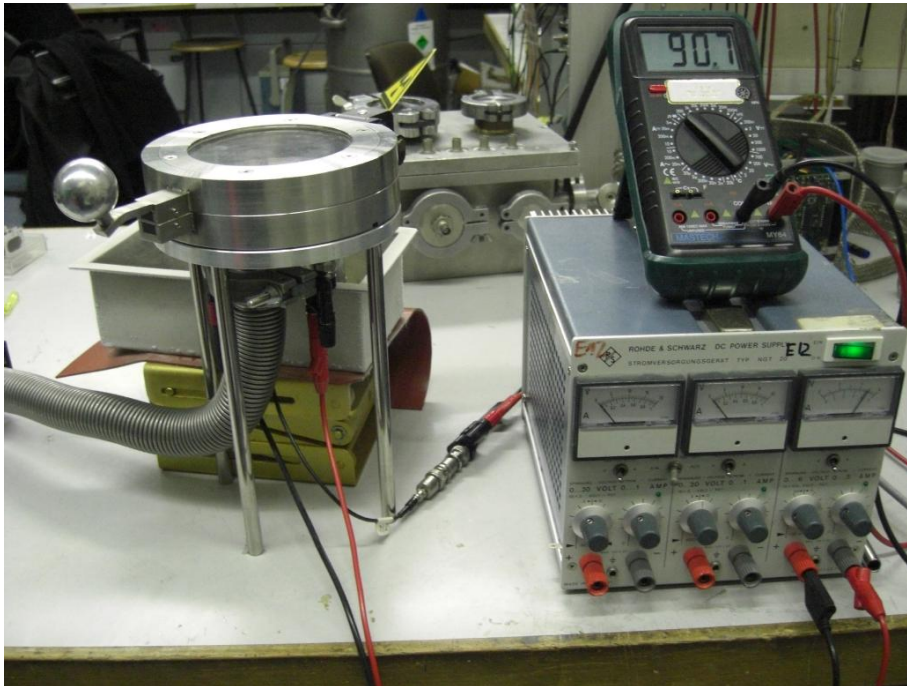


Abbildung 4.3.: Oben: Alle Bestandteile der Gefriertrocknungsanlage. Der Wellenschlauch führt zur Vakuumpumpe.
Unten: Die Vakuumkammer beinhaltet ein Peltier-Element (unter dem Alublech (1) mit der Probe (2)), ein Widerstandsthermometer (3) und eine Vakuumüberführung (4) zum Pumpstand.

Widerstand von $R = 100 \Omega$, der bei steigender Temperatur ansteigt. Der Wellschlauch ((4) in Abbildung 4.3 unten) verbindet den Innenraum der Vakuumkammer mit einem Pumpstand der Firma Pfeiffer⁵, der verwendet wurde um den Gasraum um die Probe auf 10^{-3} mbar zu evakuieren.

Um die Gewebeproben zu trocknen, werden sie bei geschlossener Vakuumkammer und Umgebungsdruck auf eine Temperatur von ca. $T = -20^\circ\text{C}$ abgekühlt. Nach Erreichen dieser Temperatur wird der Innenraum der Vakuumkammer evakuiert. Bei einem Druck von etwa 1 mbar beginnen die Eiskristalle aus der Probe zu sublimieren (siehe Tabelle 4.1). Aufgrund dessen zieht sich die Probe etwas zusammen. Dabei spannt sich die Kohlenstoffolie. Wurde diese sehr straff auf den Aluminiumrahmen aufgebracht, kann sie während des Trocknungsvorgangs reißen. Nach einer etwa zehnminütigen Pumpzeit ist der Trocknungsvorgang abgeschlossen und die Polung des Peltier-Elementes kann umgekehrt werden, um die Gewebeprobe zu erwärmen. Ohne den Erwärmungsvorgang würde nach dem Belüften der Vakuumkammer sofort eine Eisschicht an den Gewebeproben niederschlagen, die nach der Verflüssigung von der Probe reabsorbiert würde. Obwohl die Sublimationstrocknung eine sehr schonende Trocknungsmethode ist [GTR], war eine vollständig schrumpfungsfreie Trocknung nicht möglich. Dies erwies sich besonders bei Gewebeproben, die dicker als $10 \mu\text{m}$ waren, als Problem. Bei diesen Gewebeschnitten war die Festigkeit der ca. 100 nm dicken Kohlenstoffolie nicht mehr ausreichend und die Proben rollten sich während des Trocknungsvorgangs ein. Dabei zerriss die Kohlenstoffolie und die Probe wurde zerstört. Bei einer Probendicke von $10 \mu\text{m}$ und darunter wurde dieses Verhalten selten beobachtet.

4.3.2. Trocknungsfaktor

Durch die Trocknung verlieren die Gewebeproben sehr viel Masse. Der tatsächliche Massenverlust ist jedoch nicht bekannt und musste ermittelt werden. Dazu wurden sechs mal zehn Gewebeschnitte auf jeweils eine Aluminiumfolie aufgebracht und sofort nach dem Schneidevorgang gewogen. Die Folien mit den Gewebeschnitten wurde unter gleichen Bedingungen, wie sie auch bei den einzelnen Proben auf den Probenträgern herrschten, getrocknet. Nach dem Trockenvorgang wurden die Proben erneut gewogen. m_{vor} bzw. m_{nach} geben die Massen der zehn Gewebeschnitte vor bzw. nach dem Trocknen an und Δm bezeichnet das durch die Lyophilisation verlorene Gewicht. Der Quotient der beiden Massen definiert den Trocknungsfaktor $TF = \frac{m_{\text{vor}}}{m_{\text{nach}}}$. In Tabelle 4.2 sind die Resultate der Trocknung zusammengefasst.

Der mittlere Trocknungsfaktors \overline{TF} der Messdaten aus Tabelle 4.2 ergibt sich zu:

$$\overline{TF} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n TF_i = \frac{1}{6} \sum_{i=1}^6 TF_i = 3.85$$

⁵Typ. TSH 071, Firma Pfeiffer (<http://www.pfeiffer-vacuum.de/>), evakuiert bis 10^{-8} mbar

Proben Nr.	m_{vor} in mg	m_{nach} in mg	Δm in mg	Trocknungsfaktor TF
1	108	25	83	4.32
2	83	25	58	3.32
3	93	29	64	3.21
4	105	28	77	3.75
5	101	23	78	4.39
6	90	22	68	4.09

Tabelle 4.2.: Gewicht verschiedener Gewebeproben vor und nach der Gefriertrocknung und der daraus resultierende Trocknungsfaktor TF .

Für die Standardabweichung erhält man:

$$\sigma_{TF} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (TF_i - \overline{TF})^2} = \sqrt{\frac{1}{5} \sum_{i=1}^6 (TF_i - \overline{TF})^2} = 0.504$$

Somit beträgt der Erwartungswert des Trocknungsfaktor TF mit zugehöriger Unsicherheit:

$$TF = \frac{m_{\text{vor}}}{m_{\text{nach}}} = 3.85 \pm 0.50$$

Die einzelnen Trocknungsfaktoren unterscheiden sich stark voneinander. Der Grund dafür liegt bei der Trocknungszeit, die mit 10 *min* nicht ausreichte um die Proben vollständig zu trocknen. Ein größerer Trocknungsfaktor wurden bei den Proben erreicht, deren Gewebeschnitte gleichmäßig auf der Aluminiumfolie verteilt waren. Bei den Proben mit kleinerem Trocknungsfaktor waren die Gewebeschnitte etwas angehäuften, was es den H_2O Molekülen erschwerte aus den Proben zu sublimieren. Eine Langzeit-trocknung nach dem Experiment zeigte, dass ein Trocknungsfaktor von $TF = 4.62$ erreichbar ist (siehe Abschnitt 6.1). Aufgrund der Unsicherheit des Trocknungsfaktors, wurde bei der Berechnung der maximalen Probendicke (siehe Unterabschnitt 2.5.2) lediglich ein Trocknungsfaktor von drei angenommen, da dieser bei allen Proben sicher erreicht wurde.

Für weitere Experimente sollte eine Trocknungszeit von einer Stunde eingeplant werden, um diese Unsicherheit zu minimieren.

4.4. Referenzproben

Um die Methode zu testen und die Detektorsysteme zu kalibrieren, wurden verschiedene Referenzproben mit einem bekannten Lithiumgehalt hergestellt. Für Experiment 1 wurden zwei Probensubstrate mit unterschiedlicher $^{\text{nat}}Li_2O$ -Lösung betropft. Dazu wurden $9.92 \pm 0.01 \text{ mg } ^{\text{nat}}Li_2O$ in 10 *ml* destilliertem Wasser gelöst und so weit verdünnt, bis die

gewünschte Lithiumkonzentration erreicht war. Von dieser Lösung wurden $5 \mu\text{l}$ mit einer Pipette zentriert auf das Kohlenstoffsubstrat aufgetropft. Nach einer Trocknungszeit von etwa fünf Stunden waren die Proben vermessungsbereit. Die Lösungen hinterließen auf den Targetsubstraten einen Kreis mit einem Durchmesser von etwa $D = 6 \text{ mm}$, an dessen Rand eine erhöhte Konzentration der Trockenmasse zu sehen war (wie bei einem Kaffeefleck am Küchentisch). Probe 1 enthält mit $m_1 = 0.6 \cdot 10^{-6} \text{ g } ^6\text{Li}$ die größte Lithiumkonzentration. Sie diente dazu den Detektoraufbau S von Experiment 1 zu testen und einen groben Überblick über das Lithiumspektrum zu erhalten. Zusätzlich sollten mit dieser Probe die Detektoren kalibriert werden. Bei der Versuchsauswertung stellte sich heraus, dass die getropften Proben große Lithiumcluster enthalten und sich somit für die Kalibrierung der Detektorsysteme nicht eignen (siehe Abschnitt 5.2). Probe 2 enthält eine Lithiummenge von $m_2 = 4.0 \cdot 10^{-12} \text{ g } ^6\text{Li}$. Dies entspricht in etwa der in einem $10 \mu\text{m}$ dicken Gewebeschnitt. Mit dieser Probe sollte die Anwendbarkeit der, in dieser Arbeit entwickelten, Methode bei geringen Lithiumkonzentrationen geprüft werden. Für Experiment 2 wurde eine neue Referenzprobe angefertigt. Bei dieser Probe wurde das Kohlenstoffsubstrat im Targetlabor des Lehrstuhls $E12$ mit $1.80 \pm 0.01 \pm 0.1 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2} \text{ nat LiF}$ bedampft. Die Lithiumfluoridfläche wurde mittels einer Blende auf einen Kreis mit einem Durchmesser von $D = 15 \text{ mm}$ eingeschränkt, um die Detektoren nicht unnötig mit nichtkoinzidenzfähigen α - und Tritiumteilchen zu belasten. Durch den Bedampfungsvorgang wurde eine homogene Lithiumschicht erzeugt (siehe Abschnitt 5.2), die sich für die Effizienzkalibrierung der Detektorsysteme hervorragend eignet (siehe Unterabschnitt 5.4.3).

5. Versuchsdurchführung

Die koinzidente Energiemessung der α - und Tritiumteilchen ist das zentrale Werkzeug für die Bestimmung der Lithiumkonzentration in Proben. Die Koinzidenzbedingung verspricht eine einfache Separation der Signale vom Untergrund. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei Experimente mit verschiedenen Detektorsystemen durchgeführt, die das einzigartige Reaktionsverhalten des Lithiumzerfalls bei Neutroneneinfang ausnutzen. In Experiment 1 kam Detektoraufbau *S* zum Einsatz. Ziel dieses Experiments war es, die grundsätzliche Anwendbarkeit dieser Methode zu testen und mögliche Untergrundreaktionen zu studieren. Die Detektoren befinden sich nur wenige *mm* vom Neutronenstrahl entfernt, daher musste geklärt werden, ob die Bor-Dotierung aufgrund des Neutronenstrahlhalos (siehe Unterabschnitt 3.2.2) nach längerer Messzeit beschädigt wird. Des Weiteren musste geprüft werden, ob Untergrundreaktionen die koinzidente Messung von α - und Tritiumteilchen limitieren oder sogar verhindern.

Für Experiment 2 wurden zwei Detektoraufbauten (*D* und *P*) entwickelt. Bei beiden Detektorsystemen wurde der Target-Detektorabstand verringert um die Effizienz zu steigern. Mit dem Detektorsystem *D*, bestehend aus vier PIN-Dioden, wurde zusätzlich die Effizienz maximiert. Dies wurde realisiert, indem auf jeder Messseite des Targets zwei PIN-Dioden zu einem Detektor kombiniert wurden (siehe Unterabschnitt 3.3.1). Bei Detektorsystem *P* wurden zwei ortsauflösende Detektoren verwendet. Mit dieser Messmethode sollte die Lithiumkonzentration orts aufgelöst dargestellt werden, um mögliche Schwankungen in der Lithiumkonzentration der Proben festzustellen. Zu Beginn von Experiment 2 wurden Detektoraufbau *D* und *P* getestet und die Vor- und Nachteile der beiden Detektorsysteme miteinander verglichen. Anschließend wurden die Lithiumkonzentrationen erster Gewebeprobe bestimmt.

5.1. Energiekalibrierung der Detektoren mit einer Alphaquelle

Vor jedem Experiment wurde im Labor eine Energiekalibrierung der Detektoren durchgeführt, damit die Energiespektren (z.B. in Abbildung 5.5) die absolute Energie der Teilchen wiedergeben. Diese Energiekalibrierung wurde mit einer Tripel-Alphaquelle ($A = 3 \cdot 10^3 \text{ Bq}$) durchgeführt, die die radioaktiven Elemente ${}_{94}^{239}\text{Pu}$, ${}_{95}^{241}\text{Am}$ und ${}_{96}^{244}\text{Cm}$ enthält. Diese drei Elemente zerfallen unter Emission eines Alphateilchens in die Elemente ${}_{92}^{235}\text{U}$, ${}_{93}^{237}\text{Np}$ und ${}_{94}^{240}\text{Pu}$. Die emittierten Alphateilchen haben, je nach Anregungsenergie des Tochterkerns, verschiedene kinetische Energien. In Tabelle 5.1 sind die Halbwertszeiten $T_{1/2}$ und die beiden am häufigsten vorkommenden Alphaenergien E_1 und E_2 zusammengefasst.

Um ein Spektrum der bekannten Alphaenergien aufzunehmen, wurde eine PIN-Diode,

	$T_{1/2}$ in a	E_1 in keV	E_2 in keV
${}_{94}^{239}Pu$	$2.411 \cdot 10^4$	5157	5144
${}_{95}^{241}Am$	432.2	5486	5443
${}_{96}^{244}Cm$	18.10	5805	5762

Tabelle 5.1.: Halbwertszeiten und Alphaenergien der Nuklide [KNK], in der zur Energiekalibrierung verwendeten Alphaquelle.

ähnlich wie sie auch im Experiment 1 eingesetzt wurde, verwendet. Die Diode befand sich während der Datenaufnahme in einer Vakuumkammer, die auf 10^{-6} mbar evakuiert wurde. Die Alphaquelle wurde ca. 50 mm vor dem Detektor platziert. Damit die Energiekalibrierung bei dem Experiment verwendbar wird, wurde die Elektronik, die Verkabelung und die Verstärkung des Vorverstärkers wie im Experiment aufgebaut und eingestellt (siehe Abschnitt 3.4).

Die ADCs weisen einen kleinen Offset in der Energie von ca. 50 Kanälen auf. Ansonsten sollte die Energie linear mit den Kanälen des ADC ansteigen. Daher wurde als Korrekturpolynom eine lineare Funktion gewählt: $E = a(K + b)$, wobei K der Kanal des ADC und E die zugehörige Energie ist. Da die Tripel-Alphaquelle eine hohe Aktivität von $A = 3 \cdot 10^3$ Bq hat, reichte nach einer Messzeit von etwa 600 Sekunden die Statistik aus um die drei Haupthäufungen jeweils mit einer Gaußkurve anzufitten. Das gaußförmige Profil resultiert aus der endlichen Energieauflösung der Detektoren, der Materiedicke der Alphaquelle selbst aber auch aus der Energieverschmierung in der obersten, passiven Schicht der Detektoren. Für die Energiekalibrierung wurden nur die drei stärksten Linien verwendet (siehe Abbildung 5.1), da hier die Zählrate am größten ist und so der statistische Fehler minimiert wird. Der Fit wurde mit dem Datenaufnahmeprogramm MARaBOU durchgeführt, in dem auch eine Funktion zur Berechnung der Proportionalitätskonstante a und des Offsets b des ADC implementiert ist. Das Maximum jeder Gaußkurve (Kanalnummer) wurde der bekannten Alphaenergie zugeordnet. Beispielsweise ergaben sich für den ersten Auslesekanal von Experiment 1 folgende Werte für a und b :

$$a = (1.8618 \pm 0.0041) \text{ keV} \qquad b = -61.719 \pm 12.114$$

Die Fehler können im Wesentlichen durch systematische Fehler und durch den geringen Energieabstand der Linien begründet werden. Die berechneten Werte wurden im Datenaufnahmeprogramm implementiert, um dort die Energie zu kalibrieren. Abbildung 5.1 zeigt die drei Energien der Tripel-Alphaquelle. Auf der x -Achse ist die Kanalnummer des ADC aufgetragen. Die y -Richtung zeigt die Anzahl der Einträge pro Kanal. Neben den drei Hauptmaxima sind die Häufungen, die von Alphateilchen mit geringerer Energie stammen, deutlich zu sehen. Die mittlere Häufung ($E_1({}_{95}^{241}Am) = 5486 \text{ keV}$) wurde mit einer Gaußfunktion (rote Kurve) angefitet. Ihr Maximum liegt bei Kanal 2943.

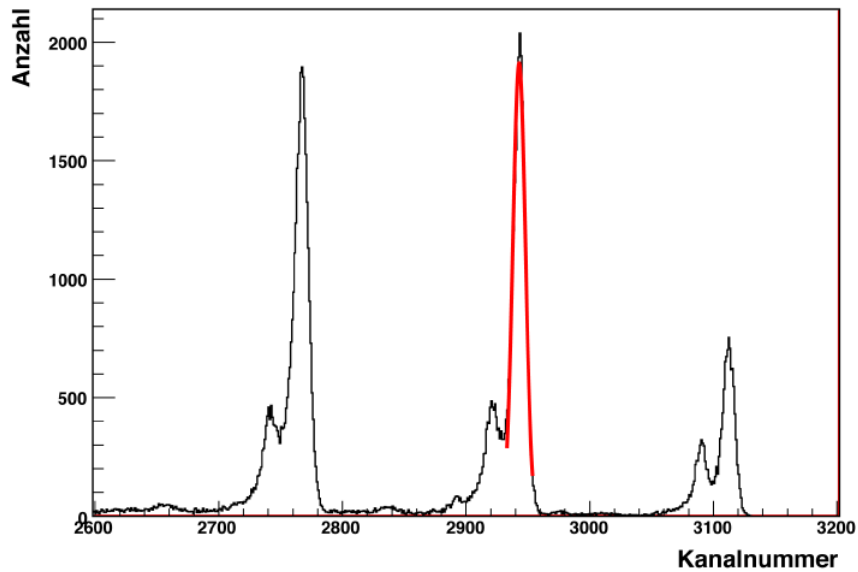


Abbildung 5.1.: Kalibrierungsspektrum der Tripel-Alphaquelle. Die ^{241}Am -Häufung wurde mit einer Gaußkurve angefitet (rot).

