# Die stellaren Querschnitte von <sup>62</sup>Ni und <sup>63</sup>Ni – Experimentelle Untersuchungen mittels Aktivierungstechnik und Flugzeitmethode

Zur Erlangung des akademischen Grades eines DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN von der Fakultät für Physik der Universität (TH) Karlsruhe

genehmigte

### DISSERTATION

von

#### Dipl. Phys. Stephan Walter

aus Marbach am Neckar

Tag der mündlichen Prüfung: 25.04.2008 Referent: Prof. Dr. J. Blümer, Institut für Experimentelle Kernphysik Korreferent: Prof. Dr. T. Müller, Institut für Experimentelle Kernphysik

### Zusammenfassung

Verzweigungspunkte im Reaktionspfad des s-Prozesses, der während des stellaren Heliumbrennens abläuft, liefern wichtige Informationen über die physikalischen Bedingungen im Sterninnern und dienen als Test aktueller Sternmodelle. Der erste Verzweigungspunkt liegt im Bereich der Ni-Isotope: Abhängig von der Neutronendichte dominiert beim radioaktiven <sup>63</sup>Ni der Neutroneneinfang bzw.  $\beta^-$ -Zerfall.

Die Produktion dieses wichtigen Isotops erfolgt über den Neutroneneinfang an <sup>62</sup>Ni, zu dessen Querschnitt mehrere theoretische und experimentelle Ergebnisse vorliegen, deren Werte jedoch teilweise deutlich variieren. Deshalb wurden Aktivierungsexperimente am Karlsruher Van de Graaff-Beschleuniger durchgeführt, um diesen Wert festzulegen.

Mithilfe der Methode des detaillierten Gleichgewichts lassen sich Informationen über den Querschnitt der Umkehrreaktion erhalten. Im Forschungszentrum Dresden-Rossendorf wurde daher eine <sup>64</sup>Ni-Probe aktiviert, um erstmals experimentelle Informationen zum photonuklearen <sup>64</sup>Ni( $\gamma$ ,n)<sup>63</sup>Ni-Wirkungsquerschnitt zu erhalten.

Die Anzahl der in beiden Aktivierungen erhaltenen <sup>63</sup>Ni-Isotope wurde durch Beschleunigermassenspektrometrie am Maier-Leibnitz-Laboratorium in Garching/München ermittelt. Der Maxwell-gemittelte (n, $\gamma$ )-Wirkungsquerschnitt von <sup>62</sup>Ni bei einer Energie von kT =30 keV wurde zu (23, 4 ± 4, 6) mbarn bestimmt. Mit diesem Ergebnis konnte die oben erwähnte schwerwiegende Diskrepanz in früheren Daten aufgelöst werden.

Für den theoretisch vohergesagten ( $\gamma$ ,n)-Wirkungsquerschnitt von <sup>64</sup>Ni mit den Modellen nach TALYS 1.0 und NON-SMOKER wurden Normierungsfaktoren von  $0.29^{+0.13}_{-0.16}$  bzw.  $0.45^{+0.20}_{-0.16}$  abgeleitet.

Neben der Aktivierungsmethode stellen Flugzeitexperimente eine weitere wichtige experimentelle Technik dar, bei der sogar der energieabhängige Querschnitt direkt gemessen werden kann. Um die Neutroneneinfangwirkungsquerschnitte insbesondere von radioaktiven Proben, deren Untersuchung auf kleine Probenmassen beschänkt sein muss, mit der Flugzeitmethode zu bestimmen, werden deutlich höhere Neutronenflüsse benötigt als an heutigen Anlagen normalerweise zur Verfügung stehen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde deshalb untersucht, ob sich durch Verringerung des Flugwegs am Karlsruher  $4\pi BaF_2$ -Detektor solche Experimente realisieren lassen. Die Ergebnisse flossen teilweise in das in Frankfurt geplante FRANZ-Projekt ein.

Neben den Experimenten zu Neutroneneinfangreaktionen wurde der neue experimentelle Aufbau weiter modifiziert, um Protoneneinfangreaktionen am stabilen <sup>103</sup>Rh-Isotop zu untersuchen.

## The stellar cross sections of <sup>62</sup>Ni and <sup>63</sup>Ni – experimental investigations using the activation technique and time of flight method

Branching points in the reaction path of the s-process, a process occuring during stellar Heburning, provide important information about the physical conditions in the stellar interior and allow to test current stellar models. The first branching point can be found in the region of the Ni isotopes: depending on the neutron density, either neutron capture or  $\beta^-$ -decay dominate the reactions at the radioactive isotope <sup>63</sup>Ni.

The production of this important isotope results from neutron capture reactions on  $^{62}$ Ni. Several theoretical and experimental values for its cross section are reported in literature, but the values differ significantly. Therefore activation measurements have been performed at the Karlsruhe Van de Graaff accelerator to answer this question.

Information about the inverse reaction can be obtained via detailed balance. At the ELBEaccelerator at Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, an isotopically enriched <sup>64</sup>Ni-sample was activated to obtain first experimental information on the photonuclear <sup>64</sup>Ni( $\gamma$ ,n)<sup>63</sup>Nicross section.

The number of <sup>63</sup>Ni isotopes produced in both activation experiments was determined via accelerator mass spetroscopy at the Maier-Leibnitz-Laboratorium in Garching/Munich. The Maxwellian averaged  $(n,\gamma)$ -cross section of <sup>62</sup>Ni at an energy of kT = 30 keV was calculated to be  $(23,4\pm4,6)$  mbarn. With this result, the aforementioned discrepancy in previous data could be solved.

Normalization factors for the theoretically predicted  $(\gamma, n)$ -cross section using TALYS 1.0 and NON-SMOKER had been determined with values of  $0.29^{+0.13}_{-0.10}$  and  $0.45^{+0.20}_{-0.16}$  respectively.

Beside the activation technique, time of flight experiments are another important experimental method, allowing the determination of the energy dependent cross section directly. For the measurement of neutron capture cross sections using the tof-method, neutron fluxes are needed that are notably higher than those provided by current facilities, especially in the case of radioactive samples when the sample masses have to be limited.

In this work, analyses have been performed whether such type of experiments could be realized by shortening the flight path of the Karlsruhe  $4\pi$  BaF<sub>2</sub> detector. The results are used in the FRANZ project currently under development in Frankfurt.

Additionally, the new experimental setup has been further modified to study the measurement of proton capture reactions on the stable isotope  $^{103}$ Rh.

# Inhaltsverzeichnis

1	Einf	führun	g	1
	1.1	Die Er	ntstehung der Elemente bis Eisen	1
	1.2	Die N	ukleosynthese der schweren Elemente	3
		1.2.1	Die verschiedenen Komponenten des s-Prozesses	5
		1.2.2	p-Prozess	9
<b>2</b>	Das	Nicke	lproblem	13
	2.1	Die R	olle von $^{63}$ Ni bei der Elementsynthese	13
		2.1.1	Der s-Prozesspfad im Bereich der Nickelisotope	13
		2.1.2	Sternmodellrechnungen zu ${}^{63}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma){}^{64}\mathrm{Ni}$	16
3	$\mathbf{Akt}$	ivieru	ngsexperimente	<b>21</b>
	3.1	Allgen	neines	21
	3.2	Neutro	onenaktivierung in Karlsruhe	22
		3.2.1	Neutron enproduktion und Bestimmung des Neutron enflusses .	22
		3.2.2	Energieeichung des Van de Graaff Beschleunigers	23
		3.2.3	Berechnung des Wirkungsquerschnitts	24
		3.2.4	Maxwell-gemittelter Wirkungsquerschnitt	26
		3.2.5	Wirkungsquerschnitt als Funktion der Energie	26
	3.3	Photo	aktivierung mit ELBE im FZ Dresden-Rossendorf	29
		3.3.1	Experimenteller Aufbau	29
		3.3.2	Bestimmung des Wirkungsquerschnitts aus den Aktivierungs-	
			ausbeuten	30
	3.4	Masse	nspektrometrie mit Beschleunigern	34
		3.4.1	Gründe für AMS-Messungen	34
		3.4.2	Besonderheiten bei der $^{63}\mathrm{Ni}\text{-Messung}$	37

		3.4.3	Standard- und Blankproben	37
	3.5	Ergeb	nisse	39
		3.5.1	Neutronenaktivierung von $^{62}$ Ni $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	39
		3.5.2	Photoaktivierung von ${}^{64}$ Ni	49
4	Asti	rophys	sikalische Auswirkungen	53
	4.1	Sternr	nodell simulationen für die Reaktion ${}^{62}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma){}^{63}\mathrm{Ni}$	53
		4.1.1	Heliumkernbrennen	53
		4.1.2	Kohlenstoffschalenbrennen	54
5	Der	Karls	ruher $4\pi$ BaF <sub>2</sub> -Detektor	57
	5.1	Verwe	ndung eines Kalorimeters	57
	5.2	Exper	imente mit Neutronen	57
		5.2.1	Neuer Aufbau mit kurzem Flugweg	60
		5.2.2	Maßnahmen zur Untergrundreduzierung	60
		5.2.3	Frankfurter Neutronenquelle am SGZ	68
		5.2.4	Neues Strahlrohr	69
		5.2.5	Neues Gestell für den $4\pi$ -Detektor	71
		5.2.6	Simulationen mit GEANT	73
		5.2.7	Vorbereitung des Experiments	78
	5.3	Weiter	re Anwendungen des $4\pi$ -Detektors: ${}^{103}Rh(p,\gamma)$	84
		5.3.1	Stellare Reaktions raten und das Gamow-Fenster	84
		5.3.2	Adapter für $(p,\gamma)$ -Messungen	88
		5.3.3	Vorversuche zur Untergrundreduzierung	88
		5.3.4	Herstellung der Rhodiumtargets	90
		5.3.5	Signalweg	94
		5.3.6	Durchführung der Messungen	97
A	nhan	g		103
	A.1	Zusan	nmensetzung der Sputterschichten	103
	A.2	Simula	ationen mit GEANT	105
		A.2.1	Tentative Nickelspektren	105
		A.2.2	Ergebnisse der GEANT-Simulationen	107
	A.3	Goldz	erfälle zur Flussbestimmung	110
		A.3.1	Neutronenaktivierung: ${}^{197}Au(n,\gamma){}^{198}Au$	110

	A.3.2	Photoak	tivieru	ing:	197	Au	$(\gamma, n)$	$)^{190}$	<sup>3</sup> Au	l			•			•	•	110
A.4	Summ	enkorrekt	uren					•			 •		•				•	112

\_\_\_\_\_

# Tabellenverzeichnis

1.1	Die verschiedenen s-Prozesskomponenten	8
3.1	$^{62}$ Ni-Probe (I) mit 95,0% Anreicherungsgrad $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	39
3.2	$^{62}$ Ni-Probe (II) mit 97,3% Anreicherungsgrad $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	39
3.3	Maxwell-gemittelte Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{62}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma)$	44
3.4	Korrekturfaktoren (SEF) für stellare Reaktionsraten	46
3.5	Stellare Reaktionsraten	47
3.6	$^{64}$ Ni-Proben mit 99,63% Anreicherungsgrad	50
5.1	Details zu den Rhodiumtargets	94
A.1	Analyse der Sputterschichten (I): zentrale Probe $\hdots$	104
A.2	Analyse der Sputterschichten (II): dezentrale Probe	104
A.3	Berücksichtigte Übergänge für das $^{63}\mathrm{Ni}\text{-}\mathrm{Termschema}$	105
A.4	Berücksichtigte Übergänge für das <sup>64</sup> Ni-Termschema	106

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Isotopenhäufigkeiten im Sonnensystem als Funktion der Massenzahl .	2
1.2	Entstehung der Elemente jenseits des Eisens: s-,r- und p-Prozess	4
1.3	Vergleich zwischen Sternmodell und solaren Häufigkeiten	6
1.4	Produkt aus Wirkungsquerschnitt $\sigma$ und Häufigkeit	9
1.5	Anteil des s-,r- und p-Prozesses an den solaren Häufigkeiten der schwe-	
	ren Elemente	10
1.6	p-Prozess der schweren Kerne im Bereich von Hafnium bis Wismut	11
2.1	s-Prozesspfad im Bereich von Kobalt, Nickel und Kupfer	14
2.2	Häufigkeitsverhältnisse bei Verzweigungen	15
2.3	$^{63}\mathrm{Ni:}$ Isotopenhäufigkeiten am Ende des Heliumkernbrennens $~.$ $~.$ $~.$	16
2.4	$^{63}\mathrm{Ni:}$ Isotopenhäufigkeiten am Ende des Kohlenstoffschalenbrennens $% \mathcal{N}$ .	17
2.5	Neutronendichte und Isotopenhäufigkeiten während des Kohlenstoff-	
	schalenbrennens	18
3.1	Experimentelles Neutronenspektrum und Maxwell-Fit	22
3.2	Aktivierungsaufbau	23
3.3	Energieeichung des Karlsruher Beschleunigers	24
3.4	JEFF3.1 und ENDF/B-VII für die Reaktion ${\rm ^{62}Ni}({\rm n},\gamma)$	27
3.5	JENDL3.3 und Flugzeit experimente für die Reaktion $^{62}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma)$	27
3.6	TALYS 1.0 und NON-SMOKER für die Reaktion $^{62}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma)$ $~$	28
3.7	Aktivierungs- und Photonenstreumessplatz des ELBE-Beschleunigers	29
3.8	Bremsstrahlungsspektrum mit MCNP	31
3.9	$\sigma(\gamma,n)$ von <sup>197</sup> Au und Ausbeuten	32
3.10	Zerfallsschema von $^{63}$ Ni	34
3.11	AMS mit dem Tandem-Beschleuniger in Garching	36
3.12	Nachweiswahrscheinlichkeit des Germaniumdetektors	40

0.10	Standard-Probe mit und ohne Fensterbedingungen	41
3.14	Blankprobe mit und ohne Fensterbedingungen	42
3.15	$^{62}\text{Ni-Probe mit und ohne Fensterbedingungen}$	43
3.16	Maxwell-gemittelte Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{62}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma)$	44
3.17	Vergleich mit anderen Messungen	45
3.18	Stellare Reaktions raten von ${}^{62}\mathrm{Ni}(\mathrm{n},\gamma)$	48
3.19	Theoretische Wirkungsquerschnitte der Reaktion ${}^{64}\mathrm{Ni}(\gamma,X)$	49
3.20	$(\gamma,n)$ -Wirkungsquerschnitt von <sup>64</sup> Ni	52
4.1	Häufigkeiten am Ende des Heliumkernbrennens	54
4.2	Häufigkeiten am Ende des Kohlenstoffschalenbrennens	55
5.1	Aufbau in Karlsruhe: Aktivierungs- und Flugzeitexperimente	58
5.2	Alter und neuer Aufbau des $4\pi$ -Detektors	59
5.3	(Idealisierter) Signalverlauf bei kurzem Flugweg	61
5.4	Einfluss unterschiedlicher Backingmaterialien auf den $\gamma$ -Flash	62
5.5	Einfluss verschiedener Li-Schichtdicken auf den $\gamma$ -Flash	63
5.6	Temperaturabhängigkeit des Verhältnisses von schneller zu langsamer	
	Signalkomponente	64
5.7	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65
$5.7 \\ 5.8$	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation Bleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -Detektors	65 66
5.7 5.8 5.9	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65 66 67
<ol> <li>5.7</li> <li>5.8</li> <li>5.9</li> <li>5.10</li> </ol>	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation6Bleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -Detektors6Eigenschaften verschiedener Materialien zur Neutronenabsorption6Photo des FZK-Absorbers6	65 66 67 68
<ol> <li>5.7</li> <li>5.8</li> <li>5.9</li> <li>5.10</li> <li>5.11</li> </ol>	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-SimulationBleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -DetektorsEigenschaften verschiedener Materialien zur NeutronenabsorptionPhoto des FZK-AbsorbersNeues Strahlrohr unter Null Grad	65 66 67 68 70
<ol> <li>5.7</li> <li>5.8</li> <li>5.9</li> <li>5.10</li> <li>5.11</li> <li>5.12</li> </ol>	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65 66 67 68 70 72
<ol> <li>5.7</li> <li>5.8</li> <li>5.9</li> <li>5.10</li> <li>5.11</li> <li>5.12</li> <li>5.13</li> </ol>	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65 66 67 68 70 72 73
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation6Bleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -Detektors6Eigenschaften verschiedener Materialien zur Neutronenabsorption7Photo des FZK-Absorbers7Neues Strahlrohr unter Null Grad7 $4\pi$ -Detektor mit neuem Gestell7Tentatives ${}^{63}$ Ni-Termschema7GEANT-Simulation der Reaktion ${}^{62}$ Ni $(n,\gamma){}^{63}$ Ni7	65 66 67 68 70 72 73 74
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65 66 67 68 70 72 73 74 74
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65 66 67 68 70 72 73 74 76 77
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16 5.17	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	65 66 67 68 70 72 73 74 76 77 78
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16 5.17 5.18	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation(6)Bleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -Detektors(7)Eigenschaften verschiedener Materialien zur Neutronenabsorption(7)Photo des FZK-Absorbers(7)Neues Strahlrohr unter Null Grad(7) $4\pi$ -Detektor mit neuem Gestell(7)Tentatives ${}^{63}$ Ni-Termschema(7)GEANT-Simulation der Reaktion ${}^{62}$ Ni $(n,\gamma){}^{63}$ Ni(7)GEANT-Simulation der Reaktion ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma){}^{64}$ Ni(7)GEANT-Simulation der Reaktion ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma){}^{64}$ Ni(7)GEANT-Simulation der Reaktion ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma){}^{198}$ Au(7)Funktionsweise des Bunchers(7)	<ol> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>70</li> <li>72</li> <li>73</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>77</li> <li>78</li> <li>79</li> </ol>
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16 5.17 5.18 5.19	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation	<ul> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>70</li> <li>72</li> <li>73</li> <li>74</li> <li>76</li> <li>77</li> <li>78</li> <li>79</li> <li>80</li> </ul>
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16 5.17 5.18 5.19 5.20	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation(a)Bleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -Detektors(b)Eigenschaften verschiedener Materialien zur Neutronenabsorption(c)Photo des FZK-Absorbers(c)Neues Strahlrohr unter Null Grad(c) $4\pi$ -Detektor mit neuem Gestell(c)Tentatives $^{63}$ Ni-Termschema(c)GEANT-Simulation der Reaktion $^{62}$ Ni $(n,\gamma)^{63}$ Ni(c)GEANT-Simulation der Reaktion $^{63}$ Ni $(n,\gamma)^{64}$ Ni(c)GEANT-Simulation der Reaktion $^{197}$ Au $(n,\gamma)^{198}$ Au(c)Funktionsweise des Bunchers(c)Frequenzvervielfachung von 125 kHz auf 1 MHz(c)Gamow-Peak(c)	65 66 70 72 73 74 76 77 78 79 80 86
5.7 5.8 5.9 5.10 5.11 5.12 5.13 5.14 5.15 5.16 5.17 5.18 5.19 5.20 5.21	Schnitt durch den $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation(a)Bleiabschirmung im Inneren des $4\pi$ -Detektors(b)Eigenschaften verschiedener Materialien zur Neutronenabsorption(c)Photo des FZK-Absorbers(c)Neues Strahlrohr unter Null Grad(c) $4\pi$ -Detektor mit neuem Gestell(c)Tentatives $^{63}$ Ni-Termschema(c)GEANT-Simulation der Reaktion $^{62}$ Ni $(n,\gamma)^{63}$ Ni(c)GEANT-Simulation der Reaktion $^{63}$ Ni $(n,\gamma)^{64}$ Ni(c)GEANT-Simulation der Reaktion $^{197}$ Au $(n,\gamma)^{198}$ Au(c)Funktionsweise des Bunchers(c)Frequenzvervielfachung von 125 kHz auf 1 MHz(c)Gamow-Peak(c), $\gamma$ )-Messungen(c)	65 66 70 72 73 74 76 77 78 79 80 86 87

5.23	Reichweite und Energieverlust von Protonen in Blei	89
5.24	Herstellung der Rhodiumproben am IMF 1	90
5.25	Energieverlust von Protonen in einem Tantal-Rhodium-Gemisch $\ . \ .$	91
5.26	Röntgenfluoreszenzanalysen	92
5.27	Analyse der Rhodiumtargets mittels XRF	93
5.28	Diffusionsschweißen am IMVT $\ldots$	95
5.29	Signalweg bei Experimenten mit geladenen Teilchen	96
5.30	Theoretische Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{103}\mathrm{Rh}(\mathrm{p,X})$	98
5.31	Zerfallsschema von ${}^{60}$ Co $\ldots \ldots \ldots$	99
5.32	Summenspektrum des $^{60}\mathrm{Co-Zerfalls}$ im Vergleich mit einer GEANT-	
	Simulation	100
5.33	Dreidimensionale Darstellung einer Rhodiummessung	101
5.34	Rhodiummessung: Projektion auf die x-Achse	102
A.1	Analyse der Sputterschichten	103
A.2	Geant-Simulation der Reaktion ${\rm ^{62}Ni}(n,\gamma){\rm ^{63}Ni}:$ Einzelspektren	107
A.3	Geant-Simulation der Reaktion ${\rm ^{63}Ni}(n,\gamma){\rm ^{64}Ni}:$ Einzelspektren	108
A.4	Geant-Simulation der Reaktion ${}^{197}{\rm Au}({\rm n},\gamma){}^{198}{\rm Au}:$ Einzelspektren $~$ .	109
A.5	Zerfallsschema des <sup>198</sup> Au: $\beta^-$ -Zerfall	110
A.6	Zerfallsschema des <sup>196</sup> Au (1): Elektronene infang $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	111
A.7	Zerfallsschema des <sup>196</sup> Au (2): $\beta^-$ -Zerfall	111
A.8	Summenkorrekturen aufgrund zufälliger Koinzidenzen	112

xi

# Kapitel 1

# Einführung

### 1.1 Die Entstehung der Elemente bis Eisen

Die Entstehung der Elemente begann bereits kurz nach dem Urknall in der primordialen Nukleosynthese mit der Bildung von Protonen und Neutronen. Durch verschiedene Kernreaktionen entstanden Wasserstoff und Helium, die zusammen den Großteil der Materie im Universum ausmachen.

Die Elemente Lithium, Beryllium und Bor wurden nur zu einem sehr geringen Teil gebildet, da keine stabilen Kerne mit den Massenzahlen 5 und 8 existieren. Zudem nahmen die Temperatur und die Anzahl der Neutronen ( $t_{1/2} \approx 10$  min.) weiter ab, so dass die primordiale Nukleosynthese schnell zum Erliegen kam.

Schwerere Elemente entstanden und entstehen in Sternen durch die stellare Nukleosynthese. Da die Bindungsenergie pro Nukleon bis zum Eisen hin zunimmt, kann durch die Verschmelzung leichter Kerne Energie gewonnen werden, wobei der freiwerdende Strahlungsdruck der Gravitation entgegenwirkt und so den Stern stabilisiert. Die Asche der vorherigen Fusionsreaktion dient dabei als Ausgangs- und Brennmaterial für die nachfolgende Reaktion. Von der Masse des Sterns hängt dabei ab, welche Temperaturen im Sterninneren erreicht werden, was sich wiederum auf die ablaufenden Kernreaktionen auswirkt: Je massereicher ein Stern ist, desto höhere Temperaturen werden erreicht. Die Summe dieser Syntheseprozesse ist in der solaren Häufigkeitsverteilung enthalten (vgl. Abb. 1.1), die für die Mehrzahl der Sterne charakteristisch ist.

In den Sternen beginnt die Nukleosynthese mit der Fusion von Wasserstoff zu Helium, gefolgt vom Heliumbrennen, dessen Endprodukte Kohlenstoff  $(^{12}C)$  und Sauerstoff



Abbildung 1.1: Isotopenhäufigkeit im Sonnensystem als Funktion der Massenzahl: Man erkennt das im nuklearstatistischen Gleichgewicht erzeugte Maximum bei <sup>56</sup>Fe und die charakteristischen Doppelpeaks, die durch Neutroneneinfänge im s- und r-Prozess entstehen.

 $(^{16}{\rm O})$  sind. Diese werden teilweise in späteren Sterngenerationen durch den CNO-Zyklus in  $^{14}{\rm N}$  umgewandelt.

Die Elemente bis in den Massenbereich zwischen 40 und 50 werden während des Kohlenstoff-, Neon- und Sauerstoffbrennens erzeugt. Die Reaktionswahrscheinlichkeit hängt dabei stark von der Coulombbarierre ab, was sich in der exponentiellen Abnahme der Häufigkeit mit zunehmender Ordnungszahl bemerkbar macht (vgl. dazu Abb. 1.1). Eine Ausnahme bilden die Elemente Lithium, Beryllium und Bor, die in Spallationsreaktionen durch die kosmische Strahlung produziert werden.

Schließlich werden beim Siliziumbrennen so hohe Temperaturen erreicht, dass photonukleare Reaktionen eine immer wichtigere Rolle spielen und nur noch die stabilsten Elemente um das Eisen überdauern, was zu einem Peak in der Häufigkeitsverteilung um die Massenzahl A=56 führt (s. Abb. 1.1).

Weitere Reaktionen mit geladenen Teilchen benötigen mehr Energie als bei der Kernreaktion frei wird, wodurch das Gleichgewicht zwischen dem nach außen wirkenden Strahlungsdruck und der nach innen gerichteten Gravitation gestört wird. Übersteigt die Kernmasse des Sterns die Chandrasekhar-Grenze von etwa 1,44 M<sub> $\odot$ </sub>, kommt es zu einer Supernovaexplosion, wobei die Hülle des Sterns ins All geschleudert wird. Die Entstehung der Elemente jenseits des Eisens wird in den nachfolgenden Abschnitten erläutert.

### 1.2 Die Nukleosynthese der schweren Elemente

Bereits 1957 wurden von Burbidge, Burbidge, Fowler und Howle [1] und Cameron [2] Neutroneneinfangreaktionen als Erklärung für die Entstehung der schweren Elemente vorgeschlagen, wobei zwischen schnellen (rapid) und langsamen (slow) Neutroneneinfängen unterschieden wurde.

Ausgangspunkt für die Neutroneneinfangreaktionen sind die durch Reaktionen mit geladenen Teilchen erzeugten Isotope um den Eisenpeak. Durch verschiedene Kernreaktionen werden kontinuierlich Neutronen erzeugt, die von diesen Saatkernen eingefangen werden können:

$${}^{A}_{Z}X + n \longrightarrow {}^{A+1}_{Z}X + \gamma$$

Dies geschieht so lange, bis ein instabiles Isotop erreicht wird, dessen Halbwertszeit kleiner als die Neutroneneinfangrate ist, so dass es zu einem  $\beta^-$ -Zerfall kommt und das nächstschwerere Element entsteht:

$${}^{A+1}_{Z}X \longrightarrow {}^{A+1}_{Z+1}X + e^- + \bar{\nu}_{\epsilon}$$

Dies soll anhand des Neutroneneinfangs am Eisen erläutert werden (vgl. Abb. 1.2). Vom Saatkern <sup>56</sup>Fe ausgehend erreicht man durch die Neutroneneinfänge <sup>56</sup>Fe(n, $\gamma$ )<sup>57</sup>Fe(n, $\gamma$ )<sup>58</sup>Fe(n, $\gamma$ )<sup>59</sup>Fe das radioaktive Isotop <sup>59</sup>Fe, das nach einer Halbwertszeit von 44,5 Tagen durch  $\beta^-$ -Zerfall zum nächstschwereren Element <sup>59</sup>Co zerfällt. Bei Neutronendichten im Bereich von 10<sup>8</sup> cm<sup>-3</sup> liegt der Zeitraum zwischen den Einfangreaktionen bei mehreren Jahren - sehr viel länger als typische  $\beta^-$ -Halbwertszeiten. Der s-Prozess-Reaktionspfad verläuft folglich entlang des Stabilitätstals. Durch sukzessive Neutroneneinfänge und  $\beta^-$ -Zerfälle können nach und nach die schweren Elemente bis hin zum <sup>209</sup>Bi erzeugt werden. Der s-Prozesspfad endet an dieser Stelle, da es durch weitere Neutroneneinfänge zu einem  $\alpha$ -Zerfall kommt, so dass der Reaktionspfad in sich selbst zurückgeführt wird: <sup>209</sup>Bi(n, $\gamma$ )<sup>210</sup>Bi( $\beta^-$ )<sup>210</sup>Po( $\gamma, \alpha$ )<sup>206</sup>Pb. Betrachtet man die Häufigkeitsverteilung der Isotope im Sonnensystem (s. Abb. 1.1), so fallen Maxima bei den Massenzahlen A=88, 138 und 208 auf, die genau den magischen Zahlen für die abgeschlossenen Neutronenschalen bei N=50, 82 und 126 ent-





sprechen. Kerne mit abgeschlossenen Schalen weisen eine energetisch günstigere Konfiguration auf, so dass der Wirkungsquerschnitt im Vergleich zu den Nachbarisotopen deutlich kleiner ist. Im s-Prozesspfad stellt dies einen Flaschenhals im Reaktionsverlauf dar, was in einer größeren Häufigkeit dieser Isotope resultiert.

Isotope auf der neutronenreichen Seite des Stabilitätstals wie <sup>70</sup>Zn, <sup>76</sup>Ge, <sup>82</sup>Se usw. können aufgrund der kurzen Halbwertszeit des vorherigen Isotops nicht im s-Prozess erzeugt werden. Sie entstehen im r-Prozess bei Neutronendichten von  $10^{21}$  cm<sup>-3</sup> – der Zeitraum zwischen zwei Neutroneneinfängen reduziert sich dabei auf den Bereich von  $10^{-4}$  s. Der Reaktionspfad verschiebt sich dabei vom Stabilitätstal hin auf die neutronenreiche Seite bis schließlich Kerne mit Neutronenseparationsenergien um 2 MeV erreicht werden, bei denen (n, $\gamma$ )- und ( $\gamma$ ,n)-Reaktionen im Gleichgewicht stehen. Der Reaktionsfluss kommt bei diesen Kernen so lange zum Erliegen, bis ein  $\beta^-$ -Zerfall erfolgt. Kerne mit abgeschlossenen Schalen haben eine vergleichsweise große Halb-

4

wertszeit, was zu den Doppelpeaks in der Häufigkeitsverteilung führt (Abb. 1.1). Auf der protonenreichen Seite des Stabilitätstals wiederum gibt es noch 32 Isotope von <sup>74</sup>Se bis <sup>196</sup>Hg, die nicht durch Neutroneneinfänge erzeugt werden können und deshalb dem p-Prozess zugeschrieben werden. Die leichteren dieser Isotope werden dabei in (p, $\gamma$ )-Reaktionen, die schwereren durch Photodesintegrationsprozesse wie ( $\gamma$ ,n), ( $\gamma$ ,p) und ( $\gamma$ ,  $\alpha$ ) erzeugt, wobei die im s- und r-Prozess produzierten Kerne als Saatkerne fungieren.

#### 1.2.1 Die verschiedenen Komponenten des s-Prozesses

#### 1.2.1.1 Hauptkomponente des s-Prozesses

Nach derzeitigen Sternmodellen spielt sich die Hauptkomponente des s-Prozesses in TP-AGB-Sternen (thermally pulsing asymptotic giant branch) mit 1,5 - 3 Sonnenmassen ( $M_{\odot}$ ) ab. Protonen aus der wasserstoffreichen Hülle werden in die hauptsächlich aus <sup>4</sup>He bestehende Zwischenschale transportiert, wo die Reaktionen <sup>12</sup>C(p, $\gamma$ )<sup>13</sup>N( $\beta^+\nu$ )<sup>13</sup>C(p, $\gamma$ )<sup>14</sup>N initiiert werden. Dabei entstehen zwei Bereiche, die reich an Kohlenstoff und Stickstoff sind und als <sup>13</sup>C- und <sup>14</sup>N-Tasche bezeichnet werden. Bei Temperaturen von  $T_9 \approx 0,09$  bzw. einer thermischen Energie  $kT \approx 8$  keV zündet die Reaktion <sup>13</sup>C( $\alpha$ ,n)<sup>16</sup>O, wobei die meisten der in der Hauptkomponente des s-Prozesses erzeugten Kerne produziert werden. Die Neutronendichte liegt dabei im Bereich von  $n_n \approx 10^7$  cm<sup>-3</sup>.

