

*Zu Problemen der  
Flüssigszintillationsspektroskopie  
bei Transactiniden-Experimenten*

Dissertation zur Erlangung des Grades  
„Doktor der Naturwissenschaften“

am Fachbereich Chemie und Pharmazie  
der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

vorgelegt von

Gert Langrock  
geboren in Leipzig

Mainz 2002

1. Berichtersteller:
2. Berichtersteller:

Tag der mündlichen Prüfung: 18. Dezember 2002

## Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich vorwiegend mit Detektionsproblemen, die bei Experimenten zur Chemie der Transactiniden mit dem schnellen Flüssig-Flüssig-Extraktionssystem SISAK auftraten. Bei diesen Experimenten wird als Detektionsmethode die Flüssigszintillationsspektroskopie (LSC) eingesetzt. Es werden Szintillationspulse registriert, die auf den Durchgang von ionisierenden Teilchen durch einen Szintillator und die Wechselwirkung des Teilchens mit den Lösungsmittelmolekülen und die darauf folgende Emission von Licht zurückzuführen sind. Da diese Wechselwirkung teilchenspezifisch ist, haben die Pulse für das jeweilige Teilchen charakteristische Formen. Das Problem besteht darin, diese Pulsformen eindeutig voneinander zu unterscheiden.

Am Beispiel der Auswertung des SISAK-Experimentes zur Chemie des Rutherfordiums vom November 1998 wurde gezeigt, dass es mit den herkömmlichen Verfahren zur Pulsformdiskriminierung nicht möglich ist, die aus dem Zerfall der Transactiniden stammenden  $\alpha$ -Ereignisse herauszufiltern. Ursache dafür ist ein hoher Untergrund, der in erster Linie von  $\beta/\gamma$ -Teilchen, Spaltfragmenten und pile ups verursacht wird. Durch die Verfügbarkeit von Transientenrecordern ist es möglich geworden, Szintillationspulse digital aufzuzeichnen und nicht mehr ausschließlich von analoger Messelektronik verarbeiten zu lassen. Das ergibt neue Möglichkeiten für die Pulsformdiskriminierung. Die registrierten Szintillationspulse können mit geeigneten Verfahren klassifiziert werden. Auf diesem Weg kann eine digitale Pulsformdiskriminierung durchgeführt werden.

In dieser Arbeit wird erstmals die Methode der digitalen Pulsformdiskriminierung mit künstlichen neuronalen Netzen (PSD-NN) vorgestellt. Es wurde im Zuge der Auswertung des SISAK-Experimentes vom Februar 2000, bei dem die digitale Datenaufnahme zum Einsatz kam, gezeigt, dass neuronale Netze in der Lage sind, Pulsformen automatisch richtig zu klassifizieren. Es ergeben sich nahezu untergrundfreie  $\alpha$ -Flüssigszintillationsspektren. Es werden Vor- und Nachteile der neuen Methode diskutiert.

Die Methode der Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen ist nicht auf die  $\alpha$ -Spektroskopie beschränkt, sondern kann ebenso gut auch zum Herausfiltern anderer Pulsformen genutzt werden. Damit ergänzt sie andere Verfahren zur Untergrundreduktion wie zum Beispiel die Abtrennung von Begleitprodukten der für die Produktion der Transactiniden eingesetzten Kernreaktionen durch Vorseparatoren. Es ist dadurch möglich geworden, in SISAK-Experimenten Transactinidenatome an Hand ihres Zerfalls eindeutig zu charakterisieren. Das SISAK-System kann somit bei Experimenten zum Studium des chemischen Verhaltens von Transactiniden in flüssiger Phase eingesetzt werden.

## Inhaltsverzeichnis

|  |    |
|--|----|
| <b>1. Einleitung</b>   | 5  |
| <b>2. Chemie der Transactiniden</b>                                    | 6  |
| 2.1 Das Periodensystem der Elemente                                    | 6  |
| 2.2 Produktion von Transactiniden                                      | 8  |
| 2.3 Chemie mit einzelnen Atomen  | 12 |
| 2.4 Experimentelle Techniken zum Studium der Chemie der Transactiniden | 13 |
| 2.4.1 Aufbau typischer Systeme   | 13 |
| 2.4.2 SISAK  | 14 |
| <b>3. Flüssigszintillationsspektroskopie</b>                           | 20 |
| 3.1 Allgemeines  | 20 |
| 3.2 Der Szintillationsprozess  | 21 |
| 3.2.1 Durchgang ionisierender Teilchen durch den Szintillator          | 21 |
| 3.2.2 Fluoreszenz des Szintillators                                    | 22 |
| 3.3 Das System Dimethyl-POPOP/1-Methylnaphthalin/Toluol                | 26 |
| 3.4 Szintillationspulse  | 31 |
| 3.5 Messelektronik in der LSC  | 36 |
| 3.5.1 Analogelektronik   | 36 |
| 3.5.2 Digitale Aufnahme von Szintillationspulsen                       | 37 |
| <b>4. Das SISAK-Experiment vom November 1998</b>                       | 39 |
| 4.1 Aufbau   | 39 |
| 4.2 Auswertung   | 40 |
| <b>5. Das SISAK-Experiment vom Februar 2000</b>                        | 47 |
| 5.1 Aufbau   | 47 |
| 5.2 Auswertung I   | 48 |
| 5.3 Auswertung II - Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen      | 49 |
| 5.3.1 Künstliche Intelligenz und neuronale Netze                       | 49 |
| 5.3.2 Aufbau neuronaler Netze  | 51 |
| 5.3.3 Zur Ermittlung eines geeigneten neuronalen Netzes                | 53 |
| 5.3.4 Eingesetzte Software   | 56 |
| 5.3.5 Orientierende Versuche   | 57 |
| 5.3.6 Erste Analyse mit einem neuronalen Netz                          | 58 |
| 5.3.7 Analyse des Experiments mit einem geeigneten neuronalen Netz     | 65 |
| 5.3.8 Zusammenfassung  | 71 |

|  |     |
|--|-----|
| 5.4 Weitergehende Betrachtungen  | 72  |
| 5.4.1 Parametrisierung der Pulse   | 72  |
| 5.4.2 Kernspektroskopie mit der LSC  | 73  |
| <b>6. Weitere SISAK-Experimente</b>  | 75  |
| 6.1 Die SISAK-Experimente vom November/Dezember 2000 und März 2001   | 75  |
| 6.1.1 Direkter Nachweis von Rf   | 75  |
| 6.1.2 DBP-Experiment mit Rf  | 76  |
| 6.1.3 TOA-Experiment mit Rf  | 76  |
| 6.1.4 Weitere Experimente  | 77  |
| 6.1.5 Zusammenfassung  | 77  |
| 6.2 MicroSISAK   | 78  |
| <b>7. Zur Reaktion von Dimethyl-POPOP mit HNO<sub>3</sub></b>  | 80  |
| <b>8. Suche nach ungewöhnlichen <math>\alpha</math>-<math>\gamma</math>-Koinzidenzen im Zerfall des <sup>210</sup>Fr</b> | 83  |
| 8.1 Ursprüngliches Experiment  | 83  |
| 8.2 Bestätigungsexperiment   | 85  |
| <b>9. Zusammenfassung</b>  | 88  |
| <b>Anhang</b>  | 90  |
| Quellcodes   |     |
| A1 Auswertung des SISAK-Experiments vom November 1998 mit GOOSY  | 90  |
| A2 AcqirisReader2  | 99  |
| A3 Verwendete Abkürzungen und Akronyme   | 113 |
| <b>Literatur</b>   | 114 |

## 1. Einleitung

Zu den interessantesten Aufgaben der experimentellen Kernchemie zählt die Herstellung und Charakterisierung von Transactiniden-Elementen und die Untersuchung ihrer chemischen Eigenschaften. Zum Studium der Chemie der Transactiniden in flüssiger Phase kann das schnelle Flüssig-Flüssig-Extraktionssystem SISAK in Verbindung mit der Flüssigszintillationsspektroskopie (LSC) als Detektionsmethode eingesetzt werden.

In der LSC werden Szintillationspulse registriert, die auf den Durchgang von Teilchen durch eine Lösung (Szintillator) und die Wechselwirkung des Teilchens mit den Lösungsmittelmolekülen und die darauf folgende Emission von Licht zurückzuführen sind. Da diese Wechselwirkung teilchenspezifisch ist, haben die Pulse für das jeweilige Teilchen charakteristische Formen. Ziel bei Transactiniden-Experimenten ist es, die Transactinidenatome an Hand ihres  $\alpha$ -Zerfalls eindeutig nachzuweisen. Dazu müssen die Signale von  $\alpha$ -Teilchen von den übrigen Signalen unterschieden werden können, was die bisher bekannten Verfahren nur unzureichend leisten. Die Verfügbarkeit neuer Messelektronik macht es möglich, neue Verfahren zur Pulsformunterscheidung zu entwickeln.

In Kapitel 2 dieser Arbeit werden die Grundlagen der Experimente zur Chemie der Transactiniden behandelt. Im Mittelpunkt stehen dabei die Erzeugung von Transactiniden, die theoretischen Grundlagen der Chemie der Transactiniden und ein allgemeiner Überblick über die Systeme zu ihrem Studium. Ausführlich wird dabei das im Rahmen dieser Arbeit verwendete SISAK-System vorgestellt.

Kapitel 3 behandelt die Methode der Flüssigszintillationsspektroskopie. Nach einer kurzen Einführung in die Flüssigszintillationsspektroskopie und einer allgemeinen Darstellung der physikalischen Grundlagen der Methode wird das Problem der Pulsformdiskriminierung vorgestellt.

Die in den letzten Jahren durchgeführten SISAK-Experimente und ihre Ergebnisse werden in den Kapiteln 4-6 ausführlich dargestellt. Ausgehend vom SISAK-Experiment vom November 1998 werden die Detektionsprobleme, aber auch die in den letzten Jahren erzielten Verbesserungen im SISAK-Aufbau erkennbar. Den wesentlichen Schwerpunkt der Arbeit bildet die neu entwickelte Methode der Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen (PSD-NN), die in Kapitel 5 detailliert beschrieben ist. Es wird dargestellt, wie mit dieser Methode nahezu untergrundfreie  $\alpha$ -LSC-Spektren erhalten werden können.

In Kapitel 7 und 8 werden ergänzende Untersuchungen, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, behandelt.

## 2. Chemie der Transactiniden

### 2.1 Das Periodensystem der Elemente

Zu Beginn des 19. Jahrhunderts wurden einige der damals bekannten Elemente von Döbereiner wegen ihrer Ähnlichkeiten nach aufsteigenden Atomgewichten in Triaden zusammengefasst. Damit war erstmals ein Zusammenhang zwischen chemischem Verhalten und Atomgewicht hergestellt. Nachdem der erste internationale Chemikerkongress in Karlsruhe 1860 die Atomgewichte zahlreicher Elemente geklärt hatte, erkannte Mendelejew 1868, dass es ein periodisches Gesetz geben musste, das die Eigenschaften der Elemente widerspiegelt [Sacks02]. Mendelejew bemerkte den numerischen Zusammenhang zwischen den Triaden und ordnete rund dreißig Elemente in einer Tabelle in sieben Gruppen an. (Die Gruppe der Edelgase wurde erst später entdeckt.) Dabei zeigte sich, dass die Döbereinerschen Triaden Li/Na/K, Ca/Sr/Ba, S/Se/Te, Cl/(Br)/I letztlich Ausschnitte aus einzelnen Gruppen waren.

Die chemischen Eigenschaften der Homologen, wie die in einer Gruppe stehenden Elemente auch genannt werden, sind sehr ähnlich. Es lassen sich in den Gruppen und Perioden bestimmte Trends feststellen. Diese Tatsache erlaubte es Mendelejew, durch Extrapolation die Existenz bis dahin unbekannter Elemente und deren Eigenschaften vorherzusagen. Schwierigkeiten hatte er jedoch, Nebengruppenelemente richtig einzuordnen. Beispielsweise stellte er das schwerste damals bekannte Element, Uran, in seinem Periodensystem unter Wolfram, da es große chemische Ähnlichkeit mit Wolfram hat, übersah aber einige Anomalien. Uran ist nicht das vermutete homologe Eka-Wolfram, sondern nur ein Pseudohomologes der Gruppe 6. Dieses Phänomen, das ähnlich stark ausgeprägt bei allen leichten Actiniden zu beobachten ist, kommt in manchen Darstellungen des Periodensystems durch eine besondere Anordnung der pseudohomologen Elemente zum Ausdruck (Abbildung 2.1).

#### *Transactiniden*

Tatsächlich erfolgt die Einordnung der einzelnen Elemente ins Periodensystem nur entsprechend ihrer Kernladungszahl und elektronischen Struktur, die natürlich in engem Zusammenhang mit dem chemischen Verhalten steht. Uran, das „letzte“ natürliche Element des Periodensystems, gehört zur Gruppe der Actiniden. Mittlerweile sind 20 künstliche Elemente jenseits des Urans bekannt. Die ersten 11 Transurane gehören noch zur Actinidenserie [Seaborg54]. Nach dem Abschluss der 5f-Schale mit  $Z=103$  folgen die sogenannten Transactiniden.

#### *Relativistische Effekte*

Die Transactiniden werden im Periodensystem unter ihren leichteren Homologen angeordnet, die bisher untersuchten Elemente 104 bis 108 also unter den Elementen Hafnium bis

Osmium. Diese Anordnung ist sehr suggestiv, da die chemischen Eigenschaften der Transactiniden nicht zwangsläufig so sein müssen, wie durch simple Extrapolation der Eigenschaften der leichten Homologen erwartet werden könnte. Grund sind relativistische Effekte in der Elektronenhülle der schweren Atome. Elektronen in der Nähe von Kernen hoher Kernladungszahl erreichen Geschwindigkeiten in einer der Lichtgeschwindigkeit vergleichbaren Größenordnung. Gemäß der Gleichung  $m = m_0 / \sqrt{1 - v/c}$  erfahren die Elektronen in Kernnähe einen relativistischen Massenzuwachs, in dessen Folge die s- und  $p_{1/2}$ -Orbitale kontrahieren (direkter relativistischer Effekt). Die d- und f-Orbitale werden dagegen wegen der stärkeren Abschirmung der Kernladung aufgeweitet (indirekter relativistischer Effekt)[Pyykkö79, Pyykkö88]. Es verändern sich die Energien der einzelnen Orbitale, was Auswirkungen auf Elektronenkonfiguration und Atom-/Ionenradien und somit die chemischen Eigenschaften haben kann.

The image shows a periodic table of elements. The actinide series (elements 90-103) and the lanthanide series (elements 58-71) are highlighted in yellow. The actinide series is labeled '+ Actiniden' and the lanthanide series is labeled '\* Lanthaniden'. The periodic table includes elements from Hydrogen (1) to Oganesson (118), with the actinide and lanthanide series shown as separate rows below the main table. The actinide series starts with Thorium (90) and ends with Lawrencium (103). The lanthanide series starts with Cerium (58) and ends with Lutetium (71). The periodic table also shows the names of the groups: Actiniden and Lanthaniden.

Abbildung 2.1: Das Periodensystem der Elemente (Quelle: GSI/B. Schausten)

Das Ziel von Experimenten zur Chemie der Transactiniden besteht also im detaillierten Studium ihrer Eigenschaften und dem Vergleich der so erhaltenen Ergebnisse mit den aus einfachen oder empirischen Extrapolationen und theoretischen Berechnungen abgeleiteten Vorhersagen. Auf diesem Wege können Informationen zur Stärke der auftretenden relativistischen Effekte gewonnen werden. Dabei muss aber berücksichtigt werden, dass relativistische Effekte auch schon bei den leichteren Homologen auftreten können. Zum Beispiel werden einige ungewöhnliche Eigenschaften von Quecksilber so erklärt. Dessen schweres Homolog, Element 112, soll sogar Edelgas- und nicht mehr Metallcharakter besitzen. Vorläufige Ergebnisse eines ersten Experiments zur Chemie des Elements 112 unterstützen diese These [Ya-



kushev01, Yakushev02]. Damit wären in der 7. Periode des Periodensystems mindestens zwei Elemente mit Edelgaseigenschaften zu finden: Element 112 und Element 118.

## 2.2 Produktion von Transactiniden

Wie alle Elemente jenseits des Fermiums können die Transactiniden ausschließlich durch Kernreaktionen erzeugt werden, bei denen zwei Atomkerne fusionieren. Die Fusion wird erreicht, indem ein Projektil mit hoher Geschwindigkeit auf ein Target geschossen wird. Das Projektil bringt also eine hohe kinetische Energie mit sich. Diese ist nötig, um die Coulomb-abstoßung der beiden Kerne zu überwinden und die Kerne in Kontakt zu bringen und so überhaupt die Verschmelzung beider Kerne zu ermöglichen. Der gebildete Verbundkern (*compound nucleus*) stabilisiert sich zunächst durch Neutronenabdampfung und zerfällt dann weiter, in der Regel durch  $\alpha$ -Zerfall oder Spontanspaltung (*spontaneous fission, sf*).

### *Nachweis schwerster Elemente*

Ninov et al. publizierten 1999 die Entdeckung des Elements 118, das in der Reaktion  $^{208}\text{Pb}(^{86}\text{Kr}, 1n)^{293}118$  gebildet worden sei [Ninov99]. Identifiziert wurde das Element anhand von drei korrelierten  $\alpha$ -Zerfallsketten, die unter Zuhilfenahme von Modellrechnungen den entsprechenden Nukliden zugeordnet wurden. Derartige Ketten stellen eine Art Signatur für den Zerfall eines Nuklids dar. Sie werden beobachtet, nachdem der interessierende Produktkern von den unerwünschten Produkten der Kernreaktion abgetrennt wird und in einem Detektorarray implantiert wird. Danach kann die Zerfallskaskade orts- und zeitaufgelöst registriert werden. Für die Identifizierung neuer Isotope ist es hilfreich, wenn die Zerfallseigenschaften einiger Glieder der Kette bekannt sind. Die Methode der  $\alpha$ - $\alpha$ - bzw.  $\alpha$ -sf-Korrelationsmessung wird auch bei den meisten Experimenten zur Chemie der Transactiniden angewendet, wobei mit den gemessenen Mutter-Tochter-Korrelationen die Mutternuklide zweifelsfrei identifiziert werden können.

### *Wirkungsquerschnitt*

Das Experiment von Ninov et al. fußte auf Berechnungen von Smolanczuk, die dieser für eine Reihe von Reaktionen, bei denen ein Projektil auf ein  $^{208}\text{Pb}$ -Target geschossen wird und sich nach Abdampfen eines Neutrons der Produktkern bilden soll, durchgeführt hat [Smolanczuk99]. Smolanczuk berechnete für die Produktion von  $^{289}116$ ,  $^{291}118$  und  $^{293}118$  unerwartet hohe Wirkungsquerschnitte. (Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  ist ein Maß für die Häufigkeit der Erzeugung eines bestimmten Produkts in einer Kernreaktion und wird als Quotient aus der Zahl der gebildeten Produkte  $A$  und dem Projektilfluss  $\phi_{\text{proj}}$ , der Zahl der Targetatome  $N_{\text{target}}$  und der Bestrahlungszeit  $t$  definiert und in barn ( $10^{-24} \text{ cm}^2$ )

$$\sigma = \frac{A}{\phi_{\text{proj}} \cdot N_{\text{target}} \cdot t}$$

angegeben.) Der von Ninov et al. angegebene Wirkungsquerschnitt betrug 2.2 pb. Bei einer Re-Analyse der Daten konnten jedoch die angegebenen drei  $^{293}\text{118}$ -Zerfallsketten nicht mehr gefunden werden [Ninov02, Dalton02].

Auch bei den Daten zur Entdeckung des Elements 112 gab es Unklarheiten. Hofmann et al. berichteten kürzlich, dass von den ursprünglich bei der Entdeckung des Elements 112 beobachteten zwei  $^{277}\text{112}$ -Zerfallsketten [Hofmann96] nur eine wiedergefunden wurde. Allerdings wurde bei einem neuen Experiment, das sich ebenfalls der Reaktion  $^{208}\text{Pb}(^{70}\text{Zn},1n)^{277}\text{112}$  bediente, eine neue Zerfallskette beobachtet [Hofmann02, IUPAC01]. Ein anderer Syntheseweg für das Element 112 wird von Oganessian et al. angegeben [Oganessian99a]. Dabei wurde über die Reaktion  $^{238}\text{U}(^{48}\text{Ca},3n)^{283}\text{112}$  ein Isotop produziert, das durch Spontanspaltung mit einer Halbwertszeit von 81 s zerfällt. Der Wirkungsquerschnitt betrug 5 pb.

#### *hot fusion vs. cold fusion*

Diese beiden Reaktionen, die zur direkten Erzeugung des Elements 112 genutzt werden, lassen sich unterschiedlichen Reaktionsarten zuordnen. Die Reaktion  $^{208}\text{Pb}(^{70}\text{Zn},1n)^{277}\text{112}$  ist ein typisches Beispiel für eine *cold fusion reaction*. Der Terminus der kalten Fusion bezieht sich in diesem Zusammenhang auf die Anregungsenergie des bei der Fusion von Projektil- und Targetkern gebildeten Produktkerns (*compound nucleus*). Sie liegt in der Größenordnung von 10-20 MeV. Verwendet werden asymmetrische Projektil-Target-Paarungen. Üblicherweise werden als Target das „doppelt-magische“  $^{208}\text{Pb}$  oder  $^{209}\text{Bi}$  in Kombination mit relativ leichten, möglichst „magischen“ Projektilen (meist  $^{50}\text{Ti}$ - $^{70}\text{Zn}$ ) genutzt, um den Kühlungseffekt der Bindungsenergie der „doppelt-magischen“ bzw. „magischen“ Kerne zu nutzen. Die „Abkühlung“ des Produktkerns wird durch das Abdampfen weniger Neutronen erzielt. Bei der heißen Fusion (*hot fusion*) werden stark asymmetrische Projektil-Target-Paarungen genutzt. Projektile sind häufig C, O, Ne, Mg, die auf Actinidentargets geschossen werden. Die Anregungsenergie des Produktkerns liegt in der Größenordnung von 40-50 MeV, es werden ungefähr 4 bis 5 Neutronen abgedampft, bis ein abgeregerter Produktkern entsteht. Bei Verwendung des „doppelt-magischen“  $^{48}\text{Ca}$  liegt die Anregungsenergie bei etwa 30 MeV [Oganessian02].

Charakteristisch für die kalte Fusion sind im Vergleich zur heißen Fusion relativ hohe Wirkungsquerschnitte. Allerdings entstehen dabei neutronenarme Nuklide, die häufig eine relativ niedrige Halbwertszeit haben. Die heiße Fusion liefert dagegen neutronenreichere Nuklide mit längeren Lebensdauern. Beide Reaktionsarten wurden systematisch zur Erzeugung zahlreicher Transactiniden-Isotope eingesetzt (Abbildung 2.2).

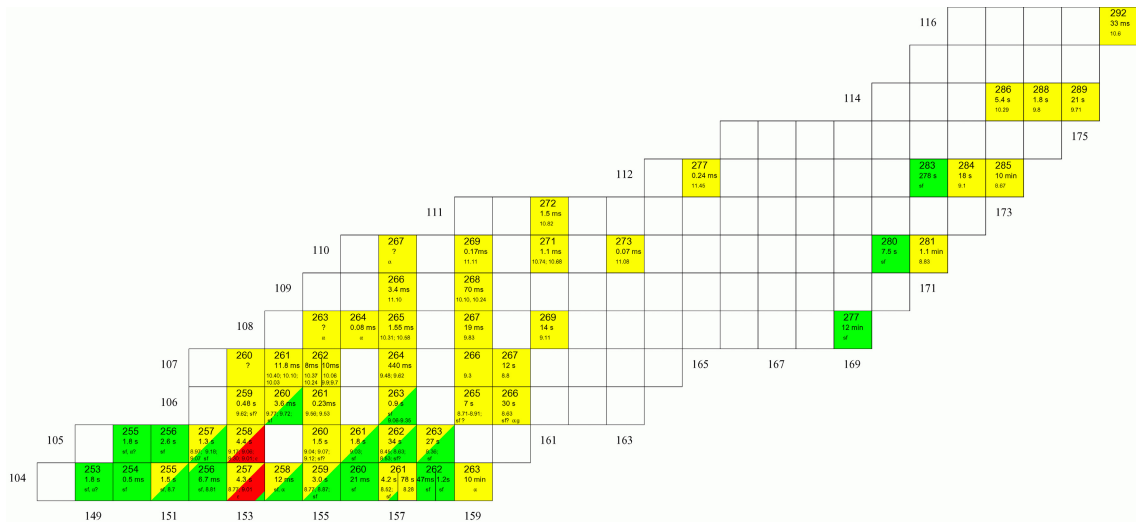


Abbildung 2.2: Das obere Ende der Nuklidkarte (Stand: September 2002)

Mit Hilfe der heißen Fusion wurden nach Angaben von Oganessian et al. auch die beiden bisher schwersten bekannten Elemente, die Elemente 114 und 116, synthetisiert [Oganessian99b, Oganessian99c, Oganessian00a, Oganessian00b]. Sie wurden über die Reaktionen  $^{242}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},3n)^{287}114$ ,  $^{242}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},4n)^{288}114$ ,  $^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},3n)^{289}114$  und  $^{248}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},4n)^{292}116$  erzeugt. Diese Angaben werden aber noch kontrovers diskutiert [Armbruster00]. Armbruster diskutiert vor allem Argumente eher technischer Art, die Zweifel an der Zuordnung der Ereignisse zu Element 114 und 116 aufkommen lassen. Er weist darauf hin, dass alle publizierten Zerfallsketten keine bisher bekannten Isotope aufweisen, mithin also im „Niemandland der Nuklidkarte“ erscheinen und enden. Auch widersprechen die von Oganessian et al. angegebenen Wirkungsquerschnitte dem bisher beobachteten Trend zu einer stetigen Abnahme der Wirkungsquerschnitte bei der Produktion von Transactiniden. Sie liegen beim Element 104 (Rutherfordium) noch in der Größenordnung von zehn Nanobarn, bei Element 112 nur noch bei Picobarn.

### „Magische“ Zahlen

Element 114 ist deshalb von großem Interesse, weil nach dem Schalenmodell für  $Z=114$  eine abgeschlossene Protonenschale und  $N=184$  eine abgeschlossene Neutronenschale erwartet wird. Derartige „magische“ Zahlen zeigen, ähnlich den Verhältnissen in der Elektronenhülle, eine relativ große Energielücke zwischen einer vollbesetzten und der nächsten aufzufüllenden Schale an. Weitere „magische“ Zahlen sind 8, 20, 28, 50, 82, 126. Das Schalenmodell erklärt die besondere Stabilität von Nukliden, bei denen sowohl Protonen- als auch Neutronenzahl „magisch“, die entsprechenden Kerne also „doppelt-magisch“, sind. Das bisher schwerste existierende „doppelt-magische“ Nuklid ist  $^{208}\text{Pb}$ . Basierend auf diesem Modell wurde um das Isotop  $^{298}114$  herum eine „Insel der Stabilität“ von langlebigen, sphärischen Kernen vorhergesagt. In zahlreichen jüngeren Arbeiten, basierend auf der von Strutinsky

entwickelten Methode der Schalenkorrektur zum Flüssigkeitstropfenmodell, wird allerdings diskutiert, ob 114 tatsächlich eine „magische“ Zahl ist [z.B. Möller94, Cwiok99, Reinhard99, Kruppa00]. Dementsprechend werden auch andere „magische“ Zahlen ( $Z=114-126$ ,  $N=172-184$ ) diskutiert. Für deformierte Kerne ändern sich die Vorhersagen der „magischen“ Zahlen [Sobiczewski01]. Beispielsweise wird um  $Z=108$  und  $N=162$  eine weitere Stabilitätsinsel vorhergesagt, die vom Experiment bestätigt wurde [Düllmann02, Türler02]. Hier handelt es sich um hexadekapol-deformierte Kerne.

#### *Kernreaktionen zur Produktion der Elemente 104-108*

Die Untersuchungen zur Chemie der Transactiniden konzentrierten sich bisher auf die Elemente 104-108. Dafür kommen nur relativ langlebige Nuklide in Frage, die in der Regel durch heiße Fusion hergestellt werden. Bisher wurden die Elemente 104 (Rutherfordium, Rf), 105 (Dubnium, Db), 106 (Seaborgium, Sg), 107 (Bohrium, Bh) und 108 (Hassium, Hs) untersucht. Einige typische Kernreaktionen zur Produktion dieser Elemente sind in Tabelle 2.1 aufgeführt.

| Element         | Kernreaktion   | Wirkungsquerschnitt $\sigma$ | $T_{1/2}$ (Produkt) |
|-----------------|--|------------------------------|---------------------|
| <b>104 (Rf)</b> | $^{207}\text{Pb}(^{50}\text{Ti},2\text{n})^{255}\text{Rf}$         | 4.8 nb                       | 1.64 s              |
|                 | $^{249}\text{Cf}(^{12}\text{C},4\text{n})^{257}\text{Rf}$          | 10 nb                        | 4s                  |
|                 | $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti},1\text{n})^{257}\text{Rf}$         | 10 nb                        |                     |
|                 | $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5\text{n})^{261\text{m}}\text{Rf}$  | 13 nb                        | 78 s                |
|                 | $^{244}\text{Pu}(^{22}\text{Ne},5\text{n})^{261\text{m}}\text{Rf}$ | 4 nb                         |                     |
| <b>105 (Db)</b> | $^{208}\text{Pb}(^{51}\text{V},1\text{n})^{258}\text{Db}$          |                              | 4.4 s               |
|                 | $^{209}\text{Bi}(^{50}\text{Ti},1\text{n})^{258}\text{Db}$         | 2.9 nb                       |                     |
|                 | $^{250}\text{Cf}(^{15}\text{N},5\text{n})^{261}\text{Db}$          | 510 pb                       | 1.8 s               |
|                 | $^{248}\text{Cm}(^{19}\text{F},5\text{n})^{262}\text{Db}$          | 1 nb                         | 34 s                |
|                 | $^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O},5\text{n})^{262}\text{Db}$          | 6 nb                         |                     |
|                 | $^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O},4\text{n})^{263}\text{Db}$          | 10 nb                        | 27 s                |
| <b>106 (Sg)</b> | $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne},5\text{n})^{265}\text{Sg}$         | $\approx 240$ pb             | 7.4 s               |
|                 | $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne},4\text{n})^{266}\text{Sg}$         | $\approx 25$ pb              | 21 s                |
| <b>107 (Bh)</b> | $^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne},5\text{n})^{266}\text{Bh}$         | 25-250 pb                    | $\approx 1$ s       |
|                 | $^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne},4\text{n})^{267}\text{Bh}$         | 60 pb                        | 17 s                |
| <b>108 (Hs)</b> | $^{248}\text{Cm}(^{26}\text{Mg},5\text{n})^{269}\text{Hs}$         | $\approx 6$ pb               | 14 s                |

*Tabelle 2.1: Typische Kernreaktionen zur Produktion der Elemente 104-108 mit Angabe der Wirkungsquerschnitte und der Halbwertszeit des Produkts (nach [Schädel02])*

### 2.3 Chemie mit einzelnen Atomen

Bei den heute an Beschleunigern verwendeten Strahlströmen von etwa  $10^{12}$ - $10^{13}$  Ionen pro Sekunde, die auf Targets von weniger als  $1 \text{ mg cm}^{-2}$  Dicke treffen, sind wegen der niedrigen Wirkungsquerschnitte der entsprechenden Kernreaktionen nur sehr niedrige Produktionsraten zu erzielen. Sie reichen von wenigen Atomen pro Minute bei Element 104 bis zu wenigen Atomen pro Tag bei Element 108. Soll also das chemische Verhalten dieser Elemente untersucht werden, müssen Untersuchungen an einzelnen Atomen durchgeführt werden. Das bedingt zwei Probleme: Erstens muss die Frage geklärt werden, ob die Chemie einzelner Atome mit dem herkömmlichen, auf makroskopischen Mengen beruhenden chemischen Verständnis in Einklang gebracht werden kann. Zweitens muss wegen der kurzen Lebensdauer der untersuchten Atome die Kinetik der eigentlichen Reaktion schnell genug sein.

Für Gleichgewichtsreaktionen wird die Gleichgewichtskonstante  $K$  als Produkt der Aktivitäten der einzelnen Komponenten

$$K = \prod_i a_i^{\nu_i}$$

oder - in der gebräuchlicheren Form - als Produkt der Konzentrationen

$$K_c = \prod_i c_i^{\nu_i}$$

angegeben. Diese Beziehung eignet sich für die Beschreibung makroskopischer Verhältnisse, bei denen eine statistische Zahl von Teilchen vorliegt. Doch wenn nur ein einzelnes Atom vorliegt, verliert ein Ausdruck wie der obige seinen Sinn. In diesem Fall wäre nämlich mindestens einer der Faktoren Null. Deshalb wird nach Guillaumont et al. die Gleichgewichtskonstante  $K$  nicht mehr mit Hilfe der Aktivitäten bzw. Konzentrationen beschrieben, sondern mit Hilfe von Wahrscheinlichkeiten [Guillaumont89, Guillaumont91]. Das bedeutet für Verteilungsmethoden wie Chromatographie oder Extraktion, dass die so definierte Gleichgewichtskonstante ein Produkt der Wahrscheinlichkeiten ist, das Atom zu einem bestimmten Zeitpunkt in der einen oder anderen Phase zu finden. Um zu einer signifikanten Aussage zu gelangen, muss der einstufige Prozess des Phasenübergangs ausreichend oft durchgeführt werden. Das kann entweder durch zahlreiche Einzelexperimente oder mit Methoden erreicht werden, bei denen zahlreiche dieser Einstufenprozesse hintereinander folgen. Auf diese Weise wird eine Gleichgewichtskonstante (hier: ein Verteilungskoeffizient) erhalten, die der makroskopischen Konstante äquivalent ist.

Das Atom muss das Gleichgewicht erreicht haben, bevor es zerfallen ist. Das bedeutet, dass die Aktivierungsenthalpie  $\Delta G^\ddagger$  der entsprechenden Gleichgewichtsreaktion möglichst niedrig sein sollte. So hat das einzelne Atom die Chance, den thermodynamisch günstigsten Zustand zu erreichen. Nach Borg et al. sollte  $\Delta G^\ddagger$  einen Wert von 60-70 kJ nicht überschreiten, damit das Gleichgewicht in weniger als 1 Sekunde erreicht werden kann [Borg81].

## 2.4 Experimentelle Techniken zum Studium der Chemie der Transactiniden

### 2.4.1 Aufbau typischer Systeme

Ein System zur Untersuchung der Chemie der Transactiniden besteht aus mehreren Teilinstallationen. Eine mögliche Einteilung dieser wäre die in:

- Beschleuniger
- Target/Targetkammer/Transport der Reaktionsprodukte
- Chemieapparatur und
- Detektionssystem.

Die in dieser Arbeit besprochenen Experimente mit dem SISAK-System fanden an drei Beschleunigeranlagen statt: am UNILAC-Linearbeschleuniger der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt, am Philips-Zyklotron des Paul-Scherrer-Instituts (PSI) in Villigen und am 88-inch-Zyklotron des Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL) in Berkeley. Diese Anlagen werden dazu genutzt, um die zur Produktion der Transactiniden notwendigen Kernreaktionen durchzuführen. Die Projektile müssen in den Beschleunigern auf hohe Geschwindigkeiten gebracht werden, bevor sie auf das Target geschossen werden, um mit den Targetatomen zu fusionieren.

#### *Targetkammer*

Das Target selbst ist meistens eine durch *molecular plating* elektrochemisch auf einer Berylliumfolie (*backing*) abgeschiedene Actinidenverbindung, die in eine oxidische Form überführt wird. Das Target wird in der Targetkammer so eingebaut, dass der Ionenstrahl nach Durchtritt durch eine Fensterfolie auf das *backing* trifft. (Hinter der Vakuum isolierenden Fensterfolie kühlt ein Stickstoffstrom Fensterfolie und Target.) Die in der Kernreaktion gebildeten Kerne werden aus dem Target herausgeschlagen. Diese *recoils* gelangen in eine Kammer, durch die kontinuierlich Helium gespült wird, und werden dort abgestoppt. Das Gas enthält in der Regel zusätzliche Aerosolpartikel (häufig KCl- oder Graphit-Cluster), an denen die Reaktionsprodukte adsorbiert werden. Mit diesem He/Aerosol-Gasstrom werden die Reaktionsprodukte über eine Kapillare zur Chemieapparatur transportiert (sogenannter Gasjet).

#### *Chemieapparaturen*

Die Limitierung möglicher Experimente auf Prozesse mit kleiner Aktivierungsenergie führt dazu, dass praktisch fast ausschließlich chromatographische Systeme eingesetzt werden. Die entsprechenden Experimente zur Chemie der Transactiniden sind deshalb entweder Gasphasen- oder Flüssigphasenexperimente. Da die Produktionsraten der Transactiniden sehr gering sind, müssen diese Experimente für einen lang anhaltenden Betrieb ausgelegt werden, um eine ausreichende Zahl von Ereignissen detektieren zu können.

Bei Gasphasenexperimenten werden flüchtige Verbindungen der Transactiniden untersucht. Sie werden in Apparaturen wie OLGA (On-Line Gas Chemistry Apparatus) gebildet, nachdem der He/Aerosol-Strom bei hohen Temperaturen mit einem Strom reaktiver Gase vereinigt wird [Gäggeler91]. Die gebildeten Verbindungen passieren eine isotherme Quarzsäule und werden nach einem *recluster*-Vorgang zu einem Detektionssystem transportiert (isotherme Gaschromatographie). Eine andere Variante ist die Abscheidung der gebildeten Verbindungen entlang eines Temperaturgradienten (Thermochromatographie). Diese Technik kam zum Beispiel beim jüngst veröffentlichten Experiment zum Element 108 zum Einsatz. Die Auswertung der detektierten Ereignisse kann zur Bestimmung thermodynamischer Größen genutzt werden, die Aufschluss über das Verhalten der untersuchten Elemente geben. Beide Methoden sind kontinuierlich betriebene Verfahren.

Im Gegensatz dazu beruhen die bisherigen Experimente in flüssiger Phase in der Regel auf diskontinuierlichen Verfahren. Die einzelnen Experimente müssen etliche Male wiederholt werden, um zu statistisch verwertbaren Aussagen zu kommen. Ein typischer Vertreter ist ARCA (Automated Rapid Chemistry Apparatus). ARCA ist eine automatisierte Apparatur, mit der eine Vielzahl von schnellen HPLC-Experimenten durchgeführt werden kann [Schädel89, Strub00]. Mittlerweile existiert eine weiter entwickelte Version von ARCA, AIDA (Automated Ion Exchange Apparatus Coupled with Detection System for Alpha Spectroscopy) [Haba01, Haba02]. Eine andere, quasi-kontinuierliche Methode stellt die Mehrsäulentechnik (MCT: Multi-Column Technique) dar [Pfrepper00, Kronenberg01]. Diese elegante Methode beruht auf dem indirekten Nachweis der Transactiniden über ihre Zerfallsprodukte.

#### 2.4.2 SISAK

Ein kontinuierliches Verfahren, das seit einigen Jahren auch bei Transactiniden-Experimenten angewendet wird, beruht auf dem Prinzip der Flüssig-Flüssig-Extraktion. Es wird mit dem SISAK-System realisiert (SISAK: Short-lived Isotopes Studied by the AKUFVE Technique). SISAK wurde zur kontinuierlichen Abtrennung von kurzlebigen Produkten aus dem komplexen Produktgemisch von Kernreaktionen entwickelt und ist in einer Reihe von Arbeiten ausführlich beschrieben [z.B. Skarnemark02a, Johansson00, Wierczinski98, Wierczinski96, Alstad95, Skalberg91, Skarnemark90, Persson89]. Mit SISAK wurden Nuklide mit Halbwertszeiten bis weniger als 1 Sekunde untersucht, so zum Beispiel  $^{224}\text{Pa}$  ( $T_{1/2} = 0.85 \text{ s}$ ) [Wierczinski01].

#### *Grundlagen*

Das Prinzip der Flüssig-Flüssig-Extraktion ist die Verteilung eines gelösten Stoffes zwischen zwei nicht mischbaren Flüssigkeiten. Typischerweise liegen je eine wässrige und eine organische Phase vor. Werden beide Phasen miteinander in Kontakt gebracht, so kann eine in einer

Phase gelöste Verbindung in die andere Phase übergehen. Es stellt sich ein Verteilungsgleichgewicht ein, und das Konzentrationsverhältnis des Stoffes in beiden Phasen nimmt bei konstanter Temperatur einen konstanten Wert an. Diese Konstante wird mit Hilfe der Aktivitäten bzw. Konzentrationen im Nernstschen Verteilungssatz beschrieben

$$K_d = \frac{a_1}{a_2} \approx \frac{c_1}{c_2}$$

$a_1/c_1$  seien die Aktivität/Konzentration des Stoffes in der organischen Phase und  $a_2/c_2$  die in der wässrigen Phase. Diese Verteilung eines Stoffes zwischen zwei Phasen führt zu einer Verarmung der einen Phase (Raffinat) an diesem Stoff, während er in der anderen Phase (Extrakt) angereichert wird. Die Konstante  $K_d$  ist spezifisch für die beiden Phasen. Die Gültigkeit dieser Beziehung lässt sich überprüfen, indem für einen größeren Konzentrationsbereich  $c_1$  und  $c_2$  gegeneinander aufgetragen werden. Es sollte eine Gerade, die Verteilungsisotherme, resultieren. Sind Abweichungen von der Linearität zu erkennen, dann ist dies auf zusätzliche Gleichgewichte im System zurückzuführen [Otto95]. In diesem Fall läge im System auch nicht nur die eine, interessierende Spezies vor, sondern möglicherweise auch eine oder mehrere andere.

Deshalb wird aus praktischen Gründen ein Verteilungsverhältnis  $D$  (*distribution ratio*, oft auch als Verteilungskoeffizient bezeichnet) definiert, in das die Gesamtkonzentrationen des Stoffes in den beiden Phasen eingehen.

$$D = \frac{c_{1,\text{gesamt}}}{c_{2,\text{gesamt}}}$$

Dieses Verteilungsverhältnis ist besonders nützlich beim Studium der Verteilung eines Elementes X zwischen zwei Phasen. Dann lässt sich das Verteilungsverhältnis aller Spezies des Elementes X in den Phasen 1 und 2 mit

$$D = \frac{c_{X1,\text{gesamt}}}{c_{X2,\text{gesamt}}}$$

beschreiben. Diese Beziehung eignet sich für die Beschreibung des Extraktionsverhaltens sehr gut bei der Arbeit mit radioaktiven Tracern, da bei Schüttelversuchen die Volumina der beiden Phasen einfach bestimmt werden können und an Stelle der Stoffmenge die Aktivitäten des Elements in beiden Phasen eingesetzt werden können. Die Extraktionsausbeute ist dann der Quotient aus der Konzentration eines Stoffes in einer Phase und der Summe der Konzentrationen in beiden Phasen.

$$E = \frac{c_{X1,\text{gesamt}}}{c_{X1,\text{gesamt}} + c_{X2,\text{gesamt}}} \quad \text{und} \quad \%E = 100 \cdot \frac{c_{X1,\text{gesamt}}}{c_{X1,\text{gesamt}} + c_{X2,\text{gesamt}}}$$

Um selektiv ein bestimmtes Element extrahieren zu können, müssen die Extraktionsbedin-



gungen entsprechend gewählt sein. Das Element muss in einer geeigneten Verbindung vorliegen, um aus der einen in die andere Phase extrahiert werden zu können. Die verwendeten Lösungsmittel müssen diese Verbindung lösen können. Anorganische Verbindungen werden häufig unter Zuhilfenahme von Extraktionsmitteln extrahiert. Dadurch wird sichergestellt, dass die extrahierten Verbindungen auch in der organischen Phase löslich bleiben. Bezogen auf die schnelle Flüssig-Flüssig-Extraktion von kurzlebigen Nukliden mit SISAK ergeben sich noch einige zusätzliche Randbedingungen [Skalberg91]. Einige der wichtigsten sind:

- Das Verhältnis der Dichten von schwerer und leichter Phase muss größer 1.1 sein, um eine gute Phasentrennung zu erreichen.
- Das Extraktionsmittel muss mit einer schnellen Kinetik mit dem Extraktanten reagieren. Das bedeutet im Einzelnen, dass die Reaktionsgeschwindigkeit in den Phasen hoch sein muss, der Transport aus der Phase an die Phasengrenze muss schnell erfolgen und genauso der Übertritt von einer Phase in die andere.
- Die Lösungen dürfen das Equipment nicht angreifen beziehungsweise das Equipment muss entsprechend resistent sein.

### *Aufbau*

Die Extraktion erfolgt beim SISAK-System in zu speziellen Zentrifugen gehörigen statischen Mischern. Sie sind ein wesentliches Element im ganzen SISAK-Aufbau (Abbildung 2.3). Die zur Zeit verwendeten Zentrifugen gehören zur dritten Generation des SISAK-Systems, SISAK 3. SISAK 3 ist eine gegenüber der ersten SISAK-Version deutlich verkleinerte Lösung und wird ausführlich von Persson et al. und Skalberg beschrieben [Persson89, Skalberg91]. Ihre wesentlichen Vorteile sind die kurzen Trennzeiten und der relativ geringe Chemikalienverbrauch. Durch die sehr niedrigen Flussraten zwischen 0.1 und 3 ml s<sup>-1</sup> ist eine direkte  $\alpha$ -spektrometrische Messung mit einem geeigneten Flüssigszintillationsspektroskopie-System möglich.

Wie bei den anderen Transactiniden-Experimenten wird auch bei SISAK-Experimenten die produzierte Aktivität mit einem He/Aerosol-Gasjet zum System transportiert. Dort wird sie in eine wässrige Phase eingetragen. Dies erfolgt in speziellen statischen Mischern, die einen intensiven Kontakt von Gas und wässriger Phase sicherstellen [Johansson00]. Der derzeit verwendete Mischer besteht aus zwei in einem Glasrohr eingeschmolzenen Glasfritten. Die Lösung wird vor dem Mischer auf etwa 70 °C erwärmt, um so die Auflösung der Aerosol-Partikel in der wässrigen Phase und die Effizienz des nachfolgenden Entgasers zu verbessern sowie um die Kinetik der späteren Extraktionsschritte zu beeinflussen.

Das Transportgas und gasförmige Kernreaktionsprodukte werden dann aus der Lösung entfernt. Dies erfolgt in einem Entgaser, der ähnlich aufgebaut ist wie die Zentrifugen. Der Entgaser hat ein Innenvolumen von etwa 0.1 ml, woraus eine schnelle Trennung und eine kurze

Transportzeit resultieren. Das Gas wird abgeleitet, während die Flüssigkeit zum Mischer der nächsten Zentrifuge gepumpt wird, in dem sie mit der organischen Phase kontaktiert und emulgiert wird.

