Technische Universität München Fakultät für Physik



Abschlussarbeit im Bachelorstudiengang Physik

Aktivierung von AMS Proben durch atmosphärische Neutronen beim Transport per Flugzeug am Beispiel der Reaktion ${}^{35}Cl(n,\gamma){}^{36}Cl$

Activation of AMS Samples through Atmospheric Neutrons during Air Transport by the Reaction $^{35}Cl(n,\gamma)^{36}Cl$

Manuel Lebert

24. August 2017

Erstgutachter (Themensteller): Prof. S. Schönert Zweitgutachter: Prof. A. Ibarra

Inhaltsverzeichnis

Al	Abstract			
1	Einleitung			
2	Kosmische Strahlung			
	2.1 Entdeckung			
	2.2 Heutiger Erkenntnisstand			
	2.2.1 Solare kosmische Strahlung			
	$2.2.2$ Galaktische und extragalaktische kosmische Strahlung $\ldots \ldots 5$			
	2.2.3 Kosmische Strahlung in der Atmosphäre			
3	Messmethodik 9			
	3.1 Beschreibung des Experiments			
	3.2 Theoretische Erwartung			
	3.3 Beschreibung von AMS			
	3.4 Experimenteller Aufbau			
	3.5 Probenvorbereitung			
	3.6 Durchführung der Messung			
	3.7 Auswertung der Messdaten			
	3.7.1 Bestimmung der ${}^{36}Cl$ Ereignisse			
	3.7.2 Berechnung der Konzentrationen			
	3.7.3 Unsicherheiten der Ergebnisse			
4	Ergebnisse und Interpretation			
Α	Flugzeitaufstellung			

Abstract

In dieser Arbeit wurde untersucht, ob die thermischen Neutronen, die in der Atmosphäre durch kosmische Strahlung gebildet werden und auf Proben treffen, diese soweit aktivieren können, dass die entstandenen Radionuklide in einer hoch empfindlichen AMS Messung nachgewiesen werden können.

Hierzu wurde Berchtesgadener Salz (NaCl) per Flugzeug transportiert und anschließend mit dem AMS Aufbau am Maier-Leibnitz-Laboratorium in Garching untersucht. Salz wurde hierbei verwendet, da das darin enthaltene Chlor in der Reaktion ${}^{35}Cl(n,\gamma){}^{36}Cl$ einen hohen Wirkungsquerschnitt für den Einfang von thermischen Neutronen besitzt und somit eine möglichst hohe Konzentration von ${}^{36}Cl$ -Atomen erzeugt werden kann, die messbar sein könnte.

Mit den Flüssen aus der Literatur kann man eine Obergrenze des ${}^{36}Cl/Cl$ Konzentrationsverhältnisses von 10^{-18} abschätzen. Tatsächlich wird ein Verhältnis von 10^{-16} gemessen. Dies ist allerdings gleichermaßen in den per Flugzeug transportierten Proben, als auch in der nicht transportieren Vergleichsprobe vorhanden.

1 Einleitung

Bei ultra-sensitiven Experimenten ist es unabdingbar, dass Proben oder Materialien keinerlei radioaktive Verunreinigungen enthalten. Das bedeutet auch, dass sie während Herstellung, Transport und Einbau z.B. keiner Strahlung ausgesetzt sein dürfen, die die Materialien, beispielsweise durch Kernreaktionen, wieder verunreinigen könnten.

Beispiele für solche Experimente sind:

GERDA: Hierbei wird versucht mit Hilfe von hochreinen Germanium Detektoren, die mit ⁷⁶Ge angereichert sind, den neutrinolosen doppelten Betazerfall nachzuweisen. Falls Neutrinos Majorana-Partikel sind, also identisch mit ihren Antiteilchen, könnte es beim Zerfall von ⁷⁶Ge auch einen neutrinolosen doppelten Betazerfall geben. Die zwei β -Teilchen mit konstanter Summenenergie könnten im Detektor nachgewiesen werden. Dadurch würde bewiesen, dass Neutrinos Majorana-Partikel sind und man hätte Zugang zur absoluten Massenskala der Neutrinos. Um den Untergrund zu minimieren, muss das verwendete Germanium möglichst frei von radioaktiven Verunreinigungen sein.

CRESST: In diesem Experiment sollen Dunkle Materie Teilchen, sogenannte WIMPs, nachgewiesen werden. Hierzu züchtet man Detektorkristalle aus $CaWO_4$. In diesen werden Stöße zwischen den WIMPs und Detektor durch die Erwärmung des Kristalls gemessen. Weiterhin wird die Szintillation des Detektors als Mittel zur Untergrundunterdrückung verwendet, da die schweren Rückstoßatome weniger Szintillationslicht erzeugen, als Elektronen oder Gammas. Um beide Messungen durchführen zu können, muss der Kristall höchst rein sein.

AMS: Bei der Beschleuniger-Massenspektrometrie (engl. Accelerator Mass Spectrometry, AMS) werden die Konzentrationen von Radionukliden in kleinen Probenmassen im Verhältnis zu einem bekannten Standardmaterial gemessen. Hierbei ist es wichtig, dass sich die Probenkonzentrationen vom Zeitpunkt der Probennahme bis zur Messung nicht ändern.

Wenn Materialien oder Proben allerdings in einem Flugzeug transportiert werden, sind sie der Strahlung in der oberen Atmosphäre ausgesetzt. Hierbei können zum Beispiel Pionen, Protonen oder Neutronen zu einer Veränderung des transportierten Materials führen.

Die Aktivierung von Proben durch thermische Neutronen wird im allgemeinen als vernachlässigbar angenommen. Da es hierzu allerdings noch keine experimentelle Untersuchung gibt, soll in dieser Arbeit untersucht werden, ob diese Annahme für AMS Proben korrekt ist.

2 Kosmische Strahlung

Die kosmische Strahlung ist für die Neutronen in der Atmosphäre verantwortlich. Daher soll zunächst die Entdeckung dieser Strahlung beschrieben und anschließend der heute Erkenntnisstand kurz zusammengefasst werden.

2.1 Entdeckung

Im Jahre 1901 untersuchten Wilson und Geitel zeitgleich die Leitfähigkeit von staubfreier Luft. Sie zeigten beide, dass diese nicht verschwindend ist [Ber12].

1902 schirmten Rutherford und Cooke diesen Versuchsaufbau ab. Sie beobachteten eine Erniedrigung der Leitfähigkeit. Daraus folgerten sie, dass die Leitfähigkeit durch eine ionisierende, von außen kommende Strahlung erzeugt wird [Ber12]. Man vermutete eine "Erd-" bzw. "Luftstrahlung", die durch radioaktive Substanzen in der Erde bzw. Luft erzeugt wird.

1909 führte Wulf Messungen über dem Erdboden (verschiedene Orte in Deutschland, den Niederlanden und Belgien) und dem Eiffelturm durch. Diese führten zu dem Ergebnis, dass die Strahlung von der Erde stammt [Ber12].

Um dies zu verifizieren unternahm Gockel in den Jahren 1910 und 1911 Ballonfahrten bis zu 4500 m. Dabei zeigte sich eine leichte Erhöhung der Strahlung mit steigender Höhe. Da er sein Messinstrument allerdings nicht an den sich ändernden Außendruck anpasste, waren seine Ergebnisse zweifelhaft [Ber12].

1911 nahm sich Victor Hess, damaliger 1. Assistent am Institut für Radiumforschung in Wien, dem Problem an. Er unternahm in den Jahren zwischen 1911 und 1913 insgesamt zehn Ballonfahrten um die Strahlung zu untersuchen. Dabei kam er zu folgenden Ergebnissen: Die Strahlung ist nahezu unabhängig vom Tag-Nacht-Zyklus und bis ca. 500 m nimmt die Intensität der Strahlung ab, danach ist sie allerdings monoton steigend bis sie bei ca. 5000 m etwa die acht-fache Intensität im Vergleich zum Erdboden beträgt. Er kam zu dem Schluss, dass die Strahlung sowohl aus dem All stammen, als auch extrem hochenergetisch sein muss, da sie selbst am Boden noch messbar ist [Ste85].

