

# Laborbestimmung stellarer Neutronenreaktionen

H. Beer, S. Dababneh, M. Heil, F. Käppeler, R. Plag, W. Rapp, R. Reifarth, F. Voss, K. Wisshak, IK

Dass Neutronenreaktionen bei der Entstehung der schweren Elemente von Eisen bis zu den Aktiniden eine Schlüsselrolle spielen, ist im vorangegangenen Beitrag dieses Hefts gezeigt worden. Wie sehen nun die Experimente und Messverfahren aus, die zur Bestimmung der entsprechenden stellaren Reaktionsraten eingesetzt werden? Die folgende Darstellung konzentriert sich auf Entwicklungen am IK, die insgesamt zu einer erheblichen Verbesserung sowohl der Messgenauigkeit als auch der Empfindlichkeit solcher Untersuchungen geführt haben.

## Neutroneneinfang – neue Isotope und neue Elemente

Die Anlagerung von freien Neutronen, die beim He-Brennen durch  $(\alpha, n)$ -Reaktionen entstehen, an vorhandene Saatkerne stellt den Ausgangspunkt für neue, schwerere Isotope und Elemente dar (s-Prozess). Dabei ist zu bedenken, dass das Plasma der stellaren Brennzone im Wesentlichen aus Helium mit geringen Anteilen von Kohlenstoff und Sauerstoff besteht, wohingegen die für die schweren Elemente wichtigen Saatkerne der Eisen-Gruppe nur in Spuren vorhanden sind. Daraus ergeben sich bereits zwei wichtige Konsequenzen:

(I) Die freien Neutronen werden in diesem He-Plasma durch Streuung sehr rasch thermalisiert. Wegen der typischen Temperaturen von 100 bis 300 Millionen Grad weisen sie deshalb eine Energieverteilung auf, die bei 10 bis 30 keV

ihr Maximum hat. Dies definiert den Energiebereich, in dem die experimentellen Untersuchungen durchgeführt werden müssen.

(II) Bei diesen Energien sind die Querschnitte der Hauptbestandteile des Plasmas (He, C, O) für Neutroneneinfang im Verhältnis zu den schweren Isotopen der Fe-Gruppe sehr klein. Damit kann der beim Fe beginnende s-Prozess trotz der vergleichsweise kleinen Saathäufigkeiten mit hinreichender Ausbeute ablaufen. Dennoch dürfen die leichten Elemente wegen ihrer großen Häufigkeiten als Neutronengifte nicht vernachlässigt werden. Dies bedeutet, dass es nicht ausreicht, nur die  $(n, \gamma)$ -Querschnitte der eigentlich am s-Prozess beteiligten Isotope zu bestimmen, sondern dass auch die Untersuchung der entsprechenden Querschnitte an den leichten Kernen zur Erfassung der Neutronenverluste unumgänglich ist.

## Stellare Neutronenquellen

Aufgrund der chemischen Zusammensetzung und der in den He-Brennzonen vorherrschenden Temperaturen sind die  $(\alpha, n)$ -Reaktionen an  $^{13}\text{C}$  und  $^{22}\text{Ne}$  mit Sicherheit die ergiebigsten Neutronenquellen für die Nukleosynthese im s-Prozess.

Der relative Beitrag dieser Reaktionen hängt stark von der jeweiligen Temperatur ab. So dominiert die  $^{13}\text{C}(\alpha, n)$ -Reaktion, die wegen der geringeren Coulomb-Abstoßung bereits bei Temperaturen

um 100 Millionen Grad einsetzt, beim s-Prozess in relativ leichten, sonnenähnlichen Sternen. Da in der s-Prozess-Zone dieser Sterne ein sehr hoher integraler Neutronenfluss erreicht wird, ergeben sich für diese Population besonders hohe Ausbeuten an schweren Elementen im Massenbereich  $A > 100$ . Mit zunehmender Gesamtmasse der Sterne steigen die Temperaturen beim He-Brennen an, während der  $^{13}\text{C}$ -Anteil stark zurückgeht. Dementsprechend wird der s-Prozess in massereichen Sternen praktisch ausschließlich von  $(\alpha, n)$ -Reaktionen an  $^{22}\text{Ne}$  bestimmt. Wegen des geringeren integralen Neutronenflusses ist der s-Prozess in Sternen mit 10 bis 25 Sonnenmassen hauptsächlich auf die Produktion der Elemente zwischen Fe und Zr beschränkt.