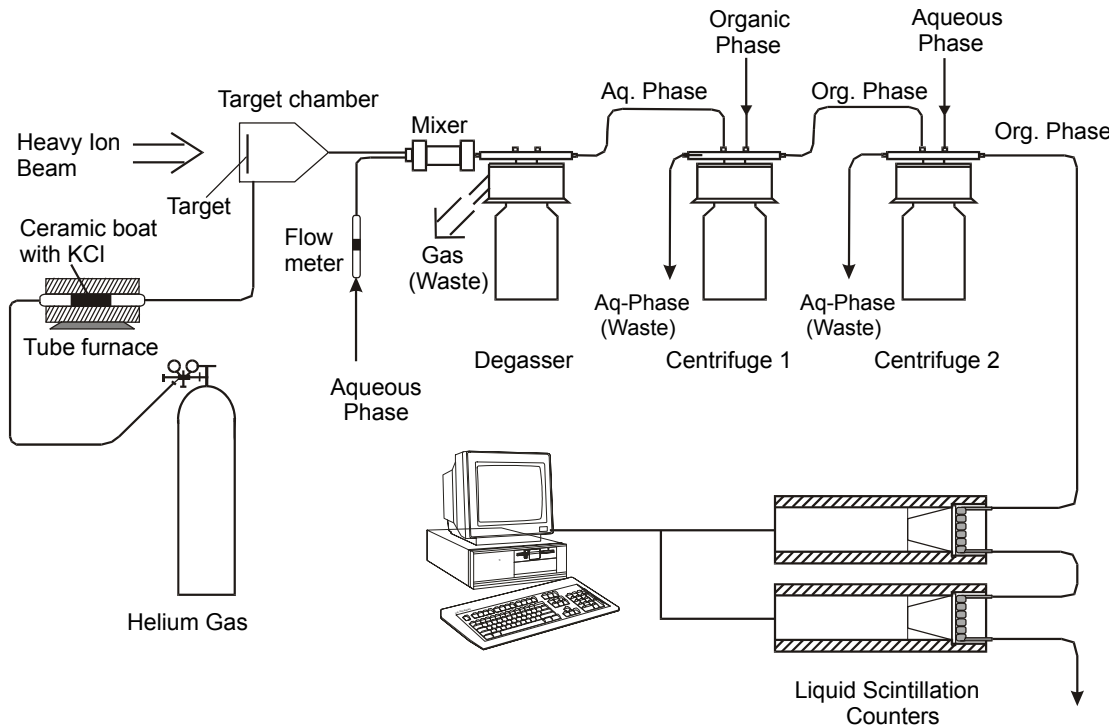


Abbildung 2.3: Schema eines typischen SISAK-Experiments (aus [Skarnemark02a])

Die Zentrifugen des SISAK 3-Systems wurden speziell für kleine Flussraten bis  $3 \text{ ml s}^{-1}$  entwickelt. In den Zentrifugen werden zuerst die beiden ankommenden Phasen in einem Y-förmigen Einlass gemischt und danach in einer Einlasskammer auf die vorgesehene Umdrehungsgeschwindigkeit (maximal 45 000 Umdrehungen pro Minute) beschleunigt. Danach gelangt die Mischung in Trennkammern. Die beiden Phasen werden nach der Phasentrennung abgeleitet. Über Drosselventile am Ausgang der Zentrifuge lässt sich der Gegendruck regulieren, womit die Güte der Phasentrennung beeinflusst werden kann. Die Phasentrennung selbst wird über eine kontinuierliche Messung des Brechungsindex kontrolliert. Das Innenvolumen der Zentrifuge beträgt 0.3 ml. Es stehen mehrere baugleiche Zentrifugen zur Verfügung, mit denen bei Bedarf weitere Extraktionsschritte ausgeführt werden können.

Bei Transactiniden-Experimenten wird in einer sogenannten Booster-Zentrifuge nach dem letzten Extraktionsschritt die organische Phase mit dem Szintillator vereinigt und Argon in die Lösung eingetragen. Das Argon treibt andere Gase, hauptsächlich Sauerstoff, aus der Lösung aus und verringert das bei der Flüssigszintillationsspektroskopie störende Quenching deutlich. Vor der Booster-Zentrifuge, die im Prinzip ein normaler Entgaser ist, kann das Argon über ein  $^{227}\text{Ac}$ -Präparat geleitet werden. Das aus dem Präparat emanierende  $^{219}\text{Rn}$

( $T_{1/2} = 3.96$  s,  $E_{\alpha} = 6.82$  MeV) und dessen Tochter  $^{215}\text{Po}$  ( $T_{1/2} = 1.78$  ms,  $E_{\alpha} = 7.39$  MeV) eignen sich für die Energiekalibration in der Flüssigszintillationsspektroskopie. Ein weiterer Vorteil der Booster-Zentrifuge besteht darin, dass der vom Detektionssystem ausgehende Gegendruck reduziert wird. Alle Zentrifugen sind aus PEEK (Polyetheretherketon) gefertigt, einem sehr widerstandsfähigem Kunststoff, der bis auf konzentrierte Schwefelsäure gegen alle üblichen Säuren und organischen Lösungsmittel resistent ist.

Während bei den anderen gängigen Transactiniden-Experimenten zur Detektion der  $\alpha$ -Zerfälle PIPS-Detektoren (PIPS: Passivated Ion-implanted Planar Silicon) zum Einsatz kommen, wird bei SISAK-Experimenten als Detektionsmethode die Flüssigszintillationsspektroskopie genutzt. Sie ermöglicht es, SISAK als kontinuierliches System laufen zu lassen, da nicht beständig Proben präpariert werden müssen, sondern die Flüssigkeit zu speziellen Messzellen transportiert wird. Diese befinden sich vor Photomultipliern, die das im Szintillator erzeugte Licht registrieren. Die Besonderheit der bei SISAK-Experimenten verwendeten Messzelle ist die mäanderförmige Struktur. Sie gewährleistet eine lange Aufenthaltszeit der Lösung vor dem Photomultiplier. Bei einem durchschnittlichen Volumen der Messzelle von 5.5 ml und einer Flussrate von  $1 \text{ ml s}^{-1}$  ergeben sich pro Photomultiplier mindestens 5 Sekunden Beobachtungszeit.

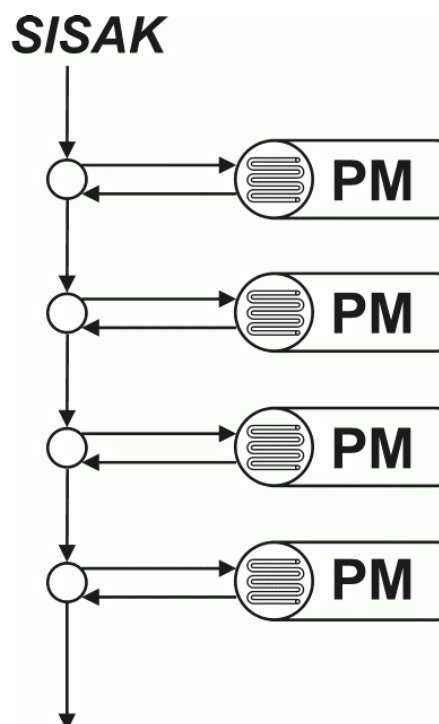


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Schaltung der Messzellen bei einem SISAK-Experiment

Üblicherweise werden bei einem SISAK-Experiment mehrere Photomultiplier (oft wird hier synonym für den Aufbau von Photomultiplier, einem lichtdurchlässigen Plexiglasteil, einer Kunststoffscheibe und der Messzelle der Begriff Detektor verwendet) gleichzeitig verwendet. Sie werden von der Flüssigkeit nacheinander durchlaufen. Wird in einem Detektor ein  $\alpha$ -Ereignis registriert, das in das gesetzte Energiefenster passt, wird die Messzelle geschlossen und auf einen Tochterzerfall innerhalb eines bestimmten Zeitfensters gewartet (Tochtermodus). Währenddessen läuft die Flüssigkeit nur durch die anderen Detektoren. Diese Schaltung ist so angelegt, dass immer mindestens ein Detektor im Muttermodus läuft und gegebenenfalls die Messzelle, die am längsten im Tochtermodus war, wieder geöffnet wird (Abbildung 2.4).

Das Signal des Photomultipliers wird von einer geeigneten Messelektronik weiterverarbeitet. Der ganze SISAK-Aufbau wird üblicherweise in einem vereinfachten Schema dargestellt, in dem die Details der chemischen Trennung erkennbar werden (siehe z.B. Kapitel 4.1).

Die Methode der Flüssigszintillationsspektroskopie wird im nachfolgenden Kapitel 3 ausführlich behandelt. Ein wesentlicher Schwerpunkt liegt bei der Vorstellung des bei SISAK-Experimenten verwendeten Szintillators und der Darstellung der Entstehung und Messung der Signale in der Flüssigszintillationsspektroskopie.

### 3. Flüssigszintillationsspektroskopie

#### 3.1 Allgemeines

Die Methode der Flüssigszintillationsspektroskopie (LSC: liquid scintillation counting) beruht auf der Wechselwirkung von radioaktiver Strahlung mit einer Lösung von zumeist organischen Substanzen (Szintillator). Beim Durchgang durch den Szintillator gibt das Teilchen seine Energie an die umgebenden Szintillatormoleküle ab. Der Szintillator emittiert daraufhin Photonen, die von einem Sekundärelektronenvervielfacher (PM: Photomultiplier) detektiert werden. Das Signal des Photomultipliers wird dann von einer geeigneten Messelektronik weiterverarbeitet. Die Zahl der Photonen ist proportional der Teilchenenergie und die Form des entstehenden Lichtpulses charakteristisch für das verursachende Teilchen. Dies ermöglicht es, mittels geeigneter Methoden die detektierten Teilchenarten zu unterscheiden (Kapitel 3.4 und 3.5).

Üblicherweise bestehen flüssige Szintillatoren aus mehreren Komponenten, dem Lösungsmittel (*solvent*) und den in ihm gelösten Substanzen (*solutes*). Entscheidend für die Wahl der Komponenten ist der Spektralbereich, in dem der Photomultiplier detektiert. Der Szintillator muss Photonen entsprechender Energie emittieren. In Kapitel 3.3 ist die Zusammensetzung des bei den SISA-K-Experimenten zur Chemie der Transactiniden verwendeten Szintillationscocktails dargestellt.

Die Komponenten eines Szintillators sind in der Regel aromatische Verbindungen. Oft werden dem Szintillator noch Verbindung wie Alkohole oder Detergentien zugegeben, um auch wässrige Proben in Lösung bringen und messen zu können. Sie verursachen aber häufig Quencheffekte und verschlechtern so die Energieauflösung. Einen Ausweg für dieses Problem bieten extraktive Szintillatoren, bei denen der Szintillator noch ein Extraktionsmittel enthält. Allerdings sind die Extraktionsmittel oft nicht spezifisch für den Analyten, so dass noch andere Verbindungen in den Szintillator extrahiert werden können. Das kann zu einer Erhöhung des Untergrunds führen.

Die wesentlichen Vorteile der Flüssigszintillationsspektroskopie sind die Nachweiswahrscheinlichkeit von fast 100 Prozent, die Messung in  $4\pi$ -Geometrie, die einfache Herstellung von Messproben und die Möglichkeit, die Szintillationspulse verschiedener Teilchen zu detektieren. Dies ist gleichzeitig ein Nachteil, da es schwierig sein kann, diese Pulse zu unterscheiden und bei einer nicht erfolgreichen Unterscheidung Untergrundereignisse auftreten (Kapitel 3.5). Die Unterscheidung gelingt derzeit fast ausschließlich mit Hilfe empirischer Methoden, die sich charakteristische Unterschiede in der Struktur der Pulse zu Nutze machen. Von Bedeutung für die Standardanwendung sind vor allem elektronische Schaltungen zur Unterscheidung von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Pulsen. Die entsprechende Methode wird als Pulsformdiskriminierung (PSD: pulse shape discrimination) oder manchmal auch Pulsformanalyse (PSA: pulse shape analysis)

(PSA: pulse shape analysis) bezeichnet. Ein entscheidender Nachteil der Flüssigszintillationsspektroskopie ist die schlechte Energieauflösung.

Interessant für die künftige Anwendung bei der LSC-Routineanalytik könnten jüngere Arbeiten zur Auswertung komplizierter  $\alpha$ - und  $\beta$ -Spektren werden, bei denen die Spektren mit Hilfe relativ komplexer mathematischer Methoden entfaltet werden [Aupiais00, Kashirin01, Malinovskiy01]. Dadurch wird es vereinfacht, simultan mehrere Isotope gleichzeitig zu messen und somit auch den Aufwand zur Herstellung der Messproben zu verringern.

### 3.2 Der Szintillationsprozess

Die Entstehung von Szintillationspulsen lässt sich auf zwei Vorgänge zurückführen: Erstens auf den Durchgang eines ionisierenden Teilchens durch den Szintillator und die dabei verursachte Anregung des Szintillators (Kapitel 3.2.1). Zweitens auf die Vorgänge im Szintillator selbst, die zur Emission von Fluoreszenzlicht führen (Kapitel 3.2.2 und 3.3).

#### 3.2.1 Durchgang ionisierender Teilchen durch den Szintillator

Beim Durchgang durch einen flüssigen Szintillator hinterlässt ein ionisierendes Teilchen entlang seines Weges durch die Lösung eine Spur angeregter Moleküle, ionisierter Moleküle, Radikale und Molekülfragmente. Die Wechselwirkung der ionisierenden Strahlung mit dem Szintillator ist abhängig von der Art des ionisierenden Teilchens. Üblicherweise werden als typische Fälle die Wechselwirkung von  $\gamma$ -,  $\beta$ - und  $\alpha$ -Strahlung mit der Flüssigkeit betrachtet [McDowell94]. Die Interaktion von schwereren Teilchen wie Spaltfragmenten mit dem Szintillator wird ähnlich den  $\alpha$ -Teilchen behandelt. (Ausführliche Darstellungen dieser Prozesse finden sich bei Birks und Overbeck [Birks64, Overbeck83].)

$\gamma$ -Strahlung wechselwirkt weit weniger mit Materie als  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Strahlung.  $\gamma$ -Quanten haben in leichten Medien eine sehr hohe Reichweite. Die trotzdem mögliche Absorption von  $\gamma$ -Quanten lässt sich im Wesentlichen auf drei Effekte zurückführen: photoelektrischer Effekt, Compton-Effekt und Paarbildung. Die dabei erzeugten Sekundärelektronen sind verantwortlich dafür, dass  $\gamma$ -Strahlung auch in der Flüssigszintillationsspektroskopie detektiert werden kann. Sie produziert Szintillationspulse gleicher Form wie  $\beta$ -Strahlung. Die  $\gamma$ -Strahlung erscheint im Flüssigszintillationsspektrum eher bei niedrigen Energien.

Die Reichweite von  $\beta$ -Teilchen ist endlich und liegt zwischen der von  $\alpha$ - und  $\gamma$ -Strahlung. Der Energieverlust von  $\beta$ -Teilchen auf dem Weg durch den Szintillator ist auf die Wechselwirkung mit Elektronen (Anregung oder Ionisation) oder Atomkernen (Bremsstrahlung) zurückzuführen. Positronen können zudem nach ihrer Thermalisierung mit Elektronen unter Aussenden zweier  $\gamma$ -Quanten mit  $E_\gamma = 511 \text{ keV}$  reagieren (Vernichtungsstrahlung).

Schwere geladene Teilchen wie  $\alpha$ -Teilchen oder Spaltfragmente verlieren ihre Energie im Szintillator hauptsächlich durch inelastische Kollisionen, der Weg durch den Szintillator ist mehr oder weniger gerade. Es erfolgen wie bei  $\beta$ -Teilchen Anregung und Ionisation der Szintillatormoleküle, wobei die Ionisationsdichte bei  $\alpha$ -Teilchen und Spaltfragmenten bedeutend höher ist. Die Reichweite von  $\alpha$ -Teilchen im Szintillator ist im Vergleich zu  $\beta$ -Teilchen und  $\gamma$ -Quanten am geringsten. Passo et al. geben für einen nicht näher bezeichneten „typischen Flüssigszintillator“ Reichweiten von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Teilchen an (Tabelle 3.1) und berechnen unter der Annahme eines linearen Energieverlusts  $dE/dx$  den linearen Energietransfer (LET) von Teilchen zu Szintillator [Passo92]. Genauere Untersuchungen zur Reichweite schwerer Teilchen in Szintillatoren sind nicht bekannt. Diese Reichweite lässt sich aber mit einigen halbempirischen Beziehungen abschätzen [Birks64].

| Teilchen | Energie <sup>1</sup><br>/MeV | Reichweite<br>/cm | LET <sup>2</sup><br>/keV/ $\mu\text{m}$ |
|----------|------------------------------|-------------------|---|
| $\alpha$ | 4                            | 0.0042            | 95                                      |
|          | 5                            | 0.0053            | 94                                      |
|          | 6                            | 0.0063            | 95                                      |
| $\beta$  | 0.02                         | 0.001             | 0.67                                    |
|          | 0.20                         | 0.046             | 0.14                                    |
|          | 2.00                         | 1.180             | 0.06                                    |

Tabelle 3.1: Reichweiten und LET von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Teilchen in einem typischen Flüssigszintillator (nach [Passo92])

<sup>1</sup> Die angegebene  $\beta$ -Energie ist die maximale  $\beta$ -Energie  $E_{max}$

<sup>2</sup> Der LET ist für  $\beta$ -Teilchen berechnet mit einer mittleren  $\beta$ -Energie von  $E = 1/3 E_{max}$

Aus der Tabelle ist auch zu erkennen, dass  $\alpha$ - und  $\beta$ -Teilchen ihre Energie im Szintillator vollständig abgeben. Wie die an den Szintillator abgegebene Energie zwischen der Spur des Teilchens und dem Gebiet außerhalb dieser Spur verteilt wird und wie letztlich die Anregungsdichte in diesen Regionen ist, hängt von dem spezifischen Energieverlust, der Ladung und der Geschwindigkeit des Teilchens ab. Dass offenbar zahlreiche Szintillatormoleküle angeregt werden, wird schnell klar, da bei Abregung eines Moleküls durch Fluoreszenz nur ein Photon emittiert wird, jedes Teilchen aber einen ganzen Lichtpuls verursacht.

### 3.2.2 Fluoreszenz des Szintillators

Die der Fluoreszenz vorausgehende Anregung ist eine Anregung von elektronischen Zuständen, bei aromatischen Molekülen meistens der Übergang eines Elektrons von einem  $\pi$ - oder n-Molekülorbital in antibindende  $\pi$ -Orbitale. Bei Zweielektronenzuständen können sich diese Zustände bezüglich des Gesamtspins  $S = \sum s_i$  der beiden Bindungselektronen unterscheiden. Im Grundzustand sind die beiden Elektronen im Allgemeinen gepaart ( $S = 0$ ) und die Multiplizität  $M = (2S + 1)$  ist  $M = 1$ . Solche Zustände werden als Singulettzustände be-

zeichnet, wobei mit  $S_0$  der Grundzustand bezeichnet wird und mit  $S_1, S_2, S_3 \dots$  die angeregten Singulettzustände. Sind die beiden Elektronen nicht gepaart ( $S = 1$ ), dann haben die entsprechenden Zustände die Multiplizität  $M = 3$  und werden Tripletzustände ( $T_1, T_2, T_3 \dots$ ) genannt. Die Tripletzustände haben normalerweise eine niedrigere Energie als die korrespondierenden Singulettzustände (Hundsche Regel).

### Fluoreszenz und Phosphoreszenz

Optische Übergänge zwischen Zuständen gleicher Multiplizität sind erlaubte Übergänge. Übergänge zwischen Zuständen unterschiedlicher Multiplizität sind eigentlich verboten, aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung jedoch schwach erlaubt. Folglich ist die Übergangswahrscheinlichkeit für letztere sehr klein. Bei Absorption von Energie erfolgt also in der Regel ein Übergang aus dem Schwingungsgrundzustand von  $S_0$  in die Schwingungszustände von  $S_1, S_2$  etc. Dieser Prozess ist im Jablonski-Diagramm dargestellt, an Hand dessen die möglichen Übergänge zwischen elektronischen Zuständen häufig diskutiert werden.

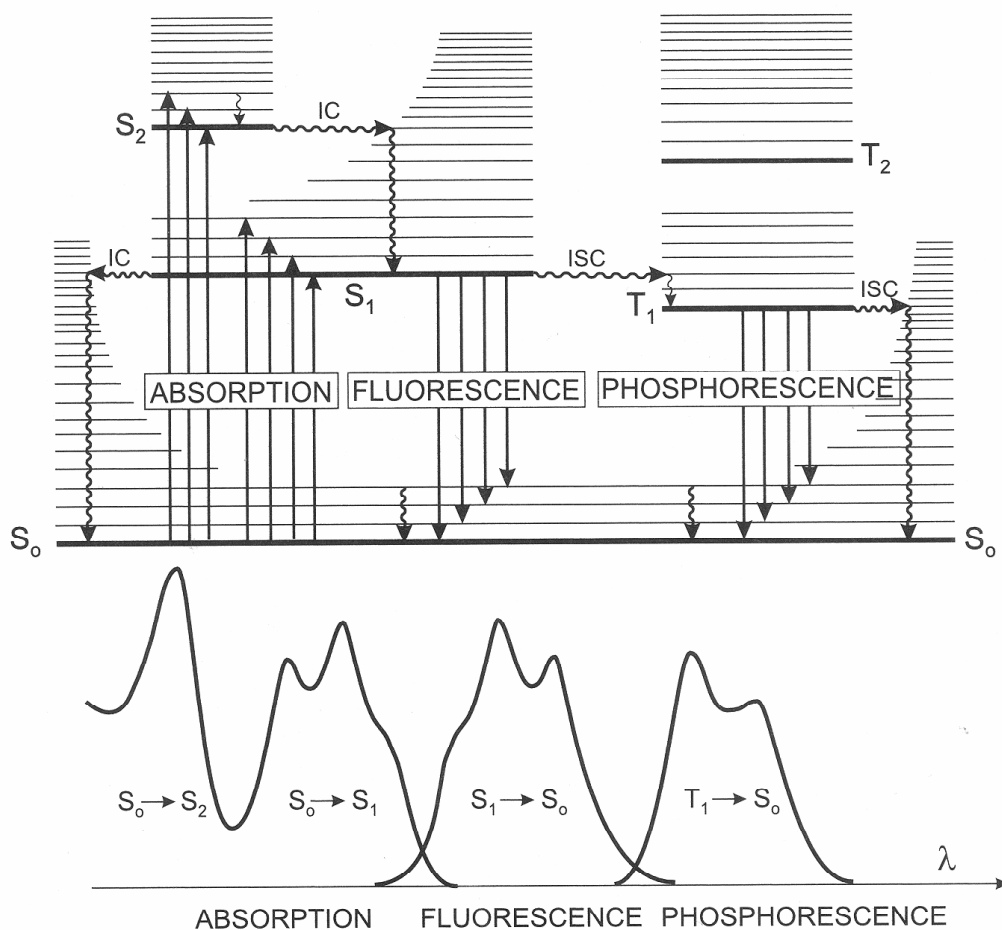


Abbildung 3.1: Jablonski-Diagramm mit Darstellung der relativen Position der Absorptions-, Fluoreszenz- und Phosphoreszenzspektren (aus [Valeur02])



Das Molekül kann über verschiedene Prozesse in den Grundzustand zurückkehren:

- durch strahlungslose Schwingungsrelaxation zwischen Schwingungszuständen eines elektronischen Zustandes mit Zeiten in der Größenordnung von  $10^{-13}$  bis  $10^{-11}$  s;
- durch strahlungslose *internal conversion* (IC) zwischen Schwingungszuständen gleicher Energie, die jedoch zu unterschiedlichen elektronischen Zuständen gleicher Multiplizität gehören mit Zeiten ebenfalls in der Größenordnung von  $10^{-13}$  bis  $10^{-11}$  s;
- durch strahlungsloses *intersystem crossing* (ISC) zwischen Schwingungszuständen gleicher Energie, die zu elektronischen Zuständen unterschiedlicher Multiplizität gehören mit Zeiten in der Größenordnung von  $10^{-10}$  bis  $10^{-7}$  s;
- durch spontane Fluoreszenz, einen Übergang zwischen elektronischen Zuständen gleicher Multiplizität unter Emission eines Photons (hier:  $S_1 \rightarrow S_0$ ), dessen Energie der Energie des Übergangs entspricht; die Lebensdauern des angeregten Zustandes liegen in der Größenordnung von  $10^{-10}$  bis  $10^{-7}$  s und
- durch Phosphoreszenz, einen der Fluoreszenz ähnlichen strahlenden Übergang zwischen elektronischen Zuständen unterschiedlicher Multiplizität (hier:  $T_1 \rightarrow S_0$ ) mit Triplettlebensdauern in der Größenordnung von  $10^{-6}$  bis  $10^0$  s.

Emission erfolgt bei Molekülen in kondensierter Phase in der Regel nur aus dem Schwingungsgrundzustand des tiefsten angeregten elektronischen Zustandes, also  $S_1$  oder  $T_1$ , heraus (Kasha-Regel) in die Schwingungszustände des elektronischen Grundzustands [Haken98]. Die Moleküle erreichen  $S_1$  oder  $T_1$  aus den höher angeregten Zuständen durch Schwingungsrelaxation und *internal conversion* oder *intersystem crossing*. Das *intersystem crossing* zwischen Singulett- und Triplettzuständen ist von der Stärke der Spin-Bahn-Kopplung abhängig. Die Spin-Bahn-Wechselwirkungsenergie wächst mit  $Z^4$ . Werden mit schweren Atomen einzelne Atome im Molekül (innerer Schweratomeffekt) oder im Lösungsmittel (äußerer Schweratomeffekt) substituiert, wird die Übergangsrate des *intersystem crossing* erhöht. *Intersystem crossing* tritt ebenfalls häufiger auf, wenn der  $S_0 \rightarrow S_1$ -Übergang ein  $n-\pi^*$ -Übergang ist [Valeur02].

### Verzögerte Fluoreszenz

Ein inverses *intersystem crossing* ist bei einer kleinen Energiedifferenz zwischen  $T_1$  und  $S_1$  und einer langen Lebensdauer von  $T_1$  möglich. Es erfolgt dann aus einem angeregten Schwingungszustand von  $T_1$  ein *intersystem crossing* nach  $S_1$  (verzögerte Fluoreszenz des E-Typs). Ein ähnlicher Vorgang kann auftreten, wenn zwei Moleküle im Triplettzustand zusammenstoßen. Dabei überträgt ein Molekül so viel Energie auf das andere, dass dieses in den  $S_1$ -Zustand und von dort unter Emission eines Photons in den Grundzustand zurückkehren kann, während das andere Molekül strahlungslos deaktiviert (Triplett-Triplett-Vernichtung). Diese sogenannte verzögerte Fluoreszenz des P-Typs ist von großer Bedeutung in der Flüssigszintillationsspektroskopie, da sie einen maßgeblichen Einfluss auf die Form von Szintillationspulsen hat (Kapitel 3.5). Prinzipiell ist auch noch ein Triplett-

Triplett-Übergang möglich, bei dem von zwei Molekülen im Triplett-Zustand eines in einen höheren Triplett-Zustand angeregt wird, während das andere in den Singulett-Zustand übergeht.

#### *Konkurrenzprozesse zur Fluoreszenz*

Mit Ausnahme der verzögerten Fluoreszenz des P-Typs sind die oben beschriebenen intrinsischen Wege zur Abregung eines Moleküls alle intramolekulare Prozesse. Es gibt noch weitere, intermolekulare Prozesse, bei denen die Energie eines angeregten Moleküls strahlungslos auf ein anderes übertragen wird. Diese Übertragung kann durch Stöße erfolgen oder berührungsgelöst durch elektrische Dipol-Dipol- oder höhere Multipol-Multipol-Wechselwirkungen über geringe Entfernungen (Förster-Prozess) [Förster48]. Je nachdem, ob der Reaktionspartner des Moleküls ein Molekül der gleichen Sorte oder ein Atom oder Molekül einer anderen Sorte ist, wird von Eigenlöschung und Fremdlöschung (Quenching) gesprochen. Im Allgemeinen ist bei Löschprozessen eine Konzentrations- und Temperaturabhängigkeit der Fluoreszenzquantenausbeute zu beobachten.

Diese Prozesse haben alle einen Einfluss auf die Fluoreszenzquantenausbeute, also den Anteil der angeregten Moleküle, die  $S_0$  durch Fluoreszenz erreichen. Für den Prozess des Quenchings lässt sich der Einfluss der Konzentration der Quenchsubstanz auf die Fluoreszenzquantenausbeute, das heißt, die Effizienz der Energieübertragung auf den Quencher, mit Hilfe der Stern-Volmer-Gleichung und relativ einfachen Fluoreszenzmessungen quantifizieren. Typische Quencher sind Sauerstoff und Verbindungen mit Sauerstoff (z.B. Alkohole, Ketone, Carbonsäuren) und Verbindungen mit schweren Atomen (z.B. Chlor, Iod). Oft wird im Zusammenhang mit dem Quenching auch der Begriff des „chemischen Quenchings“ verwendet. Damit ist die Bildung einer neuen Spezies aus Quencher und angeregtem Molekül gemeint. (Beispielsweise kann Sauerstoff oft mit einem angeregten Molekül  $M^*$  einen Komplex der Art  $M^*O_2$  bilden.)

Ein besonderer Fall der Eigen- oder Fremdlöschung ist die Bildung von Excimeren oder Exciplexen. Reagiert ein angeregtes Molekül  $M^*$  mit einem nicht angeregten Molekül  $M$ , so kann sich ein angeregtes Dimer (excited dimer, Excimer)  $M^*M$  bilden. Dieses Dimer kann wieder dissoziieren und dabei seine Anregungsenergie strahlungslos oder/und durch Abgabe eines Photons wieder abgeben. Gehören die beiden Moleküle  $M$  verschiedenen Spezies an, wird das Dimer als Exciplex bezeichnet. Auch die Excimeren-/Exciplexbildung ist abhängig von den Konzentrationen der beteiligten Spezies' und der Temperatur [Förster54, Förster69, Homma85].

Es gibt noch weitere Prozesse, die zur Verringerung der Fluoreszenzemission führen, so zum Beispiel Elektronen- oder Protonentransfer. Diese dürften aber vermutlich in Szintillatoren keine nennenswerte Rolle spielen.

### 3.3 Das System Dimethyl-POPOP/1-Methylnaphthalin/Toluol

Bei den SISAK-Experimenten zur Chemie der Transactiniden wird ein Szintillator verwendet, der im Wesentlichen aus drei Komponenten besteht: Dimethyl-POPOP (1,4-Bis(4-methyl-5-phenyloxazol-2-yl)-benzol), 1-Methylnaphthalin und Toluol. Die Zusammensetzung des Szintillators geht auf umfangreiche Vorarbeiten zurück [Overbeck83, Wierczinski94].

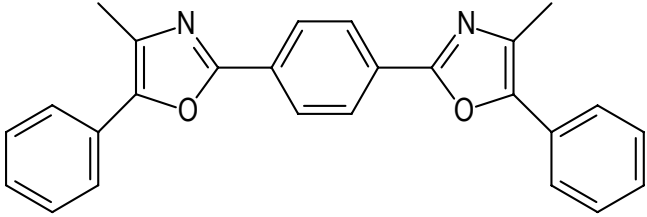
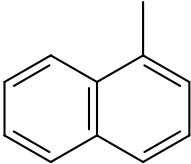
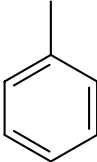
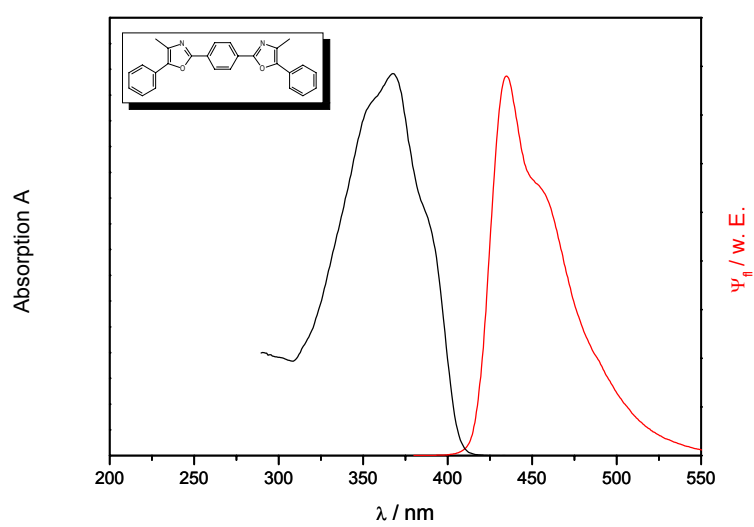
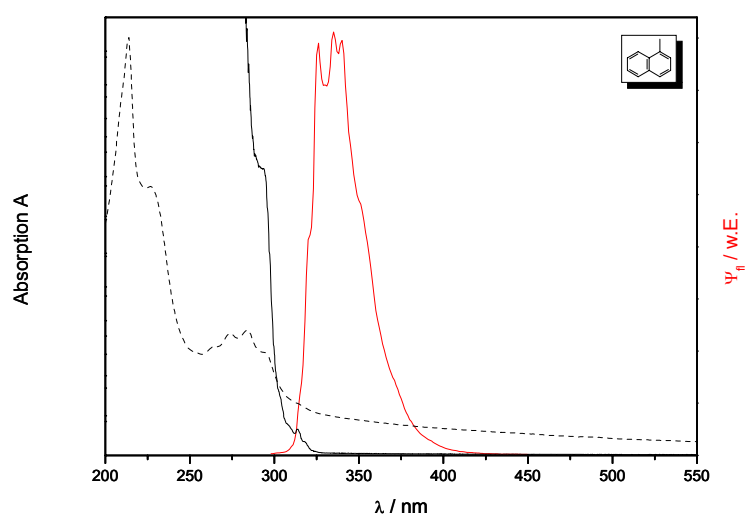
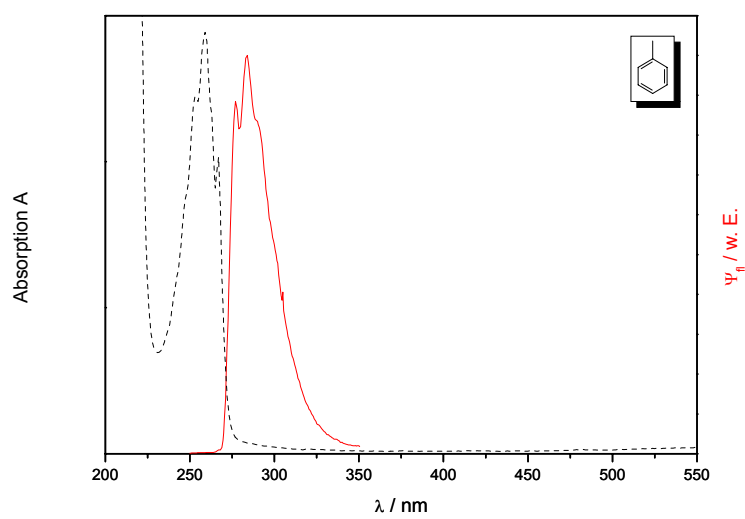
|   |  |
|---|--|
|    | <p><i>Dimethyl-POPOP</i><br/>(1,4-Bis(4-methyl-5-phenyloxazol-2-yl)-benzol)</p>  |
|   | <p><math>C_{26}H_{20}N_2O_2</math><br/><math>M = 392.46 \text{ g mol}^{-1}</math></p>  |
|    | <p><i>1-Methylnaphthalin</i></p>   |
|   | <p><math>C_{11}H_{10}</math><br/><math>M = 142.20 \text{ g mol}^{-1}</math><br/><math>\rho = 1.0202 \text{ g ml}^{-1}</math></p> |
|  | <p><i>Toluol</i></p>   |
|   | <p><math>C_7H_8</math><br/><math>M = 92.14 \text{ g mol}^{-1}</math><br/><math>\rho = 0.8669 \text{ g ml}^{-1}</math></p>        |

Table 3.2: Komponenten des bei SISAK-Experimenten verwendeten Szintillatorcocktails

Üblicherweise werden  $1.0 \text{ g l}^{-1}$  ( $2.55 \cdot 10^{-3} \text{ mol}$ ) bis  $3 \text{ g l}^{-1}$  ( $7.64 \cdot 10^{-3} \text{ mol}$ ) Dimethyl-POPOP und  $86 \text{ g l}^{-1}$  ( $0.60 \text{ mol}$ ) bis etwa  $250 \text{ g l}^{-1}$  ( $1.76 \text{ mol l}^{-1}$ ) 1-Methylnaphthalin in Toluol gelöst. Die maximale Löslichkeit von Dimethyl-POPOP in Toluol bei Raumtemperatur wird mit ca.  $3.5 \text{ g l}^{-1}$  angegeben [Wierczinski94]. Bei solch relativ hohen Konzentrationen droht aber zum Beispiel durch Schwankungen der Temperatur oder der Zusammensetzung der Lösung Dimethyl-POPOP auszufallen. (Eine derartige, tatsächlich aufgetretene Störung wird im Kapitel 7 beschrieben.) Deshalb liegt die Konzentration von Dimethyl-POPOP im Szintillator deutlich niedriger.

Abbildung 3.2 (gegenüberliegende Seite): Gemessene UV/VIS-Spektren (schwarz) und Fluoreszenzemissionsspektren (rot) von Toluol<sup>1</sup> (oben), 1-Methylnaphthalin<sup>1</sup> (Mitte) und Dimethyl-POPOP (unten).

<sup>1</sup> Die mit gestrichelten Linien dargestellten UV/VIS-Spektren von Toluol und 1-Methylnaphthalin wurden in der Gasphase gemessen, da flüssiges Toluol unterhalb von etwa  $280 \text{ nm}$  das eingestrahlte Licht vollständig absorbiert.



### *Energieübertragung auf Dimethyl-POPOP*

Die einzelnen Bestandteile eines Szintillatorcocktails müssen so aufeinander abgestimmt sein, dass der Szintillator Fluoreszenzlicht emittiert, das der Photomultiplier messen kann. Gebräuchliche organische Lösungsmittel absorbieren und fluoreszieren im ultravioletten Spektralbereich. Die verwendeten Photomultiplier zur Detektion des Szintillationslicht haben aber ihre maximale Empfindlichkeit im sichtbaren Spektralbereich. Deshalb werden dem Lösungsmittel noch Substanzen zugesetzt, die die Fluoreszenzemission zu höheren Wellenlängen verschieben („Wellenlängenschieber“) [Gruppen93]. Um diesen Effekt zu verdeutlichen, wurden im Rahmen dieser Arbeit die UV/VIS- und Fluoreszenzspektren der drei Verbindungen gemessen (Abbildung 3.2).

Es ist deutlich erkennbar, dass sich die Fluoreszenz- und Absorptionsemissionsspektren der drei Komponenten überlappen. Das zeigt, dass im Szintillator die Übertragung der Anregungsenergie von Toluol über 1-Methylnaphthalin auf Dimethyl-POPOP möglich ist. Anders gesagt, wird durch Anregung des Lösungsmittels Toluol die Fluoreszenz von Dimethyl-POPOP angeregt. Dieser Sachverhalt wird noch deutlicher, wenn in einer Lösung von Dimethyl-POPOP und 1-Methylnaphthalin in Toluol bei verschiedenen Wellenlängen angeregt wird und die resultierenden Fluoreszenzemissionsspektren aufgenommen werden (Abbildung 3.3 oben). Aus der gleichen Messung sind die Fluoreszenzintensitäten bei  $\lambda_{em} = 430 \text{ nm}$  gegen die Anregungswellenlängen aufgetragen (Abbildung 3.3 unten). Es ist leicht ersichtlich, dass die direkte Anregung des Dimethyl-POPOP eine höhere Fluoreszenzemission zur Folge hat.

Die primäre Anregung des Szintillators beim Durchgang eines Teilchens durch die Lösung ist eine strahlungslose Anregung (Kapitel 3.2.1). Direkt angeregt werden dabei Toluol und 1-Methylnaphthalin. Die direkte Anregung von Dimethyl-POPOP ist dagegen auf Grund der Konzentrationsverhältnisse vernachlässigbar. Die Energieübertragung von Toluol auf 1-Methylnaphthalin und von 1-Methylnaphthalin auf Dimethyl-POPOP kann also offensichtlich durch Emission und Absorption von Photonen geeigneter Wellenlänge erfolgen. (Dieser Energietransfer ist umso effizienter, je mehr die Emissionsspektren und Absorptionsspektren der verschiedenen Komponenten überlappen.) Als strahlungsloser Transfermechanismus ist ein intermolekularer Energietransfer über Dipol-Dipol-Wechselwirkungen zu vermuten, bei dem berührungslos über Abstände von bis zu mehreren Dutzend Angström Energie von einem Molekül auf ein anderes übertragen werden kann (Förster-Mechanismus) [Berlman73]. Die Geschwindigkeitskonstante des Energietransfers ist von der Fluoreszenzlebensdauer des Donors und vom Abstand  $r$  von Donor und Akzeptor mit  $r^{-6}$  abhängig. Der sogenannte Förster-Radius, bei dem die Wahrscheinlichkeit für strahlungslosen Energietransfer und spontane Fluoreszenz des Donors gleich groß sind, beträgt für Toluol/1-Methylnaphthalin  $32.0 \text{ \AA}$  und für 1-Methylnaphthalin/Dimethyl-POPOP  $41.1 \text{ \AA}$  [Aupiais02]. Über kurze Entfernungen von wenigen Angström kommen noch Austauschmechanismen in

Betracht, wobei die Ratenkonstante exponentiell vom Abstand  $r$  abhängt. Austauschmechanismen sind neben Singulett-Singulett-Übergängen vor allem für Triplett-Übergänge bedeutsam.

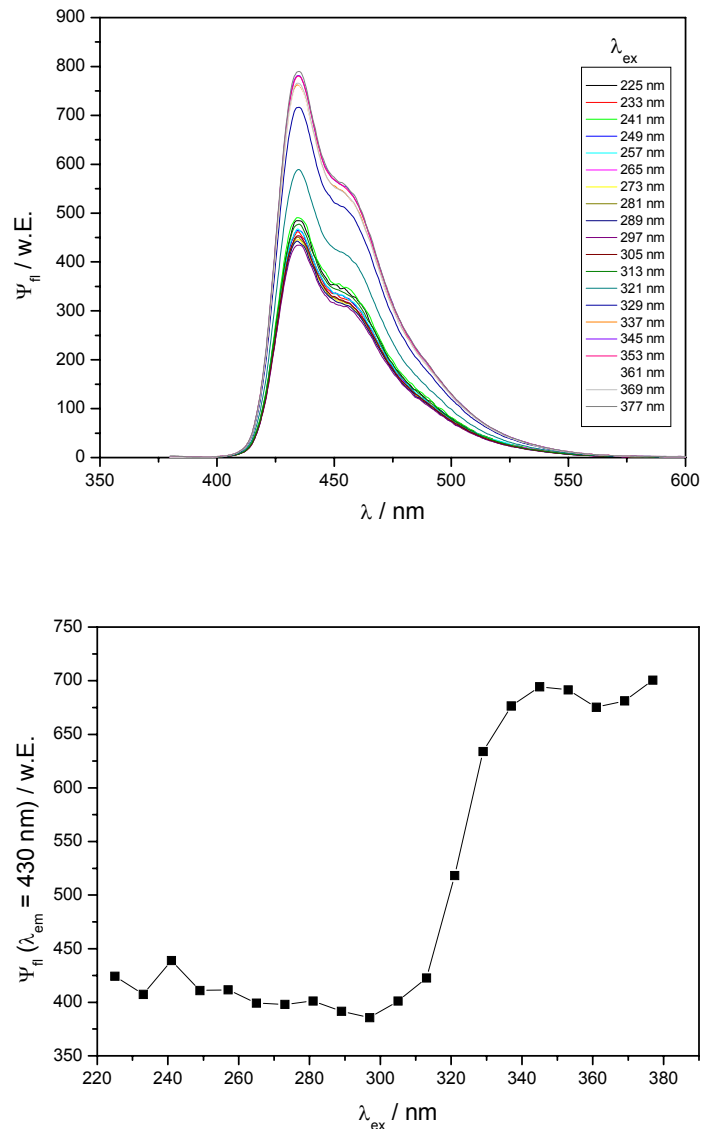


Abbildung 3.3: Anregung der Fluoreszenzemission von Dimethyl-POPOP durch Anregung von Toluol und 1-Methylnaphthalin. Gemessene Fluoreszenzemissionsspektren bei verschiedenen Anregungswellenlängen (oben) und Fluoreszenzemission im Maximum (430 nm) in Abhängigkeit von den Anregungswellenlängen.

Es gibt Ansätze, ausgehend von kinetischen Untersuchungen zur Besetzung von Singulett- und Triplettzuständen Szintillationscocktails für die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Spektroskopie zu optimieren. Diese sind jedoch auf Grund einer nicht ausreichenden Datenlage bis jetzt offenbar nicht weit fortgeschritten [Aupiais01].

### *Verringerung der Lichtausbeute*

Die Lichtausbeute kann allerdings durch verschiedene Prozesse verringert werden. Zu nennen sind vor allem

- Quenching durch Luft oder andere in Lösung befindliche Substanzen
- Bildung von Excimeren oder Exciplexen.
- *internal conversion* und *intersystem crossing*,

Das Quenching durch gelöste Luft, genauer gesagt durch den in Lösung befindlichen Sauerstoff, ist evident und in der Literatur vielfach beschrieben. Bei der Herstellung des Szintillators für SISAK-Experimente wird deswegen nach dem Mischen der verschiedenen Komponenten des Szintillators ungefähr 30 bis 60 Minuten lang Argon durch die Lösung geleitet, um so Sauerstoff aus der Lösung auszutreiben. Das dürfte weitgehend quantitativ gelingen. Streng genommen müssten die Lösungen mit anderen Verfahren wie zum Beispiel *freeze-pump-thaw*-Zyklen vollständig entgast werden. Das ist aber praktisch kaum mit einem angemessenem Aufwand durchführbar, da bei einer Flussrate von 1 ml/s immerhin 3.6 Liter Szintillator pro Stunde benötigt werden. Da der experimentelle Aufwand bei der Quantifizierung des Einflusses von Sauerstoff auf den Szintillator mit der Stern-Volmer-Gleichung relativ groß ist, wurde auf genauere Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit verzichtet.

Eine weitere wichtige Rolle spielt das „chemische Quenchen“. Es tritt in der Flüssigszintillationsspektroskopie auf, wenn sich im Szintillator noch Spezies befinden, die mit einem angeregten Szintillatormolekül reagieren können. Beim SISAK-System können das in erster Linie die bei den einzelnen Extraktionsschritten verwendeten Stoffe sein, die mit in den Szintillator eingeschleppt werden. Das betrifft also Extraktionsmittel wie Dibutylphosphat (DBP) und *n*-Triocetylamin (TOA) oder auch Säuren wie HNO<sub>3</sub> oder H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>. Sie können die Fluoreszenz direkt löschen oder es entstehen neue Spezies, die das Fluoreszenzlicht absorbieren können. So ist aus früheren SISAK-Experimenten bekannt, dass schon kleinere Mengen HNO<sub>3</sub> mit Dimethyl-POPOP reagieren können, wie auch durch UV/VIS-spektroskopische Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit nachgewiesen werden konnte (Kapitel 7). Dadurch verfärbt sich der Szintillator gelb, was zu einer geringeren Lichtausbeute führt, da die neu gebildete Verbindung das Fluoreszenzlicht des Szintillators absorbiert und dieses Licht nicht mehr den Photomultiplier erreicht (Farbquenching). Ist im Szintillator sehr viel HNO<sub>3</sub> anwesend, kann das Reaktionsprodukt der Säure mit Dimethyl-POPOP ausfallen, was eine Unterbrechung des Experiments zur Folge hat (Kapitel 7).