1921 vermutete Nernst, dass die Strahlung in Sternen entstehen könnte. Millikan schlug den Namen "kosmische Strahlung" vor, der sich schlussendlich durchsetzte [Ste85].

1929 wurde von Bothe und Kolhörster die Teilchennatur der Strahlung entdeckt.

Bis zu diesem Zeitpunkt vermutete man, dass es sich um ultraharte Gammastrahlung handele [Ber12].

In den folgenden Jahren wurden weltweit Messungen durchgeführt. Dabei wurde ein Strahlungsmaxima um 12 Uhr mittags und ein Minimum um 0 Uhr nachts festgestellt. Dies lies auf eine solare Komponente schließen [Ste85].

1936 erhielt Victor Hess für die Entdeckung und Erforschung der kosmischen Strahlung den Nobelpreis für Physik.

2.2 Heutiger Erkenntnisstand

Heutzutage teilt man die kosmische Strahlung je nach Erzeugungsort in solare, galaktische und extragalaktische Strahlung ein.

Sie kann aus geladenen Teilchen, Neutrinos oder γ -Strahlung bestehen. In dieser Arbeit wird allerdings nur die Komponente der geladenen Teilchen betrachtet, da diese für die Erzeugung von Teilchenkaskaden in der Atmosphäre verantwortlich sind (siehe Kapitel 2.2.3).

2.2.1 Solare kosmische Strahlung

Die solare kosmische Strahlung besteht aus zwei Anteilen, einem langsameren, stetigen Strom von Teilchen und einem schnellen Teilchenstrom. Der langsamere Strom, auch Sonnenwinde genannt, wird erzeugt, durch thermische Beschleunigung von Sonnenmaterie in der Korona der Sonne. Durch die zusätzliche Energie, können die Teilchen die Sonne verlassen. Der schnelle Teil der Strahlung wird vor allem in Flares und koronalen Massenausstößen (engl. Coronal Mass Ejection, CME) erzeugt. Sie können Energien bis etwa 10¹⁰ eV erreichen [Fri16].

Bei Flares wird eine große Menge an magnetischer Energie in thermische Energie in der Korona der Sonne umgewandelt. Das Plasma dort wird extrem erhitzen und somit können Teilchen die Korona verlassen. Bei einem CME hingegen wird eine große Menge an Materie direkt von der Sonne ausgestoßen. Beide Ereignisse entstehen bei der Rekombination von Magnetfeldlinien auf der Sonnenoberfläche [Mir15]. Flares und CMEs sind bei geringer Sonnenaktivität seltener.

Die Sonnenaktivität beschreibt die Anzahl der Sonnenflecken (Bereiche der Sonnenoberfläche, die eine geringere Temperatur als die Umgebung haben und in denen Magnetfeldlinien ein- bzw. austreten). Innerhalb eines Zyklus (etwa 11 Jahre) ergibt sich sowohl ein Minimum, als auch ein Maximum von Sonnenflecken. Während erhöhter Sonnenaktivität steigt auch die Reichweite der Sonnenwinde. In Sonnennähe folgen die Winde den Magnetfeldlinien. Bei größerem Abstand von der Sonne erweitern die Teilchen das Magnetfeld der Sonne. Eine höhere Sonnenaktivität bedeutet stärkere Magnetfelder und damit stärkere und weitreichendere Winde. Dadurch werden niederenergetische, geladene, galaktische kosmische Strahlungsteilchen abgelenkt [Ber12].



Abbildung 2.1: Differentieller Fluss der galaktischen Strahlungsteilchen gegenüber der Energie pro Nukleus. Dargestellt sind die Experimente mit den beigesteuerten Daten. Die Unsicherheiten werden zu hohen Energien größer, da diese Teilchen seltener sind. Bis 10^{10} eV handelt es sich fast ausschließlich um solare, bis 10^{18} eV um galaktische und darüber um extragalaktische kosmische Strahlung [Pat+16].

Solare kosmische Strahlung besteht vor allem aus Protonen, Elektronen und zu einem kleinen Teil auch aus schwereren Ionen [Mir15].

2.2.2 Galaktische und extragalaktische kosmische Strahlung

Galaktische kosmische Strahlung

Die galaktische kosmische Strahlung deckt einen Energiebereich bis ca $10^{18} eV$ ab (siehe Abbildung 2.1).

Teilchen mit bis zu ca. $10^{17} eV$ können in Überresten von Supernovae durch den Fermi-Mechanismus entstehen. Dabei werden Teilchen, die zwischen zwei Schockfronten der Supernova gefangen sind, durch den Impulsübertrag beim Aufprall auf eine Schockfront beschleunigt [Ber12].

Bei Teilchen mit noch höheren Energien ist man sich über den Ursprung noch nicht sicher. Kandidaten wären beispielsweise Schwarze Löcher oder die hohen Magnetfelder von Pulsaren [Ber12]. Die galaktische kosmische Strahlung, gemessen durch Satelliten, setzt sich aus ca. 85% Protonen, 12% α -Teilchen und 3% aus Teilchen mit $Z \geq 3$ zusammen [Gru05]. In Abbildung 2.2 erkennt man, dass die Elemente Lithium, Beryllium und Bor in der kosmischen Strahlung sehr viel häufiger auftreten als



Abbildung 2.2: Zusammensetzung der galaktischen kosmischen Strahlung verglichen mit dem Vorkommen im Sonnensystem. Man erkennt, dass Lithium, Beryllium, Bor und die Elemente unterhalb von Eisen (Z < 26) häufiger in der kosmischen Strahlung vorkommen [Gru05].

im Sonnensystem. Auch die Elemente unterhalb von Eisen (Z < 26) treten vermehrt auf. Dies erklärt sich dadurch, dass die sehr stabilen Elemente Sauerstoff, Kohlenstoff und Eisen auf dem Weg zur Erde durch sogenannte Spallation (inelastische Wechselwirkung zwischen einem Projektil und dessen Zielobjekt) in diese Teilchen zerplatzen [Ber12].

Extragalaktische Strahlung

Von extragalaktischer Strahlung spricht man bei Energien über $10^{18} \,\mathrm{eV}$, da diese genug Energie besitzen um durch die galaktischen Magnetfelder kaum bis gar nicht beeinflusst zu werden und sich somit nahezu geradlinig ausbreiten können. Somit ist es wahrscheinlicher, dass diese Teilchen eine Galaxie verlassen, als darin zu bleiben [Ber12].

Der Ursprung dieser Art der Strahlung ist allerdings noch nicht vollständig geklärt.

Ein möglicher Kandidat wäre das Zentrum der Galaxie M87 im Virgo Cluster, da von dort ein 1500 pc langer Jet emittiert wird, der solch hochenergetische Teilchen enthalten könnte [Ber12].