Für beide  $(\alpha, n)$ -Reaktionen sind die stellaren Raten derzeit nur unzureichend bekannt. Trotz verschiedener, aufwendiger Experimente ist es bisher nicht gelungen, die extrem kleinen Raten im astrophysikalisch relevanten Energiebereich direkt zu messen. Selbst der Versuch, die bei höheren Energien vorliegenden Wirkungsquerschnitte unter Zuhilfenahme theoretischer Konzepte zu extrapolieren, ist immer noch mit so großen Unsicherheiten verbunden, dass die Konsequenzen aus den Vorhersagen verschiedener Sternmodelle bisher nicht zuverlässig überprüft werden können. Zur Verbesserung dieser unbefriedigenden Situation wurde mit der Modifikation des Karlsruher  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektors ein neuer experimenteller Ansatz gefunden.

## Neutronenerzeugung im Labor

Die zur Untersuchung von Neutronenreaktionen notwendigen Flüsse im keV-Bereich werden mit Hilfe von Teilchenbeschleunigern erzeugt. Am einfachsten werden freie Neutronen mittels Kernreaktionen an elektrostatischen Beschleunigern produziert. Dabei zeigt sich, dass vergleichs-

weise kleine Anlagen, wie der 3.7 MV Van-de-Graaff-Generator des IK, für astrophysikalische Anwendungen besonders geeignet sind. Insbesondere lassen sich damit hinsichtlich Neutronenfluss, Energiebereich und Untergrund optimierte Experimente konzipieren, die entsprechenden Einrichtungen an sehr viel größeren Beschleunigern ebenbürtig oder sogar überlegen sind.

Das Prinzip solcher Experimente lässt sich am Beispiel der Abb. 1 erläutern: Ein Protonenstrahl, der mit Hilfe des Beschleunigers erzeugt wird, trifft auf ein gekühltes, metallisches Lithiumtarget von ca. 10  $\mu\text{m}$  Dicke. Durch geeignete Wahl der Einschussenergie werden dabei über die  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ -Reaktion Neutronen im stellaren Energiebereich produziert. Für den Beschleuniger gibt es dazu zwei Betriebsarten.

- (I) Im Gleichstrom-Modus (Abb. 1, rechte Hälfte) können hohe Strahlströme von bis zu 200  $\mu\text{A}$  und damit Neutronenquellstärken von ca.  $5 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$  erreicht werden. Durch ein Geschenk der Natur lässt sich in diesem Zustand sogar auf verblüffend einfache Weise ein stellares Neutronenspektrum bei einer typischen s-Prozess-Temperatur von 300 Millionen Grad erzeugen: Wählt man eine Protonenenergie, die nur um 30 keV über der Reaktionsschwelle von 1881 keV liegt, so werden alle Neutronen aufgrund der Reaktionskinematik in einen nach vorne gerichteten Kegel mit 120 Grad Öffnungswinkel emittiert. Integriert man dieses Spektrum, so stellt man fest, dass damit das stellare Spektrum für eine thermische Energie von  $kT = 25 \text{ keV}$  nahezu perfekt beschrieben wird (Abb. 2). In diesem Spektrum können die entsprechenden stellaren Querschnitte unmittelbar gemessen werden. Ein wichtiger Vorteil dieser Technik ist der hohe Neutronenfluss, der die Untersuchung sehr geringer Probenmengen,