*Internal conversion*, *intersystem crossing* und die Excimerenbildung lassen sich im Gegensatz zum Quenching nicht ohne Weiteres von außen beeinflussen, da sie auf die Eigenschaften der verwendeten Szintillatorkomponenten zurückzuführen sind. *Intersystem crossing* kann durchaus ein erwünschter Effekt sein, da *intersystem crossing* zur Population von Triplettzuständen führt. Diese wiederum können durch verzögerte Fluoreszenz zerfallen, was erst

die Unterscheidung verschiedener Teilchen in der Flüssigszintillationsspektroskopie möglich macht. Die Bildung von Excimeren oder Exciplexen ist ein weiterer Konkurrenzprozess zur spontanen Fluoreszenz. Würden sich Excimere bilden, so würde im Fluoreszenzemissionsspektrum von relativ konzentrierten Lösungen eine breite, unstrukturierte Bande bilden, die langwellig gegenüber der normalen Emissionsbande verschoben ist. Eine Excimerenbildung konnte bei den durchgeführten Fluoreszenzmessungen im untersuchten Konzentrationsbereich nicht beobachtet werden. Das bedeutet allerdings nicht, dass sie vollkommen ausgeschlossen werden kann. Sie ist für zahlreiche Alkyl-naphthaline bei hohen Konzentrationen beschrieben [Förster69].

### 3.4 Szintillationspulse

Die bei SISA-Experimenten mit dem Szintillator Dimethyl-POPOP/1-Methylnaphthalin/Toluol gemessenen Szintillationspulse lassen sich anhand ihrer Pulsformen grob in vier Kategorien einteilen:  $\alpha$ -,  $\beta/\gamma$ -, Spaltfragment-Szintillationspulse und *pile ups*. Sie lassen sich phänomenologisch relativ einfach charakterisieren.

#### *$\alpha$ - und $\beta$ -Szintillationspulse*

Pulse, die von  $\beta/\gamma$ -Teilchen hervorgerufen werden, sind etwa 150 ns lang und haben eine annähernd symmetrische Peakstruktur mit einer leicht auslaufenden Flanke.  $\alpha$ -Pulse haben eine ähnliche Form, allerdings läuft der Puls wesentlich länger aus und hat insgesamt eine Länge von etwa 200-250 ns. (Die angegebenen Zeiten sind nur für den verwendeten Szintillator spezifisch, da sie von den Fluoreszenzlebensdauern der Komponenten abhängig sind. Sie betragen 30 ns (Toluol), 83 ns (1-Methylnaphthalin) und 1.7 ns (Dimethyl-POPOP) [Aupiais02]. Desweiteren lässt sich zeigen, dass durch die Messelektronik hinter dem Photomultiplier ein Puls etwas gestreckt wird. Ein direkt am Photomultiplier gemessener Puls ist also etwas kürzer als ein von der Messelektronik abgenommener.) Die Unterschiede zwischen  $\alpha$ - und  $\beta$ -Pulsen sind deutlich zu erkennen, wenn zwei aus der gleichen Messung stammende, willkürliche gewählte Pulse normiert und übereinander gelegt dargestellt werden (Abbildung 3.4).



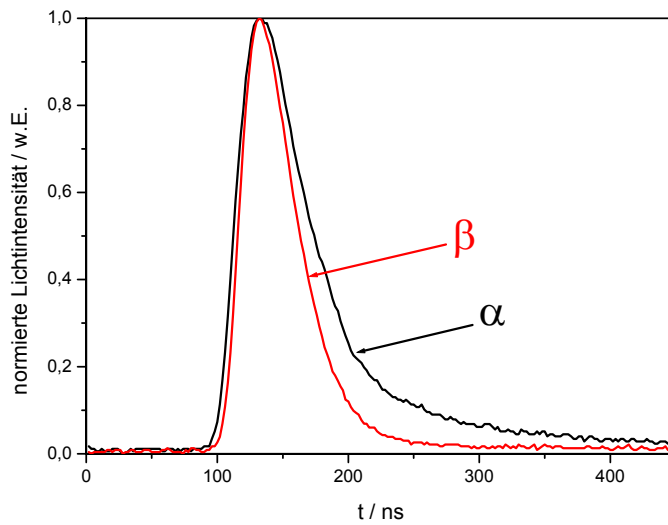


Abbildung 3.4: Typischer  $\alpha$ - und  $\beta$ -Szintillationspuls, normiert und übereinander gelegt, aufgenommen mit dem Transientenrecorder im Szintillator Dimethyl-POPOP/1-Methylnaphthalin/Toluol

Noch deutlicher wird der Unterschied bei einem „Differenzpuls“, bei dem der normierte  $\beta$ -Puls vom  $\alpha$ -Puls subtrahiert wird. Es ergibt sich eine Darstellung wie in Abbildung 3.5.

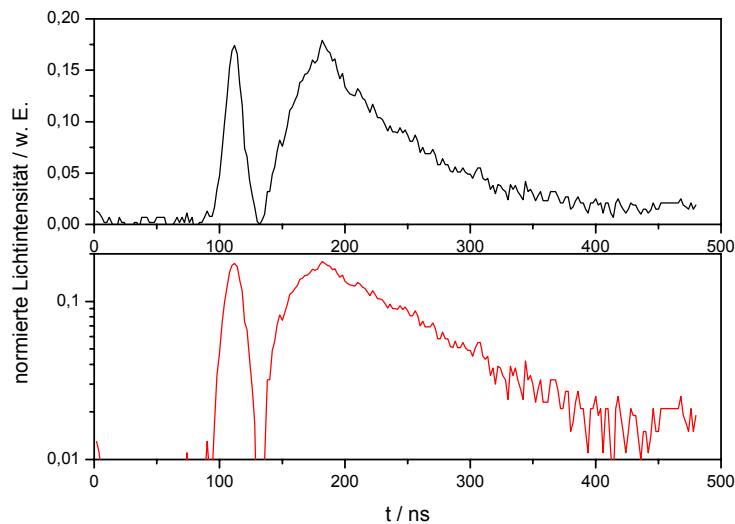


Abbildung 3.5:  $\alpha$ - und  $\beta$ -Szintillationspuls als Differenzpuls mit dem  $\alpha$ -Puls als Referenz (oben), Differenzpuls in logarithmischer Darstellung (unten)

Die Unterschiede erklären sich aus der unterschiedlichen Art und Weise der Wechselwirkung von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Teilchen mit dem Szintillator.  $\beta$ -Teilchen regen den Szintillator nicht so stark an wie  $\alpha$ -Teilchen. Die Abregung erfolgt fast ausschließlich über spontane Fluoreszenz.

Die Anregung durch  $\alpha$ -Teilchen ist ungleich stärker, was zu einer verstärkten Ionisation führt. Die Rekombination von Molekülonen und Elektronen führt zu einer Population von Triplettzuständen und Singulettzuständen im Verhältnis 3:1 [Birks64]. Die Triplettzustände zerfallen im Wesentlichen über verzögerte Fluoreszenz. Die langlebige Komponente in der abfallenden Flanke eines  $\alpha$ -Pulses ist darauf zurückzuführen.

Allerdings ist die Lichtausbeute von  $\alpha$ -Teilchen geringer als die von  $\beta$ -Teilchen vergleichbarer Energie. Ein  $\beta$ -Teilchen mit einer Energie von 0.5 MeV produziert etwa so viele Photonen wie ein  $\alpha$ -Teilchen von 5 MeV, erscheint im LSC-Spektrum also an gleicher Stelle. Grund ist das sogenannte Ionisationsquenching, das auf zwei Effekte zurückgeführt werden kann. Die von  $\alpha$ -Teilchen verursachte hohe Anregungsdichte eröffnet zusätzliche Wege zur strahlungslosen Desaktivierung, und die in der Spur des Teilchen befindlichen ionisierten Moleküle können nicht alle in die Lösung diffundieren und dort ihre Energie verteilen [Overbeck83]. Ein anderer Quencheffekt kann einen sehr dramatischen Einfluss auf die Unterscheidbarkeit von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Pulsen haben. Triplettquencher können nämlich die langlebige Komponente im  $\alpha$ -Puls eliminieren [Berlman73].

Spaltfragmente produzieren Signale vergleichbarer Form wie  $\alpha$ -Teilchen. Allerdings sind diese bedeutend größer, da Spaltfragmente auf Grund ihrer Energie eine höhere Reichweite im Szintillator haben. Bei einer für die Detektion von  $\alpha$ - und  $\beta$ -Pulsen optimierten Messelektronik wird meistens nicht der komplette Puls registriert, sondern ein Teil des Pulses „abgeschnitten“ (Abbildung 3.6).

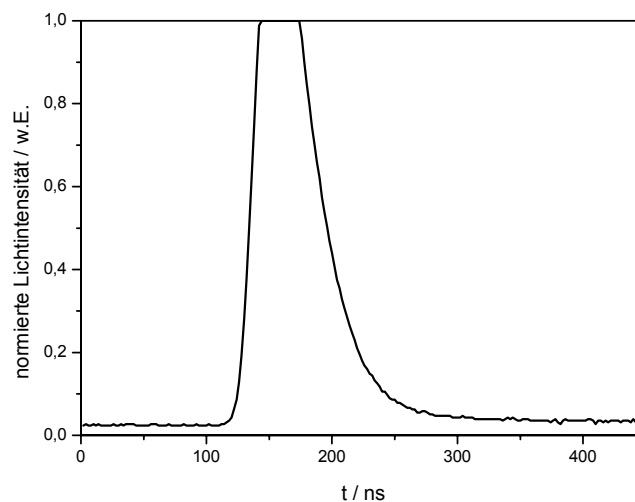


Abbildung 3.6: Von einem Spaltfragment verursachter Szintillationspuls

### *Pile ups*

Folgen zwei Pulse in einem kurzen zeitlichen Abstand aufeinander, so entsteht ein Summenpuls, ein sogenannter pile up (Abbildung 3.7). Meistens hat er eine Struktur mit zwei, selten mit drei oder mehr Peaks. Dabei kommt es vor, dass die beiden Einzelereignisse sogar so kurz aufeinander folgen, dass einer der Peaks nur als Schulter zu erkennen ist. Dies erschwert es, die Pulse mittels geeigneter Messelektronik oder -software von reinen  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Pulsen zu unterscheiden. Deshalb tragen sie in erheblichem Maße zum Untergrund bei Szintillationsmessungen bei.

Pile ups können bei einer hohen Zählrate statistisch auftreten, sind jedoch weit häufiger auf korrelierte Ereignisse zurückzuführen. So kann zum Beispiel einem  $\alpha$ -Zerfall in einen angeregten Zustand ein  $\gamma$ -Übergang in den Grundzustand folgen. Wenn die Lebensdauer des angeregten Zustandes im Nanosekunden-Bereich liegt, kann ein pile up beobachtet werden. Es gibt eine Vielzahl von möglichen Kombinationen, zum Beispiel  $\alpha/\beta$ -pile up,  $\beta$ - $\beta$ -pile up,  $\beta/\gamma$ -pile up, die nicht ohne weiteres unterscheidbar sind.

### *Von Szintillationspulsen zum LSC-Spektrum*

Die Zahl der emittierten Photonen ist je nach Teilchenart proportional der von einem ionisierenden Teilchen abgegebenen Energie. Die Fläche unter einem Szintillationspuls ist somit proportional der Energie des verursachenden Teilchens. Wegen des statistischen Charakters der Entstehung von Szintillationspulsen entstehen im Energiespektrum bei monoenergetischer Strahlung relativ breite Peaks. Mit „breit“ ist die Energieauflösung gemeint, die in der LSC praktischerweise als Halbwertsbreite (FWHM) des Peaks definiert ist und entweder in keV oder in Prozent relativ zur Energie ( $100 \% \cdot \text{FWHM}/\text{Energie des Peakmaximums}$ ) angegeben wird. Die Energieauflösung von  $\alpha$ -Peaks in der Flüssigszintillationsspektroskopie liegt üblicherweise im Bereich von etwa 250 bis 500 keV. Sie ist abhängig von den Messbedingungen und dem verwendeten Szintillator. Treten im Szintillator Quenchprozesse auf, das heißt, dass die Lichtausbeute verringert wird, ist im LSC-Spektrum ein Energieshift zu niedrigeren Energien und eine Verschlechterung der Energieauflösung zu beobachten.

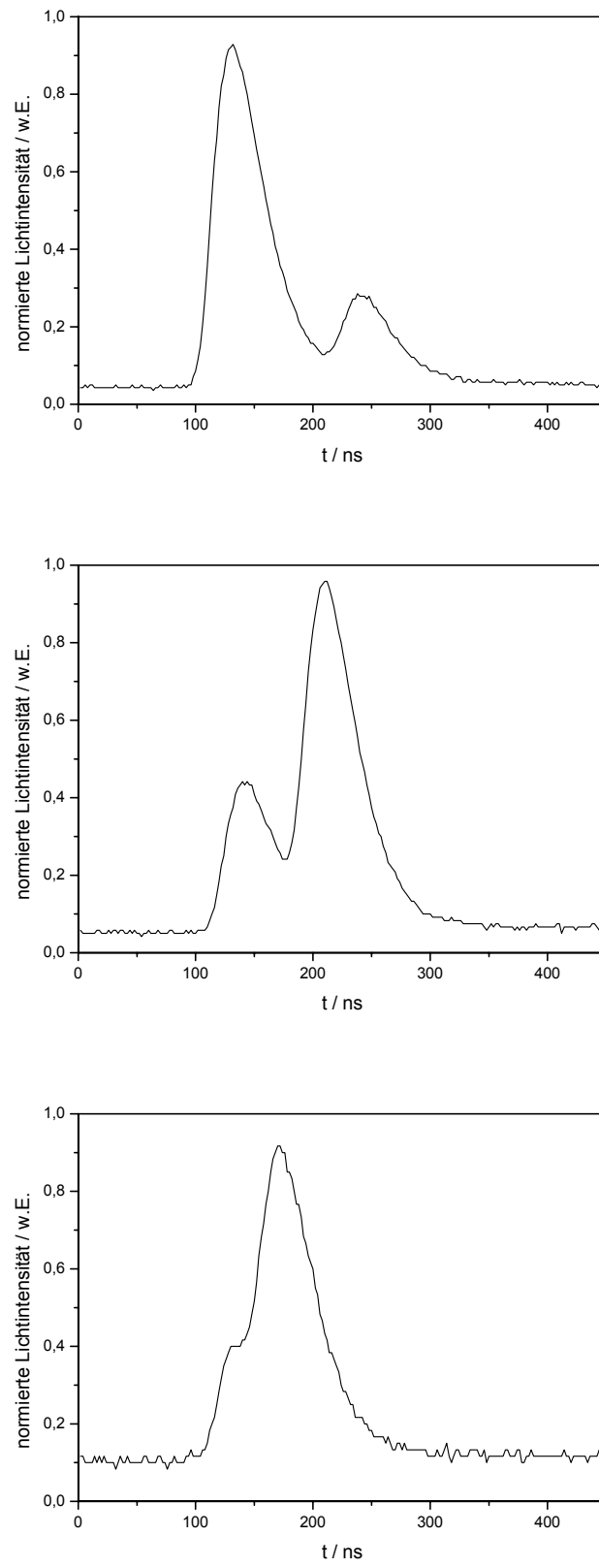


Abbildung 3.7: Typische pile ups

### 3.5 Messelektronik in der LSC

Die Detektion des Szintillationslichtes erfolgt mit einem Photomultiplier. Die Szintillatorlösung wird in einer Messzelle vor den Photomultiplier gebracht. Um die Messzelle herum ist normalerweise ein Reflektor angebracht, wodurch die Lichtausbeute im Photomultiplier erhöht wird. Die SISAK-Messzelle kommt ohne Reflektor aus, da das Material der Messzelle (Teflon) selbst schon reflektierend ist. Über einen Lichtleiter wird die Messzelle mit dem Photomultiplier gekoppelt. Der Photomultiplier verstärkt das gemessene Signal soweit, dass es von einer geeigneten Messelektronik ausgelesen und weiterverarbeitet werden kann.

Bei SISAK-Experimenten wurden dafür bisher anspruchsvolle elektronische Schaltungen verwendet, die vor allem  $\alpha$ -Ereignisse herausfiltern sollen. Dies erfolgt prinzipiell mit Hilfe einer elektronischen Pulsformdiskriminierungseinheit (PSD) und einem sogenannten Pile Up Rejector (PUR). Beide Instrumente, die sich die phänomenologischen Eigenschaften von Szintillationspulsen zu Nutze machen, sollen kurz skizziert werden. Ausführliche Darstellungen der SISAK-Elektronik finden sich in [Weiner95, Wierczinski94], allgemeine Ausführungen zur Messelektronik in [Schmidt86, Kowalski70].

#### 3.5.1 Analogelektronik

Das Anodensignal des Photomultipliers wird von einem ladungsempfindlichen Vorverstärker (CSPA: charge sensitive preamplifier) integriert. Dieses Signal wird in drei getrennten Zweigen weiterverarbeitet (Abbildung 3.8). Der erste Zweig bestimmt den Energiewert (die Impulshöhe) des betreffenden Signals. Im zweiten Zweig (PSD) wird das Signal des CSPA differenziert und mit einem Constant Fraction Diskriminator bei einem bestimmten Bruchteil der Signalamplitude in der ansteigenden Flanke des Signals ein Bezugszeitpunkt für das Ereignis bestimmt. Ein Zero-Crossing Detektor bestimmt in ähnlicher Weise einen zweiten, von der Länge des Szintillationspulses abhängigen Zeitpunkt. Ein Zeit-Amplituden-Konverter (TAC: time to amplitude converter) erzeugt aus beiden Zeitpunkten den Shape-Parameter, der von einem Analog-Digital-Konverter an das Listmode-Interface weitergegeben wird. Auf diese Weise können  $\alpha$ - und  $\beta$ -Signale voneinander getrennt werden. Im dritten Zweig (PUR) wird auf vergleichbare Art ein Pile Up-Parameter erzeugt, der sich auf die Breite des Pulses bei einem bestimmten Bruchteil des Maximums bezieht. Auf diese Weise sollen pile ups herausgefiltert werden. Die Daten aus dem Listmode-Interface werden auf einem Computer gespeichert und können mit GOOSY (GSI Online Offline System) online und offline ausgewertet werden [Essel87].

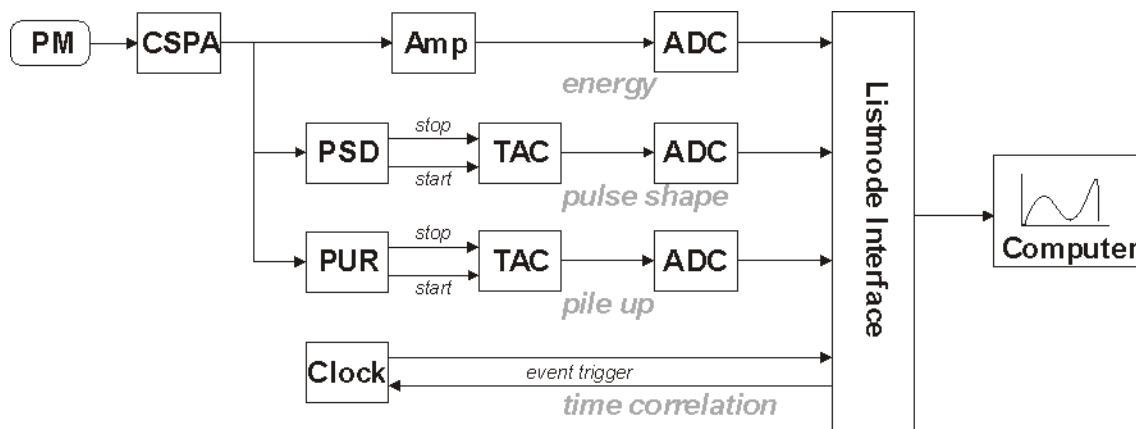


Abbildung 3.8: Schema der SISAK-Messelektronik

Vergleichbare PSD-Schaltungen sind auch in kommerziell erhältlichen Geräten vorhanden und weit verbreitet. Sie entfernen wirkungsvoll den  $\beta$ -Untergrund, bei SISAK-Experimenten über 99 Prozent. Der Pile Up Rejector reduziert den Untergrund nicht in diesem Maße, da gerade pile ups, bei denen der zweite Peak nur als Schulter auftritt, nicht herausgefiltert werden. Wie im Kapitel 4 noch gezeigt wird, bleiben trotz dieser hoch entwickelten und leistungsfähigen Schaltungen bei den Experimenten zur Untersuchung von Transactiniden zahlreiche Untergrundereignisse zurück, die eine zweifelsfreie Identifikation von  $\alpha$ -Ereignissen unmöglich machen. Einen Ausweg bietet der Einsatz von Transientenrecordern, erst seit kurzem erhältlichen Instrumenten, die eine direkte Aufnahme und Speicherung der einzelnen Szintillationspulse ermöglichen. Das sollte es ermöglichen, die Pulse einzeln zu untersuchen und auf diesem Wege die Zahl von Untergrundereignissen drastisch zu reduzieren.

### 3.5.2 Digitale Aufnahme von Szintillationspulsen

Für die Anwendung bei den SISAK-Experimenten wurde ein „Waveform Digitizer“ (DP 110) der Firma Acqiris erworben. Dieses oszilloskopartige Gerät ist als PCI-Einsteckkarte für herkömmliche PCs gebaut und kann ohne besondere Schwierigkeiten in Betrieb genommen werden. Mit einer Abtastrate (*sampling rate*) von bis zu 1 GS/s kann ein Punkt pro Nanosekunde aufgezeichnet werden - ideal für die Aufnahme von Szintillationspulsen. Die interne Uhr ermöglicht die Bestimmung von Zeiten mit einer Genauigkeit im Pikosekunden-Bereich. Der interne Speicher der Karte kann 128 000 Punkte am Stück aufnehmen, bevor mit einer Totzeit von weniger als 1 ms der Transfer zum PC erfolgt. Die Karte kann extern getriggert werden, was einen Vorteil bei der Anwendung bei SISAK darstellt. Auf diese Weise kann die herkömmliche Analogelektronik als Filter für  $\beta$ -Ereignisse genutzt werden und es werden nur potentielle  $\alpha$ -Ereignisse gespeichert. Dadurch kann die Datenrate reduziert werden, was geringere Totzeiten zur Folge hat (Abbildung 3.9).

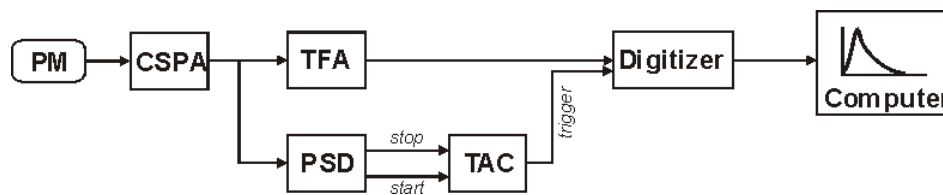


Abbildung 3.9: Einsatz des Transientenrecorders bei SISAK-Experimenten

Ein Nachteil dieses Verfahren ist, dass der vom Photomultiplier abgenommene Originalpuls durch die verwendete Analogelektronik geringfügig verfälscht werden kann. Der CSPA integriert zunächst den gemessenen Puls, der dann wieder vom TFA differenziert wird und ungefähr seine ursprüngliche Form erhält. Da die PSD-Einheit aber durchaus ohne den Vorverstärker betrieben werden kann, kann die Karte auch direkt an den Photomultiplier angeschlossen werden. Es wurde für SISAK der dargestellte Aufbau nur deshalb gewählt, um die analoge Elektronik ohne Modifikationen mit verwenden zu können.

Vom Hersteller wird ein umfangreiches Softwarepaket mit Treibern für die Programmiersysteme C/C++, Visual Basic, LabView und LabWindows geliefert. Dies ermöglichte es, ein eigenes Aufnahmeprogramm, *AcqirisDigitizer*, zu entwickeln und den Bedingungen von SISAK anzupassen [Kling00]. Die in Kapitel 3.4 gezeigten Szintillationspulse wurden alle mit der Karte aufgenommen.

Die Verfügbarkeit dieses Transientenrecorders stellt für die SISAK-Experimente einen großen Fortschritt dar. Die Aufnahme der einzelnen Szintillationspulse macht die eindeutige Identifizierung von  $\alpha$ -Ereignissen möglich. Diese Identifizierung kann bei einer offline- oder online-Analyse erfolgen. Es müssen demzufolge Verfahren gefunden werden, die die  $\alpha$ -Ereignisse automatisch und zuverlässig erkennen und Untergrundereignisse diskriminieren. Gegebenenfalls sollen diese Methoden auch online bei einem Transactiniden-Experiment eingesetzt werden, um die Messzellen beim Vorliegen eines potentiellen Mutter-Ereignisses in den Tochtermodus schalten zu können. Das stellt allerdings hohe Anforderungen an die Performance des verwendeten Algorithmus'.

Die in dieser Arbeit vorgeschlagene Methode beruht auf der Verwendung künstlicher neuronaler Netze (Kapitel 5). Obwohl diese Methode eine empirische Methode darstellt, zeigt sich, dass geeignete neuronale Netze zuverlässig und robust gegenüber Schwankungen in der Form der Szintillationspulse sind. Vor allem können sie sicher die hauptsächlich störenden pile ups aussortieren.

#### 4. Das SISAK-Experiment vom November 1998

Vom 4. bis 8. November 1998 wurde bei der Gesellschaft für Schwerionenforschung in Darmstadt ein SISAK-Experiment zur Chemie des Rutherfordiums durchgeführt. Produziert wurde Rutherfordium über die Reaktion  $^{249}\text{Cf}(^{12}\text{C},4\text{n})^{257}\text{Rf}$ . Zur Identifikation dienen die  $\alpha$ -Zerfälle von  $^{257}\text{Rf}$  ( $E_\alpha = 8.55\text{...}9.01\text{ MeV}$ ,  $T_{1/2} = 4.0\text{ s}$ ) und  $^{253}\text{No}$  ( $E_\alpha = 8.01\text{ MeV}$ ,  $T_{1/2} = 1.7\text{ m}$ ). Ziel war es, erstmalig mit dem SISAK-System Rf-Ereignisse eindeutig zu identifizieren, was wegen der kurzen Halbwertszeit von  $^{257}\text{Rf}$  eine große Herausforderung darstellt.

##### 4.1 Aufbau

Das Schema zur Abtrennung von Rutherfordium ist in Abbildung 4.1 dargestellt.

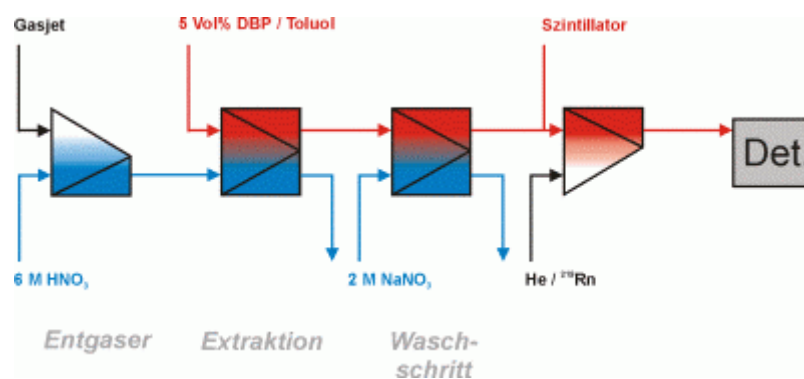


Abbildung 4.1: Schema der Abtrennung von Rf beim SISAK-Experiment vom November 1998

Die vom Gasjet angelieferte Aktivität wurde zuerst in 6 M  $\text{HNO}_3$  gelöst. Dann erfolgte die Extraktion mit 5 Vol% (0.25 M) Dibutylphosphat (DBP) in die organische Phase. Nach einem Waschschrift mit einer wässrigen 2 M  $\text{NaNO}_3$ -Lösung wurde der Szintillator zugegeben und die Lösung zu den Messzellen transportiert. Es wurden vier Messzellen zur Detektion genutzt. Die Messelektronik wurde wie in 3.5.1 dargestellt verwendet. Die offline-Auswertung des Experimentes erfolgte mit GOOSY und wird in 4.2 und im Anhang A1 beschrieben.

Neu im Aufbau war die online-Kalibration sowie eine hinter den Detektoren angeordnete  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle als Quenchmonitor. Zur online-Kalibration wurde eine  $^{227}\text{Ac}$ -Quelle verwendet. Das in der Zerfallskette von Actinium vorkommende Radon emanierte durch ein Filterpapier und wurde über einen Gasstrom in den Szintillator eingespeist. Zur Kalibration wurden der korrelierte  $\alpha$ -Zerfall von  $^{219}\text{Rn}$  ( $E_\alpha = 6.88\text{ MeV}$ ,  $T_{1/2} = 3.96\text{ s}$ ) und dessen Tochter  $^{215}\text{Po}$  ( $E_\alpha = 7.39\text{ MeV}$ ,  $T_{1/2} = 1.78\text{ ms}$ ) verwendet. Diese Energiekalibration sollte nur in bestimmten Abständen während des Experimentes erfolgen. Zur kontinuierlichen Kontrolle diente



der Quenchmonitor, wobei die Lage der Comptonkante eine Aussage über Quencheffekte in der Lösung liefern soll. Aus dem zeitlichen Verlauf der Comptonkante kann abgeschätzt werden, ob das SISAK-System stabil läuft oder nicht.

## 4.2 Auswertung

Bei der Auswertung des Experiments traten einige Schwierigkeiten auf. Grund waren erhebliche Störungen im Verlauf des Experiments. Zum Ende des Experiments wurde festgestellt, dass etwa 26 % des Targets während der Strahlzeit verloren gingen, und zwar genau von der Mitte des Targets. Da dort der Strahl die größte Intensität hat, muss die Rf-Produktionsrate deutlich gesunken sein. Allerdings ist nicht bekannt, wann das Material verloren ging. Somit ist auch nicht klar, wieviel Rf-Atome insgesamt tatsächlich produziert wurden. Einer Abschätzung von Eberhardt zu Folge können unter Berücksichtigung aller möglichen Störungen etwa fünf  $^{257}\text{Rf}$ - $^{253}\text{No}$ -Korrelationen erwartet werden [Eberhardt99].

### Quenchkorrektur

Eine der Störungen des Experiments ist am zeitlichen Verlauf der energetischen Lage der  $^{137}\text{Cs}$ -Comptonkante (Abbildung 4.2) zu erkennen. Das System lief über weite Strecken nicht stabil. Über die Abhängigkeit der Phasentrennung beziehungsweise überhaupt von Quencheffekten auf die Lage der Comptonkante und den Energieshift in den  $\alpha$ -Spektren war zu Beginn des Experiments nichts bekannt. Es musste deshalb nachträglich bei der offline-Analyse des Experiments herausgefunden werden, wie die Lage der Comptonkante mit den Signalen im  $\alpha$ -Spektrum korreliert und auf diesem Wege eine Quenchkorrektur durchgeführt werden kann.

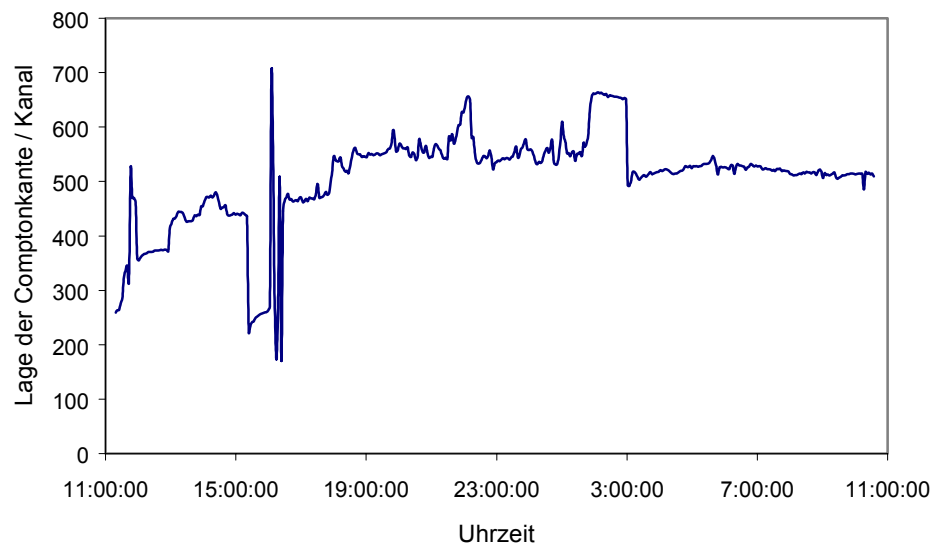


Abbildung 4.2: Zeitlicher Verlauf der Lage der  $^{137}\text{Cs}$ -Comptonkante beim SISAK-Experiment am 7./8. November 1998

Es wurde versucht, die Lage der aus der online-Kalibration stammenden Peaks von  $^{219}\text{Rn}$  und  $^{215}\text{Po}$  in einen Zusammenhang mit der Lage der Comptonkante zu bringen. Dabei wurde das folgende Schema verfolgt [Hult99, Langrock99a]. Es werden für die Zeiträume, in denen die Lage der Comptonkante eine längere Zeit annähernd stabil war, mit Hilfe der zugehörigen  $\alpha$ -Peaks von  $^{219}\text{Rn}$  und  $^{215}\text{Po}$  über eine gewöhnliche Energiekalibration die Parameter Anstieg (B) und absolutes Glied (A):  $\text{Kanal} = A + B \cdot \text{Energie}$  (Energie in keV) ermittelt. Diese beiden Parameter werden in getrennten Diagrammen gegen die korrespondierenden Comptonkanten-Werte aufgetragen (siehe Abbildung 4.3). Es lässt sich eine lineare Beziehung zwischen diesen beiden Kalibrationskoeffizienten und den Werten für die Comptonkante erkennen. Wiederum über eine lineare Regression können die Parameter C und D für die Auftragung A vs. Comptonkante und E und F für die Auftragung von B vs. Comptonkante ermittelt werden.

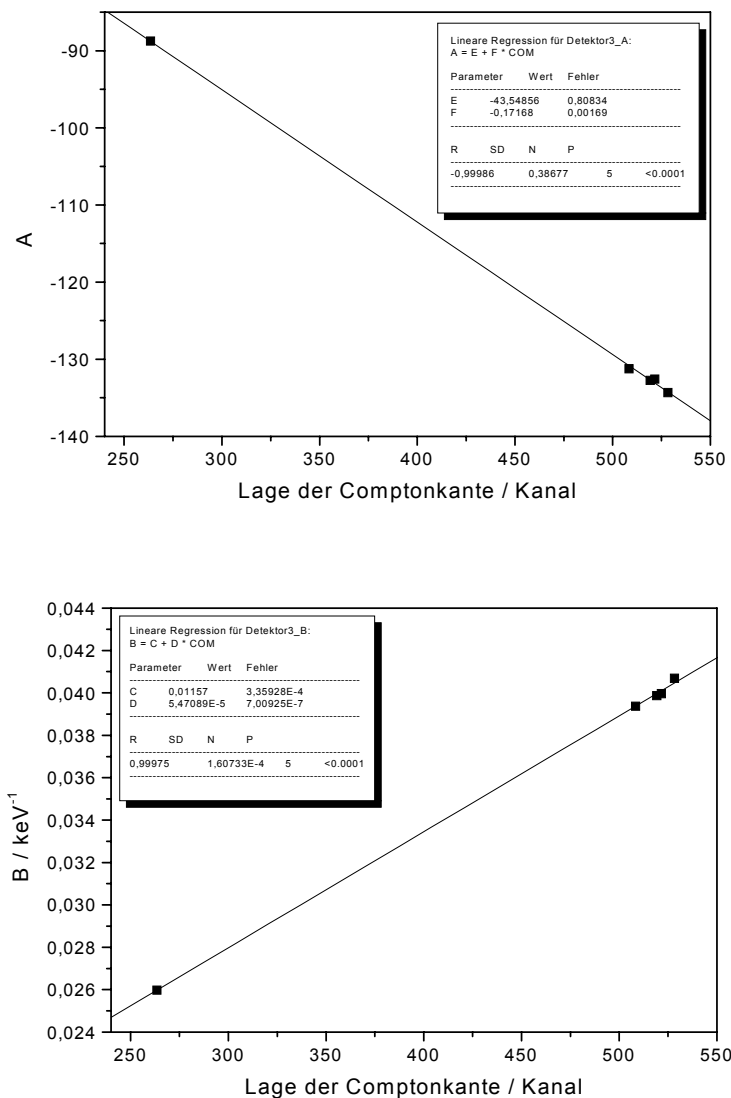


Abbildung 4.3: Abhängigkeit der Parameter A (oben) und B (unten) der Energiekalibration im  $\alpha$ -Spektrum (hier für Detektor 3) von der Lage der Comptonkante

Für die drei zur Auswertung verwendeten Detektoren (die mit Detektor 4 gemessenen Daten waren nicht auswertbar) ergeben sich die folgenden Werte:

| Detektor | C      | D                   | E     | F      |
|----------|--------|---------------------|-------|--------|
| 1        | 0.0143 | $5.0 \cdot 10^{-5}$ | -55.5 | -0.150 |
| 2        | 0.013  | $5.0 \cdot 10^{-5}$ | -43.8 | -0.16  |
| 3        | 0.0116 | $5.5 \cdot 10^{-5}$ | -43.5 | -0.172 |

Die Gleichung zur Korrektur der Lage eines  $\alpha$ -Signals ergibt sich dann durch Einsetzen der ermittelten Werte in die allgemeine Kalibrationsgleichung und Einführung eines Bezugspunktes der Comptonkante (hier: 520).

$$\text{Kanal}' = (F \cdot \text{COM}' + E) \frac{\text{Kanal} - (D \cdot \text{COM} + C)}{F \cdot \text{COM} + E} + (D \cdot \text{COM}' + C)$$

COM : Comptonkante

COM' : Bezugspunkt (520)

Diese Quenchkorrektur verschiebt die Signale bezüglich eines hypothetischen Zustands, an dem das Quenching konstant ist. Der Energieshift in den LSC-Spektren wird also rechnerisch wieder beseitigt, wodurch sich eine bessere Energieauflösung (Detektor 1: 430 keV, Detektor 2: 350 keV, Detektor 3: 380 keV) ergibt (Abbildung 4.4).

Zwar wirkt die beschriebene Vorgehensweise schlüssig, doch müssen dazu zwei Dinge angemerkt werden. Erstens handelt es sich hier um ein rein empirisches Vorgehen. Die Korrelation der Lage der Comptonkante mit der Lage der Signale im  $\alpha$ -Spektrum ist nahe liegend, muss aber nicht zwangsläufig der Realität entsprechen. (Quenchkorrekturen sind in der Routineanalytik mit Hilfe der LSC nicht unüblich [Kaihola00]. Allerdings wird bei der etablierten Methode nach Horrocks nach umfangreichen Vortests aus der Verschiebung der Comptonkante von  $^{137}\text{Cs}$  und dem Energieshift im LSC-Spektrum ein Parameter (*QIP: quench indicating parameter*) abgeleitet, mit dessen Hilfe eine Korrektur des Energieshifts im LSC-Spektrum durchgeführt wird [Colle97].) Zweitens ist aus der Abbildung 4.3 zu erkennen, dass der Anstieg der beiden Kalibrationsgeraden maßgeblich von jeweils einem Punkt mit einer Kanallage von etwa 270 bestimmt wird. Ist dieser Punkt mit einem großen Fehler behaftet, dann ist auch die gesamte Quenchkorrektur fehlerhaft.

Die aus diesem Experiment folgende Verbesserung war die Einführung von Quenchversuchen zu Beginn von SISAK-Experimenten.

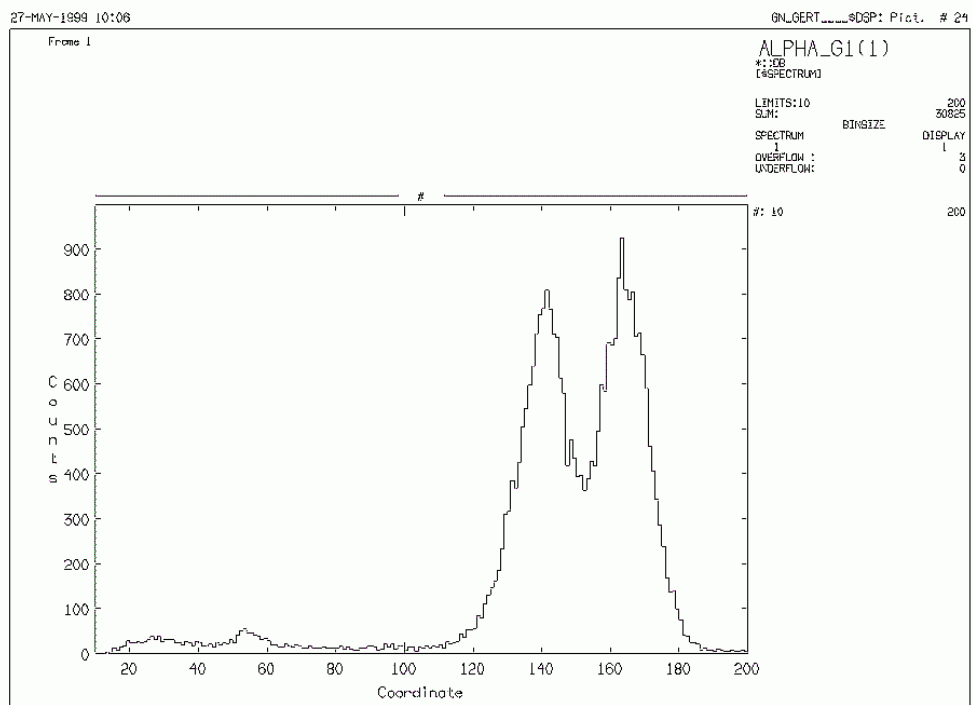
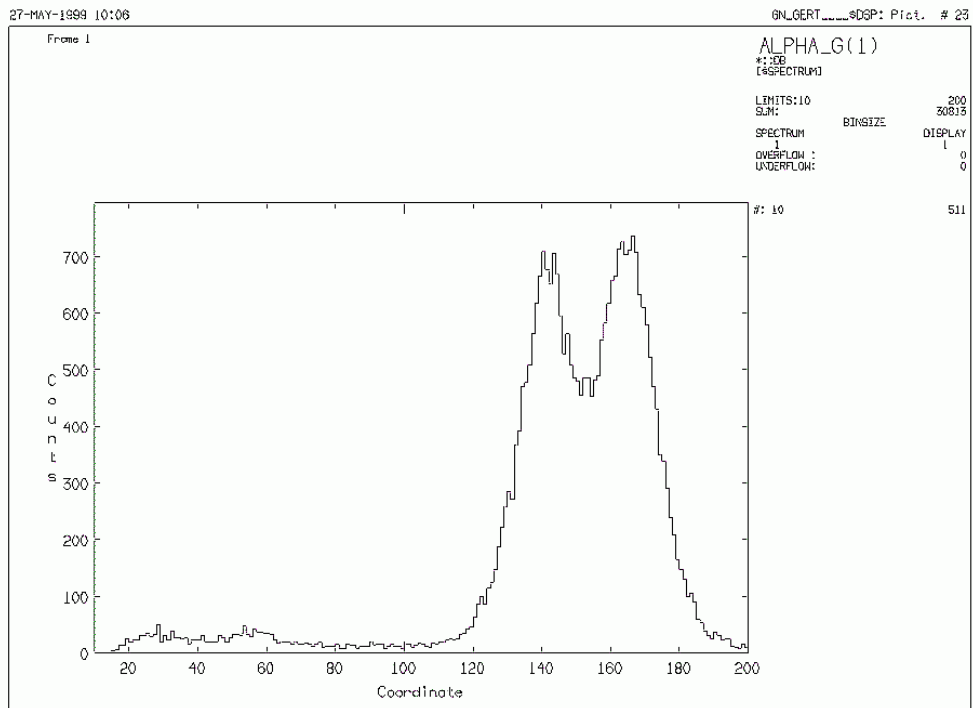


Abbildung 4.4:  $\alpha$ -Spektrum von Detektor 1 ohne Quenchkorrektur (oben) und mit Quenchkorrektur (unten)

*$^{219}\text{Rn}/^{215}\text{Po}$ -Kontamination*

Weiterhin gelangte versehentlich durch ein undichtes Ventil eine Zeit lang kontinuierlich das emanierte Radon in das System und verursachte einen erheblichen  $\alpha$ -Untergrund. Da die  $^{219}\text{Rn}/^{215}\text{Po}$ -Ereignisse aber korreliert sind, konnten bei der Auswertung alle  $\alpha$ -Korrelationen innerhalb eines bestimmten Zeitfensters aus den Spektren entfernt werden. Ein Beispiel ist in Abbildung 4.5 gegeben.

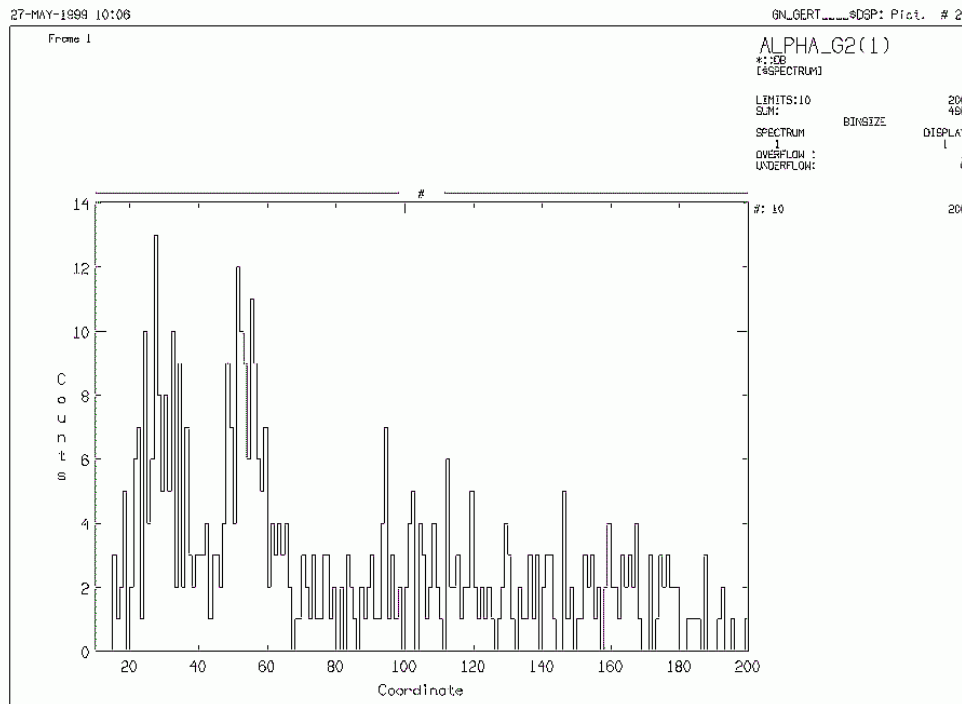


Abbildung 4.5:  $\alpha$ -Spektrum von Detektor 1 nach Entfernung der  $^{219}\text{Rn}/^{215}\text{Po}$ -Korrelationen

Der niederenergetische Peak im Spektrum (um Kanal 55) liegt bei einer Energie von etwa 4.7 MeV. Er wird  $^{152}\text{Er}$  ( $E_{\alpha} = 4.80$  MeV,  $T_{1/2} = 10.3$  s) oder  $^{153}\text{Er}$  ( $E_{\alpha} = 4.68$  MeV,  $T_{1/2} = 37.1$  s) zugeordnet, das über die Reaktion  $^{144}\text{Sm}(^{12}\text{C},\text{xn})^{156-\text{x}}\text{Er}$  produziert worden sein könnte. Er ist ein Beleg dafür, dass mit dem SISAK-Detektionssystem  $\alpha$ -Ereignisse eindeutig nachgewiesen werden können.