5.2. Erste Messungen am Neutronenstrahl

Bei den ersten Messungen, die in Experiment 1 durchgeführt wurden, kam Detektoraufbau *S* zur Anwendung. Ziel dieses Experimentes war es, grundsätzliche Ideen zur Verbesserung des Detektoraufbaus zu erhalten und erste Messungen mit der Methode des koinzidenten α - und Tritiumnachweises durchzuführen. Als Target wurden zwei Probenhalter mit Probensubstrat (siehe Abschnitt 4.1) verwendet, die mit unterschiedlichen $^{\text{nat}}\text{Li}_2\text{O}$ -Lösungen betropft wurden (siehe Abschnitt 4.4). Probe 1 enthält eine Lithiummenge von $0.6 \cdot 10^{-6} \text{ g } ^6\text{Li}$, die es nachzuweisen galt. Zusätzlich sollte mit dieser Probe der Detektoraufbau kalibriert werden (siehe Unterabschnitt 5.4.3), um statistische Fehlerquellen wie Target-Detektorabstand oder Neutronenfluss zu eliminieren. Die Probe wurde 1000 Sekunden, mit einem Neutronenfluss von $\phi = 1.0 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$, vermessen. Abbildung 5.2 oben zeigt die in den jeweils gegenüberliegenden Detektoren gemessenen Teilchenenergien in Koinzidenz. Es sind zwei Häufungen zu sehen, die die Energie der Zerfallsprodukte (α und T) der Lithiumreaktion wiedergeben. Am Maximum (grün) des linken Häufungspunktes wurde eine Alphaenergie von etwa 1700 keV an einem Detektor und eine Tritiumenergie von etwa 2600 keV am anderen Detektor gemessen. Am Maximum der rechten Häufung ist es umgekehrt. Die ausgeprägte Energieverschmierung der beiden Häufungen ist durch große Li_2O -Kristallcluster (\varnothing bis zu $10 \mu\text{m}$) zu erklären, die sich während des Trocknens vor allem am Rand der aufgetropften Lösung bildeten. Abbildung 5.2 unten zeigt einen Li_2O -Kristallcluster bei 500-facher Vergrößerung. Die α - und Tritiumteilchen verlieren Energie beim Durchqueren dieser Kristallcluster. Der Energieverlust ist teilweise so groß, dass manche Teilchen die Probe nicht verlassen können. Dies hatte zur Folge, dass die

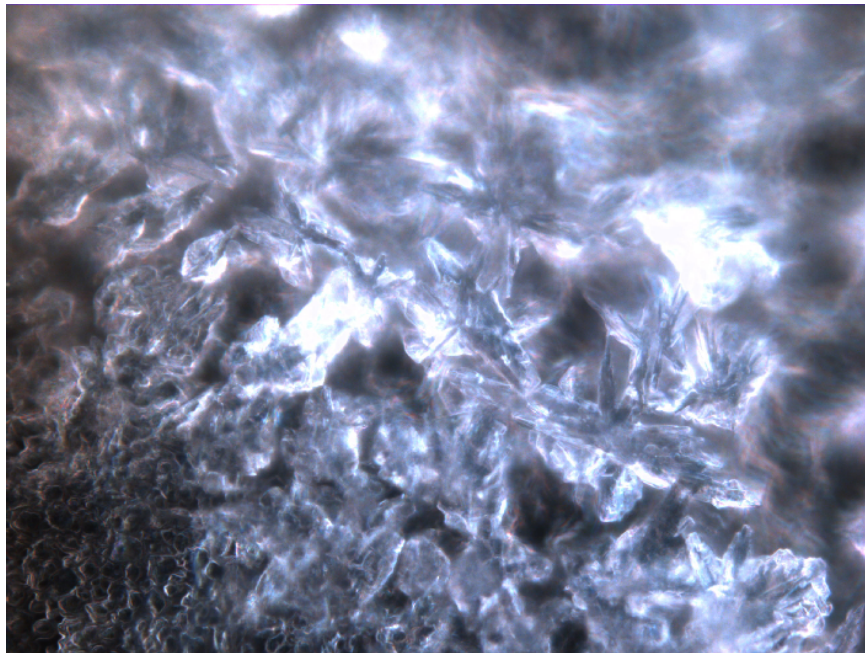
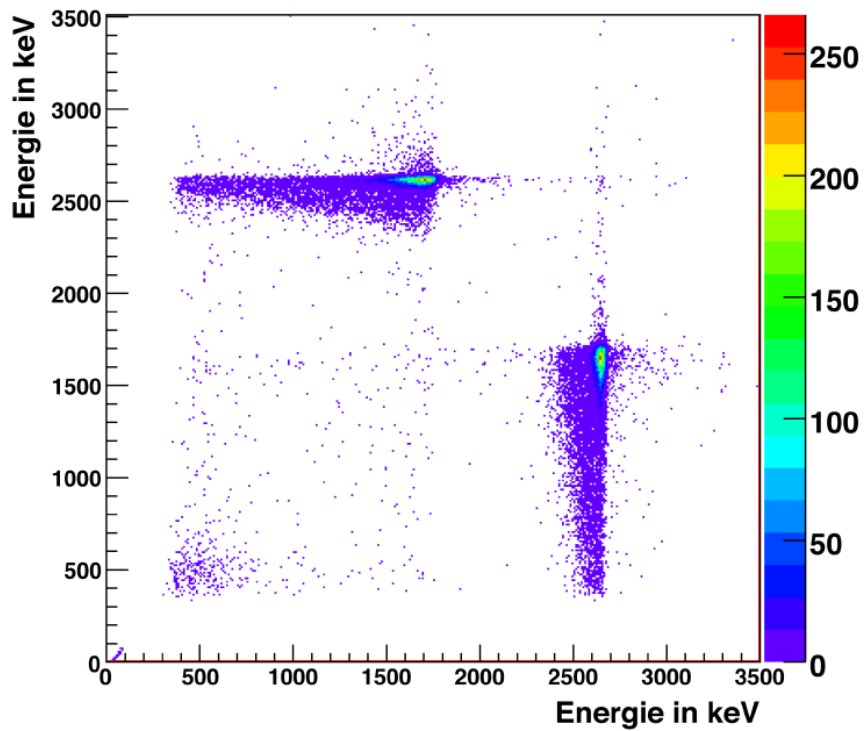


Abbildung 5.2.: Oben: Energie-Koinzidenzspektrum von Probe 1. Der große Energieverlust der α - und Tritiumteilchen resultiert aus großen Li_2O -Kristallclustern.

Unten: Foto eines Lithiumoxid Kristallcluster bei 500-facher Vergrößerung.

Lithiummenge auf der Probe nicht verifiziert werden konnte. Aus diesem Grund eignen sich die getropften Proben auch nicht für eine exakte Kalibrierung des Detektorsystems. Die Energieverschmierung ist asymmetrisch, da die Alphateilchen aufgrund ihrer Kernladung etwa vier mal mehr Energie beim Durchgang durch Materie verlieren als die Tritiumteilchen. Die Verschmierung der beiden Maxima (grün) zu höheren Energien, ist durch "Pile Up" zu erklären. Dabei treffen zwei Teilchen fast gleichzeitig einen Detektor, so dass sich ihre Energiesignale zum Teil aufsummieren. Dieser Effekt ist aufgrund der geringen koinzidenten Untergrundrate von 0.5 Hz nur sehr schwach ausgeprägt. Die Einträge beim Energietupel (2600 keV , 2600 keV) werden durch zufällig koinzidente Tritiumteilchen erzeugt. Die vermehrten Einträge bei niedrigen Energien resultieren aus zufällig koinzidentem Untergrund, vornehmlich von Protonen aus der $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ Reaktion. Diese Reaktion findet vor allem aufgrund des Rest-Luftstickstoffes (50 mbar) in der Probenkammer statt. Die erhöhte Statistik, im Quadrat bis etwa 1600 keV , stammt von zufällig koinzidenten Alphateilchen. Unterhalb von 370 keV gibt es keine Einträge, da bei dieser Energie die Triggerschwelle gesetzt wurde.

Die zweite getropfte Referenzprobe enthält $4.0 \cdot 10^{-12} \text{ g } ^6\text{Li}$, das entspricht etwa der Menge, die in der späteren Anwendung erwartet wird. So sollte getestet werden, ob diese Lithiummenge mit endlicher Messzeit nachweisbar ist. Die Probe wurde mit einem Neutronenfluss von $\phi = 2.0 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{s}\cdot\text{cm}^2}$ über $46 \cdot 10^3$ Sekunden vermessen. Obwohl nur sehr wenig Lithium in der Probe enthalten ist, sind die α - und Tritiumhäufungen immer noch sehr gut erkennbar (siehe Abbildung 5.3 oben). Die Häufungen sind gegenüber dem Spektrum der Probe 1 weniger stark verschmiert, was auf die geringe Dicke der Probe zurückzuführen ist. Unter dem Mikroskop waren keine Lithiumcluster mehr erkennbar.

Die Einträge unter 1000 keV (blaues Dreieck) sind zufällig koinzidente Beta- und Gammatteilchen (Single-Untergrundrate $\approx 14 \text{ kHz}$), die in Untergrundreaktionen (siehe Unterabschnitt 2.5.1) entstehen. Die Protonen ($E_p = 585 \text{ keV}$) aus der Reaktion $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ führen zu der stark ausgeprägten Struktur unter 600 keV (grünes Quadrat). Die stark ausgeprägte "L"-Struktur des Untergrundes bis zur Tritiumenergie resultiert aus zufälligen Koinzidenzen der α - und Tritiumteilchen aus der Probenkammerwand mit dem β -, γ - und vor allem mit dem Protonen- Untergrund. Die homogen verteilten Untergrundeinträge bei höheren Energien (im Quadrat bis 2500 keV) ergeben sich aus zufälligen Koinzidenzen der Wand-Alpha- und Tritiumteilchen untereinander. Dieser Untergrund ist gegenüber den Teilchen aus dem Target um einige keV abgesenkt, da sie eine längere Strecke im Restgas (50 mbar) der Probenkammer zurücklegen und dadurch mehr kinetische Energie verlieren. Diese α - und Tritiumteilchen entstehen in der ^6LiF -Abschirmung der Probenkammer, die mit gestreuten Neutronen reagiert. Um diesen Untergrund zu beseitigen wurde für Experiment 2 eine zusätzliche Abschirmung entwickelt (siehe Unterabschnitt 3.3.2).

In Abbildung 5.2 oben und Abbildung 5.3 oben sind die Rohdaten der beiden Messungen dargestellt. Der Untergrund in diesen Spektren ist aufgrund des koinzidenten Nachweises der α - und Tritiumteilchen um etwa vier Größenordnungen unterdrückt. Mit Hilfe der Zeitsignale, die mit einem TDC aufgenommen wurden, kann der Untergrund noch weiter

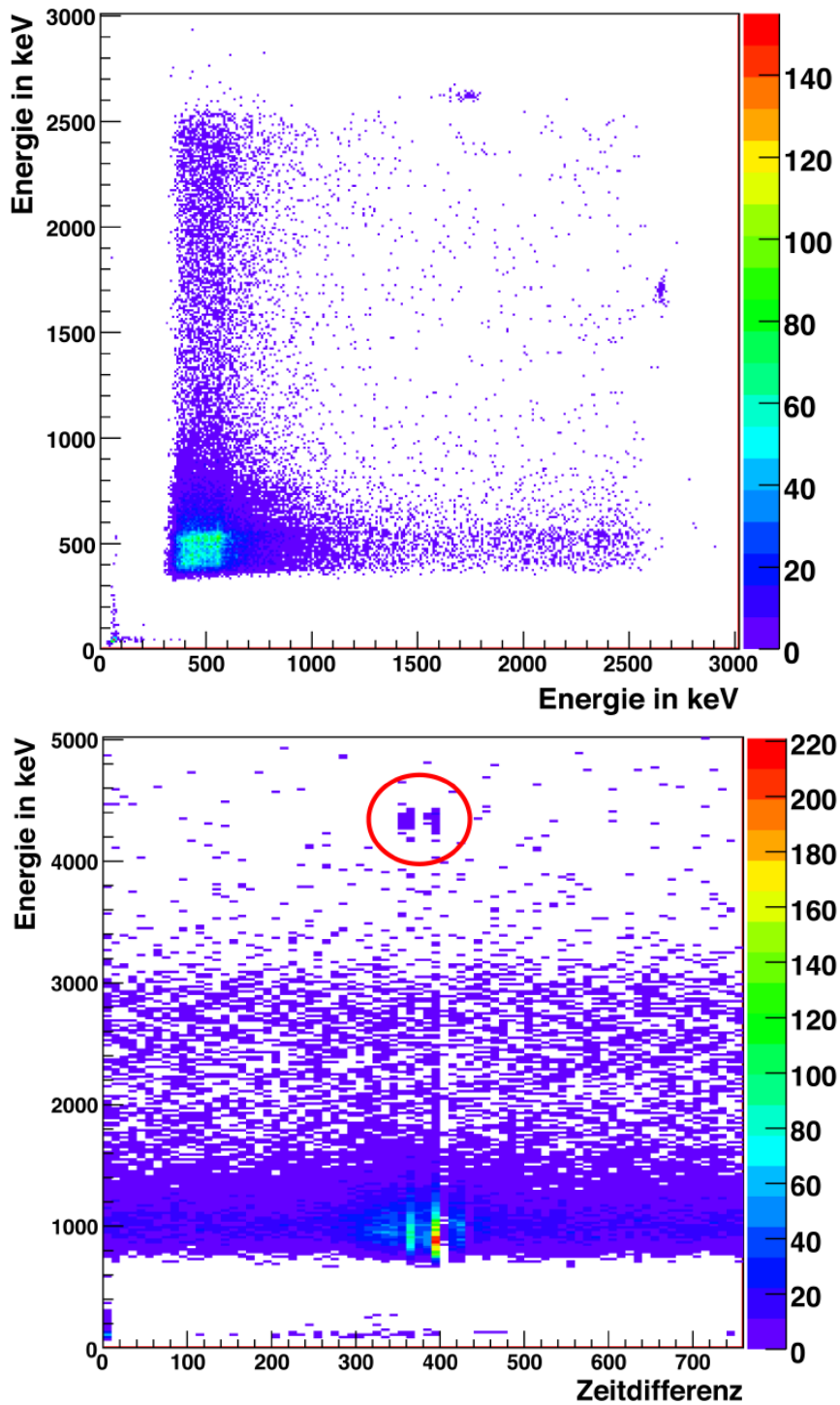


Abbildung 5.3.: Oben: Energiekoinzidenzspektrum der 2. getropften Probe.
Unten: Energiesumme aus beiden Detektoren, die gegenüber der Zeitdifferenz der Signale aus den beiden Detektoren aufgetragen ist. Der gesamte Ausschnitt überdeckt eine Zeitdifferenz von etwa 220 ns .

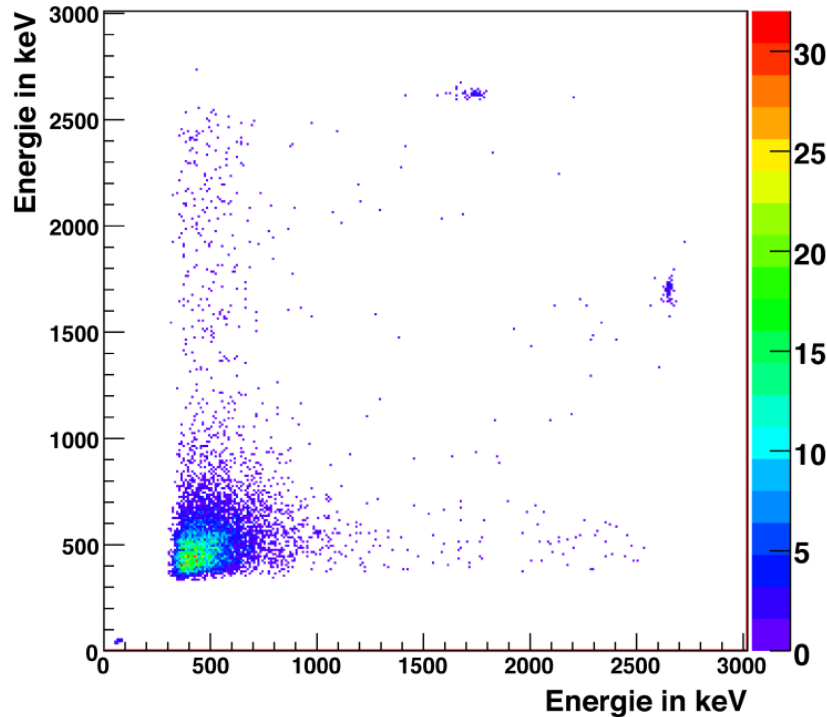


Abbildung 5.4.: Energie-Koinzidenzspektrum von Probe 2 unter Berücksichtigung der Flugzeit. Mit dieser Bedingung konnte der Untergrund um 83% reduziert werden.

reduziert werden. Dabei wird das 200 ns breite, elektronische Koinzidenzfenster in der Datenanalyse auf 20 ns verkleinert. Die Definition des Zeitfensters soll beispielhaft an Probe 2 demonstriert werden. Abbildung 5.3 unten zeigt ein Zeit-Energie-Diagramm dieser Probe. Auf der x -Achse ist die Differenz der beiden TDC-Signale ($t^{\text{Det1}} - t^{\text{Det2}}$) und auf der y -Achse ist die Energiesumme aus beiden Detektoren ($E^{\text{Det1}} + E^{\text{Det2}}$) aufgetragen. Der rote Kreis kennzeichnet die α - und Tritiumeinträge. Die Doppelhäufung ist dadurch zu erklären, dass bei der Berechnung der Zeitdifferenz das Zeitsignal des zweiten Detektors vom Zeitsignal des ersten Detektors subtrahiert wird. Je nachdem welcher Detektor das Alphateilchen registriert, wird einmal die Tritiumzeit von der Alphazeit ($t^{\text{Det1}} - t^{\text{Det2}} = t_T - t_\alpha$) und einmal die Alphazeit von der Tritiumzeit ($t^{\text{Det1}} - t^{\text{Det2}} = t_\alpha - t_T$) abgezogen. Die Zeiteinschränkung auf das 20 ns breite Fenster wurde durch die Bedingung definiert, dass nur diejenigen Signale akzeptiert werden, deren Zeitdifferenzen im Kanalintervall von 340 bis 410 liegen. Alle anderen Ereignisse werden als unphysikalisch verworfen. Mit dieser Einschränkung kann der Untergrund um weitere 83% reduziert werden. Abbildung 5.4 zeigt das Energie-Koinzidenzspektrum von Probe 2 mit dieser Zeiteinschränkung. Wenn zusätzlich berücksichtigt wird, dass die Summe aus α - und Tritiumenergie konstant sein

muss, verschwindet fast der gesamte Untergrund. Hierzu wurde in der Software die Bedingung gesetzt, dass die Summenenergie $E^{\text{Det1}} + E^{\text{Det2}}$ im Intervall von 3500 keV bis 4500 keV liegen muss.

Während der gesamten Messperiode von ca. 100 h erhöhte sich der Leckstrom der PIN-Dioden ($I = 8 \text{ nA}$) von Detektoraufbau S nicht. Obwohl der Abstand der Detektoren zum Neutronenstrahl nur wenige Millimeter beträgt, ist die Beeinflussung der Bor-Dotierung durch die Neutronen nicht messbar. Des Weiteren lassen sich die α - und Tritiumeinträge mit den oben beschriebenen Auswahlprozessen sehr sauber vom Untergrund separieren. Die koinzidente Messung der α - und Tritiumteilchen ist also durchführbar.

5.3. Eigenschaften der verbesserten Detektoraufbauten

Zur Verbesserung des koinzidenten Nachweises von α - und Tritiumteilchen, wurden für Experiment 2 zwei alternative Detektorsysteme entwickelt (siehe Abschnitt 3.3). In Detektorsystem D wurde die Effizienz optimiert. Als wesentliches Merkmal wurden auf jeder Seite des Targets zwei PIN-Dioden angebracht, die die aktive Detektorfläche verdoppeln. Mit diesem Detektorsetup konnte die Effizienz um etwa eine Größenordnung gesteigert werden. In Detektorsystem P wurde ebenfalls die Effizienz verbessert. Bei diesem Detektorsystem stand jedoch die Ortsauflösung im Vordergrund, die mit den PSD verwirklicht wurde.

Um Vor- und Nachteile von Detektoraufbau P und D zu vergleichen, wurde eine neue Referenzprobe mit beiden Detektorsystemen vermessen, da sich die getropften Referenzproben für eine Kalibrierung der Detektorsysteme nicht eignen (siehe Abschnitt 5.2). Diese Referenzprobe wurde mit $1.80 \pm 0.01 \pm 0.10 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ $^{\text{nat}}\text{LiF}$ bedampft. Durch das Aufdampfen, verteilt sich das Lithium gleichmäßig auf dem Targetssubstrat, so dass die Referenzprobe nur eine etwa 100 nm dünne $^{\text{nat}}\text{LiF}$ -Schicht und keine Lithiumcluster enthält. Die α - und Tritiumsignale werden somit nicht mehr zu niedrigeren Energien verschmiert (siehe Abbildung 5.5 oben und unten), was eine absolute Normierung der Detektorsysteme (siehe Unterabschnitt 5.4.3) ermöglicht.

Abbildung 5.5 unten zeigt das Energie-Koinzidenzspektrum der bedampften Referenzprobe, das mit Detektoraufbau P aufgenommen wurde. Die Probe wurde 600 s mit einem Neutronenfluss von $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ bestrahlt. Deutlich sind die beiden Häufungen der koinzidenten α - und Tritiumteilchen (rot) zu sehen. Die zwei Nebenmaxima, bei den Energietupel (1700 keV , 2600 keV) und (1700 keV , 2600 keV) stammen von Teilcheneinschlägen in den Kontaktstreifen (siehe Unterabschnitt 5.4.1). Die Energieverschmierung der Häufungen zu höheren Energien kann durch "Pile Up" erklärt werden. Neben den α - und Tritiumeinträgen sind noch zwei weitere koinzidente Häufungen bei den Energietupel (1300 keV , 600 keV) und (600 keV , 1300 keV) zu sehen. Diese Einträge resultieren aus der Reaktion $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$. Das ^7Li geht bei dieser Reaktion zu 94% in den ersten angeregten Zustand ($E_1 = 0.478 \text{ keV}$) über (siehe Unterabschnitt 2.5.1). Durch die frei werdende Energie erhält das Alphateilchen eine kinetische Energie von $E_\alpha = 1.473 \text{ MeV}$ und der ^7Li -Kern eine Energie von $E_{^7\text{Li}} = 0.841 \text{ MeV}$ [ELN]. Auf dem Weg zu den Detektoren, wo die Teilchen koinzident nachgewiesen werden, verlieren sie etwas Energie in Restgas und

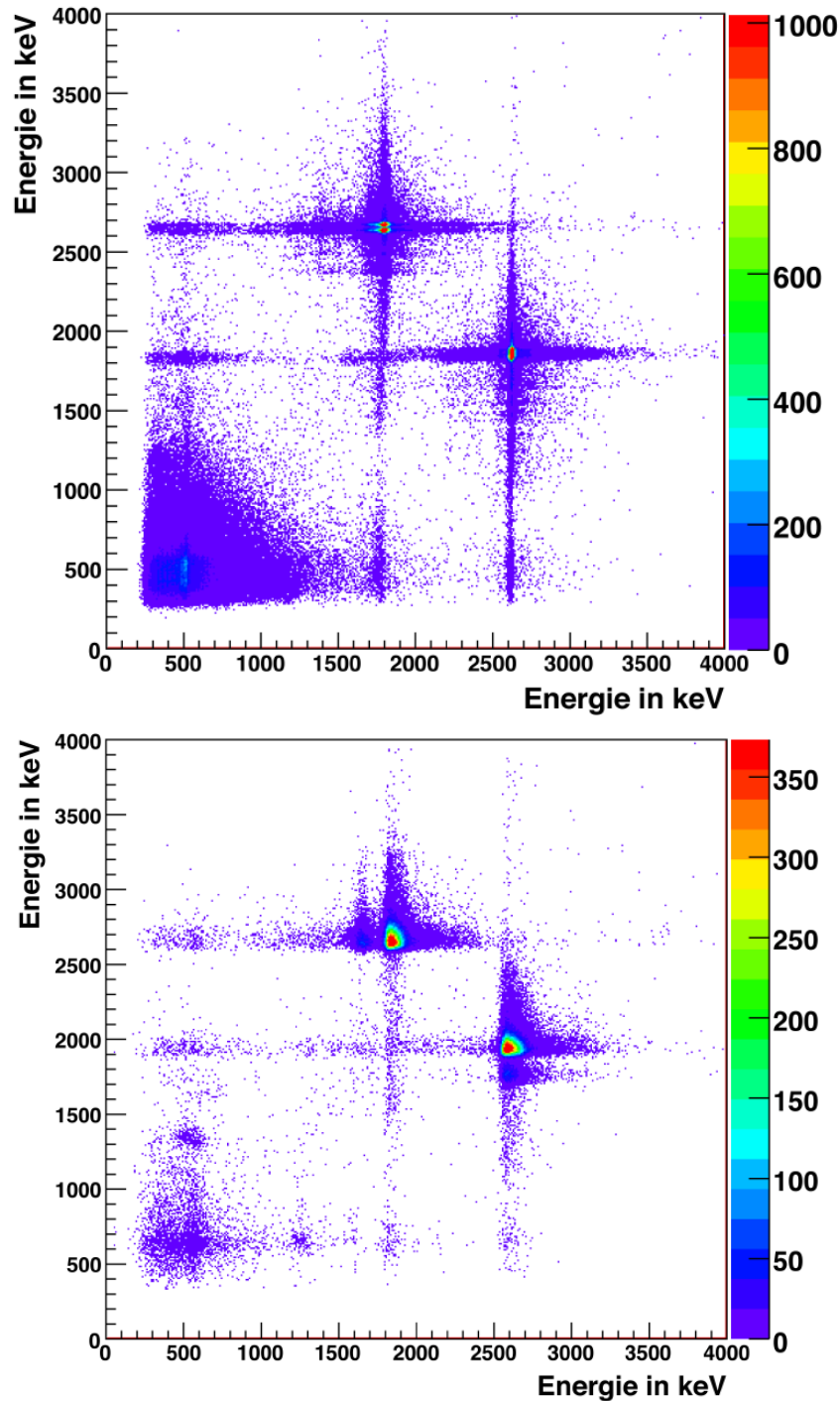


Abbildung 5.5.: Energie Koinzidenz Spektrum der bedampften Referenzprobe.
 Oben: Spektrum wurde mit den 4 Dioden aufgenommen.
 Unten: Spektrum wurde mit den PSD aufgenommen. Hier ist auch eine Bor-Verunreinigung aus der Reaktion $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ zu erkennen, bei der koinzidente Teilchen mit 841 keV und 1473 keV emittiert werden.