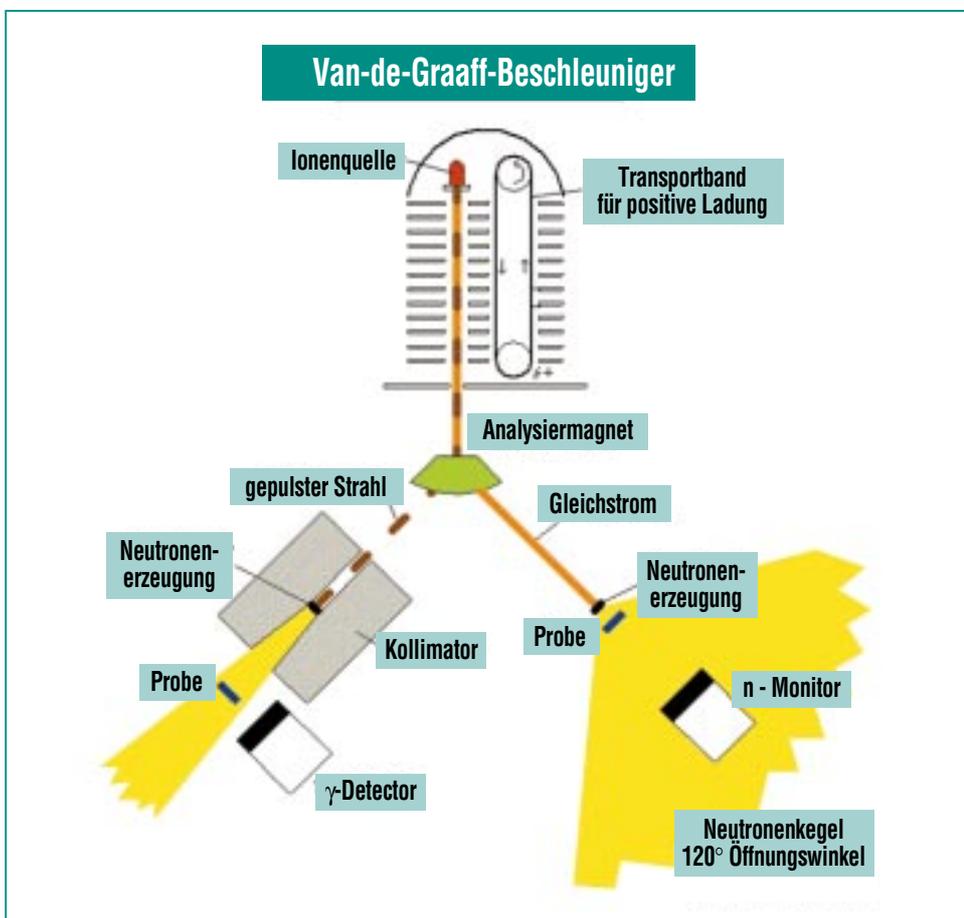
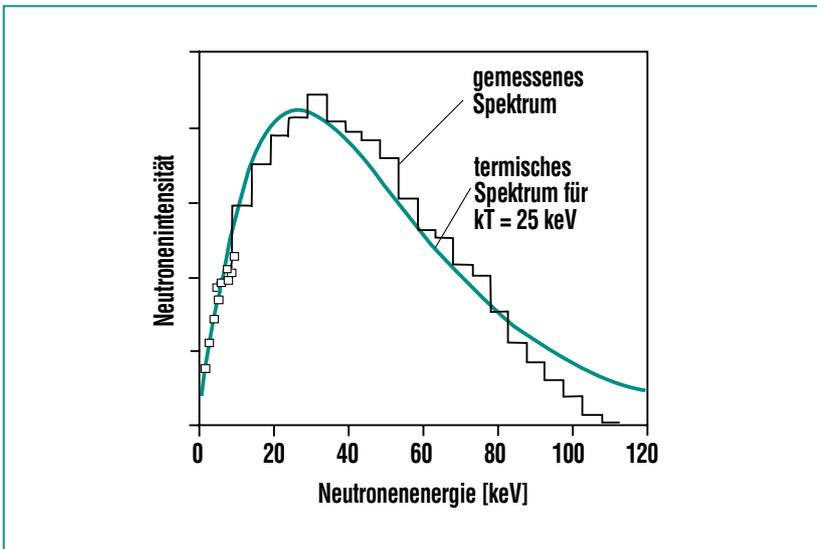


Abb. 1: Schematische Darstellung der Neutronenerzeugung am Van-de-Graaff-Beschleuniger des IK. Die positive Hochspannung zur Beschleunigung der in der Ionenquelle erzeugten Protonen von maximal 3.7 MV wird durch Ladungstransport auf einem umlaufenden Band erzeugt. Den Betriebszuständen des Beschleunigers sind zwei Arten von Experimenten zugeordnet: Aktivierungsmessungen durch Bestrahlung in einem quasi-stellaren Neutronenspektrum (rechts), sowie Flugzeitexperimente mit dem gepulsten Protonenstrahl (links). Einzelheiten sind im Text beschrieben.



**Abb. 2:** Das thermische Neutronenspektrum bei stellaren Temperaturen kann mit Hilfe der  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  Reaktion nahezu perfekt simuliert werden. Auf diese Weise können die beim He-Brennen in Sternen ablaufenden Reaktionen im Labor untersucht werden.

bzw. die Messung sehr kleiner Querschnitte ermöglicht (siehe nächstes Kapitel). Allerdings liefert diese Methode die erforderlichen Reaktionsraten im Wesentlichen nur für eine bestimmte thermische Energie, so dass die zur Beschreibung des gesamten Temperaturbereichs im stellaren He-Brennen benötigte Information anderweitig vervollständigt werden muss.

(II) Die im Prinzip universell anwendbare Alternative zu Messungen in einem quasi-stellaren Neutronenspektrum besteht darin, den Protonenstrahl des Beschleunigers in sehr kurze Pulse aufzuteilen. In diesem gepulsten Betrieb werden Neutronen sehr verschiedener Energie praktisch gleichzeitig erzeugt. In diesem Fall ist es zweckmäßig, einen geeigneten Neutronenstrahl

mit Hilfe eines Kollimators zu erzeugen (Abb. 1, linke Hälfte). Da alle Neutronen zum Zeitpunkt  $t=0$  entstehen, kann ihre Flugzeit bis zur Probe durch das im Detektor registrierte Einfangereignis festgelegt werden. Aus Flugzeit und dem Abstand Target-Probe ergibt sich somit die Geschwindigkeit, bzw. die Energie des Neutrons, das ein bestimmtes Ereignis ausgelöst hat. In anderen Worten, die Flugzeitmethode ermöglicht die Messung von Wirkungsquerschnitten als Funktion der Energie.