*Ergebnis der Analyse*

Unter Einbeziehung der Quenchkorrektur und Eliminierung der  $^{219}\text{Rn}/^{215}\text{Po}$ -Ereignisse wurde die GOOSY-Analyse für das gesamte Experiment durchgeführt.

Wie schon in Kapitel 3.5.1 beschrieben, werden von der Messelektronik zusätzlich zum Energiewert eines einzelnen Pulses noch ein Shape- und ein Pile Up-Parameter bestimmt. Es

ergeben sich entsprechende Spektren (Abbildung 4.6). Im Shape-Spektrum ist der linke, abgeschnittene Peak und dessen lange Flanke auf  $\beta$ - und pile up-Ereignisse, also Untergrund zurückzuführen. Dagegen stammt der zweite Peak hauptsächlich von  $\alpha$ -Ereignissen. Das Pile Up-Spektrum zeigt, dass im Prinzip fast alle Ereignisse vom Pile Up-Rejector akzeptiert wurden.

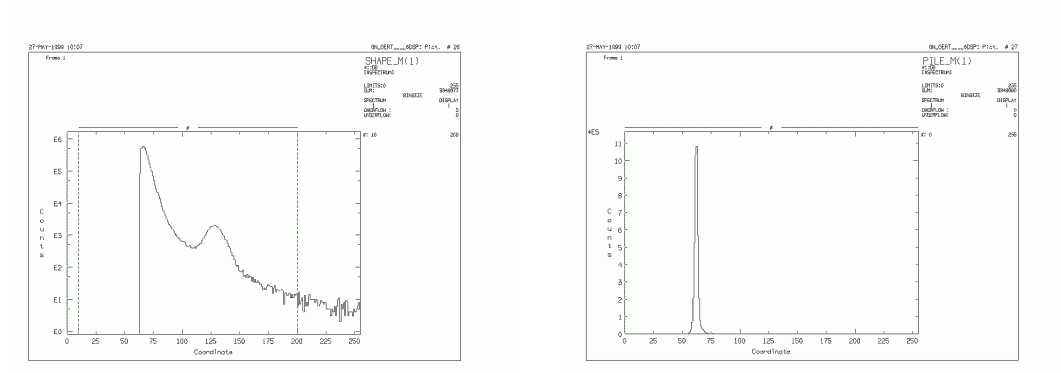


Abbildung 4.6: Shape-Spektrum (links) und Pile Up-Spektrum (rechts) von Detektor 1

Aus den Shape- und Pile Up-Spektren lassen sich entsprechende Gates (Conditions), innerhalb derer nach möglichen Ereignissen gesucht wird, ableiten. Weitere Gates ergeben sich aus der Energiekalibration für die Energiefenster, in denen nach Mutter- und Tochter-Ereignissen gesucht wird, und dem Zeitspektrum, mit dessen Hilfe die Ereignisse aus der Kalibrationsquelle entfernt wurden. Die Gates (und ihre Namen im Quellcode-Listing im Anhang A1) sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

| Conditions           |           | Detektor  |           |           |           |
|----------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
|                      |           | 1         | 2         | 3         | 4         |
| Shape                | (SHAPE_C) | 111...160 | 76...118  | 102...139 | 75...115  |
| Pile Up              | (PILE_C)  | 50...75   | 35...50   | 47...58   | 35...70   |
| Zeit                 | (CLOCK_C) | 25...100  | 30...100  | 45...95   | 45...100  |
| $E_\alpha$ (Mutter)  | (ES_C)    | 187...245 | 187...250 | 187...250 | 123...150 |
| $E_\alpha$ (Tochter) | (EP_C)    | 168...207 | 166...208 | 166...208 | 0...4095  |

Tabelle 4.1: Bei der Analyse des SISAK-Experiments verwendete Gates

Mit diesen Gates und den oben beschriebenen Korrekturen wurde nach möglichen Mutterereignissen gesucht, die eine Messzelle geschlossen haben könnten, und möglichen Tochterereignissen, die aufgetreten sind, wenn die Messzelle geschlossen war. Diese Information, ob ein Ereignis also im Mutter- oder Tochtermodus aufgetreten ist, wird aus den von GOOSY mitgeschriebenen Schließzeiten der Ventile der Messzellen erhalten. Es ergab sich das in

Abbildung 4.6 dargestellte  $\alpha$ - $\alpha$ -Korrelationsspektrum für die drei ausgewerteten Detektoren.

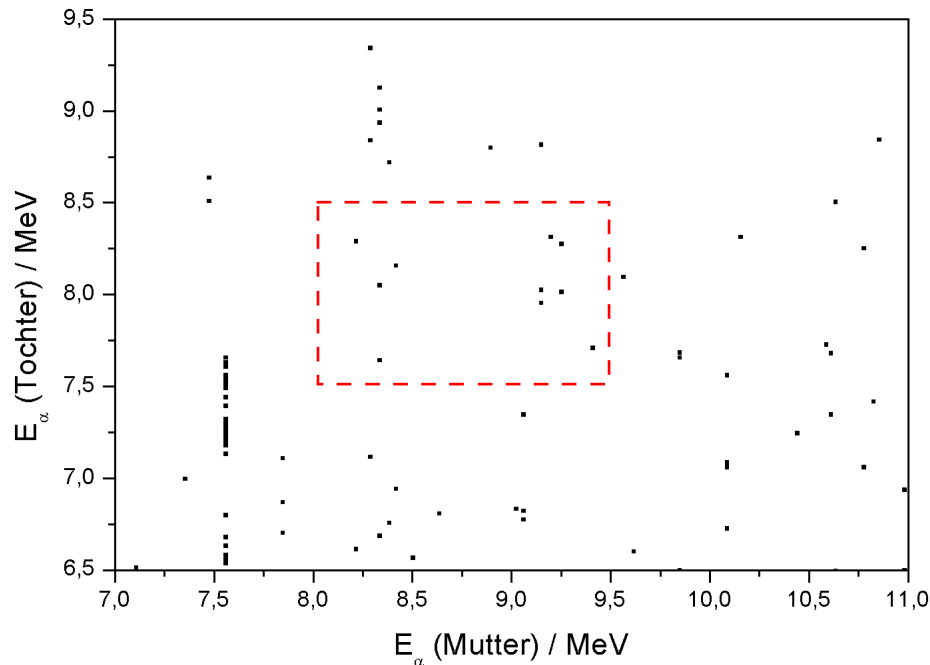


Abbildung 4.6:  $\alpha$ - $\alpha$ -Korrelationsspektrum für das SISAK-Experiment vom November 1998

Mit einem Energiefenster für die Rf-Ereignisse von 8,0 bis 9,5 MeV und von 7,5 bis 8,5 MeV für die No-Ereignisse wurden vier mögliche Korrelationen mit 8,2/8,3 MeV, 8,4/8,2 MeV, 9,2/8,3 MeV und 9,4/7,7 MeV gefunden. Im gleichen Energiefenster sind aber auch noch drei Korrelationen mit jeweils zwei Tochterereignissen zu finden, die ganz offensichtlich zufällige Korrelationen sind. Es ist deutlich zu erkennen, dass in den neben dem untersuchten Energiefenster liegenden Energiefenstern eine ähnliche Zahl von Korrelationen auftritt. Das kann als Hinweis darauf gelten, dass im Prinzip alle gezeigten Korrelationen im Korrelationsspektrum statistisch verteilt und damit zufällig sind. Vor dem Hintergrund der beschriebenen Schwierigkeiten bei Durchführung und Auswertung des Experiments wäre die erwünschte Aussage, dass der Nachweis von Rf eindeutig gelungen wäre, deshalb kaum seriös vertretbar.

## 5. Das SISAK-Experiment vom Februar 2000

Das nächste SISAK-Experiment fand vom 12. bis 18. Februar 2000 am Paul-Scherrer-Institut in Villigen statt. Rutherfordium wurde über die Reaktion  $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O},5\text{n})^{261}\text{Rf}$  produziert und sollte über die  $\alpha$ -Zerfälle von  $^{261}\text{Rf}$  ( $E_\alpha = 8.28$  MeV,  $T_{1/2} = 78$  s) und  $^{257}\text{No}$  ( $E_\alpha = 8.25$  MeV,  $T_{1/2} = 27$  s) identifiziert werden. Im ersten Teil des Experiments wurde ein Cm-Target verwendet, dem noch  $^{152}\text{Gd}$  beigemischt war, um über die Reaktion  $^{152}\text{Gd}(^{18}\text{O},5\text{n})^{165}\text{Hf}$  simultan das Homolog Hafnium zu produzieren.

### 5.1 Aufbau

Der prinzipielle Aufbau ist der gleiche wie beim Experiment vom November 1998 (Abbildung 5.1). Die Extraktion erfolgte mit unterschiedlich konzentrierten DBP-Lösungen. Neu waren im System verschiedene Kontrollmechanismen, so zum Beispiel eine kontinuierliche Messung des Brechungsindex' der Lösung zur Kontrolle der Phasentrennung. Es wurde mit insgesamt 5 Detektoren gemessen, wobei die Detektoren wegen der langen Halbwertszeit des  $^{261}\text{Rf}$  seriell geschaltet waren, im Gegensatz zum vorherigen Experiment, in dem sie parallel geschaltet waren. Der neue Transientenrecorder zur direkten Messung der Szintillationspulse wurde an die Messelektronik von Detektor 1 angeschlossen, wobei 500 Punkte á 2 ns pro Puls gemessen wurden.

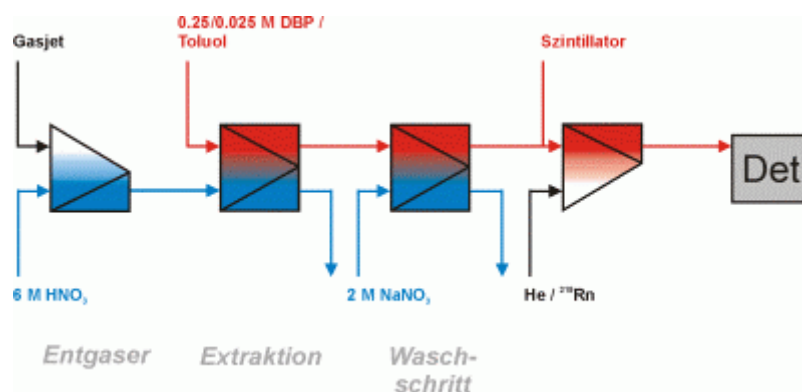


Abbildung 5.1: Schema der Abtrennung von Rf beim SISAK-Experiment vom Februar 2000

Nach ersten Tests zur Bestimmung des Verteilungskoeffizienten für die Extraktion von Hafnium bei verschiedenen DBP-Konzentrationen und ersten LSC-Messungen wurde das Gd-freie Cm-Target eingebaut und das weitere Experiment mit diesem betrieben.



## 5.2 Auswertung I

Zu Beginn des gesamten Experiments stand der Versuch, mit einem ARCA-Experiment  $K_d$ -Werte für die Extraktion von Hf mit DBP/Voltalef zu messen. Allerdings schwankten die ermittelten Werte dermaßen stark - vermutlich wegen Problemen bei der Beladung des Voltalef mit DBP -, dass das Experiment ohne Ergebnis abgebrochen wurde.

Aus den Messungen mit  $^{165}\text{Hf}$  ergab sich bei einer späteren Analyse ein schwerwiegendes Problem. Die chemische Ausbeute des gesamten SISAK-Systems lag bei etwa 1 Prozent. Dieser Wert wurde ausgehend von der Menge von Gd im Target und dem Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion zur Produktion von  $^{165}\text{Hf}$  berechnet [Alstad01]. Da während des Experiments versäumt wurde, mit Hilfe von *direct catches* die Jetausbeute zu kontrollieren, kann über die tatsächliche chemische Ausbeute nur spekuliert werden und muss der von Alstad gegebene Wert als Anhaltspunkt dienen. Im zweiten Teil des Experiments könnte dieser Wert noch weiter abgesunken sein. Es stellte sich nämlich im Laufe des Experimentes heraus, dass das verwendete reine Cm-Target ein Loch aufwies.

Eine GOOSY-Analyse der Daten ergab keine eindeutige Identifizierung von Rf-No-Korrelationen [Wiehl00]. Eberhardt untersuchte die mit dem Transientenrecorder gemessenen Szintillationspulse mit dem *AcqirisDigitizer* in einer ausführlichen visuellen Analyse der Ereignisse, deren Energien in das Energiefenster für die Mutter-Tochter-Korrelationen und in ein Zeitfenster von vier Halbwertszeiten des  $^{257}\text{No}$  passen könnten [Eberhardt01]. 10 Korrelationen mit passender Energie blieben übrig. Davon sind allerdings nur vier Korrelationen, bei denen beim Startevent die Messzelle offen, also im Muttermodus, und beim Stopevent geschlossen, also im Tochtermodus, war. Wie in Kapitel 5.3.7 gezeigt wird, gibt es möglicherweise Probleme in der Zuordnung der Ereignisse, die auf der verwendeten Energiekalibration und einem Fehler der internen Uhr des Transientenrecorders beruhen. Nichtsdestotrotz zeigt dieses erste Ergebnis klar, dass die digitale Aufnahme von Szintillationspulsen prinzipiell den zweifelsfreien Nachweis von  $\alpha$ -Ereignissen möglich macht.

Die Auswertung der digitalisierten Szintillationspulse mit Hilfe künstlicher neuronaler Netze wird ausführlich in Kapitel 5.3 besprochen. Es soll jedoch im konkreten Zusammenhang mit dem Experiment auf zwei dabei gewonnene Erkenntnisse hingewiesen werden. Schon während des Experiments fiel auf, dass zwei Arten von Szintillationspulsen ungewöhnlich häufig auftraten. Zum einen die charakteristischen starken Signale von Spaltfragmenten, wobei anfangs nicht klar war, woher diese Signale stammen. Eine im Anschluss an das PSI-Experiment durchgeführte Messung mit  $^{252}\text{Cf}$  unterstützte die These, dass diese ungewöhnlichen Pulsformen von Spalt Ereignissen herrühren. Bei dieser Messung wurde mit den gleichen Einstellungen der Messelektronik gemessen wie beim PSI-Experiment. Und es erschienen wieder einige dieser Signale mit einem „abgeschnittenen“ Peak (Kapitel 3.4).

Bei der zweiten Art von Pulsen handelt es sich um pile ups. Die Aufnahme der Daten mit dem Transientenrecorder erfolgte wie in Kapitel 3.5.2 beschrieben; die analoge PSD-Einheit triggerte den Transientenrecorder. Das bedeutet, dass alle Pulse, die von der PSD-Einheit als  $\alpha$ -Signale gewertet wurden, vom Transientenrecorder aufgezeichnet wurden - pro Sekunde etwa 5-10 Pulse. Die übergroße Mehrzahl von ihnen waren jedoch pile ups in verschiedensten Ausprägungen, die unmöglich alle von Transactiniden stammen können.

Dies lässt verschiedene mögliche Schlüsse zu: Entweder es werden zahlreiche dieser Ereignisse von mitproduzierten Homologen (zum Beispiel aus Spaltfragmenten) verursacht. Oder es gelingt nicht, mit der SISAK-Trennprozedur Begleitprodukte quantitativ abzutrennen, weil sie nicht selektiv für Gruppe 4-Elemente ist oder die Trennfaktoren einfach zu niedrig sind. Dadurch werden viele Signale registriert, die als Untergrundereignisse zu betrachten sind. Aus dieser Datenflut, vor allem von pile ups und Signalen von Spaltfragmenten, müssen die wenigen echten  $\alpha$ -Ereignisse herausgefiltert werden. Da die Analogelektronik daran scheitert, wurde für die offline-Analyse der Szintillationspulse des PSI-Experiments ein Verfahren entwickelt, das genau diese Arbeit leisten soll. Es beruht auf der Verwendung sogenannter künstlicher neuronaler Netze und wird nachfolgend beschrieben.

### 5.3 Auswertung II - Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen (PSD-NN)

Nach einer knappen, allgemeinen Einführung in die Thematik wird der prinzipielle Aufbau künstlicher neuronaler Netze und die Trainingsmethode der Fehlerrückverfolgung (back-propagation of errors) kurz vorgestellt. Danach wird die schrittweise Entwicklung der Methode an Hand einiger ausgewählter Beispiele gezeigt.

#### 5.3.1 Künstliche Intelligenz und neuronale Netze

Die stetig wachsende Menge verfügbarer Daten in Chemie, Physik und Biochemie erfordert neue Strategien zu deren Auswertung. Gerade bei der Behandlung von komplexen Problemen haben sich Methoden der künstlichen Intelligenz und dabei besonders künstliche neuronale Netze oft bewährt. Durch ihre komplexe Struktur können neuronale Netze flexibel Zusammenhänge beschreiben, die sich einer herkömmlichen Modellierung mit mathematischen Mitteln entziehen. Diese Fähigkeit, mit unscharfen Informationen zu arbeiten, macht sie für die Bearbeitung vieler Probleme interessant [Meiler01].

#### *Künstliche Intelligenz*

Künstliche Intelligenz (*artificial intelligence*) bezeichnet den Versuch, künstliche Systeme zu entwickeln, die je nach Definition

- wie Menschen denken
- wie Menschen handeln
- rational denken
- rational handeln

sollen [Russell95]. Während in den ersten beiden Fällen diese Systeme auf einer empirischen Vorgehensweise basieren, kann man den rationalen Ansatz eher als eine auf mathematischen Methoden gegründete Vorgehensweise verstehen.

Entsprechend haben sich Methoden der künstlichen Intelligenz in einem weiten Bereich etabliert. Die Anwendungen im wissenschaftlichen und technischen Bereich sind mittlerweile unüberschaubar. Nicht zuletzt im Bereich der Kernspektroskopie werden Methoden der künstlichen Intelligenz erfolgreich zur Teilchenidentifizierung eingesetzt [Vetter94, Bellotti94, Ambriola97].

### *Neuronale Netze*

Das wahrscheinlich populärste Teilgebiet der künstlichen Intelligenz stellen künstliche neuronale Netze dar. Ihr wesentliches Merkmal sind die an biologischen Vorbildern orientierten Strategien zur Informationsverarbeitung. In biologischen Systemen erfolgt Problemlösung durch Adaption; aus Lernprozessen entstehen Handlungsweisen zur Problemlösung. Künstliche neuronale Netze ahmen mit Hilfe bestimmter Algorithmen die Adaption nach und erwerben so die Fähigkeit, Probleme nach einer Lernphase selbständig zu lösen [Sielaff00].

### *Neuronale Netze und LSC*

Die Probleme, bei denen neuronale Netze am häufigsten angewendet werden, lassen sich nach [Zupan99] in vier Gruppen unterteilen: Assoziation, Klassifikation, Transformation und Modellierung. Es lag nahe, die Unterscheidung von Szintillationspulsen als Klassifikations- und Mustererkennungsproblem zu betrachten. Diese Idee führte zur Anwendung künstlicher neuronaler Netze zur Pulsformdiskriminierung. Denn wenn  $\alpha$ -Pulse von anderen Pulsen visuell unterschieden werden können, dann sollte es auch möglich sein, neuronalen Netzen diese Fähigkeit entsprechend beizubringen.

Entscheidend ist das Kriterium, dass die Leistung der neuronalen Netze über die der bisher verwendeten Analogelektronik (PSD, PUR) hinausgehen sollte. Ein neuronales Netz muss also nicht nur  $\alpha$ - von  $\beta$ -Pulsen unterscheiden können - das wird auch von PSD-Einheiten geleistet. Ein neuronales Netz soll vor allem in der Lage sein,  $\alpha$ -Pulse von pile ups zu unterscheiden. Daran, das zeigen die Ergebnisse der SISAK-Experimente, scheitern PSD- und PUR-Schaltungen noch zu häufig.

Ein neuronales Netz muss zudem tolerant gegenüber statistischen Schwankungen sein: We-

gen der statistischen Natur des Szintillationsprozesses können sich Szintillationspulse, selbst wenn sie von gleichen Teilchen gleicher Energie verursacht werden, voneinander unterscheiden. Bei SISAK-Experimenten treten zudem Schwankungen im System auf, besonders Schwankungen der Temperatur und der chemischen Zusammensetzung des Szintillators. Angenommen, dass all diese Einflüsse ausgeschlossen werden könnten, dann wäre Pulsformdiskriminierung auch auf der Basis empirischer oder halbempirischer Fitfunktionen möglich. So aber müssen anderweitig robuste Methoden entwickelt werden, die das Problem der Pulsformdiskriminierung zufrieden stellend lösen können.

### 5.3.2 Aufbau neuronaler Netze

Ganz allgemein lässt sich ein künstliches neuronales Netz als System aus mehreren künstlichen Nervenzellen (Neuronen), die in einer bestimmten Art und Weise miteinander verknüpft sind, beschreiben. Die konkrete Struktur des Netzes ist dabei von der zu lösenden Aufgabe abhängig.

#### *Das Neuron*

Grundlegende Idee bei der Anwendung neuronaler Netze ist die Nachahmung der Funktion eines natürlichen Neurons. Eine einkommende Information wird zunächst gewichtet. Alle Informationen werden zu einem Signal kombiniert und dieses Signal muss eine Schwellwertfunktion passieren, die entscheidet, welche Information das Neuron weitergibt (Abbildung 5.2). Im Gegensatz zu den natürlichen Neuronen sind die ein- und ausgehenden Informationen numerisch.

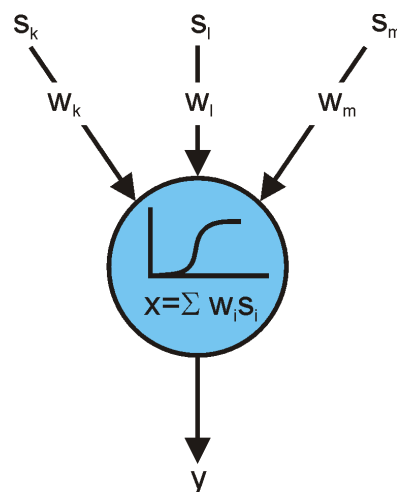


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung eines künstlichen Neurons. Die gewichteten Eingangsinformationen werden zusammengefasst und erzeugen über eine Schwellwertfunktion ein Ausgangssignal.

Typische Schwellwertfunktionen (Transferfunktionen) mit Ausgabewerten  $y = 0 \dots 1$  sind die Sigmoid-Funktion

$$y = \frac{1}{1 + e^{-x}}$$

oder die tangens hyperbolicus-Funktion  $y = 0.5 \cdot (\tanh(x) + 1)$ .

### *Netzstruktur*

In einem künstlichen neuronalen Netz werden die einzelnen Neuronen in mehreren Schichten angeordnet, wobei die Zahl der Neuronen in den einzelnen Schichten unterschiedlich sein kann. Die Neuronen benachbarter Schichten sind jeweils miteinander verknüpft (Abbildung 5.3). Die Information fließt von der Eingabeschicht über eine oder mehrere verdeckte Schichten zur Ausgabeschicht (*feed forward*).

Das neuronale Netz muss Gewichte finden, die die gewünschte Ausgabe des Netzes bewirken. Das heißt, der eigentliche Lernvorgang besteht aus der Adaption der Gewichte. Werden dem neuronalen Netz zu den Trainingsdaten auch Ausgabewerte vorgegeben, dann kann es durch den Vergleich der Ausgabe mit den Vorgaben die Gewichte dem vorgegebenen Muster anpassen (überwachtes Lernen).

### *back-propagation of errors*

Eine besondere Form des überwachten Lernens wird mit der Methode der Fehlerrückverfolgung realisiert. Die zu Grunde liegende Idee ist, nach Ende eines Trainingszyklus' die zu Beginn des Trainings zufällig gewählten Gewichte in entgegengesetzter Lernrichtung (d.h. von der Ausgabe- zur Eingabeschicht) als Funktion des Fehlers  $\delta$  der Ausgabewerte, also der Differenz zwischen Vorgabe und tatsächlicher Ausgabe, zu korrigieren. Dieser iterative Vorgang der Fehlerminimierung, mathematisch gesehen ein Gradientenabstiegsverfahren, läuft so oft, bis der Fehler klein genug ist. Die Änderung der Gewichte einer Schicht im  $n$ -ten Trainingsschritt wird von zwei einstellbaren Parametern bestimmt,  $\alpha$  und  $\eta$ :

$$\Delta w_n = \eta \delta y + \alpha \Delta w_{n-1}.$$

Dabei stellt die Proportionalitätskonstante  $\eta$  die Lernrate dar, die bestimmt, wie stark die berechnete Änderung tatsächlich auf die Gewichte im  $n$ -ten Schritt einwirkt. Sie legt also eine Art Lerngeschwindigkeit fest. Ist  $\eta$  sehr groß, dann sinkt der Fehler sehr schnell ab, kann aber über das Minimum der Fehlerfunktion hinauslaufen.  $\alpha$  ist das sogenannte Momentum und gibt an, wie stark der Wert der Gewichtsänderung im  $(n-1)$ -ten Schritt in die Berechnung der neuen Gewichtsänderung eingeht. Anschaulich beschreibt  $\alpha$  eine Trägheit der Bewegung, mit der bei der Optimierung lokale Minima wieder verlassen werden können. Die optimalen Werte dieser beiden Parameter  $\alpha$  und  $\eta$  müssen durch Tests ermittelt werden.

Gegebenenfalls kann durch Änderung von  $\alpha$  und  $\eta$  auch während des Trainings eingegriffen werden.

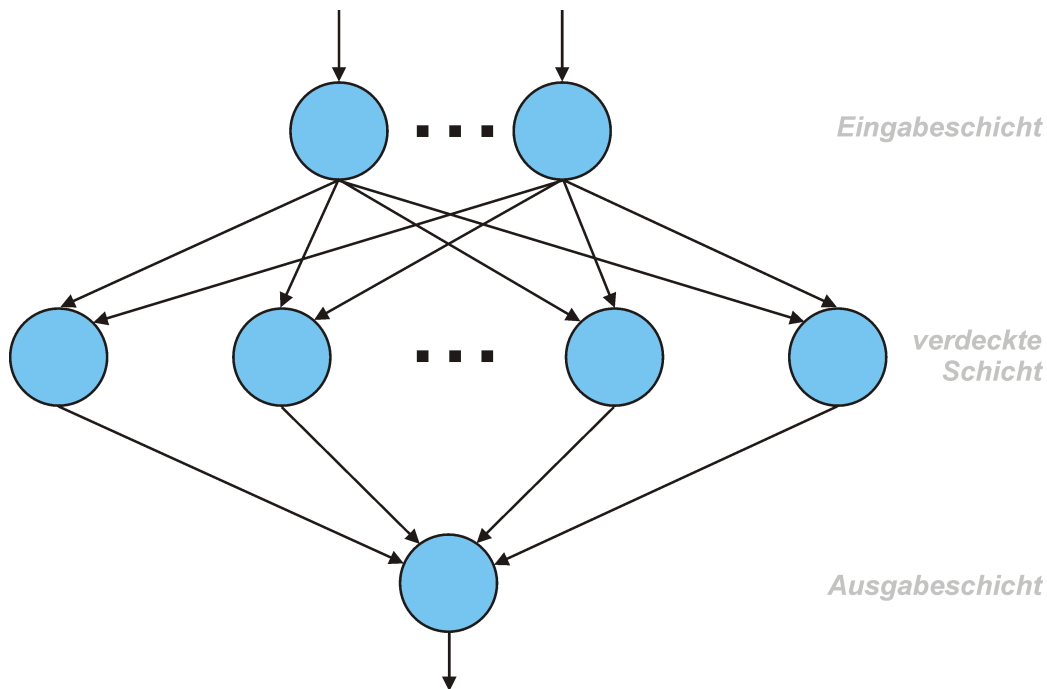


Abbildung 5.3: Schematische Darstellung eines neuronalen Netzes

### 5.3.3 Zur Ermittlung eines geeigneten neuronalen Netzes

Bei der Anwendung empirischer Methoden stellt sich im Allgemeinen die Frage nach der Bewertung der Güte eines Ergebnisses. Nach welchen Kriterien kann also beurteilt werden, ob ein neuronales Netz geeignet ist, das vorgelegte Problem zu lösen?

Naheliegender ist die Forderung, dass ein neuronales Netz ein mehr oder weniger richtiges Ergebnis liefern muss. Sonst würde eine Anwendung wenig Sinn machen. Weiterhin ist die Architektur des neuronalen Netzes zu optimieren. Wieviele Schichten sind notwendig und wieviele Neuronen soll jede enthalten? Welche Transferfunktion kann gewählt werden und welchen Wert haben die Parameter  $\alpha$  und  $\eta$ ? Wie müssen die Trainingsdaten beschaffen sein?

#### Architektur des neuronalen Netzes

Die Architektur des neuronalen Netzes ist zum Teil von der Fragestellung vorbestimmt, zum Teil auch durch *trial and error* zu ermitteln. Häufig ist die Frage, wie ein Problem geeignet parametrisiert werden kann, entscheidend für die Leistungsfähigkeit des neuronalen Netzes. So ist bei [Meiler01] beschrieben, wie zum Beispiel Informationen über die Struktur und

Aktivität eines biologisch relevanten Moleküls codiert werden können, um Struktur-Eigenschafts-Beziehungen zu ermitteln. Auf eine derartige Parametrisierung, die eine umfangreiche Vorbehandlung eines Szintillationspulses erfordern würde, wurde hier bewusst verzichtet. Grund ist, dass ein entsprechend trainiertes neuronales Netz im Idealfall bei einem SISA-Experiment online jeden eingehenden Szintillationspuls evaluieren und gegebenenfalls einen Ausgabewert liefern soll, der die Messzellen schnell in den Tochtermodus schaltet. Eine vorgeschaltete, wie auch immer geartete Parametrisierung würde aber zusätzliche Rechenzeit kosten, was gerade bei Ereignisraten von 100-150 Pulsen pro Sekunde spürbar ins Gewicht fallen würde. Die Eingabeschicht erhält deshalb den Szintillationspuls direkt als Eingabewert. Aus praktischen Gründen ist die Zahl der Datenpunkte in der Eingabe (*input*) gleich der Zahl der Neuronen in der ersten Schicht. Es musste entschieden werden, ob der Szintillationspuls dem Netz „roh“ präsentiert werden soll oder ob wenigstens eine simple Veränderung wie eine Normierung des Pulses sinnvoll ist. Wenn die Szintillationspulse mit 500 MS/s (entspricht einem Datenpunkt alle 2 ns) aufgezeichnet werden, sind 250 Punkte ausreichend, um insgesamt ein 500 ns breites Signal darzustellen. Da die Länge eines Szintillationspulses abhängig ist vom verwendeten Szintillator, kann dieser Wert natürlich auch größer oder kleiner sein. Die gemessenen Pulse haben eine Länge von etwa 200-350 ns. Die Eingabeschicht des neuronalen Netzes sollte dementsprechend 175 bis 250 Neuronen enthalten.

Die Ausgabeschicht enthält entsprechend der Frage „Handelt es sich um einen  $\alpha$ -Puls oder nicht?“ zwei Neuronen für „Alpha“ oder „Sonstiges“. In ersten Tests (Kapitel 5.3.5) wurde noch versucht, mit fünf Ausgängen zu arbeiten, nämlich je einem für „Alpha“, „Beta“, „Spalter“, „pile up“ und „Sonstiges“. Das führte aber zu einer verschlechterten Erkennungsleistung der neuronalen Netze und ist praktisch auch nicht relevant, da die entscheidende Information nur die Frage nach dem Vorliegen eines  $\alpha$ -Signals ist. Die ermittelten Ausgabewerte (*outputs*) des neuronalen Netzes liefern für jeden einzelnen Szintillationspuls einen Wert, mit dessen Hilfe entschieden werden kann, ob ein  $\alpha$ -Ereignis vorliegt oder nicht.

Die geeignete Zahl der verdeckten Schichten und der Neuronen in ihnen muss empirisch ermittelt werden. Sie sollte nach Möglichkeit gering sein, da als Faustregel gilt, dass der Trainingsdatensatz mindestens so viel einzelne Pulse enthalten soll wie das neuronale Netz Gewichte hat. Das bedeutet, dass man für große Netze sehr große Trainingsdatensätze benötigen würde. Das würde aber die Trainingsdauer erhöhen und zudem das zuweilen außerordentlich langwierige Erstellen großer Trainingsdatensätze erfordern.

### *Trainingsdatensätze*

Die Trainingsdatensätze sollen Beispiele aller Pulsformen enthalten, die das neuronale Netz erkennen soll. Die  $\alpha$ -Signale wurden mit Hilfe der  $^{227}\text{Ac}$ -Quelle erzeugt. Als Quelle für  $\beta$ -Signale wurde am Mainzer TRIGA-Reaktor bestrahltes  $\text{Tb}(\text{NO}_3)_3$  verwendet, das wegen sei-

ner schlechten Löslichkeit in Toluol zunächst in Alkohol gelöst wurde und dann in den Szintillator gegeben wurde. Später wurde bestrahltes Dibutylphosphat verwendet, das ohne Probleme in Toluol löslich ist. Die pile ups für den Trainingsdatensatz wurden den experimentellen Daten entnommen.

### Kontrolle des Trainings

Das Lernverhalten des neuronalen Netzes beim Training muss überwacht werden. Eine geeignete Methode ist dafür die Arbeit mit einem Testdatensatz, der dem Netz unbekannte Daten enthält. In diesem Testdatensatz sollte eine möglichst breite Auswahl von real zu erwartenden Daten enthalten sein. Ein Testdatensatz ist praktisch das Gleiche wie ein Trainingsdatensatz mit dem Unterschied, dass er nicht in das Training einbezogen wird und dass er meistens weniger Pulse enthält. Lässt man während des Trainings Trainings- und Testdatensatz parallel laufen, kann man mit Hilfe einer Auftragung der Fehler der beiden Datensätze gegen die Zahl der Iterationen erkennen, wann das Training abgebrochen werden kann. Voraussetzung für den Abbruch ist, dass eine Änderung von  $\alpha$  und  $\eta$  keine Verringerung des Fehlers mehr zur Folge hätte.

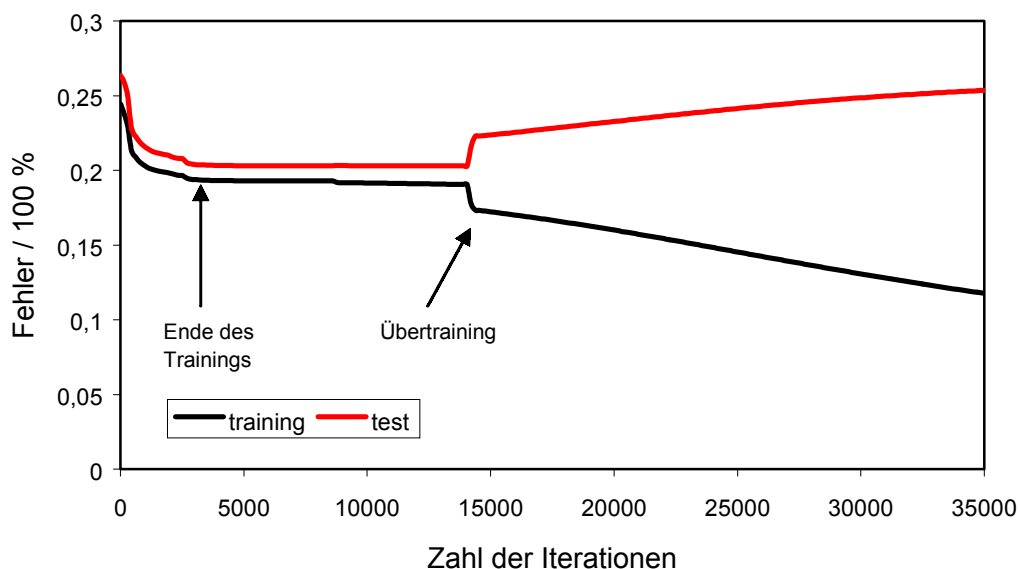


Abbildung 5.4: Typische Fehlerkurve, erhalten beim Training eines neuronalen Netzes

Laufen die beiden Fehlerkurven weitgehend parallel, werden die Testdaten, also unbekannte Daten, vom Netz ähnlich gut erkannt wie die Trainingsdaten. Das Ende des Trainings ist erreicht, wenn die Fehlerkurve deutlich flacher wird. Wird das Training trotzdem fortgesetzt, kann es dazu kommen, dass die beiden Fehlerkurven wieder auseinander laufen. Das Netz verliert dann seine Fähigkeit, unbekannte Daten richtig zu verarbeiten („Übertraining“).



### 5.3.4 Eingesetzte Software

#### *Smart*

Grundlage der Arbeiten war das Programm *Smart*, mit dem back-propagation-Netze aufgebaut und trainiert werden können [Meiler99]. Das Programm bietet neben vielen Funktionen zur Kontrolle des Trainings der neuronalen Netze unter anderem die Möglichkeit, ein geeignet erscheinendes neuronales Netz in Form eines Quellcode-Fragments in der Programmiersprache C abzuspeichern. Das ermöglicht es, das neuronale Netz in eigens für das zu behandelnde Problem entwickelte Programme einzubetten. *Smart* protokolliert verschiedene Parameter wie Fehlerentwicklung, *input sensitivity* oder die Gewichtsverteilung (siehe auch Kapitel 5.3.7) während des Trainings, mit deren Hilfe die Performance eines Netzes untersucht werden kann.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden mehrere Programme entworfen, mit denen die einzelnen Schritte bei der Anwendung neuronaler Netze zur Pulsformdiskriminierung vollzogen werden können.

#### *AcqirisReader2*

Das Programm *AcqirisReader2* dient hauptsächlich zur Erstellung von Trainings- und Testdatensätzen für *Smart* (siehe auch Anhang A2). Es stellt die vom *AcqirisDigitizer* abgespeicherten Pulse graphisch dar und kann einzelne Peaks in den Pulsen ausfindig machen. Weiterhin ermöglicht es, für jeden einzelnen Puls den Bereich festzulegen, aus dem die einzelnen Punkte des Szintillationspulses in die Datei mit dem Trainings- bzw. Testdatensatz für *Smart* geschrieben werden. Gleichzeitig werden im Trainingsdatensatz die Werte für die Ausgangsschicht des neuronalen Netzes vorgegeben. In einer zweiten Datei werden diese Angaben und die Datei, in welcher der verwendete Puls zu finden ist, protokolliert. Somit können eventuell auftretende Probleme besser verfolgt werden.

#### *AcqirisOrigNorm*

Zum *AcqirisReader2* gehört auch das Programm *AcqirisOrigNorm*. Es erstellt aus dem von *AcqirisReader2* erzeugten Datensatz zwei neue Datensätze. In einem finden sich dann die Originalpulse, im anderen dagegen die gleichen Pulse jeweils auf den Bereich von 0 bis 1 normiert.

#### *AcqirisEvaluator und AcqirisResultExtractor*

Im Programm *AcqirisEvaluator* wird dann das von *Smart* als C-Code erzeugte neuronale Netz genutzt, um damit alle Pulse zu evaluieren. Die Ausgabewerte des neuronalen Netzes

für jeden Puls werden in einer Datei protokolliert und können dann vom Programm *AcqirisResultExtractor* weiterverwendet werden. *AcqirisResultExtractor* berechnet aus den Ergebnissen des neuronalen Netzes dann das entsprechende  $\alpha$ -Spektrum. Zudem können alle zum Spektrum gehörenden Szintillationspulse einzeln angezeigt werden und bei Bedarf eliminiert werden. Auf diesem Wege kann man eventuell noch bestehende Untergrundereignisse aus dem Spektrum entfernen und ein quasi untergrundfreies Spektrum erhalten. Das Spektrum und die zugehörigen Pulse können in einer Datei gespeichert werden. Die weitere Auswertung der Spektren erfolgt dann mit Hilfe herkömmlicher Software.

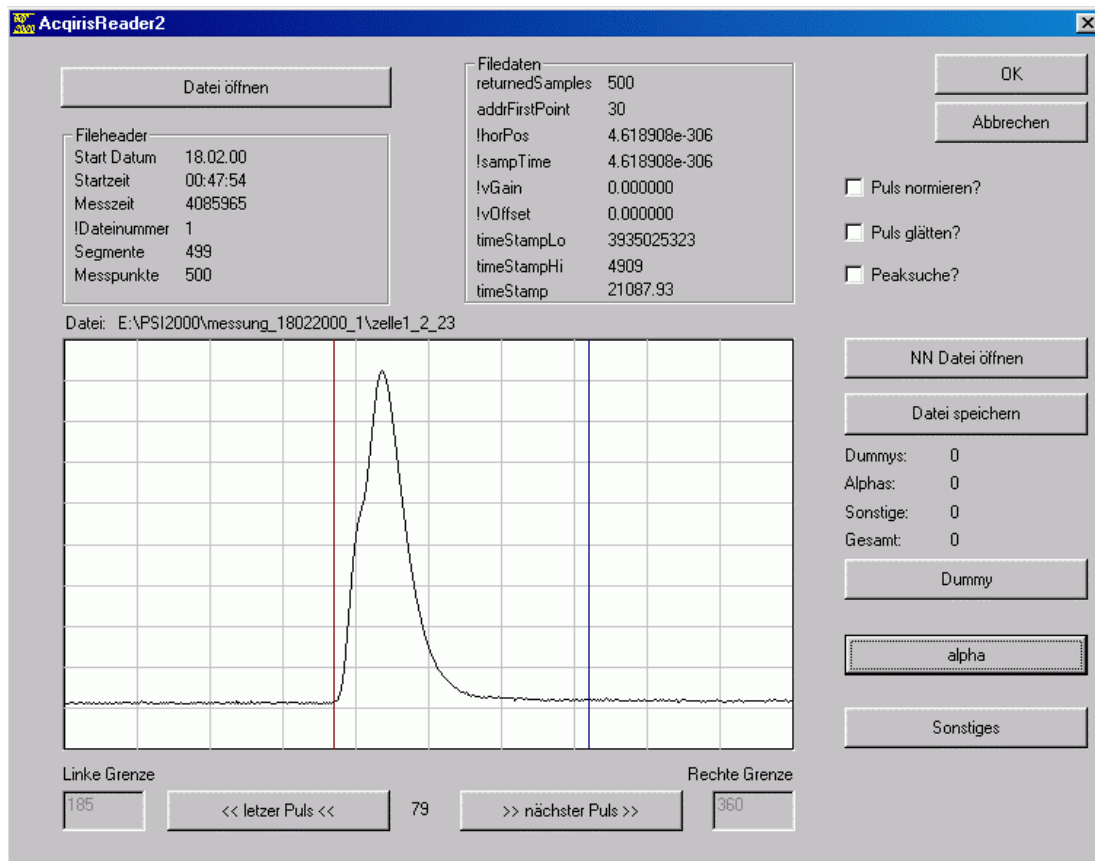


Abbildung 5.5: Die Programmoberfläche des *AcqirisReader2*

Die Programme wurden allesamt mit Hilfe des Programmpakets *Visual C++* entwickelt. Es wurde bei der Entwicklung großer Wert auf eine ausführliche Kommentierung der wesentlichen Schritte im Quellcode gelegt.

### 5.3.5 Orientierende Versuche

Am Anfang der Arbeit mit neuronalen Netzen zur Pulsformdiskriminierung stand die Suche nach einer geeigneten Netzarchitektur und der Nachweis, dass mit neuronalen Netzen überhaupt Pulsformen richtig klassifiziert werden können.

Im Rahmen eines Praktikums wurde erstmals *Smart* zum Testen verschiedener neuronaler Netze eingesetzt [Messerschmidt00]. Ziel war es, Informationen über den Lernprozess neuronaler Netze und die Möglichkeit der Beeinflussung dessen durch verschiedene Parameter wie Zahl und Größe der verdeckten Schichten, Transferfunktion, den Lernparameter  $\eta$  und das Momentum  $\alpha$  zu gewinnen. Zudem sollten Netzarchitekturen gefunden werden, mit denen sich die angestrebte Pulsformdiskriminierung effektiv verwirklichen lässt.

Die neuronalen Netze bestanden stets aus einer Eingabeschicht mit 250 Neuronen und einer Ausgabeschicht mit 5 Neuronen. Den 5 Ausgängen wurden die Aussagen „Alpha“, „Beta“, „Spalter“, „pile ups“ und „Sonstiges“ zugeordnet. Es wurde mit unterschiedlichen Zahlen verschieden großer verdeckter Schichten die Erkennungsleistung getestet. Da die resultierenden Netze sehr groß waren, wurde zum Training bewusst nur ein sehr kleiner Trainingsdatensatz mit 99 Pulsen verwendet, um den Rechenaufwand in vertretbaren Grenzen zu halten. Dies erhöhte zwangsläufig den Fehler beim Testdatensatz, da das Netz zu wenig Daten zum Lernen der verschiedensten Pulsformen hatte.

Als Transferfunktion erwies sich die Sigmoid-Funktion als zweckmäßig. Für große Netze mit mehreren verdeckten Schichten sollten  $\alpha \approx 0.3$  und  $\eta \approx 0.35$  sein, für kleine Netze mit nur einer verdeckten Schicht und wenig Neuronen dagegen ergaben sich mit  $\alpha \approx 0.5$  und  $\eta \approx 0.1$  die besten Ergebnisse. Bei verdeckten Schichten mit vielen Neuronen tragen nur wenige Gewichte zur Ermittlung der Ausgabewerte bei. Das stellt im Prinzip eine Verschwendung von Rechenleistung dar und führte dazu, dass in weiteren Versuchen die Zahl der verdeckten Schichten und der Neuronen in ihnen minimiert wurde.

Trotz des erwähnten kleinen Trainingsdatensatzes konnten die getesteten Netze etliche Pulse richtig zuordnen. Damit konnte trotz aller Unzulänglichkeiten erstmals gezeigt werden, dass Pulsformdiskriminierung mit Hilfe neuronaler Netze prinzipiell möglich ist.

### 5.3.6 Erste Analyse mit einem neuronalen Netz

Ausgehend von diesen ersten Tests sollte nun ein neuronales Netz zur Evaluierung der beim SISAK-Experiment im Februar 2000 gemessenen Szintillationspulse eingesetzt werden.

Es wurde ein Netz mit 250 Neuronen in der Eingabeschicht, 4 Neuronen in der verdeckten und 2 Neuronen in der Ausgabeschicht erstellt, das mit 2600 Szintillationspulsen trainiert wurde [Langrock01]. Zu Beginn des Trainings betragen  $\alpha = 0.5$  und  $\eta = 0.001$ . Die beiden Ausgänge sollten für die Aussage „ $\alpha$ “ und „Sonstiges“ jeweils Werte zwischen 0 und 1 liefern, wobei 1 für ein sicher eingeordnetes Ereignis steht. Den Pulsen im Trainingsdatensatz wurden dann entsprechend für die Ausgänge die Werte „1 0“ oder „0 1“ für das Training vorgegeben. Lässt man nach dem Ende des Trainings dann Szintillationspulse vom neuronalen Netz evaluieren, erhält man selten als Ausgabewert 0 bzw. 1, sondern meistens Werte dazwi-

schen. Das heißt, dass die Auswertung an Hand der Ausgabewerte der beiden Neuronen der Ausgabeschicht durchgeführt wird. Doch was bedeutet es, wenn ein Puls vom ersten Neuron der Ausgabeschicht („ $\alpha$ “) einen Ausgabewert (*output*) von z.B. 0.28 und ein anderer Puls z.B. 0.81 erhält? Intuitiv wäre zu vermuten, dass der letzte Puls wahrscheinlich ein echtes  $\alpha$ -Signal ist, der erste wohl eher nicht. Wie kann das aber überprüft werden?