Target. Aufgrund der Koinzidenzbedingung muss sich das Bor auf dem Targetsubstrat befinden. Die vermehrten Einträge bei Energien unter 1000 keV sind zufällig koinzidente β -, γ -Teilchen und vor allem Protonen (siehe Unterabschnitt 2.5.1), die bei der Neutronenreaktion mit dem Luftstickstoff entstehen (Single-Untergrundrate $\approx 14\text{ kHz}$). Die Häufungen bei höheren Energien (z.B. bei $(600\text{ keV}, 2700\text{ keV})$ oder $(1300\text{ keV}, 600\text{ keV})$) sind Koinzidenzen der α - oder Tritiumteilchen mit dem Untergrund. Das Kreuz, bei einer Energie von etwa 1900 keV in beiden Detektoren, entsteht durch zufällig koinzidente Alphateilchen.

In diesem Spektrum lassen sich ca. 105 000 Lithium-Einträge ablesen. Das entspricht einer α -Tritium-Koinzidenzrate von 175 Hz .

Abbildung 5.5 oben zeigt das Energie-Koinzidenzspektrum der bedampften Referenzprobe, die mit dem Detektorsystem D aufgenommen wurde. Dieses Spektrum wurde während einer Messzeit von 500 s mit dem gleichen Neutronenfluss, wie er auch bei Detektoraufbau P verwendet wurde, aufgezeichnet. Die beiden Häufungspunkte weisen in vertikaler Richtung eine Doppelstruktur auf. Der Grund für diese Doppelmaxima ist kein physikalischer Effekt, sondern ist das Resultat der Energiekalibrierung (siehe Abschnitt 5.1), die aus systematischen Gründen nicht für die verschiedenen Messungen modifiziert wurde, die Unsicherheiten in den Kalibrierungskonstanten a und b (siehe Abschnitt 5.1) abbildet. Der Energieunterschied von etwa 70 keV wurde bei der Datenanalyse später korrigiert. Vergleicht man in Abbildung 5.5 die Untergrundeinträge der beiden Diagramme, sieht man im Spektrum von Detektorsystem D (koinzidente Untergrundrate $\approx 320\text{ Hz}$) sehr viel mehr Untergrundeinträge als im Spektrum von Detektorsystem P (koinzidente Untergrundrate $\approx 7\text{ Hz}$). Der Grund dafür liegt in der unterschiedlich effizienten Abschirmung der Untergrundstrahlung, die bei der Aktivierung des Aluminiumrahmens entsteht. Während die $10 \times 21\text{ mm}^2$ große Blende von Detektorsystem D die Detektoren kaum vor dieser Strahlung schützt, schirmt die $10 \times 10\text{ mm}^2$ große Blende von Aufbau P die Detektoren fast vollständig gegenüber dem Untergrund ab. Durch die hohe Untergrundrate ist bei diesem Spektrum auch der "Pile Up", der die wahren α - und Tritiumeinträge verfälscht, stärker ausgeprägt als bei der Messung mit Detektorsystem P .

Insgesamt können etwa 185 000 Lithium-Einträge abgelesen werden. Das entspricht einer α -Tritium-Koinzidenzrate von 370 Hz . Das Detektorsystem D besitzt also eine um den Faktor 2.11 höhere Effizienz, als das Detektorsystem P .

Trotz der etwa doppelt so großen Effizienz des Detektorsystems D , überwiegt doch der Vorteil der orts aufgelösten und annähernd untergrundfreien Messung des Detektorsystems P gegenüber der Effizienzsteigerung, denn mit einer ortsauflösenden Messung lassen sich mögliche Untergrundquellen lokalisieren und beseitigen. Zusätzlich kann das Spektrum durch markante Strukturen einem Foto der Gewebeprobe zugeordnet werden. Des Weiteren liefern die PSD eine ortsabhängige Konzentrationsinformation, mit der eine genauere Bestimmung der Lithiumkonzentration möglich ist (siehe Unterabschnitt 5.4.1). Aus diesen Gründen wurden die weiteren Messungen mit Detektoraufbau P durchgeführt.

5.4. Besonderheiten der Messung mit den PSD

Die Ortsauflösung der PSD ermöglicht eine einfache und exakte Messung der Lithiumkonzentration. Sie wird durch eine Widerstandsschicht von ca. $12\text{ k}\Omega$ ermöglicht. Aufgrund dieser Widerstandsschicht teilt sich die, bei einem Teilcheneinschlag erzeugte, Ladung je nach Einschlagsort auf und fließt über die gegenüberliegenden Kontakte ab. Die Amplituden der einzelnen Signale erlauben eine einfache Rekonstruktion des Einschlagsortes im Detektor (siehe Unterabschnitt 3.3.1). Mit der Kapazität der Detektoren, führt dieses RC -Glied zu einer ortsabhängigen Anstiegszeit der Einzelsignale, die in der Größenordnung von 400 ns liegt (siehe Unterabschnitt 3.3.1). Diese Anstiegszeit liegt mehr als eine Größenordnung über der Anstiegszeit der PIN-Dioden (ca. 20 ns). In Experiment 2 wurde eine Shapingzeit von $2\text{ }\mu\text{s}$ verwendet. Aufgrund der langen Anstiegszeit konnte damit nur ein gewisser Teil des Signals, abhängig vom Einschlagsort im PSD, genutzt werden. Eine längere Shapingzeit war nicht möglich, da sonst "Pile Up"-Effekte sehr viel stärker ausgeprägt sind. Zum Einen wird durch "Pile Up" die Messung der α - und Tritiumteilchen verfälscht, zum Anderen kann die hohe Untergrundrate zu hochenergetischen Einträgen in den Energie-Koinzidenzspektren führen, so dass die α - und Tritiumeinträge nicht mehr von den Untergrundeinträgen separiert werden können (siehe Abschnitt 5.6). Aus diesem Grund benötigen die Messungen mit den PSD eine Reihe von Korrekturen, die im Folgenden diskutiert werden.

5.4.1. Ortsabhängigkeit der Energiesumme eines PSD

Durch die ortsabhängige Anstiegszeit wird je nach Einschlagsort des Teilchens im Detektor ein unterschiedlicher Anteil der Einzelsignale genutzt. Aus diesem Grund zeigt die gesamte, im Detektor deponierte Energie eine Ortsabhängigkeit und bedarf einer Korrektur. Diese Korrektur kann am einfachsten an der Energiesumme der beiden Kanäle einer Detektorseite durchgeführt werden. Beispielhaft soll die Energiekorrektur, die bei der Datenanalyse durchgeführt wurde, an der Energiesumme $E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$ diskutiert werden. Abbildung 5.6 zeigt diese Energiesumme, die gegenüber dem Ort x^{Det1} aufgetragen ist. Das Spektrum wurde mit der bedampften Referenzprobe ($1.80 \pm 0.01 \pm 0.10 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2} \text{ nat LiF}$) mit einem Neutronenfluss von $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ und einer Messzeit von 600 s aufgenommen. Bei einer Energie von etwa 2700 keV bzw. 1900 keV sieht man die Tritium-, bzw. Alphaeinträge (grün-gelbe Linie). Die Verschmierung dieser Häufungslinien zu höheren Energien wird durch "Pile Up" verursacht. Die blaue Linie, unter den Alphateilcheneinträgen, ist das Resultat von Teilcheneinschlägen in den Kontaktstreifen des PSD (siehe Unterabschnitt 3.3.1), die offensichtlich ebenfalls zur aktiven Fläche des Detektors beitragen aber eine dickere Totschicht besitzen. Bei niedrigeren Energien sieht man ein Dreieck, das weniger Einträge enthält. Dieses Dreieck lässt sich durch die Triggerschwelle erklären. Schlägt ein Teilchen am Rand des Detektors ein, fließt die gesamte Energie über diese Seite ab. Im Koinzidenzfall reicht daher eine Energie in der Höhe der Triggerschwelle aus um dieses Ereignis aufzuzeichnen. Erfolgt hingegen ein Teilcheneinschlag in der Mitte des Detektors, teilt sich der Strom aufgrund der Widerstandsschicht zu gleichen Teilen auf und das Teilchen benötigt eine doppelt so hohe Energie um über der Triggerschwelle zu

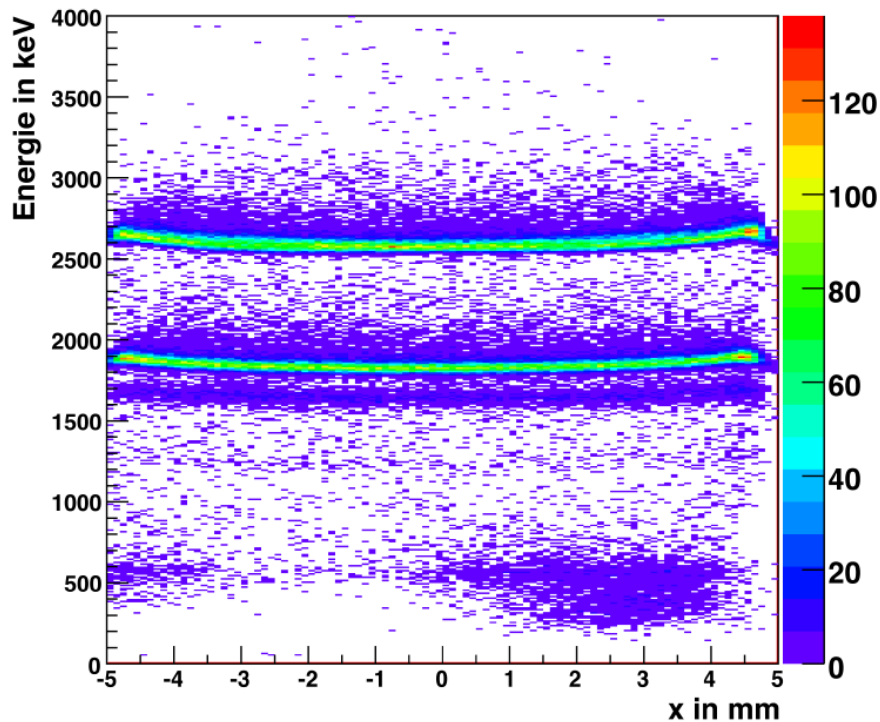


Abbildung 5.6.: Das Spektrum zeigt die Energiesumme ($E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$) des Detektors 1, die gegenüber dem Ort x^{Det1} aufgetragen ist. Das "Durchhängen" der Energiesumme resultiert aus den langen Anstiegszeiten der Einzelsignale, die mit einer Shapingzeit von $2 \mu\text{s}$, nur noch teilweise genutzt werden konnten.

liegen. Die asymmetrische Anordnung des Dreiecks resultiert aus den unterschiedlichen Triggerschwellen (Triggerschwelle von Kanal x_1 : 125 keV , Triggerschwelle von Kanal x_2 : ca. 300 keV), die in nachfolgenden Messungen angeglichen wurden. Dieses Dreieck ist nur ansatzweise zu erkennen, da das Triggersignal aus den x - und y -Kanäle der Detektoren gebildet wird. Schlägt z.B. ein Teilchen bei $x = 0 \text{ mm}$ und $y = 4 \text{ mm}$ ein, kann es vorkommen, dass die Energie der beiden x -Kanäle unterhalb der Triggerschwelle liegt, während über einen y -Kanal ausreichen Ladung abfließt, so dass eine Koinzidenz mit dem zweiten Detektor gebildet werden kann. Solche Ereignisse erzeugen Einträge auch innerhalb des "Triggerdreiecks".

Der Korrekturterm für die gemessenen Energien hängt nicht nur vom Ort des Teilcheneinschlages, sondern auch von der gesamten deponierten Energie ab. Daher muss das Korrekturpolynom bei einer Energie erstellt werden, die etwa in der Mitte des α - und Tritiumteilchen-Energieintervalls liegt. Dieses Intervall erstreckt sich von 1000 keV (unter Berücksichtigung des Energieverlustes der Alphateilchen in Materie) bis 2700 keV , daher erfüllt die maximale Alphaenergie diese Bedingung. Um das Korrekturpolynom zu

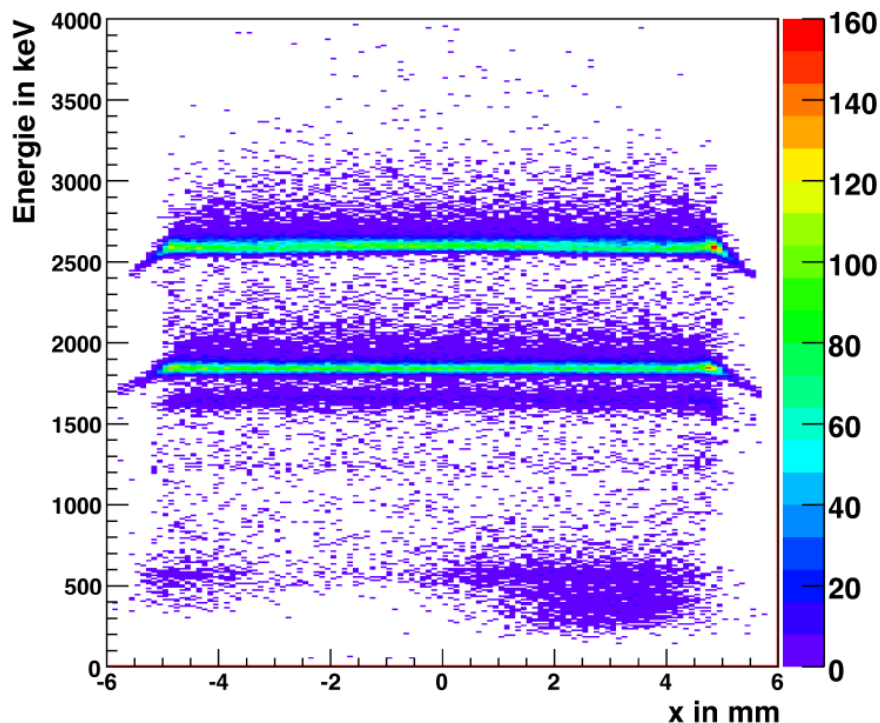


Abbildung 5.7.: Spektrum der korrigierten Energiesumme $E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$. Die α - und Tritiumenergien zeigen nun keine Ortsabhängigkeit mehr.

erstellen, wurde die Alphalinie in Abbildung 5.6 mit einem Polynom 4. Grades angefitzt (aufgrund der Achsensymmetrie wurde ein Polynom mit geraden führenden Exponenten gewählt). Die Energiesumme $E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$ wurde im Datenaufnahmeprogramm durch dieses Polynom dividiert und auf die wahre Alphaenergie von 1850 keV (durch den Energieverlust im Restgas und Targets substrat ist dieser Wert nicht 2060 keV) normiert. Abbildung 5.7 zeigt das Spektrum von Abbildung 5.6 nach dieser Korrektur. Die Linie der Alphaenergie wurde exakt korrigiert, während sich die Tritiumlinie aufgrund der Energieabhängigkeit der Korrektur um ca. 10 keV nach oben wölbt. Diese Abweichung ist jedoch vernachlässigbar.

Die vier korrigierten Einzelenergien eines Detektors ergeben sich durch lineare Skalierung mit den zugehörigen Orten. Beispielsweise lässt sich die Energie E_1^{Det1} (Detektor 1, linke Seite) wie folgt berechnen:

$$E_1^{\text{Det1}} = 1850 \text{ keV} \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{10} x^{\text{Det1}} \right)$$

Wobei der Ort x^{Det1} aus den unkorrigierten Energien gemäß Unterabschnitt 3.3.1 berechnet wurde. Aufgrund der nur schwachen Ortsabhängigkeit der Energie ist eine weitere Iteration nicht erforderlich.

5.4.2. Zweidimensionale Ortsabhängigkeit der einzelnen Ortskoordinaten

Aus den Einzelenergien des PSD kann der Einschlagsort des Teilchens, wie in Unterabschnitt 3.3.1 beschrieben wurde, rekonstruiert werden. Zum Beispiel gilt für x^{Det1} :

$$x^{\text{Det1}} = 5 \cdot \frac{E_1^{\text{Det1}} - E_2^{\text{Det1}}}{E_1^{\text{Det1}} + E_2^{\text{Det1}}} \quad x^{\text{Det1}} \in [-5, 5]$$

Die ortsabhängige Anstiegszeit der Detektorsignale, die eine Korrektur der Einzelenergien bedingt (siehe Unterabschnitt 5.4.1), beeinflusst auch die Ortsspektren der PSD. Die Einzelenergiekorrekturen kürzen sich bei der Berechnung der Einschlagsorte, so dass die Orte eine gesonderte Korrektur benötigen. Diese Korrektur wird beispielhaft am Ortsspektrum eines PSD (siehe Abbildung 5.8 oben) diskutiert, mit dem die bedampfte Referenzprobe vermessen wurde. Die Messzeit betrug 600 s, bei einem Neutronenfluss von $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2 \text{s}}$. Die Einträge außerhalb des Quadrates von $\pm 5 \text{ mm}$ werden hauptsächlich durch "Pile Up" erzeugt. Eine weitere Quelle für diese unphysikalischen Orte ist eine nicht perfekte Korrektur des "Pole zero" im shaping Amplifier. Dies kann zu negativen Energien in einem Kanal und damit, speziell bei kleinen Signalen, zu unphysikalischen Orten führen.

Um das Spektrum in Abbildung 5.8 oben zu korrigieren, wurde eine von x abhängige y -Korrektur und eine von y abhängige x -Korrektur definiert. Dazu wurden zwei Ränder (oben und rechts) des Spektrums mit einem Polynom zweiten Grades angefügt. Da kein scharfer Rand des Spektrums erkennbar war, musste der Detektorrand definiert werden. Der rechte Rand wurde an derjenigen Stelle definiert, an der die mittlere Eintragsanzahl auf die Hälfte abgefallen ist. Am oberen und unteren Detektorrand sieht man jeweils eine erhöhte Eintragsstatistik. Sie resultiert aus Teilcheneinschlägen in den Kontaktstreifen des PSD (vgl. mit Unterabschnitt 5.4.1). Diese Einträge sind exakt neben dem eigentlich aktiven Bereich des Detektors, also genau neben dem Detektorrand. Daher wurde das Maximum dieser Häufungslinie als Detektorrand in vertikaler Richtung definiert. Um nun die korrigierten Einschlagsorte zu erhalten, wurden die jeweiligen Ortskoordinaten durch das zugehörige Korrekturpolynom dividiert und mit dem wahren Wert von 5 mm multipliziert. Das, mit dieser Methode, korrigierte Spektrum ist in Abbildung 5.8 unten dargestellt. Die Wölbung nach außen ist lediglich ein optischer Effekt, der von den unphysikalischen Einträgen erzeugt wird.