Ein an den Verhältnissen des IK-Beschleunigers orientiertes Zahlenbeispiel soll diese Technik veranschaulichen. Die zeitliche Breite der Protonenpulse beträgt 0.7 ns, ein typischer Flugweg 80 cm. Für eine Energie von 30 keV, die dem Maximum des stellaren

Spektrums entspricht, ergibt sich eine Neutronengeschwindigkeit von 0.24 cm/ns und entsprechend eine Flugzeit von 334 ns. Der Zeitpunkt der Reaktion kann im Detektor auf 0.5 ns genau registriert werden, so dass die Flugzeit auf ca. 1 ns genau festgelegt ist. Da relativistische Korrekturen bei Energien unter 1 MeV vernachlässigbar sind und die Unsicherheiten des Flugwegs nur eine untergeordnete Rolle spielen, kann die Neutronenenergie mit einer Genauigkeit von 0.6% angegeben werden. Bei diesen Experimenten muss allerdings sichergestellt sein, dass der Abstand zwischen den Strahlpulsen hinreichend groß ist, damit die zeitliche Überlagerung von Neutronen aufeinanderfolgender Pulse vermieden wird. Im angeführten Beispiel ist dies durch einen Pulsabstand von 4000 ns sicher gewährleistet.

Aus den so bestimmten differentiellen Querschnitten,  $\sigma(E_n)$ , lassen sich die effektiven, stellaren Querschnitte durch Faltung mit der durch eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung

$$N(v)dv \approx \exp\left(\frac{-mv^2}{2kT}\right) v^2 dv$$

beschriebenen thermischen Verteilung ermitteln:

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

wobei  $v$  und  $E_n$  die Geschwindigkeit und Energie der Neutronen im Schwerpunktsystem sind und  $v_T$  die mittlere thermische Geschwindigkeit bezeichnet. An dieser Stelle ist darauf hinzuweisen, dass die stellare Einfangrate

$$\lambda_v = n_n v_T \langle \sigma \rangle$$

( $n_n$  ist die Neutronendichte pro  $\text{cm}^3$ ) von der Energie der Neutronen praktisch nicht abhängt, da die meisten differentiellen Querschnitte in guter Näherung umgekehrt proportional zur Neutronengeschwindigkeit sind ( $1/v$ -Verlauf). Wichtige Ausnahmen von dieser Regel finden sich jedoch bei den leichten und den neutronenmagischen Kernen, deren Querschnitte im Wesentlichen durch einzelne Resonanzen dominiert werden.

Vergleicht man die skizzierten Methoden zur Neutronenerzeugung, so wird klar, dass die wünschenswerte Flexibilität, die mit den differentiellen Querschnitten bezüglich der Temperatur sehr verschiedener Szenarien erreicht wurde, mit einem Verlust an Empfindlichkeit bezahlt werden muss. Dies liegt sowohl an der kleineren Intensität des gepulsten Protonenstrahls als auch an dem relativ großen Abstand zwischen Target und Probe. Um Flugzeitexperimente mit vertretbarem Zeitaufwand durchführen zu können, ist man deshalb auf entsprechend größere Messproben von ca. 1 g Gesamtmasse angewiesen.

Zum Abschluss dieses Kapitels sei darauf hingewiesen, dass an größeren Beschleunigern zwar höhere Intensitäten erreicht wer-

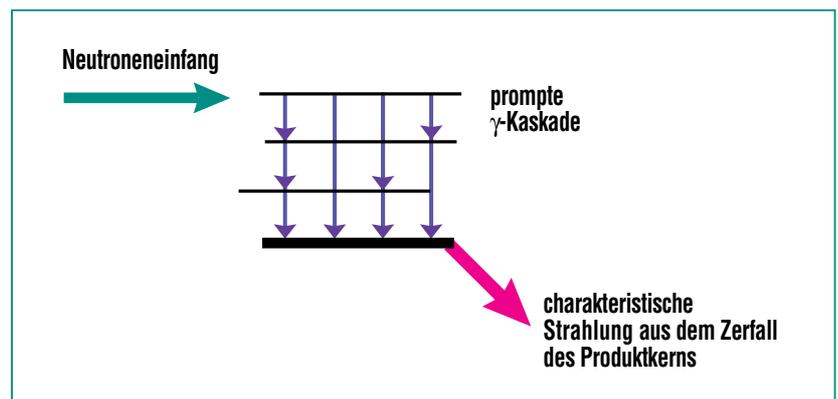
den, die Flugzeitmessungen mit besserer Auflösung erlauben. Solche Anlagen haben aber in der Regel den Nachteil sehr viel ungünstigerer Untergrundbedingungen. Dies gilt besonders für Elektronen-Linearbeschleuniger, wo Neutronen über  $(\gamma, n)$ -Reaktionen erzeugt werden und die deshalb einen entsprechend hohen  $\gamma$ -Untergrund aufweisen. Dieses Problem konnte erst mit dem Bau von Spallationsquellen verbessert werden, mit denen eine deutliche Steigerung der Neutronenflüsse möglich wurde. Anlagen dieser Art, die für Flugzeitexperimente geeignete Zeitstrukturen aufweisen, gibt es in Los Alamos and in naher Zukunft am CERN.