#### Vortests

Zunächst einmal kann mit einem Testdatensatz das richtige Erkennen von unbekanntem Daten geprüft werden. Besteht der Testdatensatz aus einer hinreichend großen Zahl von Szintillationspulsen sehr verschiedener Pulsformen, kann man schon anhand der für diese Pulse ermittelten Ausgabewerte abschätzen, ob sie mehr oder weniger richtig erkannt werden. Ähnliche Szintillationspulse müssen vom neuronalen Netz ähnliche Ausgaben erhalten. Besonders wichtig dabei ist, dass die überwiegende Mehrzahl der Pulse und vor allem alle  $\alpha$ -Ereignisse richtig zugeordnet werden. (Werden einige wenige Pulse fälschlich als  $\alpha$ -Ereignisse eingeordnet und erscheinen im  $\alpha$ -Spektrum als Untergrund-Ereignisse, können diese bei einer offline-Analyse später durchaus noch manuell aus dem Spektrum entfernt werden. Bei relativ vielen Untergrundereignissen ist dagegen das verwendete neuronale Netz nicht brauchbar.)

Ganz ähnlich ist das Vorgehen beim Ermitteln eines Wertes für den ersten Ausgang, ab dessen Erreichen ein Puls als echtes  $\alpha$ -Signal angesehen werden kann. Anhand eines Datensatzes nur mit verschiedenen  $\alpha$ -Pulsen wird geprüft, welche Werte diese Pulse vom neuronalen Netz erhalten. Dazu werden gegen die möglichen Ausgaben des Netzes zwischen 0 und 1 die Zahl der Pulse aufgetragen, deren vom Netz errechneten Ausgabewerte größer oder gleich jenen Ausgaben sind. Dies ist für das hier verwendete neuronale Netz und einen Datensatz mit 100  $\alpha$ -Pulsen graphisch in Abbildung 5.6 dargestellt.

Aus Abbildung 5.6 geht hervor, dass hier alle  $\alpha$ -Pulse dieses Datensatzes einen *output* größer oder gleich 0.4 erhalten. Anders gesagt werden bis zu einem Ausgabewert des ersten Neurons von 0.4 alle  $\alpha$ -Pulse richtig erkannt. Dann fällt die Kurve langsam bis 0.7 ab, es werden also einige  $\alpha$ -Pulse nicht mehr richtig zugeordnet. Zwischen 0.7 und 0.9 fällt die Kurve dann auf 1 ab. Das bedeutet, dass nur einer der 100  $\alpha$ -Pulse dieses Testdatensatzes einen *output* größer 0.9 erhält. Würde das neuronale Netz alle  $\alpha$ -Pulse perfekt erkennen, wäre die Kurve eine Sprungfunktion bei der Ausgabe 1.0. Eine durchaus realistische Abweichung wäre der Übergang zu einer stetigen und symmetrischen Funktion (ähnlich der Funktion  $f(x)=1-\tanh(x)$ ). Tatsächlich ist jedoch zwischen 0.4 und 0.7 eine Abweichung von diesem Verlauf zu erkennen, die durch den nachfolgend beschriebenen Effekt des „internen Energiefensters“ erklärt werden kann.

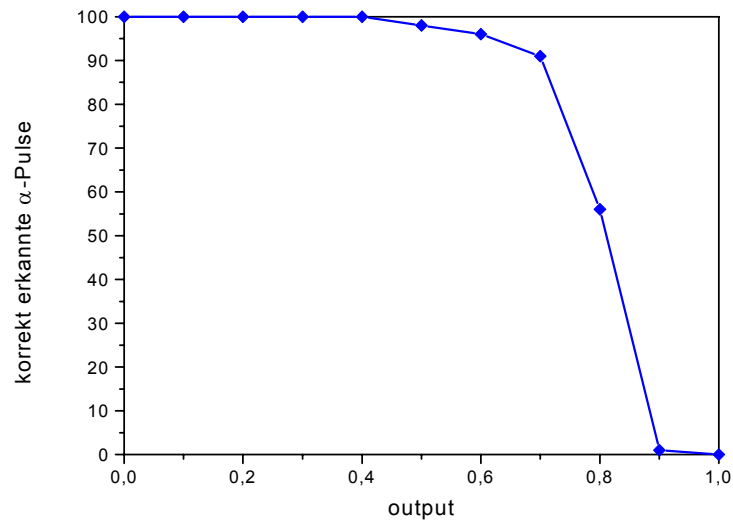


Abbildung 5.6: Bestimmung eines Schwellwertes, dessen Erreichen das Vorliegen eines „echten“  $\alpha$ -Pulses anzeigen soll

#### „Internes Energiefenster“

Wird also wie oben beschrieben der Ausgabewert des Netzes als eine Art Schwellwert (Gate) genutzt, oberhalb dessen alle  $\alpha$ -Pulse und möglichst wenig Untergrundereignisse vorhanden sein sollen, liefern die zugehörigen LSC-Spektren zusätzliche Informationen über diesen Schwellwert. Die Spektren werden berechnet, indem die Fläche unter einem Puls ermittelt wird und der Puls dann ähnlich wie in einem Multi-Channel-Analyzer in einen von 500 (virtuellen) Kanälen eingeordnet wird.

In Abbildung 5.7 ist ein  $^{219}\text{Rn}/^{215}\text{Po}$ -Kalibrationsspektrum zu sehen, wobei das Spektrum in Abhängigkeit vom Ausgabewert dargestellt ist. Es ist zu erkennen, dass mit zunehmenden Ausgabewerten erst der nieder- und dann der höherenergetische  $\alpha$ -Peak aus dem Spektrum entfernt wird. Das erklärt sich aus der Zusammenstellung des Trainingsdatensatzes. Es erhielten nicht alle im Trainingsdatensatz enthaltenen  $\alpha$ -Pulse die Ausgabe „1 0“ vorgegeben, sondern nur große Pulse.  $\alpha$ -Pulse kleiner Amplitude dagegen sollten als „Sonstige“ klassifiziert werden, da niederenergetische  $\alpha$ -Ereignisse eigentlich nicht von Interesse waren. Allerdings hat dies dazu geführt, dass das neuronale Netz die Pulse offenbar nicht ausschließlich an Hand ihrer Pulsformen, sondern auch ihrer Größe lernt. Somit enthält der *output* nicht nur eine Information über die Pulsform, sondern auch über die Energie. Anders gesagt kann der Ausgabewert für eine Art internes Energiefenster genutzt werden, mit dessen Hilfe sukzessive  $\alpha$ -Ereignisse niederer Energie aus dem Spektrum entfernt werden könnten. Aus den Abbildungen 5.6 und 5.7 kann gefolgert werden, dass in diesem Fall bei einem *output* von 0.6 bis 0.7 noch alle  $\alpha$ -Ereignisse im interessierenden Energiebereich um 8.25 MeV herum im Spektrum erscheinen sollten.

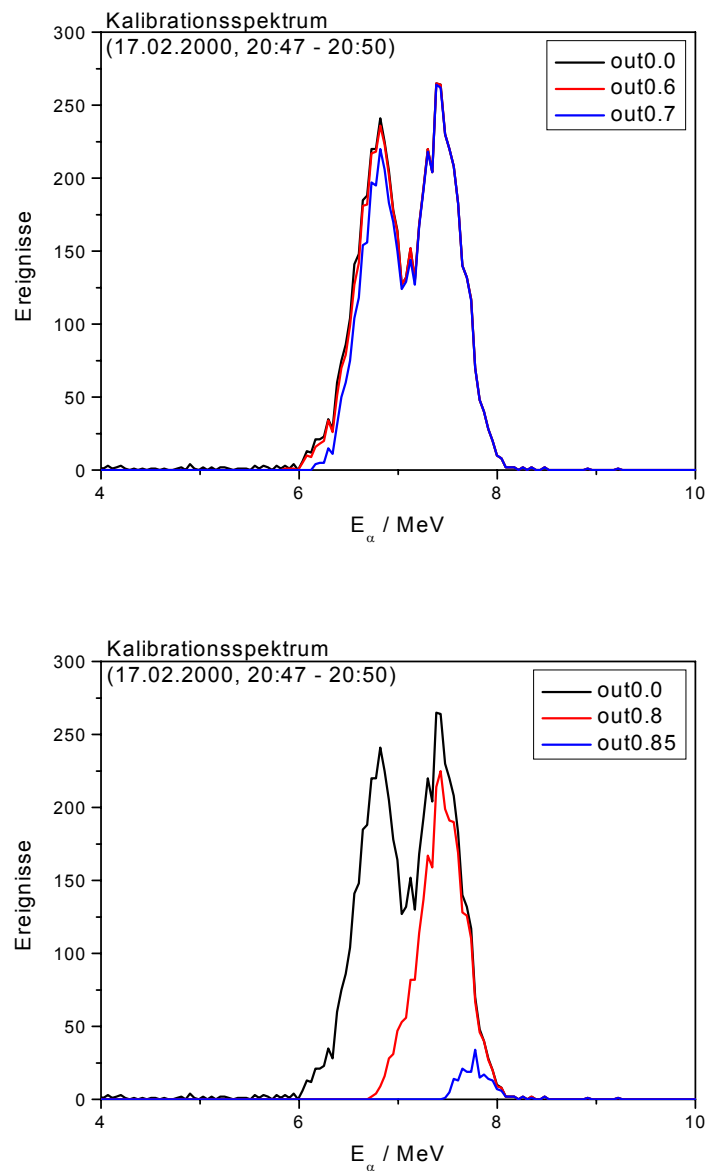


Abbildung 5.7: Kalibrationsspektrum ( $^{219}\text{Rn}$ :  $E_\alpha = 6.82$  MeV,  $^{215}\text{Po}$ :  $E_\alpha = 7.39$  MeV) in Abhängigkeit vom Ausgabewert (*output*) des neuronalen Netzes

### Ergebnis

Wichtiger als dieses Gate für die  $\alpha$ -Energien ist jedoch die Frage, ob das neuronale Netz auch wie gewünscht den im eigentlichen Experiment gemessenen Nicht- $\alpha$ -Ereignissen Ausgabewerte nahe Null zuordnet. In Abbildung 5.8 ist das Online-Spektrum in Abhängigkeit von den Ausgabewerten gezeigt, das nach der oben gezeigten Kalibration aufgenommen wurde. Zunächst sind im Spektrum zwei ausgeprägte Peaks zu erkennen. Der Peak um 3.5 MeV stammt von niederenergetischen  $\beta$ -Ereignissen und pile ups. Er wird schon bei einem *output* von 0.2 nahezu vollständig eliminiert (obere Abbildung). Der Peak bei etwa 16 MeV ist auf

die zahlreichen Signale von Spaltfragmenten zurückzuführen. Diese werden offensichtlich vom verwendeten neuronalen Netz problemlos erkannt. In der unteren Abbildung ist das gleiche Spektrum in Abhängigkeit von höheren Ausgabewerten dargestellt. Es wird deutlich, dass nur wenige Ereignisse oberhalb 7 MeV aus dem Spektrum entfernt werden.

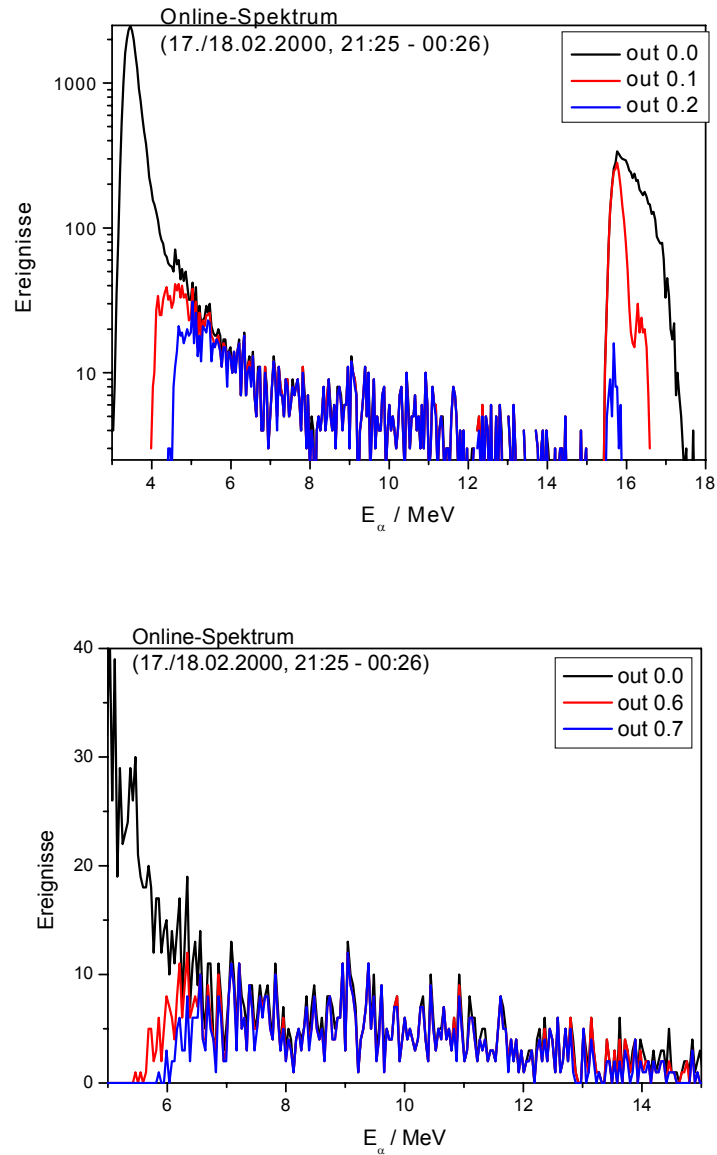


Abbildung 5.8: Online-Spektrum in Abhängigkeit vom Ausgabewert (*output*) des neuronalen Netzes

Die Leistungsfähigkeit des neuronalen Netzes wird in der folgenden Tabelle deutlicher, in der die Zahl der Pulse im Online-Spektrum in Abhängigkeit vom *output* aufgeführt ist. Bei dem für die Auswertung relevanten Ausgabewert von 0.6 sind das immerhin 97.3 Prozent aller aufgenommenen Pulse.

| Pulse im Spektrum | output     | aus dem Spektrum entfernte Pulse |               |
|-------------------|------------|----------------------------------|---------------|
| 34000             |            |                                  |               |
| 1668              | 0.2        | 32332                            | 95.1 %        |
| 1183              | 0.4        | 32817                            | 96.5 %        |
| <b>916</b>        | <b>0.6</b> | <b>33084</b>                     | <b>97.3 %</b> |
| 571               | 0.8        | 33429                            | 98.3 %        |
| 0                 | 0.9        | 34000                            | 100 %         |

Tabelle 5.1: Zahl der aus dem Online-Spektrum (17./18.02.2000, 21:25-00:26 Uhr) entfernten Pulse in Abhängigkeit vom Ausgabewert

Es zeigt sich jedoch, dass bei höheren Ausgabewerten im Bereich von etwa 6 bis 14 MeV nur relativ wenige Ereignisse aus dem Spektrum entfernt werden. Das wird noch deutlicher, wenn für einen Ausschnitt das Spektrum neu berechnet (also erneut auf 500 virtuelle Kanäle verteilt) wird (Abbildung 5.9). Im Spektrum sind nur die Ereignisse zu sehen, für die das neuronale Netz Ausgabewerte größer 0.6 berechnet hat. Diese Zahl von Ereignissen kann nicht ausschließlich von  $\alpha$ -Ereignissen stammen. Das zeigt auch eine Überprüfung mit dem Programm *AcqirisResultExtractor*. Die meisten dieser Ereignisse sind pile ups mit relativ ungewöhnlichen Formen, also zum Beispiel einem schwach ausgeprägten zweiten Peak.

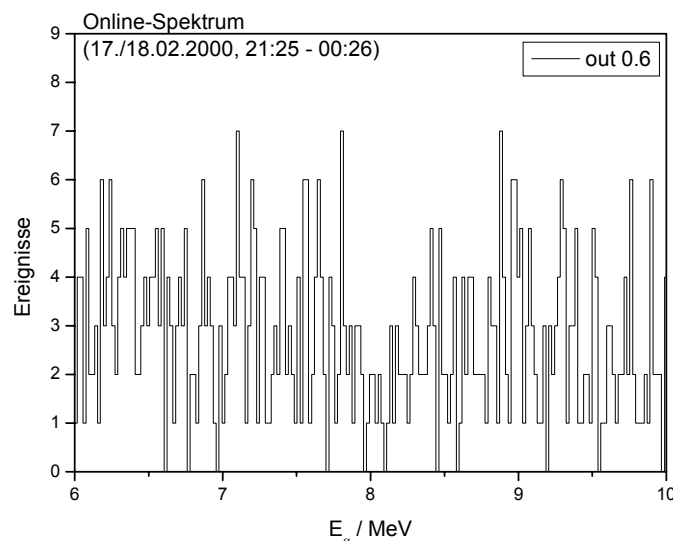


Abbildung 5.9: Neu berechneter Ausschnitt aus dem Online-Spektrum. Dargestellt sind nur die Ereignisse, die vom neuronalen Netz einen output  $\geq 0.6$  erhalten haben.



Mit dem Programm lassen sich jedoch all diese Untergrundereignisse manuell aus dem Spektrum entfernen, so dass ein Spektrum wie in Abbildung 5.10 übrig bleibt.

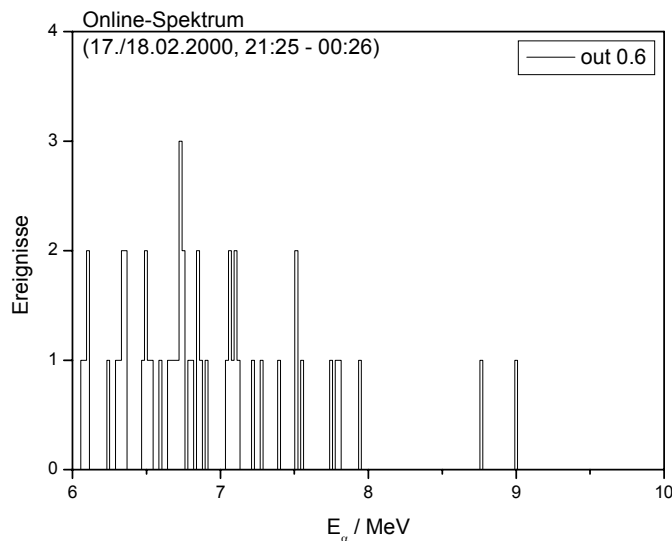


Abbildung 5.10: Ausschnitt aus dem Online-Spektrum nach manuellem (visuellem) Entfernen aller Untergrundereignisse.

Die Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen der Datenauswertung mit dem hier verwendeten neuronalen Netz ergeben sich aus den angesprochenen Problemen. Zwar vermag das neuronale Netz einen Großteil der Pulse richtig zu klassifizieren. Allerdings reicht diese Leistung noch nicht aus, da immer noch zu viele Ereignisse falsch zugeordnet werden und dadurch der Untergrund zu hoch ist. Der Trainingsdatensatz mit 2600 Pulsen war ungünstig zusammengestellt. Er enthielt nicht ausreichend verschiedene Formen von pile ups, weshalb nicht alle pile ups richtig erkannt werden konnten. Der Trainingsdatensatz musste also verändert werden. Zudem ist das „interne Energiefenster“ hinderlich bei der Trennung von  $\alpha$ - und pile up-Ereignissen und im Prinzip unnötig. Zum einen, weil bei einer offline-Analyse ein Energiefenster ohne Probleme manuell gesetzt werden kann. Zum anderen erhalten dadurch die Ausgabewerte des neuronalen Netzes eine zusätzliche Information, die gerade bei Pulsen mit kleiner Amplitude eine ad hoc-Aussage, ob nun ein Nicht- $\alpha$ -Ereignis oder vielleicht doch ein (niederenergetisches)  $\alpha$ -Ereignis vorliegt, erschwert. Das heißt, dass das neuronale Netz in diesem Fall nicht mehr ausschließlich anhand der Pulsformen die Pulse unterscheidet.

Somit eignet sich das hier getestete neuronale Netz nicht für eine automatische offline-Analyse des SISA-Experiments, da es dem Ziel eines untergrundfreien Spektrums noch nicht ausreichend nahe kommt. Die Netzstruktur mit nur einer verdeckten Schicht mit vier Neuronen scheint ausreichend zu sein, allerdings war der Trainingsdatensatz nicht brauchbar.

### 5.3.7 Analyse des Experiments mit einem geeigneten neuronalen Netz

Bei der Zusammenstellung eines neuen Trainingsdatensatzes wurden zwei wesentliche Änderungen berücksichtigt. Die erste Änderung war eine Normierung aller digitalen Pulshöhen auf einen Bereich zwischen 0 und 1. Damit sollte erreicht werden, dass das neuronale Netz die Pulse ausschließlich an ihrer Form erkennt. Die zweite Änderung ist die Festlegung eines expliziten Startpunkts in der ansteigenden Flanke des Pulses (Details finden sich im Quellcode im Anhang A2). Bei dem im Kapitel 5.3.6 beschriebenen Vorgehen wurde noch bei jedem Puls ein Teil der dem eigentlichen Puls vorausgehenden Datenpunkte mitgeschrieben. Diese sind jedoch nicht nötig, da sie keine Information tragen. Ausgehend von diesem Startpunkt werden die nächsten 175 Punkte (entspricht 350 ns eines Szintillationspulses) mitgeschrieben. Das resultierende neuronale Netz hat demzufolge eine Eingabeschicht mit nur noch 175 Neuronen. Die verdeckte Schicht enthielt diesmal fünf und die Ausgabeschicht wieder zwei Neuronen. Es wurde ein neuer Trainingsdatensatz mit insgesamt 2580 Szintillationspulsen und ein Testdatensatz mit 100 Pulsen erstellt.

#### Vortests

Schon bei den ersten Tests zeigte sich, dass die erwähnten Änderungen und der neue Trainingsdatensatz den getesteten neuronalen Netzen ermöglichten, sehr schnell den Fehler zu minimieren. Die verschiedenen Netze lieferten relativ gut reproduzierbare Ergebnisse, so dass nach dem Festlegen der Startparameter  $\eta = 0.08$  und  $\alpha = 0.2$  einfach das erste trainierte Netz zur Auswertung genutzt wurde. Die Fehlerkurve ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Das Training wurde nach 600 Iterationen abgebrochen und das resultierende Netz zur Auswertung eingesetzt.

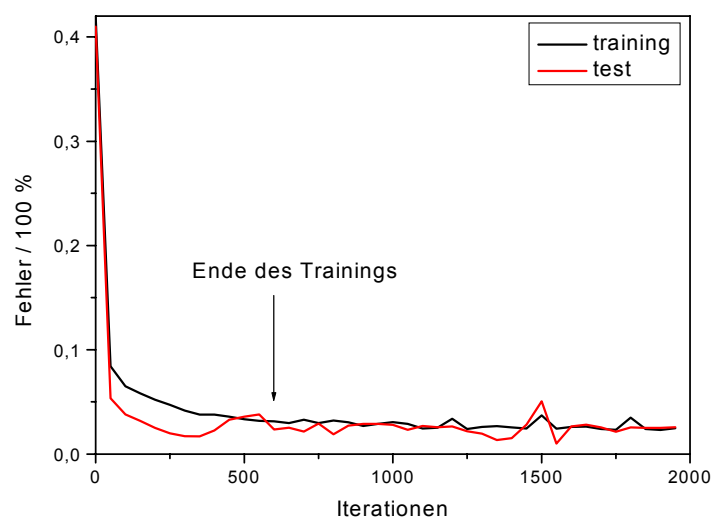


Abbildung 5.11: Fehlerkurve des hier verwendeten neuronalen Netzes

Dass das Netz seine Gewichte dem Problem angemessen adaptiert hat, lässt sich aus einer Darstellung der Gewichtsverteilung ablesen (Abbildung 5.12). Die Gewichte ergeben eine ungefähr gleichmäßige Verteilung um Null herum. Das bedeutet, dass die meisten Gewichte einen ähnlich großen Beitrag zur Erkennung der Szintillationspulse leisten. Das bewirkt eine gleichmäßige Erkennungsleistung des Netzes.

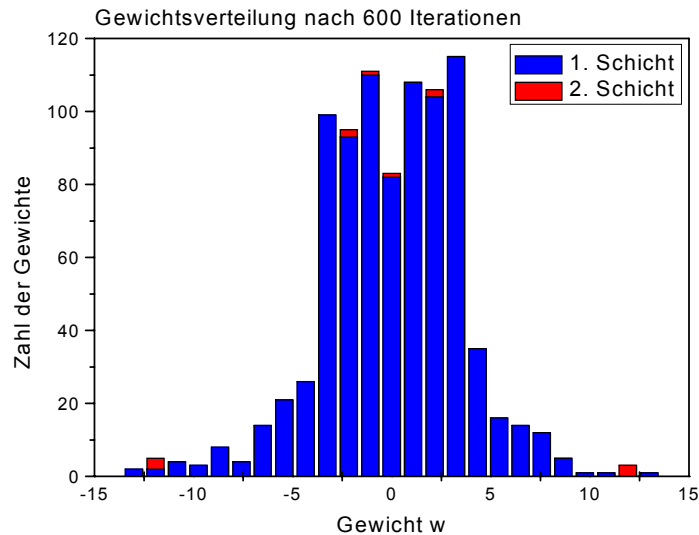


Abbildung 5.12: Gewichtsverteilung für das verwendete neuronale Netz

Mit einer Sensitivitätsanalyse kann gezeigt werden, wie empfindlich die Ausgabewerte auf die einzelnen 175 Eingänge reagieren (Abbildung 5.13 oben). Dazu wird die *input sensitivity* für jeden der 175 Eingänge ermittelt. Da an den Eingängen praktisch die Punkte des Szintillationspulses anliegen, lässt sich ablesen, dass zum *output* offenbar nur drei Regionen eines Pulses wesentlich beitragen. Aus einer gemeinsamen Darstellung der *input sensitivity* mit drei willkürlich gewählten, auf Eins normierten Szintillationspulsen wird klar, welche Regionen das sind. Die erste Region ist um den Peak herum, die zweite in der abfallenden Flanke und die dritte im Auslauf eines Pulses zu finden. Das deutet schon an, dass das neuronale Netz tatsächlich die in Kapitel 3.4 gezeigten hauptsächlich auftretenden Pulsformen richtig erkennt. Der Peak ist von Bedeutung bei der Unterscheidung von Spaltsignalen (die einen „abgeschnittenen“ Peak haben) und den anderen Pulsen. In der abfallenden Flanke können  $\alpha$ -,  $\beta/\gamma$ -Pulse und pile ups voneinander unterschieden werden. Der Ausläufer von Pulsen ist meistens nur bei bestimmten Spalt ereignissen und pile ups von Bedeutung.

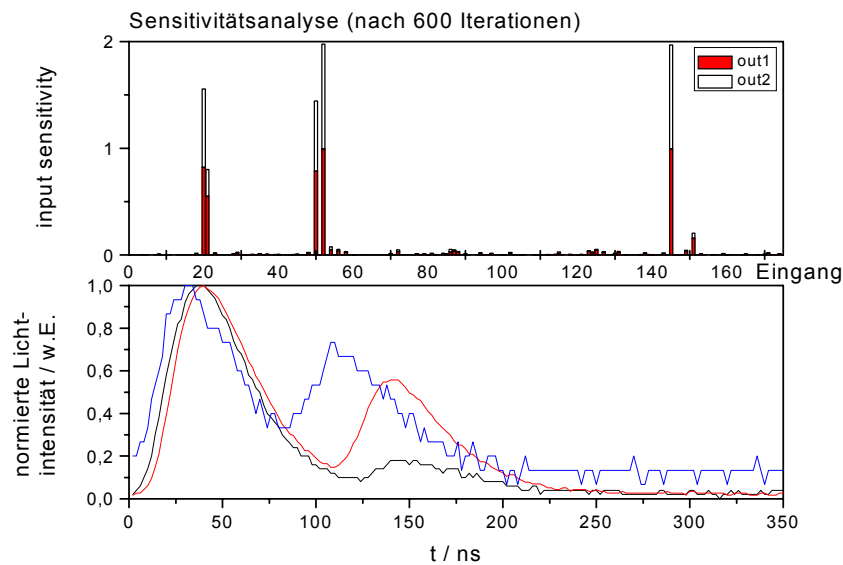


Abbildung 5.13: Darstellung der Sensitivitätsanalyse (oben) und dreier willkürlich gewählter Szintillationspulse (unten).

### Ergebnisse

Beim Betrachten der Ausgabewerte für die einzelnen Pulse im Test- und Trainingsdatensatz zeigt sich, dass diese nahezu alle nahe Null oder Eins sind. Eine Bestimmung eines Schwellwertes (Gates) wie in Abbildung 5.6 ist deshalb verzichtbar; dieser wird großzügig mit 0.8 für den ersten Ausgang gewählt.

Ein Beispiel für ein aus den Pulsen berechnetes Online-Spektrum ist für die letzte Messung des SISAK-Experimentes vom 18. Februar 2000 in Abbildung 5.14 gegeben. Es ist deutlich zu sehen, dass schon bei einem Ausgabewert von 0.1 fast alle Ereignisse oberhalb 9 MeV aus dem Spektrum eliminiert werden. Ebenso wird der niederenergetische Peak größtenteils eliminiert. Das zeigt, dass das hier verwendete neuronale Netz offensichtlich pile ups und Spaltfragmente richtig klassifiziert. In der unteren Abbildung sind noch einmal das Originalspektrum und die beiden Spektren, in denen nur Ereignisse mit einem Ausgabewert größer 0.6 bzw. 0.8 enthalten sind, dargestellt. Letztere sind fast deckungsgleich, was zeigt, dass die in diesem Energiebereich vorkommenden Untergrundereignisse sicher erkannt wurden.

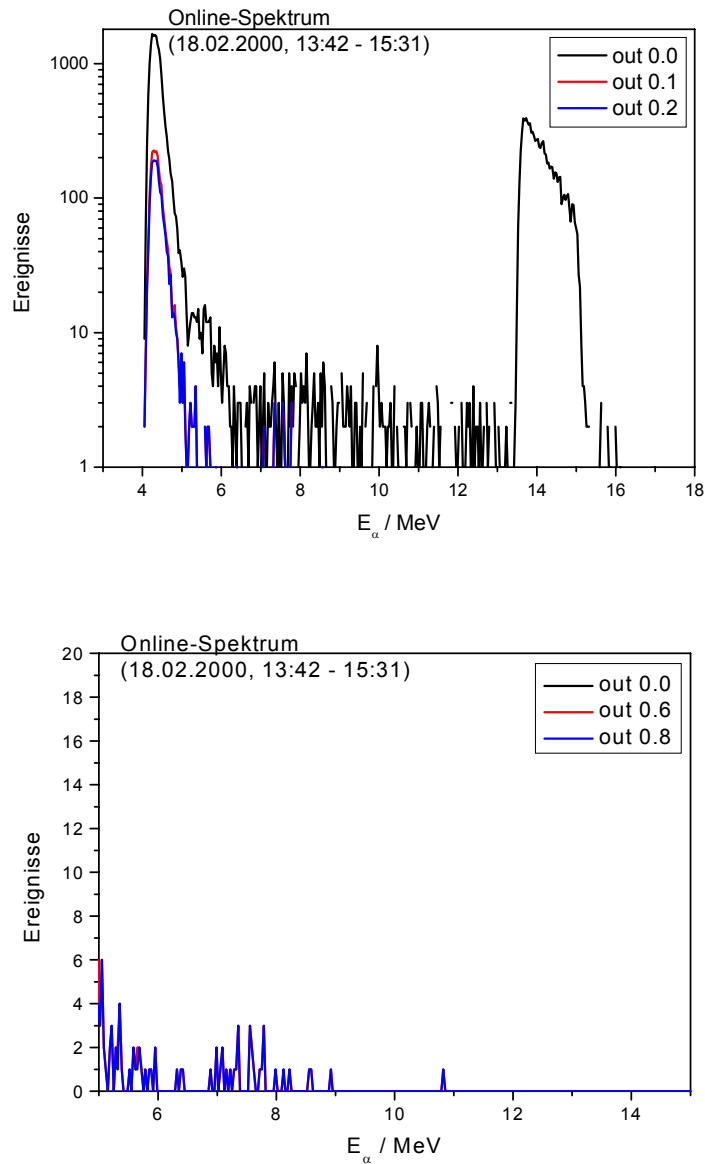


Abbildung 5.14: Online-Spektrum in Abhängigkeit vom Ausgabewert (output) des neuronalen Netzes

Die Tabelle 5.2 zeigt die Leistungsfähigkeit des verwendeten Netzes. Im Vergleich zu dem vorher besprochenen neuronalen Netz ist die relative Zahl der entfernten Pulse etwas kleiner (Tabelle 5.1). Dies ist aber in erster Linie auf das „interne Energiefenster“ jenes Netzes zurückzuführen, das den niederenergetischen Peak vollständig aus dem Spektrum entfernt hat.

| Pulse im Spektrum | output     | aus dem Spektrum entfernte Pulse |               |
|-------------------|------------|----------------------------------|---------------|
| 27000             |            |                                  |               |
| 2048              | 0.2        | 24952                            | 92.4 %        |
| 1695              | 0.4        | 25305                            | 93.7 %        |
| 1420              | 0.6        | 25580                            | 94.7 %        |
| <b>1131</b>       | <b>0.8</b> | <b>25869</b>                     | <b>95.8 %</b> |
| 925               | 0.9        | 26075                            | 96.6 %        |

*Tabelle 5.2: Zahl der aus dem Online-Spektrum (17./18.02.2000, 13:42-15:31 Uhr) entfernten Pulse in Abhängigkeit vom Ausgabewert*

Was das hier verwendete Netz leistet, wird deutlicher, wenn ein Ausschnitt des Spektrums neu berechnet wird (Abbildung 5.15). In der oberen Abbildung ist das reine Spektrum mit allen Ereignissen zu sehen, in der unteren Abbildung sind nur die Ereignisse zu erkennen, für die das neuronale Netz Ausgabewerte größer 0.8 berechnet hat. Das untere Spektrum enthält nur noch  $\alpha$ -Pulse, eine Nachbearbeitung mit dem Programm *AcqirisResultExtractor* ist nicht mehr notwendig.

In gleicher Weise wurden alle Messungen des SISAK-Experiments ausgewertet. Bei der Auswertung traten zwei Probleme zu Tage. Das erste Problem betraf die interne Uhr des Transientenrecorders. Die Zeitinformation zu den einzelnen Pulsen wird aus zwei 32 Bit-Variablen (*timeStampHi* und *timeStampLo*) zusammengesetzt. Allerdings läuft die Variable *timeStampHi* bei 16384 ( $2^{14}$ ) über. Das führt dazu, dass nach rund 69 Sekunden die interne Uhr wieder bei Null anfängt zu zählen. Der Grund dieses Fehlers ist nicht bekannt. Es konnte aber durch Messungen mit einem Pulser ermittelt werden, dass bei dem Überlauf lediglich die Uhr zurückgesetzt wird und wahrscheinlich keine Ereignisse durch einen Ausfall des Timers verloren gehen. Allerdings müssen unter Umständen die Zeitangaben der einzelnen Pulse korrigiert werden. Es scheint auch, dass die Uhren des Transientenrecorders und des GOOSY-Messsystems während des Experiments nicht vollständig synchron liefen.

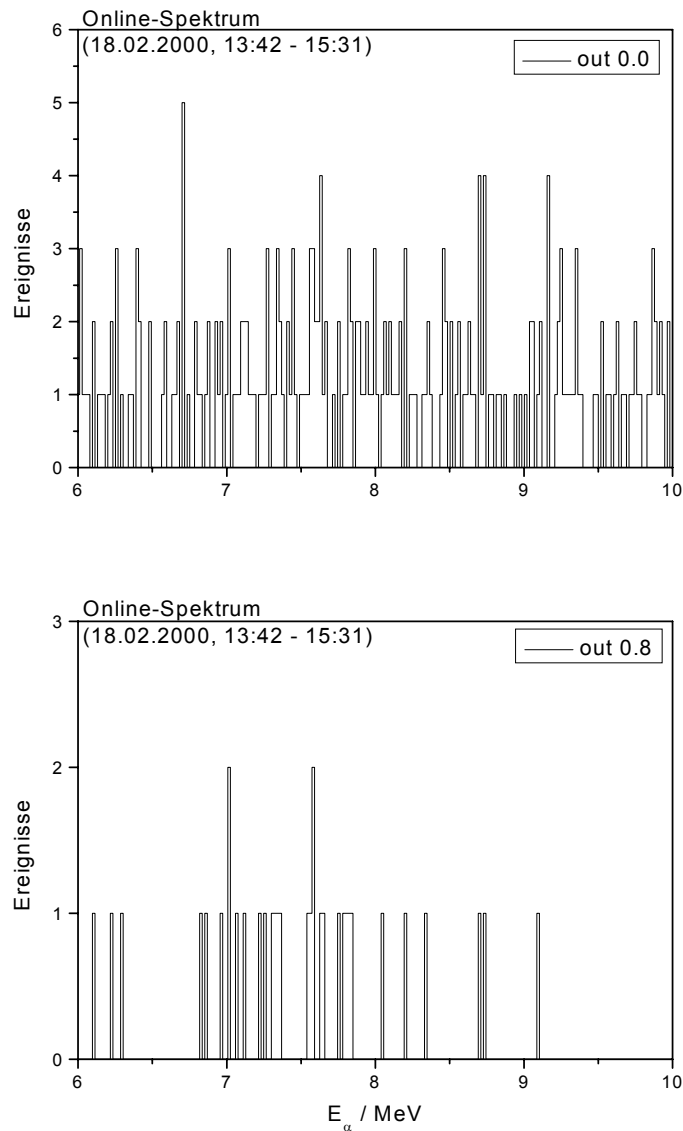


Abbildung 5.15: Neu berechneter Ausschnitt aus dem Online-Spektrum. Dargestellt sind alle Ereignisse (oben) und nur die Ereignisse, die vom neuronalen Netz einen output  $\geq 0.8$  erhalten haben (unten).

Ein zweites Problem betrifft die Energiekalibration. Die Information über die Energie eines Pulses liegt in der Fläche unter dem Puls. Durch Integration, numerisch also ein Aufaddieren aller Datenpunkte, wird der Flächeninhalt ermittelt. Allerdings wird die Integration in den benutzten Programmen unterschiedlich gelöst. Beim *AcqirisDigitizer* werden alle 500 Punkte eines Pulses addiert. Der *AcqirisEvaluator* dagegen addiert nur vom Startpunkt bis zum Endpunkt eines Pulses, maximal jedoch 175 Punkte. Daraus ergibt sich eine Verschiebung der Energiekalibration zwischen der Auswertung von Eberhardt (Kapitel 5.2) und der hier beschriebenen um etwa 0.3 bis 1 MeV, je nach verwendeten Kalibrationsdaten.

Unter Berücksichtigung dieser beiden Punkte wurden die Daten ausgewertet. Für ein Energiefenster von  $E_\alpha = 7.7\dots 8.8$  MeV für die Rf- und No-Ereignisse wurden 36 Single- $\alpha$ -Events gefunden. Davon haben zehn Ereignisse die Messzelle geschlossen, also in den Tochtermodus geschaltet. Fünf Ereignisse wurden registriert, als die Messzelle wieder geöffnet wurde. 12 Ereignisse wurden bei geschlossener und 9 Ereignisse bei geöffneter Messzelle registriert.

Es gibt dabei zwei korrelierte Ereignisse, also Ereignisse, bei denen das erste die Messzelle geschlossen hat und das zweite im Tochtermodus beobachtet wurde. Bei der ersten Korrelation hat das Starterereignis eine Energie von 8.64 MeV, dem nach 4.8 s das zweite Ereignis mit 8.11 MeV folgt. Bei der zweiten Korrelation folgt auf das erste Ereignis mit 8.7 MeV nach 5.2 s ein zweites mit 8.09 MeV. Beide Korrelationen wurden im ersten Teil des Experiments registriert, also bei der Extraktion mit 0.25 M DBP. Diese beiden Korrelationen finden sich nicht in den Ergebnissen von Eberhardt [Eberhardt01]. Von den von Eberhardt angegebenen 10 Korrelationen findet sich in den Daten nur eine. Allerdings handelt es sich dabei um eine, bei der nach dem ersten Ereignis die Messzelle erst noch einige Sekunden geöffnet blieb. Das zweite Ereignis wurde bei geschlossener Messzelle registriert. Von den anderen Korrelationen wurden lediglich 6 Single-Ereignisse wiedergefunden. Diese Abweichungen dürften in erster Linie auf die Probleme mit der Energiekalibration und die fehlerhafte Uhr des Transientenrecorders zurückzuführen sein.

Wegen der Unklarheiten über die chemische Ausbeute des Experiments erscheint es jedoch wenig sinnvoll, aus diesen beiden  $\alpha$ - $\alpha$ -Korrelationen Aussagen über die Chemie des Rutherfordiums gewinnen zu wollen. Allerdings zeigt das Ergebnis, dass es prinzipiell möglich ist, mit einem Transientenrecorder und einer automatischen Pulsformdiskriminierung lediglich von  $\alpha$ -Teilchen verursachte Szintillationspulse aus den Daten herauszufiltern.

### 5.3.8 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Analyse des SISAK-Experiment vom Februar 2000 am Paul-Scherrer-Institut mit Hilfe einer neu entwickelten Methode zur Pulsformdiskriminierung vorgestellt. Diese Methode beruht auf der digitalen Aufnahme von Szintillationspulsen und der Verwendung von künstlichen neuronalen Netzen. Es wurde dargestellt, wie geeignete neuronale Netze gefunden wurden und welche Parameter einen Einfluss auf das Lernverhalten der Netze haben. Eine besondere Rolle spielt der Trainingsdatensatz, dessen Zusammensetzung sich maßgeblich auf die Erkennung der verschiedenen Pulsformen auswirkt.

Das entwickelte System auf der Basis neuronaler Netze ist geeignet, Untergrundereignisse, die hauptsächlich auf pile ups und Spaltsignale zurückgehen, zu unterdrücken und dadurch nahezu untergrundfreie  $\alpha$ -LSC-Spektren zu erhalten. Damit ist gezeigt, dass künstliche neuronale Netze zur zuverlässigen Pulsformdiskriminierung in der Flüssigszintillationsspektroskopie eingesetzt werden können. Obwohl hier die  $\alpha$ -Spektroskopie im Vorder-



grund stand, kann das Verfahren der Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen (PSD-NN) genauso gut auch zum Herausfiltern anderer Signalformen genutzt werden. Das eröffnet generell neue Möglichkeiten der low level-Messung mit Hilfe der LSC, besonders bei Untersuchungen zur Umweltradioaktivität.

Eine andere Methode zur Untergrundreduktion, die auf der Abtrennung der Begleitprodukte von Transactiniden-Reaktionen durch Vorseparatoren beruht, ist in Kapitel 6 dargestellt.

## 5.4 Weitergehende Betrachtungen

### 5.4.1 Parametrisierung der Pulse

Die Methode der Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen ist zwar außerordentlich leistungsfähig, hat aber auch einige Nachteile. Sie ist auf Szintillationspulse als Trainingsdaten angewiesen, die erst einmal generiert werden müssen. Da die Form der Pulse von der Zerfallscharakteristik der Nuklide, vom Szintillator und zuweilen nachgeschalteter Messelektronik abhängig ist, muss im Prinzip bei jeder Änderung der Einstellungen einer Messung ein neuronales Netz erstellt und trainiert werden. Das kann unter Umständen sehr zeit- und aufwendig sein.

Die Methode ist eine empirische Methode, da sie lediglich vorhandene Informationen nutzt, nämlich die über die Pulsform. Das ist nicht unbedingt ein Nachteil, wenn es nur darum geht, einzelne Signalformen herauszufiltern. Aber gerade bei pile ups könnte es von Interesse sein herauszufinden, von welchen Signalen sie verursacht werden und welche Energieinformation die einzelnen Signale eines pile ups tragen (siehe auch Kapitel 6.1.4). Dazu müssten aber Pulsformen analytisch beschrieben werden können. In der Literatur gibt es bis jetzt aber noch keine Hinweise auf derartige Verfahren. Das liegt vermutlich am fehlenden Verständnis aller Prozesse, die zur Entstehung von Szintillationspulsen führen.

Einen Ausweg könnten halbempirische Verfahren wie zum Beispiel Monte Carlo-Simulationen bieten. Mit ihnen ließen sich die einzelnen Prozesse modellieren. Eine plausible erscheinende Vorgehensweise bestünde in der Zerlegung des Szintillationsprozesses in einzelne Teilschritte. Der erste Teilschritt wäre die Betrachtung des der Emission eines Teilchens in den Szintillator nachfolgenden Geschehens. Mit Hilfe empirischer Formeln kann man die Reichweite eines Teilchens im Szintillator abschätzen. Daraus folgt die Abschätzung der pro Weglänge übertragenen Energie, im einfachsten Fall durch die Annahme eines linearen Energietransfers. Dies ermöglicht die Abschätzung der Zahl der unmittelbar angeregten Szintillatormoleküle sowie davon ausgehend die Abschätzung der Zahl der vom Schwingungsgrundzustand in höhere Schwingungszustände angeregten Moleküle. Dieser Betrachtung wäre noch eine zeitliche Dimension zu Grunde zu legen, um überhaupt die zeitliche

Struktur eines Szintillationspulses nachbilden zu können. Die Einführung des Parameters Zeit kann zum Beispiel dadurch erfolgen, dass man annimmt, dass sich das Teilchen zunächst mit konstanter Geschwindigkeit durch den Szintillator bewegt. Dann würde man entlang der Spur des Teilchens äquidistante Wegabschnitte betrachten, die gleich großen Zeitintervallen entsprechen.

Der zweite Schritt besteht in der Betrachtung der Energieübertragung im Szintillator. Einen Ansatzpunkt bieten dafür die Arbeiten von Aupiais, bei denen mit Hilfe der Fluoreszenzmessungen zugänglichen Größen und einem formalkinetischen Ansatz die Population von Singulett- und Tripletzuständen und die Energieübertragung in einem Szintillator beschrieben wird [Aupiais01].

Bei einer derartigen Modellierung müssen zusätzlich noch eventuelle Störungen wie Quenchvorgänge im Szintillator berücksichtigt werden. Auch wird sich zeigen, ob die oben beschriebene Annahme linearer Vorgänge der physikalischen Wirklichkeit ausreichend nahe kommt. Eine Modellierung würde die Möglichkeit eröffnen, die verschiedenen Pulsformen zu parametrisieren und auf diese Weise ein Standardverfahren zur Auswertung digital gemessener Szintillationspulse zu entwickeln.

#### 5.4.2 Kernspektroskopie mit der LSC

Eine neuartige Anwendung der LSC ist mit der digitalen Pulsaufnahme möglich, nämlich die Gewinnung kernspektroskopischer Daten. Pile ups sind oft auf koinzidente Kernübergänge zurückzuführen. Wenn diese Übergänge mit Zeiten im Bereich von Nanosekunden stattfinden, kann ein pile up soweit aufgelöst werden, dass die Peaks der beiden verursachenden Teilchen separiert sind. Das ermöglicht es, die Lebensdauern angeregter Zustände zu bestimmen und sich somit das bisher als Nachteil der LSC besprochene Auftreten von pile ups zu Nutze zu machen.