Aufgrund der Zunahme an <sup>4</sup>He in der Zwischenschale durch das Wasserstoffbrennen kommt es periodisch zum Heliumbrennen und einem Ansteigen der Temperatur. Bei  $T_9 \approx 0,27$  bzw.  $kT \approx 23$  keV wird <sup>22</sup>Ne über die Reaktionen <sup>14</sup>N $(\alpha, \gamma)^{18}$ F $(\beta^+\nu)^{18}$ O $(\alpha, \gamma)^{22}$ Ne erzeugt. Dadurch wird in geringem Maße eine weitere Neutronenquelle – <sup>22</sup>Ne, $(\alpha,n)^{25}$ Mg – mit maximalen Neutronendichten von  $n_n \approx$ 10<sup>10</sup> cm<sup>-3</sup> aktiviert. Trotz dieser hohen Neutronendichte ist die Neutronenexposition und damit der Beitrag für die Nuklidproduktion geringer als bei der <sup>13</sup>C $(\alpha,n)^{16}$ O-Reaktion. Allerdings wirkt sich diese Neutronenquelle deutlich auf die Kerne um die Verzweigungspunkte im s-Prozesspfad aus, wo nun der Neutroneneinfang gegenüber dem  $\beta^-$ -Zerfall an Bedeutung gewinnt. Nähreres zu Verzweigungspunkten siehe Abschnitt 2.1.

Ein Vergleich zwischen Vorhersagen von aktuellen Sternmodellen und den beobachteten solaren Häufigkeiten wird in Abb. 1.3 gezeigt. Die Werte des Sternmodells



Abbildung 1.3: Vergleich zwischen einem Sternmodell mit einer Metallizität von [Fe/H]=-0,3 und Sternmassen zwischen 1,5 und 3 M<sub> $\odot$ </sub> und solaren Häufigkeiten. Schwarze Kreise kennzeichnen Kerne, die ausschließlich im s-Prozess erzeugt wurden. Grafik aus [3].

wurden durch die gemessenen Häufigkeiten dividiert und auf <sup>150</sup>Sm normiert. Ausgefüllte Kreise zeigen Kerne, die ausschließlich im s-Prozess erzeugt wurden. Ab einer Massenzahl von  $A \approx 90$  stimmen Modell und Wirklichkeit gut überein, bei niedrigeren Massenzahlen sind die Abweichungen größer, was auf den schwachen s-Prozess zurückzuführen ist.

#### 1.2.1.2 Schwacher s-Prozess

Der schwache s-Prozess spielt sich im Bereich von  $A \approx 60$  bis zum Abschluss der Neutronenschale bei  $A \approx 90$  ab. Während des Heliumkernbrennens massiver Sterne mit  $M \gtrsim 10 \ M_{\odot}$  wird der im CNO-Zyklus erzeugte <sup>14</sup>N in <sup>22</sup>Ne umgewandelt. Während in leichten Sternen die <sup>22</sup>Ne( $\alpha$ ,n)<sup>25</sup>Mg-Neutronenquelle nur zu einem geringen Teil aktiviert wird, läuft diese Reaktion in massereicheren Sternen aufgrund der höheren Temperatur des Kerns effizienter und in größerem Ausmaß ab. Die Neutronendichten bewegen sich im Bereich von  $n_n \approx 10^7 \text{ cm}^{-3}$ .

Im Gegensatz zu extrem massereichen Sternen, bei denen  $^{22}\mathrm{Ne}$  bis zum Ende des

Heliumkernbrennens vollständig verbraucht wird, bleibt für  $M < 30 \ M_{\odot}$  ein Teil des <sup>22</sup>Ne erhalten. Während des Kohlenstoffkernbrennens wird die <sup>22</sup>Ne-Neutronenquelle durch frei werdende Heliumkerne von  ${}^{12}C({}^{12}C,\alpha){}^{20}$ Ne-Reaktionen wieder aktiviert. Zwar wird ein Großteil der erzeugten s-Prozesskerne im anschließenden Sauerstoffbrennen durch Photodesintegration wieder zerstört, doch während des Kohlenstoffschalenbrennens werden bei Temperaturen von  $T_9 \approx 1$  bzw.  $kT \approx 90$  keV Neutronendichten von bis zu  $n_n \approx 10^{11} \text{cm}^{-3}$  erreicht und dadurch ein großer Beitrag zur Häufigkeitsverteilung des schwachen s-Prozesses erbracht.

Generell hängt die Neutronenbilanz im s-Prozess von mehreren Faktoren ab:

- von der Häufigkeit der als Neutronenquelle fungierenden Kerne,
- dem Verhältnis von freigesetzten Neutronen zur Anzahl der Saatkerne, sowie
- dem Ausma
   <sup>β</sup> an vorkommenden Neutronengiften. Letztere sind Kerne, die ebenfalls Neutronen einfangen, jedoch nicht zur Produktion schwerer Elemente beitragen, beispielsweise <sup>16</sup>O, <sup>18</sup>O und <sup>22</sup>Ne.

Heutige Sternmodelle können die Häufigkeiten der verschiedenen Isotope immer besser vorhersagen, doch können immer noch nicht alle physikalischen Prozesse in ausreichendem Maße berücksichtigt werden.

Zwar liegen Daten zu den Neutroneneinfangwirkungsquerschnitten vor, doch werden viele der experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte mit noch größerer Genauigkeit benötigt [4]. Zudem hängen die Isotopenhäufigkeiten der Elemente zwischen dem Eisenpeak und der abgeschlossenen Neutronenschale bei N=50 empfindlich von den Einfangwirkungsquerschnitten ab (siehe dazu auch Abschnitt 2.1).

#### 1.2.1.3 Starker s-Prozess

Das phänomenologische Bild des klassischen s-Prozesses, das zwischen Hauptkomponente und schwachem s-Prozess unterscheidet, beschreibt die Häufigkeiten der Isotope bereits relativ genau. Trägt man das Produkt aus Wirkungsquerschnitt und Häufigkeit auf, stimmen Modell und experimentelle Daten gut überein (vgl. Abb. 1.4). Im Bereich von Blei und Wismut gibt es jedoch deutliche Diskrepanzen zu den beobachteten Häufigkeiten. Deshalb wurde die Existenz einer dritten Komponente postuliert [6]. Diese so genannte starke Komponente des s-Prozesses spielt bei metallarmen Sternen mit einem großen Verhältnis freier Neutronen zur Anzahl der Saatkerne eine

Tabelle 1.1: Zusammenstellung der wichtigsten Eigenschaften der verschiedenen s-Prozesskomponenten. Die starke Komponente entspricht der Hauptkomponente bei Sternen mit niedriger Metallizität, so dass aufgrund des großen Neutronen-zu-Saatkern-Verhältnisses Kerne bis in den Bereich von Blei und Wismut erzeugt werden. Im s-Prozess wird etwa die Hälfte der beobachteten solaren Häufigkeit der Isotope erzeugt.

	schwache	e Komponente	Hauptkomponente				
Masse des Sterns	M	$> 13 M_{\odot}$	$1{,}5-3M_{\odot}$				
Brennphase	Heliumkern-	Kohlenstoffschalen-	Wasserstoff-	Heliumschalen-			
	brennen	brennen	brennen	blitze			
Massenzahl ${\cal A}$	Bereich	von 60 – 90	Bereich von $90 - 209$				
Kernreaktion	$^{22}$ Ne( $\alpha$ ,n) $^{25}$ Mg	$^{22}\mathrm{Ne}(\alpha,\mathbf{n})^{25}\mathrm{Mg}$	$^{13}\mathrm{C}(\alpha,\mathrm{n})^{16}\mathrm{O}$	$^{22}\mathrm{Ne}(\alpha,\mathbf{n})^{25}\mathrm{Mg}$			
		$^{12}C(^{12}C,n)^{23}Mg$					
Neutron endichte $\boldsymbol{n}_n$	$10^7 \mathrm{~cm^{-3}}$	$10^{11} {\rm ~cm^{-3}}$	$10^7~{\rm cm}^{-3}$	$10^{10} {\rm ~cm^{-3}}$			
Temperatur $T_9$	$0,\!26$	1	$0,\!09$	0,27			
Energie $kT$	22  keV	$90 \ \mathrm{keV}$	$8 {\rm ~keV}$	$23 \ \mathrm{keV}$			



Abbildung 1.4: Produkt aus Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  und Häufigkeit: Beim klassischen s-Prozessmodell mit zwei Komponenten (Haupt- und schwache Komponente) stimmen Modell und experimentelle Daten gut überein. Am Ende des s-Prozesspfades treten jedoch Diskrepanzen zu den Beobachtungen auf (nach [5]).

Rolle. Die Neutronenexposition ist unter diesen Umständen dann so groß, dass es im Schnitt zu etwa 140 Neutroneneinfängen pro Saatkern kommt.

Eine kurze Gegenüberstellung der verschiedenen s-Prozesskomponenten zeigt Tabelle 1.1 auf der vorherigen Seite.

#### 1.2.2 p-Prozess

Wie bereits erwähnt kann eine Reihe von Isotopen von <sup>74</sup>Se bis <sup>196</sup>Hg auf der protonenreichen Seite des Stabilitätstals nicht durch Neutroneneinfänge im s- oder r-Prozess produziert werden. Die Häufigkeiten dieser so genannten p-Kerne liegen im Allgemeinen etwa zwei Größenordnungen unterhalb des s- und r-Prozessanteils an der Elementsynthese (vgl. Abb. 1.5).

Saatkerne sind die im s- und r-Prozess erzeugten Isotope, die durch Protoneneinfangreaktionen und Photodesintegration teilweise zu den p-Kernen umgewandelt werden. Einfangreaktionen dominieren bei den leichteren p-Kernen, die schwereren Kerne werden im stellaren Photonenbad bei Temperaturen von  $T_9 \approx 2-3$  erzeugt. Man spricht



Abbildung 1.5: Anteil des s-, r- und p-Prozesses an den solaren Häufigkeiten der schweren Elemente: Der Beitrag des p-Prozesses liegt etwa zwei Größenordnungen unterhalb des Anteils des s- und r-Prozesses (nach [7]).

dann auch vom so genannten  $\gamma$ -Prozess.

Ein Teil der Nuklidkarte im Bereich von Hafnium bis Wismut wird in Abb. 1.6 gezeigt. Dabei wurden die Reaktionen im Bereich der O-Ne-Schicht eines massiven Sterns während der Supernovaexplosion vom Typ II simuliert [8]. Die Kernreaktionen fanden innerhalb eines Zeitraums von etwa 1 s statt, bei denen Temperaturen von bis zu drei Milliarden Grad Kelvin erreicht wurden.

Bewegt man sich vom Stabilitätstal weg hin auf die protonenreiche Seite, schwankt die Wahrscheinlichkeit für  $(\gamma, n)$ -Reaktionen aufgrund des Paar-Effekts zwischen Kernen mit gerader bzw. ungerader Neutronenzahl, da die Separationsenergien für Kerne mit ungerader Neutronenzahl niedriger als bei gerader Neutronenanzahl ist. Während die Wahrscheinlichkeit für die Abspaltung eines Neutrons mit zunehmendem Protonen-zu-Neutronen-Verhältnis sinkt, steigt diese umgekehrt für  $(\gamma, p)$ - und  $(\gamma, \alpha)$ -Reaktionen an, bis schließlich ein Isotop mit niedrigerer Kernladungszahl erreicht wird und der ganze Prozess von vorne beginnt. Der Reaktionspfad reicht dabei von Wismut und Blei bis hinunter zu den Kernen um den Eisenpeak.



Abbildung 1.6: p-Prozess der schweren Kerne im Bereich von Hafnium bis Wismut. p-Prozesskerne sind rot unterlegt, stabile Kerne mit einem schwarzen Rahmen versehen, und  $\beta^-$ - und  $\beta^+$ -instabile Kerne sind blau bzw. rot umrandet. Die Grafik zeigt den Reaktionsfluss während der ersten Sekunde einer Supernova des Typs II im Bereich der Ne/O-Schale, wo eine maximale Temperatur von  $T_9=3$  ereicht wird (nach [8]).

Die längsten Zerfallszeiten treten bei Kernen mit gerader Neutronenzahl an Verzweigungspunkten auf: Der Reaktionsfluss kommt an dieser Stelle zum Erliegen, so dass sich die Häufigkeit dieses Kerns erhöht, bis es schließlich zur Photodesintegration kommt. Wie beim r-Prozess werden diese Kerne auch als Wartepunktkerne (englisch: waiting point nuclei) bezeichnet. Mit steigender Temperatur liegen diese bei immer protonenreicheren Kernen.

Der Zeitraum, innerhalb dessen die Photodesintegrationsreaktionen ablaufen, darf einerseits nicht zu lang sein, da ansonsten die Saatkerne in Protonen, Neutronen,  $\alpha$ -Teilchen und Elemente um Eisen zerlegt werden, andererseits müssen die hohen Temperaturen eine Zeit lang aufrecht erhalten werden, damit überhaupt ein gewisser Teil der Saatkerne reagieren kann.

Als wahrscheinlichster Ort für den p-Prozess werden daher explosive Szenarien diskutiert, bei denen es kurzzeitig zu hohen Temperaturen, aufgrund der schnellen Expansion jedoch auch zum Abkühlen der Materie kommt. Derzeit werden Supernovaexplosionen vom Typ II favorisiert: Wenn die Schockwelle die Sauerstoff-Neonschicht passiert, werden aufgrund der Kompression für einen Zeitraum von etwa 1 s Temperaturen von 2 bis 3 Milliarden Grad Kelvin erreicht.

Alternativ könnte der p-Prozess auch bei Supernovae vom Typ I stattfinden, da sich

bei Rechnungen mit verschiedenen Sternmodellen ähnliche p-Prozesshäufigkeiten ergaben wie bei solchen des Typs II. Da je nach Ort des p-Prozesses andere Kerne über- bzw. unterproduziert werden, gibt es auch die Möglichkeit, dass mehrere Orte zusammen zu den finalen p-Prozesshäufigkeiten beitragen.

# Kapitel 2

## Das Nickelproblem

### 2.1 Die Rolle von <sup>63</sup>Ni bei der Elementsynthese

Aufgrund des langen Zeitraums zwischen zwei Neutroneneinfängen und der kurzen  $\beta^-$ -Zerfallszeiten verläuft der s-Prozesspfad entlang des Stabilitätstals. Manchmal entsteht bei den Neutroneneinfängen ein Kern, dessen Halbwertszeit mit der Neutroneneinfangrate vergleichbar wird, so dass es zu einer Verzweigung des Reaktionspfades kommt. Solche Verzweigungen eignen sich zum Test aktueller Sternmodelle und geben Informationen über die physikalischen Bedingungen im Sterninnern. Dies tritt erstmalig bei <sup>63</sup>Ni auf (siehe Abb. 2.1).

#### 2.1.1 Der s-Prozesspfad im Bereich der Nickelisotope

Der s-Prozess bei den Nickelisotopen beginnt bei <sup>60</sup>Ni. Durch die Neutroneneinfänge <sup>60</sup>Ni $(n,\gamma)^{61}$ Ni $(n,\gamma)^{62}$ Ni $(n,\gamma)^{63}$ Ni wird schließlich <sup>63</sup>Ni erzeugt, das eine Halbwertszeit von 101,1(14) Jahren hat [9]. Für den weiteren Reaktionsverlauf gibt es nun zwei Möglichkeiten:

- Fall 1: Neutroneneinfang: Bei einem Teil der Reaktionen wird durch einen Neutroneneinfang <sup>64</sup>Ni produziert. Der weitere Einfang eines Neutrons führt zu <sup>65</sup>Ni, das zum stabilen <sup>65</sup>Cu zerfällt.
- Fall 2: β<sup>-</sup>-Zerfall: In anderen Fällen erfolgt zuerst ein β<sup>-</sup>-Zerfall zu <sup>63</sup>Cu. Nach einem Neutroneneinfang erhält man <sup>64</sup>Cu, und es gibt wieder zwei Möglichkeiten: Ein Teil der <sup>64</sup>Cu-Kerne macht einen β<sup>+</sup>-Zerfall bzw. Elektroneneinfang zu <sup>64</sup>Ni. Der weitere Reaktionsverlauf wurde bereits im Fall 1 beschrieben.



Abbildung 2.1: s-Prozesspfad im Bereich von Kobalt, Nickel und Kupfer. Bei <sup>63</sup>Ni kommt es zum ersten Mal zu einer Verzweigung innerhalb des s-Prozesspfades: Bei einem Teil der <sup>63</sup>Ni-Kerne erfolgt zuerst ein  $\beta^{-}$ -Zerfall zu <sup>63</sup>Cu, im anderen Fall wird ein Neutron eingefangen und das stabile <sup>64</sup>Ni produziert.

Der andere Teil der Kerne zerfällt durch  $\beta^-$ -Zerfall zu <sup>64</sup>Zn. Der weitere Einfang eines Neutrons führt zu <sup>65</sup>Zn, das wiederum durch Elektroneneinfang bzw.  $\beta^+$ -Zerfall zu <sup>65</sup>Cu wird. An dieser Stelle laufen die beiden getrennten Reaktionspfade wieder zusammen.

Der Verzweigungsfaktor f, der das Aufspalten des Reaktionspfades in zwei unterschiedliche Reaktionsverläufe beschreibt, wird wie folgt definiert:

$$f_{\beta} = \frac{\lambda_{\beta}}{\lambda_{\beta} + \lambda_n}$$
 bzw.  $f_n = \frac{\lambda_n}{\lambda_n + \lambda_{\beta}}$  (2.1)

mit der  $\beta$ -Zerfallsrate  $\lambda_{\beta}$  und der Neutroneneinfangrate  $\lambda_n = n_n \sigma v_T$ .  $n_n$  ist die Neutronendichte,  $\sigma$  der Neutroneinfangwirkungsquerschnitt und  $v_T$  die mittlere thermische Geschwindigkeit. Für  $f_{\beta} \approx 0$  dominiert der Neutroneneinfang, bei  $f_{\beta} \approx 1$  kommt es vorwiegend zu  $\beta$ -Zerfällen.

Sind die Anteile von p- bzw. r-Prozess bei den Isotopen genau bekannt bzw. gegenüber dem s-Prozessanteil vernachlässigbar, kann über das Häufigkeitsverhältnis des Isotops, über das nur ein Teil des Reaktionsflusses verlief, und des Isotops, an dem sich die Verzweigungspfade wieder vereinigen, Auskunft über die Verzweigung gewonnen werden (vgl. Abb. 2.2) und es gilt:

$$f_{\beta}^{A} = \frac{\lambda_{\beta}}{\lambda_{\beta} + \lambda_{n}} \approx \frac{\langle \sigma N_{s} \rangle_{C}}{\langle \sigma N_{s} \rangle_{D}}$$
(2.2)



Abbildung 2.2: Häufigkeitsverhältnisse in der Nähe von Verzweigungspunkten: Aus dem Isotopenverhältnis C zu D können Rückschlüsse auf die Verzweigung bei A gezogen werden.

Im Fall von  $^{63}$ Ni vereinigt sich der Reaktionspfad bei  $^{65}$ Cu, doch kommt es bei  $^{65}$ Zn teilweise zu Neutroneneinfängen, so dass der Gesamtfluss erst bei  $^{66}$ Zn wieder erreicht wird.

Die Häufigkeitsmuster der Verzweigungen im s-Prozesspfad reagieren empfindlich auf die im Sterninneren vorliegenden Temperaturen und Neutronenflüsse und bieten damit Möglichkeiten, verschiedene Sternmodelle zu testen.

Änderungen im Wirkungsquerschnitt im Bereich des schwachen s-Prozesses wirken sich unter Umständen sehr stark auf die Häufigkeiten der nachfolgenden Isotope – zumindest bis zur abgeschlossenen Neutronenschale bei N=50 – aus. Deshalb ist es notwendig, die Wirkungsquerschnitte dieser Isotope genau zu kennen. Aus diesem Grund wurden mehrere Experimente zur Bestimmung verschiedener Ni-Wirkungsquerschnitte geplant und durchgeführt.

In Karlsruhe wurden Neutronenaktivierungsexperimente mit zwei unterschiedlich angereicherten <sup>62</sup>Ni-Proben durchgeführt, um den Einfangquerschnitt genauer zu bestimmen, vgl. Abschnitt 3.2. Zu dieser Reaktion lagen bereits mehrere theoretische und experimentelle Ergebnisse vor, die jedoch teilweise deutlich voneinander abwichen. Die entsprechenden Werte reichten von  $9,7 \leq \sigma \leq 11,2$  mbarn [10] bis  $37,0\pm3,2$  mbarn [11], eine Diskrepanz, die aufzuklären war, um die <sup>63</sup>Ni-Produktion zu beschreiben und die Effizienz des Reaktionsflusses festzulegen.

Am ELBE-Beschleuniger des Forschungszentrums Dresden-Rossendorf wurden angereicherte <sup>64</sup>Ni-Proben bestrahlt, um erstmals experimentelle Ergebnisse zum  $(\gamma, n)$ -Wirkungsquerschnitt zu erhalten (siehe Abschnitt 3.3). Mithilfe der Methode des detaillierten Gleichgewichts lassen sich Informationen über die Umkehrreaktion <sup>63</sup>Ni $(n, \gamma)$ <sup>64</sup>Ni gewinnen. Schließlich wurden Flugzeitexperimente am Karlsruher  $4\pi BaF_2$ -Detektor zur direkten Messung des <sup>63</sup>Ni-Querschnitts vorbereitet. Durch Reduzierung des bisherigen Flugwegs auf 4 cm ließe sich der Neutronenfluss um etwa zwei Größenordnungen steigern, was Experimente mit deutlich kleineren Probenmengen oder die Bestimmung sehr kleiner Wirkungsquerschnitte ermöglichen würde (vgl. Abschnitt 5.2).

### 2.1.2 Sternmodellrechnungen zu ${}^{63}Ni(n,\gamma){}^{64}Ni$

M. Pignatari führte an der Universität von Turin verschiedene Sternmodellrechnungen zum <sup>63</sup>Ni(n, $\gamma$ )-Wirkungsquerschnitt durch [12]. Als Referenzwirkungsquerschnitt wurde der Wert von  $\sigma = 31 \pm 6$  mbarn [13] verwendet, und die Auswirkungen bei doppeltem bzw. halbiertem Querschnitt untersucht.



Abbildung 2.3: Isotopenhäufigkeiten am Ende des Heliumkernbrennens. Mehr als 90% der Reaktionen folgen dem Zerfall zu  ${}^{63}$ Cu. Änderungen im  $(n,\gamma)$ -Wirkungsquerschnitt fallen kaum ins Gewicht.

Heliumkernbrennen: Bei dem verwendeten Sternmodell werden am Ende des Heliumkernbrennens Temperaturen von  $T_9 = 0, 3-0, 35$  erreicht. Dadurch wird die  ${}^{22}\text{Ne}(\alpha, n){}^{25}\text{Mg}$ -Reaktion aktiviert, was zu einer Neutronendichte  $n_n$  im Bereich von  $10^6 - 10^7$  cm<sup>-3</sup> führt. Bei einer  $\beta^-$ -Zerfallsrate von  $\lambda_{\beta} = 8, 12 \cdot 10^{-10}$  s<sup>-1</sup> und einer Neutroneneinfangrate von maximal  $\lambda_n = 7, 61 \cdot 10^{-11}$  s<sup>-1</sup> ergibt sich der Verzweigungsfaktor  $f_{\beta} = 0,91$  und  $f_n = 0,09$ , d.h. der Hauptteil der Reaktionen folgt dem Zerfallspfad. Deshalb wirkt sich eine Änderung des <sup>63</sup>Ni(n, $\gamma$ )-Wirkungsquerschnitts kaum auf die Häufigkeiten von <sup>63</sup>Cu und <sup>64</sup>Ni aus (vgl. Abb. 2.3).



**Abbildung 2.4:** Isotopenhäufigkeiten am Ende des Kohlenstoffschalenbrennens. <sup>63</sup>Ni steht im partiellen Gleichgewicht mit <sup>62</sup>Ni und <sup>64</sup>Ni, so dass sich Änderungen im Wirkungsquerschnitt auf die Häufigkeiten auswirken (siehe Text und Ausschnittsvergrößerung).

Kohlenstoffschalenbrennen: Die Temperaturen liegen im Bereich von  $T_9 = 1$  und die Neutronendichten steigt bis auf  $n_n = 10^{11}$  cm<sup>-3</sup> an. Bei einer Zerfallsrate von  $\lambda_{\beta} = 0, 59 \cdot 10^{-9}$  s<sup>-1</sup> und einer Neutroneneinfangrate von  $\lambda_n = 4, 58 \cdot 10^{-7}$  s<sup>-1</sup> ergeben sich  $f_{\beta} = 0, 02$  und  $f_n = 0, 98$ , d.h. unter diesen Umständen dominiert eindeutig der Neutroneneinfang.

<sup>63</sup>Ni befindet sich im partiellen Gleichgewicht mit den beiden Nachbarisotopen <sup>62</sup>Ni und <sup>64</sup>Ni, weshalb sich Änderungen im Einfangquerschnitt daher unmittelbar auf die Häufigkeiten auswirken (vgl. Abb. 2.4). Wird der Einfangquerschnitt halbiert, steigt die finale Häufigkeit von <sup>63</sup>Cu am Ende des Kohlenstoffschalenbrennens um mehr als 30%, während sich die Häufigkeit von <sup>64</sup>Ni um etwa 20% verringert (gestrichelte Linien und Quadrate in Abb. 2.4). Eine Verdopplung des Wirkungsquerschnitts verringert den Anteil an  $^{63}$ Cu um etwa 35%, die  $^{64}$ Ni-Häufigkeit steigt um mehr als 20% (strichpunktierte Linien und Rauten in Abb. 2.4).



Abbildung 2.5: Zeitlicher Verlauf der Neutronendichte und Isotopenhäufigkeiten während des Kohlenstoffschalenbrennens: Aufgrund der hohen Neutronendichten wird zu Beginn <sup>63</sup>Cu zerstört und <sup>63</sup>Ni durch Neutroneneinfang gebildet. Durch das Absinken der Neutronendichte gewinnt der  $\beta^-$ -Zerfall des <sup>63</sup>Ni an Bedeutung, so dass die <sup>63</sup>Cu-Häufigkeit wieder ansteigt.

Während des Kohlenstoffschalenbrennens ändert sich die Neutronendichte  $n_n$ kontinuierlich (vgl. Abb. 2.5). Zu Beginn ist die Neutronendichte vergleichsweise hoch, da über die Reaktion  ${}^{12}C({}^{12}C,\alpha){}^{20}Ne$  ausreichend Heliumkerne für die Neutronenquelle  ${}^{22}Ne(\alpha,n){}^{25}Mg$  zur Verfügung stehen. Durch den Verbrauch an Kohlenstoff sinkt auch die Zahl der Heliumkerne, was sich über die  ${}^{22}Ne$ -Reaktionen unmittelbar auf die Neutronendichte auswirkt.

Die Anzahl der <sup>63</sup>Cu-Kerne, die am Ende der vorangegangenen Brennphase produziert wurden, wird bei der anfänglich hohen Neutronendichte durch Einfangreaktionen verringert, während <sup>64</sup>Ni und <sup>65</sup>Cu über <sup>63</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>64</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>65</sup>Ni( $\beta^{-}$ )<sup>65</sup>Cu erzeugt werden. Am Ende des Kohlenstoffschalenbrennens sinkt die Neutronendichte unter  $n_n = 10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, so dass der Anteil der  $\beta^-$ -Zerälle an der Verzweigung wichtiger wird. Zu diesem Zeitpunkt sind von der finalen <sup>63</sup>Cu-Häufigkeit etwa 10-20% vorhanden. Die restlichen 80-90% werden aus den nun folgenden  $\beta^-$ -Zerfällen des <sup>63</sup>Ni gebildet. Für die Häufigkeiten des <sup>63</sup>Cu ist deshalb der genaue <sup>63</sup>Ni-Querschnitt von zentraler Bedeutung.

## Kapitel 3

# Aktivierungsexperimente

### 3.1 Allgemeines

Aktivierungsexperimente haben den Vorteil, dass bereits Probenmengen im Mikrobzw. Nanogrammbereich für quantitative Messungen ausreichen. Auch der Anteil direkt eingefangener Neutronen (englisch: direct capture component) wird im Gegensatz zu Flugzeitexperimenten erfasst. In vielen Fällen ist es zudem möglich, die Wirkungsquerschnitte verschiedener Isotope eines Elements gleichzeitig zu messen.

Von Nachteil ist, dass die erzeugten Kerne radioaktiv sein müssen, um deren Anzahl anhand von  $\gamma$ -Übergängen nachzuweisen. Wo solche Übergänge fehlen, kann in vielen Fällen die Anzahl der aktivierten Kerne alternativ mittels Beschleunigermassenspektrometrie bestimmt werden (vgl. Abschnitt 3.4).

Im Rahmen dieser Dissertation wurden verschiedene Aktivierungsexperimente durchgeführt: Am Karlsruher Van de Graaff (VdG) Beschleuniger wurde die Reaktion  ${}^{62}\text{Ni}(n,\gamma){}^{63}\text{Ni}$  vermessen, da die in der Literatur aufgeführten  $(n,\gamma)$ -Wirkungsquerschnitte teilweise deutlich voneinander abweichen und sich kleine Änderungen im Querschnitt in diesem Bereich des s-Prozesspfades stark auf die Häufigkeiten der nachfolgenden Isotope auswirken können (vgl. Abschnitt 2.1.2).

Am ELBE-Beschleuniger im Forschungszentrum Dresden-Rossendorf wurde die Reaktion <sup>64</sup>Ni( $\gamma$ ,n)<sup>63</sup>Ni bei verschiedenen Bremsstrahlungs-Endpunktsenergien untersucht, um erstmals experimentelle Daten zur photonuklearen Freisetzung von Neutronen zu erhalten.



Abbildung 3.1: Experimentelles Neutronenspektrum bei einer Protonenenergie von  $E_p=1912$  keV und zugehöriger Maxwell-Fit mit kT=25 keV.

## 3.2 Neutronenaktivierung mit dem Karlsruher Van de Graaff-Beschleuniger

### 3.2.1 Neutronenproduktion und Bestimmung des Neutronenflusses

Für die hier verwendete Aktivierungstechnik werden Neutronen mittels der Reaktion <sup>7</sup>Li(p,n) erzeugt: Dazu werden Protonen mit einer Energie von 1912 keV – 31 keV oberhalb der Reaktionsschwelle von 1881 keV – auf ein LiF-Target geschossen, wobei Neutronen in einem Öffnungswinkel von 120° in Vorwärtsrichtung freigesetzt werden. Die Energieverteilung der Neutronen ähnelt dabei einem Maxwell-Spektrum mit  $kT=25 \pm 0.5$  keV, die maximale Neutronenenergie ist dabei auf etwa 118 keV begrenzt (vgl. Abb. 3.1 [14]).

Als Lithiumtarget wurde Lithiumfluorid auf ein 1,5 mm dickes Kupferscheibchen aufgedampft, das wiederum in ein wassergekühltes Kupfertarget eingelötet wurde. LiF hat gegenüber reinem Lithium den Vorteil, dass es nicht so schnell in das Backing diffundiert und so die Neutronenausbeute langsamer abnimmt, was insbesondere bei Langzeitaktivierung von Bedeutung ist, da das Target dann nicht so häufig gewechselt werden muss. Zusätzlich kann das Target einfacher gewechselt werden, da es beim LiF nicht zu störenden Oxidierungen mit dem Luftsauerstoff kommt. Der Versuchsaufbau wird in Abb. 3.2 gezeigt.


**Abbildung 3.2:** Versuchsaufbau am VdG-Beschleuniger: Die Probe befindet sich zwischen zwei Goldfolien. Der (relative) Neutronenfluss wird mit Hilfe eines Neutronendetektors (ZnS oder <sup>6</sup>Li-Glas) gemessen.