### Neutronenexperimente zur Elemententstehung

Die zum Nachweis von Neutroneneinfangereignissen geeigneten Charakteristika sind in Abb. 3 skizziert. Der Produktkern befin-

det sich zunächst in einem hoch angeregten Zustand. Das primär beobachtbare Signal besteht in der prompt emittierten  $\gamma$ -Strahlung in Form einer Kaskade von Übergängen mit statistisch verteilten Energien und Multiplizitäten. Lediglich die Gesamtenergie der Kaskade ist durch die Summe aus Bindungsenergie und kinetischer Energie des eingefangenen Neutrons eindeutig festgelegt und stellt somit die einzige eindeutige Signatur für ein Einfangereignis dar. Der am IK entwickelte  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektor ist die derzeit einzige Anordnung zum vollständigen Nachweis dieser Kaskade (siehe unten). Andere Methoden beschränken sich auf den Nachweis einzelner  $\gamma$ -Quanten und sind wegen der notwendigen Korrekturen bezüglich der unbekanntenen Multiplizitäten entsprechend ungenau.

Für den Fall, dass der Grundzustand des Produktkerns instabil ist, ergibt sich aus der nach Be-



**Abb. 3: Die charakteristischen Signaturen beim Neutroneneinfang bestehen aus der prompt emittierten Kaskade von  $\gamma$ -Übergängen, sowie aus der charakteristischen Zerfallsstrahlung im Fall eines radioaktiven Produktkerns. Die prompte  $\gamma$ -Kaskade weist statistisch verteilte Energien und Multiplizitäten auf; lediglich die Gesamtenergie der Kaskade ist durch die Summe aus Bindungsenergie und kinetischer Energie des eingefangenen Neutrons eindeutig festgelegt.**

strahlung erzeugten Aktivität der Probe eine sekundäre Signatur und damit eine alternative Methode zur Querschnittsbestimmung. Die Möglichkeiten dieser Technik sind im folgenden Abschnitt dargestellt.

### Aktivierungsmessungen

Das Schemabild der Abb. 2 lässt die Vorteile der Aktivierungstechnik erkennen: hoher Neutronenfluss durch Gleichstrombetrieb und direkten Kontakt von Neutronentarget und Probe, Einfachheit des Aufbaus, sowie günstige Untergrundverhältnisse durch Auszählung der induzierten Aktivität im Anschluss an die Bestrahlung.

Bei diesem Experiment besteht der Aufbau am Beschleuniger lediglich aus einer einfachen Anordnung zur genauen Positionierung der Probe unmittelbar am Neutronentarget. Während der Bestrahlung wird der relative Neutronenfluss mit einem Monitor in ca. 1 m Abstand zur Korrektur von eventuellen Zeitabhängigkeiten fortlaufend aufgezeichnet. Der absolute Fluss wird über die simultane Aktivierung dünner Goldfolien gemessen, die vor und hinter der Probe angebracht sind. Anschließend an die Bestrahlung wird die erzeugte Aktivität der Goldprobe und der untersuchten Probe mit einem hochauflösenden Ge-Detektor ausgezählt und aus dem Verhältnis der unbekannte Querschnitt ermittelt. Die Unsicherheiten der Aktivierungsmethode von  $\geq 3\%$  sind im Wesentlichen durch systematische Fehler der Aktivitätsmessung bedingt.

Die folgenden Beispiele zeigen zwei extreme Fälle, in denen die hohe Empfindlichkeit der Aktivierungstechnik besonders augenfällig ist.

### Wirkt $^{22}\text{Ne}$ als Neutronengift beim He-Brennen?

Wegen der Häufigkeit, mit der  $^{22}\text{Ne}$  beim He-Brennen vorkommt, ist diese Frage für die Neutronenbilanz im s-Prozess von großer Bedeutung, obwohl der Einfangquerschnitt dieses Isotops vergleichsweise sehr klein ist. Versuche, den Querschnitt in Flugzeitmessungen zu bestimmen, ergaben Hinweise auf unerwartet große Werte, blieben letztlich jedoch wegen unzureichender Empfindlichkeit erfolglos. Aktivierungsmessungen erschienen wegen der kurzen Halbwertszeit des Produktkerns  $^{23}\text{Ne}$  von nur 37 s ebenfalls sehr schwierig. Erst nach Entwicklung

einer zyklischen Aktivierungstechnik konnten die entsprechenden Messungen in Angriff genommen werden [1].