Ein Beispiel aus einer Messung mit  $^{241}\text{Am}$  ist in Abbildung 5.16 gegeben.  $^{241}\text{Am}$  kann durch einen  $\alpha$ -Zerfall in das  $5/2^-$ -Niveau des  $^{237}\text{Np}$  übergehen, das eine Lebensdauer von 67 ns hat. Dieser korrelierte  $\alpha$ - $\gamma$ -Zerfall produziert in einem Szintillator entsprechende pile ups. Einige Tausend dieser pile ups wurden mit einem Speicheroszilloskop gemessen [Wiehl02]. Aus dem Abstand der beiden Peaks im pile up lässt sich eine Zeitdifferenz  $\Delta t$  bestimmen. Die Häufigkeit von pile ups mit einem bestimmten  $\Delta t$  kann gegen  $\Delta t$  aufgetragen werden. Es ergibt sich eine Häufigkeitsverteilung, aus der unter Anpassung eines exponentiellen Zeitgesetzes die Lebensdauer des angeregten Zustands bestimmt werden kann. In diesem Beispiel ergibt sich tatsächlich eine Lebensdauer von 67 ns (Abbildung 5.16).

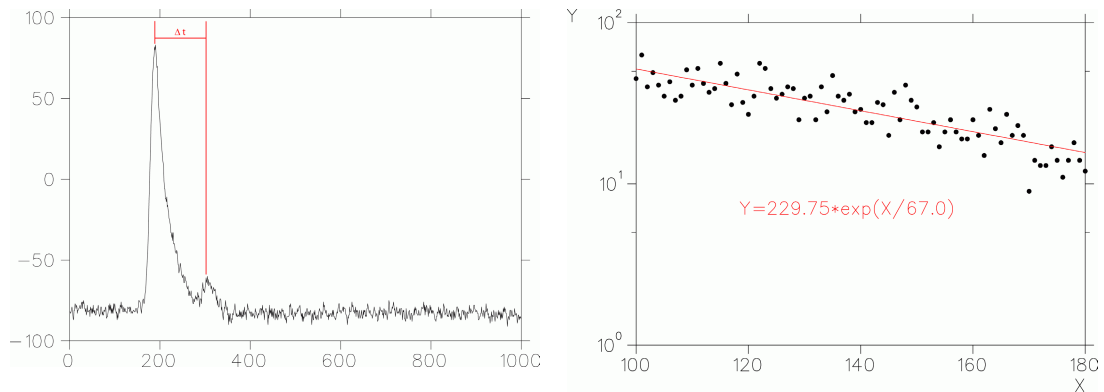


Abbildung 5.16: Pile up aus dem Zerfall von  $^{241}\text{Am}$  (links); Bestimmung der Lebensdauer des angeregten Zustands aus einer Häufigkeitsverteilung (rechts). Aufgetragen ist die Häufigkeit der pile ups mit einem bestimmten  $\Delta t$  gegen  $\Delta t$  in ns [Wiehl02].

Diese Methode ist viel versprechend, weil durch sie bisher nicht bekannte Daten über die Zerfallseigenschaften von Nukliden bestimmt werden können. Beispielsweise ließe sich so Aufklärung über das komplexe Zerfallsschema von  $^{258}\text{Db}$  schaffen (Kapitel 6.1.4). Genauso wäre denkbar, aus der Peakfläche der pile ups eine Energieinformation zu extrahieren unter der Annahme, dass es sich um einen  $\gamma$ -Übergang oder um Konversionselektronen handelt. Diese Kombination von LSC und digitaler Pulsformanalyse ermöglicht Kernspektroskopie bei kleinsten Zählraten, was dieses Messsystem gegenüber den sonst in der Energieauflösung überlegenen Halbleiterzählern auszeichnet.

## 6. Weitere SISAK-Experimente

### 6.1 Die SISAK-Experimente vom November/Dezember 2000 und März 2001

Mehrere SISAK-Experimente fanden in der Zeit von November 2000 bis März 2001 am Lawrence Berkeley National Laboratory in Berkeley statt. Es wurden Extraktionsexperimente mit  $^{257}\text{Rf}$  und  $^{258}\text{Db}$ , die über die Reaktionen  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti},1n)^{257}\text{Rf}$  und  $^{208}\text{Pb}(^{51}\text{V},1n)^{258}\text{Db}$  produziert wurden, durchgeführt [Omtvedt02a]. Die Produkte der Kernreaktion wurden mit Hilfe des Berkeley Gas-Filled Separator (BGS) getrennt. Beim BGS werden die gebildeten Produktkerne in einem Magnetfeld entsprechend ihrer Masse und Ladung abgelenkt, nachdem sie durch Stöße mit den Molekülen des Füllgases einen durchschnittlichen Ladungszustand erreicht haben. Auf diese Weise können sehr effektiv schwere Ionen von ihren Begleitprodukten abgetrennt werden, der BGS wirkt also als Vorseparator. Die Ionen werden dann mit Hilfe einer Recoil Transfer Chamber (RTC) zum KCl-Gasjet transportiert und stehen damit für chemische Experimente zur Verfügung. Die RTC ist notwendig, um den bei etwa 1 mbar betriebenen BGS mit dem bei etwa 2 bar betriebenen Gasjet zu koppeln.

#### 6.1.1 Direkter Nachweis von Rf

In ersten Tests konnte das Funktionieren der Abtrennung von  $^{257}\text{Rf}$  mit dem BGS gezeigt werden und wurde die Zahl der vor der RTC detektierbaren Rf-Ereignisse bestimmt. Weiterhin wurden mit Durchbruchmessungen Transportzeiten für das SISAK-System ermittelt. Derartige Aussagen sind von Interesse, da mit ihnen abgeschätzt werden kann, wie viele Atome auf dem Weg zu den Detektoren zerfallen (*decay loss*). Die Transportzeit ist in erster Linie abhängig vom Gasfluss im Gasjet, der Aufenthaltsdauer in den Zentrifugen und den Detektoren, der Flussgeschwindigkeit der flüssigen Phasen sowie den Kapillaren zwischen den einzelnen Teilen. Für SISAK wurde zur Modellierung der Transportzeiten SimSISAK, ein Computercode auf der Basis von Monte Carlo-Simulationen, entwickelt, in den die Ergebnisse derartiger Experimente eingehen [Skarnemark02b].

In einem einfachen Experiment wurden dann die vom Gasjet gelieferten KCl-Cluster im Mischer im Szintillator gelöst („Szintillatorexperiment“). Nach dem Entgasen wurde die Szintillatorlösung direkt zum Detektor (es wurde nur einer der drei verfügbaren Detektoren benutzt) geleitet (Abbildung 6.1).

In 31.3 Stunden wurden 37 Korrelationen beobachtet. Mit SimSISAK wurde der *decay loss* zu 73.8 % bestimmt. Damit gelang es erstmals, mit dem SISAK-Detektionssystem Rf eindeutig nachzuweisen.

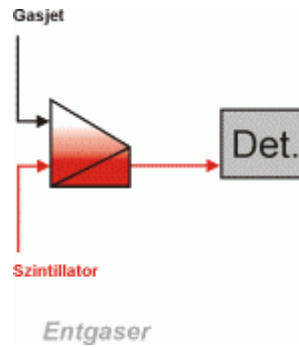


Abbildung 6.1: SISAK-Aufbau beim direkten Nachweis von  $^{257}\text{Rf}$

### 6.1.2 DBP-Experiment mit Rf

In einem nächsten Experiment wurde mit dem bekannten Trennungsgang Rf in 0.25 M DBP/Toluol extrahiert. Das Schema der Trennung ist dasselbe wie in Abbildung 4.1. Es wurden drei Detektoren genutzt.

In 17.8 Stunden wurden fünf Korrelationen beobachtet. Es wurde ein *decay loss* von 91.0 % berechnet. Daraus wurde ein Verteilungskoeffizient von  $8.5_{-7.5}^{+\infty}$  ermittelt. Die Extraktionsausbeute ist dann  $90_{-30}^{+10}$  %. Der Verteilungskoeffizient hat die gleiche Größenordnung wie die Verteilungskoeffizienten von Hf und Zr, die in online-Experimenten ermittelt wurden. Wegen des großen Fehlers des Rf-Verteilungskoeffizienten machen differenzierende Aussagen über das Extraktionsverhalten der drei Elemente wenig Sinn. Es konnte aber gezeigt werden, dass sich die drei Elemente im DBP-System chemisch ähnlich verhalten oder anders gesagt, dass sich Rf wie ein typisches Gruppe 4-Element verhält.

### 6.1.3 TOA-Experiment mit Rf

Es wurde weiterhin in einem Experiment eine neue Trennung für Rf erprobt [Omtvedt01]. Das Trennschema ist in Abbildung 6.2 gegeben.

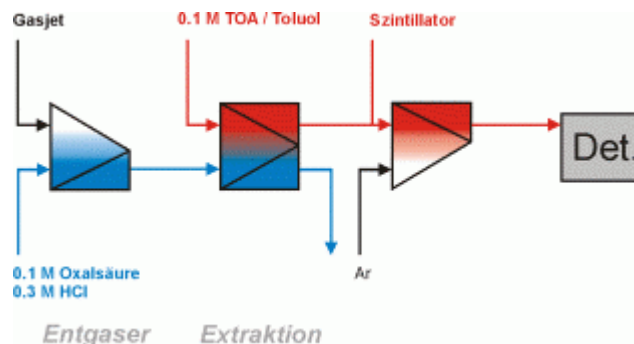


Abbildung 6.2: Schema der Abtrennung von Rf durch Extraktion mit TOA

Die Extraktion des Rf erfolgte aus einer Oxalsäure-Lösung mit n-Trioctylamin in die organische Phase, wobei das Rf als Oxalat-Komplex vorliegen dürfte. Durch den Verzicht auf einen Waschschrift konnte die Transportzeit vom Entgaser zu den Detektoren im Vergleich zum DBP-Experiment um 1.5 s verkürzt werden, wodurch der *decay loss* reduziert werden konnte. In 20.1 Stunden Experiment wurden 7 Korrelationen beobachtet, woraus ein Verteilungskoeffizient von 2.4 und eine Extraktionsausbeute von 71 % berechnet wurden. Dieser Wert liegt um eine Größenordnung niedriger als die online gemessenen Verteilungskoeffizienten der Homologen Zr und Hf. Dieser überraschende Befund bedarf weiterer Untersuchungen.

#### 6.1.4 Weitere Experimente

In weiteren Experimenten, die hier nicht näher besprochen werden sollen, wurden verschiedene Parameter des SISAK-Systems untersucht, die einen Einfluss auf die Detektion von  $^{257}\text{Rf}$  haben könnten [Omtvedt02b]. Im Wesentlichen betraf das mögliche Optimierungen und das Studium der Zerfallseigenschaften des  $^{257}\text{Rf}$  und seiner Zerfallsprodukte. Letzteres ist für Aussagen zur Statistik bedeutsam, da so die Fehler der Messwerte reduziert werden können.

Es wurde auch die Detektion von  $^{258}\text{Db}$  getestet. Hier stieß aber das herkömmliche Detektionssystem mit analoger Elektronik an seine Grenzen. Grund ist das Auftreten von koinzidenten  $\alpha/e$ -Ereignissen (*alpha electron coincidence summing*). Dieses *coincidence summing* ist ein Effekt, bei dem ein korrelierter  $\alpha/\text{EC}$ - oder  $\alpha/\beta$ -Übergang innerhalb so kurzer Zeit erfolgt, dass er nicht vom Detektor bzw. der Messelektronik aufgelöst werden kann und folglich als einzelnes Ereignis detektiert wird. Das Ergebnis ist ein Summenereignis (im Prinzip also ein pile up), das im Energiespektrum zu höheren Energien hin verschoben ist. Im Falle des  $^{258}\text{Db}$  sind diese Ereignisse auf dessen komplexes Zerfallsschema zurückzuführen [Stavsetra01]. Hier könnte eine digitale Aufnahme der Szintillationspulse für Aufklärung sorgen.

#### 6.1.5 Zusammenfassung

Dank zahlreicher, kontinuierlicher Detailänderungen am SISAK-System wurde es möglich, erstmals mit Hilfe der Flüssigszintillationsspektroskopie Rutherfordium nachzuweisen und erste Experimente zur Chemie des Rutherfordiums durchzuführen. Damit ergänzt SISAK die bisherigen Methoden der Transactinidenchemie um ein kontinuierliches Verfahren zur Untersuchung der chemischen Eigenschaften von Transactiniden in flüssiger Phase. Möglich wurde dies vor allem durch den Einsatz des Berkeley Gas-Filled Separators (BGS) als Vorseparator zur fast vollständigen Unterdrückung von Untergrundereignissen.

Der Einsatz des BGS als Vorseparator ist allerdings in erster Linie auf Produktkerne von kalten Fusionsreaktionen beschränkt. Der gebildete Rückstoßkern braucht eine gewisse Energie, um überhaupt das Fenster der Recoil Transfer Chamber (RTC) zu durchdringen. Damit scheiden zahlreiche Reaktionen mit hohen Wirkungsquerschnitten zur Produktion

der Elemente 105 bis 107 von vornherein aus. Inwieweit neu zu entwickelnde Separatoren Abhilfe schaffen können, ist derzeit unklar. Ohne eine derartige Vorseparation dürfte auf absehbare Zeit als einzige Möglichkeit zur Bekämpfung der Flut von Untergründereignissen die digitale Aufnahme und online-Evaluierung von Szintillationspulsen übrig bleiben.

Ein weiteres Problem stellt das Verfahren zur Bestimmung der Verteilungskoeffizienten dar. Da die Aktivität der wässrigen Phase nicht direkt gemessen wird, muss die Verteilung der Rf-Ereignisse zwischen organischer und wässriger Phase abgeschätzt werden. Das bedingt große Fehler und erlaubt es nicht, mehr als qualitative Aussagen über das Extraktionsverhalten von Rf im Vergleich zu den Homologen Zr und Hf zu treffen. Einen Ausweg böte die Verwendung von wasserlöslichen Szintillatoren. Allerdings weisen die bisher bekannten, kommerziell erhältlichen Szintillatoren eine schlechte Energieauflösung auf. Möglicherweise brächte ein neu zu entwickelnder Szintillatorcocktail Verbesserungen.

Auf dem derzeitigen Stand ist das SISAK-System in der Lage, wichtige neue Erkenntnisse zur Chemie der Transactiniden zu produzieren. Durch die Erweiterung des Detektionssystems um eine digitale Aufnahme können zudem zusätzliche Daten zu den Zerfallseigenschaften von Transactinidenisotopen generiert werden. Damit ist SISAK ein wichtiges Hilfsmittel in der Kernchemie der schwersten Elemente geworden.

## 6.2 MicroSISAK

Ein interessanter Ansatz bei der Weiterentwicklung von SISAK wird derzeit mit dem Versuch der Miniaturisierung von SISAK verfolgt [Eberhardt02]. Dass die Entwicklung eines „MicroSISAK“-Systems allein aus ökonomischen und ökologischen Gründen sinnvoll ist, mag eine vorsichtige Überschlagsrechnung zeigen. Wenn einen Tag lang ein Rf-Experiment betrieben wird, dann werden für den Extraktionsschritt (0.25 M DBP) bei einer Flussrate von  $0.5 \text{ ml s}^{-1}$  2.1 l DBP und 41.1 l Toluol benötigt. Wird der Szintillator ( $1.5 \text{ g l}^{-1}$  Dimethyl-POPOP, 25 Vol% 1-Methylnaphthalin,  $6 \text{ ml l}^{-1}$  TOA, Toluol) ebenfalls mit  $0.5 \text{ ml s}^{-1}$  eingespeist, ergeben sich 64.8 g Dimethyl-POPOP, 10.8 l 1-Methylnaphthalin, 32.4 l Toluol und 259 ml n-Trioctylamin. Das entspricht Kosten von mehreren Tausend Euro. Bei Experimenten mit Db, Sg, Bh oder Hs vervielfachen sich diese Kosten, weil die Produktionsraten für diese Elemente geringer sind und die Dauer der Experimente größer wird. Würde sich SISAK miniaturisieren lassen, könnten auf diese Weise auch die Kosten für die Chemikalien und die Abfallmengen um zwei bis drei Größenordnungen reduzieren lassen.

Eine Miniaturisierung böte noch einen weiteren wichtigen Vorteil. Wegen der geringen Flüssigkeitsmenge lassen sich die Proben ohne Weiteres eindampfen und mit Hilfe von Halbleitendetektoren anstelle der LSC messen. Auf diese Weise lassen sich die Aktivitäten der beiden Phasen direkt ermitteln und genaue Verteilungskoeffizienten berechnen. Allerdings verlöre

man bei dieser Art der Detektion den großen Vorteil, mit SISAK auch Nuklide mit Halbwertszeiten von wenigen Sekunden messen zu können, da ähnlich wie bei ARCA-Experimenten das Eindampfen viel Zeit in Anspruch nähme.

Bei der angestrebten Miniaturisierung zeichnen sich einige grundsätzliche technische Probleme ab. Wie kann zum Beispiel der He/KCl-Gasjet mit dem MicroSISAK-System gekoppelt werden? Beim Übergang von einem Gasstrom mit einer Flussrate von einigen  $\text{ml s}^{-1}$  in ein mit Flussraten von einigen  $\mu\text{l s}^{-1}$  laufendes System muss das Transportgas vollständig entfernt werden, möglichst ohne dass dabei Reaktionsprodukte verloren gehen. Ein weiteres aktuelles Problem ist, wie die einzelnen Bestandteile des SISAK-Systems im kleinen Maßstab nachgebildet werden können. Bei Flussraten von 10 bis  $100 \mu\text{l s}^{-1}$  ist die herkömmliche Zentrifugentechnik an ihren Grenzen angelangt. Es müssen also neue Bauteile entwickelt werden, die die einzelnen Schritte einer SISAK-Prozedur übertragbar machen. Eberhardt et al. geben das Beispiel eines vom Institut für Mikrotechnik Mainz entwickelten Mikromischers, der auf seine Fähigkeit zur Phasentrennung getestet wurde [Eberhardt02]. Erste Ergebnisse bei der Gestaltung einer Filterapparatur zur Trennung von organischer und wässriger Phase mit Hilfe entsprechender Filter sind viel versprechend [Zeimentz02].



## 7. Zur Reaktion von Dimethyl-POPOP mit $\text{HNO}_3$

Beim einem früheren SISA-Experiment kam es zu Störungen, die mehrfach zu einer Unterbrechung des Experimentes zwangen. Verursacht wurden diese Störungen durch eine Gelbfärbung der Lösung bzw. das Ausfallen eines gelben Feststoffs in den Kapillaren der Detektionseinheit. Die Kapillaren verstopften und mussten zunächst gereinigt werden, bevor das Experiment fortgesetzt werden konnte. Es lag nahe zu vermuten, dass die Störung im Zusammenhang mit dem verwendeten Szintillator Dimethyl-POPOP stand.

Das Schema zur Abtrennung von Rutherfordium ist im Prinzip dasselbe wie bei den in Kapitel 4-6 beschriebenen Experimenten. Allerdings wurde im Waschschrift noch 1-2 M  $\text{HNO}_3$  verwendet.

Ausgangspunkt für die nachfolgend beschriebenen Untersuchungen war die Annahme, dass der Szintillator von nicht vollständig abgetrennter Salpetersäure angegriffen wurde. Bei Untersuchungen mit Hilfe der UV/VIS-Spektroskopie lässt sich verfolgen, dass bei der Reaktion von Dimethyl-POPOP in Toluol mit konzentrierter  $\text{HNO}_3$  bzw.  $\text{HCl}$  zuerst eine Gelbfärbung der Lösung (Farbquenching) auftritt (Abbildung 7.1), bevor nach Zugabe weiterer Säure ein gelber Feststoff ausfällt. In Gegenwart eines Überschusses von n-Trioctylamin (TOA) erfolgen diese Reaktionen nicht. Gibt man TOA jedoch erst nach dem Ausfällen zu, so löst sich der mit  $\text{HCl}$  gebildete Niederschlag unter Rückbildung des Dimethyl-POPOP, während das  $\text{HNO}_3$ -Addukt trotz des TOA-Überschusses in der Lösung nur zu einem Teil zurückgebildet wird. Letzteres ist mit TOA auch in einer Reihe anderer gängiger Lösungsmittel nicht wieder in Lösung zu bringen.

Eine Elementaranalyse des  $\text{HNO}_3$ -Adduktes lässt eine relativ starke Zunahme des Gehalts an Stickstoff und Sauerstoff in der entstandenen Verbindung erkennen (Tabelle 7.1). Formal ließe sich für ein postuliertes Addukt Dimethyl-POPOP  $\cdot$  4  $\text{HNO}_3$  eine Übereinstimmung erkennen (C 48.5 %, H 3.8 %, N 13.0 %, O 34.8 %).

|   | <b>C</b> | <b>H</b> | <b>N</b> | <b>O</b> |
|---|----------|----------|----------|----------|
| <b><math>\text{HNO}_3</math>-Addukt</b> | 48.24 %  | 4.26 %   | 12.25 %  | 35.25 %  |
| <b>Dimethyl-POPOP</b>                   | 78.45 %  | 5.74 %   | 7.0 %    | 8.81 %   |

Tabelle 7.1: Elementaranalyse von Dimethyl-POPOP und dem  $\text{HNO}_3$ -Addukt

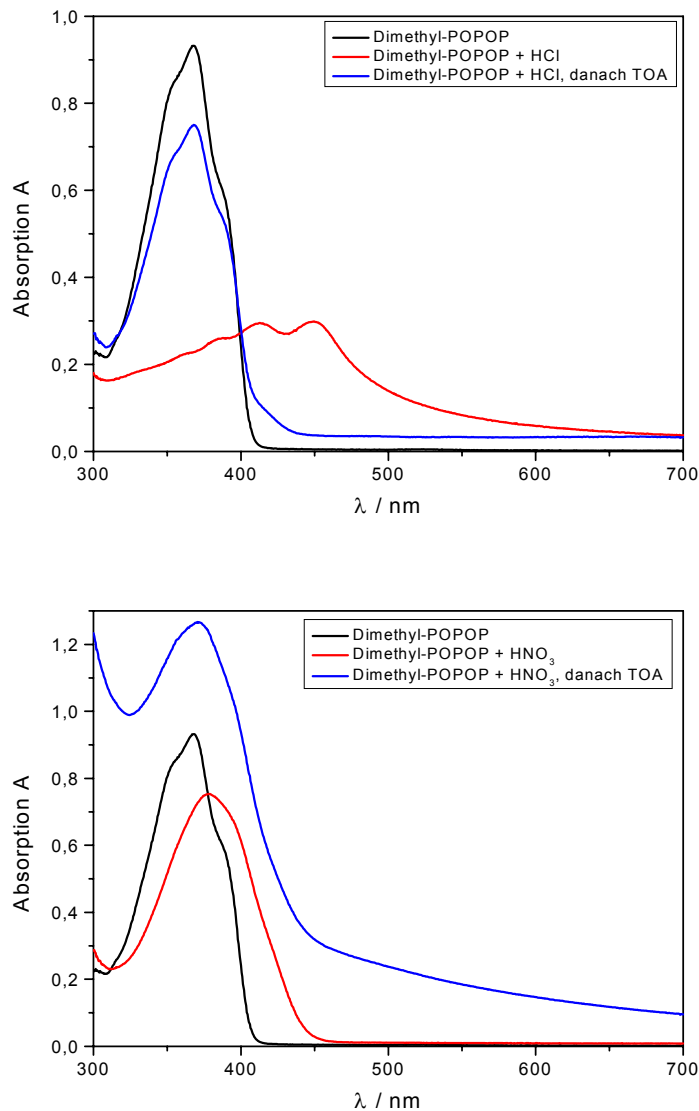


Abbildung 7.1: oben: UV/VIS-Spektren von Dimethyl-POPOP in Toluol (schwarz), nach Reaktion mit HCl (rot) und dann nach Zugabe von TOA (blau). unten: UV/VIS-Spektren von Dimethyl-POPOP in Toluol (schwarz), nach Reaktion mit HNO<sub>3</sub> (rot) und dann nach Zugabe von TOA (blau)

Das IR-Spektrum des HNO<sub>3</sub>-Addukts zeigt Banden, die auf Nitrogruppen bzw. Nitrat-Ionen sowie auf Alkohole hindeuten.

Am Max-Planck-Institut für Polymerforschung Mainz wurden Festkörper-NMR-Spektren aufgenommen. Die <sup>13</sup>C-NMR-Spektren zeigen eine Veränderung der chemischen Verschiebungen der dem Sauerstoff benachbarten Sauerstoffatome. Die zahlreichen Aromatensignale lassen sich dagegen nicht hinreichend auflösen (Abbildung 7.2).

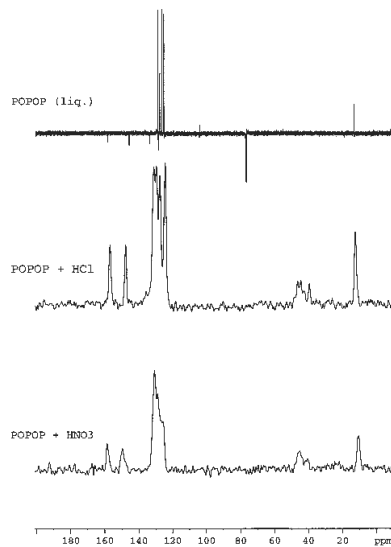


Abbildung 7.2:  $^{13}\text{C}$ -NMR-Spektren von Dimethyl-POPOP und dessen Säureaddukten

Im  $^1\text{H}$ -NMR-Spektrum des  $\text{HNO}_3$ -Addukts erscheint ein Signal bei ca. 16 ppm. Üblicherweise findet man in diesem Bereich Signale, die von Keto-Enol-Tautomerien herrühren (Abbildung 7.3).

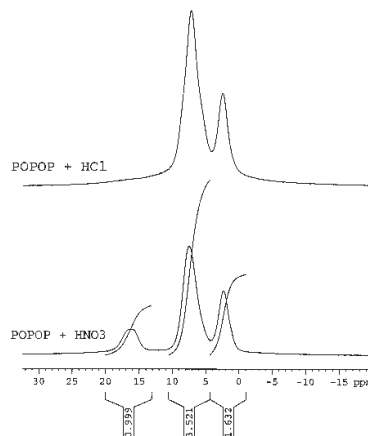


Abbildung 7.3:  $^1\text{H}$ -NMR-Festkörperspektren von Dimethyl-POPOP und dessen Säureaddukten

Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass sich im  $\text{HNO}_3$ -Addukt H-Brücken am Sauerstoffatom des Oxazolringes ausgebildet haben und möglicherweise ein Salz entstanden ist [Langrock99b]. Allerdings wurden die Untersuchungen zur Aufklärung des  $\text{HNO}_3$ -Addukts nicht weiter fortgeführt, da das SISAk-System in der Zwischenzeit modifiziert wurde. Im Waschschritt wird nun 2 M  $\text{NaNO}_3$ -Lösung verwendet und der Szintillatorlösung wenige ml TOA zum Abfangen überschüssiger Säure zugesetzt.

## 8. Suche nach ungewöhnlichen $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen im Zerfall des $^{210}\text{Fr}$

Wie schon in Kapitel 2 angedeutet, sind Aussagen über die Stabilität von Kernen und deren Deformation von großem Interesse, um daraus die Eigenschaften vorerst hypothetischer superschwerer Kerne und mögliche Produktionswege abzuleiten. Marinov et al. berichten in [Marinov96] über die Entdeckung eines stark beschleunigten  $\alpha$ -Zerfalls aus einem superdeformierten isomeren Zustand in  $^{210}\text{Fr}$ . Es seien 5.20 MeV  $\alpha$ -Teilchen in Koinzidenz mit  $\gamma$ -Übergängen beobachtet worden, die einer superdeformierten Rotationsbande zugeordnet werden könnten. Dieser  $\alpha$ -Zerfall hätte eine um etwa fünf Größenordnungen erhöhte Zerfallswahrscheinlichkeit, was dem herkömmlichen Verständnis des  $\alpha$ -Zerfalls nach der Gamov-Theorie widerspräche. Er wird von Marinov et al. als Emission eines  $\alpha$ -Teilchens aus der Spitze eines superdeformierten Kernes erklärt, wodurch die zu tunnelnde Coulombbarriere kleiner wäre.

### 8.1 Ursprüngliches Experiment

Marinov et al. bestrahlten  $900 \mu\text{g cm}^{-2}$  Au-Targets, gefolgt von zwei  $150 \mu\text{g cm}^{-2}$  C-Catcherfolien mit einem 80 MeV  $^{16}\text{O}$ -Strahl. Es wurden zwei Bestrahlungen von 168 bzw. 188 Minuten mit einer durchschnittlichen Strahlintensität von 36.2 bzw. 52.1 pA durchgeführt. Als Detektoren dienten für die  $\alpha$ -Messung ein Silizium-Sperrschichtdetektor und für die  $\gamma$ -Messung ein  $500 \text{ mm}^2$  Ge(Li)-Detektor mit 10 mm Dicke.

Marinov et al. geben an, in den  $\alpha$ -Spektren  $^{210}\text{Rn}$ ,  $^{205}\text{Po}$ ,  $^{206}\text{Po}$ ,  $^{211}\text{Po}$ ,  $^{207}\text{At}$  und  $^{209}\text{At}$  identifiziert zu haben und  $^{205}\text{At}$ ,  $^{206}\text{At}$ ,  $^{209}\text{At}$ ,  $^{201}\text{Bi}$ ,  $^{199}\text{Tl}$ ,  $^{109}\text{Pd}$  in den  $\gamma$ -Spektren. Ausgehend vom Vergleich der Zahl der erwarteten und nicht zuordenbar erscheinenden  $\alpha$ - $\gamma$ -Korrelationen wird eine  $\alpha$ -Energie von 5.20 MeV mit einer Halbwertszeit von 90 Minuten bestimmt. Es wird von Marinov et al. vermutet, dass der  $\alpha$ -Zerfall aus einem bisher unbekanntem Zustand eines anderen Elementes erfolgt.

Aus den Werten für die Rotationsübergänge der isomeren Zustände von  $^{240}\text{Pu}$  (Abbildung A1.1 links) und  $^{194}\text{Tl}$  wurden für ein Rotationsgesetz der Form  $E = B J (J+1)$  die Parameter B bestimmt und dann gegen die Massenzahl A aufgetragen (Abbildung 8.1 rechts). Für das in Frage kommende Tochternuklid  $^{206}\text{At}$  wurde  $B = 4.40 \text{ keV}$  bestimmt.

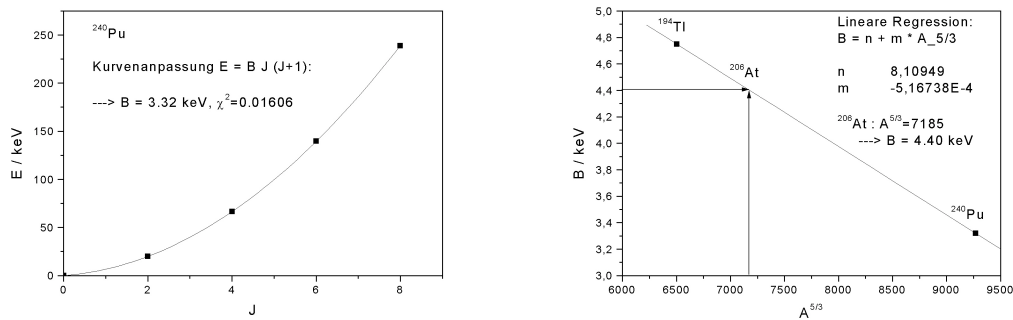


Abbildung 8.1: Zur Ableitung des vermuteten  $^{210}\text{Fr}$ -Isomers

Daraus lassen sich mit  $E = 4.40 \text{ keV } J (J+1)$  die Energien der Rotationsniveaus berechnen (Abbildung 8.2).

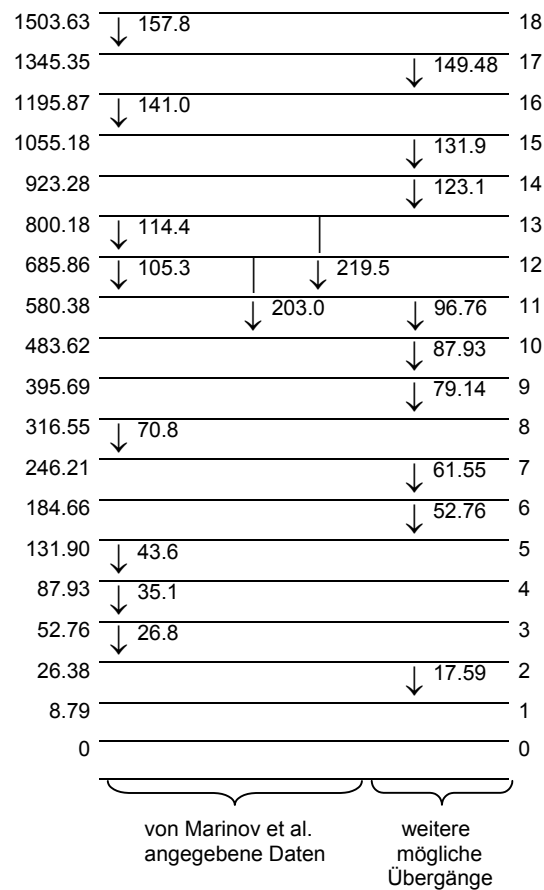


Abbildung 8.2: Energien der Rotationsübergänge im vermuteten  $^{210}\text{Fr}$ -Isomer mit Angabe der von Marinov et al. gefundenen Übergänge und einiger möglicher, aber nicht angegebener Übergänge

Einige der von Marinov et al. gefundenen Übergänge lassen sich Übergängen zwischen den einzelnen Niveaus zuordnen. Daraus schließen Marinov et al. auf die Existenz eines langlebigen isomeren Zustands von  $^{210}\text{Fr}$ .

## 8.2 Bestätigungsexperiment

Zur Bestätigung dieser ungewöhnlichen Beobachtung wurde im April 1999 in einem Experiment am Paul-Scherrer-Institut Villigen  $^{210}\text{Fr}$  in der  $^{197}\text{Au}(^{18}\text{O},5n)$ -Reaktion bei 100 MeV hergestellt [Rupp00]. Hinter dem  $445 \mu\text{g cm}^{-2}$  Au-Target wurden die Reaktionsprodukte von einer Degradierfolie von  $270 \mu\text{g cm}^{-2}$  C abgebremst und in zwei  $60 \mu\text{g cm}^{-2}$  C-Catcher-Folien gestoppt.

Es wurden vier 180 min-Bestrahlungen mit durchschnittlichen Strahlintensitäten von 49.6, 49.9, 56.3 und 54.3 pA durchgeführt. Es wurde abwechselnd die zweite oder dritte C-Folie zwischen einem Si  $\alpha$ -Detektor und einem  $7600 \text{ mm}^2$  Ge(Li)-Detektor mit 39.6 mm Dicke gemessen, wobei  $\alpha$ - und  $\gamma$ -singles sowie  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen aufgenommen wurden.

Die  $\gamma$ -Spektren wurden mit DECAN, einer Makrosammlung zur Analyse von  $\gamma$ -Zerfallsdaten [Rupp99], und die  $\alpha$ -Spektren sowie die  $\alpha$ - $\gamma$ -Korrelationsspektren mit GOOSY ausgewertet. In den  $\gamma$ -Spektren wurden  $^{205-209}\text{At}$ ,  $^{205}\text{Po}$ ,  $^{199}\text{Tl}$ ,  $^{199\text{m}}\text{Hg}$ ,  $^{27}\text{Mg}$  sowie  $^{211}\text{Rn}/^{207}\text{Po}$  (langlebige Nachbildung, unsicher) identifiziert. In den  $\alpha$ -Spektren wurden die Isotope  $^{212}\text{Fr}$ ,  $^{208-211}\text{Rn}$  und  $^{205-211}\text{At}$  identifiziert, wobei die Unterscheidung zwischen den in den  $\alpha$ -Zerfallsenergien nahe beieinander liegenden  $^{209}\text{Rn}/^{210}\text{Rn}$ ,  $^{211}\text{Rn}/^{211}\text{At}$  und  $^{208}\text{At}/^{209}\text{At}$  nicht möglich war (Abbildung 8.3).

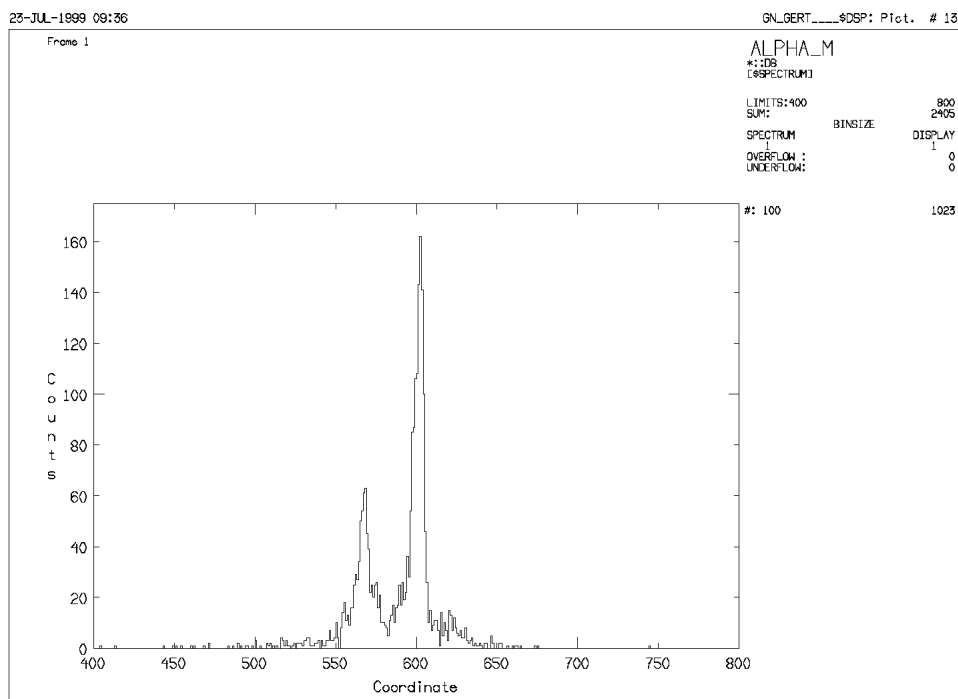


Abbildung 8.3:  $\alpha$ -Spektrum der ersten Bestrahlung von  $^{197}\text{Au}$  mit  $^{18}\text{O}^{5+}$

Dies ist von Bedeutung, da für die von Marinov et al. postulierten  $\alpha$ -Teilchen ( $E_\alpha = 5.20$  MeV,  $T_{1/2} = 90$  m) die nahe liegende Zuordnung zu  $^{205}\text{Po}$  nicht vollzogen wird mit dem Argument, dass in dessen Zerfall keine  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen vorkommen. Sucht man innerhalb eines Fensters für die  $\alpha$ -Energie von 4.8 bis 5.4 MeV nach  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen mit den in [Marinov96] angegebenen  $\gamma$ -Energien, so findet man insgesamt 23 Korrelationen, von denen man 19 als zufällige Korrelationen, da deren  $\gamma$ -Energien anderen Nukliden zuordenbar sind, betrachten kann. Es bleiben insgesamt 4 Korrelationen übrig (Tabelle 8.1).

Die Korrektur der  $\alpha$ -Energien für den Energieverlust in der  $60 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  C-Folie um 0.030 MeV orientiert sich an der Energieverschiebung der 6.04 MeV  $\alpha$ -Linie der Isotope  $^{209,210}\text{Rn}$ , die bei 6.01 MeV nachgewiesen wurde. Die mittlere  $\alpha$ -Energie,  $5.29 \pm 0.055$  MeV, weicht von der in [Marinov96] angegebenen Energie,  $5.20^{+0.05}_{-0.25}$  MeV, ab, und die Streuung der Abweichungen  $\Delta E_\alpha$  ist größer als nach der Halbwertsbreite der 6.01 MeV  $\alpha$ -Linie von 0.060 MeV (FWHM) zu erwarten wäre. Auch die Abweichungen der  $\gamma$ -Energien,  $\Delta E_\gamma$ , erscheinen eher zu groß.

| $E_\alpha$ | $E_\alpha$ (korr.) | $\Delta E_\alpha$ | $E_\gamma$ | $\Delta E_\gamma$ |
|------------|--------------------|-------------------|------------|-------------------|
| / MeV      | / MeV              | / MeV             | / keV      | / keV             |
| 5.30       | 5.33               | + 0.04            | 43.37      | - 0.60            |
| 5.17       | 5.20               | - 0.09            | 52.15      | - 0.61            |
| 5.26       | 5.29               | 0                 | 88.79      | + 0.86            |
| 5.31       | 5.34               | + 0.05            | 141.01     | + 0.32            |

Tabelle 8.1: Gefundene  $\alpha$ - $\gamma$ -Korrelationen

Das gesamte  $\alpha$ - $\gamma$ -Korrelationsspektrum für den untersuchten Energiebereich ist in Abbildung 8.3 gegeben. Daraus sind zufällige Korrelationen bei  $E_\gamma = 60\dots95$  keV sowie eine Reihe zufälliger Korrelationen bei  $E_\alpha \approx 5.35$  MeV ( $^{210}\text{Po}$ ) ohne weiteres erkennbar. In dem durch die obigen vier  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen gesetzten  $\alpha$ -Energiefenster von 5.17 bis 5.31 MeV tauchen zusätzlich zu den zufälligen Korrelationen im Bereich der Hg-, Tl-, Bi-, Po- und At-Röntgenlinien noch weitere  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen mit  $\gamma$ -Energien zwischen 100 und 800 keV auf.

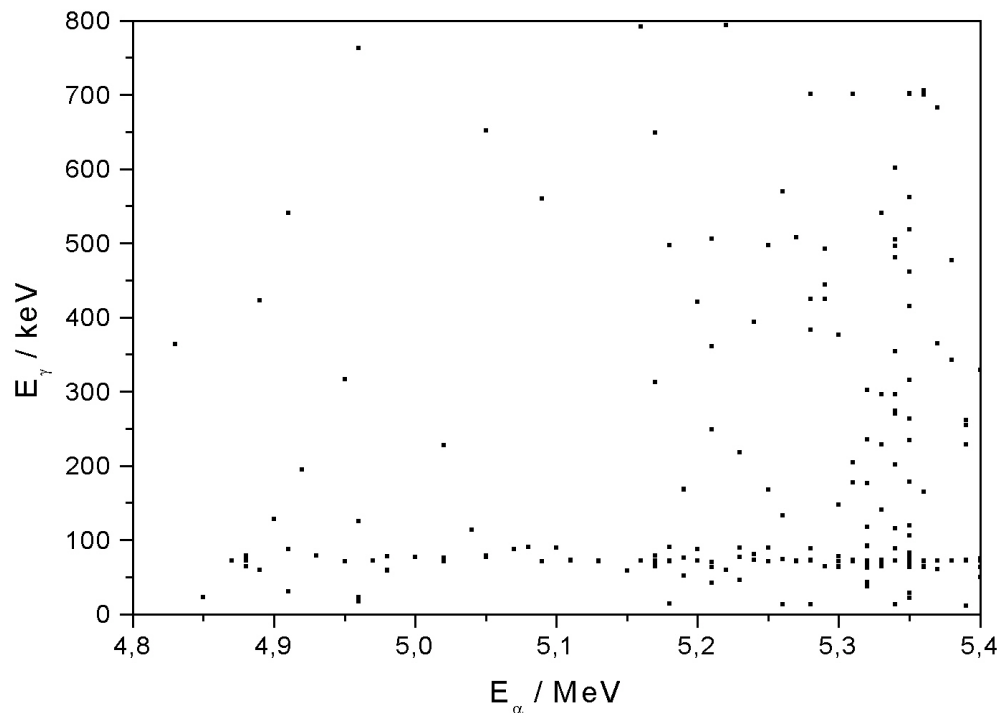


Abbildung 8.3:  $\alpha$ - $\gamma$ -Korrelationsspektrum für die Reaktion  $^{197}\text{Au}(^{18}\text{O},5n)$

Es muss auf Grund dieser Ergebnisse bezweifelt werden, ob die vier in der obigen Tabelle aufgeführten  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen tatsächlich hinreichende Evidenz für den  $\alpha$ -Zerfall eines superdeformierten isomeren Zustands in  $^{210}\text{Fr}$  in Rotationszustände im superdeformierten zweiten Minimum von  $^{206}\text{At}$  liefern. Eher scheint es sich hier um zufällige Korrelationen zu handeln, denn die Energien der Ereignisse weichen zum Teil deutlich von den Angaben Marinov et al. ab. Auch sind bei den Originaldaten in [Marinov96] teilweise deutliche Abweichungen von den berechneten  $\gamma$ -Energien zu erkennen, so dass auch für das ursprüngliche Experiment die Vermutung geäußert werden darf, dass die angegebenen  $\alpha$ - $\gamma$ -Korrelationen zufällig waren. Um die von Marinov et al. berichtete Evidenz für diesen ungewöhnlichen Zerfall restlos auszuschließen, müsste ein weiteres Experiment durchgeführt werden, das sich der Reaktion  $^{16}\text{O} + ^{197}\text{Au}$  mit  $E_{\text{lab}} = 80 \text{ MeV}$  bedient.



## 9. Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich vorwiegend mit Detektionsproblemen, die bei Experimenten zur Chemie der Transactiniden mit dem schnellen Flüssig-Flüssig-Extraktionssystem SISAK auftraten. Bei diesen Experimenten wird als Detektionsmethode die Flüssigszintillationsspektroskopie (LSC) eingesetzt. Es werden Szintillationspulse registriert, die auf den Durchgang von ionisierenden Teilchen durch einen Szintillator und die Wechselwirkung des Teilchens mit den Lösungsmittelmolekülen und die darauf folgende Emission von Licht zurückzuführen sind. Da diese Wechselwirkung teilchenspezifisch ist, haben die Pulse für das jeweilige Teilchen charakteristische Formen. Das Problem besteht darin, diese Pulsformen eindeutig voneinander zu unterscheiden.

Am Beispiel der Auswertung des SISAK-Experimentes zur Chemie des Rutherfordiums vom November 1998 wurde gezeigt, dass es mit den herkömmlichen Verfahren zur Pulsformdiskriminierung nicht möglich ist, die aus dem Zerfall der Transactiniden stammenden  $\alpha$ -Ereignisse herauszufiltern. Ursache dafür ist ein hoher Untergrund, der in erster Linie von  $\beta/\gamma$ -Teilchen, Spaltfragmenten und pile ups verursacht wird. Durch die Verfügbarkeit von Transientenrecordern ist es möglich geworden, Szintillationspulse digital aufzunehmen und nicht mehr ausschließlich von analoger Messelektronik verarbeiten zu lassen. Das ergibt neue Möglichkeiten für die Pulsformdiskriminierung. Die registrierten Szintillationspulse können mit geeigneten Verfahren klassifiziert werden. Auf diesem Weg kann eine digitale Pulsformdiskriminierung durchgeführt werden.

In dieser Arbeit wird erstmals die Methode der digitalen Pulsformdiskriminierung mit künstlichen neuronalen Netzen (PSD-NN) vorgestellt. Es wurde im Zuge der Auswertung des SISAK-Experimentes vom Februar 2000, bei dem die digitale Datenaufnahme zum Einsatz kam, gezeigt, dass neuronale Netze in der Lage sind, Pulsformen automatisch richtig zu klassifizieren. Es ergeben sich nahezu untergrundfreie  $\alpha$ -Flüssigszintillationsspektren.