2.2.3 Kosmische Strahlung in der Atmosphäre

Sobald sich die kosmische Strahlung der Erde nähert, ist sie dem Erdmagnetfeld ausgesetzt. Da es sich um geladene Teilchen handelt, werden diese durch das Magnetfeld abgelenkt. Je geringer der Impuls p eines Teilchens ist, desto leichter wird es abgelenkt. Das Durchdringungsvermögen von geladenen Teilchen in einem Magnetfeld wird durch die magnetische Steifigkeit $B\rho$ beschrieben. Es gilt:

$$B\rho = \frac{p}{q},\tag{2.1}$$

wobei q die Ladung des Teilchens ist. Für jeden Punkt und jede Richtung innerhalb der Magnetosphäre existiert eine minimale Steifigkeit, die ein Teilchen haben muss um diesen Punkt zu erreichen. Dies ist die sogenannte geomagnetische cut-off Steifigkeit. Die vertikale cut-off Steifigkeit ist in Abbildung 2.3 dargestellt. Man erkennt, dass die Steifigkeit an den Polen sehr viel geringer ist als am Äquator, demnach können mehr Teilchen die Pole erreichen. Zusätzlich dazu werden langsamere geladene Teilchen von dem Magnetfeld zu den Polen hin abgelenkt. Dies führt dort zu einem höheren Teilchenfluss, der auch die Polarlichter erzeugt.

Sobald sich die Strahlung in der Atmosphäre befindet, treffen die schnellen Teilchen auf langsame Atmosphären-Partikel (hauptsächlich O_2 , N_2 und Ar). Durch diese Stöße werden Sekundärteilchen erzeugt. Die entstehenden Teilchen haben wiederum genug Energie um selbst weitere Teilchen durch Stoßanregung, Spallation oder ähnliches zu erzeugen. Diese Kettenreaktion nennt man Kaskade. Sie ist schematisch in Abbildung 2.4 dargestellt. Die Breite einer Kaskade hängt von der Energie der Primärteilchen ab, je größer die Primärenergie, desto breiter die Kaskade.

Hadronen haben typischerweise eine Wechselwirkungslänge von etwa $\lambda \approx 90 \frac{g}{cm^2}$ in der Erdatmosphäre. Damit können Primärteilchen etwa ein dutzend mal wechselwirken.

Die häufigsten Sekundärteilchen sind Pionen (welche wegen ihrer geringen Masse leicht zu erzeugen sind), sowie Protonen und Neutronen. Durch leptonische Zerfälle von K^{\pm} oder π^{\pm} werden auch μ und ν erzeugt [Gru05].

Die in der Atmosphäre vorkommenden niederenergetischen Teilchen sind meist sekundären Ursprungs.

Freie Neutronen werden vor allem auf zwei Arten erzeugt. Schnelle Neutronen entstehen durch das Herausschlagen aus Kernen durch Teilchen mit einem hohen Impuls. Thermische Neutronen (Energiebereich $10^{-2} eV \leq E \leq 1 eV$) werden hauptsächlich von hochangeregten Kernen ausgestoßen [Rei93]. Sie können auch aus schnellen Neutronen entstehen, die in der Atmosphäre moderiert werden.



Abbildung 2.3: Berechnete vertikale cut-off Steifigkeit der Erde in 20 km Höhe. Man erkennt, dass sie an den Polen sehr viel geringer ist als am Äquator [Rei93].



Abbildung 2.4: Schematische Darstellung von Kaskaden, die von primärer kosmischer Strahlung in der Atmosphäre ausgelöst werden. Hierbei werden u.a. thermische Neutronen erzeugt [All84].

3 Messmethodik

3.1 Beschreibung des Experiments

Um den Effekt der Höhenstrahlung auf Proben nachzuweisen gibt es prinzipiell zwei Möglichkeiten.

Erstens: Man setzt eine große Menge einer Probe mit einem hohen Wirkungsquerschnitt für den thermischen Neutroneneinfang der kosmischen Strahlung aus. Durch die Messung der Zerfallsrate der dabei entstehenden Radionuklide kann man die ursprüngliche Konzentration bestimmen. Dies ist problematisch, da das Probenmaterial durch den Neutroneneinfang ein Radioisotop mit relativ kurzer Lebensdauer bilden müsste, damit genügend Zerfälle gemessen werden können.

Die zweite Möglichkeit: Man setzt der kosmischen Strahlung eine kleine Menge eines Materials aus, das sowohl einen hohen Wirkungsquerschnitt für den thermischen Neutroneneinfang besitzt, als auch durch den Einfang ein langlebiges Isotop erzeugt. In dieser Arbeit wurde die zweite Möglichkeit zur Bestimmung der Auswirkungen der kosmischen Strahlung auf Proben bei dem Transport durch Flugzeuge gewählt. Die Messmethode ist die Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS). Hierzu wurden ca. 40 g Natriumchlorid (NaCl) aus Berchtesgaden, das im Keller des Beschleunigerlabors des Maier-Leibnitz-Laboratoriums (MLL) abgeschirmt gelagert worden war, im Flugzeug transportiert (siehe Anhang A).

Das gesamte Salz wurde auf Flügen nach, in und von Australien und Neuseeland im Handgepäck mitgeführt (≈ 66 h Flugzeit). Anschließend wurden ca. 10 g dieses Materials auf Flügen nach und von Südkorea im Gepäck transportiert ($\approx 89h$ gesamte Flugzeit).

Das darin enthaltene ${}^{35}Cl$ hat mit 43 barn einen hohen Wirkungsquerschnitt für den thermischen Neutroneneinfang. Dadurch kann ${}^{36}Cl$ entstehen, welches eine Halbwertszeit von $3 \cdot 10^5$ a hat [Mag+15]. Dementsprechend ist der Anteil von ${}^{36}Cl$ -Atomen in Millionen Jahre alten Salzstöcken, aus denen Salz gewonnen wird, vernachlässigbar klein.



Abbildung 3.1: Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang von ${}^{35}Cl$ gegen Neutronenergie [Cha+11].

3.2 Theoretische Erwartung

Um abschätzen zu können, in welcher Größenordung das Konzentrationenverhältnis von ${}^{36}Cl/Cl$ sein sollte, wird hier berechnet, wie viele ${}^{36}Cl$ -Atome durch die Reaktion ${}^{35}Cl(n, \gamma){}^{36}Cl$ erzeugt worden sind.

Wie man in Abbildung 3.1 erkennt, ändert sich das Verhalten des Wirkungsquerschnitts für den Neutroneneinfang von ${}^{35}Cl$ ab etwa einer Energie von 10^{-5} MeV drastisch. Daher ist es von Vorteil wenn man die Energiebereiche aufteilt. Das erste Intervall wird von 10^{-11} MeV bis 10^{-5} MeV gewählt und das zweite von 10^{-5} MeV bis 20 MeV.

Im ersten Intervall kann der Verlauf des Wirkungsquerschnitts durch eine Gerade angenähert werden. Da es sich hierbei um eine logarithmische Darstellung handelt, ergibt sich folgende Formel:

$$\sigma_1 = a \cdot E^b \tag{3.1}$$



Abbildung 3.2: Differentieller Fluss von Neutronen in der Atmosphäre in verschiedenen Höhen gegen Neutronenergie [Gol].

Hierbei ist σ_1 der Wirkungsquerschnitt, E die Energie der Neutronen und a bzw. b Fit-Parameter. Es ergeben sich folgende Werte: $a = (6,95 \pm 0,01) \cdot 10^{-3}$ barn, $b = -0,49994 \pm 7 \cdot 10^{-5}$ und ein korrigiertes Bestimmtheitsmaß von $\bar{R}^2 = 1$. Damit kann dieser Bereich sehr gut genähert werden.