Die Probe befindet sich zwischen zwei Goldfolien, welche zur Bestimmung des Neutronenflusses verwendet werden. Der Abstand zum Target wird über 0,5 mm dicke Aluminiumringe (nicht eingezeichnet) festgelegt: Die Probe darf weder zu weit weg noch zu nah am Target sein, sonst verliert man an Intensität bzw. riskiert eine Verzerrung des Maxwell-verteilten Neutronenspektrums. Der relative Neutronenfluss wird als Funktion der Zeit mit einem Neutronenmonitor, der in einem Abstand von 90 cm angeordnet ist, aufgezeichnet. Dadurch lassen sich Schwankungen im Neutronenfluss, verursacht beispielsweise durch Stromschwankungen, bei der Datenanalyse korrigieren. Die absolute Normierung des Flusses erfolgt durch Bestimmung der Aktivitäten der Goldfolien über den genau bekannten Goldwirkungsquerschnitt  $\sigma_{\rm ref}^{\rm Au}$  (näheres zum Zerfall des <sup>198</sup>Au im Anhang A.3.1).

#### 3.2.2 Energieeichung des Van de Graaff Beschleunigers

Die Energieeichung des Karlsruher Beschleunigers kann mit zwei verschiedenen Messmethoden vorgenommen werden: zum einen mit der Flugzeitmethode, zum anderen über den Neutronenfluss.

Bei der Flugzeitmethode wird die Energie der Neutronen über den bekannten Abstand zwischen LiF-Target und Neutronendetektor und der unter Verwendung eines Timeto-Amplitude-Converters (TAC) ermittelten Flugzeit bestimmt.

Alternativ kann auch die Änderung der Neutronenausbeute in der Nähe der Reaktionsschwelle ausgenutzt werden. In der Nähe der Reaktionsschwelle gilt zwischen dem



Abbildung 3.3: Energieeichung des Karlsruher Beschleunigers: Bei Energien oberhalb der Reaktionsschwelle steigt die Neutronenausbeute deutlich an.

Magnetfeld und der Protonenenergie folgender Zusammenhang:

$$B = k \cdot \sqrt{E} \tag{3.1}$$

Trägt man die auf den Targetstrom normierten Neutronenereignisse über dem Magnetfeld des Analysiermagneten auf, so erfolgt bei zunehmender Protonenenergie nach Erreichen der Reaktionsschwelle ein deutlicher Anstieg in der Neutronenausbeute (vgl. Abb. 3.3). Damit kann das zur Protonenenergie  $E_0=1,881$  MeV gehörende Magnetfeld  $B_0$  ermittelt und die Konstante k berechnet werden. Aus (3.1) erhält man dann das Magnetfeld für eine Energie von 1912 keV.

Beide für die Energie<br/>eichung verwendeten Messmethoden stimmen im Rahmen der Fehler von<br/>  $\Delta E \lessapprox 1\%$ überein.

#### 3.2.3 Berechnung des Wirkungsquerschnitts

Die Anzahl der aktivierten Kerne  $N_{\text{akt}}$  beträgt [15]

$$N_{\text{akt}} = \frac{C(t_m)}{\epsilon_{\gamma} p_{\gamma} k_{\gamma} k_{\text{tot}} \underbrace{(1 - e^{-\lambda t_m})}_{f_m} \underbrace{e^{-\lambda t_w}}_{f_w}}$$
(3.2)

mit  $C(t_m)$ : Anzahl der Ereignisse im Photopeak am Ende der Messzeit  $t_m$ ,  $\epsilon_{\gamma}$ : Nachweiswahrscheinlichkeit des HPGe-Detektors,  $p_{\gamma}$ : Photoemissionswahrscheinlichkeit des  $\gamma$ -Übergangs,  $k_{\gamma}$ : Selbstabsorption in der Probe,  $k_{\text{tot}}$ : Totzeitkorrektur und  $\lambda$ : Zerfallskonstante der aktivierten Kerne.  $f_m$  berücksichtigt die Anzahl der Zerfälle während der Messung und  $f_w$  die Zerfälle während der Wartezeit  $t_w$  zwischen dem Ende der Bestrahlung und dem Beginn der Zerfallsmessung. Für die Selbstabsorption  $k_{\gamma}$  gilt wiederum im Falle scheibenförmiger Proben [16]

$$k_{\gamma} = \frac{1 - e^{-\mu d}}{\mu \cdot d} \tag{3.3}$$

wobei  $\mu$  der Absorptionskoeffizient für  $\gamma$ -Strahlung – dessen Werte [17] entnommen wurden – und d die Dicke der Probe bzw. der Goldfolien sind.

Die Anzahl der aktivierten Kerne kann auch durch

$$N_{\rm akt} = \Phi N_p \,\sigma f_b^p \tag{3.4}$$

beschrieben werden, wobei  $\Phi = \int \phi(t) dt$  der zeitintegrierte (totale) Neutronenfluss,  $N_p$  die Anzahl der Targetatome,  $\sigma_p$  der Wirkungsquerschnitt und  $f_b^p$  der so genannte  $f_b$ -Faktor sind. Letzterer berücksichtigt, dass es bereits während der Aktivierung zu Zerfällen der aktivierten Kerne kommt. Da während der Bestrahlung Schwankungen in der Neutronenausbeute vorkommen können, muss für die Berechnung der zeitabhängige Neutronenfluss  $\phi(t)$  berücksichtigt werden. Es ist

$$f_b = \frac{\int_0^{t_a} \phi(t) \, e^{-\lambda(t_a - t)} \, dt}{\int_0^{t_a} \phi(t) \, dt} \tag{3.5}$$

 $t_a$  ist die Dauer der Aktivierung.

Durch Messungen relativ zu  $^{197}$ Au, dessen Wirkungsquerschnitt von 586±8 mb [14] als Referenzstandard verwendet wird, werden systematische Fehler verringert, und man erhält aus dem Verhältnis

$$\frac{N_{\rm akt}^{\rm p}}{N_{\rm akt}^{\rm Au}} = \frac{\sigma_p N_p f_b^p}{\sigma_{Au} N_{Au} f_b^{Au}}$$

den gesuchten experimentellen Wirkungsquerschnitt zu

$$\sigma_p = \frac{N_{\text{akt}}^p \,\sigma_{Au} \,N^{\text{Au}} \,f_b^{Au}}{N_{\text{akt}}^{\text{Au}} \,N_p \,f_b^p} \tag{3.6}$$

Kann die Anzahl der aktivierten Kerne nicht aus der Aktivität der Probe bestimmt werden, sondern muss beispielsweise durch Beschleunigermassenspektrometrie ermittelt werden, so gilt für den Wirkungsquerschnitt  $\sigma_p$ 

$$\sigma_p = \underbrace{\frac{N_{\text{akt}}^p}{N_p}}_{*} \cdot \frac{1}{\Phi_{\text{total}}}$$
(3.7)

Das mit "\*" markierte Verhältnis  $N_{\text{akt}}^p/N_p$  wurde für die Messungen <sup>62</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>63</sup>Ni und <sup>64</sup>Ni( $\gamma$ ,n)<sup>63</sup>Ni aus AMS-Messungen erhalten (näheres dazu in Abschnitt 3.4).

#### 3.2.4 Maxwell-gemittelter Wirkungsquerschnitt

Wie in Abschnitt 5.3.1 näher erläutert wird, unterliegen Teilchen in astrophysikalischer Umgebung einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung. Im Falle der Neutronen gilt

$$\phi \propto E_n \cdot e^{-\frac{E_n}{kT}} \tag{3.8}$$

Statt des in (3.6) oder (3.7) angegebenen Wirkungsquerschnitts wird häufig der über die Maxwell-Verteilung gemittelte Wirkungsquerschnitt angegeben. Dieser Maxwell-gemittelte Wirkungsquerschnitt (englisch: Maxwellian averaged cross section, MACS) ist wie folgt definiert:

$$\frac{\langle \sigma v \rangle}{v_T} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\int_0^\infty \sigma(E_n) E_n e^{-\frac{E_n}{kT}} dE_n}{\int_0^\infty E_n e^{-\frac{E_n}{kT}} dE_n}$$
(3.9)

mit der kinetischen Energie  $E_n$  im Schwerpunktsystem, sowie der mittleren thermischen Geschwindigkeit  $v_T = \sqrt{\frac{2kT}{\mu}}$  und der reduzierten Masse  $\mu$ . Das in Abschnitt 3.2.1 erwähnte experimentelle Neutronenspektrum durch die <sup>7</sup>Li(p,n)<sup>7</sup>Be-Reaktion ähnelt zwar bereits einer Maxwell-Verteilung von 25 keV. Um Abweichungen zwischen der theoretischen und experimentellen Neutronenverteilung zu korrigieren, muss der energieabhängige Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  jedoch mit der experimentellen Neutronenverteilung  $S(E_n)$  gefaltet werden:

$$\sigma_{\text{calc}} = \int S(E_n) \cdot \sigma(E_n) \, dE_n \tag{3.10}$$

Damit erhält man einen Korrekturfaktor  $k_{korr}$ , mit dem der berechnete Wirkungsquerschnitt normiert werden kann:

$$k_{\rm korr} = \frac{\sigma_{\rm calc}}{\sigma_p} \tag{3.11}$$

Den Maxwell-gemittelten Wirkungsquerschnitt erhält man, indem  $\sigma(E_n)$  in (3.9) durch den Normierungsfaktor  $k_{korr}$  dividiert wird.

#### 3.2.5 Wirkungsquerschnitt als Funktion der Energie

Informationen über den energieabhängigen Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  wurden verschiedenen Datenbanken entnommen, die online über JANIS (Java-based Nuclear



Abbildung 3.4: Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt der Reaktion  ${}^{62}$ Ni $(n,\gamma)$  ${}^{63}$ Ni in den Datenbanken JEFF3.1 und ENDF/B-VII.

Information Software) zur Verfügung gestellt werden [18]. Im Einzelnen sind dies das Joint Evaluated Fission and Fusion File, das Evaluated Nuclear Data File und die Japanese Evaluated Nuclear Data Library in den aktuellen Versionen JEFF3.1 [19], ENDF/B-VII [20] und JENDL3.3 [21]. Der Verlauf des Wirkungsquerschnitts als Funktion der Energie wird in den Abbildungen 3.4 und 3.5 dargestellt.



**Abbildung 3.5:**  $\sigma(n,\gamma)$  der Neutroneneinfangreaktionen an <sup>62</sup>Ni als Funktion der Energie: Im Vergleich zu JEFF3.1 und ENDF/B-VII sind in JENDL3.3 weitaus mehr Resonanzen aufgeführt.

Das Bild rechts zeigt die Ergebnisse der Flugzeitmessungen von [22].

Die beiden Datenbanken JEFF3.1 und ENDF/B-VII unterscheiden sich im gewählten Energiebereich kaum voneinander, da die ursprünglichen Daten für JEFF3.1 von ENDF/B-VI.8 entnommen wurden. Der totale Neutroneneinfangwirkungsquerschnitt wurde mit dem FORTRAN-Programm GMA unter Berücksichtigung verschiedener experimenteller Daten ermittelt (siehe [19, 20] und dort angegebene Literaturhinweise).

Der linke Teil von Abb. 3.5 zeigt den Wirkungsquerschnitt der Datenbank JENDL, Version 3.3. Im Gegensatz zu JEFF3.1 und ENDF/B-VII sind weitaus mehr Resonanzen aufgeführt. Der Einfangquerschnitt wurde JENDL3.2 entnommen und nach einem statistischen Modell mit dem Programm CASTY [23] berechnet, für die  $\gamma$ -Strahlungsstärkefunktion wurden die Daten von [24] herangezogen.

Der rechte Bildabschnitt zeigt das Ergebnis von Flugzeitexperimenten [22], auf die in Abschnitt. 3.5.1.5 genauer eingegangen wird.



Abbildung 3.6: Neutroneneinfangwirkungsquerschnitt im Energiebereich von 10 eV bis 1 MeV mit dem Programm TALYS, Version 1.0, sowie die Resultate von NON-SMOKER.

Neben den drei erwähnten Datenbanken und dem Flugzeitexperiment von Alpizar et al. [22] werden in Abbildung 3.5 die energieabhängigen Verläufe der Wirkungsquerschnitte dargestellt, die mit den Programmen TALYS 1.0 und NON-SMOKER [25, 26] berechnet wurden.

Die Auswirkungen dieser verschiedenen Energieabhängigkeiten auf die Berechnung der Maxwell-gemittelten Querschnitte von  $^{62}$ Ni werden in Abschnitt 3.5.1.4 diskutiert.

## 3.3 Photoaktivierung mit ELBE im FZ Dresden-Rossendorf

#### 3.3.1 Experimenteller Aufbau

Neben Neutronenaktivierungsexperimenten wurden Photoaktivierungsexperimente an der Strahlungsquelle ELBE (Elektronen Linearbeschleuniger für Strahlen hoher Brillanz und niedriger Emittanz) des Forschungszentrums Dresden-Rossendorf durchgeführt, um den  $(\gamma, n)$ -Wirkungsquerschnitt von <sup>64</sup>Ni zu bestimmen.

Bei ELBE wird anfangs ein Gleichstrom-Elektronenstrahl erzeugt, der über zwei Hochfrequenzbuncher in einen gepulsten Strahl umgewandelt wird. Die Hauptbeschleunigung erfolgt in einem supraleitenden Beschleunigermodul, das aus zwei Kavitäten besteht, in denen Feldstärken von über 10 MV/m erreicht werden können. Für die Bremsstrahlungsmessplätze kann damit eine maximale Elektronenstrahlenergie von 20 MeV bei einem mittleren Strom von bis zu 1 mA erzeugt werden.



Abbildung 3.7: Aktivierungs- und Photonenstreumessplatz des ELBE-Beschleunigers (nach [27]).

Der für das Experiment relevante Teil des Aufbaus wird in Abb. 3.7 gezeigt. Der Elektronenstrahl trifft auf eine dünne Niobfolie  $(1,7 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2})$  und erzeugt dort Bremsstrahlung. Durch einen Ablenkmagneten wird der Elektronenstrahl auf einen Beamdump gelenkt, hinter dem sich der Aktivierungsmessplatz befindet. Dort kann ein Photonenfluss von bis zu  $10^{10}$  cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup>MeV<sup>-1</sup> erreicht werden.

Die in der Niobfolie erzeugte Bremsstrahlung gelangt durch einen Aluminiumkollimator zu einem zweiten Messplatz, bei dem beispielsweise Kernresonanzfluoreszenzexperimente (KRF) durchgeführt werden können. Der Photonenfluss am KRF-Target beträgt bis zu  $10^8 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{MeV}^{-1}$ .

## 3.3.2 Bestimmung des Wirkungsquerschnitts aus den Aktivierungsausbeuten

Um den  $(\gamma, \mathbf{n})$ -Wirkungsquerschnitt zu erhalten, wird anhand der experimentellen Daten ein Normierungsfaktor  $k_{\text{norm}}$  bestimmt, mit dem die Querschnitte verschiedener theoretischer Modelle skaliert und an die Experimente angepasst werden.

Allgemein gilt für die Aktivierungsausbeute  $Y_{\rm akt}$  bei Bremsstrahlungsexperimenten:

$$Y_{\text{akt}} = \int_{E_S}^{E_0} \sigma_{\gamma,x}(E) \cdot \Phi_{\gamma}(E, E_0) \, dE \tag{3.12}$$

wobei  $E_S$  die Reaktionsschwelle,  $E_0$  die Endpunktsenergie,  $\sigma_{\gamma,x}$  der Wirkungsquerschnitt und  $\Phi_{\gamma}$  die Photonenfluenz<sup>a)</sup> sind.

Der Normierungsfaktors  $k_{\text{norm}}$  wird nun folgendermaßen berechnet [28]:

1. Bestimmung der absoluten Photonenfluenz:

Am Aktivierungsmessplatz gilt für die Aktivierungsausbeute  $Y_{\text{akt}}(\text{Au})$ :

$$Y_{\text{akt}}(\text{Au}) = \frac{N_{\text{akt}}}{N_{\text{tar}}} = \int_{E_S}^{E_0} \sigma_{\gamma,n}(\text{Au}, E) f_{\text{norm}} \Phi_{\gamma}^{\text{sim}}(E, E_0) dE$$
(3.13)

Um die Aktivierungsausbeute experimentell zu bestimmen, werden neben der eigentlichen Probe noch Referenzproben bestrahlt. Bei den beiden <sup>64</sup>Ni-Bestrahlungen wurde dabei – wie bei der Neutronenaktivierung in Karlsruhe – eine Goldfolie aktiviert, wobei das radioaktive <sup>196</sup>Au erzeugt wird (näheres zu den Goldzerfällen ist im Anhang A.3.2 aufgeführt).

 $Y_{\rm akt}({\rm Au})$  erhält man über die Aktivität der Goldfolien im Anschluss an die Bestrahlung mit einem HPGe-Detektor, der sich in einem separaten abgeschirmten Aufbau befindet. Da während der Aktivierung der Photonenfluss nahezu konstant blieb, lässt sich (3.5) vereinfachen:

$$f_b = \frac{\int_0^{t_a} \phi(t) \, e^{-\lambda(t_a - t)} \, dt}{\int_0^{t_a} \phi(t) \, dt} \approx \frac{1 - e^{-\lambda t_a}}{\lambda t_a} \tag{3.14}$$

Bei der Aktivitätsbestimmung der Goldfolien müssen aufgrund des geringen Abstands zwischen der Probe und dem Detektor noch Summenkorrekturen  $k_{sum}$ ,

<sup>&</sup>lt;sup>a)</sup> zeitlich integrierter Photonenfluss

sowie PileUp und Totzeiten berücksichtigt werden (näheres in Abschnitt 3.5.2.3 und im Anhang A.4).

Mit (3.2) gilt somit

$$N_{\text{akt}} = \frac{C(t_m) \cdot f_k}{\epsilon_{\gamma} p_{\gamma} \, k_{\text{tot}} \, k_{\text{PileUp}} \, k_{\text{sum}}} \tag{3.15}$$

mit den Totzeit- und Pile Up-Korrekture<br/>n $k_{\rm tot}$ bzw.  $k_{\rm PileUp}$ und dem Korrekturfaktor<br/>  $f_k,$  wobei

$$f_k = \underbrace{\frac{1}{1 - e^{-\lambda t_m}}}_{f_m} \cdot \underbrace{\frac{1}{e^{-\lambda t_w}}}_{f_w} \cdot \underbrace{\frac{\lambda t_a}{1 - e^{-\lambda t_a}}}_{\frac{1}{1/f_b}}$$
(3.16)

ist und sich aus den bereits erwähnten Faktoren  $f_m$ ,  $f_w$  und  $f_b$  zusammensetzt. Aus dem Verhältnis der aktivierten Goldatome zur Gesamtzahl der Goldatome  $\frac{N_{\text{akt}}(Au)}{N_{\text{ges}}(Au)}$  erhält man schließlich  $Y_{\text{akt}}(Au)$ .



**Abbildung 3.8:** Bremsstrahlungsspektrum bei einer Endpunktsenergie von 13,5 MeV: Die Datenpunkte stammen aus einer MCNP-Simulation, die Kurve ist eine Anpassung an die simulierten Werte [29].

Da in (3.13) das Integral über einen Energiebereich steht, wird die absolute Photonenfluenz am Aktivierungsmessplatz  $\Phi_{\gamma}^{\text{sim}}(E, E_0)$  benötigt. Die Form und den relativen Verlauf des Bremsstrahlungsspektrums erhält man aus MCNP-Simulationen, die die genauen Umstände der Strahlerzeugung und den experimentellen Aufbau berücksichtigen (vgl. Abb. 3.8). In den Simulationen werden die tabellierten Bremsstrahlungsspektren von Seltzer und Berger [30] verwendet.

Für den energieabhängigen photonuklearen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\gamma,n}(Au, E)$ können die Werte von Varlamov et al. [31], TALYS [26] und NON-SMOKER [32] verwendet werden (vgl. Abb. 3.9 links).



Abbildung 3.9:  $\sigma(\gamma,n)$  von <sup>197</sup>Au: Experimentelle Daten, sowie die beiden theoretischen Vorhersagen nach NON-SMOKER und TALYS 1.0. (links). Ein Vergleich der Ausbeute mit ELBE mit verschiedenen experimentellen Daten wird rechts gezeigt [33] (Durchgezogene Linie: Varlamov et al. [31], gestrichelte Linie: Veyssiere et al. aus [18] und gepunktete Linie: Fultz et al. aus [18].)

Bei einem Vergleich der in Rossendorf experimentell bestimmten Aktivierungsausbeuten<sup>b)</sup> mit den unterschiedlichen Wirkungsquerschnitten zeigt sich die beste Übereinstimmung mit den Werten aus [31] (vgl. Abb. 3.9, näheres in [28]) weshalb diese für die Auswertung herangezogen wurden.

Damit sind alle Variablen in (3.13) bestimmt und der Normierungsfaktor  $f_{\text{norm}}$  festgelegt.

2. Berechnung des Normierungsfaktors  $k_{\text{norm}}$ :

Für die Aktivierungsausbeute am Aktivierungsmessplatz gilt

$$Y_{\text{akt}}(\text{Probe}) = \int_{E_S}^{E_0} k_{\text{norm}} \,\sigma_{\gamma,n}^{\text{theo}}(\text{Ni}, E) \,f_{\text{norm}} \,\Phi_{\gamma}^{\text{sim}}(E, E_0) \,dE \tag{3.17}$$

<sup>&</sup>lt;sup>b)</sup> In mehreren Experimenten mit unterschiedlichen Endpunktsenergien wurden <sup>11</sup>B-Proben bestrahlt und der Photonenfluss anhand der bekannten Stärke des Übergangs des 8920 keV-Niveaus in den Grundzustand bestimmt. Diese Ergebnisse wurde dann mit den in [31] aufgeführten Werten verglichen.

Aus (3.13) sind der Normierungsfaktor  $f_{\text{norm}}$  und die Photonenfluenz  $\Phi_{\gamma}^{\text{sim}}(E, E_0)$  bekannt. Für den Verlauf des theoretischen Wirkungsquerschnitts  $\sigma_{\gamma,n}^{\text{theo}}(\text{Ni}, E)$  wurden TALYS [26] und NON-SMOKER [32] verwendet. Damit lässt sich  $k_{\text{norm}}$  berechnen.

Mit diesem Normierungsfaktor  $k_{norm}$  können nun die mit verschiedenen theoretischen Modellen vorhergesagten Wirkungsquerschnitte skaliert und an das Ergebnis der Aktivierungsmessung angepasst werden.

## 3.4 Massenspektrometrie mit Beschleunigern

#### 3.4.1 Gründe für AMS-Messungen

Bei den meisten durchgeführten Aktivierungen am Karlsruher Van de Graaff Beschleuniger wird ein instabiles Isotop erzeugt, dessen ausgesandte  $\gamma$ -Strahlung entweder mit einem HPGe-Detektor, oder aber bei geringer Aktivität mit einem Clover-Detektor [34] nachgewiesen wird. Aus der Aktivität der simultan bestrahlten Goldfolien kann über den bekannten Goldwirkungsquerschnitt  $\sigma_{\rm ref}^{\rm Au}$  der Wirkungsquerschnitt der Probe berechnet werden.



**Abbildung 3.10:** Zerfallsschema von <sup>63</sup>Ni: Die beim  $\beta^-$ -Zerfall frei werdenden Elektronen haben eine maximale Energie von etwa 67 keV [35], Halbwertszeit nach [9].

Sowohl bei der Neutronenaktivierung <sup>62</sup>Ni(n, $\gamma$ ) als auch bei der Photoaktivierung <sup>64</sup>Ni( $\gamma$ ,n) wurde <sup>63</sup>Ni erzeugt, das mit einer Halbwertszeit von 101,1 Jahren ohne Aussendung von  $\gamma$ -Strahlung durch  $\beta^-$ -Zerfall in <sup>63</sup>Cu zerfällt [35, 9] (vgl. Abb. 3.10). Aus diesem Grund konnte die Anzahl der aktivierten Kerne nicht wie sonst aus der Aktivität der Probe bestimmt werden. Stattdessen wurde die Zahl der erzeugten <sup>63</sup>Ni-Kerne mittels Beschleunigermassenspektrometrie (englisch: accelerator mass spectroscopy, kurz AMS) am Tandembeschleuniger des Maier-Leibnitz-Laboratoriums (MLL) der Ludwig-Maximilians-Universität (LMU) und TU München in Garching ermittelt.

#### 3.4.1.1 AMS-Experimente am MLL in Garching

Der experimentelle Aufbau für die Massenspektrometrieexperimente wird in Abb. 3.11 gezeigt. In der Ionenquelle werden Cäsiumionen zur Probe hin beschleunigt und setzen dort u.a. einen geringen Anteil an negativen Ionen und Molekülen frei, die durch entsprechend angelegte Hochspannungen aus der Ionenquelle beschleunigt werden. Im 90°-Injektormagneten wird bereits eine bestimmte Masse ausgewählt, die 18°-Ablenkung ermöglicht eine Energieselektion. Nach einer Vorbeschleunigung werden die negativen Ionen zum auf positivem Potential liegenden Terminal hin beschleunigt und treffen dort auf eine aus Kohlenstoff (4  $\frac{\mu g}{cm^2}$ ) bestehende Stripperfolie. Dort enstehen unterschiedlich geladene positive Ionen, wobei die Häufigkeiten, mit der diese Ionen erzeugt werden, vom jeweiligen Ladungszustand abhängen. Durch den Umladungsprozess wird die vorhandene Terminalspannung ein zweites Mal zur Beschleunigung der Ionen verwendet, so dass diese beim Verlassen des Beschleunigers je nach Ladungszustand eine Energie von mehr als 165 MeV erreichen. Für die <sup>63</sup>Ni-AMS-Messung wurde ein Ladungszustand von 12<sup>+</sup> bzw. 13<sup>+</sup> gewählt.

Nach dem Beschleuniger ist ein Wienfilter aus gekreuzten elektrischen und magnetischen Feldern installiert. Für Isotope im Bereich der Massenzahl  $A \approx 60$  wird damit eine Unterdrückung der Nachbarisotope mit  $\Delta A = 1$  – beispielsweise <sup>62</sup>Ni und <sup>64</sup>Ni bei Messungen von <sup>63</sup>Ni – um bis zu drei Größenordnungen erreicht [37].

Da Isobare mit dem gleichen Verhältnis Impuls zu Ladung  $\frac{p}{q}$  auftreten, können diese bis zu dieser Stelle im Strahlführungsystem nicht voneinander getrennt werden. Deshalb werden die Ionen in ein gasgefülltes Analysiermagnetsystem (GAMS) gebracht [37, 38], wo sie nach vielen aufeinanderfolgenden Stößen einen mittleren Ladungszustand  $\bar{q}$  erreichen, der von der Geschwindigkeit v und der Kernladungszahl Z des Ions abhängig ist.

Dadurch haben Isobare nun eine unterschiedliche magnetische Steifigkeit

$$B \cdot \rho = \frac{p}{\bar{q}} \tag{3.18}$$

und werden im Magnetfeld unterschiedlich stark abgelenkt und voneinander getrennt. Das Magnetfeld wird so gewählt, dass ein Großteil des störenden Isobars auf eine Blende trifft und gar nicht erst in den Detektor gelangt, damit die Zählrate nicht zu hoch wird. Im Fall von <sup>63</sup>Ni ist das störende und wegen des geringen Unterschieds in der Kernladungszahl nur schwierig zu unterdrückende Isobar <sup>63</sup>Cu (vgl. Abb. 3.11). Als Detektor wird eine Frischgitter-Ionisationskammer verwendet: Diese besteht aus



dedizierte Ionenquelle

Abbildung 3.11: AMS mit dem Tandem-Beschleuniger in Garching (Grafik aus [36]): Durch den 90°-Injektormagneten wird bereits ein bestimmter Massenbereich ausgewählt. Im mit Stickstoff gefüllten Magneten stellen sich durch Stöße mit den Stickstoffmolekülen unterschiedliche mittlere Ladungszustände  $\bar{q}$  ein, so dass Isobare verschieden stark abgelenkt und dadurch voneinander separiert werden können, beispielsweise <sup>63</sup>Cu bei einer <sup>63</sup>Ni-Messung.

fünf Energieverluststreifen, zusätzlich sind die erste und zweite Anode geteilt. Damit können zusätzlich auch noch der Ort und der Ortswinkel bestimmt werden, sowie durch die Zeitinformationen, wann die Teilchen auf die Elektroden treffen, der y-Winkel. Durch die Kombination von Orts- und Zeitinformationen kann eine weitere Isobarentrennung erreicht werden.

## 3.4.2 Besonderheiten bei der <sup>63</sup>Ni-Messung

Wie bereits erwähnt ist das Isobar <sup>63</sup>Cu bei den <sup>63</sup>Ni-Messungen äußerst störend und kann nur durch aufwendige Maßnahmen unterdrückt werden. Einige der Gründe und die entsprechenden Gegenmaßnahmen sollen im Folgenden erläutert werden.

Die Wahrscheinlichkeit, mit der im Sputterprozess in der Ionenquelle negative Ionen erzeugt werden, hängt von der so genannten Elektronenaffinität ab. Im Fall von Nickel und Kupfer liegen diese mit Werten von 1,156(10) eV bzw. 1,235(5) eV [39] sehr nahe beieinander, so dass die beiden Isotope <sup>63</sup>Cu und <sup>63</sup>Ni in der Ionenquelle nicht voneinander getrennt werden können.

Da die normale Ionenquelle für empfindliche <sup>63</sup>Ni-Messungen bereits einen zu hohen Kupferuntergrund verursacht, kommt bei diesen Messungen eine spezielle Ionenquelle zum Einsatz, bei der keinerlei Kupferteile verwendet werden, und die über eine wassergekühlte Oberfläche verfügt, um den Kupferuntergrund so gering wie möglich zu halten [36, 40, 41].

Auch bei der Probenpräparation – das <sup>63</sup>Ni wurde als Pulver geliefert und für die Aktivierungen in Tablettenform gepresst – wurde sorgfältig darauf geachtet, keine Kupferverunreinigungen in die Probe einzutragen.

Als Probenhalter für die AMS-Messungen wurde hochreines Graphit verwendet, in welches die Nickelproben mit einem Stößel gestopft wurden [36].

#### 3.4.3 Standard- und Blankproben

Bei den AMS-Messungen wurden neben den eigentlichen Nickelproben noch so genannte Standard- und Blankproben gemessen. Bei den Standard-Proben handelt es sich um Proben mit genau bekanntem Anteil des zu messenden Nuklids. Mit diesen wird die Transmission T von der Ionenquelle durch das gesamte Strahlführungssystem bis zum Detektor bestimmt. Für sie gilt:

$$T = \frac{e \cdot N}{\bar{I} \cdot t \cdot C_{\rm St}} \tag{3.19}$$

mit der Elementarladung e, der Anzahl N der gemessenen Ereignisse des Nuklids, dem mittleren (Nuklid-) Strom  $\overline{I}$ , der Messdauer t und der Konzentration  $C_{\text{St}}$  des Standards.

Durch verschiedene Software-Cuts kann der Einfluss des störenden Isobars weiter unterdrückt werden. Die Standard-Proben dienen dabei zur Festlegung derjenigen Bereiche des Spektrums, in denen die Signale des zu messenden Isotops liegen. Signale außerhalb werden verworfen. Im Idealfall sind dann bei einer Blankprobe innerhalb des definierten Bereichs keine Ereignisse mehr nachweisbar, wohingegen bei einer Standard-Probe die Ereignisse des interessierenden Isotops messbar sind.

Die Blankproben erlauben eine genaue Bestimmung des Untergrunds - insbesondere der Anteil an  $^{63}$ Cu ist bei den Nickelmessungen sehr wichtig.

