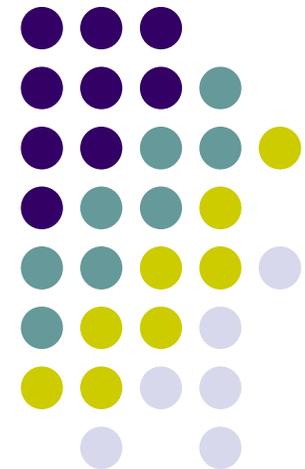


50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching

R. Henkelmann
Technische Universität München
Institut für Radiochemie



50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- 30. Oktober 1957 Atomei (FRM) erstmals kritisch
- Hans-Joachim Born 1. Veröffentlichung
- Aktivierungsanalyse - ein neues Hilfsmittel des Analytikers, in Wissenschaft und Fortschritt, Mai 1957
- Institut für Radiochemie gegründet

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Nutzung kurzlebiger Nuklide
- Prompte Gamma-Aktivierungsanalyse
- 14 MeV Neutronenaktivierungsanalyse
- Standardisierungsverfahren (Mono, k_0)
- Spezielle Bestrahlungsverfahren
- Anwendungen in Medizin, Ernährung, Geologie, Umwelt, Kunst und Geschichte

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Nutzung kurzlebiger Nuklide

Aktivierungsanalytische Bestimmung kleinster Sauerstoffmengen in Festkörpern (H.-J. Born, N. Riehl 1960)

$^{16}\text{O} (t,n) ^{18}\text{F}$ $T = 112 \text{ min, } \beta^+\text{-Strahler}$

$^6\text{Li} (n,\alpha) ^3\text{H}$ $E = 2,74\text{MeV}$ $R 30 \mu\text{m}$ in Festkörper

Pulver-Misch-Methode

Schicht-Auflage-Methode

Nachweisempfindlichkeit 10 ppb

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



1. Schnelle Rohrpost am FRM (1MW)

ab 1965, im schrägen Strahlrohr FS

schneller Neutronenfluss $1,1E+12 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

NaJ(Tl) Szintillationsdetektor, Plexiglas-Absorber

VKA 1600 Kanäle Victoreen

Transportzeit 1,5 s, rundes Transportrohr

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Sauerstoff über ^{16}O (n,p) ^{16}N
- $T = 7,13 \text{ s}$
- E_{γ} 6129 und 7115 keV
- Nachweisgrenze 10 ppm
- Störung durch (n, γ)-Aktivierung der Matrix

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Trennung von Probenbehälter und Rabbit
Rabbit mit Cadmium-Filter

$^{89}\text{Y} (n,n') ^{89\text{m}}\text{Y}$	$T = 16\text{s}$	$E_{\gamma} 0,91 \text{ MeV}$
$^{207}\text{Pb} (n,n') ^{207\text{m}}\text{Pb}$	$T = 0,8\text{s}$	$E_{\gamma} 0,57 + 1,06 \text{ MeV}$
$^{11}\text{B} (n,p) ^{11}\text{Be}$	$T = 13,7\text{s}$	$E_{\gamma} 2,1 + 6,8 \text{ MeV}$
$^{19}\text{F} (n,\gamma) ^{20}\text{F}$	$T = 11\text{s}$	$E_{\gamma} 1,63 \text{ MeV}$
$^{19}\text{F} (n,p) ^{19}\text{O}$	$T = 29\text{s}$	$E_{\gamma} 0,2 + 1,37 \text{ MeV}$

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Zwei 3“ x 3“ NaJ(Tl) Detektoren
- Cadmium-Abschirmung der Bestrahlungsposition (1 mm)
- FRM von 1 auf 2,5 MW Leistung erhöht
- thermischer Fluss $3,7 \text{ E}+12 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- schneller Fluss $1,3 \text{ E}+12 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- Auswertung über 4,8 - 6,3 MeV Bereich

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Ultraschnelle Rohrpost am FRN (Neuherberg)

- Pulsbarer TRIGA-Reaktor (100kW)
- Rechteckiges Transportrohr
- Trennung von Probenkapsel und Rabbit über Weiche
- Transportzeit 30 μ s
- Ge(Li)-Detektor und Cerenkov-Detektor

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Vollautomatisiertes System (Proben- und Rabbit-Magazin)
- Zyklischer Bestrahlungsbetrieb
- Nutzung extrem kurzlebiger Nuklide wie B-12, Na-24m, Li-8, Cl-38m, Ga-72m, Ge-71m, Ge-73m, Ba-136m, Yt-175m, Pb-207m
- Nutzung der Puls-Aktivierung – Steigerung um den Faktor 40
- Ende mit der Stilllegung des FRN 1979

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Prototyp eines ultraschnellen Rohrportsystems für den FRM II

- Einbau und erfolgreicher Test am FRM bis 2000
- Xiaosong Li 20. Seminar Aktivierungsanalyse
- Zukunft im FRM II: offen HFRP?
- Bestrahlungsposition mit $1,8 \text{ E}+14 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



PGNAA

- ab 1968 Aufbau am Strahlrohr des FRM
- Stickstoff-gekühlter Bi-Kristall, Thermalisierung der Neutronen
- Fluss $1,5 \text{ E}+07 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- Durchmesser 25 mm
- sehr einfaches Messsystem, ${}^6\text{LiF}$ -Absorber
- 1. Ge(Li)-Detektor, 13 cm^3 groß, HWB 4,2 keV