Die α - und Tritiumteilchen werden unter 180° zueinander emittiert (siehe Abschnitt 2.1). Somit kann aus den korrigierten Ortseinträgen, der sich gegenüberstehenden Detektoren, der Emissionsort der α - und Tritiumteilchen durch folgende einfache Gleichungen rekonstruiert werden:

$$x^{\text{Target}} = \frac{x^{\text{Det1}} - x^{\text{Det2}}}{2} \quad \text{und} \quad y^{\text{Target}} = \frac{y^{\text{Det1}} + y^{\text{Det2}}}{2}$$

Bei der Berechnung des x -Emissionsortes wurde das Vorzeichen des 2. Detektors invertiert, da beide Detektoren baugleich gefertigt wurden und sich spiegelsymmetrisch gegenüberstehen. Abbildung 5.9 zeigt das Ortsspektrum der bedampften Referenzprobe,

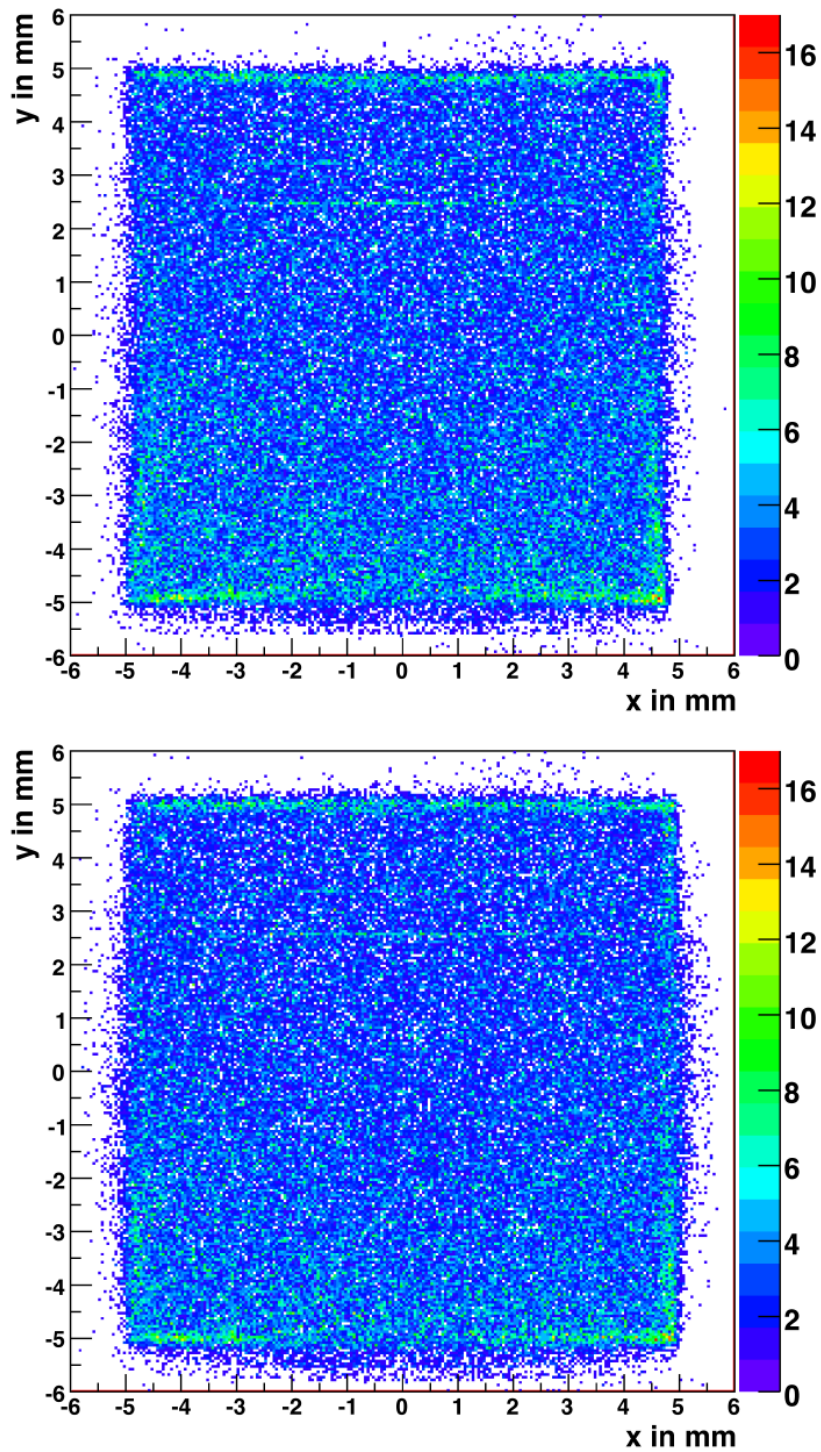


Abbildung 5.8.: Oben: Unkorrigiertes Spektrum der Einschlagsorte eines PSD.
Unten: Dasselbe Spektrum nach der Ortskorrektur. Die Wölbung nach außen ist lediglich ein optischer Effekt, der von den unphysikalischen Einträgen erzeugt wird.

die nach diesen Gleichungen rekonstruiert wurden. Die Radian rechts oben und unten resultieren aus der Form der Probe. Die bedampfte Fläche des Targetssubstrates wurde mit einem Kollimator auf einen Durchmesser von $D = 15 \text{ mm}$ eingeschränkt, um die Detektoren zu schonen. Damit können nur jene Bereiche α - und Tritiumteilchen emittieren, die zu einer Koinzidenz fähig sind. Diese Beschränkung ist an zwei Ecken noch erkennbar.

5.4.3. Normierung des Detektorsystems P

Wie in Abschnitt 2.4 diskutiert wurde, ist die Effizienz des Detektoraufbaus stark von der Geometrie abhängig. Abbildung 5.9 zeigt das Ortsspektrum der, mit einer kreisrunden Schicht ($D = 15 \text{ mm}$) bedampften, Referenzprobe. Dies ist ein direktes Abbild der räumlichen Effizienz der Anordnung. Während in der Mitte die Statistik sehr hoch ist, nimmt die Zahl der Einträge nach außen sehr schnell ab. Dieser Effizienzunterschied muss in den Ortsspektren berücksichtigt werden, damit eine absolute Lithiumkonzentration ablesbar ist. Um systematische Unsicherheiten zu minimieren, wurde als einfachste Methode die Normierung auf diese homogene, mit Lithium bedampfte ($1.80 \pm 0.01 \pm 0.10 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2} \text{ nat LiF}$), Referenzprobe gewählt.

Damit sich das Spektrum in Abbildung 5.9 zur Normierung eignete, musste es modifiziert werden. Um statistische Fluktuationen auszugleichen, wurde es mit einem Weichzeichnungsfilter geglättet. Dieser Weichzeichnungsfilter summiert für jeden einzelnen Bin des Diagramms alle Einträge im Umkreis von n Bins auf. Diese Summe wird durch die Anzahl der Bins, über die summiert wurde, dividiert. Somit erhält man die mittleren Einträge aller im Umkreis liegenden Bins. Zusätzlich wurde im Weichzeichnungsfilter eine Schwelle definiert. Liegt die mittlere Eintragszahl unter dieser Schwelle, wird die Schwellenhöhe in das weichgezeichnete Diagramm eingetragen. Mit dieser Schwelle wird vermieden, dass durch die Normierung auf die Referenzprobe statistische Fluktuationen und nicht bereinigte Untergrundeinträge in den äußeren Bereichen des Ortsspektrums eine starke Gewichtung erhalten. In weiteren Messungen sollte die Referenzprobe dennoch mit etwas besserer Statistik vermessen werden. Abbildung 5.10 zeigt das weichgezeichnete ($n = 3$) Diagramm des Ortsspektrums der Referenzprobe (siehe Abbildung 5.9) mit einer Schwelle von $0.2 \frac{\text{Einträge}}{\text{Bin}}$. Deutlich ist auch das Kreuzmuster zu sehen, das sich mit der Koinzidenzbedingung ergibt (siehe Abbildung 2.6 rechts). Die Ortsspektren der Proben werden durch dieses weichgezeichnete Spektrum dividiert, um die Effizienzunterschiede der verschiedenen Bereiche auszugleichen.

Damit eine absolute Lithiumkonzentration in den rekonstruierten Verteilungen der Emissionsorte des Targets dargestellt wird, müssen die unterschiedlichen Variablen der Messungen berücksichtigt werden. In der Regel erforderten die zu vermessenden Proben eine wesentlich längere Messzeit als die Referenzprobe. Teilweise wurde auch ein anderer Neutronenfluss verwendet. Deshalb müssen die Einträge nach der Effizienzkorrektur mit einem Neutronenfluss- und Messzeit-Faktor, relativ zur Referenzprobe skaliert werden:

$$Z_s = \lambda_{\text{Referenz}} \frac{\phi_{\text{Referenz}}}{\phi_{\text{Probe}}} \cdot \frac{t_{\text{Referenz}}}{t_{\text{Probe}}} Z_u$$

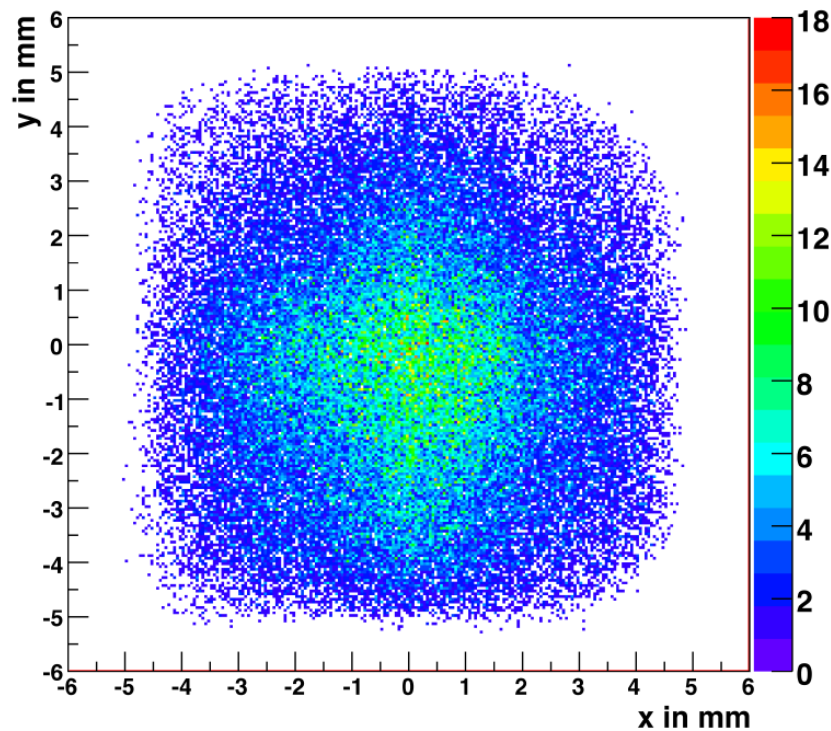


Abbildung 5.9.: Das Diagramm zeigt das Ortsspektrum der, mit einer Rundblende ($D = 15 \text{ mm}$), bedampften Referenzprobe. Es wurde bereits die Energie und Ortskorrektur durchgeführt. Rechts ist der Rand der Blende zu sehen.

Dabei ist ϕ_{Referenz} bzw. ϕ_{Probe} der Neutronenfluss, mit dem die Referenzprobe bzw. Probe vermessen wurde und t_{Referenz} bzw. t_{Probe} die Messzeit an Referenzprobe bzw. Probe. Um eine absolute Kalibrierung zu erreichen, wurden die Ortsspektren der Proben mit dem Lithiumgehalt ($^{\text{nat}}\text{Li}$) der Referenzprobe $\lambda_{\text{Referenz}} = 0.48 \pm 0.03 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ multipliziert. Z_{u} bezeichnet die Einträge im Ortsspektrum nach der Effizienzkorrektur und Z_{s} gibt die absolute Lithiumkonzentration in der Probe in Einheiten von $\frac{\text{g}}{\text{cm}^2}$ wieder.

Die einzig mögliche systematische Fehlerquelle dieser Methode liegt in der Genauigkeit des angegebenen Lithiumgehaltes der Referenzprobe. Alle anderen Abhängigkeiten, wie Strahlprofil, Strahlintensität, Target-Detektorabstand oder Nachweiseffizienz der Detektoren wurden durch die Normierung auf die Referenzprobe eliminiert. Die Anwendung dieser Methode auf erste Gewebeproben wird im Abschnitt 5.5 diskutiert.

5.5. Messung der Gewebeproben

Detektoraufbau P ermöglicht eine besonders einfache, genaue und ortsaufösende Bestimmung der Lithiumkonzentration von Proben. Die Methode zur Bestimmung des Lithi-

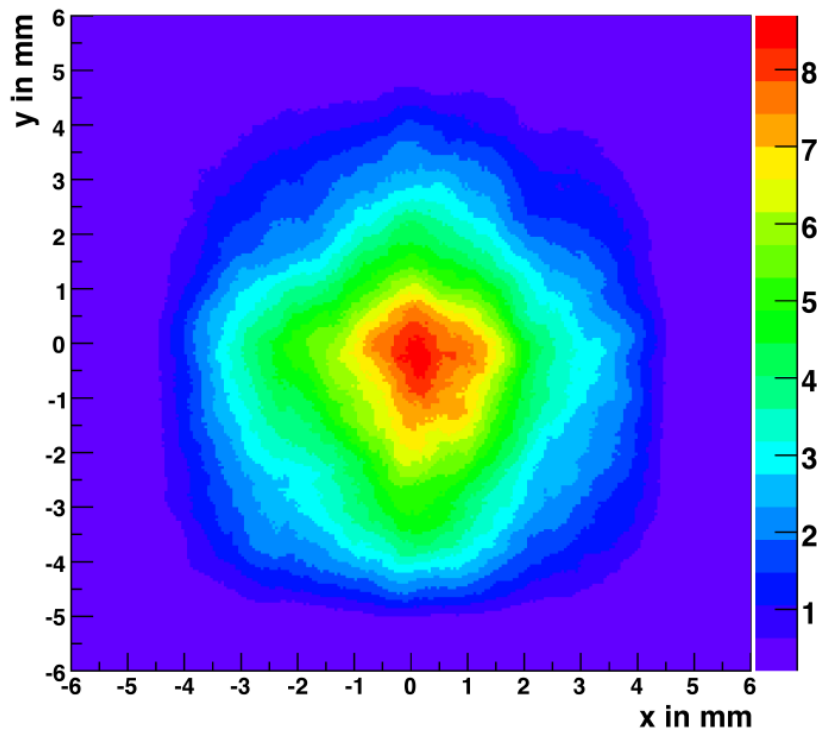


Abbildung 5.10.: Das Diagramm zeigt das weichgezeichnete ($n = 3$) Ortsspektrum der Referenzprobe. In den Außenbereichen, wo die Anzahl der Einträge im Mittel unterhalb der Schwelle lag, wurde der Schwellenwert von $0.2 \frac{\text{Einträge}}{\text{Bin}}$ in das Diagramm eingetragen.

umgehaltenes, die in Abschnitt 5.2 und Unterabschnitt 5.4.3 erklärt wurde, soll in diesem Kapitel in der Anwendung an ersten Gewebeproben diskutiert werden. Beispielhaft soll die Vermessung von zwei Gewebeproben (Probe *A* und *B*) gezeigt werden.

Probe *A* ist eine $30 \mu\text{m}$ dicke Gehirnpote eines zu Lebzeiten mit Lithium behandelten Menschen. Die Dicke wurde mit $30 \mu\text{m}$ größer gewählt als die in Unterabschnitt 2.5.2 erörterte Optimaldicke von $10 \mu\text{m}$, da bei ersten Messungen ein hoher Lithiumgehalt wünschenswert war. Eine Limitierung durch den Untergrund war bei dieser Messung nicht zu erwarten, da bei einer Lithiummedikation die Lithiumkonzentration bis zu einem Faktor 1000 angehoben wird (siehe Kapitel 1). Somit ist die Lithiumkonzentration der Probe hoch genug, dass der Energiebereich bis zur Triggerschwelle genutzt werden kann (vgl. Unterabschnitt 2.5.2) und nicht bereinigte Untergrundeinträge nur einen vernachlässigbaren Fehler bewirken. Die Messzeit dieser Gehirnpote war $86 \cdot 10^3 \text{ s}$, bei einem Neutronenfluss von $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{cm}^2 \text{ s}}$.

Die Koinzidenzbedingung ist wichtigstes Werkzeug um den Untergrund in den Spektren zu minimieren. Um die Untergrundeinträge noch weiter zu vermindern wurde eine Flug-

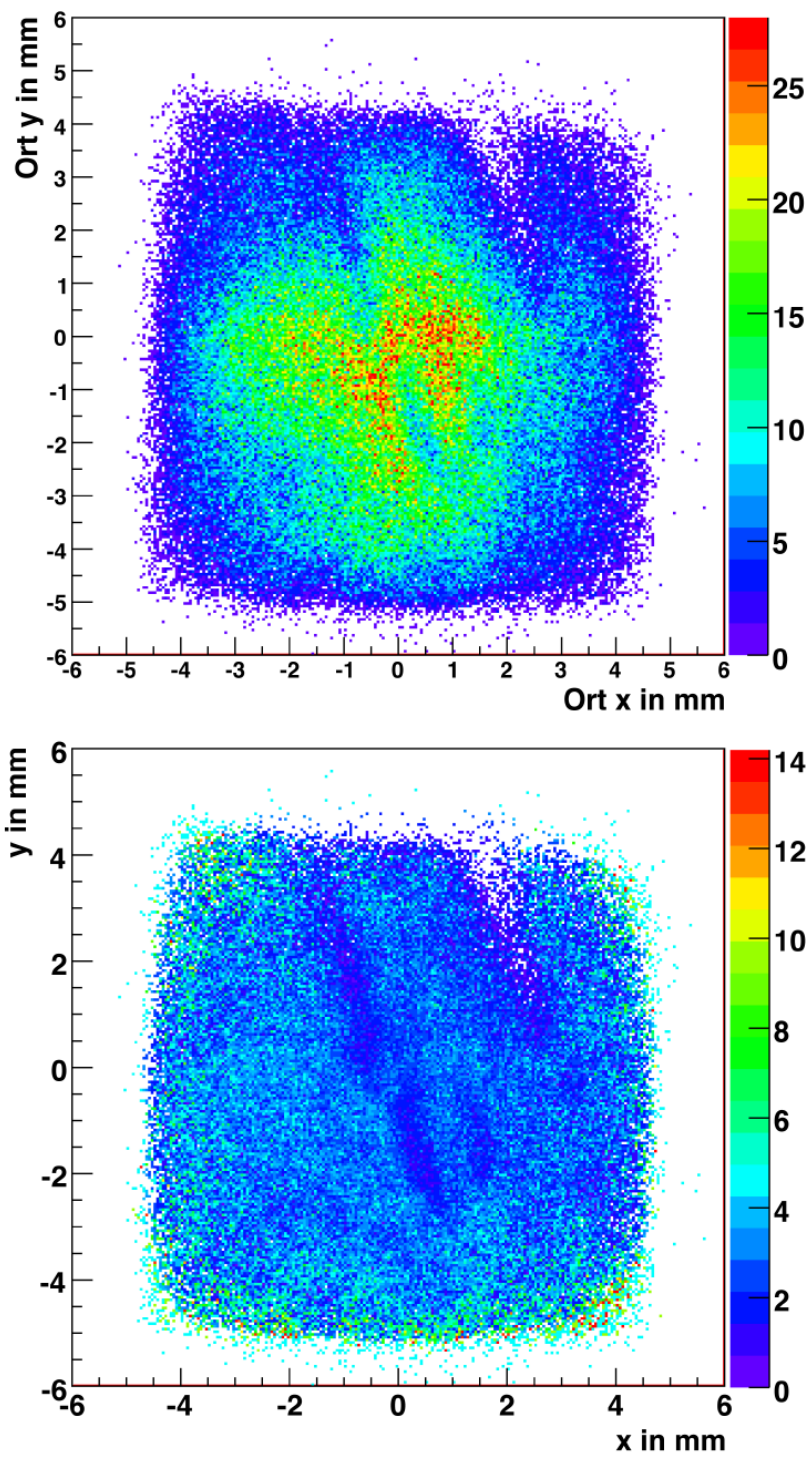


Abbildung 5.11.: Ortsspektren der Probe A
Oben: nach der Flugzeiteinschränkung und dem "Energiecut" auf die α - und Tritiumteilchen.
Unten: nach der Effizienzkorrektur.

zeiteinschränkung, die in Abschnitt 5.2 diskutiert wurde, durchgeführt. Das Zeitfenster musste von 20 ns , wie es bei Experiment 1 verwendet wurde, auf etwa 100 ns vergrößert werden, da die PSD Signale mit ca. 400 ns eine längere Anstiegszeit als die PIN-Dioden Signale haben (siehe Unterabschnitt 3.3.1). Aus diesem Grund konnten die Untergrundeinträge mit Hilfe der Flugzeit nur um 47% reduziert werden, während in Experiment 1 der Untergrund um 83% dezimiert wurde. Um die Untergrundeinträge möglichst vollständig zu entfernen, wurde eine Energieeinschränkung definiert, die genau an die α - und Tritiumeinträge angepasst wurde. Abbildung 5.11 oben zeigt das Ortsspektrum der Probe A nach diesen Einschränkungen. Die Einträge in diesem Spektrum zeigen nun fast ausschließlich Emissionsorte von α - und Tritiumteilchen aus $n+{}^6\text{Li}$ Reaktionen. Deutlich ist die nach außen abfallende Effizienz zu erkennen. Um diese ortsabhängige Effizienz bei der Bestimmung der Lithiumkonzentration zu berücksichtigen, wurde dieses Spektrum durch das Ortsspektrum der bedampften Referenzprobe (siehe Abbildung 5.10), wie in Unterabschnitt 5.4.3 beschrieben, dividiert. Abbildung 5.11 unten zeigt das Ergebnis. Die Mitte dieses Spektrums enthält viele Einträge, die jeweils ein kleines statistisches Gewicht (Farbcode blau) besitzen. Weiter außen gibt es nur noch wenige Einträge, die aufgrund der Effizienz Anpassung stärker gewichtet wurden (grüne und gelbe Einträge), so dass die mittlere "Bin"-Belegung im gesamten Spektrum etwa konstant ist. Da in den äußeren Bereichen die Eintragsanzahl gering ist, können dort große statistische Fluktuationen auftreten, die nicht die wahre Lithiumverteilung der Probe wiedergeben. Diese Einträge haben daher nur eine geringe Aussagekraft. Aus diesem Grund wurde für die Darstellung der Lithiumkonzentration nur ein Quadrat von $\pm 4\text{ mm}$ betrachtet. Um das Spektrum auf die Referenzprobe zu normieren wurde es mit dem passenden Neutronenfluss, der Messzeit und der Lithiumkonzentration der Referenzprobe skaliert. Das Spektrum gibt nun den Lithiumgehalt der vermessenen Probe wieder. Um die visuelle Darstellung zu optimieren und ein leichtes Ablesen der Lithiumkonzentration zu ermöglichen, wurde in der Datenanalysesoftware ein Weichzeichnungsfilter mit variablem Radius implementiert, der sich automatisch der Anzahl der α - und Tritiumeinträge anpasst. Aufgrund der hohen Statistik bei dieser Messung betrug der Radius des Weichzeichnungsfilters lediglich $0.2\text{ mm} \hat{=} 4\text{ Bins}$. Abbildung 5.12 oben zeigt das weichgezeichnete Ortsspektrum von Probe A. Die erhöhte Lithiumkonzentration am Rand (besonders links oben) resultiert aus statistischen Fluktuationen, die durch die Effizienz Anpassung verstärkt wurden. Die Bereiche in der Mitte und rechts oben, die eine geringe Lithiumkonzentration aufweisen, sind Risse im Gewebe, was sich durch eine Mikroskopaufnahme verifizieren lässt. Abbildung 5.12 unten zeigt ein Foto dieser Gewebeprobe bei 6.3-facher Vergrößerung. Das rote $10 \times 10\text{ mm}^2$ Quadrat zeigt den Bereich, den die Detektoren erfassen konnten. Das Gewebe rollte sich einige Tage nach der Messung auf, da die $25\frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2}$ dicke Kohlenstoffolie dem $30\text{ }\mu\text{m}$ dicken, nachtrocknendem Gewebe nicht mehr stand hielt. Die Risse im Gewebe stimmen in Form, Größe und Positionierung mit den Bereichen geringer Lithiumkonzentration im Spektrum überein.