Aufgrund von Verlusten von der Ionenquelle bis zum Detektor, sowie der angelegten Software-Cuts gelangt nur ein Bruchteil des Gesamtstroms in die Ionisationskammer. Üblicherweise gehen im Beschleuniger etwa 50% des Stroms verloren, die Ionenausbeute für den bei Ni-Messungen am häufigsten ausgewählten Ladungszustand  $12^+$ beträgt etwa 15%, bei  $13^+$  etwa 5%. Im weiteren Verlauf des Strahlführungssystems gehen nochmals 50% der Ionen verloren, den gasgefüllten Magneten passieren – je nach Einstellung – lediglich weitere 50 % der Ionen. Durch die Softwarecuts verringert sich die Transmission um weitere 50%. Insgesamt liegt die Transmission damit im Bereich von etwa 1% [42].

## 3.5 Ergebnisse

### 3.5.1 Neutronenaktivierung von <sup>62</sup>Ni

#### 3.5.1.1 Die verwendeten <sup>62</sup>Ni-Proben

Für die  $(n,\gamma)$ -Aktivierungen wurden zwei Proben mit unterschiedlichem Anreicherungsgrad verwendet. Da dadurch auch der Anteil an Verunreinigungen unterschiedlich ausfällt, lässt sich der Einfluss systematischer Fehler verringern. Für die AMS-Messungen ist – wie bereits in Abschnitt 3.4.2 erwähnt – insbesondere der <sup>63</sup>Cu-Anteil von Relevanz. Genauere Angaben zur Zusammensetzung der beiden Proben sind in den Tabellen 3.1 und 3.2 aufgeführt.

**Tabelle 3.1:** Zusammensetzung der <sup>62</sup>Ni-Probe (I) mit 95,0% Anreicherungsgrad [43], 94,4 mg und einem Durchmesser von 6 mm.

Ni-Isotop	58	60	61	62	64			
Häufigkeit $[\%]$	2,3	$1,\!6$	$0,\!9$	95,0	$0,\!2$			
Element	Ca	Mg	Si	Fe	$\mathbf{Cu}$	Al	Zn	В
Häufigkeit [ppm]	800	<10	<50	200	$< \! 10$	150	<10	<1
Element	Ti	Mn	$\operatorname{Cr}$	Sn	Co	As	W	Pb
Häufigkeit [ppm]	<10	10	30	<10	<10	<1	$<\!\!50$	< 10

**Tabelle 3.2:** Zusammensetzung der <sup>62</sup>Ni-Probe (II) mit 97,3% Anreicherungsgrad [43]. Die Masse betrug 100,9 mg bei einem Probendurchmesser von 6 mm.

Ni-Isotop	58	60	61	62	64
Häufigkeit $[\%]$	$1,\!05$	1,22	$0,\!350$	$97,\!3$	$^{0,1}$
Element	Na	Mg	Si	Κ	Ca
Häufigkeit $[\%]$	0,002	$0,\!005$	$0,\!005$	0,001	0,002
Element	Fe	Cu	Cd	Pb	
Häufigkeit [%]	0,003	$0,\!002$	0,001	0,003	

Trotz des höheren Anreicherungsgrads ist der Kupferuntergrund bei Probe II mit 0,002% doppelt so hoch wie bei Probe I, was für die AMS-Messungen im Hinblick auf den höheren Untergrund jedoch noch gering genug war, da das  $\frac{^{63}Ni}{^{62}Ni}$ -Verhältnis ausreichend groß ausfiel.

## 3.5.1.2 Nachweiswahrscheinlichkeit des verwendeten Germaniumdetektors

Für die Aktivitätsbestimmung der Goldfolien nach der Neutronenbestrahlung in Karlsruhe wurde ein Reinst-Germaniumdetektor (HPGe) verwendet. Zur Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon$  des Detektors wurden verschiedene Eichquellen mit bekannten Aktiviäten herangezogen: <sup>22</sup>Na, <sup>54</sup>Mn, <sup>57,60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs und <sup>152</sup>Eu. Die Informationen über Halbwertszeiten und Photoemissionswahrscheinlichkeiten wurden [44, 45, 46, 47, 48, 49] entnommen. Der Detektor war mit 5 cm Blei und 5 mm Kupfer gegen Untergrund aus der Umgebung abgeschirmt.

Als Fitfunktion wurde die in [50] aufgeführte Funktion herangezogen und um den Parameter  $a_5$  ergänzt:

$$\epsilon(E_{\gamma}) = a_1 \cdot e^{-a_2 \cdot E_{\gamma}} + a_3 \cdot e^{-a_4 \cdot E_{\gamma}} + a_5 \tag{3.20}$$

Das Ergebnis ist in Abb. 3.12 dargestellt.



Abbildung 3.12: Nachweiswahrscheinlichkeit des zur Aktivitätsbestimmung der Goldfolien verwendeten Germaniumdetektors in doppeltlogarithmischer Darstellung.

Beim  $\beta^-$ -Zerfall des <sup>198</sup>Au dominiert der Übergang vom 411,8 keV-Niveau in den Grundzustand und wird deshalb zur Neutronenflussbestimmung verwendet. Näherers zum Zerfall und den beteiligten Energieniveaus ist im Anhang A.3.1 aufgeführt. Die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon$  des verwendeten Germaniumdetektors bei der Energie von 412 keV betrug etwa  $\epsilon = (2,00 \pm 0,04)$  ‰. Aufgrund des großen Abstands von 76 mm zwischen den Proben und dem Detektor war es nicht notwendig, Summenkorrekturen infolge zufälliger Koinzidenzen anzubringen.

#### 3.5.1.3 Ergebnisse der AMS-Messungen

Wie bereits erwähnt werden zur Bestimmung der Transmission von der Ionenquelle bis zur Ionisationskammer Standard-Proben mit genau bekannter Konzentration des zu messenden Nuklids verwendet. Ein Beispiel wird in Abb. 3.13 gezeigt.



Abbildung 3.13: Standard-Probe ohne (links) und mit Fensterbedingungen (rechts): Aufgetragen ist der Energieverlust über dem Ort in der Ionisationskammer.

Die schwarze Kurve kennzeichnet den Bereich, innerhalb dessen die zu erwartenden Ereignisse liegen. Die Kurve ergibt sich durch Vergleich zwischen Blank- und Standard-Proben in den verschiedenen Energieverlustspektren. Dabei werden Bedingungen festgelegt, so dass Ereignisse, die vom zu unterdrückenden Isobar kommen, größtenteils ausserhalb des selektierten Bereichs liegen.

Bei der <sup>63</sup>Ni-Messung ist der Kupferuntergrund rechts unterhalb des markierten Bereichs zu erkennen. Durch Software-Cuts wurde die Anzahl der Ereignisse innerhalb



des zu messenden Bereichs etwa um den Faktor drei reduziert (siehe Abb. 3.13 rechts).

Abbildung 3.14: Blankprobe ohne und mit Fensterbedingungen. Als Blankmaterial wurde Probenmaterial verwendet, das nicht bestrahlt wurde, um den individuellen Kupferuntergrund genau zu berücksichtigen.

Die Auswirkungen der Software-Cuts auf eine Blankprobe werden in Abb. 3.14 gezeigt. Der linke Teil der Grafik zeigt das Ergebnis einer Messung ohne Fensterbedingungen, wobei 976 Ereignisse nachgewiesen wurden, die vom intrinsischen Kupferuntergrund des Probenmaterials selbst stammen. Mit Cuts wird innerhalb des <sup>63</sup>Ni-Messbereichs nur ein Untergrundereignis nachgewiesen, was einem  $\frac{^{63}Ni}{^{62}Ni}$ -Verhältnis von  $3 \cdot 10^{-13}$  entspricht und damit deutlich unterhalb des Bereichs der Messwerte liegt. Abb. 3.15 zeigt schließlich die Ergebnisse einer <sup>62</sup>Ni-Probe. Nach Berücksichtigung der Software-Cuts bleiben 138 Ereignisse innerhalb des <sup>63</sup>Ni-Messbereichs übrig. Um das Verhältnis der erzeugten <sup>63</sup>Ni-Atome zu den <sup>62</sup>Ni-Atomen zu bestimmen, wurden in zwei Stralhzeiten mehrere Messungen durchgeführt. Aus der <sup>62</sup>Ni-Probe mit 95% Anreicherung (Probe 1) wurden zwei bzw. drei AMS-Proben hergestellt, die <sup>62</sup>Ni-Probe mit 97,3%-Anreicherung (Probe 2) wurde in zwei AMS-Proben aufgeteilt. Für das  $\frac{^{63}Ni}{^{62}Ni}$ -Verhältnis der beiden Proben ergaben sich schließlich folgende Werte:

- Probe 1:  $(6, 0 \pm 1, 7) \cdot 10^{-11}$
- Probe 2:  $(5, 1 \pm 1, 3) \cdot 10^{-11}$

Zusammen mit den Informationen über den totalen Neutronenfluss kann damit der Maxwell-gemittelte Wirkungsquerschnitt berechnet werden.



**Abbildung 3.15:** Messergebnis einer <sup>62</sup>Ni-Probe ohne (links) und mit Fensterbedingungen (rechts). Innerhalb des Messbereichs wurden nach dem Anlegen der Software-Cuts 138 Ereignisse nachgewiesen.

#### 3.5.1.4 Maxwell-gemittelter Wirkungsquerschnitt

Zur Berechnung des Maxwell-gemittelten Wirkungsquerschnitts muss der Querschnitt auch bei anderen Energien bekannt sein, wozu verschiedene Datenbanken oder die Resultate von Flugzeitexperimenten herangezogen werden. Da vor der Berechnung bei kT = 25 keV normiert wird, liegen die Werte in diesem Bereich nahe beieinander. Die Ergebnisse der Extrapolation hängen stark von der verwendeten Energieabhängigkeit ab, wobei die Resultate des Flugzeitexperiments von Alpizar et al. [22] den in JENDL3.3 aufgeführten Verlauf bestätigen.

Da die Resonanzstruktur in JENDL3.3 genau aufgeführt ist, werden diese Werte verwendet, und man erhält einen Maxwell-gemittelten Wirkungsquerschnitt bei 30 keV von  $(23, 4 \pm 4, 6)$  mbarn. Weitere Werte bei anderen Energien oder unter Verwendung anderer Energieabhängigkeiten sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst, siehe auch Abb. 3.16.

Da für die Berechnung der Wirkungsquerschnitte teilweise zwischen den vorhandenen Datenpunkten interpoliert werden musste, wurde das Fortran-Programm "interpolate.f" von [51] verwendet.



Abbildung 3.16: Grafische Darstellung Maxwell-gemittelter Wirkungsquerschnitte der Reaktion  ${}^{62}Ni(n,\gamma)$  bei verschiedenen Energien.

**Tabelle 3.3:** Maxwell-gemittelte Wirkungsquerschnitte von  ${}^{62}$ Ni im Energiebereich von kT=5-100 keV.

kТ	ENDF/B-VII	JEFF	JENDL	Alpizar	NON-	TALYS
$[\mathrm{keV}]$		3.1	3.3	et al.	SMOKER	1.0
5	39,8	39,0	188	166	$77,\!5$	54,8
10	34,7	$34,\!5$	$83,\!9$	$78,\!5$	45,7	$40,\!6$
15	$31,\!9$	$31,\!9$	50,3	$48,\! 6$	$35,\!5$	34,2
20	$29,\!6$	29,5	35,5	35,1	30,4	$_{30,5}$
25	27,7	$27,\!6$	$27,\!8$	$27,\!8$	27,4	28,2
30	26,3	26,1	$23,\!4$	$23,\!5$	$25,\!6$	26,5
40	24,3	24,0	18,7	18,9	$23,\!4$	$24,\! 6$
50	23,0	$22,\!8$	16,3	$16,\! 6$	22,2	$23,\!5$
60	22,2	$21,\!9$	15,0	15,2	$21,\!5$	22,7
70	$21,\!6$	$21,\!3$	14,2	$14,\!3$	$21,\!0$	22,3
80	21,1	20,8	$13,\!6$	13,7	20,7	$21,\!9$
90	20,8	20,5	13,2	$13,\!3$	20,4	$21,\!6$
100	20,5	20,2	$12,\!8$	$12,\!9$	20,2	21,4

## 3.5.1.5 Vergleich mit anderen Messungen

Die <sup>62</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>63</sup>Ni-Reaktion ist für die Produktion der schwereren Isotope im Bereich des s-Prozesspfades von Eisen bis zur abgeschlossenen Neutronenschale bei N=50von großer Bedeutung. In der Vergangenheit wurden die Werte des aufgeführten Wirkungsquerschnitts allerdings immer wieder verändert und korrigiert (vgl. Abb. 3.17). In Bao et al. 1987 [52] und Bao et al. 2000 [13] wird der Wert mit (35,5±4) mbarn bzw. (12,5±4) mbarn angegeben, basiert jedoch in beiden Fällen auf den gleichen experimentellen Daten und unterscheidet sich nur aufgrund unterschiedlicher Annahmen hinsichtlich des Beitrags direkter Einfänge und von Resonanzen im thermischen Energiebereich.



Abbildung 3.17: Vergleich des Maxwell-gemittelten Wirkungsquerschnitts für kT=30 keV.

Rauscher und Guber [53] führten Berechnungen direkter Einfangreaktionen durch und kamen zu dem Schluss, dass die Einfänge bei höheren Energien auf p-Wellen zurückzuführen sind, was einen Wert von  $30 \le \sigma \le 40$  mbarn ergab. 2005 folgte ein Erratum, da der p-Wellenanteil überschätzt wurde, wodurch der Wirkungsquerschnitt nun im Bereich von  $9.7 \le \sigma \le 11.2$  mbarn zu erwarten wäre.

Schließlich wurden 2005 die Resultate zweier unabhängiger Messungen veröffentlicht, doch anstatt übereinstimmender Werte blieben deutliche Diskrepanzen. Nassar et al. [54] führten Aktivierungsexperimente durch und erhielten einen Einfangquerschnitt von (28,4 $\pm$ 2,8) mbarn bei kT=25 keV, das Ergebnis der Flugzeitexperimente von Tomyo et al. [11] lieferte (37,0 $\pm$ 3,2) mbarn.

Anfang 2008 publizierten Alpizar-Vicente et al. [22] als Ergebnis einer Flugzeitmessung einen Maxwell-gemittelten Wirkungsquerschnitt von  $(25, 8 \pm 3, 7)$  mbarn bei 30 keV. Zusammen mit dem in dieser Arbeit ermittelten Wert von  $(23, 4\pm 4, 6)$  mbarn scheint damit die Frage nach dem <sup>62</sup>Ni-Querschnitt geklärt zu sein: die Werte der drei neuesten Experimente liegen nahe beieinander, und man erhält den fehlergewichteten Mittelwert dieser Messungen zu  $(25, 5\pm 3, 8)$  mbarn.

#### 3.5.1.6 Stellare Reaktionsraten

Bei der Berechnung stellarer Reaktionsraten (vgl. Abschnitt 5.3.1) muss man berücksichtigen, dass bei Laborexperimenten die beteiligten Kerne im Grundzustand vorliegen. In stellarer Umgebung befinden sich die Kerne teilweise in angeregten Zuständen, was sich auf die Reaktionsraten auswirken kann. Deshalb werden die Laborraten durch Multiplikation mit Korrekturfaktoren (englisch: stellar enhancement factor SEF) entsprechend modifiziert. Die SEF sind wie folgt definiert [55]:

$$SEF = \frac{\langle \sigma^* v \rangle}{\langle \sigma^{\text{lab}} v \rangle}$$
(3.21)

 $\sigma^*$  ist der Wirkungsquerschnitt in stellarer Umgebung,  $\sigma^{\text{lab}}$  der gemessene (Laborwirkungs-)Querschnitt. Für Neutroneneinfänge an <sup>62</sup>Ni bei Neutronenenergien von 5 bis 300 keV haben die Korrekturfaktoren alle den Wert 1, eine Übersicht zeigt Tabelle 3.4.

**Tabelle 3.4:** Korrekturfaktoren für die stellaren Reaktionen beim Neutronen-<br/>einfang an  $^{62}$ Ni im Temperaturbereich von 0,1 bis  $10 \cdot 10^9$  K nach [25, 55].

$T_9$	SEF	$T_9$	SEF	$T_9$	SEF	$T_9$	SEF
0,1	1,000	0,6	1,000	2	1,000	5	0,991
$0,\!15$	1,000	0,7	1,000	$^{2,5}$	1,000	6	$0,\!953$
$^{0,2}$	1,000	0,8	1,000	3	1,000	7	$0,\!875$
$0,\!3$	1,000	0,9	1,000	$^{3,5}$	1,000	8	0,772
$^{0,4}$	1,000	1	1,000	4	1,000	9	0,642
$0,\!5$	1,000	$1,\!5$	1,000	$^{4,5}$	1,000	10	0,507

Es ist

$$N_A < \sigma^* v >= N_A \cdot \text{SEF} < \sigma^{\text{lab}} > \cdot v = N_A \cdot \text{SEF} < \sigma^{\text{lab}} > \cdot \sqrt{\frac{2kT}{\mu}}$$
(3.22)

Mit <  $\sigma^{lab}$  > in mbarn, kT in keV und  $\mu$  in atomaren Masseneinheiten erhält man die stellare Reaktionsrate in [mol<sup>-1</sup> cm<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>] zu

$$N_A < \sigma^* v >= 2,64543 \cdot 10^4 \cdot \text{SEF} \cdot < \sigma^{\text{lab}} > \cdot \sqrt{\frac{kT}{\mu}}$$
(3.23)

Für  $< \sigma >$  werden zur Berechnung die Werte der bereits in Abschnitt 3.5.1.4 diskutierten energieabhängigen Querschnitte von JENDL3.3 und der Flugzeitmessung von [22] verwendet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.5 zusammengefasst und werden in Abb. 3.18 mit den Werten verglichen, die sich aus den Datensätzen aus JEFF3.1, ENDF/B-VII, sowie den theoretisch vorhergesagten Querschnitten nach NON-SMOKER und TALYS 1.0 ergeben.

**Tabelle 3.5:** Stellare Reaktionsraten unter Verwendung von JENDL3.3 undAlpizar et al. 2008 [22]

kТ	JENDL 3.3	Alpizar et al.	kТ	JENDL 3.3	Alpizar et al.
$[\mathrm{keV}]$	in $10^{6}$ [mo	$l^{-1} cm^3 s^{-1}$ ]	$[\mathrm{keV}]$	in $10^{6}$ [mo	$\rm ol^{-1} \ cm^3 \ s^{-1}$ ]
5	11,22	9,92	50	3,08	$3,\!13$
10	7,07	$6,\!62$	60	$3,\!10$	$3,\!14$
15	$5,\!19$	5,02	70	$3,\!16$	$3,\!20$
20	4,24	4,18	80	3,24	$3,\!27$
<b>25</b>	$3,\!71$	$3,\!71$	90	3,33	$3,\!36$
30	$3,\!41$	$3,\!44$	100	$3,\!42$	$3,\!45$
40	$3,\!15$	$3,\!19$			



**Abbildung 3.18:** Stellare Reaktionsraten von  ${}^{62}$ Ni $(n,\gamma)$  unter Verwendung von JENDL3.3 und Alpizar et al. 2008 [22]. Die Datensätze aufgrund der evaluierten (JEFF3.1, ENDF/B-VII) bzw. theoretisch berechneten Querschnitte (NON-SMOKER und TALYS 1.0.) sollten aus den in Abschnitt 3.5.1.4 diskutierten Gründen nicht berücksichtigt werden.

## 3.5.2 Photoaktivierung von <sup>64</sup>Ni

#### 3.5.2.1 Photoneninduzierte Kernreaktionen von <sup>64</sup>Ni

Abhängig von der Photonenenergie sind bei der Bestrahlung von <sup>64</sup>Ni mit  $\gamma$ -Quanten der  $(\gamma, n)$ -,  $(\gamma, p)$ - oder der  $(\gamma, \alpha)$ -Kanal offen (vgl. Abb. 3.19).



**Abbildung 3.19:** Wirkungsquerschnitte der Reaktionen <sup>64</sup>Ni( $\gamma$ ,x) mit x=(n, p,  $\alpha$ ) nach NON-SMOKER.

Im Bereich von 10 bis 17 MeV dominiert der  $(\gamma, n)$ -Kanal mit einem Q-Wert von -9,658 MeV, die Q-Werte für  $(\gamma, p)$ - und  $(\gamma, \alpha)$ -Reaktionen betragen -12,548 und -8,112 MeV [56].

## 3.5.2.2 Die <sup>64</sup>Ni-Proben

Für die Photoaktivierungsexperimente standen mehrere Proben zur Verfügung, die aus demselben Probenmaterial stammen und zu Tabletten mit Durchmessern von jeweils 6 mm gepresst wurden. Die genaue Zusammensetzung ist in Tabelle 3.6 aufgeführt.

Die beiden Ni-Proben wurden bei Endpunktsenergien von 13,4 MeV und 11,5 MeV aktiviert. Die Unsicherheit in der Endpunktsenergie beträgt etwa 100 keV. Die Anzahl

Ni-Isotop	58	60	61	62	64		
Häufigkeit $[\%]$	$0,\!07$	$0,\!035$	0,005	0,26	99,63		
Isotop	Al	Co	$\operatorname{Cr}$	Cu	Fe	Mg	Mn
Häufigkeit [ppm]	150	3	10	25	150	25	30
Isotop	Pb	Si	Ti	Zi	С	$\mathbf{S}$	
Häufigkeit [ppm]	10	240	40	20	85	50	

**Tabelle 3.6:** Zusammensetzung der verwendeten <sup>64</sup>Ni-Proben mit 99,63% Anreicherungsgrad [43] und Durchmessern von 6 mm. Die Massen der einzelnen Proben lagen im Bereich zwischen 50 und 55 mg.

der aktivierten Kerne wurde wie bei der Neutronenaktivierung (vgl. Abschnitt 3.5.1) durch Beschleunigermassenspektrometrie ermittelt.

#### 3.5.2.3 Aktivität der Goldfolien

Wie bereits erwähnt wurde die Photonenfluenz aus der Aktivtät der Goldfolien bestimmt. Dafür wurden Reinstgermaniumdetektoren mit einer relativen Nachweiswahrscheinlichkeit von 60% bzw. 90% – verglichen mit einem 3"×3" NaI(Tl)-Detektor – verwendet. Die Detektoren befanden sich innerhalb einer Bleiabschirmung, um den natürlichen Untergrund abzuschwächen und dadurch das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu verbessern.

Da die Proben in minimalem Abstand zum Detektor ausgezählt wurden, mussten Summenkorrekturen angebracht werden (näheres im Anhang A.4). Um den Anteil von zufälligen Koinzidenzen mit  $\gamma$ -Quanten der freigesetzten Röntgenstrahlung zu verringern, befand sich zwischen Probe und Detektor ein 1,5 mm dicker Cd-Absorber, wodurch die notwendigen Korrekturen geringer ausfielen. Gegenüber der 333 keV-Goldlinie wurde der Röntgenuntergrund um etwa drei Größenordnungen reduziert.

Zur Bestimmung der Aktivität konnten die drei Übergänge bei 333 keV, 356 keV und 426 keV verwendet werden. Dabei wurden PileUp- und Totzeit-Korrekturen von 10%, sowie Summenkorrekturen von mehr als 20% und 6% (für die Übergänge mit  $E_{\gamma}$ =333 keV und  $E_{\gamma}$ =356 keV [33]) berücksichtigt. Unter Einbeziehung der aktuellen Photoemissionswahrscheinlichkeiten von [57] stimmen die drei Werte auf etwa 1% überein und ergaben eine Aktivierungsausbeute von (4,85 ± 0,11)·10<sup>-11</sup>.

#### 3.5.2.4 Ergebnisse der AMS-Messungen

Bei der Bestimmung des  $\frac{^{63}Ni}{^{64}Ni}$ -Verhältnisses wurde analog wie bei den  $^{62}Ni$ -Proben vorgegangen. Aus Zeitgründen konnte die Probe bisher nur in einer Strahlzeit vermessen werden, weshalb das Ergebnis einen großen (systematischen) Fehler aufweist. Als fehlergewichteter Mittelwert mehrerer Messungen ergab sich ein  $\frac{^{63}Ni}{^{64}Ni}$ -Verhältnis von  $(1, 1^{+0.5}_{-0.4}) \cdot 10^{-12}$ . Dieses Ergebnis soll in weiteren Messreihen noch deutlich verbessert werden.

#### 3.5.2.5 Bestimmung des $(\gamma, \mathbf{n})$ -Wirkungsquerschnitts

Anhand der Aktivität der Goldfolien wurde die experimentelle Aktivierungsausbeute bei der Aktivierung mit einer Endpunktsenergie von 13,4 MeV zu  $(4, 85 \pm 0, 11) \cdot 10^{-11}$  bestimmt. Zusammen mit den Ergebnissen der AMS-Messungen, die eine Aktivierungsausbeute der <sup>64</sup>Ni-Probe von  $(1, 1^{+0,5}_{-0,4}) \cdot 10^{-12}$  ergaben, erhält man folgende Normierungsfaktoren  $k_{\text{norm}}$ :

- Wirkungsquerschnitt  $\sigma(\gamma,n)$  mit NON-SMOKER:  $k_{norm}=0.45^{+0.20}_{-0.16}$
- Wirkungsquerschnitt  $\sigma(\gamma,n)$  mit TALYS 1.0:  $k_{norm}=0.29^{+0.13}_{-0.10}$

Mit diesen Faktoren können die beiden theoretischen Vorhersagen an die experimentellen Daten angepasst werden. Der Verlauf der theoretisch vorhergesagten ( $\gamma$ ,n)-Wirkungsquerschnitte wird in Abb. 3.20 gezeigt.

Aufgrund der im Elektronenbeamdump freigesetzten Neutronen wäre es denkbar, dass über die Reaktion <sup>64</sup>Ni(n,2n) ebenfalls <sup>63</sup>Ni produziert wird. Zwar steigt der (n,2n)-Querschnitt oberhalb der Reaktionsschwelle von 9,810 MeV deutlich schneller an als der ( $\gamma$ ,n)-Wirkungsquerschnitt und übertrifft letzteren bei 13,3 MeV etwa um einen Faktor 30. Allerdings liegt die Zahl der Neutronen mehrere Größenordnungen unterhalb der Anzahl der Photonen und kann daher vernachlässigt werden.

Damit wurden erstmals Messungen des photonuklearen ( $\gamma$ ,n)-Wirkungsquerschnitts von <sup>64</sup>Ni durchgeführt. Für weitergehende Untersuchungen, um beispielsweise eine eventuell vorkommende Energieabhängigkeit des Normierungsfaktors festzustellen, müssen weitere Experimente bei anderen Endpunktsenergien durchgeführt werden.



**Abbildung 3.20:** ( $\gamma$ ,n)-Wirkungsquerschnitt von <sup>64</sup>Ni nach theoretischen Modellen mit NON-SMOKER und TALYS 1.0.

Die Ergebnisse zeigen jedoch, dass bei längerer Aktivierungsdauer prinzipiell Messungen bei niedrigeren Energien, die näher an der Reaktionsschwelle liegen und damit für astrophysikalische Prozesse von größerer Bedeutung sind, durchgeführt werden können, da die Nachweisgrenze der Münchner AMS-Anlage noch nicht erreicht wurde.

# Kapitel 4

# Astrophysikalische Auswirkungen

## 4.1 Sternmodellsimulationen für die Reaktion ${}^{62}Ni(n,\gamma){}^{63}Ni$

#### 4.1.1 Heliumkernbrennen

M. Pignatari führte Sternmodellsimulationen mit den neuen Wirkungsquerschnitten durch, um die Auswirkungen auf die Isotopenhäufigkeiten zu ermitteln [58]. Dazu wurden die in dieser Arbeit ermittelten Querschnitte mit den Werten von Nassar et al. [54] verglichen (vgl. Abb. 4.1), für die Extrapolation zu höheren Energien wurden die Daten von JENDL3.3 verwendet.

Da der Wirkungsquerschnitt mit 23,4 mbarn niedriger ausfällt als der von Nassar et al. bestimmte Wert von 26,1 mbarn, kommt es im direkten Vegleich zu einer um etwa 10% größeren <sup>62</sup>Ni-Häufigkeit. Dies wirkt sich – wenn auch nur im Prozentbereich – auf alle nachfolgenden s-Isotope bis hin zu Rubidium und Strontium aus, deren Häufigkeiten alle etwas geringer ausfallen. Dies zeigt, dass während des s-Prozesses in massiven Sternen aufgrund der geringen Neutronenexposition keinesfalls von einem lokalen Gleichgewicht ausgegangen werden darf.

Bei <sup>63</sup>Cu wirken sich die Änderungen im Ni-Querschnitt am deutlichsten aus, da es unmittelbar nach <sup>62</sup>Ni über die Reaktionen <sup>62</sup>Ni( $n,\gamma$ )<sup>63</sup>Ni( $\beta^-$ )<sup>63</sup>Cu erzeugt wird. Jenseits der abgeschlossenen Neutronenschale bei N=50 sind keine großen Änderungen zu erwarten, da dafür die Neutronenexposition in massiven Sternen zu gering ist. Durch die größeren Abweichungen vom Vergleichswert fallen die Unterschiede deutlicher aus, wenn die untere experimentelle Grenze als Wert in den Simulationen ver-





Die durchgezogene und die gestrichelte Linie zeigen die Auswirkungen der unteren bzw. oberen experimentellen Grenze auf die resultierenden Häufigkeiten.

wendet wird. Die <sup>62</sup>Ni-Häufigkeiten am Ende des Heliumkernbrennens sind dann etwa 30% höher, da weniger Neutronen eingefangen werden, weshalb die Häufigkeiten der schwereren Isotope bis zur abgeschlossenen Neutronenschale alle um 10% vermindert sind (durchgezogene Linie in Abb. 4.1).

Umgekehrt liegt die obere Grenze etwas oberhalb des Werts von Nassar et al., weshalb mehr <sup>62</sup>Ni zu <sup>63</sup>Ni reagiert und die <sup>62</sup>Ni-Häufigkeit etwa 5% niedriger liegt (gestrichelte Linie in Abb. 4.1). Dadurch werden die schwereren Isotope in etwas größerem Ausmaß erzeugt.

#### 4.1.2 Kohlenstoffschalenbrennen

Für die Simulation des Kohlenstoffschalenbrennens wurde ein größerer Fehler angenommen, weshalb die Auswirkungen zwischen der oberen und unteren Grenze noch deutlicher ausfallen (siehe die gestrichelte bzw. die durchgezogene Linie in Abb. 4.2). Zudem sind die im vorangegangenen Heliumkernbrennen erzeugten Isotope das Aus-



gangsmaterial für die nun ablaufenden Kernreaktionen.

Abbildung 4.2: Isotopenhäufigkeiten am Ende des Kohlenstoffschalenbrennens: Zum Vergleich wurden die Häufigkeiten durch die Werte von [54] dividiert. Die durchgezogene und die gestrichelte Linie zeigen die Auswirkungen der experimentellen Unsicherheiten auf die resultierenden Häufigkeiten (untere Grenze: durchgezogene Linie, obere Grenze: gestrichelte Linie).

Beim unteren Grenzwert verdoppelt sich die <sup>62</sup>Ni-Häufigkeit, da der Kern gleichsam als Flaschenhals agiert, beim experimentellen Wert bzw. dem oberen Grenzwert belaufen sich die Änderungen immer noch auf 25% bzw. 10%, was sich dementsprechend auch auf die schwereren Isotope auswirkt.

Die Unsicherheiten im Maxwell-gemittleten Wirkungsquerschnitt führen zu einer Unsicherheit in der <sup>62</sup>Ni-Isotopenhäufigkeit von einem Faktor 2. Die Auswirkungen auf Kupfer liegen im Bereich von 15–20%, alle anderen s-Prozessisotope unterliegen Unsicherheiten von 10–15%.

Deshalb ist eine Flugzeitmessung mit hoher Energieauflösung geplant, die derzeit bei n<sub>-</sub>TOF in Vorbereitung ist. Damit wird die Resonanzstruktur des Querschnitts genauer erfasst.

# Kapitel 5

# Der Karlsruher $4\pi$ BaF<sub>2</sub>-Detektor

## 5.1 Verwendung eines Kalorimeters

Zwar lassen sich mit der in Abschnitt 3 erwähnten Aktivierungsmethode die Wirkungsquerschnitte auch bei sehr kleinen Probenmengen ermitteln, allerdings ist man bei der Aktivierungstechnik bei jeder Messung auf eine bestimmte Energieverteilung beschränkt. Soll der Wirkungsquerschnitt auch bei anderen Energien bestimmt werden, muss extrapoliert werden, was mit entsprechenden Unsicherheiten verbunden ist.