Der dazu verwendete Aufbau ist in Abb. 4 skizziert. Für die gasförmige Ne-Probe wurde ein Hochdruckbehälter verwendet. Bei 20 mm Durchmesser und einem Innendruck von 60 bar enthielt die Kugel eine Mischung aus etwa gleichen Gewichtsanteilen von hochangereichertem  $^{22}\text{Ne}$  und natürlichem Krypton, die nacheinander durch Einfrieren in die Kugel eingebracht wurden. Wegen der komplizierteren Geometrie wurde der Einfang am  $^{84}\text{Kr}$  anstelle der sonst üblichen Goldfolien als intermediärer Standard benutzt. Im Ablauf der zyklischen Bestrahlung wurde der Protonenstrahl für die Dauer der Aktivitätsmessung blockiert um den Untergrund des nahe am Neutronentarget installierten Ge-Detektors

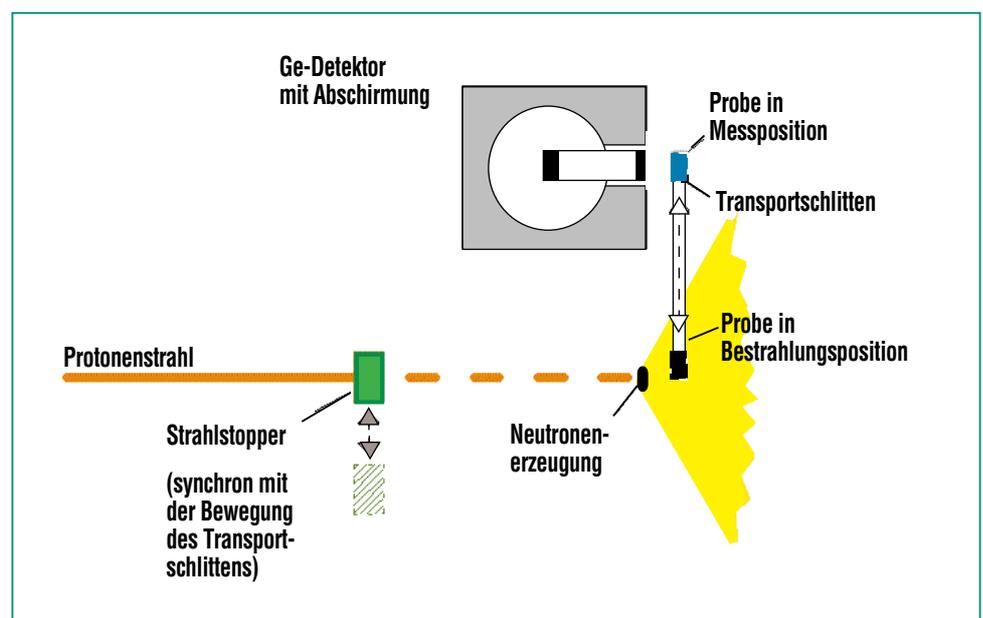


Abb. 4: Das Prinzip der zyklischen Bestrahlung der mit  $^{22}\text{Ne}$  und natürlichem Krypton gefüllten Gasproben im quasi-stellaren Neutronenfeld des Van-de-Graaff-Beschleunigers.

zu reduzieren. Die Probe wurde mit einem pneumatischen Schlitten zwischen Bestrahlungs- und Zählposition gewechselt, wobei die Zykluszeit bei 100 s und die Transportzeit bei 0.2 s lag.

Das in dieser Messung kumulierte  $\gamma$ -Spektrum im unteren Teil der Abb. 5 zeigt neben einer schwachen Linie am rechten Rand, die aus dem Zerfall von  $^{23}\text{Ne}$  stammt, eine Reihe von weiteren Linien, die Neutroneneinfangreaktionen an den Kr-Isotopen 78, 80, 84 und 86 zuzuordnen sind. Die aus der charakteristischen Zerfallsstrahlung resultierende Selektivität bedeutet, dass deren Querschnitte aus diesem Spektrum ebenfalls ermittelt werden können. Die Möglichkeit, mit natürlichen Proben zu arbeiten, ist nicht

nur entschieden billiger als die Verwendung angereicherter Materials, sondern erlaubt zudem in der Regel, mehrere Fliegen mit einer Klappe zu erlegen. Angereicherte Proben werden – wie beim  $^{22}\text{Ne}$  – lediglich zur Verbesserung der Empfindlichkeit verwendet.