Im Ortsspektrum von Probe A lässt sich eine Lithiumkonzentration von $10.8 \pm 0.7\frac{\text{ng}}{\text{cm}^2}$ ablesen. Wird der Fehler der Referenzprobe mit berücksichtigt, ergibt sich für Probe A eine Lithiumkonzentration von $\lambda_A = 10.8 \pm 1.4\frac{\text{ng}}{\text{cm}^2}$. Mit der Probendicke d und der Dichte

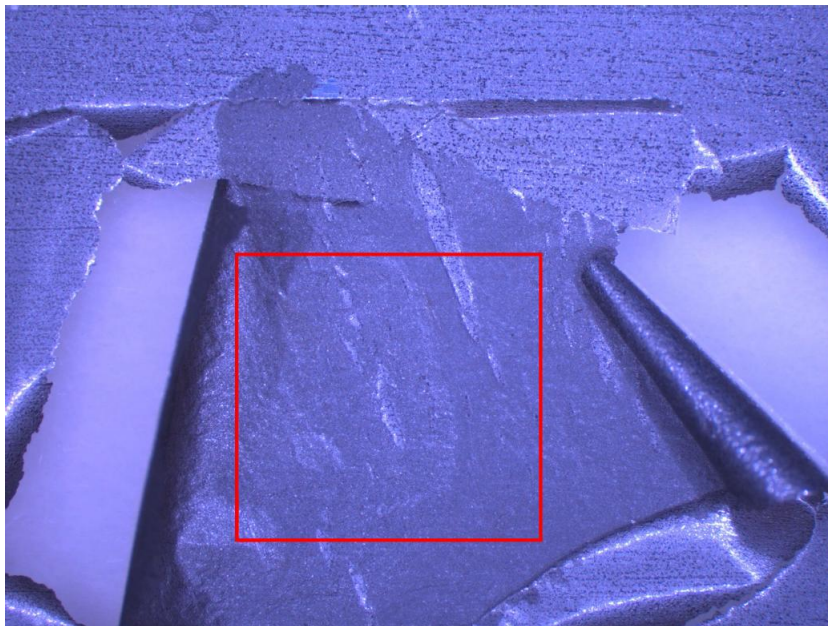
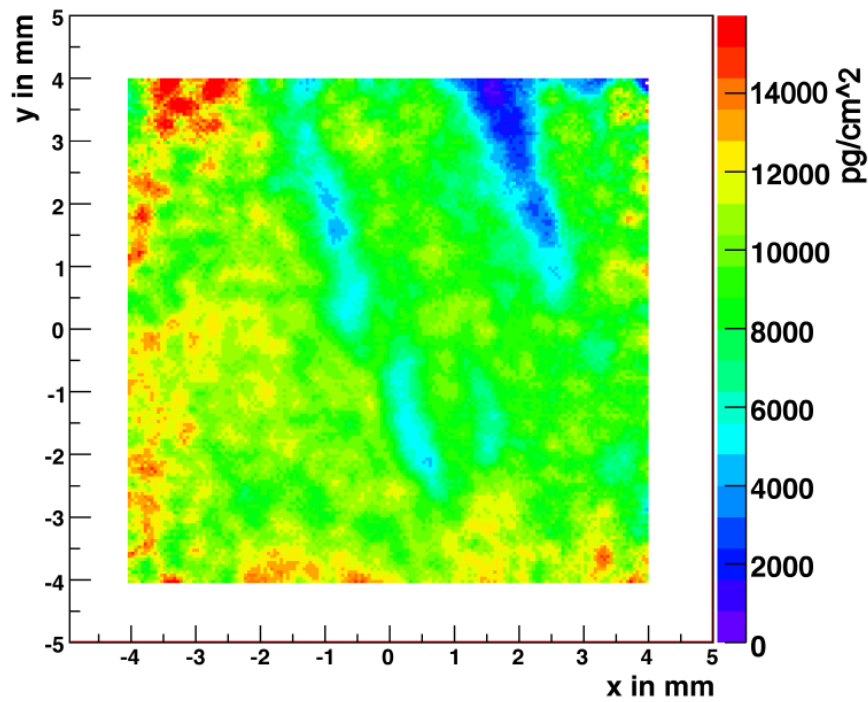


Abbildung 5.12.: Oben: absolute Lithiummenge in $\frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}$ der Probe A nach Anwendung des Weichzeichnungsfilters mit einem Durchmesser $D = 200 \mu\text{m}$. Unten: Foto der $30 \mu\text{m}$ dicken Gewebeprobe bei 6.3-facher Vergrößerung. Der rote Bereich kennzeichnet die Fläche, die von den Detektoren erfasst wurde.

5. Versuchsdurchführung

von Fett ($\rho_{Fett} = 0.9 \frac{g}{cm^3}$ [EBF]) lässt sich der Massenanteil des Lithium von Probe A berechnen:

$$\frac{m_{Li}}{m_{Probe}} = \frac{\lambda_A}{d \cdot \rho_{Fett}} = \frac{10.8 \pm 1.4 \frac{ng}{cm^2}}{0.9 \frac{g}{cm^3} \cdot 30 \mu m} = 4.0 \pm 0.5 ppm$$

Probe A stammte aus dem Gehirn eines erwachsenen Menschen, daher kann davon ausgegangen werden, dass ein Gehirn-zu Serum-Lithiumverhältnis von $\frac{m_B(Li)}{m_S(Li)} = 0.92 \pm 0.36$ [LRA] besteht. Somit lag die Lithiumkonzentration im Serum bei $4.35 \pm 1.79 \frac{mg}{l}$. Diese Serumkonzentration liegt im Bereich, der für die Prophylaxe bei affektiven Störungen angestrebt wird ($4.2 - 5.6 \frac{mg}{l}$) [GNP]. Vergleicht man die Lithiumkonzentration dieser Probe mit dem Literaturwert eines gesunden Menschen ($5 \frac{ng}{cm^3}$ [FLM]), stellt man fest, dass die Lithiumkonzentration um den Faktor $k = \frac{11 \frac{ng}{cm^2}}{5 \frac{ng}{cm^3} \cdot 30 \mu m} = 730$ höher ist. Bei der Lithiumtherapie wird die Lithium-Serumkonzentration bis zu einem Faktor 1000 angehoben (siehe Kapitel 1). Dies konnte mit der Messung von Probe A verifiziert werden.

Als zweites Beispiel soll eine $10 \mu m$ dicke Großhirnprobe (Probe B) eines zu Lebzeiten gesunden, mit Lithium unbehandelten Menschen diskutiert werden. Diese Probe wurde $47 \cdot 10^3 s$, mit einem Neutronenfluss von $\phi = 5.7 \cdot 10^9 \frac{1}{cm^2 s}$ bestrahlt. Abbildung 5.13 oben zeigt das Ortsspektrum dieser Probe, bei dem bereits eine Flugzeiteinschränkung durchgeführt und ein passender "Energiecut" gesetzt wurde. Zusätzlich wurde bereits die Effizienz, wie in Unterabschnitt 5.4.3 beschrieben, korrigiert. Die einzelnen Einträge weiter außen wurden dadurch stärker gewichtet (Farbcode grün und rot), während die zahlreichen Einträge in der Mitte ein geringes statistisches Gewicht (Farbcode lila) erhielten. Anschließend wurde das Spektrum, wie auch bei Probe A, auf die Referenzprobe normiert, indem es mit der passenden Messzeit, dem Neutronenfluss und der Lithiumkonzentration der Referenzprobe skaliert wurde. Durch die geringe Eintragsanzahl von 560 Events ist ohne Weichzeichnung nur sehr schwer eine Lithiumkonzentration ablesbar. Abbildung 5.13 unten zeigt das Spektrum nach Anwendung des Weichzeichnungsfilters. In den oberen Ecken des Spektrums existieren Bereiche mit höherer (rot) und unten gibt es Bereiche mit geringerer (grün) Lithiumkonzentration. Die unterschiedlichen Konzentrationen resultieren aus statistischen Fluktuationen, die aufgrund der geringen Eintragsanzahl stärker ausgeprägt sind als bei Probe A. Diese Gebiete sind sehr großflächig, da der Radius des Weichzeichnungsfilters mit $2.0 mm \hat{=} 40$ Bins sehr groß war. Diese Fluktuationen beeinflussen das Spektrum bis in den mittleren Bereich. Daher sollte in späteren Experimenten die Effizienz (siehe Abschnitt 6.3) des Aufbaus gesteigert werden. Es lässt sich eine mittlere Lithiumkonzentration von $40 \pm 4 \frac{pg}{cm^2}$ ablesen. Neben der Ableseunsicherheit, die von den statistischen Fluktuationen erzeugt wird, liegt eine weitere Fehlerquelle bei der Separation der α - und Tritiumeinträge vom Untergrund (bei der Messung von Probe A war dieser Fehler aufgrund der hohen Eintragsanzahl vernachlässigbar). Es bestanden Zweifel, ob nach der Flugzeit- und Energieeinschränkung alle Einträge im Spektrum von den α - und Tritiumteilchen erzeugt wurden oder ob teilweise auch Untergrundeinträge enthalten waren (siehe Abschnitt 5.6). Daher ist die Anzahl der α - und Tritiumeinträge ebenfalls mit einer Unsicherheit von 560 ± 40 behaftet. Dieser Fehler und die Unsicherheit aufgrund der statistischen Fluktuationen wurden quadratisch addiert. Mit

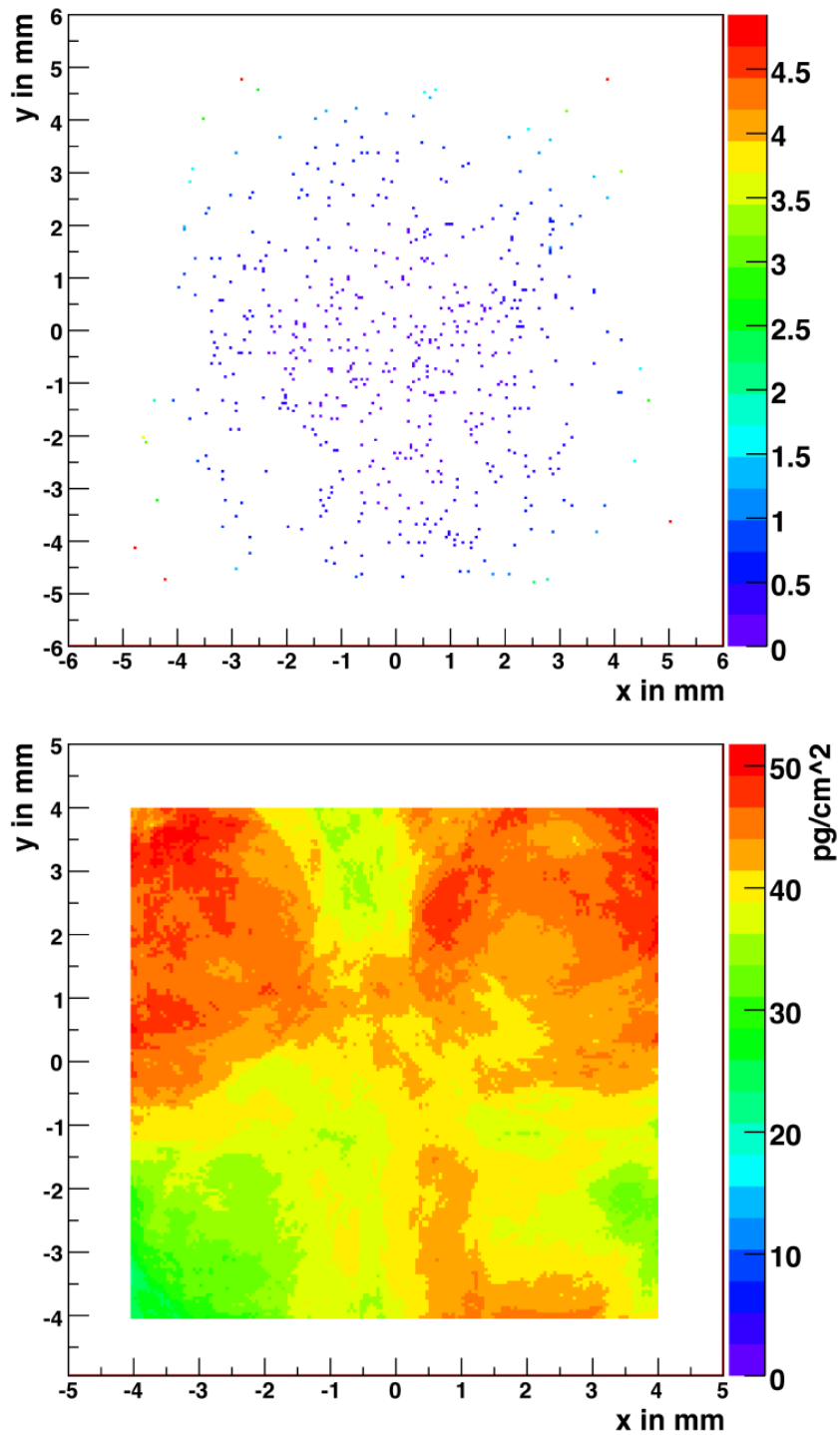


Abbildung 5.13.: Orts-Spektrum der $10\ \mu\text{m}$ dicken Großhirn-Probe
Oben: nach der Flugzeit-, Energieeinschränkung und der Effizienzkorrektur.
Unten: nach der Normierung auf die Referenzprobe.

dem systematischen Fehler der Referenzprobe ($\lambda_{\text{Referenz}} = 0.48 \pm 0.03 \frac{\mu\text{g}}{\text{cm}^2} \text{ nat Li}$), der linear hinzuaddiert wurde, kann für Probe B eine Lithiumkonzentration von $\lambda_B = 40 \pm 7 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}$ angegeben werden. Der in Probe B enthaltene Massenanteil des Lithium ist somit:

$$\frac{m_{\text{Li}}}{m_{\text{Probe}}} = \frac{\lambda_B}{d \cdot \rho_{\text{Fett}}} = \frac{40 \pm 7 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}}{0.9 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} 10 \mu\text{m}} = 44 \pm 8 \text{ ppt}$$

In der Literatur ist der Lithiumgehalt eines gesunden Menschen mit ca. $5 \frac{\text{ng}}{\text{cm}^3}$ [FLM] angegeben. Das Ergebnis von Probe B liegt etwa um einen Faktor acht über diesem Wert. Der Grund für diese abnorm hohe Lithiummenge liegt in der Verunreinigung des Targetssubstrates mit Lithium. Nach Experiment 2 wurde der Lithiumgehalt verschiedener Gewebeprobenträger gemessen. Dabei wurden, um die Messzeit zu verkürzen, jeweils zwei leere Targetrahmen mit Targetssubstrat mit Neutronen bestrahlt. Diese Leermessungen ergaben eine durchschnittliche Lithiumbelegung des Targetssubstrates von etwa $\lambda_{\text{leer}} = 40 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}$. Offenbar wurde die Lithiumkontamination beim Herstellungsprozess der Targetssubstrate eingetragen (siehe Abschnitt 6.6). Die auf dem Targetssubstrat enthaltene Lithiumkonzentration ist in etwa mit der von Probe 2 identisch. Folglich muss angenommen werden, dass der, bei der Messung von Probe B , ermittelte Lithiumgehalt durch die Verunreinigung dominiert wird und somit nur eine Obergrenze von $\lambda_B = 40 \pm 7 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}$ angegeben werden kann. Für weitere Messungen ist es notwendig, die Verunreinigungsquelle aus dem Herstellungsprozess zu entfernen oder auf andere, lithiumfreie Probensubstrate zurückzugreifen (siehe Abschnitt 6.6).

5.6. Apparative Grenzen der Methode

Bei der Vermessung von Probe B (siehe Abschnitt 5.5) lag der Fehler der gemessenen Lithiumkonzentration bei ca. $\pm 19\%$. Der einzige systematische Fehler dieser Messung lag beim Lithiumgehalt der Referenzprobe, der nur mit einer Genauigkeit von $\pm 6.3\%$ angegeben werden konnte. Der größte Fehleranteil (10%) lag bei der Ablesegenauigkeit, die aufgrund von statistischen Fluktuationen begrenzt war. Eine weitere statistische Unsicherheit erzeugte die Anzahl der α - und Tritiumeinträge im Spektrum. Diese Einträge konnten nicht mehr exakt vom Untergrund separiert werden. Abbildung 5.14 zeigt das Energie-Koinzidenzspektrum von Probe B . Die Untergrundeinträge sind stark ausgeprägt. Vor allem Bor erzeugt durch den koinzidenten Zerfall in ein Alphateilchen und einen ${}^7\text{Li}$ -Kern aufgrund des außerordentlich hohen Einfangquerschnittes von $\sigma_{10\text{B}}(E_n = 1.83 \text{ meV}) = 14.2 \text{ kbarn}$ (siehe Unterabschnitt 2.5.1) viele Untergrundeinträge im Spektrum. Die koinzidenten α - und ${}^7\text{Li}$ -Einträge sind zu niedrigeren Energien verschmiert, da die Reaktionsprodukte auf dem Weg zu den Detektoren Energie in Restgas und Target verlieren. Der dünne vertikale Streifen parallel zur dominanten Bor-Häufung resultiert aus den ${}^7\text{Li}$ - und Alphateilchen, bei dem der ${}^7\text{Li}$ -Kern sofort in den Grundzustand übergeht. Dieser Zerfallskanal findet in 6% aller Fälle statt. Die horizontale Bor-Häufung ist weniger stark ausgeprägt, da die Triggerschwelle des einen Detektors auf 300 keV eingestellt war, während die Triggerschwelle des anderen Detektors lediglich 125 keV betrug. Die Alphateilchen aus der Bor-Reaktion deponieren im Detektor

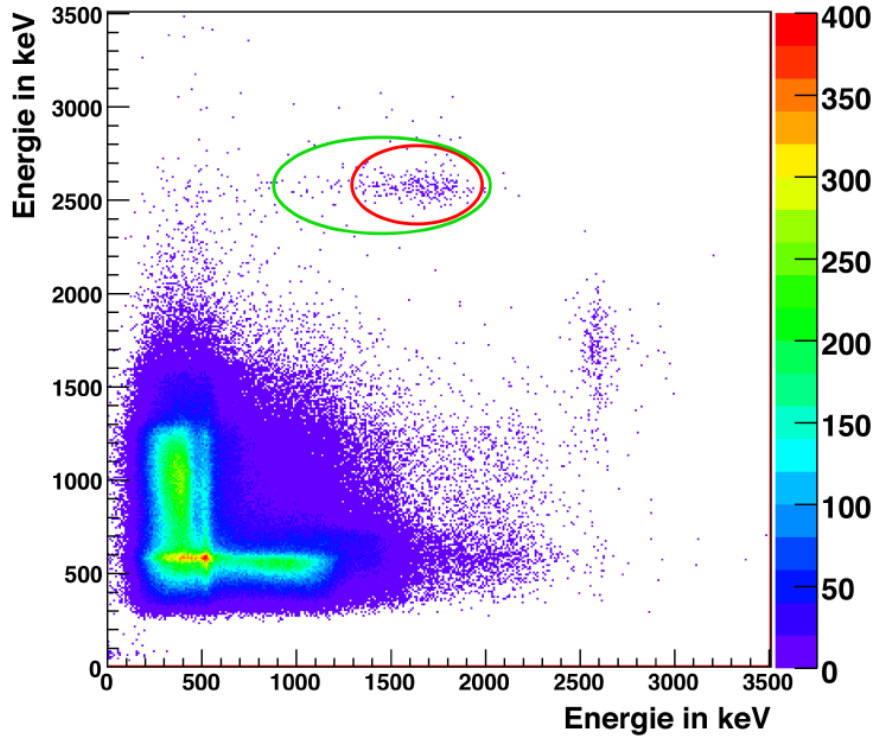


Abbildung 5.14.: Energie-Koinzidenz-Spektrum der Großhirnprobe. Aufgrund der hohen Untergrundrate können die α - und Tritiumeinträge nicht exakt von den Untergrundeinträgen separiert werden.

eine Energie von bis zu 1300 keV . Daher konnte nicht zweifelsfrei geklärt werden, ob alle Einträge in der grüne Ellipse von koinzidenten α - und Tritiumteilchen stammen. Es besteht die Möglichkeit, dass die Einträge in der grünen Ellipse, die nicht in der roten Ellipse liegen, durch zufällige Koinzidenzen der Alphateilchen aus der Bor-Reaktion mit den Tritiumteilchen aus der Lithiumreaktion erzeugt werden. Aus diesem Grund konnte die Anzahl der α - und Tritiumeinträge nur mit einer Unsicherheit (560 ± 40) angegeben werden.