Das zweite Energieintervall wird erweitert und der Wirkungsquerschnitt, aufgrund der vielen Resonanzen, ab einer Energie von 10^{-5} MeV bis 10^6 MeV mit $\sigma_2 = 1$ barn angenommen. Der Abbruch bei 10^6 MeV ist den fehlende Daten für höhere Energien geschuldet (siehe Abbildung 3.2). Diese Annahme erlaubt zwar nicht die genaue Anzahl von ${}^{36}Cl$ -Atomen zu berechnen, allerdings erhält man so eine Obergrenze. Die Anzahl der ${}^{36}Cl$ -Atome N_{36} erhält man über folgende Gleichung:

$$N_{36} = N_{35} \cdot t \cdot \left(\int_{10^{-11} \,\mathrm{MeV}}^{10^{-5} \,\mathrm{MeV}} \frac{df}{dE} \cdot \sigma_1 \cdot dE + \int_{10^{-5} \,\mathrm{MeV}}^{10^6 \,\mathrm{MeV}} \frac{df}{dE} \cdot \sigma_2 \cdot dE \right)$$
(3.2)

Hierbei wurde der Wirkungsquerschnitt mit dem in Abbildung 3.2 dargestellten differentiellen Fluss df/dE multipliziert, über die bestimmten Energiebereiche numerisch

integriert und mit der Zeit t = 88,9h und der Anzahl der ³⁵Cl-Atome N₃₅ multipliziert. Das Spektrum des differentiellen Neutronenflusses lag als Histogramm vor [Gol]. Für die Rechnung wurde der geometrische Mittelwert der Grenzen der Bins für die Neutronenenergie verwendet. Das erste Energieintervall liefert einen Beitrag von $1,47 \cdot 10^{-23}$ 1/s, das zweite $2,92 \cdot 10^{-24}$ 1/s. Somit liefert das zweite Energieintervall, trotz der hohen Abschätzung des Wirkungsquerschnittes, einen Beitrag, der um den Faktor 10 kleiner ist, als der erste Bereich. Demnach, kann dieses Intervall vernachlässigt werden.

 N_{35} erhält man aus der molaren Masse M_{NaCl} von NaCl und dem Isotopenanteil von ${}^{35}Cl$ zu stabilem Chlor $f_{35} = 75,76\%$ mit folgender Formel [Mag+15]:

$$N_{35} = f_{35} \cdot N_A \cdot \frac{m_{NaCl}}{M_{NaCl}} \tag{3.3}$$

 N_A ist die Avogadro-Konstante und m_{NaCl} die Probenmasse des Salzes.

Eine weitere Quelle von ${}^{36}Cl$ Atomen wäre die Reaktion ${}^{37}Cl(n,2n){}^{36}Cl$. Allerdings sind die Wirkungsquerschnitte in der Größenordnung von 10^{-1} barn und man benötigt hohe Neutronenenergien für diese Reaktion (siehe Abbildung 3.3). Daher kann dieser Beitrag vernachlässigt werden.

Als Obergrenze für die Konzentration von ${}^{36}Cl$ erhält man:

$$\frac{N_{36}}{N_{Cl}} \approx 10^{-18}$$

So eine hohe Empfindlichkeit kann mit AMS allerdings nicht erreicht werden (siehe Abschnitt 3.3). Somit sollte man keinen Unterschied zwischen dem transportierten und dem nicht transportierten Salz erkennen.

Hierbei sei noch angemerkt, dass sich die verwendeten Daten für den Fluss auf die Atmosphäre beziehen und nicht auf das Innere eines Passagierflugzeuges [GCW04]. Durch die Hülle, das Kerosin, die Menschen, etc. können möglicherweise schnellere Neutronen moderiert bzw. thermische Neutronen direkt erzeugt werden, wodurch der Neutronenfluss im Inneren des Flugzeugs höher sein könnte, als in der Atmosphäre.

3.3 Beschreibung von AMS

Die Beschleuniger-Massenspektrometrie ist eine hochsensitive Ionenmessmethode, wodurch die Konzentration von langlebigen Radioisotopen bestimmt werden kann. Typische Halbwertszeiten liegen im Bereich von $10^3 a \lesssim T_{1/2} \lesssim 10^9 a$. Der Unterschied zwischen AMS und der Messung von Zerfallsraten ist, dass man die Teilchen direkt misst und nicht deren Zerfall. Dadurch ist AMS vor allem für Isotope mit langen Halbwertszeiten und kleinen Probenmengen geeignet.

Heutzutage hat AMS viele Anwendungen in beispielsweise Materialwissenschaften,



Abbildung 3.3: Wirkungsquerschnitt von ${}^{37}Cl$ gegen Energie für die Reaktion ${}^{37}Cl(n,2n){}^{36}Cl$ [Cha+11].

Bio-Medizin, Nukleare Astrophysik, uvm. Die bekannteste und verbreitetste ist die Radiokarbonmethode zur Datierung von organischen Überresten.

Das Ziel von AMS ist die Bestimmung des Konzentrationsverhältnisses von einem radioaktiven Isotop zu einem Stabilen. Dazu werden einige Milligramm einer Probe in einen Probenhalter gepresst und in einer Ionenquelle platziert. Nahezu alle AMS Experimente nutzen einen Tandem-Beschleuniger mit Spannungen zwischen 200 kV bis zu 14 MV. Diese beschleunigen die Ionen auf Energien bis über 100 MeV. Solch hohe Energien sind nötig, um Elektronen von den Ionen zu strippen und mögliche Moleküle aufzubrechen.

Nach der Beschleunigung durchgeht der Strahl meist noch Apparate wie Wien-Filter oder Magnete, um die nicht gewollten Teilchenspezien herauszufiltern. Hierbei sind vor allem Isobare und andere, gestreute Teilchen mit der gleichen magnetischen Steifigkeit störend, da diese die gleiche Flugbahn wie die gesuchte Spezies einnehmen können.

Es gibt mehrere Möglichkeiten, die Teilchen zu identifizieren. Die meistverbreitetsten sind die Messung des Energieverlustes (z.B. Ionisationskammer), der Energie

3 Messmethodik



Abbildung 3.4: Schematischer AMS Aufbau am MLL [Lud12].

(z.B. Silizium Detektor) oder der Flugzeit. Dadurch kann man Teilchenraten nachweisen und mit dem Strom eines in der Probe makroskopisch vorkommenden Isotops vergleichen. Diesen Strom kann man über Faraday-Cups messen. Ein quantitatives Ergebnis erhält man, wenn man die Probe mit einem Blank (das gesuchte Isotop ist kaum bis gar nicht enthalten) und einem Standard (Konzentration bekannt) vergleicht. Je nach gesuchtem Isotop kann die Herstellung eines Standards oder Blanks eine sehr große Herausforderung darstellen.

Mit AMS können Konzentrationen bis zu 10^{-17} (beispielsweise bei $^{60}Fe/Fe)$ bestimmt werden.

3.4 Experimenteller Aufbau

Der Aufbau der AMS am MLL ist in Abbildung 3.4 schematisch dargestellt. Es gibt hierbei zwei Strahlrohre. Eines mit einer Flugzeitmessung, welche vor allem für Aktiniden Messungen verwendet wird und eines mit einem gasgefüllten Analysemagnetsystem (GAMS), welches hier verwendet wurde.

Die wichtigsten Komponenten des Aufbaus werden im folgenden kurz erklärt.



Abbildung 3.5: Ionenquelle mit angeschlossenem Cs-Reservoir. Cs-Atome treffen auf den heißen Tantal Ionisator, werden dort ionisiert und durch eine Extraktionsspannung zur wassergekühlten Probe beschleunigt. Die, durch die Cs^+ ausgeschlagenen, negativen Ionen werden mit Hilfe einer Extraktionsspannung durch das Loch im Ionisator aus der Quelle extrahiert. Der Ionisator wird durch das HV feed through geheizt.