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Sammlung von Basisdaten: E_γ , I_γ
- Messungen nur im Bereich 0 - 1 MeV
- Gut nutzbare Elemente: H, B, Cd, Eu, Gd, Sm
- Nachweisgrenze im μg -Bereich
- 1. Veröffentlichung 1969

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Aufbau am Institut Laue-Langevin/Grenoble, 1972

- Kalter Neutronenleiter, Fluss $1 \text{ E}+09 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- Optimierter Aufbau und Abschirmung
- Besserer Ge(Li)Detektor, 50 cm^3 groß, HWB 2,3 keV
- Messung prompter Gammastrahlung
- Auch im hochenergetischen Bereich z.B. für N mit 11,2 MeV

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- ab 1975: Tiefenprofilbestimmung
- Nutzung von (n, α)- und (n,p)-Reaktionen
- ^{10}B (n, α) ^7Li $\sigma = 3840$ $E_\alpha = 1471$ keV
- Aufnahme des Energieverlustspektrums
- Umrechnung über dE/dx-Werte in Tiefenprofil
- Bor in Halbleitermaterialien, Ionenimplantation, Eichung für SIMS

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Untersuchung der Segregation an Grenzschichten SiO_2 und Si_3N_4

- Channeling-Blocking-Methode für Gitterpositionsbestimmung
- Nutzbare Isotope: ^3He , ^6Li , ^{10}B , ^{14}N , ^{17}O , ^{33}S , ^{35}Cl , ^7Be
- Ortsempfindliche PGNAA: Petra Kudejova
- Dreidimensionale Analytik?

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



14 MeV NAA

- Abgeschmolzene Neutronenröhre $D(T,n)^4\text{He}$
- Einbau im Lagerbecken des FRM
- Rohrpostanlage ins Ringlabor
- Trennung von Probe und Rabbit
- Transportzeit 1s

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Sauerstoff in Metallen
- Zertifizierung für Büro Euroisotop
- $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$
- Einsatz von Ätzverfahren zur Oberflächenreinigung
- Nachweisgrenze im ppm-Bereich
- mehr als 3000 Einzelanalysen

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- Standardisierungsverfahren (1970)
- Evaluierung der nuklearen Daten
 - Für die Aktivierung
 - Für die Aktivitätsmessung
- Monostandardmethode für Multielementanalyse
- Bedarf an besseren Daten für die Resonanzaktivierungsintegrale
- Bestimmung des effektiven Aktivierungsquerschnitts und des Spektralindex der Bestrahlungsposition

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- **k_0 -INAA**
- Programm MULTINAA wurde entwickelt (1992), Xilei Lin/RCM
- Es kann alle NAA-Standardisierungsmethoden gleichzeitig einsetzen: die k_0 -Methode basierend auf der Hogdahl- oder Westcott-Konvention, die relative Methode und die absolute Methode für Nuklide ohne verfügbare k_0 Werte
- 1994 und 2002 wurde die k_0 -Methode auf Proben im kg-Massenbereich erweitert

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- 1996 und 2004 wurden neue k_0 -Werte für ^{115}Cd - $^{115\text{m}}\text{In}$ und ^{131}Ba bestimmt
- 2003 wurde die Methode auch zum Einsatz bei instabilen Flussverhältnissen während der Bestrahlung erweitert
- 2002 und 2005 Einsatz bei zwei internationalen Ringversuchen von NIST und IRMM. 30 Elemente sehr zuverlässige Ergebnisse, außer Ba

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Wasserbestrahlung am FRM

- 250 mL Glaskolben mit Flusstandard
- Spezielle Messküvette für optimierte Geometrie
- Thermischer Neutronenfluss $5 \text{ E}+12 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- Bestrahlungszeit 4 bis 40 Stunden
- Offenes System: Radiolyse-Effekt beseitigt
- 20 - 30 Spurenelemente nachweisbar, bis zu $0,02 \text{ }\mu\text{g/L}$

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Anwendungen

- **Medizin**
 - Rolle von Spurenelementen in der Wundheilung
 - Transfer von Metallen ins Blut beim Einsatz von Stents
- **Ernährung**
 - Einfluss von Seltenen Erden in der Tier- und Pflanzenernährung
 - Bestimmung von Schadstoffen im Gemüse
- **Geologie**
 - Einsatz der NAA für die Prospektion scheelithaltiger Gesteine
 - Basisdaten für Seltene Erden in bayerischen Böden

, 50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



- **Umwelt**

- Koordinierung eines bundesweiten Luftstaubverbundprogramms
5 Sammelstationen, 15 beteiligte Laboratorien, 6 unterschiedliche Analysemethoden, 25 Elemente bestimmt, Laufzeit 1 Jahr

- **Kunst**

- Spurenelementmuster in Bleiweiß von Gemälden

- **Geschichte**

- As-Analyse von Napoleons Haaren, Vergiftungstheorie

50 Jahre NAA am Forschungsstandort Garching



Franz Baumgärtner: Tabelle zur Neutronenaktivierung, Thiemig-Verlag 1967

8. Dezember 1970: 1. Seminar Aktivierungsanalyse Garching, 6 Vorträge

1976 Modern Trends in Activation Analysis München, 400 Teilnehmer

Ausblick