Als Ergebnis dieser Messungen stellte sich heraus, dass der Querschnitt von  $^{22}\text{Ne}$  mit  $58 \pm 4 \mu\text{barn}$  ca. viermal kleiner ist als die von Flugzeitmessungen bekannten Obergrenzen. Dadurch wird die Wirkung von  $^{22}\text{Ne}$  als Neutronengift deutlich reduziert. Der verbleibende Beitrag zur Neutronenbilanz kann nunmehr mit Hilfe des hinreichend genauen Querschnitts zuverlässig festgelegt werden.

### Die Rolle von $^{147}\text{Pm}$ bei der Eingrenzung des Neutronenflusses in Roten Riesen

Wie der Neutronenfluss in der He-Brennzone aus der Verzweigung des Reaktionspfads bei  $A=147$  und  $148$  ermittelt werden kann, wurde im vorangegangenen Beitrag dieser Ausgabe dargestellt. Nachdem die Querschnitte der beteiligten, stabilen Neodym- und Samariumisotope inzwischen genau bekannt sind, stellen die nur theoretisch berechneten Querschnitte der instabilen Verzweigungsisotope die entscheidende Unsicherheit dieser Analyse dar. Wegen der starken Eigenaktivität, bzw. der Nicht-Verfügbarkeit der erforderlichen Messproben kommt die Flugzeitmethode in den meisten Fällen zur Bestimmung der Querschnitte von instabilen Verzweigungskernen nicht in Betracht. In dieser Situation kann die Tatsache, dass die Aktivierungsmethode noch mit Probenmengen im sub- $\mu\text{g}$ -Bereich arbeitet, von entscheidendem Vorteil sein.

Dieses Argument lässt sich am Beispiel der Messung am  $^{147}\text{Pm}$  verdeutlichen. Die für ein Flugzeitexperiment benötigte Mindestmenge von ca. 100 mg hätte wegen der Halbwertszeit von 2.6 Jahren eine enorme Eigenaktivität von  $5 \cdot 10^{12}$  Bq zur Folge. Für die Aktivierungsmessung reicht dagegen eine Probe mit einem  $^{147}\text{Pm}$ -Anteil von lediglich 30 ng aus. Dieser Reduktion um mehr als 6 Größenordnungen entspricht eine verbleibende Eigenaktivität von 1.5 MBq, die nur noch unwesentlich über der Freigrenze liegt und für den Nachweis der in der Bestrahlung indu-

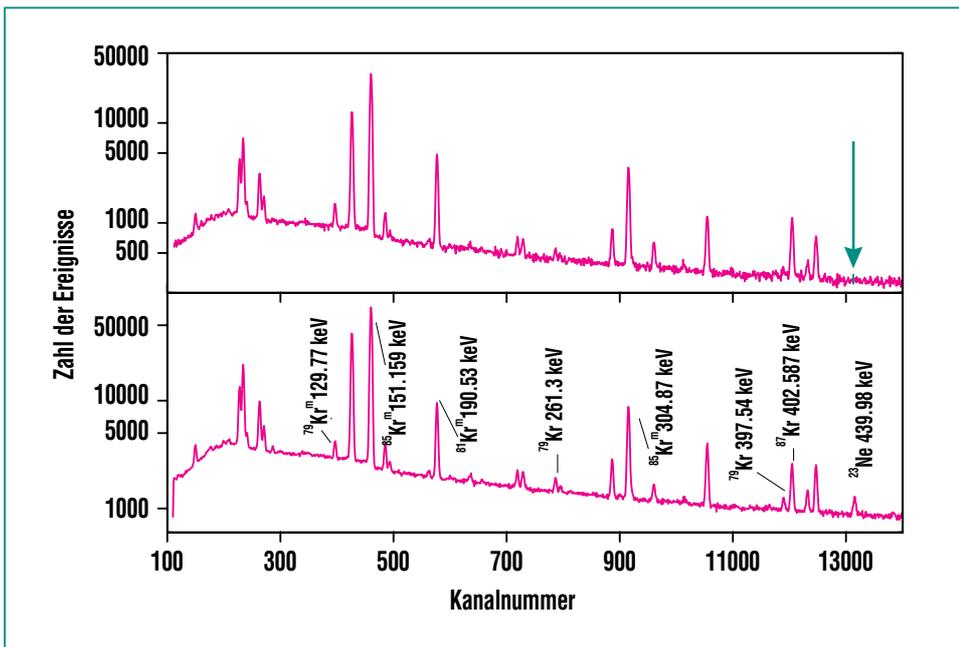


Abb. 5: Das  $\gamma$ -Spektrum der in Abb. 4 bestrahlten Gasprobe. Oben: Vergleichsspektrum mit natürlichem Krypton ohne Neon-Anteil. Der Pfeil markiert die Position der Linie aus dem Zerfall von  $^{23}\text{Ne}$  im unteren Spektrum, das mit einem Kr/Ne-Gemisch aufgenommen wurde. Daneben finden sich eine Reihe von Linien aus Einfangreaktionen an verschiedenen Kr-Isotopen, deren Querschnitte in diesem Experiment ebenfalls ermittelt werden konnten.

zierten  $^{148}\text{Pm}$ -Aktivität nicht hinderlich sein sollte.