Zunächst wird die Probe in einen Kupferprobenhalter gepresst. Dieser hat eine Bohrung mit einem Durchmesser von 2 mm und 1,5 mm Tiefe. Anschließend wird die Probe auf eine wassergekühlte Stange geschraubt und in die Ionenquelle eingeführt (siehe Abbildung 3.5). Durch die Wasserkühlung schlägt sich Cäsium auf der Oberfläche des Probenmaterials ab, wodurch die Bildung von negativen Ionen erleichtert wird. Die Quelle wird bis auf 10^{-6} mbar evakuiert. Durch ein angeschlossenes, geheiztes Cäsium-Reservoir werden Cs-Atome in die Ionenquelle eingebracht. An einem bis zu 1300 °C heißen Tantal Ionisator werden die Cs-Atome ionisiert. Durch eine Sputterspannung von $U_{sp} \approx 5$ kV werden die Cs^+ Ionen auf den Probenhalter hin beschleunigt und schlagen dort, unter anderem, negativ geladene Chlor-Ionen aus dem Probenmaterial. Diese werden durch eine Extraktionsspannung von $U_{ex} \approx 23$ kV aus der Quelle in einen 90° Magnet beschleunigt. In diesem Magnet wird durch die



Abbildung 3.6: Beschleunigerhalle am MLL. Tandem Beschleuniger (orange) und 90° Analysiermagnet (blau).

unterschiedliche Flugbahn von unterschiedlich schweren Teilchen eine erste Massenseparation durchgeführt.

Durch die anschließende 18° Ablenkung ergibt sich eine Energieseparation, da es sich hierbei um Kondensatorplatten handelt und somit die Teilchen elektrostatisch abgelenkt werden. Dies ist notwendig, da es durch Streuung der Teilchen am Restgas oder an den Blenden zu einem störenden Untergrund kommt, der die Messung beeinflussen würden.

Danach fliegen die Ionen in den 14 MV Tandem-Beschleuniger (siehe Abbildung 3.6). Zunächst werden die einfach negativ geladenen Teilchen zum positiv geladenen Terminal in der Mitte hin beschleunigt. Im Zentrum treffen sie auf eine dünne Kohlenstoff Stripper-Folie mit $4 \,\mu g/cm^2$, durch diese werden Molekülbindungen aufgebrochen und Elektronen von den Ionen gestrippt. Durch die mehrfach positive Ladung werden sie noch einmal beschleunigt und verlassen den Tandem mit einer endgültigen kinetischen Energie von E_{kin} :

$$E_{kin} = e \cdot (U_{sp} + U_{ex}) \cdot \frac{M_{ion}}{M_{molekuel}} + e \cdot U_{tandem} \cdot \frac{M_{ion}}{M_{molekuel}} + q \cdot U_{tandem}$$
(3.4)

Hierbei ist U_{Tandem} die Terminal-Spannung des Tandem-Beschleunigers, e die Elementarladung und q die Ladung der Ionen nach der Stripper-Folie. U_{sp} und U_{ex} sind die Sputter- bzw. Extraktionsspannung in der Ionenquelle. Typische verwendete Werte für die Messung von ³⁶Cl sind q = 10e und $U_{Tandem} = 11$ MV. Der Faktor



Abbildung 3.7: Gasgefülltes Analysiermagnetsystem am MLL, welches für die Trennung von Isobaren durch die Flugbahn verwendet wird.

 $M_{ion}/M_{molekuel}$ ist nötig, falls das gesuchte Isotop nicht alleine als Ion aus der Quelle extrahiert werden kann, sondern nur als Molekül.

Danach durchgehen die Teilchen einen Wien-Filter mit einer Massentrennung von etwa $\Delta M/M \approx 1$: 80. Anschließend kommt der Strahl in einen 90° Magnet mit einem maximalen Magnetfeld B von 1,6 T und einem Radius ρ von 1,65 m (Abbildung 3.6). Dieser wird auf die magnetische Steifigkeit (Gleichung 2.1) der gesuchten Teilchen eingestellt. Durch einen nachgeschalteten Schaltmagneten wird der Strahl in das GAMS-Strahlrohr gelenkt.

Das GAMS (Abbildung 3.7) besteht aus einem Magneten mit einem maximalen Feld von 1,25 T, einem Radius von 90 cm und einem Winkel von 135°, dessen Magentfeldkammer mit 3 – 7 mbar N_2 gefüllt ist. Der Magnet wird verwendet um Isobare mit gleicher Ladungszahl, die sich noch im Strahl befinden, von dem gesuchten Isotop zu trennen. Isobare mit unterschiedlicher Ladungszahl Z treffen im GAMS auf die Stickstoff Teilchen und verlieren, abhängig von ihrer ursprünglichen Elektronenkonfiguration, unterschiedlich viele Elektronen. Der mittlere Ladungszustand, der durch die Stöße erreicht wird ist $\bar{q} \propto Z^{\frac{1}{3}}$ [Kni97]. Somit ändert sich auch die magnetische Steifigkeit $B\rho \propto M/Z^{\frac{1}{3}}$ und damit die Flugbahn der einzelnen Teilchen, wodurch sie im Detektor gut voneinander unterschiedbar sind.

Für die Detektion und Bestimmung der Teilchen wird am GAMS-Strahlrohr eine Ionisationskammer als Detektor verwendet. Sie besteht aus fünf hintereinander liegenden Anoden, einem Frisch-Gitter und ist mit 30-60 mbar Isobutan (C_4H_{10}) gefüllt.



Abbildung 3.8: Verwendete Ionisationskammer mit angezeigten Quellen der Energiesignale und zwei schematisch eingezeichneten Bragg-Kurven zweier unterschiedlicher Teilchen.

Die ersten beiden Anoden sind jeweils noch diagonal unterteilt (siehe Abbildung 3.8). Von den Anoden und dem Frisch-Gitter erhält man somit acht Energie-Signale. An die Kathode und das Gitter wird jeweils -700 V bzw. -280 V angelegt, die Anoden sind geerdet. Durch die Unterteilung der ersten beiden Anoden kann man den Ort des Eintreffens in den Detektor und den x-Winkel bestimmen.

Die Isobare haben aufgrund ihrer unterschiedlichen Protonenzahl verschiedene Bragg-Kurven im Detektorgas. Somit können unterschiedliche Elemente durch ihre differentiellen Energieverluste ΔE in den Energie-Spektren der Anoden unterschieden werden.

Ab einer Teilchenrate von einigen kHz wird die Totzeit dominant.

3.5 Probenvorbereitung

Zunächst wurden das Blank und die Proben mit Kupfer in einem Volumenverhältnis von etwa 1 : 1 gemischt und dann in einen Kupferprobenhalter gepresst. Um eventuelle Kontamination zu vermeiden bzw. erkennen zu können, wurden die Probenhalter in folgender Reihenfolge gepresst:

- 1. Blank 1
- 2. Probe Australien
- 3. Blank 2
- 4. Probe Korea

Das Standard-Material wurde einem bereits abgeschlossenem Experiment entnommen, in dem die Konzentrationen von Proben bestimmt wurden. Diese waren bereits gepresst.

3.6 Durchführung der Messung

Die Messungen wurden wie folgt durchgeführt:

Das Strahlführungssystem wurde auf ${}^{37}Cl$ eingestellt. Mit diesen Einstellungen wurden die Strahlführungselemente wie z.B. Quadrupol-Linsen so justiert, dass der Strahl zunächst auf einen Faraday-Cup vor dem GAMS trifft. ${}^{37}Cl$ und ${}^{36}Cl$ wurden als negativ geladene Ionen aus dem Probenhalter extrahiert und mit einer Energie von $E_{vor} = 121 \text{ keV}$ in den Tandem eingeschossen, beschleunigt, durch eine Stripper-Folie auf den Ladungszustand q = 10e gebracht und erneut beschleunigt. Dieser Ladungszustand wurde gewählt, da beide Isotope dafür eine ordentliche Ausbeute haben und die Terminal-Spannung bei beiden etwa 11 MV beträgt. Danach hatten die Teilchen Energien von $E_{36} = 124, 4 \text{ MeV}$ bzw. $E_{37} = 121, 0 \text{ MeV}$. Der Grund, weshalb ${}^{37}Cl$ und nicht ${}^{35}Cl$ zum Einstellen des Strahls verwendet wur-

Der Grund, weshalb ³⁷Cl und nicht ³⁵Cl zum Einstellen des Strahls verwendet wurde, liegt am Isotopenanteil. ³⁵Cl macht ca. 75% des stabilen Chlors aus. Damit entspricht die Teilchenrate von ³⁷Cl etwa einem Drittel der von ³⁵Cl. ³⁷Cl liefert bereits Ströme von einigen μA vor dem Tandem. Somit läge der Strom von ³⁵Cl noch höher, was das Einstellen erschwert und die Stripper-Folien zerstören kann.