Flugzeitexperimente hingegen ermöglichen die simultane Bestimmung des energieabhängigen Wirkungsquerschnitts über einen großen Energiebereich, so dass Extrapolationen oftmals überflüssig werden, da der Querschnitt direkt bei der gewünschten Energie gemessen weden kann. Allerdings werden bei dieser Technik in den derzeit existierenden experimentellen Anlagen angereicherte Proben im Milligrammbereich benötigt, was die Bestimmung kleiner Wirkungsquerschnitte erschwert und die Messung radioaktiver Proben aufgrund der Aktivität des Probenmaterials gar unmöglich macht.

## 5.2 Experimente mit Neutronen

Der experimentelle Aufbau in Karlsruhe mit den verschiedenen Strahlrohrsystemen in der Experimentierhalle wird in Abb. 5.1 gezeigt: Im 3,7 MV Van de Graaff-Beschleuniger werden positiv geladene Ionen auf die gewünschte Energie beschleunigt und dann experimentabhängig durch verschiedene Strahlrohre geführt. Aktivierungsexperimente werden am Strahlrohr unter 45°R bei Gleichströmen von 100  $\mu$ A und mehr durchgeführt. Auf die Aktivierungstechnik wurde bereits in Abschnitt 3 auf Seite 21 näher eingegangen.



Abbildung 5.1: Aufbau in Karlsruhe: Nach dem Beschleuniger werden die geladenen Teilchen – zumeist Protonen – je nach Experiment durch unterschiedliche Strahlrohre geführt: Aktivierungsexperimente finden unter 45°R bei Gleichströmen statt. Flugzeitexperimente können entweder unter 70°R (alter Aufbau) oder unter 90°L (neuer Aufbau) realisiert werden.

Flugzeitexperimente können entweder unter 70°R (alter Aufbau mit einem Flugweg von 77 cm) oder unter 90°L (neuer Aufbau mit 4 cm Flugweg) durchgeführt werden. Durch einen Buncher kann die Pulsbreite des Protonenstrahls von 10 ns gegebenenfalls auf etwa 1 ns verringert werden (näheres dazu siehe Abschnitt 5.2.7 auf Seite 78). Mit einem Adapterstück kann der Strahl aber auch bis ins Zentrum eines Kalorimeters
geführt werden, um Reaktionen mit geladenen Teilchen, beispielsweise Protonenreaktionen, zu untersuchen.

Um die bei Kernreaktionen auftretenden  $\gamma$ -Kaskaden vollständig detektieren zu können, wird ein  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektor verwendet. Dieser zeichnet sich durch eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit von 95% (Einfangkaskade mit einer Summenenergie von 2,5 MeV oder mehr), einer Energieauflösung von 14% bei 662 keV (<sup>137</sup>Cs-Linie) und einer hohen Zeitauflösung von ca. 500 ps aus [59, 60, 61, 62].



Abbildung 5.2: Alter und neuer Aufbau des  $4\pi$ -Detektors: Beim alten Aufbau (links) wurde zur Reduzierung des Untergrunds aus gestreuten Neutronen eine massive Abschirmung aus Paraffin und Blei verwendet. Beim neuen Aufbau mit kurzem Flugweg (rechts) sind diese Möglichkeiten stark eingeschränkt, doch können sowohl ein Neutronenabsorber als auch eine Bleiabschirmung installiert werden.

Beim alten Aufbau an dem Strahlrohr unter 70°R (vgl. Abb. 5.2 links) beträgt der Abstand zwischen Target und der Probe etwa 77 cm. Da bei der Neutronenproduktion sowohl der dabei erzeugte  $\gamma$ -Flash als auch die Neutronen einen großen Untergrund verursachen, befindet sich zwischen beiden eine Abschirmung aus mit Bor versetztem Paraffin und Blei, die den Untergrund um einen Faktor 10<sup>8</sup> reduziert. Durch eine Öffnung von 20 mm Durchmesser im Kollimator wird lediglich ein räumlich begrenzter Neutronenstrahl hindurchgelassen: Bei 250 kHz und einem Strom von 2  $\mu$ A treffen etwa 8 · 10<sup>3</sup> Neutronen/s auf die Probe [62].

Für Experimente mit radioaktiven Proben muss die Probenmenge häufig äußerst gering sein, da es ansonsten zu Untergrundproblemen aufgrund der Eigenaktivität des Materials kommen kann. Deshalb muss die Empfindlichkeit des bisherigen Aufbaus deutlich gesteigert werden, was gleichzeitig auch die Möglichkeit zur Untersuchung von Kernreaktionen mit kleinem Wirkungsquerschnitt eröffnet.

## 5.2.1 Neuer Aufbau mit kurzem Flugweg

Die Empfindlichkeit des bisherigen Versuchsaufbaus lässt sich prinzipiell durch verschiedene Maßnahmen verbessern: Erhöhung des Targetstroms, Verwendung einer anderen Kernreaktion, Verbesserung der Detektorempfindlichkeit oder Steigerung des Neutronenflusses.

Eine Erhöhung des Targetstroms wird bei Gleichstrom experimenten durch die bei der Kernreaktion unweigerlich frei werden de Wärmeenergie begrenzt. Metallische Lithiumtargets lassen sich nur bis etwa 100  $\mu$ A verwen den, beim Wechsel zu Lithiumfluoridtargets kann zwar der Strom auf bis zu etwa 140  $\mu$ A erhöht wer den, doch sinkt der Neutronenfluss durch die Verwen dung des LiF um den Faktor zwei.

Bei Experimenten mit gepulstem Strahl wird der Targetstrom zum einem durch die Wiederholfrequenz und zum anderen durch die Ionenquelle selbst begrenzt. Zusätzliche Verluste treten bei gebunchtem Strahlbetrieb auf.

Beim Wechsel zu einer anderen Kernreaktion ist man auf den Energiebereich des Beschleunigers von maximal 3,7 MeV limitiert. Andere Kernreaktionen ermöglichen zwar ebenfalls eine Maxwell-Verteilung der Neutronen bei anderen Energien [63, 64, 65], was insbesondere für Aktivierungsexperimente wichtig ist, allerdings ist die Neutronenausbeute viel geringer als bei der <sup>7</sup>Li(p,n)-Reaktion.

Aus Kostengründen war auch eine Steigerung der Detektorempfindlichkeit durch die Verwendung von anderen Detektorkristallen, beispielsweise dotierten  $BaF_2$ -Kristallen, sowie anderen Photomultipliern mit größerer Nachweiswahrscheinlichkeit bei kürzeren Wellenlängen nicht zu verwirklichen.

Verringert man allerdings den Flugweg von bisher 77 cm auf 4 cm, so nimmt der Neutronenfluss bei einer Protonenenergie von 1912 keV – bedingt durch den größeren Raumwinkel, den die Probe dann einnimmt – um etwa zwei Größenordnungen zu.

Die größte Herausforderung bei dieser Herangehensweise liegt in der Beherrschung des Untergrunds.

## 5.2.2 Maßnahmen zur Untergrundreduzierung

Der bei der Neutronenproduktion entstehende Untergrund wird einerseits vom  $\gamma$ -Flash – wenn der Protonenstrahl auf das Target trifft – und andererseits von den Neutronen, die nicht auf die Probe treffen und in den  $BaF_2$ -Kristallen gestreut und schließlich eingefangen werden, verursacht. Ein idealisierter Signalverlauf wird in Abb. 5.3 gezeigt.



Abbildung 5.3: (Idealisierter) Signalverlauf bei kurzem Flugweg: Zwischen  $\gamma$ -Flash und den ersten Neutroneneinfangreaktionen in der Probe vergehen etwa 9 ns. Einfänge und Streuung der schnellen Neutronen im BaF<sub>2</sub>-Detektor begrenzen die Energie der gerade noch vor Einsetzen des Untergrunds detektierbaren langsamen Neutronen auf etwa 13 keV (Grafik nach [66]).

Der Zeitpunkt Null wird durch den  $\gamma$ -Flash festgelegt. Geht man von einer maximalen Neutronenenergie von 100 keV aus so dauert es 9 ns bis die schnellsten Neutronen die Probe erreichen und es zu ersten Einfangreaktionen kommt. Das Zeitfenster, innerhalb dessen gemessen werden kann, wird durch diese schnellen Neutronen begrenzt: Nach 26 ns erreichen sie die ersten BaF<sub>2</sub>-Kristalle, was zu einem großen Untergrundsignal führt. Die langsamsten, vor dem Auftreten dieses Untergrunds noch mit der Probe wechselwirkenden Neutronen haben eine Energie von etwa 13 keV.

Beim Standard-Aufbau war die Anzahl der Photonen, die trotz der Abschirmung im Detektor registriert wurden, vergleichsweise gering. Wie bereits erwähnt wird durch die Abschirmung eine Unterdrückung des Untergrunds um den Faktor  $10^8$  erreicht. Beim neuen Aufbau müssen jedoch Maßnahmen zur Unterdrückung des  $\gamma$ -Flashs ergriffen werden.

# 5.2.2.1 Der $\gamma$ -Flash

#### Backingmaterial und Lithiumschichtdicke

Die Anzahl der Photonen, die im  $\gamma$ -Flash erzeugt werden, hängt vom verwendeten Backingmaterial, auf das das Lithium aufgedampft wird, und von der Dicke der Lithiumschicht ab.

Für die Standard-Targets wurden bisher Kupferbackings verwendet, da diese eine hohe Wärmeleitfähigkeit von 401  $\frac{W}{m \cdot K}$  bei 300 K [39] aufweisen. Durch Variation des Backingmaterials lässt sich die Anzahl der Photonen im  $\gamma$ -Flash deutlich reduzieren (siehe Abb. 5.4).



Abbildung 5.4: Einfluss unterschiedlicher Backingmaterialien auf die Anzahl der Photonen im  $\gamma$ -Flash: Durch den Wechsel von Kupfer zu Tantal lässt sich der  $\gamma$ -Untergrund etwa um den Faktor 400 verringern (links). Ein Target mit einer eingelöteten Goldscheibe wird rechts gezeigt.

Mit steigender Ordnungszahl nimmt die Anzahl der Photonen im  $\gamma$ -Flash ab: Gold reduziert den  $\gamma$ -Untergrund bereits um zwei Größenordnungen, Tantal sogar etwa um den Faktor 400. Zwar hat Tantal eine deutlich schlechtere Wärmeleitfähigkeit als Kupfer (nur 57,5  $\frac{W}{m \cdot K}$  bei 300 K [39]), doch angesichts des zu erwartenden deutlich geringeren Targetstroms von etwa 1  $\mu$ A im Gegensatz zu Aktivierungsexperimenten kann das Target von außen mit Luft gekühlt werden.

Der weitaus größte Anteil an Photonen entsteht allerdings in der Lithiumschicht und liegt etwa um einen Faktor 150 höher als im Kupfer (vgl. Abb. 5.5). Da das Lithium jedoch zur Neutronenproduktion benötigt wird, kann lediglich dessen Schichtdicke variiert werden. Simulationen mit dem Programm SRIM [67] zeigen, dass eine Li-Dicke von etwa 5  $\mu$ m ausreicht, um Protonen mit einer Energie von 1912 keV bis unter die Reaktionsschwelle von 1881 keV abzubremsen und so eine Maxwell-Verteilung der Neutronen zu erzielen.



Abbildung 5.5: Einfluss verschiedener Li-Schichtdicken auf den  $\gamma$ -Flash: Bei größerer Schichtdicke nimmt die Anzahl der Photonen zu. Eine Schichtdicke von etwa 5  $\mu$ m Lithium reicht aus, um eine Maxwell-Verteilung der Neutronen zu erzielen.

Kombiniert man beide Maßnahmen zur Untergrundreduzierung, so sind bei einem Targetstrom von 1,5  $\mu$ A immer noch etwa 1-2  $\gamma$ -Quanten pro Puls und Detektorkristall zu erwarten. Deshalb wurden weitere Maßnahmen zur Untergrundreduzierung in Betracht gezogen.

### Signalkomponenten in den Bariumfluorid-Kristallen

Das Szintillationslicht in den Bariumfluoridkristallen besteht aus zwei Signalkomponenten, die sich in Zerfallszeitkonstante  $\tau$  und Wellenlänge  $\lambda$  unterscheiden: Neben dem schnellen Signal bei  $\lambda_1=220$  nm und  $\tau_1=0,6$  ns gibt es eine langsame Komponente mit  $\lambda_2=310$  nm und  $\tau_2=630$  ns [68]. Für Experimente mit hohen Zählraten ist primär die schnelle Komponente von Interesse.

Das Verhältnis der beiden Signale ist temperaturabhängig: So lässt sich die Energieauflösung der BaF<sub>2</sub>-Kristalle erhöhen, indem die Temperatur verringert wird, da in diesem Fall der Anteil der dominanten, langsamen Komponente verstärkt wird [69]. Deshalb wurden Versuche mit einem kleinen BaF<sub>2</sub>-Kristall ( $\emptyset$  50 mm) gemacht, um das Verhältnis der schnellen zur langsamen Komponente bei höheren Temperaturen zu untersuchen. Erhöht man die Temperatur des Kristalls von Raumtemperatur auf 65°, so wird die langsame Komponente gedämpft und das Verhältnis nimmt um den Faktor 1,6 zu (vgl. Abb. 5.6).



Abbildung 5.6: Temperaturabhängigkeit des Verhältnisses von schneller zu langsamer Signalkomponente.

Für praktische Anwendungen sind so hohe Kristalltemperaturen jedoch ungeeignet, außerdem nimmt das Verhältnis der beiden Komponenten nicht im erhofften Maße zu.

Aufgrund der unterschiedlichen Wellenlänge der beiden Signalkomponenten könnten auch Kurzpassfilter verwendet werden, die den Anteil der langsamen Komponente am Gesamtsignal verringern. Allerdings sind Filter in dem benötigten Wellenlängenbereich kommerziell nicht gebräuchlich – bzw. noch in der Entwicklung – und weisen im Allgemeinen eine geringe Transmission auf, wenngleich auch auf diesem Gebiet Fortschritte erzielt wurden [70].

Durch die Verwendung von Wellenlängenschiebern, wie beispielsweise p-terphenyl, könnte das Verhältnis der schnellen zur langsamen Komponente ebenfalls beeinflusst werden [71, 72, 73]. Dabei wird die Strahlung im kürzeren Wellenlängenbereich absorbiert und bei größeren Wellenlängen wieder emittiert. Allerdings hätte auch diese Vorgehensweise einen deutlichen Intensitätsverlust des Signals zur Folge, weshalb nach weiteren Möglichkeiten zur Untergrundreduktion gesucht wurde.

# Abschirmung im Inneren des Detektors

Zu guter Letzt blieb noch die Möglichkeit im Innern des  $4\pi$ -Detektors eine Abschirmung zu konzipieren. Hier galt es einen Kompromiss zwischen der Unterdrückung des  $\gamma$ -Flashs einerseits, bei gleichzeitig möglichst geringer Abschwächung der Einfangstrahlung andererseits, zu finden. Deshalb wurden Simulationen mit dem Programm GEANT4 [74] durchgeführt (siehe Abb. 5.7).



Abbildung 5.7: Schnitt durch den  $4\pi$ -Detektor bei der GEANT-Simulation. Die  $\gamma$ -Quanten werden von der Proben- bzw. Targetposition aus zufällig in alle Richtungen emittiert.

Als Abschirmung wurde eine Bleikugel mit einem Durchmesser von 66 mm definiert: Auf der einen Seite hat diese eine zylindrische Bohrung für den vorderen Teil des Strahlrohrs, auf der gegenüberliegenden Seite wurde eine konische Öffnung mit einem Öffnungswinkel von 120° eingearbeitet, damit die Neutronen nicht im Absorbermaterial gestreut bzw. eingefangen werden und zusätzliche Untergrundsignale erzeugen. Das Resultat wird in Abb. 5.8 gezeigt.

Bei einem Q-Wert der stattfindenden Kernreaktion von etwa 6 MeV und einer Multiplizität von 3 liegt der Energiebereich der Einfangphotonen um 2 MeV. Bei dieser Energie werden Photonen von der Probe um etwa 7%, Photonen vom Li-Target hingegen um 30% abgeschwächt.



Abbildung 5.8: Bleiabschirmung im Inneren des  $4\pi$ -Detektors: Die Simulation zeigt die Auswirkung der Abschirmung auf  $\gamma$ -Strahlung unterschiedlicher Energien sowohl von der Target- als auch der Probenposition.

# 5.2.2.2 Neutronenuntergrund

Beim alten Aufbau mit 77 cm Flugweg wurden die störenden Neutronen durch borierte Paraffinblöcke absorbiert. Trotz der beengten Platzverhältnisse im Innern des  $4\pi$ -Detektors bestand die Möglichkeit, neben der Bleiabschirmung noch einen Neutronenabsorber zu installieren.

Das beste Material für einen Absorber wäre <sup>6</sup>LiH: Es moderiert aufgrund seines hohen Wasserstoffgehalts Neutronen sehr gut und fängt gleichzeitig Neutronen über die Reaktion <sup>6</sup>Li( $n, \alpha$ )<sup>3</sup>H ohne Aussendung von störender  $\gamma$ -Strahlung ein. Außerdem wäre der Einfluss auf das  $\gamma$ -Spektrum der Einfangreaktionen wegen der niedrigen Ordnungszahlen äußerst gering. Aufgrund der mit dem Material verbundenen Schwierigkeiten – <sup>6</sup>LiH wird als strategisches Material eingestuft – musste eine Alternative realisiert werden.

Im Rahmen der n\_TOF-Kollaboration, bei der ebenfalls ein  $4\pi$ -Detektor verwendet wird, wurden bereits Untersuchungen über mögliche Alternativen zu <sup>6</sup>LiH durchgeführt [75] (vgl. Abb. 5.9). Dabei wurde die Neutronentransmission durch verschiedene, jeweils 5 cm dicke Materialien und die entsprechende Transparenz bezüglich  $\gamma$ -Strahlung simuliert.



Abbildung 5.9: Eigenschaften verschiedener, jeweils 5 cm dicker Materialien zur Neutronenabsorption. Die Neutronentransmission ist bei LiH am geringsten, alternativ kann auch das Salz aus einer Dodekandicarbonsäure verwendet werden (links). Die Auswirkungen auf  $\gamma$ -Strahlung für verschiedene Nachweisschwellen im  $4\pi$ -Detektor wird rechts gezeigt.

Als Material wurde schließlich eine Mischung aus  ${}^{6}\text{Li}_{2}\text{CO}_{3}$  und einer Carbonsäure gewählt, die unter Freisetzung von Wasser und Kohlenstoffdioxid zu einem Lithiumsalz reagiert:

$${}^{6}\text{Li}_{2}\text{CO}_{3} + \text{HOOC}(\text{CH}_{2})_{10}\text{COOH} \longrightarrow {}^{6}\text{LiOOC}(\text{CH}_{2})_{10}\text{COO}{}^{6}\text{Li} + \text{H}_{2}\text{O} + \text{CO}_{2}$$

Da in Karlsruhe im Unterschied zu dem von der n-TOF Kollaboration am CERN genutzten  $4\pi$ -Detektor ein Probenwechsler verwendet wird, musste der Aufbau des Neutronenabsorbers entsprechend angepasst werden.

Für den FZK-Absorber wurde das in mehreren Portionen hergestellte Lithiumsalz zunächst fein zermahlen, mit Wasser vermischt und in eine mit Alufolie ausgekleidete Form gegeben, deren Innendurchmesser geringfügig kleiner als der Hohlraum im Innern des  $4\pi$ -Detektors ist.

Um die Menge des beim Bau des CERN-Absorbers verwendeten Aluminiums zu verringern, wurde untersucht, ob das Absorbermaterial alleine bereits ausreichend formstabil ist. Nach Erhitzen und anschließendem Abkühlen war das Salz in der Alufolie relativ stabil, ohne Folie ließen sich jedoch leicht einzelne Materialbrocken entfernen. Deshalb wurde der FZK-Absorber mit einer Lage Aluminiumfolie und schwarzem Klebeband umgeben, was zusammen für ausreichend Stabilität sorgte. Auf diese Weise konnte der in der CERN-Version verwendete Aluminiumbehälter eingespart werden. Ein Photo des fertigen Neutronenabsorbers wird in Abb. 5.10 gezeigt.



Abbildung 5.10: Photo des FZK-Absorbers.

# 5.2.3 Frankfurter Neutronenquelle am SGZ

Die aus den Experimenten zur Untergrundreduzierung gewonnenen Erkenntnisse fließen in das in Frankfurt geplante FRANZ-Projekt (**Fra**nkfurter Neutronenquelle am Stern-Gerlach-Zentrum) ein [76, 77, 78]. Dort ist ein neuer Beschleuniger geplant, der bei einer Strahlenergie von  $(2\pm0,1)$  MeV einen mittleren Targetstrom von 2 mA liefern soll<sup>a)</sup>. Durch die Verwendung eines Bunchers soll die Pulsbreite auf bis zu 1 ns reduziert werden. Anwendungsgebiete sind die Bestimmung von Neutroneneinfangwirkungsquerschnitten für die nukleare Astrophysik, Transmutation, Materialforschung und die Detektorentwicklung.

Wie in Karlsruhe soll für Experimente der nuklearen Astrophysik auch dort ein Kalorimeter aus BaF<sub>2</sub>-Detektorkristallen die bei den Einfangreaktionen frei werdende  $\gamma$ -Strahlung nachweisen. Aufgrund der hohen zu erwartenden Ströme spielt der  $\gamma$ -Flash eine noch größere Rolle als im Karlsruher Aufbau. Da selbst bei weitaus geringeren Targetströmen von 1,5  $\mu$ A pro Puls und Detektor immer noch ein bis zwei  $\gamma$ -Quanten zu erwarten sind (vgl. Abschnitt 5.2.2.1), schied die Variante mit kurzem Flugweg bereits im Vorfeld aus.

L. Kazakov führte MCNP-Simulationen zu verschiedenen Abschirmvarianten durch. Im neuen experimentellen Aufbau ist nun ein Flugweg von etwa 80 cm vorgesehen, was ungefähr dem alten Karlsruher Aufbau entspricht.

<sup>&</sup>lt;sup>a)</sup> Bei einer Pulslänge von 1 ns und einer Wiederholfrequenz von 250 kHz ergeben sich Peakströme von ca. 8 A

#### 5.2.4 Neues Strahlrohr

Um die Flugzeitexperimente am Strahlrohr unter Null Grad durchführen zu können, mussten Modifikationen am vorhandenen Strahlrohr vorgenommen werden. Eine Übersicht über das neue Strahlrohr wird in Abb. 5.11 auf der nächsten Seite gezeigt. Bereits in der Vergangenheit wurde an diesem Strahlrohr die Reaktion  ${}^{12}C(\alpha, \gamma){}^{16}O$ gemessen [79]. Hauptuntergrundkomponente bei dieser Kernreaktion ist aufgrund des etwa 10<sup>7</sup>-fach größeren Wirkungsquerschnitts die Reaktion  ${}^{13}C(\alpha,n){}^{16}O$ , weshalb nur noch ölfreie Vakuumpumpen zum Einsatz kamen. Da weitere Messungen der Tripel-Alpha-Reaktion geplant waren, wurden bei der Neukonzeption des Strahlrohrs für die Flugzeitmessungen die vorhandenen O-Ring-Dichtungen durch CF-Flansche mit Kupferdichtungen ersetzt. Dadurch lässt sich einerseits der Anteil möglicher  ${}^{13}C$ -Verunreinigungen weiter verringern und andererseits aufgrund der höheren Dichtigkeit ein besseres Vakuum erzielen.

Der Abstand zwischen den vorderen und hinteren Quadrupolpaaren ist fest vorgegeben. Dazwischen wurden ein neues T-Stück für den Anschluss einer Turbopumpe, ein Scanner zur Kontrolle der Strahllage und ein UHV-Schieber eingebaut. Der UHV-Schieber dient dazu, das nach einem Targetwechsel zu evakuierende Volumen möglichst gering zu halten, um innerhalb weniger Minuten wieder ein gutes Vakuum zu erreichen. Das Ventil wurde bereits an dieser Stelle im Strahlrohr eingebaut, da targetseitig zwischen dem hinteren Quadrupolpaar und dem Gestell des  $4\pi$ -Detektors nicht ausreichend Platz zur Verfügung stand.

Für eine gute Strahlfokussierung war es notwendig, den Abstand zwischen dem hinteren Quadrupoldublett und dem Target möglichst gering zu halten. Als nächste Strahlrohrkomponenten folgen ein T-Stück zum Turbopumpenanschluss, ein weiteres zum Anschluss der Vor- und Hochvakuummesszelle, sowie des zum Belüften benötigten Argonventils.

Die Feinausrichtung des vorderen Strahlrohrstücks wurde über einen Balg realisiert. Den Abschluss des Strahlrohrs bildet ein sich verjüngendes Strahlrohrstück, dessen vorderer Teil gegenüber dem Rest des Strahlrohrs isoliert montiert werden kann.

Als Target wurden Tantalscheiben mit einem Durchmesser von 22,5 mm verwendet. Durch den normalen Luftdruck werden diese so fest an das Strahlrohr gedrückt, dass weitere Befestigungen überflüssig waren. Der Masseanteil im Targetbereich konnte daher gering gehalten werden, wodurch der durch Streuung verursachte Untergrund minimiert wurde.



Abbildung 5.11: Neues Strahlrohr unter Null Grad. Der vordere Teil des Strahlrohrs ist gegenüber dem restlichen Strahlrohr isoliert montiert. An dem mit einem Stern \* markierten Teil befinden sich Anschlüsse zur Vakuummessung (Vor- und Hochvakuum), sowie zum Belüften mit Argon, die zur besseren Übersicht nicht eingezeichnet wurden [80]. Während des abschnittsweisen Zusammenbaus wurde die Ausrichtung des Strahlrohrs mit einem Theodoliten überprüft und das Target bei der Feinjustierung so ausgerichtet, dass sich vom vorderen Quadrupolpaar bis zur Targetscheibe eine Gerade ergab. Nach Durchführung verschiedener Dichtigkeitstests mit einem Helium-Lecksucher und dem Ausheizen des neuen Strahlrohrs mit Heizschlangen wurde ein Vakuum im Bereich von etwa  $3 \cdot 10^{-7}$  mbar erreicht, was für die geplanten Messungen mehr als ausreichend war.

#### 5.2.5 Neues Gestell für den $4\pi$ -Detektor

In der Vergangenheit kam in Karlsruhe bereits ein Aluminiumgestell zum Einsatz, das anschließend für das n\_TOF-Experiment am CERN verwendet wurde [79]. Für die dauerhafte Installation an dem Strahlrohr unter Null Grad wurde deshalb eine neue Version erstellt, in das die beim Vorgängermodell gewonnenen Erkenntnisse eingeflossen waren und das ebenfalls von der Firma Kanya [81] gebaut wurde.

Die Aluminiumwabenstruktur, die als Halterung für die einzelnen Bariumfluoridkristalle dient, wurde in der Werkstatt des Instituts für Kernphysik am FZ Karlsruhe hergestellt. Die Wabenstruktur ist zweigeteilt, wobei eine Hälfte separat auf einem beweglichen Teil des Gestells montiert ist. Auf diese Weise kann der Detektor zur Montage der Targets und Proben aufgefahren werden.

Zur Befestigung der Wabenstruktur am Gestell wurden mehrere Halterungen realisiert. Beim Einbau der Kristalle zeigte sich, dass einfache Halterungen nicht ausreichten, da sich die Kugel unter dem Gewicht der Kristalle leicht verformte. Deshalb wurde die Stabiliät der Halterungen durch Querstreben deutlich erhöht. Das gesamte Gestell mit der Wabenkugel und den Kristallen kann durch Schrauben vertikal verstellt werden, so dass eine Höhenjustierung des  $4\pi$ -Detektors möglich ist.

Um Vibrationen durch die Vakuumpumpen zu verhindern, sind sowohl das Strahlrohr als auch der Detektor mechanisch vom Gitterboden der Experimentierhalle entkoppelt und stehen auf separaten Stüzen, die direkt auf dem Kellerboden ruhen.

Bei Flugzeitmessungen mit Neutronen werden verschiedene Proben bestrahlt:

- 1. Die eigentliche Probe aus isotopenreinem Material.
- 2. Kohlenstoffprobe: Bei Kohlenstoff dominiert der Streuquerschnitt, Neutroneneinfänge in der Probe können vernachlässigt werden. Dadurch wird der Untergrund durch gestreute Neutronen experimentell erfasst.

- 3. Goldprobe: Wie bei den Aktivierungsexperimenten wird Gold als Referenzstandard verwendet.
- 4. Leerprobe: Die Leerprobe dient zur Bestimmung des probenunabhängigen Untergrunds. Hierzu zählen der von den Radiumverunreinigungen in den BaF<sub>2</sub>-Kristallen stammende Untergrund und vor allem der Untergrund aufgrund des Neutronenstrahls selbst. Wegen der begrenzten Abschirmmöglichkeiten innerhalb des Detektors wird der Neutronenstrahl zum Teil von den Kristallen in Vorwärtsrichtung erfasst.

Insgesamt können bis zu fünf Proben (plus Leerprobe) im Probenhalter befestigt werden. Der Abstand zwischen den einzelnen Proben wurde auch hier dem neuen Aufbau entsprechend angepasst.



Abbildung 5.12:  $4\pi$ -Detektor mit neuem Gestell. Die beiden Hälften des Detektors sind geöffnet, so dass die Probe im Zentrum des Detektors zu sehen ist. Vorne im Bild befindet sich ein Neutronendetektor, links steht das Datenaufnahmesystem mit den Flash-ADCs und einem Teil der Elektronik.

Um den Einfluss von Schwankungen des Neutronenflusses zu verringern, werden die

Proben in regelmäßigen Zeitabständen, beispielsweise alle 10 Minuten, automatisch gewechselt. Dazu wurde der beim bisherigen Aufbau mit langem Flugweg verwendete Probenwechsler modifiziert und an das neue Gestell angepasst.

Abb. 5.12 zeigt den neuen Aufbau: Das Gestell des  $4\pi$ -Detektor wurde aufgefahren, so dass im Inneren die Probe zu sehen ist. Links neben dem Aluminiumgestell befindet sich das Datenaufnahmesystem mit den Flash-ADCs und dem Datenaufnahmeserver.



Abbildung 5.13: Tentatives <sup>63</sup>Ni-Termschema. Die drei stärksten Übergänge beinhalten fast 97% der Übergangsintensitäten, wobei es sich bei den Prozentangaben um absolute Übergangsintensitäten handelt.

#### 5.2.6 Simulationen mit Geant

Die Auswirkung der Bleiabschirmung im Innern des  $4\pi$ -Detektors auf die Nickel- bzw. Goldspektren in den geplanten Messungen wurden mit Hilfe von Simulationen mit GEANT4 [74] abgeschätzt. Für die sich bei den Einfangreaktionen ergebenden Übergangskaskaden wurde auf Veröffentlichungen der Nuclear Data Sheets zurückgegriffen [35, 82]: Aus den Daten von Experimenten mit thermischen Neutronen wurden tentative Termschemata für die Reaktionen <sup>62</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>63</sup>Ni und <sup>63</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>64</sup>Ni erstellt, die in den Abbildungen 5.13 und 5.15 dargestellt werden. Aus diesen (vereinfachten) Termschemata, bei denen die wichtigsten Übergänge berücksichtigt worden sind, wurden die Übergangskaskaden abgeleitet, die dann in den Computersimulationen verwendet wurden. Nähere Informationen zu den verwendeten und renormierten Linieninten-



sitäten sind im Anhang A.2.1 auf Seite 105 zu finden.

Abbildung 5.14: GEANT-Simulation der Reaktion  ${}^{62}\text{Ni}(n,\gamma){}^{63}\text{Ni}$ : Die obere Grafik zeigt verschiedene Summenspektren ohne Verwendung der Bleiabschirmung, unten wird das Ergebnis mit Bleiabschirmung dargestellt. Zusätzlich wurde die Schwellenenergie der Einzelkristalle schrittweise von 50 bis 500 keV variiert.