Der wesentliche Vorteil dieser empirischen Methode ist ihre Fähigkeit, schnell und zuverlässig Pulsformen zu klassifizieren. Die gemessenen Szintillationspulse können direkt weiterverarbeitet werden, es werden keinerlei zusätzliche Informationen über den jeweiligen Puls benötigt. Zu den Nachteilen zählt, dass vor einem Einsatz der PSD-NN erst geeignete Trainingsdatensätze für das neuronale Netz erstellt werden müssen und eine geeignete Struktur des Netzes gefunden werden muss. Es können außer der Information über die Klassifikation der Pulse keine weiteren verwertbaren Informationen gewonnen werden, das neuronale Netz ist ein Black-Box-System. Es wurden deshalb Vorschläge für weitere Einsatzmöglichkeiten der digitalen Datenaufnahme in der Flüssigszintillationsspektroskopie unterbreitet. Besonders der Einsatz für die Kernspektroskopie bei kleinsten Zählraten verspricht neue Erkenntnisse.

Die Methode der Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen ist nicht auf die  $\alpha$ -Spektroskopie beschränkt, sondern kann ebenso gut auch zum Herausfiltern anderer Pulsformen genutzt werden. Damit ergänzt sie andere Verfahren zur Untergrundreduktion wie zum Beispiel die Abtrennung von Begleitprodukten der für die Produktion der Transactiniden eingesetzten Kernreaktionen durch Vorseparatoren. Es ist dadurch möglich geworden, in SISAK-Experimenten Transactinidenatome an Hand ihres Zerfalls eindeutig zu charakterisieren. Das SISAK-System kann somit bei Experimenten zum Studium des chemischen Verhaltens von Transactiniden in flüssiger Phase eingesetzt werden.

## Anhang

### Quellcodes

#### A1 Auswertung des SISAK-Experiments vom November 1998 mit GOOSY

Das erste Listing enthält das für die Auswertung des SISAK-Experiments vom November 1998 weiterentwickelte GOOSY-Programm. Es ist in der Programmiersprache PL/1 geschrieben. Es wurden die Daten von allen vier eingesetzten Detektoren ausgewertet, wobei sich zeigte, dass die von Detektor 4 nicht verwertbar waren.

Das Listing enthält die komplette Auswerteroutine. Die ausführlichen Kommentare (*/\* .... \*/*) geben eine gute Vorstellung, was die einzelnen Variablen im Programm bedeuten und welche Funktion einzelne Codeabschnitte haben.

```

/* file X$ANAL_rf25710.PPL !R! FONT 15;UNIT C;SLM 2; EXIT;*/
/*****/
X$ANAL:@PROCEDURE RETURNS(BIN FIXED(31));
/*****/
/* N. Wiehl/G. Langrock Mar 1999 */
/* Analyse fuer 104 Experiment GSI Nov. 1998 */
/* Fuer Messungen mit Ventilsteuerung */
/* Es werden nur Events in Start u. Stop akkumuliert, wenn die Zelle */
/* geschlossen ist. */
/* - Compton Eichkontrolle */
/* Daten werden von comfile eingelesen: */
/* vor Start $ define comfile Compton-File-Spec */
/* Datenformat fuer 4 Kanale: */
/* Kanal (falls kleiner 0 -> Kanal nicht auswerten) */
/* Koeffizienten c d e f (jeder eigene Zeile) */
/* ... 4 mal */
/* Comptonkante Referenzwert */
/* Zeitpunkt Comptonkante */
/* ... */
/* - Zeit der Messung aus Buffer Header auf IA$EVENT 10-13 */
/* - entfernt korrelierte Events aus Eichquelle */
/*****/
/* Edit history */
/* 31-mar-1999 created */
/*-----*/
/* !!!!! mit x$upfor_fifot.ppl linken !!!!! */
/* !!!!! needs data element FRAGBUF structure SL$FRAGBUF in database */
/* !!!!! FRAGBUF should be cleared before start of analysis */
/*-----*/
/* Parameter */
/* from unpack routine (X$UPFOR_fifo.PPL) */
/* IA$EVENT(1) -> Channel */
/* IA$EVENT(2) -> event number */
/* from (FIFO) Listmode interface */
/* IA$EVENT(3) -> Info Bits (mark word BIT 10 - 14) */
/* IA$EVENT(4) -> Clock BIT 28 - 35 */
/* IA$EVENT(5) -> Clock BIT 14 - 27 */
/* IA$EVENT(6) -> Clock BIT 0 - 13 */
/* IA$EVENT(7) -> Energie */
/* IA$EVENT(8) -> shape */
/* IA$EVENT(9) -> pileup */
/* */
/* IA$EVENT(10)-(13) -> Zeit aus Bufferheader */
/* */
/*-----*/
/* Datenbasis erzeugt mit DB_SISAK9801.com */
/* */
/* Spektren: */
/* ALPHA_G(1:4) -> Alpha Spektren */
/* ALPHA_G1(1:4) -> Alpha Spektren nach Kalibrationskorrektur */

```

```

/* ALPHA_G2(1:4) -> Alpha Spektren nach Entfernen der Eichquelle */
/* ALPHA_S(1:4) -> Alpha Start Spektren (Mutter) */
/* ALPHA_P(1:4) -> Alpha Stop Spektren (Tochter) */
/* SHAPE_M(1:4) -> Pulsshape Parameter */
/* PILE_M(1:4) -> Pileup Parameter */
/* CLOCK_G(1:4) -> Zeitkorrelationen (10*log(dt), dt Zeit alpha -alpha)*/
/*
/* ENSH -> Energie - Shape (Nur Kanal CHAN_C) */
/* PILSH -> Energie - Shape (Nur Kanal CHAN_C) */
/*
/* ES_EP -> E-Mutter / E-Tochter ueber alle Kanale */
/* in Eichung aus Kanal 1 */
/*
/*-----*/
/* Conditions: */
/* ES_C(1:4) -> Mutter (Start) Energie */
/* EP_C(1:4) -> Tochter (Stop) Energie */
/* SHAPE_C(1:4) -> Gate auf Shape */
/* PILE_C(1:4) -> Gate auf Pileup */
/* CHAN_C -> Gate auf Kanal fuer ENSH u. PILSH (nicht benoetigt) */
/* CLOCK_C -> Gate fuer Zeitkorrelation Eichquelle */
/* CLOCK_C -> wird im Moment nicht benoetigt */
/* SHAPH_C -> wird im Moment nicht gebraucht */
/*-----*/

@INCLUDE $MACRO(dcl_proc);
@INCLUDE $MACRO($mess);
@INCLUDE $MACRO($MACRO);
@INCLUDE $MACRO(SA$event);

@INCLUDE $MACRO(SL$FRAGBUF);
@INCLUDE $MACRO(SL$EVSAVE);

@INCLUDE $MACRO(SYSS$ASCTIM);
@INCLUDE $MACRO(LIB$CONVERT_DATE_STRING);

DCL CMPTIM entry (any,any,BIT);
DCL COMFILE FILE; /* compton data file */
DCL EOF BIT(1) INIT('0'B); /* End of File */

DCL L_comchn(4) BIN FIXED(31) static; /* channel */
DCL F_com_C(4) BIN FLOAT(24) static init(0.,0.,0.,0.); /* compton coeff. c */
DCL F_com_D(4) BIN FLOAT(24) static init(0.,0.,0.,0.); /* compton coeff. d */
DCL F_com_E(4) BIN FLOAT(24) static init(0.,0.,0.,0.); /* compton coeff. e */
DCL F_com_F(4) BIN FLOAT(24) static init(0.,0.,0.,0.); /* compton coeff. f */
DCL I_comref BIN FIXED(15) static init(0); /* compton reference */
DCL 1 Q_tim(1000) STATIC, /* times of compton values*/
  2 L_mtiml BIN FIXED(31), /* time high word */
  2 L_mtimh BIN FIXED(31); /* time low word */
DCL 1 Q_timcur STATIC, /*current time in analysis*/
  2 L_ctimll BIN FIXED(15), /* time low word */
  2 L_ctimlo BIN FIXED(15), /* time low word */
  2 L_ctimhi BIN FIXED(15), /* time high word */
  2 L_ctimhh BIN FIXED(15); /* time highest word */
DCL F_comval(1000) BIN FLOAT(24) STATIC; /* compton values */
DCL L_numval BIN FIXED(31) STATIC INIT(0); /* number of values */
DCL L_comind BIN FIXED(31) STATIC; /* index of compton value */
DCL B_before BIT(1) STATIC; /* Flag fuer Zeitvergleich*/
DCL C_TIMSTR CHARACTER(20); /* ASCII Timestring */
DCL C_TIMSTR1 CHARACTER(23); /* ASCII Timestring */
DCL I_ev7neu BIN FIXED(15); /* IA$EVENT(7) korrigiert */
DCL F_temp BIN FLOAT(24); /* FLOAT dummy */

DCL (I1,I2,I3) BIN FIXED(31); /* Loop Indices */
DCL L_incr BIN FIXED(31) STATIC INIT(1); /* accu increment */
DCL I_chn BIN FIXED(15); /* Kanal */

DCL I_spcnr(4) BIN FIXED(15) STATIC
  INIT(1,501,1001,1501); /* lfd. Nr. alpha */
DCL I_spmx(4) BIN FIXED(15) STATIC
  INIT(500,1000,1500,2000); /* maxima */

DCL D_time BIN FLOAT(53); /* absolute Zeit usec */
DCL D_otime(4) BIN FLOAT(53) STATIC INIT((4)0.0); /* Zeit Vorgaenger */

```

```

DCL L_sec      BIN FIXED(31);          /* Messzeit (sec)          */
DCL SHAPE_CC   BIT(1) ALIGNED;        /* Ergebnis f. SHAPE Condition */
DCL PILE_CC    BIT(1) ALIGNED;        /* Ergebnis f. PILE Condition  */
DCL ES_CC      BIT(1) ALIGNED;        /* start Energie           */
DCL EP_CC      BIT(1) ALIGNED;        /* stop Energie            */
DCL CHAN_CC    BIT(1) ALIGNED;        /* channel fuer PILSH und ENSH */

DCL B_LCLOCK   BIT(14) ALIGNED;       /* Bitstring f. Eventclock Bit 0-13 */
DCL B_HCLOCK   BIT(14) ALIGNED;       /* Bitstring f. Eventclock Bit 14-27 */
DCL B_OCLOCK   BIT(4) ALIGNED;        /* Bitstring f. Eventclock Bit 28-31 */
DCL B_CLOCK    BIT(32) ALIGNED;       /* Bitstring f. Eventclock 0-31 */
DCL L_CLOCK    BIN FIXED(31);         /* Eventclock binaer 32 Bit */
DCL W_CLOCK    BIN FIXED(15);         /* LN(Eventclock) binaer 16 Bit */

DCL B_vnt1     BIT(1) ALIGNED;        /* Ventilstellung 0:Zelle zu, 1:offen */
DCL B_vold(4)  BIT(1) ALIGNED STATIC; /* Ventilstellung zuvor */

DCL B_es(4)    BIT(1) ALIGNED STATIC
              INIT('0'B,'0'B,'0'B,'0'B); /* Startereignis          */
DCL I_es(4)    BIN FIXED(15) STATIC;   /* Startenergie           */

DCL F_slope(4) BIN FLOAT(24) STATIC;   /* calibration slope      */
DCL F_zero(4)  BIN FLOAT(24) STATIC;   /* calibration zero point */

DCL CLOCKC_CC  BIT(1) ALIGNED;        /* Ergebnis f. CLOCK Condition Quelle */
DCL D_cotim(4) BIN FLOAT(53) STATIC INIT((4)0.0); /* Zeit Vorgaenger Quelle */
DCL B_ces      BIT(1) ALIGNED;        /* Startereignis Quelle   */
DCL I_ces(4)   BIN FIXED(15) STATIC;   /* Startenergie Quelle   */
DCL I_css(4)   BIN FIXED(15) STATIC;   /* Startshape Quelle     */
DCL I_cps(4)   BIN FIXED(15) STATIC;   /* Startpile Quelle      */
DCL B_cvs(4)   BIT(1) ALIGNED static
              INIT('0'B,'0'B,'0'B,'0'B); /* Startventil Quelle    */
DCL B_cvold(4) BIT(1) ALIGNED static
              INIT('0'B,'0'B,'0'B,'0'B); /* */

DCL (I_E1,I_E2) BIN FIXED(15);        /* temporary used        */

@ON_ANY_W(U_CLEANUP);
STS$value=1;

P_SA$EVENT = P$DB_DATA_EVENT;
P_SL$FRAGBUF = P$DB_DATA_FRAGBUF;
I_chn = IA$EVENT(1) + 1; /* thats the channel */
IF ( I_chn > 0 ) & ( I_chn < 5 ) THEN DO; /* this must be true */
  IF (IA$EVENT_DLEN = 13) THEN DO; /* in the normal case */

  /****** die Zeit aus dem Buffer Header uebertragen *****/
  L_ctiml1 = IA$EVENT(10);
  L_ctiml0 = IA$EVENT(11);
  L_ctimh1 = IA$EVENT(12);
  L_ctimh0 = IA$EVENT(13);
  B_ces = '0'B;

  /* now we have to initialize our pointers etc. */
  /* initialization is indicated by LL$BUF_num = -1 in EVSPECIAL(1) */
  /* value could be set by GOOSY command */
  /* SET MEMBER DB:[DATA]EVSPECIAL(1).LL$buf_NUM -1 */

  P_SL$EVSAVE = P1$DB_DATA_EVSPECIAL(1);
  IF (LL$BUF_num = -1 ) THEN DO;
    DO I1 = 1 TO 4;
      B_es(I1) = '0'B;
      B_vold(I1) = '0'B;
      I_spcnr(I1) = (I1 - 1)*500 + 1;
    END;
    /* Startwert in der Compton Tabelle suchen */
    B_before='1'B;
    L_comind=0;
    /* Testausdruck Zeit aus Bufferheader */
    sts$value = sys$asctim(23,C_TIMSTR1,Q_TIMCUR,);
    put skip list (C_TIMSTR1);

```

```

DO WHILE (B_before & (L_comind <= L_numval));
  L_comind=L_comind+1;
  call cmptim(Q_tim(L_comind),Q_timcur,B_before);
  /* Testausdruck - Zeit aus Liste - TEST */
  sts$value = sys$asctim(23,C_TIMSTR1,Q_TIM(L_comind),);
  put skip list (L_comind,C_TIMSTR1);
END;
LL$BUF_num = 0;
END;

/***** Shape und Pileup Spektren *****/
$ACCU1(L,DB,$SPECTRUM,SHAPE_M,I_chn,L_incr,1,IA$EVENT(8));
$ACCU1(L,DB,$SPECTRUM,PILE_M,I_chn,L_incr,1,IA$EVENT(9));

/***** die CLOCK zusammenbauen *****/
B_LCLOCK = UNSPEC(IA$EVENT(6));          /* der lower part der clock */
B_HCLOCK = UNSPEC(IA$EVENT(5));          /* der upper part der clock */
B_OCLOCK='0000'B;                        /* in den unteren 28 BIT */
B_CLOCK=B_LCLOCK||B_HCLOCK||B_OCLOCK;    /* die ersten 28 BITS der clock */
UNSPEC(L_CLOCK)= B_CLOCK;                /* die 28 Bit binaer */

/* den obersten Teil gleich in floating Point dazu */
D_time=FLOAT(L_CLOCK,53) + FLOAT(IA$EVENT(4),53)*268435456.0;

/***** Pulsshape, Pileup Conditions *****/
$COND1(WC,DB,$CONDITION,SHAPE_C,I_chn,SHAPE_CC,1,IA$EVENT(8));
$COND1(WC,DB,$CONDITION,PILE_C,I_chn,PILE_CC,1,IA$EVENT(9));

B_vnt1=^(UNSPEC(IA$EVENT(3),4,1));

/* fuer alles weitere interessieren nur Alphas */
IF (PILE_CC & SHAPE_CC) THEN DO;

  /***** die Alpha Spektren *****/
  $ACCU1(L,DB,$SPECTRUM,ALPHA_G,I_chn,L_incr,1,IA$EVENT(7));

  L_sec=TRUNC(0.5 + D_time/1e6);
  $SPEC1(L,DB,$SPECTRUM,ALPHA_G,I_chn,L_sec,1,1);

  /**** Korrektur der Alpha-Spektren mit Hilfe der Compton-Kante *****/
  IF (L_comchn(I_chn)>0) THEN DO;
    call cmptim(Q_tim(L_comind),Q_timcur,B_before);
    IF B_before THEN DO;
      L_comind=L_comind+1;
      PUT SKIP LIST('neuer Index ',L_comind,' Buffer ',LL$FRAGBUF_num);
    END;
  END;

  /* The MAINZ-formula that calculates the spectra for each detector */

  F_temp=F_com_d(I_chn)*I_comref+F_com_c(I_chn);
  F_temp=F_temp
    *(float(IA$EVENT(7),24)-(F_com_f(I_chn)*F_comval(L_comind)
    +f_com_e(I_chn)));
  F_temp=F_temp/(F_com_d(I_chn)*F_comval(L_comind)+ F_com_c(I_chn));
  F_temp=f_temp + F_com_f(I_chn)*I_comref + F_com_e(I_chn);

  I_ev7neu=F_temp;
  $ACCU1(L,DB,$SPECTRUM,ALPHA_G1,I_CHN,L_INCR,1,I_ev7neu);
END;

/* Entfernen der Quelle */
IF (D_cotim(I_chn) = 0.0) THEN DO;
  D_cotim(I_chn) = D_time;
  I_ces(I_chn)=I_ev7neu;
  I_css(I_chn)=IA$EVENT(8);
  I_cps(I_chn)=IA$EVENT(9);
  B_cvs(I_chn)=B_vnt1;
  B_cvold(I_chn)=B_vold(I_chn);
  @RET(STS$value);
END;
IF (D_cotim(I_chn) > 0.0) THEN DO;
  IF (D_time <= D_cotim(I_chn)) THEN @RET(STS$value);
  W_CLOCK=TRUNC(10.0*LOG(D_time - D_cotim(I_chn)));
  $COND(WC,DB,$CONDITION,CLOCKC_C,CLOCKC_CC,1,W_CLOCK);

```



```

        WL$EN      =I_es(I_chn);          /* energy          */
        WL$SHAPE  =I_css(I_chn);        /* shape          */
        WL$PILE   =I_cps(I_chn);        /* pile           */
        DF$TIME   =D_otime(I_chn);      /* time since start */

        IF ( I_spcnr(I_chn) < I_spmax(I_chn) ) THEN
            I_spcnr(I_chn) = I_spcnr(I_chn) + 1;
        END;
    END;
    I_ces(I_chn)=I_ev7neu;
    D_cotim(I_chn)=d_time;
    I_css(I_chn)=IA$EVENT(8);
    I_cps(I_chn)=IA$EVENT(9);
    B_cvs(I_chn)=B_vntl;
    B_cvold(I_chn)=B_vold(I_chn);
END;                                     /* PILE_C & SHAPE_C */
IF (^B_vntl & B_vold(I_chn)) THEN DO;
    /* PUT SKIP LIST (LL$FRAGBUF_num,IA$EVENT(2),I_chn,' Ventil auf ');*/
    B_es(I_chn)='0'B;
END;
B_vold(I_chn)=B_vntl;
END;                                     /* Eventlen = 13    */
ELSE DO;
    PUT SKIP LIST('Achtung! IA$EVENT_DLEN =', IA$EVENT_DLEN);
END;
END;                                     /* Channel= 1...4  */
ELSE DO;                                 /* I_CHN <= 0 da ist was faul */
    PUT SKIP LIST('Achtung! I_chn =', I_chn);
END;
@RET(STS$value);
/*****
/* Initialization to locate all used Data Elements */
*****/
$XANAL:ENTRY RETURNS(BIN FIXED(31));
@INCLUDE $MACRO($SECDEF);

@INCLUDE $MACRO(M$ATDE);
@INCLUDE $MACRO(M$LROID);

@INCLUDE $MACRO(SE$CAHE);
@INCLUDE $MACRO(SE$CADA);

dcl (
    P_type
        ) pointer;

dcl (
    CV_full_name
        ) char(254) var;

dcl (
    L_db_id,
    L_dir_id,
    L_de_id,
    L_type_id,
    L_pool_id,
    L_index
        ) bin fixed(31);

dcl (
    L_pointer
        ) bin fixed(31);

$LOC(DE,DB,DATA,EVENT,W,SA$EVENT);
IF ^STS$SUCCESS THEN DO;
    @RET(STS$value);
END;

/* first we extract the calibrations from the data base */

CV_full_name = '*::DB:[$CALIB]CAL_1->SE$CADA';

STS$value = M$ATDE(
    CV_full_name,
    P_SM$ATDE,
    L_db_id,

```



```

        L_dir_id,
        L_de_id,
        L_type_id,
        L_pool_id,
        P_se$cahe);

if ^STS$success then @RET(STS$value);

STS$value = M$LOID(
        L_db_id,
        L_dir_id,
        L_de_id,
        '0'b,
        P_se$cada,
        P_type);

if ^STS$success then @RET(STS$value);

F_zero(1)=R_se$cada_uncal(1);
F_slope(1)=R_se$cada_uncal(2);

CV_full_name = '*::DB:[$CALIB]CAL_2->SE$CADA';

STS$value = M$ATDE(
        CV_full_name,
        P_SM$ATDE,
        L_db_id,
        L_dir_id,
        L_de_id,
        L_type_id,
        L_pool_id,
        P_se$cahe);

if ^STS$success then @RET(STS$value);

STS$value = M$LOID(
        L_db_id,
        L_dir_id,
        L_de_id,
        '0'b,
        P_se$cada,
        P_type);

if ^STS$success then @RET(STS$value);

F_zero(2)=R_se$cada_uncal(1);
F_slope(2)=R_se$cada_uncal(2);

CV_full_name = '*::DB:[$CALIB]CAL_3->SE$CADA';

STS$value = M$ATDE(
        CV_full_name,
        P_SM$ATDE,
        L_db_id,
        L_dir_id,
        L_de_id,
        L_type_id,
        L_pool_id,
        P_se$cahe);

if ^STS$success then @RET(STS$value);

STS$value = M$LOID(
        L_db_id,
        L_dir_id,
        L_de_id,
        '0'b,
        P_se$cada,
        P_type);

if ^STS$success then @RET(STS$value);

F_zero(3)=R_se$cada_uncal(1);
F_slope(3)=R_se$cada_uncal(2);

```

```

CV_full_name = '*::DB:[\$CALIB]CAL_4->SE\$CADA';

ST\$value = M\$ATDE(
    CV_full_name,
    P_SM\$ATDE,
    L_db_id,
    L_dir_id,
    L_de_id,
    L_type_id,
    L_pool_id,
    P_se\$cahe);

if ^ST\$success then @RET(ST\$value);

ST\$value = M\$LOID(
    L_db_id,
    L_dir_id,
    L_de_id,
    '0'b,
    P_se\$cada,
    P_type);

if ^ST\$success then @RET(ST\$value);

F_zero(4)=R_se\$cada_uncal(1);
F_slope(4)=R_se\$cada_uncal(2);

PUT SKIP LIST ('Offset: ',F_zero);
PUT SKIP LIST ('Slope : ',F_slope);
PUT SKIP;

/* Einlesen der Daten fuer Kalibrationskorrektur */

DO I1 = 1 TO 4;
    GET FILE(COMFILE) LIST(L_comchn(I1));
    GET FILE(COMFILE) LIST(F_com_c(I1));
    GET FILE(COMFILE) LIST(F_com_d(I1));
    GET FILE(COMFILE) LIST(F_com_e(I1));
    GET FILE(COMFILE) LIST(F_com_f(I1));
END;
GET FILE(COMFILE) LIST(I_comref);
ON ENDFILE(COMFILE) EOF='1'B;
I1=1;
DO WHILE(^EOF);
    GET FILE(COMFILE) LIST(C_TIMSTR,F_comval(I1));
    SUBSTR(C_TIMSTR,12,1)=' ';
    ST\$VALUE=LIB\$CONVERT_DATE_STRING(C_TIMSTR,Q_TIM(I1));
    IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
    I1=I1+1;
END;
L_numval=I1-1;
/* Kontrollausdruck */
DO I1 = 1 TO L_numval;
    sts$value = sys\$asctim(23,C_TIMSTR1,Q_TIM(I1),);
    PUT SKIP LIST(I1, C_TIMSTR1, F_comval(I1));
END;

/* now allocate the dataelements we are using */

$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,ALPHA_G,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,ALPHA_G1,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,ALPHA_G2,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,ALPHA_S,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,ALPHA_P,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,SHAPE_M,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);
$LOC1(SPEC,DB,$SPECTRUM,PILE_M,1,4,W,L);
IF ^ST\$success THEN @RET(ST\$value);

```

```

$LOC1 (SPEC, DB, $$SPECTRUM, CLOCK_G, 1, 4, W, L);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);

$LOC (SPEC, DB, $$SPECTRUM, ENSH, W, L);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC (SPEC, DB, $$SPECTRUM, PILSH, W, L);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC (SPEC, DB, $$SPECTRUM, ES_EP, W, L);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);

$LOC1 (COND, DB, $CONDITION, SHAPE_C, 1, 4, W, WC);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC1 (COND, DB, $CONDITION, PILE_C, 1, 4, W, WC);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC1 (COND, DB, $CONDITION, ES_C, 1, 4, W, WC);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC1 (COND, DB, $CONDITION, EP_C, 1, 4, W, WC);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);

$LOC (COND, DB, $CONDITION, CLOCKC_C, W, WC);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC (COND, DB, $CONDITION, CHAN_C, W, WC);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);

$LOC1 (DE, DB, DATA, EVSPECIAL, 1, 2000, W, SL$EVSAVE);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);
$LOC (DE, DB, DATA, FRAGBUF, W, SL$FRAGBUF);
IF ^STS$success THEN @RET (STS$value);

@RET (STS$value);
/*****
/* This routine is called in case of an error */
*****/
U_CLEANUP: PROCEDURE;
END U_CLEANUP;
END X$ANAL;
/* Compare internal time values */
CMPTIM: PROC (Q_tim, Q_timcur, B_before);
@INCLUDE $MACRO (LIB$SUB_TIMES);
@INCLUDE $MACRO ($LIBDEF);
@INCLUDE $MACRO ($STSDEF);

DCL 1 Q_tim,
     2 timl BIN FIXED(31),
     2 timh BIN FIXED(31);
DCL 1 Q_timcur,
     2 timcurl BIN FIXED(31),
     2 timcurh BIN FIXED(31);
DCL 1 Q_timres,
     2 timresl BIN FIXED(31),
     2 timresh BIN FIXED(31);
DCL B_before BIT(1);                               /* Flag fuer Zeitvergleich */

sts$value=LIB$SUB_TIMES (Q_TIM, Q_TIMCUR, Q_TIMRES);
IF sts$value = LIB$_NEGTIM THEN DO;
    B_before='1'B;
END;
ELSE DO;
    B_before='0'B;
END;
END CMPTIM;

```

## A2 AcqirisReader2

Als Beispiel für die Programme, die für die Arbeit mit den künstlichen neuronalen Netzen zur Pulsformdiskriminierung entwickelt wurden, sind die Quelltexte drei wichtiger Dateien des Programms *AcqirisReader* aufgeführt. Alle Programme wurden mit Visual C++ 6.0 entwickelt.

Das Listing enthält die Details der Implementierung vieler wichtiger Schritte für die in Kapitel 5 beschriebenen Arbeiten. Die Funktionen sind ausführlich kommentiert, übersichtlich geschrieben und so benannt, dass bei Vertrautheit mit der Benutzung des Programms und Kenntnissen von C/C++ die Orientierung im Quelltext nicht schwerfallen sollte. Die von Visual C++ automatisch eingefügten Kommentare und auskommentierten Codezeilen sind aus Platzgründen entfernt worden.

```
// Fileheader.h: Schnittstelle für die Klasse Fileheader.

struct CFileheader
{
    char StartDatum[11], StartZeit[11];
    int Messzeit, DateiNr, Segmente, Messpunkte;
};

// Filedaten.h: Schnittstelle für die Klasse CFiledaten.

const z=532;

struct CFiledaten
{
    signed char D[z];
    int returnedSamples, addrFirstPoint;
    int horPos[2], sampTime[2], vGain[2], vOffset[2];
    __int32 timeStampLo, timeStampHi;
};

// AcqirisReader2Dlg.cpp : Implementierungsdatei

#include "stdafx.h"
#include "AcqirisReader2.h"
#include "AcqirisReader2Dlg.h"
#include "Filedaten.h"
#include "Fileheader.h"
#include <math.h>
#include <float.h>

#ifdef _DEBUG
#define new DEBUG_NEW
#undef THIS_FILE
static char THIS_FILE[] = __FILE__;
#endif
#define or ||

inline void NNFileErrorMessage()
{
    AfxMessageBox("Fehler beim Öffnen der NN-Datei!", MB_OK|MB_ICONEXCLAMATION);
}

//Kleine Rundungsfunktion für double-Zahlen. - G.L.
int round(double a)
{
    double temp,x;
```

```

    x=modf(a,&temp);
    if ( (x>-0.5) && (x<0.5) )
        return int(temp);
    else
        if (x>=0.5)
            return int(temp+1);
        else
            return int(temp-1);
}

CFileheader TFH;
CFiledaten TCACq[z];
FILE *fz,*fy,*fx; //fz -Messdatei; fy - SMART *.dat-Datei; fx - SMART *.nni-Infodatei
double NormPulse[z];
int i,j,k=0,nPulseCount=0,nDummy=0,nAlpha=0,nSonstige=0,SmoothPulse1[z],
    SmoothPulse2[z],nPulseMaximum[10],nPulseMaximum2[10];
bool bDataFileOpen=false,bNNFileOpen=false,bSmoothPulse=false;

class CAboutDlg : public CDialog
{
public:
    CAboutDlg();
    enum { IDD = IDD_ABOUTBOX };
protected:
    virtual void DoDataExchange(CDataExchange* pDX);
protected:
    DECLARE_MESSAGE_MAP()
};

CAboutDlg::CAboutDlg() : CDialog(CAboutDlg::IDD)
{
}

void CAboutDlg::DoDataExchange(CDataExchange* pDX)
{
    CDialog::DoDataExchange(pDX);
}

BEGIN_MESSAGE_MAP(CAboutDlg, CDialog)
END_MESSAGE_MAP()

CAcqirisReader2Dlg::CAcqirisReader2Dlg(CWnd* pParent /*=NULL*/)
    : CDialog(CAcqirisReader2Dlg::IDD, pParent)
{
    m_strFileNumber = _T("");
    m_strFilename = _T("");
    m_nLeft = 0;
    m_nRight = 0;
    m_strMesspunkte = _T("");
    m_strMesszeit = _T("");
    m_strStartDatum = _T("");
    m_strStartZeit = _T("");
    m_strSegmente = _T("");
    m_strReturnedSamples = _T("");
    m_strSampTime = _T("");
    m_strTimeStampHi = _T("");
    m_strTimeStampLo = _T("");
    m_strVGain = _T("");
    m_strVOffset = _T("");
    m_strHorPos = _T("");
    m_strAddrFirstPoint = _T("");
    m_strPulsNummer = _T("");
    m_strPulszahl = _T("");
    m_strSonstige = _T("");
    m_strDummy = _T("");
    m_strAlpha = _T("");
    m_strTimeStamp = _T("");
    m_hIcon = AfxGetApp()->LoadIcon(IDR_MAINFRAME);
}

void CAcqirisReader2Dlg::DoDataExchange(CDataExchange* pDX)
{

```

```

CDialog::DoDataExchange(pDX);
DDX_Control(pDX, IDC_CHECK_SEARCH_PEAK, m_PeakSearch);
DDX_Control(pDX, IDC_CHECK_SMOOTH_PULSE, m_SmoothPulse);
DDX_Control(pDX, IDC_CHECK_PULSE_NORMALIZATION, m_PulseNormalization);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_DATEINUMMER, m_strFileNumber);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_DATEINAME, m_strFilename);
DDX_Text(pDX, IDC_EDIT_LINKS, m_nLeft);
DDV_MinMaxInt(pDX, m_nLeft, 0, 500);
DDX_Text(pDX, IDC_EDIT_RECHTS, m_nRight);
DDV_MinMaxInt(pDX, m_nRight, 0, 500);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_MESSPUNKTE, m_strMesspunkte);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_MESSZEIT, m_strMesszeit);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_START_DATUM, m_strStartDatum);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_START_ZEIT, m_strStartZeit);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_SEGMENTE, m_strSegmente);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_RETURNED_SAMPLES, m_strReturnedSamples);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_SAMP_TIME, m_strSampTime);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_TIME_STAMP_HI, m_strTimeStampHi);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_TIME_STAMP_LO, m_strTimeStampLo);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_VGAIN, m_strVGain);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_VOFFSET, m_strVOffset);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_HOR_POS, m_strHorPos);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_ADDR_FIRST_POINT, m_strAddrFirstPoint);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_PULSNUMMER, m_strPulsNummer);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_PULSZAHL, m_strPulszahl);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_SONSTIGEZAHL, m_strSonstige);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_DUMMYZAHL, m_strDummy);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_ALPHAZAHL, m_strAlpha);
DDX_Text(pDX, IDC_STATIC_TIMESTAMP, m_strTimeStamp);
}

BEGIN_MESSAGE_MAP(CAcqirisReader2Dlg, CDialog)
    ON_WM_SYSCOMMAND()
    ON_WM_PAINT()
    ON_WM_QUERYDRAGICON()
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON_FILE, OnButtonFileOpen)
    ON_EN_CHANGE(IDC_EDIT_LINKS, OnChangeEditLinks)
    ON_EN_CHANGE(IDC_EDIT_RECHTS, OnChangeEditRechts)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON4, OnButtonCreateNNFile)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON5, OnButtonNoParameter)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON6, OnButtonAlpha)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON7, OnButtonSonstiges)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON LETZTER_PULS, OnButtonPreviousPulse)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON_NAECHSTER_PULS, OnButtonNextPulse)
    ON_BN_CLICKED(IDC_BUTTON_SaveNNFile, OnButtonSaveNNFile)
    ON_BN_CLICKED(IDC_OK, OnClickedOk)
    ON_BN_CLICKED(IDC_CHECK_PULSE_NORMALIZATION, OnCheckPulseNormalization)
    ON_BN_CLICKED(IDC_CHECK_SMOOTH_PULSE, OnCheckSmoothPulse)
    ON_BN_CLICKED(IDC_CHECK_SEARCH_PEAK, OnCheckSearchPeak)
END_MESSAGE_MAP()

BOOL CAcqirisReader2Dlg::OnInitDialog()
{
    CDialog::OnInitDialog();
    ASSERT((IDM_ABOUTBOX & 0xFFF0) == IDM_ABOUTBOX);
    ASSERT(IDM_ABOUTBOX < 0xF000);
    CMenu* pSysMenu = GetSystemMenu(FALSE);
    if (pSysMenu != NULL)
    {
        CString strAboutMenu;
        strAboutMenu.LoadString(IDS_ABOUTBOX);
        if (!strAboutMenu.IsEmpty())
        {
            pSysMenu->AppendMenu(MF_SEPARATOR);
            pSysMenu->AppendMenu(MF_STRING, IDM_ABOUTBOX, strAboutMenu);
        }
    }
    SetIcon(m_hIcon, TRUE); // Großes Symbol verwenden
    SetIcon(m_hIcon, FALSE); // Kleines Symbol verwenden
    return TRUE;
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnSysCommand(UINT nID, LPARAM lParam)
{

```

```

    if ((nID & 0xFFFF) == IDM_ABOUTBOX)
    {
        CAboutDlg dlgAbout;
        dlgAbout.DoModal();
    }
    else
    {
        CDialog::OnSysCommand(nID, lParam);
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnPaint()
{
    if (IsIconic())
    {
        CPaintDC dc(this); // Gerätekontext für Zeichnen
        SendMessage(WM_ICONERASEBKGND, (WPARAM) dc.GetSafeHdc(), 0);
        int cxIcon = GetSystemMetrics(SM_CXICON);
        int cyIcon = GetSystemMetrics(SM_CYICON);
        CRect rect;
        GetClientRect(&rect);
        int x = (rect.Width() - cxIcon + 1) / 2;
        int y = (rect.Height() - cyIcon + 1) / 2;
        dc.DrawIcon(x, y, m_hIcon);
    }
    else
    {
        CDialog::OnPaint();
        //Ist nötig, damit auch das Diagramm wieder gezeichnet wird, wenn
        //das Fenster durch das Betriebssystem den Eingabefokus erhält. - G.L.
        PaintPulse();
    }
}

HCURSOR CAcqirisReader2Dlg::OnQueryDragIcon()
{
    return (HCURSOR) m_hIcon;
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnOK()
{
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnClickedOk()
{
    // Funktion wurde nach "Inside Visual C++ 6.0", Seite 118/119 erstellt - G.L.
    CloseFile();
    CDialog::OnOK();
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnCancel()
{
    CloseFile();
    CDialog::OnCancel();
}

void CAcqirisReader2Dlg::CloseFile()
{
    CloseNNFile();
    if (bDataFileOpen)
        int m=fclose(fz);
}

void CAcqirisReader2Dlg::PaintPulse()
{
    int xmax,ymax,xl,y1,y2;
    CRect rect;
    CPen pen_white,pen_black,pen_grey,pen_blue,pen_red;
    CBrush brush_black;

    //Zuerst ein bisschen Zauber, um Stifte mit verschiedenen Farben
    //zu definieren und das Rechteck für die Grafik zu zeichnen. - G.L.
    pen_white.CreatePen(PS_SOLID,0,RGB(255,255,255));
    pen_black.CreatePen(PS_SOLID,0,RGB( 0, 0, 0));
}

```

```

pen_grey.CreatePen (PS_SOLID,0,RGB(192,192,192));
pen_blue.CreatePen (PS_SOLID,0,RGB( 0, 0,128));
pen_red.CreatePen (PS_SOLID,0,RGB(128, 0, 0));
brush_black.CreateSolidBrush(RGB(0,0,0));
CWnd *wnd = (CWnd *) GetDlgItem(IDC_STATIC_PULS);
CClientDC dc(wnd);
CreateDC(NULL,NULL,NULL,NULL);
wnd->GetClientRect(&rect);
xmax=rect.right;
ymax=rect.bottom;
dc.Rectangle(0,0,xmax,ymax);
dc.SetBkColor(RGB(0,0,0));

//Gitter zeichnen - G.L.
dc.SelectObject(&pen_grey);
for (int o=1;o<11;o++)
{
    //x- und y-Koordinate ermitteln - G.L.
    x1=round(o*xmax/10);
    y1=round(o*ymax/10);

    //Zeichnen der waagerechten und senkrechten Gitterlinien - G.L.
    dc.MoveTo(x1,0);
    dc.LineTo(x1,ymax);
    dc.MoveTo(0,y1);
    dc.LineTo(xmax-1,y1);
}

//Grenzen zeichnen - G.L.
//Nur nötig, wenn die Grenzen per Hand festgelegt werden.
//Dazu müssen die weiter unten definierte Verwendung des
//blue_pen deaktiviert werden und die Funktionen
//OnChangeEditLinks() und OnChangeEditRechts() aktiviert werden. - G.L.
//dc.SelectObject(&pen_blue);
//dc.MoveTo(m_nLeft,0);
//dc.LineTo(m_nLeft,ymax);
//dc.MoveTo(m_nRight,0);
//dc.LineTo(m_nRight,ymax);

//Puls zeichnen - G.L.
dc.SelectObject(&pen_black);

//Original-Puls zeichnen, wenn
//(a) weder Glättung noch Normierung
//(b) nur Glättung gewünscht ist. - G.L.
if ( (!m_PulseNormalization.GetCheck()) && ( !m_SmoothPulse.GetCheck() ) or
      (m_SmoothPulse.GetCheck()) )
{
    for (o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
    {
        y1=round(0.9*ymax-(126.0+(-1)*TCAcq[k].D[o]));
        y2=round(0.9*ymax-(126.0+(-1)*TCAcq[k].D[o+1]));
        dc.MoveTo(o, y1);
        dc.LineTo(o+1,y2);
    }
}

//Normierten Puls zeichnen - G.L.
if (m_PulseNormalization.GetCheck() && !m_SmoothPulse.GetCheck())
{
    NormalizePulse();
    for (o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
    {
        y1=round(0.9*ymax-0.9*ymax*NormPulse[o]);
        y2=round(0.9*ymax-0.9*ymax*NormPulse[o+1]);
        dc.MoveTo(o, y1);
        dc.LineTo(o+1,y2);
    }
}

//Geglätteten und normierten Puls zeichnen - G.L.
dc.SelectObject(&pen_red);
if ( (m_SmoothPulse.GetCheck()) && (m_PulseNormalization.GetCheck()) )
{

```



```

        NormalizePulse();
        for (o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
        {
            y1=round(0.9*ymax-0.9*ymax*NormPulse[o]);
            y2=round(0.9*ymax-0.9*ymax*NormPulse[o+1]);
            dc.MoveTo(o, y1);
            dc.LineTo(o+1,y2);
        }
    }

//Geglätteten Puls zeichnen - G.L.
if ( (m_SmoothPulse.GetCheck()) && (!m_PulseNormalization.GetCheck()) )
{
    SmoothPulse();
    for (o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
    {
        y1=round(0.9*ymax+1-SmoothPulse1[o]);
        y2=round(0.9*ymax+1-SmoothPulse1[o+1]);
        dc.MoveTo(o, y1);
        dc.LineTo(o+1,y2);
    }
}

//Maxima suchen nach Norbert Wiehl - G.L.
int nAnzMax = 0,nAnzMax2=0;
bool up = false,down=false;
float bk = 0.0;

if (!m_SmoothPulse.GetCheck())
    SmoothPulse();

//Zunächst Bestimmung eines "mittleren Grundrauschens" (bk)
//für die ersten 30 Punkte des unbearbeiteten Pulses.
//bk/30 wäre also im Prinzip nichts anderes als eine Grundlinie. - G.L.
for (int il=0;il<30;il++)
    bk=bk+127+(-1)*TCAcq[k].D[il];

//Als Schwelle für ein signifikantes Signal wird die
//doppelte Grundlinie gesetzt (deswegen der Faktor 15)
//Das bedeutet: Nur ein Punkt, der über der doppelten
//Grundlinie liegt, wird von der nachfolgenden Routine beachtet. - G.L.
bk=bk/15;

//Problem: Bei NW arbeitet diese Routine mit dem
//Originalpuls, wodurch zu viele Maxima gefunden werden. Hier
//wird deshalb der geglättete Puls genommen, was bedingt, dass
//zuwenig Maxima gefunden werden, besonders wenn ein zweites
//Maximum zu wenig (Schulter) ausgeprägt ist. - G.L.
for (il=2;il<(TCAcq[k].returnedSamples-9);il++)
{
    if ( (SmoothPulse1[il] > bk)
        && (SmoothPulse1[il+1] >= SmoothPulse1[il])
        && (SmoothPulse1[il+2] >= SmoothPulse1[il+1])
        && (SmoothPulse1[il+3] > SmoothPulse1[il+2]) )
    {
        up = true;
    }
    else
    {
        if ((up) && (nAnzMax<10))
        {
            nPulseMaximum[nAnzMax] = il+3;
            nAnzMax++;
            up = false;
        }
    }
}

//Peaks zeichnen, wenn verlangt - G.L.
if (m_PeakSearch.GetCheck())
{
    dc.SelectObject(&pen_blue);
    for (int p1=0;p1<nAnzMax;p1++)
    {

```

```

        dc.MoveTo(nPulseMaximum[p1],0);
        dc.LineTo(nPulseMaximum[p1],ymax);
    }

//Hier soll ein Startpunkt für den Puls gefunden werden.
//Dabei wird links des ersten Maximums der Punkt gesucht
//der als erster die Grundlinie bk/1.75 unterschreitet
//(gesucht wird vom Maximum ausgehend nach links). Gleichzeitig
//werden die Grenzen m_nLeft und m_nRight festgelegt, was
//ansonsten in den Funktionen OnChangeEditLinks bzw.
//OnChangeEditRechts passieren würde. - G.L.
int nStartpunkt=0;

for (int i2=nPulseMaximum[0];i2>0;i2--)
{
    if ( (SmoothPulse1[i2] <= (bk/1.75)) && (nStartpunkt == 0) )
    {
        nStartpunkt=i2;
        m_nLeft=nStartpunkt;
        m_nRight=nStartpunkt+175;
    }
}

//Hier soll jetzt der Endpunkt des Pulses gefunden werden.
//Im Prinzip handelt es sich um die gleiche Funktion wie die
//oben stehende zum Auffinden des Startpunktes mit dem
//Unterschied, dass sie jetzt in die andere Richtung läuft.
nAnzMax2 = 0;

for (int i3=m_nRight;i3>=m_nLeft;i3--)
{
    if ( (SmoothPulse1[i3] > bk)
        && (SmoothPulse1[i3-1] >= SmoothPulse1[i3])
        && (SmoothPulse1[i3-2] >= SmoothPulse1[i3-1])
        && (SmoothPulse1[i3-3] > SmoothPulse1[i3-2]) )
    {
        down = true;
    }
    else
    {
        if ( (down) && (nAnzMax2<10) )
        {
            nPulseMaximum2[nAnzMax2] = i3-3;
            nAnzMax2++;
            down = false;
        }
    }
}

int nEndpunkt=0;

for (int i4=nPulseMaximum2[0];i4<m_nRight;i4++)
{
    if ( (SmoothPulse1[i4] <= (bk/1.75)) && (nEndpunkt == 0) )
        nEndpunkt=i4;
}
if (nEndpunkt == 0)
    nEndpunkt=m_nRight;

//Grenzen und Endpunkt einzeichnen - G.L.
dc.SelectObject(&pen_red);
dc.MoveTo(m_nLeft,0);
dc.LineTo(m_nLeft,ymax);
dc.MoveTo(m_nRight,0);
dc.LineTo(m_nRight,ymax);
dc.SelectObject(&pen_blue);
dc.MoveTo(nEndpunkt,0);
dc.LineTo(nEndpunkt,ymax);

ShowPulseInfo();
}

void CAcqirisReader2Dlg::ShowPulseInfo()