Anschließend wurde das Magnetfeld im GAMS so eingestellt, dass die Isobare zu ${}^{36}Cl$, die durch die Stöße mit dem Gas andere Ladungszustände erreichen, kaum in den Detektor gelangen. Das Isobar, das die Messung am meisten beeinflusst, ist ${}^{36}S$. Argon kann ebenfalls mit der Massenzahl A = 36 vorliegen, allerdings bildet Ar keine negativen Ionen, wodurch es nicht aus der Ionenquelle extrahiert werden kann. Abbildung 3.9 zeigt das Energie-Ort-Spektrum eines Blanks für die Massen m = 35, 36 und 37. Man erkennt, dass die Isotope ${}^{35}Cl$ und ${}^{37}Cl$ räumlich und energetisch gut voneinander getrennt sind. ${}^{36}Cl$ sollte in einem Bereich zwischen den beiden stabilen Isotopen auftauchen. Die meisten Teilchen mit Masse m = 36 sind ${}^{36}S$, was durch die versetzte Lage im Ort erkennbar ist.

Vor und nach jedem Messdurchgang wurde jeweils der Strom von ${}^{37}Cl^{10+}$ Ionen an einem Faraday-Cup durch ein analoges Amperemeter abgelesen, um auf diesen in der Auswertung normieren zu können.



Abbildung 3.9: Energie-Ort-Spektrum zu Blank Messung der Massenzahlen 35, 36, 37. ${}^{35}Cl$ und ${}^{37}Cl$ sind gut voneinander im Ort und energetisch getrennt, ${}^{36}Cl$ sollte dazwischen liegen. Bei Masse m = 36 wird hauptsächlich ${}^{36}S$ detektiert, was durch die versetzte Lage im Ort erkennbar ist.

Um eine Verunreinigung der Quelle bzw. der Proben untereinander zu vermeiden oder eine solche erkennen zu können, wurde folgende Messreihenfolge gewählt:

- 1. Standard-Probe
- 2. Blank-Probe
- 3. Probe Australien
- 4. Probe Korea
- 5. Standard-Probe

Durch den Standard am Anfang und am Ende kann untersucht werden, ob sich die Transmission durch das GAMS über die Messungen hinweg verändert hat.



Abbildung 3.10: Beispielhaft das Energiesignal der fünften Anode der Blanks und der Standards. Man erkennt eine gute energetische Trennung von ${}^{36}Cl$ (linker schwarzer Peak) und ${}^{36}S$ (Peaks rechts).

3.7 Auswertung der Messdaten

3.7.1 Bestimmung der ³⁶Cl Ereignisse

Von dem Detektor erhält man insgesamt sechs Energiesignale, fünf von den Anoden und die Gesamtenergie durch das Frisch-Gitter. Dadurch lassen sich die Energiedepositionen und durch die diagonale Teilung der ersten beiden Anoden auch die x-Position und der x-Winkel der Teilchen vergleichen.

Um die ${}^{36}Cl$ Atome in den Proben zu identifizieren, vergleicht man die Blank Messungen mit den Standard Messungen. Die meisten, im Detektor registrierten, Teilchen mit Masse m = 36 ist im Blank ${}^{36}S$. Im Standard hingegen ist es, aufgrund der Konzentration von ${}^{36}Cl/Cl \approx 10^{-10}$, ${}^{36}Cl$. Die gute Trennung dieser beiden Isobare ist beispielhaft für die Energiedeposition in der fünften Anode in Abbildung 3.10 dargestellt. Man erkennt, dass eine Trennung der ${}^{36}Cl$ und ${}^{36}S$ Signale gut durch eine Fenster-Bedingung (es werden nur bestimmte Kanäle eines Spektrums für die Auswertung berücksichtigt) in den Energie-Spektren erreicht werden kann.

Um möglichst alle gemessenen Parameter jedes Ereignisses für die Trennung zu berücksichtigen, kann man auch den χ^2 Wert bestimmen. Dazu bildet man die Summe



Abbildung 3.11: χ^2 Verteilung des Standards und des Blanks. Durch einen Schnitt in dieser Verteilung können bereits die meisten falschen Signale aussortiert werden.

der quadratischen Abweichungen:

$$\chi^2 = \sum_{i=0}^{5} \frac{(E_i - \mu_i)^2}{\sigma_i^2}$$
(3.5)

Dabei sind die E_i die Mittelwerte der Parameter *i* für eine Messung mit der Standard-Probe (hier sind das die Energiedepositionen in den Anoden und dem Frisch-Gitter). μ_i und σ_i sind jeweils der erwartete Mittelwert bzw. die Standardabweichung. Nachdem alle Fenster in den Spektren und dem χ^2 gesetzt wurden, erhält man Diagramme wie in Abbildung 3.12. In den Spektren ohne Bedingung erkennt man noch einen Untergrund der Blanks im Bereich des Standards. Dieser kann durch die Fenster in den jeweils anderen Spektren unterdrückt werden.

3.7.2 Berechnung der Konzentrationen

Die Konzentration in der Probe

$$c_P = \frac{N_{36}}{N_{Cl}} \tag{3.6}$$

zu erhalten, ist das Ziel der Messung. Sie kann aus den Daten folgendermaßen berechnet werden:

$$c_P = \frac{N_P}{Q_{eff}},\tag{3.7}$$

wobe
i N_P die Anzahl der ^{36}Cl Ereignisse in dem Proben
material ist und Q_{eff} die Anzahl der überprüften Chlor Atome.

Die Berechnung läuft folgendermaßen ab:



Abbildung 3.12: Energie-Spektrum der fünften Anode (oben), Ort-Spektrum (unten) jeweils vor (links) und nach den Fenstern in allen Spektren (rechts). Man erkennt, dass immer noch ${}^{36}Cl$ -Atome im Blank nachgewiesen wurden.

Für jede Messung wird der mittlere Strom während des Messvorganges berechnet mit

$$I = \frac{I_{vor} + I_{nach}}{2} \tag{3.8}$$

Nun wird die Transmission durch das GAMS mithilfe der Standard Messung und folgender Formel bestimmt:

$$T = \frac{N_S \cdot q \cdot f_{37}}{I \cdot t \cdot t_{live} \cdot c_S} \tag{3.9}$$

Hierbei ist N_S die Anzahl der ³⁶Cl Ereignisse im Standard, c_S die Konzentration des Standards, q die Ladung der ³⁷Cl-Ionen, t die Messzeit und $t_{live} = 1 - \frac{DetektorTotzeit}{Messzeit}$. $f_{37} = 24,23\%$ ist der Isotopenanteil von ³⁷Cl [Mag+15].

Die Transmission beschreibt das Verhältnis von den am GAMS ankommenden Teilchen zu im Detektor registrierten Ereignissen, bzw. den Ereignissen, die nach den Fenstern noch vorhanden sind. Dass nicht alle Teilchen in den Detektor kommen liegt daran, dass es durch Streuung zu Verlusten in der Magnetkammer des GAMS kommt.