# 5.2.6.1 ${}^{62}Ni(n,\gamma){}^{63}Ni$

Für die Einfangreaktion an <sup>62</sup>Ni wurden die drei stärksten Übergänge und alle daraus resultierenden Übergänge bis in den Grundzustand berücksichtigt. Mit 86% dominiert der Grundzustandsübergang, es folgen die beiden Übergänge in das Niveau bei 1001 keV und 518 keV. Zusammen werden damit nahezu 97% der gesamten Übergangsintensität erfasst. In der Simulation wurden  $10^6$  Einfänge nachgestellt.

Beim Übergang vom angeregten Kern in den Grundzustand wurde von einer mittleren Neutronenenergie von 30 keV ausgegangen, so dass sich mit dem Q-Wert der Reaktion von 6,838 MeV [56] eine maximale  $\gamma$ -Energie von 6,868 MeV ergibt.

Abb. 5.14 zeigt das zu erwartende Summenspektrum der Neutroneneinfangreaktion an <sup>62</sup>Ni: Dabei wurde die für ein Einfangereignis in den verschiedenen Kristallen deponierte Energie aufsummiert und in ein Spektrum einsortiert.

Zur Untergrundreduzierung ist es möglich, eine bestimmte Mindestenergie in den Einzelkristallen festzulegen: Ist die in einem Kristall deponierte Energie niedriger als die geforderte Schwelle, wird dieser Anteil nicht detektiert. Bei einer Schwellenenergie von 150 keV in den Einzelkristallen verschiebt sich das Maximum des Summenpeaks in der Grafik nach links, da Photonen vom Übergang des 87 keV-Niveaus in den Grundzustand unter die Schwelle fallen. Bei 300 keV werden auch Photonen des 156 keV-Niveaus unterdrückt – hier zeichnen sich erstmals die Photonen aus dem Kontinuum in das 518 keV-Niveau deutlicher ab. Schließlich sind bei 500 keV-Schwellenenergie die Übergänge mit 6,35 MeV und 5,87 MeV klar zu erkennen.

Unterhalb von 1,2 MeV werden die niederenergetischen Übergänge sichtbar: Bei 50 keV Schwellenenergie sind dies das 518 keV- und 87 keV-Niveau bzw. bei 150 keVund 300 keV-Schwellenenergie der Übergang zwischen dem 518 keV- und 87-keV-Niveau.

Das Ausmaß, mit denen die niederenergetischen Niveaus zutage treten, ist auf die verhältnismäßig geringe Anzahl der beteiligten Niveaus zurückzuführen. Zusätzlich dominiert beim 1001 keV- und 518 keV-Niveau der Zerfall in das unmittelbar darunterliegende Niveau, was die Wahrscheinlichkeit mehrerer Übergänge erhöht.

Wie zu erwarten führt die Bleiabschirmung zu einer Verringerung der Ereignisse im Summenpeak, und die niederenergetischen Einflüsse werden offensichtlicher.

# 5.2.6.2 ${}^{63}Ni(n,\gamma){}^{64}Ni$

Im Falle des <sup>63</sup>Ni ist das sich ergebende Termschema komplexer (Abb. 5.15): Hier umfassen die sechs stärksten Übergänge nahezu 83% der Gesamtintensität. Im Vergleich zu <sup>62</sup>Ni(n, $\gamma$ ) ist der Einfluss des direkten Grundzustandübergangs aus dem Compoundkern deutlich geringer: Umgerechnet handelt es sich bei etwas mehr als jedem zweiten Photon um einen direkten Grundzustandsübergang – statt 90% wie bei <sup>62</sup>Ni.



**Abbildung 5.15:** Tentatives <sup>64</sup>Ni-Termschema. Mit den sechs stärksten Übergängen werden ca. 83% der Gesamtübergangsstärke abgedeckt (absolute Intensitäten, bezogen auf 100 Einfangreaktionen).

Dadurch verteilt sich die bei der Reaktion frei werdende Energie gleichmäßiger auf die beteiligten Niveaus, weshalb die Peaks der niederenergetischen Übergänge auch weniger stark ausgeprägt sind. Mit 36 Neutronen wird mit <sup>64</sup>Ni wieder eine gerade Neutronenzahl erreicht – der Q-Wert der Reaktion liegt bei 9,658 MeV [56].

Die  $\gamma$ -Energien der frei werdenden Photonen liegen mit mindestens 749 keV alle oberhalb der höchsten simulierten Schwellenenergie von 500 keV, so dass es zu keinem deutlichen Abschneideeffekt kommt (s. Abb. 5.16). Auch die Anzahl der Ereignisse im Summenpeak verringert sich weniger als bei <sup>62</sup>Ni. Bei dieser Simulation wurden wieder 10<sup>6</sup> Neutroneneinfänge simuliert.

# 5.2.6.3 $^{197}Au(n,\gamma)^{198}Au$

Der Q-Wert von <sup>197</sup>Au $(n,\gamma)$ <sup>198</sup>Au liegt bei 6,512 MeV [56]. Da Gold für viele Neutroneneinfangreaktionen als Referenzstandard verwendet wird, lagen für diese Reaktion bereits Informationen über Einfangkaskaden vor. Wegen der sehr großen Anzahl der beteiligten Niveaus waren die Übergangskaskaden nach theoretischen Modellen simuliert worden [83]. Diese Ergebnisse wurden in die GEANT-Simulation einbezogen und berücksichtigen nicht nur Photonen, sondern auch bei der Abregung des Kerns emit-



Abbildung 5.16: GEANT-Simulation der Reaktion  ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma)^{64}$ Ni ohne (oben) und mit (unten) Bleiabschirmung. Auch hier wurde die Schwellenenergie der Einzelkristalle variiert.

tierte Konversionelektronen. Insgesamt wurden 20 000 Einfänge in einem Goldtarget simuliert. Die Spektren mit und ohne Bleiabschirmung werden in Abb. 5.17 gezeigt. Aufgrund der vielen beteiligten Niveaus sind keine einzelnen Peaks mehr zu erkennen. Eine Erhöhung der Schwellenenergie in den Einzelkristallen bewirkt dadurch eine gleichmäßige Verschiebung des Summenpeaks zu niedrigeren Energien. Einige Spektren von Einzelkristallen sind im Anhang A.2.2 auf Seite 107 aufgeführt.



**Abbildung 5.17:** GEANT-Simulation der Reaktion <sup>197</sup>Au $(n,\gamma)^{198}$ Au. Insgesamt wurden 20 000 Einfangreaktionen simuliert, bei denen bei der Abregung des Kerns auch Konversionselektronen berücksichtigt wurden.

# 5.2.7 Vorbereitung des Experiments

#### 5.2.7.1 Pulsrate und Pulsbreite

Für die geplanten Messungen an <sup>63</sup>Ni mussten mehrere Punkte beachtet bzw. gegenüber früheren Experimenten verändert werden. Bei Flugzeitexperimenten wurde bisher mit einer Wiederholfrequenz von 250 kHz gearbeitet, d.h. der Abstand zwischen zwei Pulsen betrug 4  $\mu$ s. Da sich beim neuen Aufbau mit kurzem Flugweg das Neutronenproduktionstarget im Innern des 4 $\pi$ -Detektors befindet, werden auch beim Einsatz eines Neutronenabsorbers viele Neutronen in den BaF<sub>2</sub>-Kristallen mehrfach gestreut und schließlich eingefangen. Dieser zeitabhängige Untergrund wird um so geringer, je größer der zeitliche Abstand zum Protonenpuls ist. Deshalb wurde die Frequenz, mit der der Protonenstrahl im Van de Graaff-Beschleuniger abgelenkt wird, auf 125 kHz reduziert. Dadurch verringert sich zwar der Targetstrom um 50%, doch verdoppelt sich damit auch der Zeitraum zwischen den Pulsen auf 8  $\mu$ s, so dass der Einfluss des Untergrunds eines Pulses auf den nachfolgenden Puls minimal ist.



Abbildung 5.18: Funktionsweise des Bunchers: Protonen zu Beginn eines Pulses werden auf einen längeren Weg durch den Bunchingmagneten geschickt, Protonen am Ende des Pulses auf einen kürzeren. An einem bestimmten Punkt nach dem Bunchingmagneten ist die Pulsbreite deutlich verringert.

Die Pulsbreite von 10 ns, mit der der Protonenstrahl aus dem Beschleuniger kommt, waren für die Messung zu breit. Deshalb kam ein Buncher zum Einsatz [84]. Dieser lenkt die Protonen auf unterschiedliche Bahnen durch den Bunchingmagneten: Protonen zu Beginn eines Pulses müssen einen längeren Weg zurücklegen als solche am Ende des Pulses (vgl. Abb. 5.18). An einen bestimmten Ort nach dem Magneten wird die Pulsbreite dann minimal, danach läuft der Puls wieder auseinander. Auf diese Weise kann die Pulsbreite am Target auf 1 ns verkürzt werden.

Für den ordnungsgemäßen Betrieb des Bunchers muss dieser zeitlich auf die einzelnen Protonenpulse abgestimmt werden (vgl. Abb. 5.19). Bei Frequenzen von 250 kHz und mehr kann das Pickupsignal direkt in den harmonischen Generator eingespeist werden, der daraus eine Frequenz von 10 MHz erzeugt, mit der der Buncher arbeitet. Bei niedrigeren Frequenzen muss das Signal frequenzvervielfacht werden. Die dick umrandeten Rechtecke zeigen den Weg des alle 8  $\mu$ s wiederkehrenden Pickupsignals. Die



Abbildung 5.19: Frequenzvervielfachung von 125 kHz auf 1 MHz. Das Pickupsignal wird verdoppelt: Ein Teil wird zur zeitlichen Synchronisation des harmonischen Generators mit dem Strahl direkt in den Generator eingespeist. Der andere Teil wird in eine Rückkopplungsschleife geleitet, um die Frequenz zu vervielfachen. Dazu wurde die Schleife zeitlich so abgestimmt, dass sich insgesamt eine Frequenz von 1 MHz ergibt. Der harmonische Generator erzeugt schließlich aus 1 MHz die für den Betrieb des Bunchers benötigten 10 MHz. Der direkte Weg des Signals ist mit dicken Rechtecken markiert, die gestrichelten Pfeile markieren den Rückkopplungsteil der Elektronik.

dicken Pfeile markieren den Rückkopplungsteil der Elektronik, die aus dem normalen Pickupsignal ein Signal von 1 MHz erzeugen.

Die zeitliche Feinabstimmung zwischen Buncher und Pickupsignal erfolgt am Buncher selbst, indem die Phase verändert wird. Ebenso kann die Amplitude, mit der die Protonenpakete abgelenkt werden, variiert werden.

Da Probleme sowohl mit der Rückkopplungs- als auch der Buncherelektronik auftraten, die nur teilweise behoben werden konnten, führte dies letztendlich dazu, dass die Protonenpulse zwar zu einem gewissen Teil gebuncht werden konnten, der Targetstrom jedoch für die Durchführung der <sup>63</sup>Ni(n, $\gamma$ )<sup>64</sup>Ni-Messung zu gering war, so dass dieses Experiment in Karlsruhe nicht durchgführt werden konnte.

#### 5.2.7.2 Datenaufnahmeserver und RAID-System

Für die zu erwartenden Daten war es notwendig, eine schnelle und sichere Speicherung großer Datenmengen zu gewährleisten. Da eine FZK-interne Speicherung mit vergleichsweise hohen Kosten verbunden gewesen wäre, wurde die Speicherung über einen eigenen Datenserver realisiert. Als Rechner kam ein Pentium IV mit einer Taktfrequenz von 3 GHz, 2 GB Arbeitsspeicher und einer eigenen Systemfestplatte zum Einsatz. Die Daten wurden auf einem RAID-System gespeichert, das aus sieben Festplatten mit je 500 GB Speicherplatz bestand, die zu einem Datenverbund zusammengefasst wurden, sowie einer Reserveplatte, die im Falle eines Festplattenausfalls sofort als Ersatz einspringen konnte (hot spare).

Bei einem RAID-System handelt es sich um einen Festplattenverbund, bei dem mehrere Festplatten zu einem logischen Laufwerk zusammengefasst werden, was einen höheren Datendurchsatz und/oder eine höhere Datensicherheit ermöglicht. RAID stand ursprünglich für redundant array of inexpensive disks [85] – Redundanter Verbund günstiger Festplatten – und ein RAID-System stellte eine kostengünstige Alternative zu einer einzigen großen und damals sehr teuren Festplatte dar. Heutzutage stehen Datentransferrate und Datensicherheit im Vordergrund, weshalb man auch von redundant array of independent disks (Redundanter Verbund unabhängiger Festplatten) spricht.

Die drei wichtigsten RAID-Level sind:

- **RAID 0:** Die Daten werden beim Schreiben auf n Festplatten verteilt, so dass pro Festplatte nur der 1/n-fache Teil geschrieben werden muss. Dadurch wird eine deutlich höhere Datentransferrate sowohl beim Schreiben als auch Lesen der Daten möglich. Bei einem Ausfall einer Festplatte kann es jedoch zu einem vollständigen Verlust aller Daten kommen.
- RAID 1: Bei diesem RAID-Level werden die Daten gespiegelt. Durch die Redundanz der Daten – alle Daten liegen vollständig auf mindestens zwei verschiedenen Festplatten vor – ist eine hohe Datensicherheit gewährleistet. Allerdings ist der Speicherplatzbedarf sehr hoch, da zur Datensicherung nochmals die gleiche Speicherkapazität benötigt wird. Die Datentransferrate entspricht derjenigen einer einzelnen Festplatte.
- **RAID 5:** Hier werden die Daten ähnlich wie bei RAID0 auf mehrere Festplatten geschrieben, zusätzlich werden jedoch immer noch Paritätsinformationen gespeichert. Bei diesem RAID-System wird gegenüber einer einzelnen Festplatte sowohl die Datentransferrate gesteigert als auch die Sicherheit erhöht, da beim Ausfall einer Festplatte immer noch alle Daten vorhanden sind bzw. rekonstru-

iert werden können. Beim Einsatz von n Festplatten wird für die Datensicherung der 1/n-te Teil an Speicherplatz benötigt.

Da für die Datenaufnahme sowohl eine hohe Datentransferrate notwendig war, als auch die Sicherheit der Daten gewährleistet sein musste, wurde auf dem Datenserver ein RAID 5-System eingerichtet.

Um den Prozessor des Datenservers nicht zusätzlich mit Aufgaben der RAID-Verwaltung zu belasten, wurde das RAID-System als Hardware-RAID und nicht per Software realisiert. Sämtliche mit der RAID-Speicherung zusammenhängenden Rechenoperationen wurden auf dem RAID-Controller 9550SX der Firma 3ware/AMCC abgewickelt [86].

### 5.2.7.3 Reduktion der zu speichernden Datenmenge

Wie bereits erwähnt sind selbst bei einer Wiederholfrequenz von 125 kHz und einem Targetstrom von 1,5  $\mu$ A aufgrund des  $\gamma$ -Flashs ein bis zwei  $\gamma$ -Quanten pro Puls und Detektorkristall zu erwarten. Durch die Bleiabschirmung im Innern des Detektors kann die Untergrundrate zwar geringfügig reduziert werden, dennoch ist die anfallende Datenmenge sehr groß und verursacht Totzeiten von mehr als 90%. Aus diesem Grund wurde untersucht, ob sich die anfallende Datenmenge vor der Speicherung reduzieren lässt.

Zur Aufnahme der Messdaten stand die von der n\_TOF-Kollaboration am CERN genutzte und dem Karlsruher Aufbau angepasste DAQ (data acquisition) mit Flash-ADCs der Firma Acqiris zur Verfügung [87, 88]. Im Gegensatz zu herkömmlicher Elektronik wird bei FADCs die vollständige Pulsform der Signale abgespeichert, die dann weiterverarbeitet werden kann. Zur Datenreduktion wurde ein C<sup>++</sup>-Programm entwickelt, das die Pulse vor der Speicherung analysiert und gegebenenfalls verwirft. Charakteristisch für einen Puls sind Pulshöhe, -breite und Flächeninhalt. Aufgrund des geringen Zeitabstandes von etwa 9 ns zwischen  $\gamma$ -Flash und den schnellsten Neutronen ist die langsame Komponente nahezu unverändert, Unterschiede in der Pulshöhe sind auf die schnelle Komponente zurückzuführen, die am Gesamtsignal einen Anteil von etwa 15% hat [70, 71].

Bildet man jedoch das Verhältnis von "Flächeninhalt unter der Kurve : Peakhöhe", sollten sich reine  $\gamma$ -Flashsignale von Signalen aus der Überlagerung von  $\gamma$ -Flash und Einfangereignis unterscheiden. Deshalb wird für jeden Kristall ein Referenzverhältnis vor der Messung berechnet. Da dieses Verhältnis für alle Kristalle berechnet wird, werden auf diese Weise Unterschiede von Kristall zu Kristall – etwa durch verschieden gute Kopplung an den Photomultiplier, andere Energieauflösung usw. – automatisch berücksichtigt.

Bei niedrigem Targetstrom ohne Probe werden nahezu ausschließlich Pulse des  $\gamma$ -Flashs aufgenommen. Diese Daten werden analysiert und der Mittelwert vieler solcher Verhältnisse als Referenzwert in einer Datei – zusammen mit dem genauen Zeitpunkt des  $\gamma$ -Flashs – gespeichert. Bei der eigentlichen Datenaufnahme wird diese Datei einmal eingelesen und die Referenzwerte für jeden Detektor in den Arbeitsspeicher geladen.

Vor der Speicherung der Pulse werden diese nun online grob analysiert. Dabei sind drei Fälle zu unterscheiden:

- Puls vor γ-Flash: Liegt der Puls zeitlich vor dem γ-Flash, wird er als Untergrundereignis aussortiert, da sich alle Einfangereignisse nach dem Flash ereignen müssen.
- Puls nach γ-Flash: Signale nach dem Flash werden als potentielle Einfangereignisse angesehen und gespeichert.
- Puls zum Zeitpunkt des Flashs: In diesem Fall kann das Signal auf den Flash, auf ein Einfangereignis oder eine Kombination aus beiden zurückzuführen sein. Deshalb wird das Verhältnis aus "Flächeninhalt : Peakhöhe" mit dem Referenzwert des entsprechenden Detektors verglichen. Falls das Verhältnis größer ist, wird das Signal gespeichert, da es sich mit großer Wahrscheinlichkeit um ein Signal aus γ-Flash plus Einfangstrahlung handelt. Anderenfalls handelt es sich um ein Untergrundsignal und wird verworfen.

Erste Tests mit der Software verliefen vielversprechend. Eine genauere Analyse über die Anwendbarkeit des Programms war aber aufgrund der bereits erwähnten nicht behebbaren technischen Probleme mit der Buncherelektronik nicht möglich.

Weiterentwicklungen der Flash-ADC-Technik führen dazu, dass der momentane Flaschenhals bei der Datenübertragung – der Datentransfer von den Digitizern zum PC – zukünftig weniger kritisch sein wird und die Totzeit weiter verringert werden kann. Dies ist insbesondere im Hinblick auf die zu erwartende gewaltige Datenmenge beim FRANZ-Projekt (vgl. Abschnitt 5.2.3) von großer Bedeutung.

# 5.3 Weitere Anwendungen des $4\pi$ -Detektors: ${}^{103}\mathbf{Rh}(\mathbf{p},\gamma)$

Rhodium (von griechisch rhodon=Rose) wurde 1803/04 von Wollaston entdeckt. Natürliches Rhodium besteht zu 100% aus <sup>103</sup>Rh mit einem Atomgewicht von 102,90550(3) g/mol und gehört zu den Edelmetallen [39].

 $^{103}$ Rh liegt im Bereich der p-Prozess, anomalie" von  $^{92,94}$ Mo und  $^{96,98}$ Ru. Zur Beurteilung von Vorschlägen zur Erklärung der Anomalie muss ausgeschlossen werden, dass Unsicherheiten in der Reaktionsrate dafür veantwortlich sind. Da bisher keine experimentellen Daten zum  $^{103}$ Rh(p, $\gamma)^{104}$ Pd-Wirkungsquerschnitt vorliegen, wurden Messungen dieses Querschnitts mit dem  $4\pi$ -BaF<sub>2</sub>-Detektor vorbereitet.

#### 5.3.1 Stellare Reaktionsraten und das Gamow-Fenster

Die stellare Reaktionsrate r zwischen den Teilchen  $N_x$  und  $N_y$ , die sich mit einer Geschwindigkeit v relativ zueinander bewegen, und dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma(v)$ der Reaktion beträgt

$$r = N_x N_y \cdot \sigma(v) \cdot v \tag{5.1}$$

In einem normalen stellaren Gas sind die Teilchen im thermodynamischen Gleichgewicht, und die nicht relativistische Geschwindigkeit gehorcht einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung  $\phi(v)$  mit

$$\phi(v) = 4\pi v^2 \cdot \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{3/2} \cdot e^{-\frac{mv^2}{2kT}}$$
(5.2)

wobe<br/>ikdie Boltzmannkonstante und T die Temperatur ist. Fü<br/>r $\phi(v)$ gilt die Normierung

$$\int_0^\infty \phi(v) \, dv \equiv 1 \tag{5.3}$$

 $\sigma(v) \cdot v$  in (5.1) muss mit der Maxwell-Boltzmann-Verteilung aus (5.2) gefaltet werden, und man erhält

$$r = N_x N_y < \sigma \cdot v > \tag{5.4}$$

mit

$$\langle \sigma \cdot v \rangle = \int_0^\infty \phi(v) \ \sigma(v) \cdot v \ dv = \int_0^\infty \int_0^\infty \phi(v_x) \ \phi(v_y) \ \sigma(v) \cdot v \ dv_x \ dv_y \tag{5.5}$$

84

Mit der kinetischen Energie  $E = \frac{1}{2}\mu v^2$ , wobei  $\mu$  die reduzierte Masse  $\mu = \frac{m_x m_y}{m_x + m_y}$  ist, wird (5.5) zu

$$\langle \sigma \cdot v \rangle = \sqrt{\frac{8}{\pi\mu}} \cdot \frac{1}{(kT)^{3/2}} \cdot \int_0^\infty \sigma(E) \ E \cdot e^{-\frac{E}{kT}} \ dE$$
 (5.6)

In stellarer Umgebung ist die Energie der geladenen Teilchen vergleichsweise klein gegenüber der durch die Coulombbarierre hervorgerufenen elektromagnetischen Abstoßung. Die Wahrscheinlichkeit einer Kernreaktion hängt deshalb stark vom quantenmechanischen Tunneleffekt durch die Coulombbarierre ab und es gilt:

$$\sigma(E) \propto P = e^{-2\pi \cdot \eta} \tag{5.7}$$

mit der Tunnelwahrscheinlichkeit P und dem Sommerfeldparameter  $\eta$ , wobei

$$\eta = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\hbar v} \tag{5.8}$$

ist. In Zahlen ausgedrückt gilt

$$\eta \approx \frac{31,29}{2\pi} \cdot Z_1 Z_2 \cdot \sqrt{\frac{\mu}{E}}$$
(5.9)

mit der Schwerpunktsenergie E in keV und der reduzierten Masse $\mu$  in atomaren Masseneinheiten.

Klassisch betrachtet entspricht der Wirkungsquerschnitt der geometrischen Ausdehnung der beiden Reaktionspartner, was quantenmechanisch dem Quadrat der de-Broglie-Wellenlänge  $\lambda$  entspricht, für die gilt:  $\lambda^2 \propto \frac{1}{E}$ . Zusammen mit (5.7) erhölt men

Zusammen mit (5.7) erhält man

$$\sigma(E) = \frac{1}{E} \cdot e^{-2\pi \cdot \eta} \cdot S(E)$$
(5.10)

S(E) ist der so genannte S-Faktor, der alle nuklearen Beiträge zum Wirkungsquerschnitt beinhaltet. Da sich S(E) – mit Ausnahme von Resonanzen – gleichmäßig mit der Energie ändert, eignet sich der S-Faktor besser für Extrapolation zu niedrigeren Energien als der stark energieabängige Wirkungsquerschnitt.

Einsetzen von (5.10) in (5.6) führt auf

$$\langle \sigma \cdot v \rangle = \sqrt{\frac{8}{\pi\mu}} \cdot \frac{1}{(kT)^{3/2}} \cdot \int_0^\infty S(E) e^{-\frac{E}{kT} - \frac{b}{\sqrt{E}}} dE$$
(5.11)

mit  $b = \frac{\sqrt{2\mu} \pi e^2 Z_1 Z_2}{\hbar}$  bzw.  $b \approx 0,989 \cdot Z_1 Z_2 \sqrt{\mu}$  in Einheiten von  $[\sqrt{\text{MeV}}]$ .  $b^2$  ist die so genannte Gamow-Energie  $E_G$ .



Abbildung 5.20: Den Gamow-Peak erhält man aus der Faltung der Energieverteilung der Reaktionspartner mit dem Wirkungsquerschnitt. Die größte Reaktionswahrscheinlichkeit liegt daher noch oberhalb des Maximums der Maxwell-Boltzmann-Verteilung (Grafik nach [89]).

Die Tunnelwahrscheinlichkeit ( $\propto e^{-\sqrt{E_G/E}}$ ) durch die Coulombbarierre nimmt mit steigender Energie exponentiell zu, gleichzeitig nimmt aber die Zahl der Teilchen mit der Energie ebenfalls exponentiell ab, da diese der Maxwell-Boltzmann-Verteilung ( $\propto e^{-E/kT}$ ) unterliegen. Faltet man nun den Wirkungsquerschnitt mit der Geschwindigkeitsverteilung, so erhält man einen Energiebereich, innerhalb dessen die meisten Kernreaktionen ablaufen, den so genannten Gamow-Peak (vgl. Abb. 5.20).

Unter der Annahme, dass sich der S-Faktor um die Energie  $E_0$  durch eine Konstante  $S(E_0)$  annähern lässt, kann dieser in (5.11) vor das Integral gezogen werden. Das Maximum des Gamow-Peaks liegt dann bei

$$E_0 = \left(\frac{bkT}{2}\right)^{2/3}$$
 bzw.  $E_0[\text{keV}] \approx 1,22 \cdot \sqrt[3]{Z_1^2 Z_2^2 \mu T_6^2}$  (5.12)

Der Integrand nimmt dabei einen Wert von

$$I_{\rm max} = e^{-\frac{3E_0}{kT}} \approx e^{-42,46 \cdot \sqrt[3]{Z_1^2 Z_2^2 \mu/T_6}} \quad [\rm keV]$$
(5.13)

an.

Die Exponentialfunktion in (5.11) kann durch eine Gaussfunktion approximiert werden:

$$e^{-\frac{E}{kT} - \frac{b}{\sqrt{E}}} \approx I_{\max} e^{-\left(\frac{E - E_0}{\Delta/2}\right)^2}$$
(5.14)

 $\Delta$  ist die effektive Breite des Gamow-Fensters für die gilt:

$$\Delta = 4 \cdot \sqrt{\frac{E_0 kT}{3}} \approx 0,749 \sqrt[6]{Z_1^2 Z_2^2 \mu T_6^5} \quad [\text{keV}]$$
(5.15)

Damit lässt sich die Reaktionsrate aus (5.11) umformen und man erhält

$$<\sigma v>=\sqrt{\frac{2}{\mu}}\frac{\Delta}{(kT)^{3/2}}S(E_0)e^{-\frac{3E_0}{kT}}$$
 (5.16)

bzw.

$$<\sigma v> [\mathrm{cm}^3 \mathrm{s}^{-1}] \approx 7,20 \cdot 10^{-19} \cdot \frac{1}{\mu Z_1 Z_2} \left(\frac{3E_0}{kT}\right)^2 \cdot e^{-\frac{3E_0}{kT}} S(E_0)$$
 (5.17)

mit  $S(E_0)$  in keV barn und  $\mu$  in atomaren Masseneinheiten [89].

Mit diesen Näherungen lässt sich abschätzen, in welchem Energiebereich sich das Gamow-Fenster befindet. Für die Reaktion <sup>103</sup>Rh(p, $\gamma$ ) erhält man: Bei Temperaturen von T<sub>9</sub>=2 liegt das Maximum des Gamow-Peaks bei 2,4 MeV mit einer Breite  $\Delta$ von 1,5 MeV, d.h.  $E_0 \pm \Delta/2=1,7$  bis 3,2 MeV. Für T<sub>9</sub>=3 erhält man  $E_0=3,2$  MeV,  $\Delta=2,1$  MeV und  $E_0 \pm \Delta/2=2,2$  bis 4,3 MeV.

Mit dem Karlsruher Van de Graaff-Beschleuniger ist der Energiebereich bis etwa 3,5 MeV experimentell zugänglich.



Abbildung 5.21: Targetadapter für  $(p,\gamma)$ -Messungen. Durch den Kunststoffring und den zur Dichtung verwendeten O-Ring lässt sich der Adapter isoliert montieren.

# 5.3.2 Adapter für $(\mathbf{p}, \gamma)$ -Messungen

Um die  $(p,\gamma)$ -Messungen durchführen zu können, war es notwendig, das ursprünglich für 4 cm Flugweg ausgelegte Strahlrohr bis ins Innere des  $4\pi$ -Detektors zu verlängern, da der Detektor nicht von einem Experiment zum nächsten verschoben werden kann. Deshalb wurde ein Adapterstück erstellt, das sich gegenüber dem Strahlrohr isoliert montieren ließ (siehe Abb. 5.21).

Da der vordere Teil des Strahlrohrs gegenüber dem Rest ebenfalls isoliert montiert ist, kann dieser Teil auf negatives Potential gelegt werden, um die Emission von Sekundärelektronen zu unterdrücken, was für eine genaue Messung des Targetstroms notwendig ist.



Abbildung 5.22: Energie des ersten angeregten Niveaus als Funktion der Massenzahl: Für <sup>208</sup>Pb wird mit deutlichem Abstand die meiste Energie benötigt, um das erste Anregungsniveau zu bevölkern.

#### 5.3.3 Vorversuche zur Untergrundreduzierung

Um den Untergrund für die  $(p,\gamma)$ -Reaktionen möglichst gering zu halten, wurde untersucht, welches Material sich am besten als Träger für die Proben eignet. Der durch Streuung der Protonen im Backingmaterial verursachte Untergrund durch  $(p,p'\gamma)$ -Reaktionen lässt sich verringern, wenn Elemente als Trägermaterial verwendet werden, deren erstes Anregungsniveau energetisch sehr hoch liegt. Eine Übersicht für die Elemente von Tantal bis Wismut zeigt Abb. 5.22, die Werte wurden [90] entnommen. Für Blei und Wismut wird die meiste Anregungsenergie benötigt (das instabile <sup>205</sup>Pb ist nur der Vollständigkeit halber aufgeführt). Das höchste erste angeregte Niveau weist <sup>208</sup>Pb mit  $E_n=2614$  keV auf.

Simulationen mit dem Programm SRIM [67] ergaben eine Reichweite der Protonen in Blei von etwa 25  $\mu$ m bei einer Protonenenergie von 2 MeV bis hin zu etwa 58  $\mu$ m bei  $E_p=3,5$  MeV, der Energieverlust variiert von 52 keV/ $\mu$ m bis zu 38 keV/ $\mu$ m, wobei der elektronische Energieverlust den Hauptteil ausmacht (vgl. Abb. 5.23).



Abbildung 5.23: Die Reichweite von Protonen mit einer Energie von 1 bis 3,5 MeV in Blei wird links gezeigt. Der Energieverlust (rechts) rührt primär von Wechselwirkungen der Protonen mit den Elektronen der Bleiatome her, nukleare Wechselwirkungen spielen eine untergeordnete Rolle [67].

In mehreren Vorversuchen wurde natürliches Blei in einem Bedampfungsstand mit variablem Abstand zwischen Materialquelle und Target auf ein Cu-Backing aufgedampft. Dabei zeigte sich jedoch, dass auch bei geringem Abstand zwischen Bleivorratsbehälter und Backing der Materialverbrauch sowohl für angereichertes <sup>208</sup>Pb als auch natürliches Blei für praktische Zwecke viel zu hoch war.