```

```

{
    //Zeigt im Fenster die jeweils aktuellen Infos zu den Pulsen an.
    //Da die entsprechenden Variablen zur Anzeige zur Anzeige vom Typ CString sind,
    //wird hier bei der Übernahme von Zahlenwerten mit der Funktion
    //Format (die ähnlich sprintf ist) aus CString gearbeitet. - G.L.
    m_strPulsNummer.Format("%d",k);
    m_strFileNumber.Format("%d",1);
    m_strStartDatum=TFH.StartDatum;
    m_strStartDatum.Delete(0,1);
    m_strStartZeit=TFH.StartZeit;
    m_strStartZeit.Delete(0,1);
    m_strSegmente.Format("%d",TFH.Segmente);
    m_strMesspunkte.Format("%d",TFH.Messpunkte);
    m_strMesszeit.Format("%d",TFH.Messzeit);
    m_strReturnedSamples.Format("%d",TCAcq[k].returnedSamples);
    m_strAddrFirstPoint.Format("%d",TCAcq[k].addrFirstPoint);

    m_strHorPos.Format("%e",TCAcq[k].horPos);
    m_strSampTime.Format("%e",TCAcq[k].sampTime);
    m_strVGain.Format("%f",TCAcq[k].vGain);
    m_strVOffset.Format("%f",TCAcq[k].vOffset);

    m_strTimeStampLo.Format("%u",TCAcq[k].timeStampLo);
    m_strTimeStampHi.Format("%u",TCAcq[k].timeStampHi);

    //Das klappt nicht richtig, ist aber auch nicht wichtig. - G.L.
    __int64 timeStamp = TCAcq[k].timeStampHi;
    timeStamp = (timeStamp<<32) + (unsigned long)TCAcq[k].timeStampLo;

    m_strTimeStamp.Format("%7.2f",float(timeStamp/1e9));
    m_strPulszahl.Format("%d",nPulseCount);
    m_strDummy.Format("%d",nDummy);
    m_strAlpha.Format("%d",nAlpha);
    m_strSonstige.Format("%d",nSonstige);
    UpdateData(false);
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnButtonFileOpen()
{
    //Öffnet die Messdatei. Der Dateiname kann mit
    //Hilfe einer Standarddialogbox gewählt werden. - G.L.
    CString strDateiname,strPfadname;
    CFileDialog dlg(TRUE,"*_","*_");
    bool bDlg=false;
    int nDlgResult;

    do
    {
        //Öffnen der "Datei öffnen"-Dialogbox - G.L.
        nDlgResult=dlg.DoModal();

        //Öffnen der Datei - G.L.
        if (nDlgResult==IDOK)
        {
            bDlg=true;
            strPfadname=dlg.GetPathName();
            strDateiname=dlg.GetFileName();
            m_strFilename=strPfadname;
            if (bDataFileOpen)
            {
                int m=fclose(fz);
                k=0;
            }
            fz=fopen(strPfadname,"rb");

            //Einlesen des Fileheaders - G.L.
            bDataFileOpen=true;
            fread(&TFH,sizeof(CFileheader),1,fz);

            //Initialisierung - G.L.
            for (i=0;i<=TFH.Segmente;i++)
            {
                for (j=0;j<z;j++)
                    TCAcq[i].D[j]=0;
            }
        }
    }
}

```

```

        TCACq[i].returnedSamples=0;
        TCACq[i].addrFirstPoint=0;
        TCACq[i].horPos[0]=0;
        TCACq[i].horPos[1]=0;
        TCACq[i].sampTime[0]=0;
        TCACq[i].sampTime[1]=0;
        TCACq[i].vGain[0]=0;
        TCACq[i].vGain[1]=0;
        TCACq[i].vOffset[0]=0;
        TCACq[i].vOffset[1]=0;
        TCACq[i].timeStampLo=0;
        TCACq[i].timeStampHi=0;
    }

    //Messdaten lesen - G.L.
    for (i=0;i<=TFH.Segmente;i++)
        fread(&TCACq[i],sizeof(CFiledaten),1,fz);
}

//Beenden der "Datei öffnen"-Dialogbox - G.L.
if (nDlgResult==IDCANCEL)
    bDlg=true;

//Dieser Aufruf ist nur nötig bei der automatischen Zuordnung
//der Grenzen. Siehe Erklärungen bei OnChangeEditLinks() etc. - G.L.
PaintPulse();
}
while (!bDlg);
bDlg=false;
}

void CACqirisReader2Dlg::OnButtonPreviousPulse()
{
    if (!bDataFileOpen)
        FileMessage(1,0);
    else
    {
        if (k>0)
            k--;
        PaintPulse();
    }
}

void CACqirisReader2Dlg::OnButtonNextPulse()
{
    if (!bDataFileOpen)
        FileMessage(1,0);
    else
    {
        if (k<TFH.Segmente)
            k++;
        PaintPulse();
    }
}

void CACqirisReader2Dlg::OnChangeEditLinks()
{
    //ACHTUNG: Diese Funktion ist deaktiviert, da der
    //Startpunkt eines Pulses in der Funktion PaintPulse()
    //festgelegt wird. Dort wird auch der Wert für
    //den linken (m_nLeft) und den rechten (m_nRight) Rand
    //eines Pulses übergeben. - G.L.
    int m_nLeftTemp;

    //Diese Funktion dient der manuellen Eingabe von
    //Grenzen für den Szintillationspuls. Der Puls sollte
    //nicht länger als 250 Punkte sein, da sonst SMART
    //damit nicht arbeiten kann. - G.L.
    if (!bDataFileOpen)
        FileMessage(1,0);
    else
    {
        //Auf diese Prüfung kann auch verzichtet werden. Sie soll nur

```

```

//sicherstellen, dass die eingegebenen Grenzen Sinn machen.
//Kann sich aber später als hinderlich erweisen. Dann kann
//man die beiden if-Schleifen entfernen und auch auf die
//temporäre Variable m_nLeftTemp verzichten. - G.L.
m_nLeftTemp=GetDlgItemInt(IDC_EDIT_LINKS);
if ((m_nLeftTemp>=m_nRight) && (m_nLeftTemp>=0))
    AfxMessageBox("Die linke Grenze muss kleiner als die rechte
sein.",MB_OK|MB_ICONEXCLAMATION);
if ((m_nLeftTemp< m_nRight) && (m_nLeftTemp>=0) && bDataFileOpen)
    m_nLeft=m_nLeftTemp;
PaintPulse();
}
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnChangeEditRechts()
{
    //ACHTUNG: Diese Funktion ist deaktiviert. Siehe Kommentar oben. - G.L.
    int m_nRightTemp;

    if (!bDataFileOpen)
        FileMessage(1,0);
    else
    {
        //Kommentar analog zur obigen Funktion. - G.L.
        m_nRightTemp=GetDlgItemInt(IDC_EDIT_RECHTS);
        if ((m_nRightTemp<=m_nLeft) && (m_nRightTemp>=0))
            AfxMessageBox("Die rechte Grenze muss größer als die linke
sein.",MB_OK|MB_ICONEXCLAMATION);
        if ((m_nRightTemp>500))
            AfxMessageBox("Die rechte Grenze darf nicht größer als 500
sein.",MB_OK|MB_ICONEXCLAMATION);
        if
            ((m_nRightTemp> m_nLeft) && (m_nRightTemp>=0) &&
(m_nRightTemp<=500)
&& bDataFileOpen)
            m_nRight=m_nRightTemp;
        PaintPulse();
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnButtonCreateNNFile()
{
    //Erzeugt die Datei für das neuronale Netz. Der Dateiname
    //kann mit Hilfe einer Standarddialogbox gewählt werden.
    //Kommentare analog zur Funktion OnButtonFileOpen. - G.L.
    CString strNNDateiname;
    CFileDialog dlg(FALSE,"dat","*.dat");
    bool bDlg=false;
    int nDlgResult;

    if (!bDataFileOpen)
        FileMessage(1,0);
    else
    {
        nDlgResult=dlg.DoModal();
        do
        {
            if (nDlgResult==IDOK)
            {
                CloseNNFile();
                bDlg=true;
                strNNDateiname=dlg.GetFileName();
                m_strNNDateiname=dlg.GetPathName();
                if ((fy=fopen(strNNDateiname,"w"))==NULL)
                {
                    NNFileErrorMessage();
                    strNNDateiname = "";
                }
            }
            else
                bNNFileOpen=true;
            if (bNNFileOpen)
            {
                //Hält Platz frei für den Eintrag der Funktion
                //CloseNNFile(). Deren Eintrag sollte aber die-
                sen
            }
        }
    }
}

```

```

        //Platz nicht überschreiten, weil sonst SMART
        die
        //Daten nicht einlesen kann - G.L.
        fprintf(fy,"          \n          ");
    }
    nPulseCount=0;
    nDummy=0;
    nAlpha=0;
    nSonstige=0;
    CreateInfoFile(strNNDateiname);
}
if (nDlgResult==IDCANCEL)
    bDlg=true;
if (bDataFileOpen)
    PaintPulse();
}
while (!bDlg);
bDlg=false;
}
}

void CACqirisReader2Dlg::NNFile(int nAlphaFlag,int nSonstigesFlag)
{
    //Schreibt in die Datei für das neuronale Netz die Pulsdaten
    //und ruft die Funktion InfoFile() auf, welche in der Info-Datei
    //die Herkunft des Pulses vermerkt. - G.L.
    if (bNNFileOpen)
    {
        if (m_PulseNormalization.GetCheck()==false)
        {
            for (j=m_nLeft;j<m_nRight;j++)
                fprintf(fy,"%d ",TCAcq[k].D[j]);
        }
        else
        {
            NormalizePulse();
            for (j=m_nLeft;j<m_nRight;j++)
                fprintf(fy,"%1.3f ",NormPulse[j]);
        }
        fprintf(fy,"%d %d\n",nAlphaFlag,nSonstigesFlag);
        nPulseCount++;
        InfoFile(nAlphaFlag,nSonstigesFlag);
    }
}

void CACqirisReader2Dlg::OnButtonSaveNNFile()
{
    fpos_t position;

    if (bNNFileOpen)

        // Ermitteln der Position des Dateizeigers, Schließen, Wiederöffnen der
        // Datei, Verschieben des Dateizeigers an die zuvor ermittelte Position.
        // Normalerweise wäre diese umständliche Operation nicht nötig, wenn man
        // als Option für fopen statt "r+" hier "a"/"a+" nehmen würde. Allerdings
        // würde dann die Funktion CloseNNFile() nicht vernünftig funktionieren,
        // da der dort verwendete Befehl "rewind" auf den "richtigen" Dateizeiger
        // angewiesen ist. - G.L.

        if (fgetpos(fy,&position)==0)
        {
            if ((fclose(fy))==0)
            {
                bNNFileOpen=false;
                if ((fy=fopen(m_strNNDateiname,"r+"))==NULL)
                {
                    NNFileErrorMessage();
                    m_strNNDateiname="";
                }
            }
            else
            {
                fsetpos(fy,&position);
                bNNFileOpen=true;
            }
        }
}

```

```

        }
    }
    else
        AfxMessageBox("Probleme mit 'fgetpos'!",MB_OK|MB_ICONEXCLAMATION);
else
    if (!bDataFileOpen)
        FileMessage(1,1);
    else
        FileMessage(0,1);
}

void CAcqirisReader2Dlg::CloseNNFile()
{
    if (bNNFileOpen)
    {
        // Eintragen des für SMART *.dat-Dateien notwendigen Fileheaders
        // ("DATAFILE", Zahl der Datensätze, Größe eines Datensatzes - G.L.
        rewind(fy);
        fprintf(fy,"DATAFILE \n");
        fprintf(fy,"%d %d\n",nPulseCount,m_nRight-m_nLeft+2);
        if (fclose(fy)==0)
            bNNFileOpen=false;
        int n=fclose(fx);
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::NNFileCheck()
{
    //Prüft, ob die entsprechenden Dateien schon geöffnet wurden - G.L.
    if (!bNNFileOpen)
    {
        if (!bDataFileOpen)
            FileMessage(1,1);
        else
            FileMessage(0,1);
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnButtonNoParameter()
{
    NNFileCheck();
    NNFile(0,0);
    if (bDataFileOpen && bNNFileOpen)
    {
        nDummy++;
        if (k<TFH.Segmente)
            k++;
        PaintPulse();
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnButtonAlpha()
{
    NNFileCheck();
    NNFile(1,0);
    if (bDataFileOpen && bNNFileOpen)
    {
        nAlpha++;
        if (k<TFH.Segmente)
            k++;
        PaintPulse();
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::OnButtonSonstiges()
{
    NNFileCheck();
    NNFile(0,1);
    if (bDataFileOpen && bNNFileOpen)
    {
        nSonstige++;
        if (k<TFH.Segmente)
            k++;
        PaintPulse();
    }
}

```

```

    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::CreateInfoFile(CString strInfoFileName)
{
    //Erzeugt die Info-Datei. Aus dem an strInfoFileName übergebenen
    //Namen wird die Dateiendung gelöscht und durch .nni ersetzt - G.L.
    strInfoFileName.Delete(strInfoFileName.GetLength()-4,4);
    if ((fx=fopen(strInfoFileName+".nni","w"))==NULL)
    {
        NNFileErrorMessage();
        strInfoFileName = "";
    }
}

void CAcqirisReader2Dlg::InfoFile(int nAlphaFlag,int nSonstigesFlag)
{
    //Schreibt Infos zu Pulsen in Info-Datei (*.nni) - G.L.
    fprintf(fx,"%d %s %s %s %d %d %d %d\n",nPulseCount,m_strFilename,"",
        m_strPulsNummer,m_nLeft,m_nRight,nAlphaFlag,nSonstigesFlag);
}

void CAcqirisReader2Dlg::NormalizePulse()
{
    signed char Dmin=127,Dmax=-128;
    double Mmax,Mmin;

    //Diese Funktion normiert den geglätteten oder ungeglätteten Puls. - G.L.
    if (m_SmoothPulse.GetCheck())
    {
        SmoothPulse();
        Mmax=0.0;
        Mmin=255.0;

        //Für die Normierung des Pulses müssen natürlich erst einmal
        //Maximum und Minimum gefunden werden. - G.L.
        for (int o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
        {
            if (Mmin>SmoothPulse1[o])
                Mmin=SmoothPulse1[o];
            if (Mmax<SmoothPulse1[o])
                Mmax=SmoothPulse1[o];
        }

        for (o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
        {
            //Berechnung des auf 1 normierten Pulses. Die Normierung
            //funktioniert allgemein nach der Formel
            //x_norm = (x_norm_max-x_norm_min)*(x-x_min)/(x_max-x_min).
            //Dabei sind stellen x_norm_max und x_norm_min den Bereich dar,
            //auf den normiert werden soll. x ist der aktuelle Wert und
            x_min
            //und x_max sind Minimum und Maximum von allen möglichen x.
            Daraus
            //folgt hier:
            //x= (1 -0 )*(x-Mmin)/(Mmax-Mmin) - G.L.
            NormPulse[o]=((SmoothPulse1[o]-Mmin)/(Mmax-Mmin));
        }
    }

    if (!m_SmoothPulse.GetCheck())
    {
        //Für die Normierung des Pulses müssen natürlich erst einmal
        //Maximum und Minimum gefunden werden. - G.L.
        for (int o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
        {
            if (Dmin>TCAcq[k].D[o])
                Dmin=TCAcq[k].D[o];
            if (Dmax<TCAcq[k].D[o])
                Dmax=TCAcq[k].D[o];
        }

        //Wegen der Arithmetik mit 127/128 (s.o.) ist der zunächst gefundene
        //Minimalwert in Wirklichkeit das Maximum und vice versa. Die Funktion
    }
}

```



```

    //_chgsign() kehrt das Vorzeichen eines double-Wertes um. - G.L.
    Mmax=_chgsign(double(Dmin))+127.0;
    Mmin=_chgsign(double(Dmax))+127.0;

    for (o=0;o<(TCAcq[k].returnedSamples);o++)
    {
        //Berechnung des auf 1 normierten Pulses; Die Normierung
        //funktioniert allgemein nach der Formel
        //x_norm = (x_norm_max-x_norm_min)*(x-x_min)/(x_max-x_min).
        //Dabei sind stellen x_norm_max und x_norm_min den Bereich dar,
        //auf den normiert werden soll. x ist der aktuelle Wert und
        x_min
        //und x_max sind Minimum und Maximum von allen möglichen x.
        Daraus
        //folgt hier:
        //x= (1 -0 )*(x-Mmin)/(Mmax -Mmin) - G.L.
        NormPulse[o]=((127.0+(_chgsign(double(TCAcq[k].D[o]))) -Mmin)/
        (Mmax-Mmin));
    }
}

void CACqirisReader2Dlg::SmoothPulse()
{
    //Glättung des Pulses über eine 5-Punkt-Mittelung. - G.L.
    for (int o=0;o<TCAcq[k].returnedSamples;o++)
        SmoothPulse1[o]=SmoothPulse2[o]=127+(-1)*TCAcq[k].D[o];

    for (o=2;o<TCAcq[k].returnedSamples-2;o++)
    {
        short Summe;

        Summe=0;
        for (int o1=0;o1<5;o1++)
            Summe=Summe+SmoothPulse2[o-2+o1];
        SmoothPulse1[o]=short(Summe/5);
    }

    SmoothPulse1[1]=SmoothPulse1[3];
    SmoothPulse1[2]=SmoothPulse1[3];
    SmoothPulse1[TCAcq[k].returnedSamples]=SmoothPulse1[TCAcq[k].returnedSamples-2];
    SmoothPulse1[TCAcq[k].returnedSamples-1]=SmoothPulse1[TCAcq[k].returnedSamples-2];
}

void CACqirisReader2Dlg::OnCheckPulseNormalization()
{
    if (bDataFileOpen)
        PaintPulse();
}

void CACqirisReader2Dlg::OnCheckSearchPeak()
{
    if (bDataFileOpen)
        PaintPulse();
}

void CACqirisReader2Dlg::OnCheckSmoothPulse()
{
    if (bDataFileOpen)
        PaintPulse();
}

void CACqirisReader2Dlg::FileMessage(bool m,bool n)
{
    CString message;
    if (m)
        if (n)
            message="Daten- und Neuronet";
        else
            message="Daten";
    else
        message="Neuronet";
    AfxMessageBox("Bitte erst "+message+"-File öffnen!",MB_OK|MB_ICONEXCLAMATION);
}

```

### A3 Verwendete Abkürzungen und Akronyme:

|                |   |
|----------------|---|
| ADC            | <i>Analog-Digital-Konverter</i>   |
| AIDA           | <i>Automated Ion Exchange Apparatus Coupled with Detection System for Alpha Spectroscopy</i>        |
| AKUFVE         | <i>Anordning för Kontinuerlig Undersökning av Fördelningsjämvikter vid Vätske-Vätske Extraktion</i> |
| ARCA           | <i>Automated Rapid Chemistry Apparatus</i>  |
| BGS            | <i>Berkeley Gas-Filled Separator</i>  |
| Dimethyl-POPOP | <i>1,4-Bis(4-methyl-5-phenyloxazol-2-yl)-benzol; 2,2'-p-Phenylenbis(4-methyl-5-phenyloxazol)</i>    |
| CSPA           | <i>Charge sensitive preamplifier</i>  |
| DBP            | <i>Dibutylphosphat</i>  |
| GOOSY          | <i>GSI Online Offline System</i>  |
| GSI            | <i>Gesellschaft für Schwerionenforschung</i>  |
| HPLC           | <i>High Performance Liquid Chromatography</i>   |
| IC             | <i>Internal conversion</i>  |
| ISC            | <i>Intersystem crossing</i>   |
| LBNL           | <i>Lawrence Berkeley National Laboratory</i>  |
| LSC            | <i>Liquid Scintillation Counting</i>  |
| MCT            | <i>Multi Column Technique</i>   |
| OLGA           | <i>On-Line Gas Chemistry Apparatus</i>  |
| PIPS           | <i>Passivated Ion Implanted Planar Silicon</i>  |
| PM             | <i>Photomultiplier</i>  |
| PSA            | <i>Pulse Shape Analysis</i>   |
| PSD            | <i>Pulse shape discrimination (unit)</i>  |
| PSD-NN         | <i>Pulsformdiskriminierung mit neuronalen Netzen</i>  |
| PSI            | <i>Paul-Scherrer-Institut</i>   |
| RTC            | <i>Recoil Transfer Chamber</i>  |
| PUR            | <i>Pile up rejector</i>   |
| QIP            | <i>Quench indicating parameter</i>  |
| SISAK          | <i>Short-lived Isotopes Studied by the AKUFVE Technique</i>   |
| TAC            | <i>Time to amplitude converter</i>  |
| TOA            | <i>n-Trioctylamin</i>   |
| UNILAC         | <i>Universal Linear Accelerator</i>   |

**Literatur**

- [Alstad95] J. Alstad, G. Skarnemark, F. Haberberger, G. Herrmann, A. Nähler, M. Pense-Maskow, N. Trautmann; *Development of new centrifuges for fast solvent extraction of transactinide elements*, J. Radionucl. Chem. 189(1), 133-139 (1995)
- [Alstad01] J. Alstad; *The observed yield in Rf experiments*, 5<sup>th</sup> Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements, Hasliberg (2001)
- [Ambriola97] M. Ambriola, R. Bellotti, M. Castellano, G. De Cataldo, C. De Marzo; *A study on a position sensitive time of flight detector based on a neural network signal processing*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 387, 83-85 (1997)
- [Armbruster00] P. Armbruster; *On the quest of production of superheavy nuclei in reactions of <sup>48</sup>Ca with the heaviest actinide targets*, Europ. Phys. J. A 7, 23-33 (2000)
- [Aupiais00] J. Aupiais, N. Dacheux; *Understanding the peak asymmetry in alpha liquid scintillation with  $\beta/\gamma$  discrimination*, Radiochim. Acta 88, 391-398 (2000)
- [Aupiais01] J. Aupiais; *Energy Transfer in Liquid Scintillation Cocktail and Effect of Internal Conversion on Alpha Peak Shape*, Vortrag im Seminar für Kern- und Radiochemie, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2001)
- [Aupiais02] J. Aupiais; Persönliche Mitteilung (2002)
- [Bellotti94] R. Bellotti, M. Castellano, C. De Marzo, G. Pasquariello, G. Satalino, P. Spinelli; *A neural network for positron identification by transition radiation detector*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 350, 556-560 (1994)
- [Berlman73] I. B. Berlman, O. J. Steingraber; *Liquid scintillation solutions for pulse-shape discrimination*, Nucl. Instr. Meth. 108, 587-591 (1973)
- [Birks64] J. B. Birks; *The Theory and Practice of Scintillation Counting*; Pergamon Press (1964)
- [Borg81] R. J. Borg, G. J. Dienes; *On the validity of single atom chemistry*, J. Inorg. Nucl. Chem. 43, 1129-1133 (1981)
- [Colle97] R. Colle, B. E. Zimmerman; *A Compendium on the NIST Radionuclidic Assays of the Massic Activity of <sup>63</sup>Ni and <sup>55</sup>Fe Solutions Used for an International Intercomparison of Liquid Scintillation Spectrometry Techniques*, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. 102, 523-549 (1997)
- [Cwiok99] S. Cwiok, P. Magierski; *Skyrme-Hartree-Fock Theory for Shell Structure of Superheavy Elements*, in *Heavy Elements and Related New Phenomena*, World Scientific, 277-331 (1999)

[Dalton02] R. Dalton; *California lab fires physicist over retracted finding*, Nature 418, 261 (2002)

[Düllmann02] Ch. E. Düllmann, W. Bröchle, R. Dressler, K. Eberhardt, B. Eichler, R. Eichler, H. W. Gäggeler, T. N. Ginter, F. Glaus, K. E. Gregorich, D. C. Hoffmann, E. Jäger, D. T. Jost, U. W. Kirbach, D. M. Lee, H. Nitsche, J. B. Patin, V. Pershina, D. Piguet, Z. Qin, M. Schädel, B. Schausten, E. Schimpf, H.-J. Schött, S. Soverna, R. Sudowe, P. Thörle, S. N. Timokhin, N. Trautmann, A. Türler, A. Vahle, G. Wirth, A. B. Yakushev, P. M. Zielinski; *Chemical investigation of hassium (element 108)*, Nature 418, 859-862 (2002)

[Eberhardt99] K. Eberhardt; *Persönliche Mitteilung* (1999)

[Eberhardt01] K. Eberhardt, J. Alstad, H. Breivik, H. W. Gäggeler, J. E. Dyve, E. A. Hult, M. Johansson, D. Jost, J. V. Kratz, G. Langrock, M. Mendel, A. Nähler, J. P. Omtvedt, G. Skarnemark, N. Trautmann, A. Türler, N. Wiehl; *Einsatz des Zentrifugensystems SISAK-3 zum Nachweis von <sup>261</sup>Rf mittels Flüssigszintillationsspektroskopie und digitaler Pulsformanalyse*, Jahresbericht 2000, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2001)

[Eberhardt02] K. Eberhardt, V. Hessel, J. V. Kratz, A. Müller, A. Nähler, N. Trautmann; *Von SISAK-3 zu MicroSISAK*, Jahresbericht 2001, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2002)

[Essel87] H. G. Essel, H. Grein, T. Kroll, W. Kynast, M. Richter, H. Sohlbach, W. Spreng, K. Winkelmann, W. F. J. Müller; *IEEE Trans. on Nucl. Sci. NS-34*, 907 (1987)

[Förster48] Th. Förster; *Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz*, Ann. Physik 6(2), 55-77 (1948)

[Förster54] Th. Förster, K. Kasper; *Ein Konzentrationsumschlag der Fluoreszenz*, Z. Physik. Chemie. NF 1, 275-277 (1954)

[Förster69] Th. Förster; *Excimere*, Angew. Chem. 81(10), 364-374 (1969)

[Gäggeler91] H. W. Gäggeler, D. T. Jost, U. Baltensperger, A. Weber, J. Kovacs, D. Vermeulen, A. Türler; *OLGA II, an on-line gas chemistry apparatus for applications in heavy element research*, Nucl. Instrum. Methods A 309, 201-208 (1991)

[Gruppen93] C. Gruppen; *Teilchendetektoren*, BI Wissenschaftsverlag (1993)

[Guillaumont89] R. Guillaumont, J. P. Adloff, A. Peneloux; *Kinetic and Thermodynamic Aspects of Tracer-Scale and Single Atom Chemistry*, Radiochim. Acta 46, 169-176 (1989)

[Guillaumont91] R. Guillaumont, J. P. Adloff, A. Peneloux, P. Delamoye; *Sub-tracer Scale Behaviour of Radionuclides. Application to Actinide Chemistry*, Radiochim. Acta 54, 1-15 (1991)

[Haba01] H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, I. Nishinaki, M. Sakama, S. Goto, M. Hirata, S. Ichikawa, Y. Nagame, T. Kaneko, H. Kudo, A. Toyoshima, Y. Shoji, A. Yokoyama, A. Shinohara, Y. Oura, K. Sueki, H. Nakahara, M. Schädel, J. V. Kratz, A. Türler, H. W. Gäggeler; *Startup of transactinide chemistry in JAERI*, Radiochim. Acta 89, 733-736 (2001)

[Haba02] H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, S. Goto, A. Toyoshima, I. Nishinaki, K. Akiyama, M. Hirata, S. Ichikawa, Y. Nagame, Y. Shoji, M. Shigekawa, T. Koike, M. Iwasaki, A. Shinohara, T. Kaneko, T. Maruyama, S. Ono, H. Kudo, Y. Oura, K. Sueki, H. Nakahara, M. Sakama, A. Yokoyama, J. V. Kratz, M. Schädel, W. Brüchle; *Anion-exchange Behavior of Rf in HCl and HNO<sub>3</sub> Solutions*, J. Nucl. Radiochem. Sci. 3(1), 143-146 (2002)

[Haken98] H. Haken, H. C. Wolf; *Molekülphysik und Quantenchemie*, Springer (1998)

[Hofmann96] S. Hofmann, V. Ninov, F. P. Hessberger, P. Armbruster, H. Folger, G. Münzenberg, H. J. Schött, A. G. Popeko, A. V. Yeremin, S. Saro, R. Janik, M. Leino; *The new element 112*, Z. Phys. A 354, 229-230 (1996)

[Hofmann02] S. Hofmann, F. P. Heßberger, D. Ackermann, G. Münzenberg, S. Antalic, P. Cagarda, B. Kindler, J. Kojouharova, M. Leino, B. Lommel, R. Mann, A. G. Popeko, S. Reshitko, S. Saro, J. Uusitalo, A. V. Yeremin; *New results on elements 111 and 112*, Eur. Phys. J. A 14, 147-157 (2002)

[Hult99] E. A. Hult; unveröffentlichte Ergebnisse (1999)

[IUPAC01] Pure Appl. Chem. 73(6), 959-967 (2001)

[Johansson00] M. Johansson; *Radiochemical Separation Systems adapted for Studying Transactinide Chemistry with SISAK*, Dissertation, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, University of Oslo (2001)

[Kaiholo00] L. Kaihola; *Radionuclide identification in liquid scintillation alpha-spectroscopy*, J. Radioanal. Nucl. Chem. 243(2), 313-317 (2000)

[Kashirin01] I. A. Kashirin, A. I. Ermakov, S. V. Malinovskiy, S. V. Belanov, K. M. Efimov, V. A. Tikhomirov, A. I. Sobolev; *Development of LS Installation Using Automated Spectra Processing*, LSC 2001, Karlsruhe (2001)

[Kling00] H. O. Kling; *Acqiris Digitizer*, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2000)

[Kowalski70] E. Kowalski; *Nuclear Electronics*, Springer (1970)

[Kronenberg01] A. Kronenberg; *Entwicklung einer online-Chromatographie für Element 106 (Seaborgium)*, Dissertation, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2001)

[Kruppa00] A. T. Kruppa, M. Bender, W. Nazarewicz, P.-G. Reinhard, T. Vertse, S. Cwiok; *Shell corrections of superheavy nuclei in self-consistent calculations*, Phys. Rev. C 61(3), 034313-1-034313-13 (2000)

[Langrock99a] G. Langrock; unveröffentlichte Ergebnisse (1999)

[Langrock99b] G. Langrock, K. Saalwächter, E. Strub, J. V. Kratz; *Untersuchungen einer unerwünschten Reaktion bei Experimenten zu chemischen Eigenschaften von Rutherfordium mit dem SISAk-System*, Jahresbericht 1998, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität (1999)

[Langrock01] G. Langrock, M. Messerschmidt, N. Wiehl, H. O. Kling, M. Mendel, A. Nähler, U. Tharun, K. Eberhardt, N. Trautmann, J. V. Kratz; G. Skarnemark; J. P. Omtvedt, M. Johansson, E. A. Hult, J. E. Dyve, H. Breivik, J. Alstad; *Digital Pulse Shape Discrimination using Artificial Neural Networks*, LSC 2001, Karlsruhe (2001)

[Malinovskiy01] S. V. Malinovskiy, I. A. Kashirin, A. I. Ermakov, V. A. Tikhomirov, S. V. Belanov, A. I. Sobolev; *Mathematical Aspects of Decoding Complex Spectra Applied to LSC*, LSC 2001, Karlsruhe (2001)

[Marinov96] A. Marinov, S. Gelberg, D. Kolb; *Discovery of strongly enhanced low energy alpha decay of a long-lived isomeric state obtained in  $^{16}\text{O} + ^{197}\text{Au}$  reaction at 80 MeV, probably to superdeformed band*, Mod. Phys. Lett. A 11(11), 861-869 (1996)

[McDowell94] W. J. McDowell, B. L. McDowell; *Liquid scintillation alpha spectrometry*, CRC Press (1994)

[Meiler99] J. Meiler; *SMART*, www.jens-meiler.de (1998-1999)

[Meiler01] J. Meiler; *Mathematische Verfahren zur Aufklärung der Struktur, Dynamik und Biologischen Aktivität von Molekülen unter Verwendung von NMR Spektroskopischen und Empirischen Parametern*, Dissertation, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main, DF1 (2001)

[Messerschmidt00] M. Messerschmidt, *Einsatz künstlicher neuronaler Netzwerke zur Pulsformdiskriminierung in der Flüssigszintillationsspektroskopie*, Protokoll Kernchemisches Praktikum 2 (2000)

[Möller94] P. Möller, J. R. Nix; *Stability of heavy and superheavy elements*, Nucl. Part. Phys. 20, 1681-1747 (1994)

[Ninov99] V. Ninov, K. E. Gregorich, W. Loveland, A. Ghiorso, D. C. Hoffman, D. M. Lee, H. Nitsche, W. J. Swiatecki, U. W. Kirbach, C. A. Laue, J. L. Adams, J. B. Patin, D. A. Shaughnessy, D. A. Strellis, P. A. Wilk; *Observation of Superheavy Nuclei Produced in the Reaction of  $^{86}\text{Kr}$  with  $^{208}\text{Pb}$* , Phys. Rev. Lett. 83(6), 1104-1107 (1999)

[Ninov02] V. Ninov, K. E. Gregorich, W. Loveland, A. Ghiorso, D. C. Hoffman, D. M. Lee, H. Nitsche, W. J. Swiatecki, U. W. Kirbach, C. A. Laue, J. L. Adams, J. B. Patin, D. A. Shaughnessy, D. A. Strellis, P. A. Wilk; *Editorial Note: Observation of Superheavy Nuclei Produced in the Reaction of  $^{86}\text{Kr}$  with  $^{208}\text{Pb}$* , Phys. Rev. Lett. 89(3), 039901(1) (2002)

[Oganessian99a] Yu. Ts. Oganessian, A. V. Yeremin, G. G. Gulbekian, S. L. Bogomolov, V. I. Chepigin, B. N. Gikal, V. A. Gorshkov, M. G. Itkis, A. P. Kabachenko, V. B. Kutner, A. Yu. Lavrentev, O. N. Malyshev, A. G. Popeko, J. Rohac, R. N. Sagaidak, S. Hofmann, G. Münzenberg, M. Veselsky, S. Saro, N. Iwasa, K. Morita; *Search for new isotopes of element 112 by irradiation of  $^{238}\text{U}$  with  $^{48}\text{Ca}$* , Eur. Phys. J. A 5, 63-68 (1999)

[Oganessian99b] Yu. Ts. Oganessian, A. V. Yeremin, A. G. Popeko, S. L. Bogomolov, G. V. Buklanov, M. L. Chelnokov, V. I. Chepigin, B. N. Gikal, V. A. Gorshkov, G. G. Gulbekian, M. G. Itkis, A. P. Kabachenko, A. Yu. Lavrentev, O. N. Malyshev, J. Rohac, R. N. Sagaidak, S. Hofmann, S. Saro, G. Giardina, K. Morita; *Synthesis of nuclei of the superheavy element 114 in reactions induced by  $^{48}\text{Ca}$* , Nature 400, 242-245 (1999)

[Oganessian99c] Yu. Ts. Oganessian, V. K. Utyonkov, Yu. V. Lobanov, F. Sh. Abdullin, A. N. Polyakov, I. V. Shirokovsky, Yu. S. Tsyganov, G. G. Gulbekian, S. L. Bogomolov, B. N. Gikal, A. N. Mezentsev, S. Illiev, V. G. Subbotin, A. M. Sukhov, G. V. Buklanov, K. Subotic, M. G. Itkis, K. J. Moody, J. F. Wild, N. J. Stoyer, M. A. Stoyer, R. W. Lougheed; *Synthesis of Superheavy Nuclei in the  $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Pu}$  Reaction*, Phys. Rev. Lett. 83(16), 3154-3157 (1999)

[Oganessian00a] Yu. Ts. Oganessian, V. K. Utyonkov, Yu. V. Lobanov, F. Sh. Abdullin, A. N. Polyakov, I. V. Shirokovsky, Yu. S. Tsyganov, G. G. Gulbekian, S. L. Bogomolov, B. N. Gikal, A. N. Mezentsev, S. Illiev, V. G. Subbotin, A. M. Sukhov, O. V. Ivanov, G. V. Buklanov, K. Subotic, M. G. Itkis, K. J. Moody, J. F. Wild, N. J. Stoyer, M. A. Stoyer, R. W. Lougheed; *Synthesis of superheavy nuclei in the  $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Pu}$  reaction:  $^{288}114$* , Phys. Rev. C 62(4), 1604 (2000)

[Oganessian00b] Yu. Ts. Oganessian, V. K. Utyonkov, Yu. V. Lobanov, F. Sh. Abdullin, A. N. Polyakov, I. V. Shirokovsky, Yu. S. Tsyganov, G. G. Gulbekian, S. L. Bogomolov, B. N. Gikal, A. N. Mezentsev, S. Illiev, V. G. Subbotin, A. M. Sukhov, O. V. Ivanov, G. V. Buklanov, K. Subotic, M. G. Itkis, K. J. Moody, J. F. Wild, N. J. Stoyer, M. A. Stoyer, R. W. Lougheed, C. A. Laue, Ye. A. Karelin, A. N. Tatarinov; *Observation of the decay of  $^{292}116$* , Phys. Rev. C 63(1), 1301 (2000)

[Oganessian02] Yu. Ts. Oganessian; *Synthesis and decay properties of superheavy atoms in nuclear reactions induced by stable and radioactive ion beams*, Eur. Phys. J. A 13, 135-141 (2002)

[Omtvedt98] J. P. Omtvedt, J. Alstad, K. Eberhardt, K. Fure, R. Malmbeck, M. Mendel, A. Nähler, G. Skarnemark, N. Trautmann, N. Wiehl, B. Wierczinski; *Review of the SISAK system in transactinide research – recent developments and future prospects*, Journal of Alloys and Compounds 271-273, 303-306 (1998)

[Omtvedt01] J. P. Omtvedt; *SISAK liquid-liquid extraction of Rf and Db after pre-separation with the Berkeley gas-filled separator*, 5<sup>th</sup> Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements, Hasliberg (2001)

[Omtvedt02a] J. P. Omtvedt, J. Alstad, H. Breivik, J. E. Dyve, K. Eberhardt, C. M. Folden III, T. Ginter, K. E. Gregorich, E. A. Hult, M. Johansson, U. W. Kirbach, D. M. Lee, M. Mendel, A. Nähler, V. Ninov, L. A. Omtvedt, J. B. Patin, G. Skarnemark, L. Stavsetra, R. Sudowe, N. Wiehl, B. Wierczinski, P. A. Wilk, P. M. Zielinski, J. V. Kratz, N. Trautmann, H. Nitsche, D. C. Hoffman; *SISAK Liquid-Liquid Extraction Experiments with Preseparated <sup>257</sup>Rf*, J. Nucl. Radiochem. Sci. 3(1), 121-124 (2002)

[Omtvedt02b] J. P. Omtvedt; *Extraction Experiments with <sup>257</sup>Rf and <sup>258</sup>Db using SISAK in Combination with the Berkeley Gas-filled Separator (BGS) and improvements of the Set-Up*, Jahresbericht 2001, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2002)

[Otto95] M. Otto; *Analytische Chemie*, VCH (1995)

[Overbeck83] M. Overbeck; *Alphaspektroskopische Bestimmung geringster Mengen Plutonium durch Szintillationsspektrometrie*; Diplomarbeit, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (1983)

[Passo92] C. Passo, M. Kessler; *The Essentials of Alpha/Beta Discrimination*, Packard (1992)

[Persson89] H. Persson, G. Skarnemark, M. Skalberg, J. Alstad, J. O. Liljenzin, G. Bauaer, F. Haberberger, N. Kaffrell, J. Rogowski, N. Trautmann, *SISAK 3 – An Improved System for Rapid Radiochemical Separations by Solvent Extraction*, Radiochim. Acta 48, 177-180 (1989)

[Pfrepper00] G. Pfrepper, R. Pfrepper, A. Kronenberg, J. V. Kratz, A. Nähler, W. Brüchle, M. Schädel; *Continuous on-line chromatography of short lived isotopes of tungsten as homolog of seaborgium (element 106)*, Radiochim. Acta 88, 273-278 (2000)

[Pyykkö79] P. Pyykkö, J.-P. Desclaux; *Relativity and the Periodic System of Elements*, Acc. Chem. Res. 12, 276-281 (1979)

[Pyykkö88] P. Pyykkö; *Relativistic Effects in Structural Chemistry*, Chem. Rev. 88, 563-594 (1988)

[Reinhard99] P.-G. Reinhard, J. A. Maruhn; *Superheavy Nuclei in Deformed Mean-Field Calculations*, in *Heavy Elements and Related New Phenomena*, World Scientific, 332-373 (1999)

[Rupp99] M. Rupp; Diplomarbeit, Institut für Kernchemie, Universität Mainz (1999)

[Rupp00] M. Rupp, G. Langrock, N. Wiehl, H.O. Kling, M. Mendel, U. Tharun, J.V. Kratz, A. Türler; *Suche nach ungewöhnlichen  $\alpha$ - $\gamma$ -Koinzidenzen im Zerfall des <sup>210</sup>Fr*, Jahresbericht 1999, Institut für Kernchemie, Universität Mainz (2000)



[Russel95] S. Russell, P. Norvig, *Artificial Intelligence: A Modern Approach*, Prentice Hall, New Jersey (1995)

[Sacks02] O. Sacks; *Onkel Wolfram*, Rowohlt (2002)

[Schädel89] M. Schädel, W. Brüchle, E. Jäger, E. Schimpf, J. V. Kratz, U. W. Scherer, H. P. Zimmermann; *ARCA II – A New Apparatus for Fast, Repetitive HPLC Separations*, *Radiochim. Acta* 48, 171-176 (1989)

[Schädel02] M. Schädel; *The Chemistry of Transactinide Elements – Experimental Achievements and Perspectives*, *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 3(1), 113-120 (2002)

[Schmidt86] H. U. Schmidt; *Messelektronik in der Kernphysik*, B. G. Teubner, Stuttgart (1986)

[Sielaff00] M. Sielaff; *Chemometrie in der NMR-Spektroskopie – Signalanalyse mittels neuronaler Netze*, Dissertation, Technische Universität Berlin, D83 (2000)

[Skalberg91] M. Skalberg; *Rapid Chemical Separations Applied in Nuclear Research*, Dissertation, Department of Nuclear Chemistry, Chalmers University of Technology Göteborg (1991)

[Skarnemark90] G. Skarnemark, J. Alstad, N. Kaffrell, N. Trautmann; *Studies of short-lived fission products by means of the multistage solvent extraction system SISAK*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 142(1), 145-158 (1990)

[Skarnemark02] G. Skarnemark, J. Alstad, K. Eberhardt, K. E. Gregorich, D. C. Hoffman, M. Johansson, U. Kirbach, G. Langrock, M. Mendel, V. Ninov, H. Nitsche, A. Nähler, J. P. Omtvedt, L. A. Omtvedt, L. Stavsetra, R. Sudowe, N. Trautmann, N. Wiehl; *Application of SISAK for fast continuous solvent extraction processes to study exotic nuclides*, *Proc. Int. Solvent Extraction Conference ISEC-2002*, 1199-1204 (2002)

[Skarnemark02b] G. Skarnemark, C. Ekberg, M. Johansson, R. Malmbeck, A. Degaard-Jensen, K. Eberhardt, J. E. Dyve, A. Nähler, J. P. Omtvedt, N. Trautmann; *SimSISAK – A Method to Model Nuclide Transport in the SISAK system*, *Nucl. Instr. Meth. A*, in Vorbereitung

[Smolanczuk99] R. Smolanczuk; *Production mechanism of superheavy nuclei in cold fusion reactions*, *Phys. Rev. C* 59(5), 2634-2639 (1999)

[Sobiczewski01] A. Sobiczewski, I. Muntian, Z. Patyk; *Problem of “deformed” superheavy nuclei*; *Phys. Rev. C* 63, 034306-1-034306-12 (2001)

[Stavsetra01] L. Stavsetra; *Liquid-scintillation detection of <sup>257</sup>Rf and <sup>258</sup>Db in the SISAK detectors*, 5<sup>th</sup> Workshop on the Chemistry of the Heaviest Elements, Hasliberg (2001)

- [Strub00] E. Strub; *Zu den chemischen Eigenschaften von Rutherfordium, Dubnium und Seaborgium*, Dissertation, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (2000)
- [Türler02] A. Türler et al.; *Decay properties of  $^{269}\text{Hs}$  and evidence for the new nuclide  $^{270}\text{Ha}$* , Eur. Phys. J. A, (submitted) (2002)
- [Valeur02] B. Valeur; *Molecular Fluorescence*, Wiley-VCH (2002)
- [Vetter94] K. Vetter, T. Elze, M. Kaspar, T. Kroell; *A position sensitive gas counter with resistive layer cathode decoded by a neural network algorithm*, Nucl. Instr. Meth. A 344(3), 607 (1994)
- [Weiner95] K. Weiner; *Aufbau einer Pulse Shape-Diskriminierungseinheit in einer Flüssigszintillationsanlage*, Diplomarbeit, Fachhochschule Rheinland-Pfalz (1995)
- [Wiehl00] N. Wiehl; Persönliche Mitteilung (2000)
- [Wiehl02] N. Wiehl; Persönliche Mitteilung (2002)
- [Wierczinski94] B. Wierczinski; *Untersuchungen zur Extraktion der Elemente 105 und 106 mit SISAK 3 und on-line  $\alpha$ -Flüssigszintillationspektroskopie*, Dissertation, Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz (1994)
- [Wierczinski96] B. Wierczinski, K. Eberhardt, G. Herrmann, J. V. Kratz, M. Mendel, A. Nähler, F. Rocker, U. Tharun, N. Trautmann, K. Weiner, N. Wiehl, J. Alstad, G. Skarnemark; *Liquid-scintillation spectroscopy of  $\alpha$ -particle emitters and detection of spontaneous fission events for on-line studies of actinide and transactinide elements*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 370, 532-538 (1996)
- [Wierczinski98] B. Wierczinski, J. Alstad, K. Eberhardt, J. V. Kratz, R. Malmbeck, M. Mendel, A. Nähler, J. P. Omtvedt, G. Skarnemark, N. Trautmann, N. Wiehl; *Application of fast solvent extraction processes to studies of exotic nuclides*, J. Radioanal. Nucl. Chem. 236(1-2), 193-197 (1998)
- [Wierczinski01] B. Wierczinski, K. E. Gregorich, B. Kadkhodayan, D. M. Lee, L. G. Beauvais, M. B. Hendricks, C. D. Kacher, M. R. Lane, D. A. Keeney-Shaughnessy, N. J. Stoyer, D. A. Strellis, E. R. Sylwester, P. A. Wilk, D. C. Hoffman, R. Malmbeck, G. Skarnemark, J. Alstad, J. P. Omtvedt, K. Eberhardt, M. Mendel, A. Nähler, N. Trautmann; J. Radioanal. Nucl. Chem. 247(1), 57 (2001)
- [Yakushev01] A. B. Yakushev, G. V. Buklanov, M. L. Chelnokov, V. I. Chepigin, S. N. Dmitriev, V. A. Gorshkov, S. Hübener, V. Ya. Lebedev, O. N. Malyshev, Yu. Ts. Oganessian, A. G. Popeko, E. A. Sokol, S. N. Timokhin, A. Türler, V. M. Vasko, A. N. Yeregin, I. Zvara; *First attempt to chemically identify element 112*, Radiochim. Acta 89, 743-745 (2001)

[Yakushev02] A. B. Yakushev in K. Powell; *A very brief encounter*, Nature 418, 815-816 (2002)

[Zeimentz02] P. Zeimentz; *Extraktion von  $^{99m}\text{Tc}$  mittels MicroSISAK*, Protokoll Kernchemisches Praktikum 2 (2002)

[Zupan99] J. Zupan, J. Gasteiger; *Neural Networks in Chemistry and Drug Design*, Wiley-VCH, Weinheim (1999)

## Lebenslauf

### *Persönliche Daten*

|                     |                 |
|---------------------|-----------------|
| Name                | Gert Langrock   |
| Geburtsdatum        | 31. August 1974 |
| Geburtsort          | Leipzig         |
| Staatsangehörigkeit | deutsch         |

### *Schulbildung*

|             |  |
|-------------|--|
| 1981 – 1983 | Alfred-Schmidt-Sas-Oberschule in Leipzig                               |
| 1983 – 1984 | Maurice-Thorez-Oberschule (Klasse mit erweitertem Russisch-Unterricht) |
| 1984 – 1986 | Sergej-Mironowitsch-Kirow-Oberschule                                   |
| 1986 – 1988 | Bruno-Apitz-Oberschule in Colditz                                      |
| 1988 – 1992 | Kinder- und Jugendsportschule „Rudolf Friedrich“ in Leipzig            |
| 1992 – 1993 | Anton-Philipp-Reclam-Gymnasium, Abitur                                 |

### *Studium*

|             |  |
|-------------|--|
| 1993 – 1998 | Universität Leipzig, Chemie-Studium  |
| 1997 – 1998 | Diplomarbeit am Institut für Anorganische Chemie<br>„Spektroskopische und photochemische Untersuchungen von Übergangsmetallkomplexen mit tetraazamakrocyclischen Liganden“ |
| seit 1998   | Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Tätigkeit als wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Kernchemie   |