Die statistischen Fehler wurden quadratisch addiert um anschließend den systematischen Fehler der Referenzprobe linear zu addieren:

$$\frac{\Delta\lambda_B}{\lambda_B} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N_{\alpha T}}{N_{\alpha T}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\lambda_{\text{vis}}}{\lambda_{\text{vis}}}\right)^2} + \left|\frac{\Delta\lambda_{\text{Ref}}}{\lambda_{\text{Ref}}}\right|$$

λ_{vis} bzw. λ_{Ref} gibt die abgelesene Lithiumkonzentration der Probe B bzw. die Lithiumkonzentration der Referenzprobe an und $N_{\alpha T}$ ist die Anzahl der α - und Tritiumeinträge im Spektrum. Die beiden statistischen Fehler $\frac{\Delta N_{\alpha T}}{N_{\alpha T}}$ und $\frac{\Delta\lambda_{\text{vis}}}{\lambda_{\text{vis}}}$ können mit höherer Eintragsstatistik verkleinert werden. Die Unsicherheit nimmt dabei mit der Quadratwurzel

der Einträge ab. Wird ein Fehler von 15% vorgegeben, der die apparative Grenze dieser Methode festlegt, lässt sich der minimal nachweisbare Lithiumgehalt λ_{\min} wie folgt berechnen:

$$\lambda_{\min} = f \cdot \lambda_B \quad \text{mit} \quad f = \frac{\left(\frac{\Delta N_{\alpha T}}{N_{\alpha T}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \lambda_{\text{vis}}}{\lambda_{\text{vis}}}\right)^2}{\left(0.15 - \left|\frac{\Delta \lambda_{\text{Ref}}}{\lambda_{\text{Ref}}}\right|\right)^2} = 1.97$$

Die apparative Grenze dieser Methode mit Detektoraufbau P liegt also bei einer Lithiumkonzentration von:

$$\lambda_{\min} = f \cdot \lambda_B = 1.97 \cdot 40 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2} = 79 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}$$

Der minimale Massenanteil von Lithium in einer Probe der Dicke $d = 10 \mu\text{m}$ ist damit:

$$\frac{m_{\text{Li}}}{m_{\text{Probe}}} = \frac{\lambda_{\min}}{d \cdot \rho_{\text{Fett}}} = \frac{79 \frac{\text{pg}}{\text{cm}^2}}{10 \mu\text{m} \cdot 0.9 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}} = 88 \text{ ppb}$$

Diese Nachweisgrenze liegt deutlich über der Nachweisgrenze der Atom-Absorptions-Spektroskopie ($0.5 \frac{\text{ng}}{\text{cm}^3}$ [FLM]). Jedoch können mit der AAS lediglich integrale Lithiummessungen durchführen werden, bei denen die Gewebestruktur zerstört wird. Während mit der, in dieser Arbeit entwickelten, Methode kleinste Gehirnbereiche ortsaufgelöst darstellbar sind. Mit den in Kapitel 6 beschriebenen Verbesserungsvorschlägen scheint eine apparative Grenze unter einem ppb erreichbar, so dass diese Methode von Seiten der Nachweisgrenze durchaus mit der Atom-Absorptions-Spektroskopie konkurrieren kann. So scheint eine Messzeit von ca. zwei Stunden pro Probe, mit ausreichender Statistik, realisierbar. Damit können viele Messungen in kurzer Zeit durchgeführt werden und die Aufzeichnung einer Lithiumkarte des menschlichen Gehirns ist möglich. Vor allem die Ortsauflösung trägt dazu bei, dass die Lithiumkonzentration auch von kleinen Gehirnbereichen, wie z.B. der Hypophyse, bestimmt werden kann. Diese Karte soll dazu beitragen die Funktionsweise und den Wirkungsort des Lithium im Gehirn zu verstehen.

Die koinzidente α - und Tritiummessung mit Detektorsystem P eignet sich für den Nachweis der Lithiumkonzentration von Gewebeschnitten aus Menschen, die unter einer Lithiumtherapie standen. Gewebeproben von Menschen ohne Lithiummedikation und von Menschen die ihr Leben durch Suizid beendeten, bei denen der erwartete Lithiumgehalt geringer ist, stellt mit den Verbesserungen ebenfalls kein Problem dar. Damit ließe sich diese Methode anwenden, um bei ungeklärten Todesfällen einen Suizid, aufgrund einer depressiven Phase, auszuschließen oder zu bestätigen.

6. Ausblick

Wie in dieser Arbeit diskutiert, besitzt das Verfahren des koinzidenten Teilchennachweises schon mit einem einfachen Detektoraufbau eine sehr hohe Sensitivität zum Nachweis von ${}^6\text{Li}$. Trotzdem gibt es noch zahlreiche Stellen, an denen das Experiment optimiert werden kann, um die Nachweiseffizienz weiter zu steigern und systematische Messungen an Gewebeproben zu ermöglichen.

6.1. Verlängerung der Trocknungszeit

Die einzelnen Trocknungsfaktoren TF in Tabelle 4.2 weichen stark voneinander ab. Beispielsweise war der minimale Trocknungsfaktor $TF_{\min} = 3.21$, während der maximale Trocknungsfaktor einen Wert von $TF_{\max} = 4.39$ aufwies. Zusätzlich wurde beobachtet, dass die gefriergetrockneten Proben nachtrocknen. Probe Nr. 6 wurde nach ca. 150 Stunden erneut gewogen. In diesen 6 Tagen verlor die Gewebeprobe weitere 5% ihrer Masse. Eine Trocknungszeit von 10 *min* reichte also nicht aus um das Wasser vollständig zu sublimieren.

Um einen Anhaltspunkt zu erhalten, welcher Trocknungsfaktor erreichbar ist, wurde nach dem Experiment eine Langzeittrocknung durchgeführt. Dabei wurden 10 Gewebeschnitte, wie sie im Experiment verwendet wurden, gefriergetrocknet. Der Trocknungsvorgang wurde, wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, durchgeführt. Anstatt jedoch nach 10 *min* zu belüften, befand sich die Probe etwa 70 Stunden im Vakuum. Während dieser Zeit wurde die Masse der Gewebeprobe um 78.4% reduziert, was einem Trocknungsfaktor von $TF = 4.62$ entspricht. Die Literatur gibt im menschlichen Gehirn einen Wasseranteil von 375 g Wasser pro 100 g Trockenmasse an [NRK]. Das entspricht einem prozentualen Wasseranteil von $\frac{m_W}{m_W + m_{TM}} = \frac{375 \text{ g}}{475 \text{ g}} = 78.9\%$. $TF = 4.62$ liegt also sehr nahe am maximal erreichbaren Trocknungsfaktor $TF_L = 4.75$, bei dem die Gewebeprobe kein Wasser mehr enthält.

Neben dem zusätzlichen Energieverlust, den das Wasser in den Gewebeproben verursacht, erzeugt es auch Untergrundreaktionen mit den Neutronen. Daher sollte in weiteren Experimenten die Trocknungszeit auf etwa eine Stunde verlängert werden, damit dieser Trocknungsfaktor erreicht wird.

6.2. Verbesserung der Detektor-Elektronik

Die Ortsauflösung der PSD wird durch eine Widerstandsschicht im PSD erzeugt. Durch diese Widerstandsschicht fließt die bei einem Teilcheneinschlag erzeugte Ladung über zwei Kanäle ab, wobei sich die Ladung proportional zum Einschlagsort des Teilchens im

Detektor aufteilt. Somit ist die minimal notwendige Gesamtenergie, dass mindestens das Signal eines Kanals über der Triggerschwelle liegt, abhängig vom Einschlagsort des Teilchens im Detektor. Erfolgt z.B. ein Teilcheneinschlag am Rand des Detektors, fließt die gesamte Ladung über diese Seite ab und es reicht eine Energie in Höhe der Triggerschwelle aus, um im Koinzidenzfall aufgezeichnet zu werden. Schlägt jedoch ein Teilchen in der Mitte des Detektors ein, muss aufgrund der Signalteilung die im Detektor deponierte Energie doppelt so groß sein, damit das Signal mindestens eines Kanals über der Triggerschwelle liegt. Die Triggerschwellen der beiden Kanäle erzeugen im Orts-Energiespektrum ein "Triggerdreieck", in dem keine Einträge liegen (siehe Unterabschnitt 5.4.1) und dessen Maximum in der Mitte des Detektors liegt.

Ferner besitzen kleine Signale eine längere Anstiegszeit als Signale mit großen Amplituden. Folglich konnte mit einer Shapingzeit von $2 \mu s$, wie sie im Experiment verwendet wurde, nur noch ein Teil des Signals aufgenommen werden. Dieser "Ballistic Deficit" genannte Effekt ist am stärksten in der Mitte des Detektors ausgeprägt (siehe Unterabschnitt 5.4.1).

Durch die "Energieabsenkung" der in der Mitte des Detektors eingeschlagenen Alphateilchen, lagen diese zu Beginn von Experiment 2 teilweise im "Triggerdreieck" und das Ereignis wurde nicht aufgezeichnet. Dies führte zu einer Ausdünnung der Ortsspektren der einzelnen Detektoren. Abbildung 6.1 oben zeigt das Ortsspektrum y^{Det1} eines PSD mit diesem Effekt. Auf der y -Achse sind die Anzahl der Einträge pro Kanal aufgetragen. Am Rand des Spektrums (bei $\pm 5 \text{ mm}$) ist eine erhöhte Eintragszahl zu sehen. Diese vermehrten Einträge resultieren aus Teilcheneinschlägen in den Kontaktstreifen (siehe Unterabschnitt 5.4.1). Nach diesen Häufungen folgt eine konstante Eintragszahl von etwa $600 \frac{\text{Einträge}}{\text{Kanal}}$. Im Bereich von -2 mm bis etwa 0 mm verringert sich die Eintragsanzahl aufgrund des "Triggerproblems". Die asymmetrische Anordnung der Ausdünnung ist auf eine unterschiedliche Triggerschwelle in den beiden y -Kanälen zurückzuführen. Abbildung 6.1 unten zeigt das zweidimensionale Ortsspektrum des PSD. Die rote Ellipse berandet den Bereich mit niedrigerer Eintragsstatistik. Die Ausdünnung erstreckt sich über die gesamte Breite des Detektors, da zu Beginn von Experiment 2 das Triggersignal ausschließlich aus den y -Signalen der beiden Detektoren gebildet wurde.

Dieser Effekt verbesserte sich, als zusätzlich zu den y -Kanälen auch die x -Signale zur Triggerbildung verwendet wurden. Nach dieser Maßnahme reduzierte sich der Bereich mit verringerter Eintragsanzahl auf den Detektormittelpunkt (gelber Kreis in Abbildung 6.1 unten). Nach der Absenkung der Triggerschwellen auf den minimal möglichen Wert von 125 keV , verschwand die Ausdünnung im Spektrum der Referenzprobe vollständig. Bei der Messung der Gewebeproben trat dieser Effekt jedoch wieder auf, da die Alphateilchen im Gewebe Energie verlieren.

Um dieses Triggerproblem zu beseitigen, sollte für weitere Experimente eine verbesserte Elektronik entwickelt werden, die die Energien der einzelnen, zusammengehörigen Vorverstärkersignale vor den Shaperkarten aufsummiert (z.B.: $E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$). Diese, vom Einschlagsort unabhängigen, Summensignale können zur Triggerbildung herangezogen werden. Als dessen Resultat ist die Triggerschwelle ortsunabhängig und niederenergetische Alphateilchen aus dem Target können aufgezeichnet werden. Durch die vergleichba-

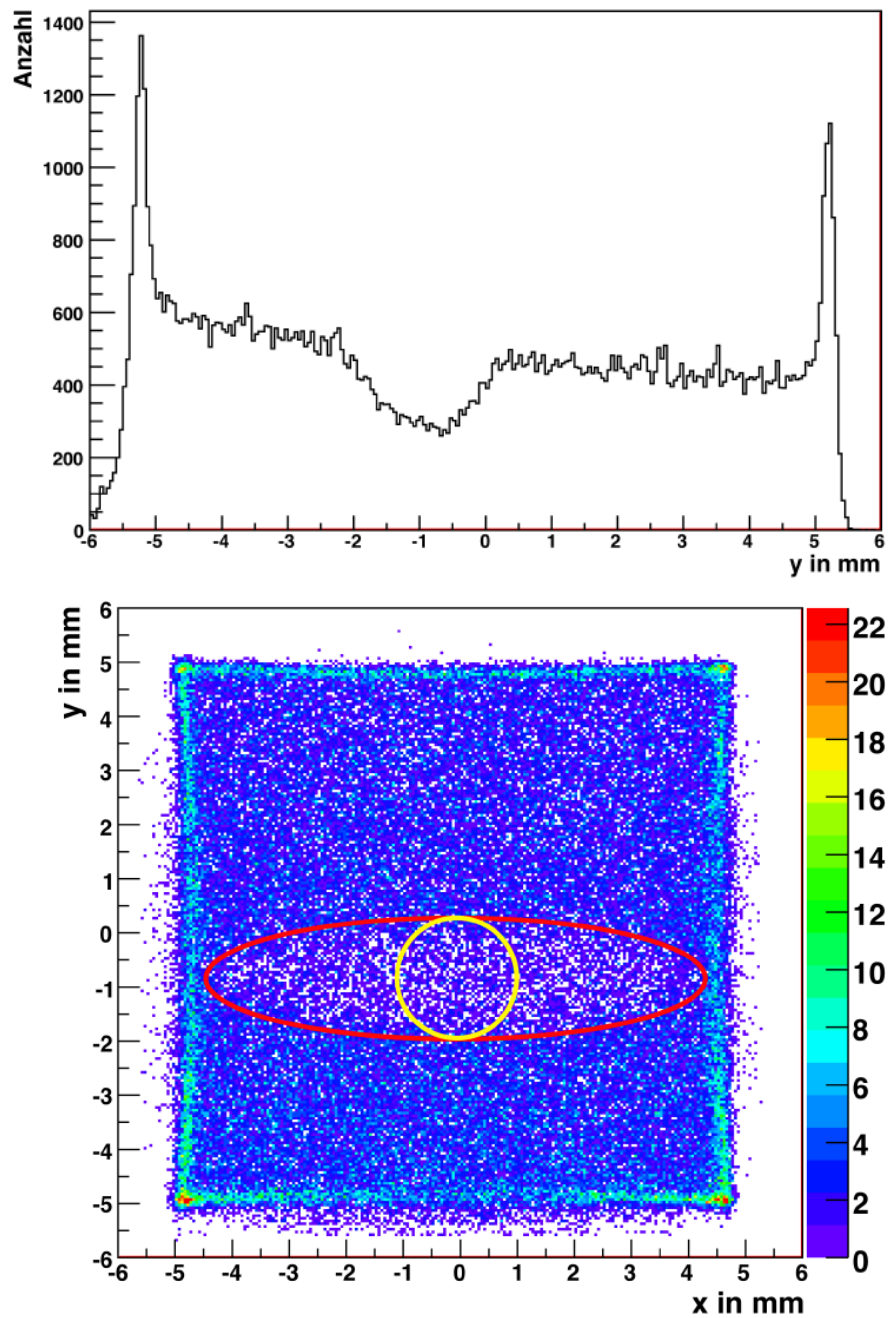


Abbildung 6.1.: Oben: Ortsspektrum eines PSD. In der Mitte dünnt sich das Spektrum aufgrund der fehlenden Triggerrate aus.

Unten: Zweidimensionales Ortsspektrum des PSD. Die fehlenden Einträge werden von der roten Ellipse eingekreist. Nach Hinzunahme der x -Signale zur Triggerbildung reduzierte sich der Bereich mit niedriger Eintragsanzahl auf den gelben Kreis.

ren Energien der α - und Tritiumteilchen, haben ihre Summensignale annähernd identische und relativ kurze Anstiegszeiten. Folglich kann das Koinzidenzfenster genau den Signalen angepasst und damit verkürzt werden. Als Folge dessen nehmen die Untergrundeinträge in den Spektren ab. Zusätzlich bewirken die kürzeren Anstiegszeiten, dass ein größerer Anteil der Signale genutzt werden kann. Folglich sollten die α - und Tritiumenergien nur noch geringfügig vom Einschlagsort des Teilchens im Detektor abhängen.

Ein weiterer Vorteil dieser Elektronik ist, dass im Summensignal das Signal-zu-Untergrundverhältnis verbessert wird. Enthält z.B. das x_1 -Signal eines Detektors ein Rauschsignal, ist das identische Rauschsignal mit umgekehrter Polarität auch im x_2 -Signal enthalten. Durch die Summenbildung wird dieses Widerstandsrauschen, das aus der Widerstandsschicht des PSD resultiert, ausgelöscht und die α - und Tritiumhäufungen in den Spektren besitzen eine schmalere Halbwertsbreite.

Zusätzlich sollte eine längere Shapingzeit von $4 \mu\text{s}$ verwendet werden um einen größeren Anteil der Signale nutzen zu können. Dies ist besonders bei der Verwendung von größeren Detektoren (siehe Abschnitt 6.3) wichtig, die aufgrund ihrer größeren Kapazität eine längere Anstiegszeit besitzen. Eine längere Shapingzeit bedingt mehr "Pile Up" und mehr zufällige Koinzidenzen in den Spektren. Um diese Effekte dennoch gering zu halten, sollten in weiteren Experimenten die Untergrundreaktionen reduziert werden (siehe Abschnitt 6.5).

6.3. Steigerung der Effizienz

Die Nachweisgrenze der, in dieser Arbeit entwickelten, Methode zur Bestimmung der Lithiumkonzentration in organischen Gewebe liegt etwa zwei Größenordnungen über der Nachweisgrenze der Atom-Absorptions-Spektroskopie (siehe Abschnitt 5.6). Daher sollte in weiteren Experimenten versucht werden, die Effizienz des Detektorsystems noch weiter zu steigern. Hier gibt es noch große Verbesserungsmöglichkeiten, da die mittlere Effizienz des gegenwärtigen Aufbaus nur im Prozentbereich liegt (siehe Abschnitt 2.4). Eine Möglichkeit ist eine weitere Verringerung des Target-Detektorabstandes. Dadurch rücken die Detektoren näher an den Neutronenstrahl und eventuell in dessen Halo, was für vermehrte Untergrundreaktionen sorgt und die Effektivität des Aufbaus reduziert (siehe Abschnitt 5.6). Unter Umständen könnten sogar die Detektoren beschädigt werden, indem die Bor-Dotierung durch Neutronenreaktion verringert wird. Daher sollte zur Steigerung der Effizienz besser die aktive Fläche der Detektoren vergrößert werden. Eine Möglichkeit hierfür ist das Doppeldetektorsystem, wie es im Experiment 2 getestet wurde. Da die Ortsauflösung eine grundlegende Verbesserung in der Lithiumbestimmung darstellt, ist es zweckmäßig, auf jeder Seite des Targets zwei PSD mit einer aktiven Fläche von $10 \times 10 \text{ mm}^2$ zu befestigen. Die Detektoren haben jeweils eine Größe von $12.2 \times 12.2 \text{ mm}^2$. Das führt zu einem ca. 2.5 mm breiten, inaktiven Streifen in der Mitte des Detektorsystems, in der die maximale Effizienz der Messung vorliegt. Zusätzlich steigt bei diesem Detektorsetup die Anzahl der Auslesekanäle, was die Unterbringung der Kabel in der beengten Probenkammer immer schwieriger gestaltet. Eine bessere Möglichkeit, die Effizienz des Detektorsystems zu steigern, ist daher die Verwendung von PSD Detek-

toren¹ mit einer aktiven Fläche von $20 \times 20 \text{ mm}^2$. Aufgrund der Größe der Detektoren ist es notwendig, den Target-Detektorabstand auf etwa 20 mm zu vergrößern, damit die Detektoren nicht vom Neutronenstrahl beschädigt werden. Trotz der Verbreiterung des Abstandes lässt sich mit diesen Detektoren die mittlere Effizienz des Detektorsystems, je nach Targetgröße, bis zu einem Faktor 10 steigern.

Ein Nachteil der vierfach größeren Detektoren ist die vierfach längere Anstiegszeit der Signale. Bei den aktuellen PSD konnte mit einer Shapingzeit von $2 \mu\text{s}$ nur noch ein Teil des Signals genutzt werden. Dieser Effekt verstärkt sich mit längeren Anstiegszeiten noch weiter. Aus diesem Grund bedingen die größeren Detektoren eine Shapingzeit von $4 \mu\text{s}$. Eine längere Integrationszeit ist jedoch nur mit der Reduktion des Untergrundes (siehe Abschnitt 6.5) möglich, da ansonsten auch "Pile Up" und zufällige Koinzidenzen häufiger auftreten und damit die Emissionsort der α - und Tritiumteilchen verfälscht wiedergegeben werden. Hier wäre die Entwicklung großer Detektoren mit einer niederohmigeren Widerstandsschicht (Anstiegszeit $\tau \propto RC$, siehe Unterabschnitt 3.3.1) sehr von Nutzen. Zusätzlich würde eine verbesserte Elektronik dazu beitragen einen größeren Anteil der Detektorsignale zu nutzen (siehe Abschnitt 6.2).

Die $20 \times 20 \text{ mm}^2$ großen PSD bieten die maximale Effizienzsteigerung und die Probleme, die bei der Verwendung dieser Detektoren auftreten, scheinen lösbar. Daher ist die Verwendung von größeren Detektoren die beste Möglichkeit, um die Nachweisgrenze des Detektorsystems noch weiter zu senken.