Als Alternative wurde Bleifolie mit einer Dicke von 0,1 mm auf ein Cu-Backing aufgeklebt und bei den für die  $(p,\gamma)$ -Messungen geplanten Energien mit Protonen beschossen. Trotz Verwendung eines speziellen auf Silber basierenden Klebstoffes mit hoher Wärmeleitfähigkeit hinterließ der Protonenstrahl schon nach wenigen Stunden ein Loch in der Bleifolie, weshalb das Rhodium letztendlich direkt auf das Backingmaterial aufgebracht wurde.

### 5.3.4 Herstellung der Rhodiumtargets

#### 5.3.4.1 Rhodiumschichten (dünne Targets)

Rhodium hat eine hohe Schmelz- und Siedetemperatur von 2236 K bzw. 3968 K [39], so dass das Probenmaterial nicht als dünne Schicht aufgedampft werden konnte, sondern durch Sputtern auf ein Trägermaterial aufgebracht wurde. Das Sputtern wurde am Institut für Materialforschung (IMF 1) im Forschungszentrum Karlsruhe vorgenommen. Sputtertarget war eine Rhodiumscheibe der Firma Goodfellow [91] mit einem Durchmesser von 50 mm, einer Dicke von 1 mm und einem Reinheitsgrad von 99,9%.



Abbildung 5.24: Herstellung der Rhodiumproben: In der Sputteranlage befindet sich ionisiertes Argon. Durch Anlegen einer Hochspannung werden die Argonionen auf das Sputtertarget beschleunigt und schlagen Atome heraus, die in den gesamten Halbraum fliegen und auf allen Oberflächen kondensieren.

Das Prinzip der Probenherstellung wird in Abb. 5.24 gezeigt. In der Sputterkammer befindet sich ionisiertes Argon, das durch Anlegen einer Hochspannung auf das Sputtertarget beschleunigt wird. Dort werden Atome herausgeschlagen, die teilweise ionisiert sind. Ein Teil der Targetatome und -ionen fliegt in Richtung der zu besputternden Probenträger und kondensiert dort als dünne Schicht. Durch Variation der Sputterzeit kann die gewünschte Schichtdicke erreicht werden.

Da der Durchmesser des zur Verfügung stehenden Rhodium-Sputtertargets für die Sputteranlage am IMF 1 nicht die erforderlichen 75 mm aufwies, wurde die Rhodiumscheibe ( $\emptyset$  50 mm) auf eine Tantalscheibe ( $\emptyset$  75 mm) aufgeklebt. Beim Sputtervorgang wurde dann neben dem Rhodium auch Tantal abgetragen. Die Zusammensetzung der

aufgesputterten Schichten war ca. 35% Rhodium und 65% Tantal. Genauere Details zu den Schichten sind im Anhang A.1 auf Seite 103 aufgeführt.

Bei der Bestimmung des  $(p,\gamma)$ -Wirkungsquerschnitts muss die Dicke der Schichten berücksichtigt werden, da die Protonen im Targetmaterial Energie verlieren. Bei der Herstellung der Proben am IMF 1 wurden Schichten aus Rhodium und Tantal mit einer Dicke von etwa 1500 nm aufgetragen. Der Energieverlust von Protonen in dem bereits erwähnten Materialgemisch aus 35% Rhodium und 65% Tantal wird in Abb. 5.25 gezeigt. Die Reichweite von Protonen in diesem Material reicht von 25  $\mu$ m  $(E_p=2 \text{ MeV})$  bis zu 58  $\mu$ m  $(E_p=3,5 \text{ MeV}).$ 



Abbildung 5.25: Simulierter elektronischer und nuklearer Energieverlust in einem Materialgemisch aus 35% Rhodium und 65% Tantal mit dem Programm SRIM.

# 5.3.4.2 Analyse der Rhodiumschichten

Um die genaue Menge des Rhodiums in den Schichten zu bestimmen, wurden am Institut für nukleare Entsorgung (INE) im FZK Röntgenfluoreszenzanalysen (RFA) der Proben vorgenommen. Dabei werden die zu analysierenden Proben mit Röntgenstrahlung angeregt und die von der Probe emittierte charakteristische Röntgenstrahlung detektiert. Anhand der Intensität der Strahlung kann die Menge der gemessenen Substanz bestimmt werden. Für die Analysen wurde das Sequenzspektrometer SRS 3000 der Firma Siemens verwendet. Das Prinzip der RFA-Messungen wird in Abb. 5.26 gezeigt. Angaben zu Energie, Filterart und -dicke... beziehen sich auf die Einstellungen dieser Messreihe.



Abbildung 5.26: Prinzip der Röntgenfluoreszenzanalyse: Die in einer Röntgenröhre erzeugte Strahlung führt zur Freisetzung von Röntgenstrahlung in der Probe. Diese wird in einem Szintillationsdetektor nachgewiesen. Durch Verwendung eines Kristalls kann die Auflösung der Apparatur erhöht werden.

Für die Erzeugung der Röntgenstrahlung werden Elektronen auf eine Energie von 60 kV beschleunigt und treffen anschließend auf eine Rhodiumanode, wo sie abgebremst werden und Bremsstrahlung freigesetzt wird. Da neben dem kontinuierlichen Bremsstrahlungsspektrum auch die charakteristische Röntgenstrahlung des Rhodiums erzeugt wird, kommt ein Kupferfilter mit einer Dicke von 200  $\mu$ m zum Einsatz, um deren Anteil am Gesamtspektrum zu verringern und das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis zu verbessern.

Die in den Proben erzeugte Röntgenstrahlung gelangt durch eine Blende mit 23 mm Durchmesser und einen Kollimator auf einen LiF-Kristall. Dort wird die polychromatische Röntgenstrahlung je nach Wellenlänge unterschiedlich stark gebeugt und schließlich in einem Szintillationszähler nachgewiesen. Zur quantitativen Anlyse der Proben muss das Spektrometer kalibriert werden. Dazu wurden unterschiedliche Mengen einer 1000 ppm-Rhodium-Standardlösung auf ein Tantalbacking pippetiert und getrocknet. RFA-Messungen der verschiedenen Standards ergaben dann einen linearen Zusammenhang zwischen der Intensität der Probe und der Rhodiumkonzentration (vgl. Abb. 5.27).



Abbildung 5.27: Analyse der Rhodiumtargets mittels Röntgenfluoreszenz. Als Eichstandard wurden Ta-Scheibchen verwendet, auf die eine genau definierte Menge an Rhodium aufpippetiert wurde. Durch Vergleich mit der Eichgeraden kann damit die Menge des Rhodiums auf den verschiedenen Proben ermittelt werden.

Die Ergbenisse für die einzelnen Rhodiumschichten sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Der Fehler liegt im Bereich von 2 bis 3%.

# 5.3.4.3 Rhodiumfolie (dickes Target)

Da sich in den Daten der dünnen Targets keine Rhodiumpeaks extrahieren ließen, wurde versucht, ein dickes Rhodiumtarget zu realisieren, wofür eine Rhodiumfolie mit einer Dicke von 100  $\mu$ m verwendet wurde. Um zu verhindern, dass solch ein dünnes Target durch das Evakuieren ins Strahlrohr gezogen wird, musste eine Befestigung für die Rhodiumfolie konstruiert werden. Aufgrund der bereits erwähnten

Proben-Nr	Rh-Konzentration	Rh-Intensität
	[ppm]	[KCPs]
1	$0,\!625$	1,8559
3	0,535	1,5893
4	0,528	1,5672
5	0,526	1,5610
6	0,562	$1,\!6695$
7	0,579	1,7178
0	0,014	0,0414
Ν	$0,\!014$	0,0425

**Tabelle 5.1:** Details zu den Rhodiumtargets. Die Proben mit den Nummern 1bis 7 sind Messproben, O und N sind Leerproben und dienen zur Bestimmungdes Untergrunds.

hohen Schmelztemperatur von 2236 K war es nicht möglich, die Rhodiumfolie durch gewöhnliches Schweißen mit einem anderen Material zu verbinden.

Am Institut für Mikroverfahrenstechnik (IMVT) des FZK ergab sich jedoch die Möglichkeit, die Probe durch so genanntes Diffusionsschweißen zu befestigen (vgl. Abb. 5.28). Dabei werden die zu verarbeitenden Werkstoffe auf etwa 75% ihrer Schmelztemperatur erhitzt und dann für mehrere Minuten bis Stunden aufeinandergepresst. Kleine Oberflächenunebenheiten werden dadurch eingeebnet, und Diffusionsvorgänge an der Oberfläche sorgen für das Zusammenschweißen des Materials.

Für das Diffusionsschweißen wurde ein Material mit möglichst ähnlichen Schmelzpunkt benötigt, weshalb ein Ring aus Vanadium mit einer Schmelztemperatur von 2183 K verwendet wurde [39]. Rhodiumfolie und Vanadiumring wurden zwischen zwei Keramiken gelegt, in einem Ofen erhitzt und für etwa eine Stunde aufeinandergepresst. Dadurch entstand eine stabile Verbindung zwischen beiden Materialien, die auch bei einem Experimentiervakuum von  $10^{-7}$  mbar dicht blieb.

# 5.3.5 Signalweg

Der Signalweg für Experimente mit geladenen Teilchen wird in Abb. 5.29 gezeigt. Vom schnellen Ausgang der Detektormodule gelangen die Signale in mehrere Linear FanIn/FanOut-Module. Dort werden sie verdoppelt: Ein Teil wird in Flash-ADC-


Abbildung 5.28: Diffusionsschweißen am IMVT: Die Probe wird zwischen zwei Keramikplättchen gelegt und bei Erreichen der gewünschten Temperatur zusammengepresst [92].

Kanäle geführt. Aus dem anderen Teil wird ein Summensignal gebildet und in einen Constant Fraction Discriminator gebracht. Da mit dem Kalorimeter idealerweise die vollständige bei der Reaktion freiwerdende Energie detektiert wird, kann durch Variation der unteren Schwelle des CFDs die Untergrundrate entscheidend beeinflusst werden. Üblicherweise wurde eine Schwellenenergie im Bereich von 1,5 bis 2,5 MeV gewählt, was einen guten Kompromiss zwischen Untergrundreduzierung und Energieauflösung darstellt.

Im CFD wird das Signal verbreitert und verdoppelt: Durch Verzögerung und Invertierung des Signals wird ein Vetosignal erzeugt, das zusammen mit dem urpsrünglichen Summensignal in eine Koinzidenzeinheit führt. Dadurch wird eine Fehltriggerung durch höherenergetische Untergrundsignale für eine gewisse Zeit unterbunden. Zusätzlich sorgt ein Master-Gate (nicht eingezeichnet) dafür, dass Triggersignale nur dann weitergeleitet werden, wenn die Elektronik auch alle einkommenden Signale verarbeiten kann.

Schließlich wird dieses Signal auf den Triggereingang der Flash-ADCs gelegt. Sämtliche Kanäle eines FADC-Moduls werden dann über ein Netzwerkkabel in einen 1 GBit-



Abbildung 5.29: Signalweg bei Experimenten mit geladenen Teilchen: Vom schnellen Ausgang der BaF<sub>2</sub>-Detektoren gelangen die Signale in mehrere Linear FanIn/FanOut-Module, in denen das Signal verdoppelt wird. Ein Teil wird in die Flash-ADCs weitergeleitet, aus dem zweiten Teil wird mit weiterer Elektronik ein Triggersignal erzeugt. Von den FADCs gelangen die Signale schließlich über einen 1 GBit-Switch in den Datenserver.

Switch geführt und die Signale schließlich im Datenserver gespeichert.

Für das Triggersignal müssen die Signale der verschiedenen BaF<sub>2</sub>-Detektormodule (nahezu) zeitgleich in den Linear FanIn/FanOut-Modulen eintreffen und bei gleicher Energie eine gleich hohe Amplitude aufweisen.

Von den beiden Komponenten der Bariumfluoridsignale ist für die Summenbildung die schnelle Komponente von Bedeutung und auch für die Amplitude des Signals verantwortlich.

Die Amplitude wiederum hängt stark von der Güte der Kopplung zwischen Kristall

5.3

und Photomultiplier ab. Zwischen beiden befindet sich deshalb hochviskoses Silikonöl, das Reflexionen der Signale vermindert. Im Laufe der Zeit fließt das Öl jedoch langsam aus den Zwischenräumen, so dass die Kopplung schlechter wird. Selbst bei gleicher Vorbereitung beim Zusammenbau der Detektormodule fällt die Kopplung von einem Kristall zum nächsten unterschiedlich gut aus, weshalb die Signale normiert werden müssen. Hierfür wurden Abschwächer zwischen 2 dB und 6 dB verwendet. Als Referenzsignal kam eine <sup>60</sup>Co-Quelle zum Einsatz.

#### 5.3.6 Durchführung der Messungen

#### 5.3.6.1 Kalibrierungen vor dem Experiment

#### Laufzeitunterschiede der Detektorsignale

Für die Auswertung der Daten und zur Bildung des Triggersignals müssen die Signale der verschiedenen Detektormodule zeitgleich ankommen. Zeitdifferenzen zwischen den verschiedenen Detektorkristallen wurden daher mit Kabeldelays kompensiert. Als Start- und Stoppsignal wurden die beiden beim Zerfall von <sup>60</sup>Co frei werdenden  $\gamma$ -Quanten mit Energien von 1173 keV und 1332 keV verwendet und die Signale mit den FADCs aufgenommen. Die Position des sich ergebenden Peaks in einem Zeitspektrum muss dann für alle Kristalle gleich sein – gegebenenfalls wurden zusätzliche Kabel manuell eingefügt.

#### Energieeichung der Detektormodule

Zur Energieeichung der insgesamt 40 eingesetzten Detektorkristalle wurde eine  $^{137}$ Cs<sup>60</sup>Co-Mischquelle verwendet. Die Spannung wurde dann für jedes einzelne Detektormodul so gewählt, dass sich überall die gleiche Verstärkung ergab.

#### Energieeichung des Beschleunigers

Vor der Durchführung des Experiments muss die Energie des Teilchenstrahls bestimmt werden. Dazu kann – falls vorhanden – die Resonanz einer Kernreaktion, oder aber bei Freisetzung von Neutronen die Flugzeitmethode oder die Änderung der Neutronenausbeute in der Nähe der Reaktionsschwelle verwendet werden. Zur Eichung wurde die auf den Targetstrom normierte Anzahl der Signale in Schwellennähe verwendet und dann das Magnetfeld zur gewünschten Energie extrapoliert. Näheres zu diesen beiden Eichmethoden wurde bereits in Abschnitt 3.2.2 aufgeführt.





Abbildung 5.30: Wirkungsquerschnitte der Reaktionen  ${}^{103}$ Rh(p,x) mit x= $\gamma$ , n,  $\alpha$  nach NON-SMOKER [25, 55].

Je nach Energie sind beim Beschuss von <sup>103</sup>Rh mit Protonen verschiedene Reaktionskanäle offen, beispielsweise <sup>103</sup>Rh(p, $\gamma$ )<sup>104</sup>Pd, <sup>103</sup>Rh(p,n)<sup>103</sup>Pd oder <sup>103</sup>Rh(p, $\alpha$ )<sup>100</sup>Ru (vgl. Abb. 5.30). Die entsprechenden Q-Werte dieser drei Reaktionen betragen 8,66, -1,33 und 6,06 MeV [56]. Innerhalb des Gamow-Fensters von 1,7 bis 4,3 MeV dominiert der (p,n)-Kanal. Im experimentell zugänglichen Bereich bis 3,5 MeV ist  $\sigma$ (p,n) maximal etwa 40mal größer als bei reinen Protoneneinfangreaktionen (vgl. Abb. 5.30). Aufgrund des negativen Q-Wertes der (p,n)-Reaktion kann diese jedoch durch die verschiedenen Summenenergien von der (p, $\gamma$ )-Reaktion unterschieden werden.

Der Wirkungsquerschnitt der  $(p,\alpha)$ -Reaktion liegt im Bereich von 2 bis 3,5 MeV etwa zwei Größenordnungen unter dem zu messenden  $\sigma(p,\gamma)$  und ist daher vernachlässigbar.

### 5.3.6.3 Spektrum einer <sup>60</sup>Co-Quelle

Bei der Datenaufnahme werden die Daten der Flash-ADC-Kanäle verschiedener Module innerhalb eines Digitizers zusammengefasst und gemeinsam als Stream abgespeichert. Um Festplattenplatz zu sparen, erfolgt dies im Binärformat.

Die Analyse der Daten verläuft in mehreren Schritten. Ein mit C<sup>++</sup> erstelltes Programm liest zunächst die Rohdaten ein, die gleichzeitig grob analysiert werden. Dabei werden Informationen über die aufgenommenen Pulse wie Peakhöhe, (zeitliche) Lage des Pulses innerhalb des aufgenommenen Datensegments, Flächeninhalt usw. gesammelt und in neuen Dateien gespeichert. Gleichzeitig wird auf diese Weise die zu analysierende Datenmenge reduziert und die dafür notwendige Rechenzeit verringert.



**Abbildung 5.31:** Zerfallsschema des <sup>60</sup>Co-Zerfalls: Eingezeichnet sind nur die wichtigsten Übergänge. <sup>60</sup>Co zerfällt durch  $\beta^-$ -Zerfall zu fast 100% in den angeregten Zustand bei 2,506 MeV des <sup>60</sup>Ni (nach [47]).

In einem zweiten Schritt werden dann die in diesen Dateien abgespeicherten Informationen von einem weiteren  $C^{++}$ -Programm eingelesen und verarbeitet. Dabei können die Kriterien, die an die Daten angelegt werden (Mindestpeakhöhe, zeitliche Korrelationen zum Triggersignal oder zu weiteren Pulsen innerhalb eines Ereignisses, definierter Energiebereich...) variiert und die Auswirkungen auf die Ergebnisse getestet werden, ohne dass sämtliche Rohdaten erneut verarbeitet werden müssen.

Als Test der Datenanalyseprogramme wurde das Zerfallsspektrum einer <sup>60</sup>Co-Quelle aufgenommen, dessen Zerfallsschema in Abb. 5.31 gezeigt wird. <sup>60</sup>Co zerfällt fast

ausschließlich in den angeregten Zustand bei 2,506 MeV des stabilen <sup>60</sup>Ni. Die Abregung des Kerns in den Grundzustand erfolgt über eine zweistufige  $\gamma$ -Kaskade mit Photonenenergien von 1173 und 1333 keV mit  $\gamma$ -Linienintensitäten von fast 100%. Aufgrund der kurzen Lebensdauer des Zustands bei 1332,5 keV von weniger als 1 ps sind die beiden aufeinanderfolgenden Zerfälle praktisch koinzident.





Die Cobaltquelle befand sich genau im Zentrum des  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektors. Das Summenspektrum wird in Abb. 5.32 im Vergleich mit einer GEANT-Simulation gezeigt. Bei der Abregung des <sup>60</sup>Ni-Kerns werden die beiden Photonen zwar in unterschiedliche Richtungen ausgesandt, doch aufgrund der fast kompletten Abdeckung des vollen Raumwinkels und der hohen Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors wird mit großer Wahrscheinlichkeit die gesamte Summenenergie von 2,5 MeV nachgewiesen. Bei dieser Energie befindet sich folglich der größte Peak im aufgenommenen Energiespektrum.

Wird lediglich die Energie eines der beiden  $\gamma$ -Quanten im Detektor deponiert, ergeben sich aufgrund der Energieauflösung der BaF<sub>2</sub>-Kristalle keine Einzelpeaks bei 1173 und 1332,5 keV. Stattdessen ist ein verbreiterter Peak bei der mittleren Energie  $\overline{E} = \frac{\gamma_1 + \gamma_2}{2}$ bei 1,253 MeV zu erkennen.

Die Grafik zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Daten und der Simulation.

### 5.3.6.4 Messung der Reaktion ${}^{103}$ Rh $(p,\gamma)$ ${}^{104}$ Pd

Bei der Analyse der Daten mit der Rhodiumfolie als Target wurden verschiedene Cuts angelegt, um die Daten vom Untergrund zu trennen. Dabei wurden unterschiedliche Bedingungen an die aufgenommenen Pulse gestellt, beispielsweise bestimmte zeitliche Korrelationen zum Pickupsignal, das zur Triggerung der Datenaufnahme verwendet wurde, sowie die Anzahl der angesprochenen Detektoren.

Ein Beispiel für die aufgenommenen Daten zeigt Abb. 5.33, die Protonenenergie betrug 3 MeV. Bei dieser Messung wurde eine Datenmenge von etwas 40 GByte/Stunde verarbeitet.



#### Ereignisse

Abbildung 5.33: Dreidimensionale Darstellung einer Rhodiummessung: Aufgetragen ist die Anzahl der Ereignisse in Abhängigkeit von der Multiplizität.

Aufgrund der Protonenenergie von 3 MeV und dem Q-Wert der Reaktion von 8,66 MeV sollte sich in den Spektren ein Maximum bei etwa 11,7 MeV abzeichnen, was jedoch nicht der Fall ist. Aufgetragen ist die Anzahl der Ereignisse in Abhängigkeit der Multiplizität, d.h. der Anzahl der angesprochenen Detektoren. Abb. 5.34 zeigt die Projektion dieser Daten auf die Energieachse für die Multiplizitäten 1–4. Trotz unterschiedlicher Bedingungen, die an die Daten angelegt wurden, konnten bei dem dicken Target in der Kürze der verbleibenden Zeit keine Rhodiumpeaks identifiziert werden. Weitere Messungen und Optimierungen hinsichtlich des Untergrunds sind daher notwendig, waren jedoch nicht mehr Bestandteil dieser Arbeit.



Abbildung 5.34: Projektion der Spektren mit den Multiplizitäten M=1 bis 4 auf die Energieachse. Bei M=1 dominiert niederenergetischer Untergrund, in den anderen Spektren sind Peaks im Bereich von 3 bzw. 8 MeV zu erkennen.

# Anhang

# A.1 Zusammensetzung der Sputterschichten

Um die genaue Zusammensetzung der Schichten zu bestimmen, wurde zunächst rechteckiges Trägermaterial zu Testzwecken besputtert. Anschließend wurde die ortsabhängige Zusammensetzung dieser Proben analysiert (vgl. Abb. A.1).

1 _→	mm ∣ ∣ <del>∢ -</del>		. ↓
	<b>o</b> 1	6 <b>o</b>	1 mm ↑
	• 2	7 o	
	• 3	8 o	<u>↓</u>
	<b>o</b> 4	9 o	4,5 mm
	• 5	10 <b>o</b>	

Abbildung A.1: Analyse der Sputterschichten: Zu Testzwecken wurde rechteckiges Trägermaterial besputtert und in regelmäßigen Abständen der Rhodiumund Tantalanteil bestimmt.

Die Ergebnisse für das zentral unter dem Rh-Target positionierte Trägerrechteck, sowie das etwas weiter vom Zentrum entfernt liegende Trägerrechteck sind in den Tabellen A.1 und A.2 zusammengefasst. Der Rhodiumanteil beträgt etwa 26% bei dem zentral und 22% bei dem weiter außen positionierten Träger.

**Tabelle A.1:** Analyse der Sputterschichten (I): Zusammensetzung des zentralpositionierten Trägers.

Label	Rh [W%]	Ta $[\mathrm{W\%}]$	Summe	Abweichung	${\rm Rh}\;[{\rm A}\%]$	Ta $[\mathrm{A}\%]$
1	$25,\!29$	$72,\!59$	97,88	$2,\!12$	$37,\!99$	$62,\!01$
3	$25,\!96$	$73,\!03$	$98,\!99$	$1,\!01$	$38,\!46$	$61,\!54$
4	$25,\!51$	$73,\!33$	98,84	$1,\!16$	$37,\!96$	$62,\!04$
4	$25,\!52$	$72,\!17$	$97,\!69$	$2,\!31$	$38,\!34$	$61,\!66$
5	$25,\!81$	$72,\!14$	$97,\!95$	$2,\!05$	$38,\!61$	$61,\!39$
8	$25,\!55$	$73,\!38$	$98,\!93$	$1,\!07$	$37,\!98$	$62,\!02$
9	$25,\!94$	$71,\!39$	$97,\!33$	$2,\!67$	$38,\!93$	$61,\!07$
10	$25,\!94$	$72,\!64$	$98,\!58$	$1,\!42$	$38,\!57$	$61,\!43$
11	25,76	73	98,76	$1,\!24$	$38,\!29$	$61,\!71$
12	$25,\!65$	$73,\!29$	98,94	$1,\!06$	38,1	$61,\!9$
Mittelwert	$25,\!69$	72,70	98,39	1,61	38,32	61,68
σ	$0,\!23$	0,64	$0,\!61$			

**Tabelle A.2:** Analyse der Sputterschichten (II): Zusammensetzung des weiteraußen positionierten Trägers.

Label	Rh [W%]	Ta $[W\%]$	Summe	Abweichung	Rh [A%]	Ta [A%]
2	21,68	$75,\!98$	97,66	2,34	33,41	66, 59
2	21,81	$76,\!45$	$98,\!26$	$1,\!74$	$33,\!4$	$66,\! 6$
3	22,71	75,78	$98,\!49$	$1,\!51$	$34,\!52$	$65,\!48$
4	23,13	75,2	98,33	$1,\!67$	35,1	$64,\!9$
5	24,14	$74,\!4$	$98,\!54$	$1,\!46$	$36,\!33$	$63,\!67$
6	21,79	$76,\!44$	$98,\!23$	1,77	$33,\!39$	$66,\!61$
8	20,64	$76,\!63$	$92,\!03$	$7,\!97$	$32,\!14$	$67,\!86$
9	20,82	$75,\!49$	96,31	$3,\!69$	$32,\!66$	$67,\!34$
9	22,4	$74,\!86$	$97,\!26$	2,74	$34,\!48$	$65,\!52$
10	23,95	73,6	$97,\!55$	$2,\!45$	36,4	63,6
Mittelwert	22,31	$75,\!48$	$97,\!27$	2,73	$34,\!18$	$65,\!82$
σ	1,19	$0,\!98$	$1,\!96$			

## A.2 Simulationen mit Geant

#### A.2.1 Tentative Nickelspektren

Die bei den GEANT-Simulationen berücksichtigten Übergänge sind in den Tabellen A.3 und A.4 aufgeführt.

Beim Neutroneneinfang am <sup>62</sup>Ni dominiert der Grundzustandsübergang mit fast 90%.

**Tabelle A.3:** Berücksichtigte Übergänge für das <sup>63</sup>Ni-Termschema: Der Q-Wert der <sup>62</sup>Ni $(n,\gamma)$ <sup>63</sup>Ni-Reaktion liegt bei 6,838 MeV [56]. E<sub>i</sub> bezeichnet die Nummer der bei diesen Überängen beteiligten Niveaus. Das "Niveau" E<sub>1</sub> ergibt sich aus dem Q-Wert plus einer Neutronenenergie von 30 keV.

$E_1$	$E_2$	$E_3$	$E_4$	$E_5$	Häufigkeit [%]
$6868 \longrightarrow$	0				89
$6868 \longrightarrow$	$518 \longrightarrow$	0			$0,\!4$
$6868 \longrightarrow$	$518 \longrightarrow$	$87 \longrightarrow$	0		$0,\!1$
$6868 \longrightarrow$	$518 \longrightarrow$	$156 \longrightarrow$	0		$3,\!5$
$6868 \longrightarrow$	$1001 \longrightarrow$	0			$0,\!2$
$6868 \longrightarrow$	$1001 \longrightarrow$	$156 \longrightarrow$	0		$3,\!6$
$6868 \longrightarrow$	$1001 \longrightarrow$	$518 \longrightarrow$	0		$0,\!3$
$6868 \longrightarrow$	$1001 \longrightarrow$	$518 \longrightarrow$	$87 \longrightarrow$	0	$_{0,1}$
$6868 \longrightarrow$	$1001 \longrightarrow$	$518 \longrightarrow$	$156 \longrightarrow$	0	$2,\!8$

Bei der Reaktion  ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma)^{64}$ Ni ist der Grundzustandsübergang ebenfalls am stärksten, gefolgt von den Zerfällen aus dem Energieniveau bei 3026 keV.

Die Intensitäten der in die Simulation einbezogenen Übergänge wurden anhand der Daten aus den Nuclear Data Sheets [35, 82] so renormiert, dass alle Übergänge zusammen eine Gesamtintensität von 100% ergeben.

**Tabelle A.4:** Berücksichtigte Übergänge für das <sup>64</sup>Ni-Termschema: Der Q-Wert für die Reaktion <sup>63</sup>Ni $(n\gamma)^{64}$ Ni liegt bei 9,658 MeV [56]. E<sub>i</sub> bezeichnet die Nummer der bei diesen Überängen beteiligten Niveaus. Das "Niveau" E<sub>1</sub> ergibt sich aus dem Q-Wert plus einer Neutronenenergie von 30 keV.

$E_1$	$E_2$	$E_3$	$E_4$	$E_5$	Häufigkeit [%]
$9688 \longrightarrow$	0				55,5
$9688 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0			6,8
$9688 \longrightarrow$	$2277 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0		3
$9688 \longrightarrow$	$3026 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0		24,9
$9688 \longrightarrow$	$3026 \longrightarrow$	$2277 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0	$1,\!2$
$9688 \longrightarrow$	$3464 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0		$0,\!5$
$9688 \longrightarrow$	$3464 \longrightarrow$	$2277 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0	$^{2,6}$
$9688 \longrightarrow$	$4869 \longrightarrow$	0			0,2
$9688 \longrightarrow$	$4869 \longrightarrow$	$1346 \longrightarrow$	0		$5,\!3$

#### A.2.2 Ergebnisse der Geant-Simulationen

Die Auswirkungen der Bleiabschirmung auf Photonen aus Probe zeigen sich natürlich auch in den Energiespektren einzelner Kristalle. Am deutlichsten sind die Unterschiede in den Kristallen zu sehen, in denen die Photonen entweder die Bleiabschirmung passieren müssen, um nachgewiesen zu werden – wie Detektor Nr. 2 – , oder aber auf direktem Wege in den Kristall gelangen – beispielsweise Kristall Nr. 39.



**Abbildung A.2:** GEANT-Simulation der Reaktion  ${}^{62}\text{Ni}(n,\gamma){}^{63}\text{Ni}$ : Im Energiebereich oberhalb von 7,5 MeV gelangen in Kristall Nr. 39 auf direktem Wege etwa doppelt so viele Photonen wie in Detektor Nr. 2.

## A.2.2.1 Einzelspektren der Reaktion ${}^{62}Ni(n,\gamma){}^{63}Ni$

Bei der Reaktion  ${}^{62}$ Ni $(n,\gamma){}^{63}$ Ni tritt die Auswirkung der Bleiabschirmung bei einer Schwellenenergie von 50 keV am deutlichsten zutage. Im Energiebereich bis etwa 1 MeV wird die Strahlung durch die Bleiabschirmung um gute 60% vermindert, bei 500 keV Schwellenenergie immer noch um etwa 30%. Im Energiebereich oberhalb von 7,5 MeV gelangen in Kristall Nr. 39 in beiden Fällen etwa doppelt so viele Photonen wie in Kristall Nr. 2 (vgl. Abb. A.2).



**Abbildung A.3:** GEANT-Simulation der Reaktion  ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma)^{64}$ Ni: Oberhalb von 8,5 MeV beträgt der Unterschied in der Anzahl der Ereignisse zwischen beiden Kristallen etwa 55%.

## A.2.2.2 Einzelspektren der Reaktion ${}^{63}Ni(n,\gamma){}^{64}Ni$

Bei  ${}^{63}$ Ni $(n,\gamma)^{64}$ Ni beläuft sich der Unterschied zwischen den beiden Kristallen bei 50 keV bzw. 500 keV Schwellenenergie im Bereich bis 2 MeV auf etwa 30%, oberhalb von 8,5 MeV auf etwa 55% (siehe Abb. A.3).

# A.2.2.3 Einzelspektren der Reaktion $^{197}Au(n,\gamma)^{198}Au$



Abbildung A.4: GEANT-Simulation der Reaktion  ${}^{197}Au(n,\gamma){}^{198}Au$ .