Damit kann nun Q_{eff} für die Proben bzw. Blanks berechnet werden. Es ergibt sich:

$$Q_{eff} = \frac{I \cdot t \cdot t_{live} \cdot T}{q \cdot f_{37}} \tag{3.10}$$

Wenn man nun die erhaltenen Formeln in Gleichung 3.7 einsetzt, erhält man die Konzentration der untersuchten Probe bzw. des Blanks.

3.7.3 Unsicherheiten der Ergebnisse

Wie man an den Gleichungen 3.8 bis 3.10 erkennt, ergeben sich mehrere Quellen für Unsicherheiten bei diesem Experiment. Diese sollen hier kurz erläutert werden.

Unsicherheit des Stroms I

Alle Ströme wurden an einem analogen Amperemeter abgelesen. Da es hierbei Intensitätsschwankungen gab, ergibt sich ein zufälliger Fehler. Da dieser Fehler nicht quantitativ bestimmbar ist, wird er hier mit 15% angenommen. Damit ergibt sich ein Fehler des gemittelten Stroms aus Gleichung 3.8 (bei nahezu konstantem Strom vor und nach der Messung) von:

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta I_1}{I_1} \approx 11\% \tag{3.11}$$

Unsicherheit der Transmission T

In die Transmission gehen die Unsicherheiten der Konzentration, der Anzahl der Ereignisse und der Strommessung ein.

Die Konzentration des Standards wurde von der AMS Gruppe am MLL bestimmt und beträgt $c_S = (3, 4\pm 0, 05) \cdot 10^{-10}$. Da alle Rechnungen auf das Standard Material bezogen sind, ist dies der einzige systematische Fehler des Experiments.

Die Unsicherheit der Ereignisanzahl kann aufgrund der großen Anzahl $(n_S > 100)$ mit \sqrt{n} angenommen werden.

Unsicherheit bei wenig Ereignissen n

Vor allem im Blank und den Proben kann man einen Fehler von \sqrt{n} nicht mehr annehmen, da die Anzahl der Ereignisse zu gering ist. Stattdessen wurden die Konfidenzintervalle und Grenzen von Feldmann und Cousins (1998)[FC98] verwendet.

Endgültiger Fehler

Die oben betrachteten Fehler werden nun verwendet, um ein $1-\sigma$ Konfidenzintervall abzuschätzen. Dazu werden die statistischen Fehler der Strommessung ΔI und die der Transmission ΔT_{stat} quadratisch addiert. Dies ergibt 15%. Dieser Fehler wurde nun quadratisch auf die relativen Unsicherheiten der Fehler-Intervalle von Feldmann und Cousins (1998) addiert.

Genau genommen ist dies nicht richtig, da die Fehler-Intervalle aus einem Anteil der Poisson-Verteilung für eine geringe Anzahl von Ereignissen und einem Anteil der Gauss-Verteilung anderer Unsicherheiten konstruiert werden müsste. Da die Unsicherheit durch die geringe Zählstatistik allerdings dominiert, führt dieses Vorgehen trotzdem noch zu einer hinreichend guten Abschätzung der Unsicherheit. Um auch bei Null Ereignissen eine Unsicherheit zu erhalten, wurde das Konfidenzintervall von einem Ereignis benutzt [Lud15]. In Tabelle 3.1 sind die hier verwendeten Grenzen aufgeführt. Ab n = 21 wurde der Fehler mit \sqrt{n} angenommen.

Ereignisse	u.G. FC	o.G. FC	neu u.G.	neu o.G.
0	0	1,29	0,00	1,48
1	$0,\!37$	2,75	$0,\!37$	2,78
2	0,74	4,25	0,73	4,30
3	$1,\!10$	$5,\!30$	1,09	5,36
4	$2,\!34$	6,78	$2,\!31$	6,86
5	2,75	7,81	2,72	7,90
6	3,82	$9,\!28$	3,78	9,38
7	$4,\!25$	$10,\!30$	4,20	10,42
8	$5,\!30$	11,32	$5,\!24$	11,45
9	$6,\!33$	12,79	6,26	12,93
10	6,78	13,81	6,70	$13,\!96$
11	$7,\!81$	14,82	7,72	14,99
12	8,83	$16,\!29$	8,73	16,47
13	$9,\!28$	$17,\!30$	9,18	17,49
14	$10,\!30$	$18,\!32$	$10,\!18$	18,52
15	$11,\!32$	19,32	11,19	19,54
16	$12,\!33$	20,80	12,19	21,03
17	12,79	21,81	$12,\!65$	22,05
18	13,81	22,82	$13,\!66$	23,08
19	14,82	23,82	$14,\!65$	24,09
20	$15,\!83$	$25,\!30$	$15,\!65$	25,58

Tabelle 3.1: Auflistung der unteren Grenzen (u.G.) und oberen Grenzen (o.G.) von Feldmann und Cousins (1998) links und rechts die hier verwendeten Grenzen berechnet durch quadratische Addition eines 15% Fehlers für Ereignisse von n = 0 bis n = 20.

4 Ergebnisse und Interpretation

Die Konzentration von ${}^{36}Cl/Cl$ in den verschiedenen Materialien sind in Tabelle 4.1 aufgeführt. Die Messungen wurden bei einer Transmission von T = 61% durch das GAMS durchgeführt. Für Messungen von ${}^{36}Cl$ ist solch eine Transmission normal.

Man erkennt, dass die Konzentrationen der Proben und des Blanks, innerhalb der Unsicherheit, übereinstimmen. Die Größenordung der Ergebnisse ist im 10^{-16} Bereich. Daher hat die Neutronenbelastung durch einen Transport per Flugzeug keinen messbaren Einfluss auf ultra-sensitive AMS Messungen.

Die hohen Fehler (bis zu 115% für die obere Grenze der Korea Probe) ergeben sich durch die sehr niedrige Anzahl an Ereignissen, die somit eine hohe Fehlerbehaftung besitzen.

Es fällt auf, dass bereits in dem Blank eine Konzentration ungleich Null existiert und einige ${}^{36}Cl$ nachgewiesen wurden. Eine Erklärungsmöglichkeit wäre, dass trotz ihrer relativ kurzen Halbwertszeit ${}^{36}Cl$ Atome in dem Salz existieren. Dies könnte dadurch bedingt sein, dass das Material bereits mehrere Jahre im Keller des Beschleunigerlabors gelagert wurde und somit nicht mehr gut genug vor Strahlung geschützt war und sich dadurch die Atome gebildet haben. Eine weitere Möglichkeit wäre, dass Sickerwasser in den Salzstock gelangt ist und somit ${}^{36}Cl$ von der Erdoberfläche zugegeben hat. Allerdings könnte es sich bei den Ereignissen auch um ${}^{36}S$ handeln, das bis in die Maxima des Standards streut.

Eine Möglichkeit dies zu überprüfen wäre es, Salz direkt aus dem Bergwerk als Probenmaterial zu verwenden und gegen ein ultra reines Blank, das extra dafür hergestellt werden müsste, zu testen.

	Ereignisse	c_P	+	-
Blank	3	$5,89 \cdot 10^{-16}$	$4,63 \cdot 10^{-16}$	$3,75 \cdot 10^{-16}$
Probe AUS	3	$6,36 \cdot 10^{-16}$	$5,00 \cdot 10^{-16}$	$4,05 \cdot 10^{-16}$
Probe KOR	2	$8,10\cdot 10^{-16}$	$9,32 \cdot 10^{-16}$	$5,14 \cdot 10^{-16}$

Tabelle 4.1: Die Anzahl der, in der Messung identifizierten, ${}^{36}Cl$ -Atome und die Konzentrationen von ${}^{36}Cl/Cl$ im Blank, dem Material das in Australien war (AUS) und dem, das zusätzlich in Korea war (KOR). Angegeben mit oberer (+) und unterer (-) Fehlergrenze

Anhang A Flugzeitaufstellung

Die Tabelle A.1 zeigt die Flugzeiten der Proben. Die Probe AUS ist insgesamt 66:05 h geflogen und die Probe KOR 88:55 h.