6.4. Abschirmung des Neutronenhalo

Vor Beginn der Experimente wurde mit einer photoempfindlichen Platte ein Profil des Neutronenstrahls aufgenommen (siehe Unterabschnitt 3.2.2). Der in Abbildung 3.9 gezeigte Querschnitt des Neutronenstrahls zeigt nur den Bereich maximaler Intensität. Dieses Gebiet ist von einem Neutronenhalo umgeben, der das Aluminiumtarget trifft und dort Untergrundreaktionen direkt vor den Detektoren erzeugt. Die dabei entstehenden Teilchen erzeugen in den Spektren "Pile Up", der die Rekonstruktion des Emissionsortes verfälscht. Zusätzlich verursachen diese Teilchen zufällige Koinzidenzen mit α - oder Tritiumteilchen, so dass die "echten" Einträge nur noch schwer von diesem Untergrund separierbar sind (siehe Abschnitt 5.6). Deshalb sollte für weitere Experimente eine Blende konstruiert werden, die diesen Neutronenhalo abschirmt und dafür sorgt, dass ausschließlich das Targetsubstrat mit den Gewebeprobe und nicht der Aluminiumrahmen mit Neutronen bestrahlt wird. Diese Blende sollte außerdem groß genug sein um den restlichen Detektoraufbau, insbesondere die Detektoren, vor gestreuten Neutronen zu schützen. Des Weiteren muss sie die Neutronen auf einer Dicke von ca. 5 mm möglichst vollständig absorbieren. Daher ist es notwendig ein Material mit möglichst hohem Neutroneneinfangquerschnitt zu verwenden. Zusätzlich dürfen bei dem Absorptionsprozess keine hochenergetischen β - und γ -Teilchen entstehen, da sich diese nur sehr schwer abschirmen

¹2L20UV_SU9 von der Firma SiTek ELECTRO OPTICS (<http://www.sitek.se/>) mit ihrer deutschen Vertretung durch Firma LASER COMPONENTS (<http://www.lasercomponents.com/de/>)

lassen. Ein geeignetes Blendenmaterial wäre daher Borcarbid ($^{10}B_4C$) oder Lithiumfluorid (6LiF), die durch Neutronenabsorption nur 7Li -Kerne und Alphateilchen, bzw. α - und Tritiumteilchen erzeugen. Diese "schweren" Teilchen sind leicht abschirmbar, indem die Blende in einen dünnen Absorber, z.B. Polytetrafluorethylen, eingebettet wird. Die Blende sollte nur wenige Zentimeter vor dem Target-Detektorsetup platziert werden, damit Parallaxeneffekte minimiert werden.

Mit der Blende lässt sich eine wesentliche Untergrundquelle beseitigen. Untergrundmessungen mit und ohne Aluminiumrahmen zeigten, dass damit der gesamte Untergrund um etwa einen Faktor 5 reduziert wird.

6.5. Spülung der Probenkammer mit Helium

Während der Messungen wurde in der Probenkammer ein Unterdruck von ca. 50 *mbar* angelegt, damit die Teilchen auf dem Weg vom Target zu den Detektoren möglichst wenig Energie verlieren. Eine Reduktion des Luftdrucks bis unter 10^{-4} *mbar*, bei dem eine ausreichende Durchschlagsfestigkeit für die Detektorspannung gewährleistet ist, war nicht möglich, da die Probenkammer undichte Stellen aufweist. Die Neutronen reagieren mit den ^{14}N -Kernen des Restgases und erzeugen in einer (n, p)-Reaktion viele Protonen. Diese Untergrundrate erzeugt, wie schon in Abschnitt 6.4 diskutiert wurde, "Pile Up" und zufällige Koinzidenzen mit den α - oder Tritiumteilchen aus dem Target, die die Messungen verfälschen. Aus diesem Grund sollte in weiteren Messungen der Luftstickstoff durch ein weniger reaktives Gas ersetzt werden. Besonders geeignet ist Helium, da das zu fast 100% vorkommende 4He nicht mit den Neutronen reagiert. Eine einfache Füllung der Probenkammer bei einem Unterdruck von 50 – 100 *mbar* ist jedoch nicht möglich, da, wie schon oben erwähnt wurde, die Probenkammer undichte Stellen besitzt und sie sich somit mit fortschreitender Zeit wieder mit Luftstickstoff füllen würde. Demzufolge muss die Kammer im Durchfluss betrieben werden. Da die Lecks in der Probenkammer nur wenig Luft eindringen lassen, sollte ein Durchfluss von etwa $50 \frac{l}{h}$ ausreichen um die Stickstoffreaktionen weitgehend zu unterdrücken. Folglich würde etwa eine 50 *l* Heliumflasche mit 200 *bar* pro Messzeitwoche benötigt. Ein weiterer Vorteil der Heliumspülung ist, dass die Teilchen in der Heliumatmosphäre um etwa einen Faktor 3 – 4 weniger Energie verlieren als in der Stickstoffumgebung. Der Grund dafür ist, dass der Energieverlust in etwa proportional zur Kernladungszahl des absorbierenden Materials ist.

Die Heliumspülung sollte den Untergrund nochmal um etwa einen Faktor 2 – 3 unterdrücken, so dass davon auszugehen ist, dass mit der Blende (siehe Abschnitt 6.4) und der Heliumspülung der Untergrund mindestens um einen Faktor 10 reduziert wird. Folglich kann der Neutronenfluss erhöht werden und somit die apparative Grenze gesenkt werden. Des Weiteren scheint der Einsatz von $20 \times 20 \text{ mm}^2$ großen Detektoren (siehe Abschnitt 6.3) mit einer Shapingzeit von 4 μs möglich.

6.6. Neue Trägerfolien für die Gewebeproben

Im Anschluss an Experiment 2 wurden Untergrundmessungen mit leeren Targetträgern durchgeführt. Diese Messungen zeigten, dass die Targetsubstrate mit Lithium und Bor verunreinigt sind. Da der Lithiumgehalt auf dem Probenträger etwa eine Größenordnung über der erwarteten Lithiumkonzentration der Gewebeprobe von Menschen ohne Lithiummedikation liegt, konnte lediglich eine Obergrenze für den Lithiumgehalt von Probe *B* angegeben werden (siehe Abschnitt 5.5). Außerdem bewirkte die Bor-Verunreinigung der Targetsubstrate, dass bei Probe *B* neben der Ableseungenauigkeit und dem systematischen Fehler der Referenzprobe noch die Unsicherheit der Anzahl der α - und Tritium-einträge im Spektrum berücksichtigt werden musste (siehe Abschnitt 5.5). Somit stieg die Unsicherheit der Lithiumkonzentration von Probe *B* auf 17.5% an.

Die Verunreinigung des Targetsubstrates wird von verschiedenen Quellen, die während des Herstellungsverfahrens eine Rolle spielen, eingetragen. Beispielsweise wird das Targetsubstrat mittels eines Wasserbades, das etwa 4 *ppb* Lithium und 10 *ppb* Bor enthält, auf den Aluminiumrahmen aufgezogen. Des Weiteren kommt das Targetsubstrat mit diversen Hilfsmitteln wie z.B. Glucose, das verwendet wird um im Wasserbad die auf Glasplatten aufgedampfte Kohlenstoffolie abzulösen, in Berührung. Alle diese Hilfsmittel enthalten in geringen Mengen Lithium und Bor. Offensichtlich kumuliert das Targetsubstrat im Wasserbad das Lithium und das Bor, so dass sich eine Flächenbelegung in der Größenordnung von $40 \frac{pg}{cm^2} \text{ nat } Li$ und $100 \frac{pg}{cm^2} \text{ nat } B$ ausbildet. Die Verwendung von hochreinem Wasser (Bor- und Lithiumgehalt $< 10 \text{ ppt}$) und Quarzglasbehältern (normale Gläser enthalten Bor) brachte keine wesentliche Verbesserung in der Lithium- und Bor-Verunreinigung. Außerdem lassen sich die meisten Verunreinigungsquellen nicht einfach aus der Prozesskette nehmen. Dieses Verunreinigungsproblem kann gelöst werden, indem anstatt der Kohlenstoffolie ein alternatives Targetsubstrat verwendet wird, bei dessen Herstellung keine Lithium- und Bor-verunreinigten Hilfsmittel verwendet werden. Nach Experiment 2 wurden verschiedene Folien, unter anderem auch Hightech-Membrane der Firma Sympatex² und Goretex³, auf ihren Lithium- und Bor-Gehalt untersucht. Es stellte sich heraus, dass kommerzielle PE-Folien aus dem Supermarkt lediglich eine Lithiumkonzentration von $\lambda_{PE}(Li) = 15 \frac{fg}{cm^2}$ und kein Bor enthalten. Somit liegt die Lithiumkonzentration dieser Folien etwa drei Größenordnungen unter der erwarteten Lithiummenge einer Gewebeprobe von mit Lithium untherapierten Menschen. Zusätzlich konnte diese, ursprünglich 15 μm dicke, Folie auf etwa 500 *nm* gedehnt werden, so dass die Alphateilchen lediglich etwa 100 *keV* beim Durchgang durch die Folie verlieren. Folglich kann diese PE-Folie als Targetsubstrat verwendet werden und die exakte Messung von Gewebeproben mit geringer Lithiumkonzentration sollte ohne Probleme möglich sein. Ein weiterer Vorteil dieser Targetsubstrate liegt in der Unempfindlichkeit gegenüber Wasser. Folglich können die Proben nach der Messung konserviert und eingefärbt werden um das aufgenommene Lithiumspektrum einem Foto der Gewebeproben zuzuordnen.

²<http://www.sympatex.de/>

³<http://www.gore-tex.de/>

6.7. Potential aller Verbesserungsschritte

Durch die in Abschnitt 6.2 und Abschnitt 6.3 dargestellte Optimierung des Detektoraufbaus wird die Nachweiswahrscheinlichkeit für die Reaktion ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ um einen Faktor zehn gesteigert. Da es gleichzeitig möglich ist den Untergrund durch parasitäre Reaktionen und elektronische Effekte um mindestens einen Faktor zehn zu senken, wird für zukünftige Experimente der volle, am PGAA-Messplatz zur Verfügung stehende, Neutronenfluss nutzbar sein. Damit kann die Messzeit um einen weiteren Faktor zwei bis vier reduziert werden. Mit der Verwendung der neuen, annähernd Lithium- und Borfreien Probensubstrate (siehe Abschnitt 6.6) ist eine Limitierung der Methode durch den Untergrund nicht mehr zu erwarten. Somit liegt die Grenze der Methode bei

$$\lambda_t = \frac{4\pi R M}{0.0759 N_A \phi \sigma A \Omega} = 81 \frac{\text{fg}}{\text{cm}^2}$$

wobei eine Reaktionsrate von $R = 10^{-3} \frac{1}{\text{s}}$, der maximal mögliche Neutronenfluss von $\phi = 2.0 \cdot 10^{10} \frac{1}{\text{cm}^2 \text{s}}$, eine Targetgröße von 2.0 cm^2 , eine aktive Detektorfläche von $20 \times 20 \text{ mm}^2$ und ein Target-Detektorabstand von 20 mm angenommen wurde. Diese Massenflächendichte entspricht einem minimal nachweisbaren Massenanteil von

$$\frac{m_{\text{Li}}}{m_{\text{Probe}}} = \frac{\lambda_t}{d \cdot \rho_{\text{Fett}}} = \frac{81 \frac{\text{fg}}{\text{cm}^2}}{10 \mu\text{m} \cdot 0.90 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}} = 90 \text{ ppt}$$

Wird der Detektoraufbau weiter so konstruiert, dass verschiedene Proben auf der Targetleiter automatisch gewechselt werden können, steht einer Serienmessung zur systematischen Untersuchung der Lithiumverteilung im menschlichen Gehirn nichts mehr im Weg.

A. Gegenfeldproblem

Zu Beginn der Messungen stieg der Leckstrom ($I = 30 \text{ nA}$) der PSD zeitweise stark an (siehe Abschnitt 5.5). Die Stromzunahme trat vor allem nach einer längeren Messzeit bei hoher Lithiumkonzentration auf. Nach einer längeren Messpause sank der Strom teilweise wieder ab, erreichte jedoch nicht mehr den ursprünglichen Wert von 30 nA . Mit dem Leckstromanstieg ging eine Störung des Signals einher, die in den Spektren eine Absenkung der Energie verursachte. Abbildung A.1 zeigt die Energiesumme $E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$ der bedampften Referenzprobe, die gegenüber dem Ort x^{Det1} aufgetragen ist. Deutlich sind die beiden Häufungslinien der α - und Tritiumteilchen zu sehen. Auf der rechten Seite, im Intervall von 1 mm bis 4 mm , werden die Häufungslinien, besonders die der Alphateilchen, zu niedrigeren Energien verschmiert. Das Spektrum wurde zu Beginn des Leckstromanstiegs aufgezeichnet, wo der Energieverlust der Teilchen noch schwach ausgeprägt war. Dieser Effekt dehnte sich mit fortlaufender Zeit auf den gesamten Detektor aus. Zusätzlich verstärkte sich die Energieverschmierung, so dass die scharfen Häufungslinien auf ein breites Energieintervall (ca. 1000 keV) verteilt wurden. Ferner waren am Oszilloskop neben den erwartungsgemäß positiven Shapersignalen auch Signale mit negativer Polarität zu sehen. Eine Messung des Widerstandes der PSD ergab, dass dieser, von ursprünglichen $12 \text{ k}\Omega$, auf $80\text{--}100 \text{ k}\Omega$ angestiegen war. Daraufhin wurden die Detektoren mit gereinigtem Isopropanol gewaschen. Eine erneute Widerstandsmessung ergab, dass dieser nun wieder seinen ursprünglichen Wert von $12 \text{ k}\Omega$ besaß.

Die Ursache für diese Störung wird auf Aufladungseffekte im Guard-Ring-Bereich der Detektoren zurückgeführt: Durch Neutronenreaktionen im Target und Restgas entstehen positiv geladene Ionen und Elektronen. Die Ionen driften zu den Detektoren, an dessen Anoden (Vorderseite), nach Angaben des Herstellers, eine negative Spannung angelegt wurde. Durch die 35 nm dicke Anti-Reflexionsschicht (siehe Unterabschnitt 3.3.1) wird die leitende Widerstandsschicht gegenüber der Umwelt isoliert. Die positiven Ionen können somit nicht abfließen und lagern sich an dieser Schicht an. Dort erzeugen sie ein elektrisches Feld, das dem im Detektor angelegten elektrischen Feld entgegengerichtet ist. Dieses Feld bewirkt den Anstieg des Widerstandes und erklärt auch die negativen Shapingsignale am Oszilloskop. Durch die Reinigung mit dem Isopropanol wurden die Ionen entfernt und der ursprüngliche Zustand der PSD wieder hergestellt.

Um ein erneutes Auftreten dieses Problems zu verhindern, wurde an die Kathoden (Rückseite) eine positive Spannung von $+25 \text{ V}$ angelegt und die Anoden geerdet. Durch die Invertierung der Spannung konnten sich die Ionen nicht mehr an der Frontseite ablagern. An die Rückseite des Detektors gelangten sie ebenfalls nicht und so konnten selbst nach einer einwöchigen Messzeit keine Aufladungseffekte mehr beobachtet werden.

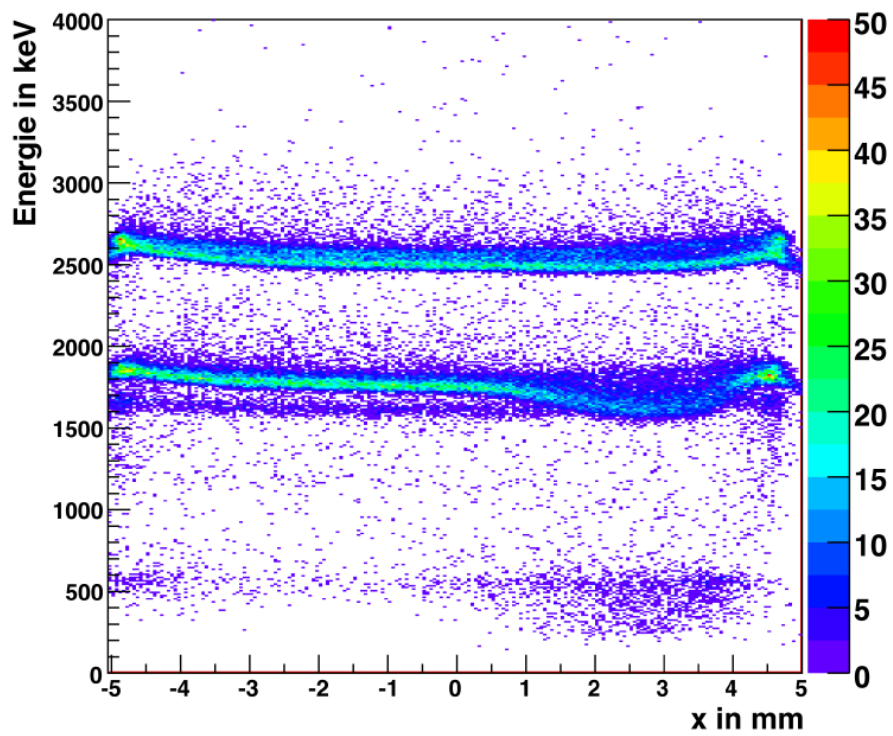


Abbildung A.1.: Energiesumme $E_{x_1}^{\text{Det1}} + E_{x_2}^{\text{Det1}}$, die gegenüber dem Ort x^{Det1} aufgetragen ist. Auf der rechten Seite beginnen die α - und Tritiumteilchen Energie zu verlieren.

B. Mathematicacode für die Raumwinkelberechnung

```
Integrate[Integrate[d * ((d^2 + y^2 + z^2)^(-3/2)),
  {y, 2*yy - a/2, a/2}, Assumptions -> {d ∈ Reals && d > 0 && z ∈ Reals && a > 0 &&
    a ∈ Reals && yy ∈ Reals && zz ∈ Reals && yy > 0 && zz > 0 && yy < a/2 && zz < b/2}],
  {z, 2*zz - b/2, b/2}, Assumptions -> {d ∈ Reals && d > 0 && b > 0 && b ∈ Reals && a > 0 &&
    a ∈ Reals && yy ∈ Reals && zz ∈ Reals && yy > 0 && zz > 0 && yy < a/2 && zz < b/2}]
```

$$\text{ArcTan}\left[\frac{a b}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2}}\right] + \text{ArcTan}\left[\frac{b (a - 4 yy)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 a yy + 16 yy^2}}\right] +$$

$$\text{ArcTan}\left[\frac{a (b - 4 zz)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b zz + 16 zz^2}}\right] +$$

$$\text{ArcTan}\left[\frac{(a - 4 yy) (b - 4 zz)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a yy - 8 b zz + 4 (d^2 + 4 (yy^2 + zz^2))}}\right]$$

In[1]:=

```
OmegaYZ[yy_, zz_, d_, a_, b_] := ArcTan[
$$\frac{a b}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2}}$$
] +
```

$$\text{ArcTan}\left[\frac{b (a - 4 yy)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 a yy + 16 yy^2}}\right] + \text{ArcTan}\left[\frac{a (b - 4 zz)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b zz + 16 zz^2}}\right] +$$

$$\text{ArcTan}\left[\frac{(a - 4 yy) (b - 4 zz)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a yy - 8 b zz + 4 (d^2 + 4 (yy^2 + zz^2))}}\right]$$