Bei den simulierten Neutroneneinfängen an <sup>197</sup>Au ist die Auswirkung der Bleiabschirmung erwartungsgemäß im niederenergetischen Bereich deutlich ausgeprägt: Bis 1 MeV werden in Kristall 39 fast doppelt so viele Ereignisse detektiert wie in Detektor 2 (siehe Abb. A.4).

### A.3 Goldzerfälle zur Flussbestimmung

A.3.1 Neutronenaktivierung:  ${}^{197}Au(n,\gamma){}^{198}Au$ 



**Abbildung A.5:**  $\beta^-$ -Zerfall des <sup>198</sup>Au in das stabile <sup>198</sup>Hg: Der Übergang des Niveaus bei 411,8 keV in den Grundzustand dominiert den Zerfall [96].

Zur Bestimmung des Neutronenflusses werden bei Neutronenaktivierungsexperimenten neben der Probe simultan zwei Goldfolien bestrahlt. Aus der Aktivität der Folien durch den <sup>198</sup>Au-Zerfall, dessen Zerfallsschema in Abb. A.5 dargestellt ist, wird über den bekannten Goldeinfangquerschnitt der Fluss bestimmt. Beim  $\beta^-$ -Zerfall des <sup>198</sup>Au dominiert der Zerfall des Zustands bei 411,8 keV mit  $I_{\gamma}=95,58(12)\%$  in den Grundzustand.

# A.3.2 Photoaktivierung: ${}^{197}Au(\gamma,n){}^{196}Au$

Das instabile <sup>196</sup>Au hat mehrere Zerfallsmöglichkeiten. In 93% der Fälle erfolgt ein Elektroneneinfang zum stabilen <sup>196</sup>Pt (vgl. Abb. A.6). Zur Auswertung werden die Übergänge der beiden niedrigsten angeregten Niveaus bei 355,7 und 688,8 keV mit  $E_{\gamma_1} = 356 \text{ keV}$  und  $E_{\gamma_2} = 333 \text{ keV}$  herangezogen. Die Photoemissionswahrscheinlichkeiten betragen  $p_{\gamma_1}=87(3)\%$  und  $p_{\gamma_2}=22,9(9)\%$ .

Bei den restlichen 7% kommt es zu einem  $\beta^-$ -Zerfall des <sup>196</sup>Au zum stabilen <sup>196</sup>Hg, das Zerfallsschema wird in Abb. A.7 dargestellt. Die Photoemissionswahrscheinlichkeit des Grundzustandzerfalls beträgt  $p_{\gamma}=6,6(3)\%$  bei einer  $\gamma$ -Energie von 426 keV.



**Abbildung A.6:** Elektroneneinfang des <sup>196</sup>Au zum stabilen <sup>196</sup>Pt: Eingezeichnet sind die beiden am stärksten bevölkerten Zustände bei 688,8 keV und 355,7 keV [57].



Abbildung A.7: In etwa 7% der Fälle erfolgt ein  $\beta^-$ -Zerfall des <sup>196</sup>Au zum stabilen <sup>196</sup>Hg [57].

### A.4 Summenkorrekturen

Werden bei der Eichung eines Detektors radioaktive Quellen verwendet, die  $\gamma$ -Strahlung in einer mehrstufigen Kaskade aussenden, kann es zu Koinzidenzen kommen, wenn die Übergänge innerhalb der Zeitauflösung des Detektors erfolgen [97]. Die Wahrscheinlichkeit, mit der es zu solchen Koinzidenzen kommt, ist unabhängig von der Zählrate und hängt von der (totalen) Nachweiswahrscheinlichkeit des verwendeten Detektors ab. Summenkorrekturen sind deshalb insbesondere bei geringen Abständen zwischen Probe und Detektor von Bedeutung. Ein Beispiel mit einem Termschema aus zwei angeregten Zuständen wird in Abb. A.8 gezeigt.



Abbildung A.8: Summenkorrekturen aufgrund zufälliger Koinzidenzen bei einem  $\beta^-$ -Zerfall (nach [97]).

Die Ereignisrate  $\dot{N}_1^{\text{ohne}}$  im Photopeak des Übergangs  $\gamma_1$  ohne zufällige Koinzidenzen beträgt

$$\dot{N}_1^{\text{ohne}} = A(t)p_{\gamma_1}\epsilon_1 \tag{A.18}$$

wobei A(t) die Aktivität der Quelle,  $p_{\gamma_1}$  die Photoemissionswahrscheinlichkeit des  $\gamma_1$ -Übergangs und  $\epsilon_1$  die Nachweiswahrscheinlichkeit für Photonen der Energie  $E_{\gamma_1}$  sind.

Die tatsächliche Ereignisrate  $\dot{N}_1$  im Photopeak ist niedriger: Gelangen Photon  $\gamma_1$  und Photon  $\gamma_2$  gleichzeitig in den Detektor, wird scheinbar ein Photon höherer Energie nachgewiesen, so dass dieses Ereignis dem Summenpeak von  $\gamma_1$  verlorengeht, was im Englischen als "summing out" bezeichnet wird. Für  $\dot{N}_1$  gilt:

$$\dot{N}_1 = A(t)p_{\gamma_1}\epsilon_1 - A(t)p_{\gamma_1}\epsilon_1\epsilon_2^t \tag{A.19}$$

Da es zum Verlust dieses Ereignisses ausreicht, wenn bereits ein Bruchteil der Energie von  $\gamma_2$  nachgewiesen wird, steht in (A.19) die totale Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon_2^t$ und nicht  $\epsilon_2(E_{\gamma_2})$ .

Aus (A.18) und (A.19) erhält man den Korrekturfaktor  $k_{\text{sum}}^1$  zu

$$k_{\rm sum}^1 = \frac{\dot{N}_1}{\dot{N}_1^{\rm ohne}} = 1 - \epsilon_2^t$$
 (A.20)

Bei der Summenkorrektur für den Übergang  $\gamma_2$  muss die  $\gamma$ -Intensität  $p_{\gamma_2}$  des Übergangs berücksichtigt werden und es gilt:

$$\dot{N}_2 = A(t)p_{\gamma_2}\epsilon_2 - A(t)p_{\gamma_2}\epsilon_2 \frac{p_{\gamma_1}}{p_{\gamma_2}}\epsilon_1^t$$
(A.21)

wobei  $\frac{p_{\gamma_1}}{p_{\gamma_2}}$  der Anteil aller  $\gamma_2$ -Zerfälle ist, denen ein  $\gamma_1$ -Zerfall voranging. Analog zu (A.20) erhält man den Korrekturfaktor  $k_{\text{sum}}^2$  zu

$$k_{\rm sum}^2 = 1 - \frac{p_{\gamma_1}}{p_{\gamma_2}} \cdot \epsilon_1^t \tag{A.22}$$

Beim Übergang  $\gamma_3$  kann es aufgrund zufälliger Koinzidenzen der beiden  $\gamma$ -Quanten  $\gamma_1$  und  $\gamma_2$  zu zusätzlichen Ereignissen im Summenpeak kommen. Dieser Vorgang wird im Englischen als "summing in" bezeichnet. Für die Ereignisrate  $\dot{N}_3$  im Summenpeak gilt daher

$$\dot{N}_3 = A(t)p_{\gamma_3}\epsilon_3 + A(t)p_{\gamma_1}\epsilon_1\epsilon_2\epsilon_1^{t\,\mathrm{b}} \tag{A.23}$$

Der Korrekturfaktor  $k_{\text{sum}}^3$  wird dann zu

$$k_{\rm sum}^3 = 1 + \frac{p_{\gamma_1}\epsilon_1\epsilon_2}{p_{\gamma_3}\epsilon_3} \tag{A.24}$$

Bei der Analyse der Goldfolien mit den Rossendorfer Ge-Detektoren mussten aufgrund des geringen Abstands zwischen Folie und Detektor Summenkorrekturen von mehr als 20% berücksichtigt werden (vgl. Abschnitt 3.5.2.3).

<sup>&</sup>lt;sup>b)</sup> Gäbe es neben dem  $\gamma_2$ -Zerfall des angeregten Niveaus weitere Zerfallsmöglichkeiten, müsste in (A.23) zusätzlich  $p_{\gamma_2}$  berücksichtigt werden.

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die durch ihre Unterstützung diese Arbeit ermöglicht und zum ihrem Erfolg beigetragen haben. Insbesondere seien erwähnt:

- Herr J. Blümer und Herr T. Müller für die Übernahme des Referats bzw. Koreferrats.
- Herr F. Käppeler für die Betreuung der Arbeit.
- Meine Kollegen, ehemalige Kollegen, Techniker, Physiklaboranten und Studenten in der Arbeitsgruppe "Nukleare Astrophysik", insbesondere I. Dillmann, C. Domingo-Pardo, M. Heil, M. Mosconi, R. Plag, F. Voss, K. Wisshak, J. Kaltenbaek, H. Ripp, G. Rupp, M. Brock, D. Petrich, S. Bisterzo, J. Marganiec und C. Schmidt.
- Die Mitarbeiter der elektronischen und mechanischen Werkstätten des Forschungszentrums Karlsruhe.
- Herr H. Leiste für die Herstellung der Rhodiumschichten am Institut für Materialforschung (IMF I), sowie Frau Hilpp von Institut für nukleare Entsorgung (INE) für die quantitativen RFA-Analysen dieser Rhodiumschichten.
- Herr H. Lambach, L. Bohn und V. Toth für das Diffusionsschweissen des dicken Rhodiumtargets am Institut für Mikroverfahrenstechnik (IMVT).
- Das Van de Graaff-Team, bestehend aus E.-P. Knaetsch, D. Roller und W. Seith für die Bereitstellung des Protonenstrahls des Beschleunigers "Lolita", sowie den Werkstudenten, die in unzähligen Nacht- und Wochenendschichten den Beschleuniger am Laufen hielten.

- M. Erhard, C. Nair, A.R. Junghans und die Arbeitsgruppe von A. Wagner, sowie die Operateure des ELBE-Beschleunigers im FZ Dresden-Rossendorf.
- G. Rugel und die GAMS-Arbeitsgruppe von G. Korschinek vom Tandem-Beschleuniger des MLL in Garching, sowie die beteiligten Operateure.
- Meine Eltern und meine Schwester.
- Meine Freunde.
- Alle Personen, die nicht explizit namentlich erwähnt wurden und dennoch direkt oder indirekt zum Gelingen dieser Arbeit beitrugen.
- Und natürlich meine Frau Cornelia, die mich immer unterstützt und mir den Rücken freigehalten hat.

### LITERATURVERZEICHNIS

- E.M. Burbidge, G.R. Burbidge, W.A. Fowler, and F. Hoyle. Synthesis of the Elements in Stars. *Rev. Mod. Phys.*, 29:547 – 650, 1957.
- [2] A.G.W. Cameron. Stellar evolution, nuclear astrophysics, and nucleogenesis. Technical report, Chalk River Report CRL-41, A.E.C.L. Chalk River, Canada, 1957.
- [3] S. Bisterzo. s-process in low metallicity lead stars: comparison between theory and observations. Dissertation, Universität Turin, Iatlien, 2007.
- [4] F. Käppeler. Reaction rates, nucleosynthesis, and stellar structure. Nucl. Instr. Methods B, 259:664 – 668, 2007.
- [5] F. Käppeler. The origin of the heavy elements: the s process. Prog. Part. Nucl. Phys., 43:419 - 483, 1999.
- [6] D.D. Clayton and M.E. Rassbach. Termination point of the s process. Astrophys. J., 148:69 - 85, 1967.
- [7] E. Anders and N. Grevesse. Abundances of the elements: Meteoritic and solar. Geochim. Cosmochim., 53:197 – 214, 1989.
- [8] W. Rapp, J. Görres, M. Wiescher, H. Schatz, and F. Käppeler. Sensitivity of p-process nucleosynthesis to nuclear reaction rates in a 25  $M_{\odot}$  supernova model. *Astrophys. Journal*, 653:474 489, 2006.
- [9] E. Collé and B.E. Zimmerman. <sup>63</sup>Ni half-life: a new experimental determination and critical review. Appl. Radiat. Isot., 47:677 – 691, 1996.
- [10] T. Rauscher and K.H. Guber. Erratum: Direct neutron capture cross section of <sup>62</sup>Ni in the s-process energy range [Phys. Rev. C 66,028802 (2002)]. *Phys. Rev. C*, 71:059903, 2005.
- [11] A. Tomyo, Y. Temma, M. Segawa, Y. Nagai, H. Makii, T. Shima, T. Ohsaki, and M. Igashira. <sup>62</sup>Ni(n,γ)<sup>63</sup>Ni reaction and overproduction of Ni isotopes. *The Astrophysical Jorunal*, 623:L153–L156, 2005.
- [12] M. Pignatari. Private Korrespondenz, 2006.

- [13] Z.Y. Bao, H. Beer, F. Käppeler, F. Voss, K. Wisshak, and T. Rauscher. Neutron cross sections for nucleosynthesis studies. *Atomic Data Nucl. Data Tables*, 76:70 - 154, 2000.
- [14] W. Ratynski and F. Käppeler. Neutron capture cross section of <sup>197</sup>Au: A standard for stellar nucleosynthesis. *Phys. Rev. C*, 37:595 – 604, 1988.
- [15] H. Beer and F. Käppeler. Neutron capture cross sections of <sup>138</sup>Ba, <sup>140,142</sup>Ce, <sup>175,176</sup>Lu, and <sup>181</sup>Ta at 30 kev: Prerequisite for investigation of the <sup>176</sup>Lu cosmic clock. *Phys. Rev. C*, 21:534 – 544, 1980.
- [16] W.R. Dixon. Self-absorption correction for large gamma-ray sources. Nucleonics, 8, No. 4:68 - 72, 1951.
- [17] M.J. Berger, J.H. Hubbell, S.M. Seltzer, J. Chang, J.S. Coursey, R. Sukumar, and D.S. Zucker. XCOM: Photon cross section database (version 1.3). http://physics.nist.gov/xcom [2007, october 25], 2005. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- [18] JANIS (Java-based nuclear information software), OECD Nuclear Energy Agency, Le Seine Saint-Germain, 12, boulevard des Îles, F-92130 Issy-les-Moulineaux, France; http://www.nea.fr/janis.
- [19] Joint Evaluated Fission and Fusion File (JEFF3.1), http://www.nea.fr/html/dbdata/JEFF.
- [20] Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-VII), http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endf00.htm.
- [21] K. Shibata, T. Kawan, T. Nakagawa, J. Iwamoto, O. Katakura, T. Fukahori, S. Chiba, A. Hasegawa, T. Murata, H. Matsunobu, T. Ohsawa, Y. Nakajima, T. Yoshida, A. Zukeran, M. Kawai, M. Baba, M. Ishikawa, T. Asami, T. Watanabe, Y. Watanabe, M. Igashira, N. Yamamuro, H. Kitazawa, N. Yamano, and H. Takano. Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3. Nucl. Sci. Tech., 39:1125 – 1163, 2002.
- [22] A.M. Alpizar-Vicente, T.A. Bredeweg, E.-I. Esch, U. Greife, R.C. Haight, R. Hatarik, J.M. O'Donnell, R. Reifarth, R.S. Rundberg, J.L. Ullmann, D.J. Vieira,

and J.M. Wouters. Neutron capture cross section of  $^{62}$ Ni at s-process energies. *Phys. Rev. C*, 77:015806, 2008.

- [23] S. Igarasi and T. Fukahori. Program CASTHY statistical model calculation for neutron cross sections and gamma ray spectrum. JAERI 1321, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), 1991.
- [24] H. Beer and R.R. Spencer. kev neutron radiative capture and total cross section of <sup>50,52,53</sup>Cr, <sup>54,57</sup>Fe, and <sup>62,64</sup>Ni. Nucl. Phys. A, 240:29 – 53, 1975.
- [25] T. Rauscher and F.-K. Thielemann. NON-SMOKER. http://nucastro.org/nosmo.
- [26] A.J. Koning, S. Hilaire, and M.C. Duijvestijn. TALYS: Comprehensive nuclear reaction modeling. Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology -ND2004, AIP vol. 769, eds. R.C. Haight, M.B. Chadwick, T. Kawano, and P. Talou, Sep. 26 - Oct. 1, 2004, Santa Fe, USA, 1154 – 1159 (2005).
- [27] M. Erhard, C. Nair, R. Beyer, E. Grosse, A.R. Junghans, J. Klug, K. Kosev, N. Nankov, G. Rusev, K.D. Schilling, R. Schwengner, and A. Wagner. Electromagnetic excitations in nuclei: from photon scattering to photodisintegration, International Symposium on Nuclear Astrophysics - Nuclei in the Cosmos IX, 25 – 30 June 2006, CERN, Geneva, CH, PoS(NIC-IX)056.
- [28] C. Nair, M. Erhard et al., zur Veröffentlichung eingereicht.
- [29] M. Erhard and A.R. Junghans. Private Korrespondenz.
- [30] S.M. Seltzer and M.J. Berger. Bremsstrahlung energy spectra from electrons with kinetic energy 1 keV-10 GeV incident on screened nuclei and orbital electrons of neutral atoms with Z = 1-100. At. Dat. Nucl. Dat. Tab., 35:345 – 418, 1986.
- [31] V.V. Varlamov, N.N. Peskov, D.V. Rudenko, and M.E Stepanov. The constants and parameters of nuclear structure and nuclear reactions, INDC(CCP)440, 37
   - 85, 2004. Die Werte wurden [18] entnommen.

- [32] T. Rauscher and F.-K. Thielemann. Tables of nuclear cross sections and reaction rates: An addendum to the paper "Astrophysical reaction rates from statistical model calculations". At. Dat. Nucl. Dat. Tabl., 79:47 – 64, 2001.
- [33] C. Nair. Private Korrespondenz.
- [34] S. Dababneh, N. Patronis, P.A. Assimakopoulos, J. Görres, M. Heil, F. Käppeler,
  D. Karamanis, S. O'Brien, and R. Reifarth. Gamma spectroscopy using two Clover detectors in close geometry. *Nucl. Instr. Meth. A*, 517:230 – 239, 2004.
- [35] B. Erjun and H. Junde. A=63. Nuclear Data Sheets, 92:147 252, 2001.
- [36] G. Rugel. Retrospektive Bestimmung der Fluenz schneller Neutronen in Hiroshima. Dissertation, LMU München, 2002.
- [37] K. Knie, T. Faestermann, G. Korschinek, G. Rugel, W. Rühm, and C. Wallner. High-sensitivity AMS for heavy nuclides at the Munich Tandem accelerator. *Nucl. Instr. Methods. B*, 172:717 – 720, 2000.
- [38] K. Knie, T. Faestermann, and G. Korschinek. AMS at the Munich gas-filled analyzing magnet system GAMS. Nucl. Instr. Meth. B, 123:128 – 131, 1997.
- [39] D.R. Lide, editor. Handbook of Chemistry and Physics. CRC Press, Boca Raton, 85<sup>th</sup> edition, 2004.
- [40] G. Rugel, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, A.A. Marchetti, J.E. McAninch, W. Rühm, T. Straume, and C. Wallner. Accelerator mass spectrometry of <sup>63</sup>Ni using a gas-filled magnet at the Munich Tandem Laboratory. *Nucl. Instr. Meth. B*, 172:934 – 938, 2000.
- [41] G. Rugel, A. Arazi, K.L. Carroll, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, A.A. Marchetti, R.E. Martinelli, J.E. McAninch, W. Rühm, T. Straume, A. Wallner, and C. Wallner. Low-level measurement of <sup>63</sup>Ni by means of accelerator mass spectrometry. *Nucl. Instr. Meth. B*, 223 224:776 781, 2004.
- [42] W. Rühm, K. Knie, G. Rugel, A.A. Marchetti, T. Faestermann, C. Wallner, J.E. McAninch, T. Straume, and G. Korschinek. Accelerator mass spectrometry of <sup>63</sup>Ni at the Munich tandem laboratory for estimating fast neutron fluences from the Hiroshima atomic bomb. *Health Phys.*, 79(4):358 364, 2000.

- [43] STB Isotope Germany GmbH, Ferdinandstr. 36, 20095 Hamburg, BRD, http://www.stb-isotope.com/.
- [44] R. B. Firestone. A=22. Nuclear Data Sheets, 106:1 88, 2005.
- [45] H. Junde and H. Su. A=54. Nuclear Data Sheets, 107:1393 1530, 2006.
- [46] M. R. Bhat. A=57. Nuclear Data Sheets, 85:415 536, 1998.
- [47] J. K. Tuli. A=60. Nuclear Data Sheets, 100:347 481, 2003.
- [48] J. K. Tuli. A=137. Nuclear Data Sheets, 72:355 408, 1994.
- [49] A. Artna-Cohen. A=152. Nuclear Data Sheets, 79:1 275, 1996.
- [50] L. V. East. Precision measurement of gamma rays from <sup>94</sup>Nb decay. Nucl. Instr. Methods, 93:193 – 195, 1971.
- [51] T. Rauscher. interpolate.f. http://download.nucastro.org/codes/interpolate.f.
- [52] Z.Y. Bao and Käppeler. Neutron capture cross sections for s-process studies. Atomic Data Nucl. Data Tables, 36:411 – 451, 1987.
- [53] T. Rauscher and K.H. Guber. Direct neutron capture cross section of <sup>62</sup>Ni in the s-process energy range. *Phys. Rev. C*, 66:028802, 2002.
- [54] H. Nassar, M. Paul, I. Ahmad, D. Berkovits, M. Bettan, P. Collon, S. Dababneh, S. Ghelberg, J.P. Greene, A. Heger, M. Heil, D.J. Henderson, C.L. Jiang, F. Käppeler, H. Koivisto, S. O'Brien, R.C. Pardo, N. Patronis, T. Pennington, R. Plag, K.E. Rehm, R. Reifarth, R. Scott, S. Sinha, X. Tang, and R. Vondrasek. Stellar (n,γ) cross section of <sup>62</sup>Ni. Phys. Rev. Lett., 94:092504, 2005.
- [55] T. Rauscher and F.-K. Thielemann. Astrophysical reaction rates from statistical model calculations. At. Dat. Nucl. Dat. Tabl., 75:1 – 351, 2000.
- [56] Q-value Calculator, basierend auf A.H. Wapstra, G. Audi, and C. Thibault. Nuclear Physics A 729, 129 (2003). Internetadresse des Q-value Caclulator: http://www.nndc.bnl.gov/qcalc/.
- [57] H. Xiaolong. A=196. Nuclear Data Sheets, 108:1093 1286, 2007.
- [58] M. Pignatari. Private Korrespondenz, 2008.

- [59] K. Wisshak, K. Guber, F. Käppeler, J. Krisch, H. Müller, G. Rupp, and F. Voss. The Karlsruhe 4π Barium Fluoride Detector. Technical report, Report KfK– 4652, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1989.
- [60] K. Wisshak, K. Guber, F. Käppeler, J. Krisch, H. Müller, G. Rupp, and F. Voss. The Karlsruhe 4π Barium Fluoride Detector. Nucl. Instr. Meth. A, 292:595 – 618, 1990.
- [61] K. Wisshak, K. Guber, F. Käppeler, and F. Voss. The Karlsruhe  $4\pi$  Barium Fluoride Detector. *Nucl. Instr. Meth. A*, 299:60 65, 1990.
- [62] K. Wisshak, F. Voss, F. Käppeler, and G. Reffo. Measurements of kev neutron capture cross sections with a  $4\pi$  barium fluoride detector: Examples of <sup>93</sup>Nb, <sup>103</sup>Rh, and <sup>181</sup>Ta. *Phys. Rev. C*, 42:1731 1750, 1990.
- [63] M. Heil, S. Dababneh, A. Juseviciute, F. Käppeler, and R. Plag. Quasistellar spectrum for neutron activation measurements at kt=5kev. Phys. Rev. C, 71:025803, 2005.
- [64] M. Heil, S. Dababneh, F. Käppeler, R. Plag, A. Juseviciute, N. Winckler, R. Reifarth, and S. O'Brien. A neutron source to measure stellar neutron capture cross sections at kt=5kev. Nucl. Phys. A, 758:529c - 532c, 2005.
- [65] F. Käppeler, A.A. Naqvi, and M. Al-Ohali. Stellar krypton cross sections at kt = 25 and 52 kev. *Phys. Rev. C*, 35:936 – 941, 1987.
- [66] R. Reifarth, R.C. Haight, M. Heil, F. Käppeler, and D.J. Vieira. Neutron capture measurements at a RIA-type facility. *Nucl. Instr. Meth. A*, 524:215 – 226, 2004.
- [67] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, and J.P. Biersack. Srim the Stopping and Range of Ions in Matter, Version 2006.02. http://www.srim.org, 2006.
- [68] M. Laval, M. Moszyński, R. Allemand, E. Cormoreche, P. Guinet, R. Odru, and J. Vacher. Barium fluoride - inorganic scintillator for subnanosecond timing. *Nucl. Instr. Meth.*, 206:169 – 176, 1983.
- [69] K. Wisshak, K. Guber, and F. Käppeler. Gamma-ray spectroscopy with a cooled barium fluoride crystal. Nucl. Instr. Meth. A, 259:583 – 585, 1987.

- [70] Y. Wu, Z. Wang, M. Gu, L. Wang, X. Lin, L. Chen, and R. Xu. One-dimensional heterostructural metallodielectric photonic band gap material for the modification of emission spectrum of BaF<sub>2</sub> scintillator. *Appl. Phys. Let.*, 85:4337 – 4339, 2004.
- [71] T.A. De Vol, D.K. Wehe, and G.F. Knoll. Evaluation of wavelength shifters for spectral separation of barium fluoride emissions. *Nucl. Instr. Meth. A*, 348:156 - 162, 1994.
- [72] T.A. De Vol, D.K. Wehe, and G.F. Knoll. Evaluation of p-terphenyl and 2,2" dimethyl-p-terphenyl as wavelength shifters for barium fluoride. Nucl. Instr. Meth., 327:354 – 362, 1993.
- [73] W. Klamra, Th. Lindblad, M. Moszyński, L.O. Norlin, and J. Weimer. Properties of BaF<sub>2</sub> scintillator working with p-terphenyl wavelength shifter. *Nucl. Instr. Meth. A*, 265:485 – 489, 1988.
- [74] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, F. Behner, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytracek. G. Cooperman, G. Cosmo, P. Degtyarenko, A. Dell'Acqua, G. Depaola, D. Dietrich, R. Enami, A. Feliciello, C. Ferguson, H. Fesefeldt, G. Folger, F. Foppiano, A. Forti, S. Garelli, S. Giani, R. Giannitrapani, D. Gibin, J.J. Gómez Cadenas, I. González, G. Gracia Abri, G. Greeniaus, W. Greiner, V. Grichine, A. Grossheim, S. Guatellia, P. Gumplinger, R. Hamatsu, K. Hashimoto, H. Hasui, A. Heikkinen, A. Howard, V. Ivanchenko, A. Johnson, F.W. Jones, J. Kallenbach, N. Kanaya, M. Kawabata, Y. Kawabata, M. Kawaguti, S. Kelner, P. Kent, A. Kimura, T. Kodama, R. Kokoulin, M. Kossov, H. Kurashige, E. Lamanna, T. Lampén, V. Lara, V. Lefebure, F. Lei, M. Liendl, W. Lockman, F. Longo, S. Magni, M. Maire, E. Medernach, K. Minamimoto, P. Mora de Freitas, Y. Morita, K. Murakami, M. Nagamatu, R. Nartallo, P. Nieminen, T. Nishimura, K. Ohtsubo, M. Okamura, S. O'Neale, Y. Oohata, K. Paech, J. Perl, A. Pfeiffer. M.G. Pia, F. Ranjard, A. Rybin, S. Sadilov, E. Di Salvo, G. Santin, T. Sasaki, N. Savvas, y. Sawada, S. Scherer, S. Sei, V. Sirotenko, D. Smith, N. Starkov. H. Stoecker, J. Sulkimo, M. Takahata, S. Tanaka, E. Tcherniaev, E. Safai Tehrani, M. Tropeano, P. Truscott, H. Uno, L. Urban, P. Urban, M. Verderi, A. Walk-

den, W. Wander, H. Weber, J.P. Wellisch, T. Wenaus, D.C. Williams, D. Wright,
T. Yamada, H. Yoshida, and D. Zschiesche. Geant4 - a simulation toolkit. *Nuc. Instr. Meth. A*, 506:250 - 303, 2003.

- [75] I. Dillmann, L. Audouin, Brock. M., M. Heil, F. Käppeler, A. Mengoni, M. Mosconi, R. Plag, G. Rupp, and S. Walter. The neutron absorber for the n\_TOF-TAC. Technical report, CERN, Geneva, Switzerland, 2007.
- [76] C. Zhang. Development of a high current proton linac for FRANZ. Proceedings of the EPAC 2006, Edinburg, Scottland, ID 2342 - THPCH007.
- [77] L.P. Chau, O. Meusel, U. Ratzinger, A. Schempp, K. Volk, and M. Heil. The Frankfurt neutron source at the Stern-Gerlach-Zentrum (FRANZ). Proceedings of EPAC 2006, Edinburgh, Scottland, ID 2726 - TUPLS082.
- [78] O. Meusel, L.P. Chau, I. Mueller, U. Ratzinger, A. Schempp, K. Volk, C. Zhang, and S. Minaev. Development of an intense neutron source at "FRANZ" in Frankfurt. Proceedings of LINAC 2006, Knoxville, Tennessee, USA, MOP051.
- [79] R. Plag. Absolutbestimmung der  ${}^{12}C(\alpha, \gamma){}^{16}O$ -Rate im Energiebereich um 1 Mev. Dissertation, Universität Karlsruhe, 2004.
- [80] Zeichnung von D. Petrich.
- [81] Kanya AG, Neuhofstr. 9, CH 8630 Rüti, http://www.kanya.com.
- [82] B. Singh. A=64. Nuclear Data Sheets, 108:197 364, 2007.
- [83] F. Bečvář. Statistical γ cascades following the thermal, resonance and keV neutron capture in heavy nuclei. S. Wender, ed., Gamma-Ray spectroscopy and related topics, AIP Conference Proceedings, New York, 529: 504 – 511, 2000.
- [84] R.C. Mobley. Proposed method for producing short intense monoenergetic ion pulses. *Phys. Rev.*, 88:360 – 361, 1952.
- [85] D.A. Patterson, G. Gibson, and R.H. Katz. A case for redundant arrays of inexpensive disks (RAID). Proceedings of the 1988 ACM SIGMOD Conference on Management of Data, Chicago IL, USA, 109 - 116, 1988.

- [86] AMCC UK Ltd, 19A The Cross, Lymm, Cheshire, WA13 0HR, Manchester, Grossbritannien, http://www.3ware.com.
- [87] Agilent Technologies SA (Acqiris Europe), 18, chemin des Aulx, 1228 Plan-les-Ouates, Genf (Schweiz), http://www.acqiris.de.
- [88] U. Abbondanno et. al (The n\_TOF Collaboration). The data acquisition of the neutron time of flight facility n\_TOF at CERN. Nucl. Instr. Meth. A, 538:692 – 702, 2005.
- [89] C.E. Rolfs and W.S. Rodney. *Cauldrons in the cosmos*. The University of Chicago Press, 1988.
- [90] National Nuclear Data Center. NuDat 2 database, Version 2.2. http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/.
- [91] Goodfellow GmbH, Postfach 13 43, D-61213 Bad Nahheim, http://www.goodfellow.com.
- [92] Photo von H. Lambach.
- [93] G. F. Knoll. Radiation Detection and Measurement. John Wiley & Sons, Inc., 3<sup>rd</sup> edition, 2000.
- [94] T. Mayer-Kuckuk. Kernphysik Eine Einführung. Teubner, 7. edition, 2002.
- [95] C. Iliadis. Nuclear physics of stars. Wiley-VCH, 1<sup>st</sup> edition, 2007.
- [96] Z. Chunmei. A=198. Nuclear Data Sheets, 95:59 214, 2002.
- [97] K. Debertin and R. G. Helmer. Gamma- And X-Ray Spectrometry With Semiconductor Detectors. North-Holland, 1988.