Mitgeführte Proben	Abflugsort	Ziel	Flugzeit
	München, DE	Dubai, AE	6:20 h
	Dubai, AE	Melbourne, AUS	14:00 h
	Melbourne, AUS	Canberra, AUS	1:05 h
	Canberra, AUS	Perth, AUS	4:35 h
	Perth, AUS	Cairns, AUS	4:20 h
Proben AUS und KOR	Cairns, AUS	Sydney, AUS	2:55 h
	Sydney, AUS	Hobart, AUS	2:00 h
	Hobart, AUS	Sydney, AUS	1:50 h
	Sydney, AUS	Melbourne, AUS	1:00 h
	Melbourne, AUS	Christchurch, NZ	3:00 h
	Queenstown, NZ	Wellington, NZ	2:00 h
	Auckland, NZ	Dubai, AE	16:30 h
	Dubai, AE	München, DE	6:30 h
	München, DE	Frankfurt, DE	1:00 h
Probe KOR	Frankfurt, DE	Seoul, KOR	10:20 h
	Seoul, KOR	München, DE	11:30 h

Tabelle A.1: Flugzeitaufstellung der beiden Proben. Die erste Spalte gibt an auf welchen Flügen welche Proben mitgeführt wurden.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Kosmische Strahlung: Fluss gegen Energie pro Nukleon	5
2.2	Zusammensetzung der galaktischen kosmischen Strahlung	6
2.3	Geomagnetische vertikale cut-off Steifigkeit	8
2.4	Schematische Darstellung der Teilchenkaskaden	8
3.1	Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang von ^{35}Cl	10
3.2	Differentieller Atmosphärenfluss von Neutronen	11
3.3	Wirkungsquerschnitt ${}^{37}Cl(n,2n){}^{36}Cl$	13
3.4	Schematischer AMS Aufbau am MLL	14
3.5	Ionenquelle	15
3.6	Beschleunigerhalle am MLL	16
3.7	GAMS am MLL	17
3.8	Ionisationskammer	18
3.9	Energie-Ort-Spektrum	20
3.10	E5 Signal Blank und Standard	21
3.11	χ^2 Verteilung von Standard und Blank	22
3.12	Energie- und Orts-Spektrum	23

Tabellenverzeichnis

3.1	Fehlergrenzen für kleine Ereigniszahlen	26
4.1	Ergebnisse für die Konzentration im Blank und den Proben	27
A.1	Flugzeitaufstellung der Proben	29

Literatur

- [All84] O. C. Allkofer. Cosmic rays on earth. Bd. 251. Physik-Daten. Karlsruhe: Fachinformationszentrum Energie, Physik, Mathematik, 1984. [Ber12] M. Bertolotti. Celestial Messengers: Cosmic Rays. Astronomers' Universe. Dordrecht: Springer, 2012. ISBN: 978-3-642-28371-0. M. B. Chadwick u.a. 'ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and [Cha+11]Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data'. In: Nuclear Data Sheets 112.12 (2011), S. 2887–2996. ISSN: 00903752. DOI: 10.1016/j.nds.2011.11.002. [FC98] G. J. Feldman und R. D. Cousins. 'Unified approach to the classical statistical analysis of small signals'. In: Physical Review D 57.7 (1998), S. 3873-3889. ISSN: 0556-2821. DOI: 10.1103/PhysRevD.57.3873. [Fri16] M. W. Friedlander. Cosmic Ray. Apr. 2016. URL: academic.eb. com . eaccess . ub . tum . de/levels/collegiate/article/cosmic ray/26471. Abgerufen am: 09.08.2017. [GCW04] P. Goldhagen, J. M. Clem und J. W. Wilson. 'The energy spectrum of cosmic-ray induced neutrons measured on an airplane over a wide range of altitude and latitude'. In: Radiation Protection Dosimetry 110.1-4 (2004), S. 387-392. DOI: 10.1093/rpd/nch216. [Gol] P. Goldhagen. Neutron Fluence Spectrum in Atmosphere. Persönliche Mitteilung an Manuel Lebert mit den 2012 neu überarbeiteten Daten, die ursprünglich in seinem Artikel von 2004 veröffentlicht wurden, vom 19.06.2017. [Gru05]C. Grupen. Astroparticle Physics. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005. ISBN: 978-3-540-25312-9. DOI: 10.1007/3-540-27670-X. [Kni97] K. Knie. 'Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenseparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten'. Dissertation. Technische Universität München, 1997.
- [Lud12] P. Ludwig. The AMS Setup at the MLL. 2012. URL: http://www.gams. ph.tum.de/index.php?id=22&L=0. Abgerufen am: 06.08.2017.

- [Lud15] P. Ludwig. 'Search for 60 Fe of supernova origin in Earth's microfossil record'. Dissertation. Technische Universität München, 2015.
- [Mag+15] J. Magill u. a. Karlsruher Nuklidkarte. Nucleonica, 2015.
- [Mir15] L. Miroshnichenko. Solar cosmic rays: Fundamentals and applications. Second edition. Bd. volume 405. Astrophysics and space science library. New York: Springer, 2015. ISBN: 978-3-319-09429-8.
- [Pat+16] C. Patrignani u. a. 'Review of Particle Physics'. In: Chin. Phys. C 40 (2016). ISSN: 1674-1137.
- [Rei93] G. Reitz. 'Radiation environment in the stratosphere'. In: Radiation Protection Dosimetry 48.1 (1993), S. 5–20. ISSN: 01448420.
- [Ste85] R. Steinmaurer. 'Erinnerungen an V. F. Hess, den Entdecker der Kosmischen Strahlung, und an die ersten Jahre des Betriebes des Hafelekar-Labors'. In: Early History of Cosmic Ray Studies: Personal Reminiscences with Old Photographs. Hrsg. von Y. Sekido und H. Elliot. Dordrecht: Springer Netherlands, 1985, S. 17-31. ISBN: 978-94-009-5434-2. DOI: 10.1007/978-94-009-5434-2_3. URL: https://doi.org/10.1007/978-94-009-5434-2_3.

Danksagung

Ich möchte mich bedanken bei Herrn Prof. Dr. Schönert, der mir die Möglichkeit gab diese Arbeit an seinem Lehrstuhl und in dieser Arbeitsgruppe schreiben zu können. Außerdem geht mein Dank an Dr. Gunther Korschinek, der die Idee zu diesem Experiment hatte und durch dessen Betreuung ich viel gelernt habe.

Herzlichst danken möchte ich auch Angelina Kinast, die das Salz auf ihren Flügen nach Australien mitgenommen und somit diese Arbeit erst ermöglicht hat.

Auch Dominik Koll möchte ich danken, ohne dessen Engagement und Hilfsbereitschaft die Strahlzeit und Auswertung so nicht möglich gewesen wäre.

Weiterhin möchte ich auch Dr. Thomas Faestermann, Dr. José Manuel Gómez Guzmán, David Krieg und den Operateuren des Beschleunigerlabors meinen Dank aussprechen, die bei den Strahlzeiten tatkräftig mitgeholfen und für eine angenehme Arbeitsatmosphäre gesorgt haben.

Dr. Paul Goldhagen soll hier auch noch dankend erwähnt werden. Dieser war so freundlich und hat mir Zugang zu seinen Daten zu dem Neutronenfluss in der Atmosphäre gewährt.

Und auch Danke, an alle, die sich die Zeit genommen haben um diese Arbeit Korrektur zu lesen und mir wichtige Verbesserungsvorschläge unterbreitet haben.