In[2]:=

```
Integrate[OmegaYZ[yy, zz, d, a, b], zz]
```

Out[2]=

$$zz \text{ArcTan}\left[\frac{a b}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2}}\right] + zz \text{ArcTan}\left[\frac{b (a - 4 yy)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 a yy + 16 yy^2}}\right] +$$

$$zz \text{ArcTan}\left[\frac{a (b - 4 zz)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b zz + 16 zz^2}}\right] +$$

$$zz \text{ArcTan}\left[\frac{(a - 4 yy) (b - 4 zz)}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a yy - 8 b zz + 4 (d^2 + 4 (yy^2 + zz^2))}}\right] +$$

$$\begin{aligned}
 & 8 a d \left(\frac{1}{64 a d} i (-i b + 2 d) \operatorname{ArcTan} \left[(2 d^2 (b^4 + 4 b^2 d^2 + 8 a^2 b z z - 8 b^3 z z - 16 a^2 z z^2 + 16 b^2 z z^2)) \right] \right. \\
 & \quad \left(-a^2 b^3 d - 4 a^2 b d^3 - 4 b^3 d^3 - 16 b d^5 + 8 a^2 b^2 d z z + 32 b^2 d^3 z z - 16 a^2 b d z z^2 - 64 b d^3 z z^2 + \right. \\
 & \quad a b^3 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} + 4 a b d^3 \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} - \\
 & \quad \left. \left. 4 a b^2 d z z \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} - 16 a d^3 z z \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} \right) \right] + \\
 & \frac{1}{64 a d} i (i b + 2 d) \operatorname{ArcTan} \left[(2 d^2 (b^4 + 4 b^2 d^2 + 8 a^2 b z z - 8 b^3 z z - 16 a^2 z z^2 + 16 b^2 z z^2)) \right] \left. \right. \\
 & \quad \left(a^2 b^3 d + 4 a^2 b d^3 + 4 b^3 d^3 + 16 b d^5 - 8 a^2 b^2 d z z - 32 b^2 d^3 z z + 16 a^2 b d z z^2 + 64 b d^3 z z^2 - \right. \\
 & \quad a b^3 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} - 4 a b d^3 \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} + \\
 & \quad \left. \left. 4 a b^2 d z z \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} + 16 a d^3 z z \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2} \right) \right] + \\
 & \frac{(-i b + 2 d) \operatorname{Log} [b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2]}{128 a d} + \frac{(i b + 2 d) \operatorname{Log} [b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2]}{128 a d} - \\
 & \frac{(-i b + 2 d) \operatorname{Log} [2 a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2 + 2 a \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2}]}{128 a d} - \\
 & \frac{(i b + 2 d) \operatorname{Log} [2 a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2 + 2 a \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2}]}{128 a d} \left. \right) + \\
 & \frac{1}{4} \left(-b \operatorname{ArcTan} \left[(2 d (b^4 - 8 b^3 z z + 8 b (a - 4 y y)^2 z z - 16 (a - 4 y y)^2 z z^2 + 4 b^2 (d^2 + 4 z z^2))) \right] \right. \\
 & \quad \left(a^2 b (b^2 - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 z z^2)) + a \left(16 d^2 z z \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} - \right. \right. \\
 & \quad b^3 \left(8 y y + \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right) + \\
 & \quad \left. 4 b^2 z z \left(16 y y + \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right) - \right. \\
 & \quad \left. \left. 4 b \left(32 y y z z^2 + d^2 \left(8 y y + \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right) \right) \right) \right) + \\
 & \quad 4 \left(-16 d^2 y y z z \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} + \right. \\
 & \quad b^3 \left(d^2 + y y \left(4 y y + \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right) \right) - \\
 & \quad \left. \left. 4 b^2 z z \left(2 d^2 + y y \left(8 y y + \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right) \right) + 4 b \left(d^4 + 16 \right. \right. \\
 & \quad \left. \left. y y^2 z z^2 + d^2 \left(4 y y^2 + 4 z z^2 + y y \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right) \right) \right) \right) \left. \right) - \\
 & d \left(-\operatorname{Log} [b^2 + 4 d^2 - 8 b z z + 16 z z^2] + \operatorname{Log} [2 a^2 + b^2 + 4 d^2 - 16 a y y + 32 y y^2 - 8 b z z + \right. \\
 & \quad \left. 16 z z^2 + 2 a \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} - \right. \\
 & \quad \left. \left. 8 y y \sqrt{a^2 + b^2 - 8 a y y - 8 b z z + 4 (d^2 + 4 (y y^2 + z z^2))} \right] \right)
 \end{aligned}$$

ln[3]:=

$$\text{OmegaYz}[\text{yy}_-, \text{zz}_-, \text{d}_-, \text{a}_-, \text{b}_-] := \text{zz ArcTan} \left[\frac{a b}{2 d \sqrt{a^2 + b^2 + 4 d^2}} \right] +$$

$$\begin{aligned}
& zz \operatorname{ArcTan} \left[\frac{b(a - 4yy)}{2d\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8a yy + 16yy^2}} \right] + zz \operatorname{ArcTan} \left[\frac{a(b - 4zz)}{2d\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8b zz + 16zz^2}} \right] + \\
& zz \operatorname{ArcTan} \left[\frac{(a - 4yy)(b - 4zz)}{2d\sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8b zz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))}} \right] + \\
& 8ad \left(\frac{1}{64ad} i(-ib + 2d) \operatorname{ArcTan} \left[(2d^2(b^4 + 4b^2d^2 + 8a^2bzz - 8b^3zz - 16a^2zz^2 + 16b^2zz^2)) \right] / \right. \\
& \quad \left(-a^2b^3d - 4a^2bd^3 - 4b^3d^3 - 16bd^5 + 8a^2b^2dzz + 32b^2d^3zz - 16a^2bdzz^2 - 64bd^3zz^2 + \right. \\
& \quad \left. ab^3d\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} + 4abd^3\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} - \right. \\
& \quad \left. 4ab^2dzz\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} - 16ad^3zz\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} \right) \Bigg] + \\
& \frac{1}{64ad} i(ib + 2d) \operatorname{ArcTan} \left[(2d^2(b^4 + 4b^2d^2 + 8a^2bzz - 8b^3zz - 16a^2zz^2 + 16b^2zz^2)) \right] / \\
& \quad \left(a^2b^3d + 4a^2bd^3 + 4b^3d^3 + 16bd^5 - 8a^2b^2dzz - 32b^2d^3zz + 16a^2bdzz^2 + 64bd^3zz^2 - \right. \\
& \quad \left. ab^3d\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} - 4abd^3\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} + \right. \\
& \quad \left. 4ab^2dzz\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} + 16ad^3zz\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2} \right) \Bigg] + \\
& \frac{(-ib + 2d) \operatorname{Log}[b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2]}{128ad} + \frac{(ib + 2d) \operatorname{Log}[b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2]}{128ad} - \\
& \frac{(-ib + 2d) \operatorname{Log}[2a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2 + 2a\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2}]}{128ad} - \\
& \frac{(ib + 2d) \operatorname{Log}[2a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2 + 2a\sqrt{a^2 + b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2}]}{128ad} \Bigg) + \\
& \frac{1}{4} \left(-b \operatorname{ArcTan} \left[(2d(b^4 - 8b^3zz + 8b(a - 4yy)^2zz - 16(a - 4yy)^2zz^2 + 4b^2(d^2 + 4zz^2))) \right] / \left(a^2b \right. \right. \\
& \quad \left. \left. (b^2 - 8bzz + 4(d^2 + 4zz^2)) + a \left(16d^2zz\sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) - \right. \right. \\
& \quad \left. \left. b^3 \left(8yy + \sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) + \right. \right. \\
& \quad \left. \left. 4b^2zz \left(16yy + \sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) - \right. \right. \\
& \quad \left. \left. 4b \left(32yyzz^2 + d^2 \left(8yy + \sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) \right) \right) \right) + \\
& \quad 4 \left(-16d^2yyzz\sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} + \right. \\
& \quad \left. b^3 \left(d^2 + yy \left(4yy + \sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) \right) - 4b^2zz \right. \\
& \quad \left. \left(2d^2 + yy \left(8yy + \sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) \right) + 4b \left(d^4 + 16yy^2 \right. \right. \\
& \quad \left. \left. zz^2 + d^2 \left(4yy^2 + 4zz^2 + yy\sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) \right) \right) \Bigg] - \\
& d \left(-\operatorname{Log}[b^2 + 4d^2 - 8bzz + 16zz^2] + \operatorname{Log}[2a^2 + b^2 + 4d^2 - 16a yy + 32yy^2 - 8bzz + \right. \\
& \quad \left. 16zz^2 + 2a\sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} - \right. \\
& \quad \left. 8yy\sqrt{a^2 + b^2 - 8a yy - 8bzz + 4(d^2 + 4(yy^2 + zz^2))} \right) \Bigg)
\end{aligned}$$

```
"Eingabedaten:";
a = 10;
b = 10;
d = 17.5;
Targetfläche = 100;
ObereIntegrationsgrenzeZ[yy_] := 5;
ObereIntegrationsgrenzeY = 5;

OmegaY[yy_, d_, a_, b_] :=
(OmegaYz[yy, ObereIntegrationsgrenzeZ[yy], d, a, b] - OmegaYz[yy, 0, d, a, b])

2 * (4 * Re[NIntegrate[OmegaY[yy, d, a, b], {yy, 0, ObereIntegrationsgrenzeY}]] / Targetfläche
```

Out[12]= 0.151087

Tabellenverzeichnis

1.1. Mittlere Lithiumkonzentration im Trinkwasser von Texas mit den Konzentrationsintervallen	11
2.1. Maßgeblichen Elemente des Detektoraufbaus und der Probenkammer. . .	29
2.2. Reichweiten und Stopping Power $\frac{dE}{dx}$ der α - und Tritiumteilchen	31
3.1. Neutronenarten mit zugehörigen Energieintervallen, Geschwindigkeiten und Wellenlängen	37
4.1. Dampfdruck von Wasser bei verschiedenen Temperaturen	61
4.2. Trocknungsfaktoren einiger Proben	64
5.1. Halbwertszeiten und Alphaenergien der Tripel-Alphaquelle	68

Abbildungsverzeichnis

1.1. Aufbau einer Nervenzelle und Synapse	8
1.2. Suizid- und Kriminalitätsrate in Abhängigkeit der Lithiumkonzentration im Trinkwasser	12
2.1. Grundkonzept der Methode	16
2.2. Niveauschema des ${}^7\text{Li} - \text{Kerns}$	17
2.3. Elektromagnetische Abregung des Compoundkerns	18
2.4. Veranschaulichung der Koinzidenzgrenzen	23
2.5. Raumwinkelplot eines $10 \times 10 \text{ mm}^2$ großen Detektors	25
2.6. Raumwinkelplots in verschiedene Raumrichtungen und Dichteplot des Raum- winkels	26
2.7. Veranschaulichung der Detektorfläche, Targetfläche und aktiver Targetfläche	27
3.1. Reaktorkern mit den Strahlrohren und Reaktorbecken von oben	36
3.2. Schematischer Aufbau des Reaktorkerns	36
3.3. Schematischer Aufbau der kalten Quelle	38
3.4. Neutronenspektren mit und ohne Sekundärmoderation und Foto eines Neutronenleiters	39
3.5. Grundriss des FRM II mit den einzelnen Messplätzen	40
3.6. Foto der Neutronenleiterhalle mit dem PGAA	41
3.7. Virtueller Aufbau der PGAA und des PGAA-Messinstrumentes	43
3.8. Foto der konischen ${}^6\text{LiF}$ -Blende	44
3.9. Neutronenstrahl-Profil	46
3.10. Foto der Silizium-Dioden von Experiment 1 mit und ohne Detektorbox . .	47
3.11. Schematische Darstellung und Foto eines PSD	49
3.12. Foto der Doppeldetektoren mit und ohne Detektorbox	50
3.13. Target-Detektor-Aufbau aus Experiment 1	51
3.14. Schematischer Aufbau der Probenkammer und des Detektorsystems P . .	53
3.15. Schematischer Aufbau der Elektronik	55
4.1. Konstruktionszeichnung und Foto eines Targetrahmens	58
4.2. Foto der Kryoschnittanlage	59
4.3. Foto der Gefriertrocknungsanlage	62
5.1. Kalibrierungsspektrum der Tripel-Alphaquelle	69
5.2. Energie-Koinzidenz-Spektrum der ersten getropften Referenzprobe und Foto eines Kristallclusters bei 500-facher Vergrößerung	70

5.3. Energie-Koinzidenz-Spektrum der getropften Referenzprobe mit $4.0 \cdot 10^{-12} \text{ g } ^6\text{Li}$ und Energiesummen-Zeitdifferenz-Spektrum	72
5.4. Energie-Koinzidenz-Spektrum nach der Flugzeiteinschränkung	73
5.5. Energie-Koinzidenz-Spektrum der Referenzprobe die mit den PSD und den 4 Silizium-Dioden vermessen wurde	75
5.6. Unkorrigiertes Energiesummen-Orts-Diagramm	78
5.7. Spektrum der korrigierten Energiesumme eines PSD	79
5.8. Unkorrigiertes und korrigiertes x - y -Spektrum eines PSD	81
5.9. Ortsspektrum der bedampften Referenzprobe nach der Energie und Zeitkorrektur	83
5.10. Weichgezeichnetes Ortsspektrum der Referenzprobe	84
5.11. Orts-Spektrum des mit Lithium behandelten Patienten	85
5.12. In der Effizienz korrigiertes Orts-Spektrum des Lithium-Patienten und das weichgezeichnete Orts-Spektrum	87
5.13. Ortsspektren von Probe B	89
5.14. Energie-Koinzidenz-Roh-Spektrum der Großhirnprobe	91
6.1. Ein- und Zweidimensionales Ortsspektrum der Referenzprobe, die die fehlende Triggerrate zeigen	95
A.1. Energiesumme-Orts-Spektrum mit Gegenfeldproblem	102

Literaturverzeichnis

- [AHB] HANS-JÖRG ASSION, WOLFGANG VOLLMOELLER: *Handbuch Bipolare Störungen: Grundlagen - Diagnostik - Therapie*. 1. Auflage, Verlag Kohlhammer (2006)
- [AMT] G. AUDI, A. H. WAPSTRA AND C. THIBAUT: *The AME2003 atomic mass evaluation*. Nuclear Physics A729 (2003) 337 - 676
- [APT] HANS-HASSO FREY, WOLFGANG LÖSCHER: *Lehrbuch der Pharmakologie und Toxikologie für die Veterinärmedizin*. Sonderausgabe der 2. Auflage, Verlag Enke (2007)
- [BAK] JOACHIM BLÜTHGEN, WOLFGANG WEISCHET: *Allgemeine Klimageographie*. 3. Auflage, Verlag Gruyter
- [BAP] URSULA BAUM: *Anatomie und Physiologie, Band 1*. 7., überarbeitete und aktualisierte Auflage, Verlag Urban & Fischer (2004)
- [BPM] OTTO BENKERT: *Psychopharmaka: Medikamente, Wirkungen, Risiken*. 4., überarbeitete und aktualisierte Auflage, Verlag C.H. Beck (2001)
- [BRP] THOMAS BRAUN, ANNETTE RÖHLER: *Kurzlehrbuch Physiologie*. 1. Auflage, Verlag Elsevier (2006)
- [BWK] J. BLATT, V. WEISSKOPF: *Theoretische Kernphysik*. Verlag Teubner (1959)
- [CGZ] CLAUDE COHEN-TANNOUJDI, BERNARD DIU: *Quantenmechanik*. 2. Auflage, Verlag Gruyter
- [CLT] H. WEINGARTNER, M. RUDORFER, M. LINNOILA: *Cognitive effects of lithium treatment in normal volunteers*. Psychopharmacology 86 (1985) 472 - 474
- [DSP] DATENBLATT DES HIGH LINEARITY POSITION SENSING DETECTOR: *Beschreibung: 2L10UV_SU7, Part Number: S2-0016*. Web. http://www.lasercomponents.com/fileadmin/user_upload/home/Data-sheets/sitek/2l10uv_su7.pdf (30.11.2009)
- [E74] F. AJZENBERG-SELOVE: *Energy levels of light nuclei $A = 5 - 10$* . Nuclear Physics A227 (1974) 1 - 244

- [E88] F. AJZENBERG-SELOVE: *Energy levels of light nuclei $A = 5 - 10$* . Nuclear Physics A490 (1988) 1 - 225
- [EBF] HANS-KONRAD BIESALSKI, PETER FÜRST: *Ernährungsmedizin - Nach dem Curriculum Ernährungsmedizin der Bundesärztekammer*. 3., erweiterte Auflage, Verlag Thieme (2004)
- [EKP] WERNER ECKERT, JÜRGEN KARTENBECK: *Proteine: Standardmethoden der Molekular- und Zellbiologie: Präparation, Gelelektrophorese, Membranttransfer und Immundetektion*. 3. Auflage, Verlag Springer (1997)
- [ELN] F. AJZENBERG AND T. LAURITSEN: *Energy Levels of Light Nuclei IV*. Reviews of modern physics 24 (1952) 321 - 402
- [EPT] CLAUS-JÜRGEN ESTLER, HARALD SCHMIDT: *Pharmakologie und Toxikologie*. 6. Auflage, Verlag Schattauer (2006)
- [FLM] Y. FENG, K. BENCZE UND CH. PELIKAN: *Lithiumbestimmung mit Matrix-modifier KH_2PO_4 in Triton X - 100 im biologischen Material*. Fresenius' Journal of Analytical Chemistry 329 (1987) 595 - 599
- [FRM] WISSENSCHAFTLICHER DIREKTOR: PROF. DR. WINFRIED PETRY: *FRM II: Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz*. Web. <http://www.frm2.tum.de/> (26.12.2009)
- [FVT] PROF. DR. P. FIERLINGER: *Vorlesungsfolien von Teilchenphysik mit Neutronen*. Wintersemester 08/09
- [GNP] P. RIEDERER, G. LAUX: *Neuro-Psychopharmaka: Ein Therapie-Handbuch, Band 3: Antidepressive, Phasenprophylaktika und Stimmungsstabilisierer*. 2. neubearbeitete Auflage, Verlag Springer (1993)
- [GTR] CLAUDIA ROTH: *Ein Mikro-Waageverfahren zur kontinuierlichen Bestimmung der Sublimationsgeschwindigkeit während der Gefriertrocknung*. Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg (2000)
- [HNV] DIETER HENRICHS: *Handbuch Nähr- & Vitalstoffe*. 4., überarbeitete Auflage, Verlag Constantia (2005)
- [JAN] JANIS: *Java-based nuclear information software from the Nuclear Energy Agency*. Web. <http://www.nea.fr/janis/download.html> (11.12.2009)
- [KBA] CLEMENS KIRSCHBAUM: *Biopsychologie von A bis Z*. 1. Auflage, Verlag Springer (2008)
- [KMP] THOMAS KÖHLER: *Medizin für Psychologen und Psychotherapeuten: Orientiert an der Approbationsordnung für Psychologische Psychotherapeuten*. 2. Auflage, Verlag Schattauer (2010)

- [KNK] J. MAGILL, G. PFENNIG, J. GALY: *Karlsruher Nuklidkarte*. 7. Auflage (2006)
- [LAT] HERBERT LIPPERT, DÉsirÉE HERBOLD : *Anatomie Text und Atlas*. 8. Auflage, Verlag Urban & Fischer (2006)
- [LBP] GEORG LÖFFLER, PETRO PETRIDES: *Biochemie & Pathobiochemie*. 8. Auflage, Verlag Springer (2007)
- [LRA] CONSTANCE M. MOORE, CHRISTINA M. DEMOPULOS: *Brain-to-Serum Lithium Ratio and Age: An In Vivo Magnetic Resonance Spectroscopy Study*. Am J Psychiatry 159 (2002) 1240 – 1242
- [LTC] MANFRED LECHNER: *Taschenbuch für Chemiker und Physiker: Physikalisch-chemische Daten*. 4. Auflage, Verlag Springer (2002)
- [MKK] THEO MAYER-KUCKUK: *Kernphysik, Eine Einführung*. 7. Auflage, Verlag Teubner (2002)
- [NND] DATABASE MANAGER: ALEJANDRO SONZOGNI: *Data Source: National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory*, based on ENSDF and the Nuclear Wallet Cards. Web. <http://www.nndc.bnl.gov/chart/reCenter.jsp?z=3&n=3> (08.01.2010)
- [NRK] TEUT RISLER, KARLWILHELM KÜHN: *Facharzt Nephrologie*. 1. Auflage, Verlag Urban & Fischer (2008)
- [NSL] L. KOESTER, K. KNOPF, W. WASCHKOWSKI: *Neutron Scattering Length of Lithium and Boron and their Isotopes*. Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei 312 (1983) 81 - 88
- [PDC] M. LINDROOS AND Ö. SKEPPSTEDT: *A position sensitive photon detector used as a charged particle detector*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A306 (1991) 225 - 228
- [PGA] VERANTWORTLICHE: DR. PETRA KUDEJOVA: *PGAA: Prompte Gamma-Strahl-Aktivierungs-Analyse*. Web. <http://www.frm2.tum.de/wissenschaftliche-nutzung/bestrahlung/pgaa/index.html> (26.12.2009)
- [PUM] PSD USER'S MANUAL, POSITION SENSING DETECTORs, Herstellerfirma: Sitek Elektro Optics. Web. <http://www.sitek.se>
- [QM2] PROF. DR. M. RATZ: *Quantenmechanik II Skript*. Wintersemester 07/08 Kapitel II.4
- [RGN] PETER RIEDERER, GERD LAUX: *Grundlagen der Neuropsychopharmakologie: Eine Therapiehandbuch*. 1. Auflage, Verlag Springer (2010)

- [SLD] GERHARD SCHRAUZER, KRISHNA SHRESTHA: *Lithium in drinking water and the incidence of crimes, suicides and arrests related to drug addictions. In Lithium in Biology and Medicine (Schrauzer, Kippel)* . 1. Auflage, Verlag Vch Pub (1991)
- [SLO] GERHARD SCHRAUZER: *Lithium: Occurrence, Dietary Intakes, Nutritional Essentiality*. Journal of the American College of Nutrition 21 (2002) 14 - 21
- [SOA] ERIC WEISSTEIN: *"Solid Angle". From Math World - A Wolfram Web Resource*. Web. <http://mathworld.wolfram.com/SolidAngle.html> (20.01.2010)
- [WGK] HERMANN WEIDENFELLER: *Grundlagen der Kommunikationstechnik*. 1. Auflage, Verlag Teubner (2002)
- [ZIE] J. F. ZIEGLER, J. P. BIRSACK AND U. LITTMARK: *The Stopping and Range of Ions in Matter*. Pergamon Press (1985)
- [ZMH] JOSEF ZÖTL, JOHANN GOLDBRUNNER: *Die Mineral- und Heilwässer Österreichs: Geologische Grundlagen und Spurenelemente*. 1. Auflage, Verlag Springer (1993)

Danksagung

Ich möchte mich bei Prof. Dr. Reiner Krücken bedanken, dass er es mir ermöglichte, an seinem Lehrstuhl *E12* meine Diplomarbeit zu schreiben. Ein besonderes Dankeschön möchte ich auch Dr. Roman Gernhäuser aussprechen, der mir mit seiner Erfahrung mit Rat und Tat zur Seite stand. Ohne ihn wären die, rund um die Uhr laufenden, Experimente nicht möglich gewesen. Des Weiteren möchte ich mich bei Dominik Seiler bedanken, der die Referenzprobe bedampfte und sämtliche Targetssubstrate herstellte und sie auf die Aluminiumrahmen aufzog. Außerdem möchte ich mich bei Sonja Winkler bedanken, die die Silizium Dioden an den Platinen befestigte und bei den Targetrahmen für eine gewissenhafte Reinigung sorgte. Besonders möchte ich mich auch bei Ralf Lang und Michael Klöckner bedanken, die mir in der Werkstatt von *E12* sämtliche mechanische Bauteile anfertigten und manchmal auch sehr kurzfristig Änderungen vornahmen.

Ein ganz besonderer Dank geht auch an die Damen der Rechtsmedizin München, Jutta Schöpfer und Susanne Ring, die diese Diplomarbeit ermöglicht haben und sich jeder Zeit für die Probenherstellung Zeit nahmen.

Bedanken möchte ich mich auch bei Lea Canella, die bei allen Fragen über den PGAA-Messstand immer zur Verfügung stand und mir bei manchen Umbauten am PGAA tatkräftig zur Seite stand. Ein weiterer Dank geht auch an Dr. Karl Zeitelhack, der mir während der Strahlzeiten mit Rat und Tat zur Seite stand und auch während dem Wochenende verfügbar war.

Als letztes möchte ich mich noch bei allen Mitarbeitern von *E12* für das tolle Klima bedanken.