Allerdings stellte sich jedoch bereits vor der Bestrahlung heraus, dass die Probe eine überaus störende Verunreinigung durch das Nachbarisotop  $^{146}\text{Pm}$  enthielt. Nach der Bestrahlung ergab sich zusätzlich noch eine weitere starke Untergrundkomponente durch die Aktivierung einer nicht spezifizierten Neodym-Kontamination im Probenmaterial. In der Konsequenz bedeuteten diese überraschenden Probleme, dass im integralen  $\gamma$ -Spektrum die Linien der induzierten  $^{148}\text{Pm}$ -Aktivität nicht nachweisbar waren.

Dieses Dilemma konnte durch den Einsatz von zwei Ge-Clover-Detektoren gelöst werden. Jeder dieser Detektoren besteht aus 4 unabhängigen Ge-Kristallen in einem gemeinsamen Kryostaten (siehe schematische Skizze in Abb. 6). Insgesamt ergibt sich so ein achtfach unterteilter Ge-Detektor mit einem Gesamtvolumen von  $1000\text{ cm}^3$ . Aufgrund der engen Geometrie war die Nachweiswahrscheinlichkeit hinreichend groß, um die im Zerfall von  $^{148}\text{Pm}$  auftretenden Kaskadenübergänge koinzident registrieren zu können. Diese Koinzidenzbedingung reichte aus, um den allgemeinen Untergrund so weit zu reduzieren, dass die  $\gamma$ -Linien aus dem  $^{148}\text{Pm}$  Zerfall sichtbar wurden. Das zweidimensionale Spektrum im rechten Teil der Abb. 6 zeigt die Empfindlichkeit der Datenanalyse am Beispiel der Trennung einer Kaskade mit  $1465\text{ keV}$  Energie von der Linie bei  $1461\text{ keV}$  aus dem natürlichen  $^{40}\text{K}$  Zerfall.

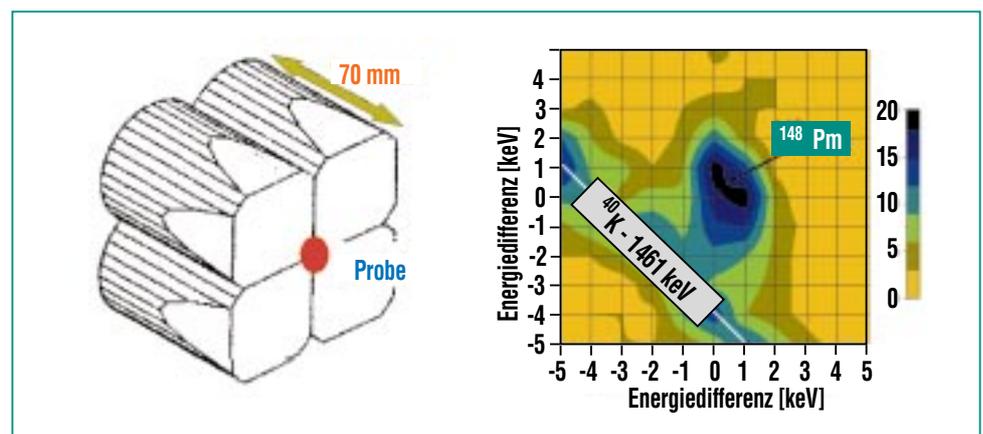
Der in dieser Aktivierung zu  $685\pm 60\text{ mbarn}$  bestimmte stellare Querschnitt ist erheblich kleiner als die theoretischen Vorhersagen, die sich im Bereich zwischen  $1000$  und  $2000\text{ mb}$  bewegen. Da die aus den Verzweigungen bei  $A=147$  und  $148$  abgeleitete Neutronendichte ungefähr umgekehrt proportional zu den Querschnitten der beteiligten, instabilen Isotope ist, ermöglicht das vorliegende Ergebnis erstmals eine zuverlässige, quantitative Aussage über diesen wichtigen s-Prozess-Parameter.

### Flugzeit-Experimente mit dem $4\pi\text{ BaF}_2$ -Detektor

Während die Aktivierungstechnik nur auf Reaktionen mit einem instabilen Produktkern angewandt werden kann, entfällt diese Beschränkung bei dem in Flugzeitexperimenten üblichen Nachweis der prompt emittierten  $\gamma$ -Kaska-

de. Die vollständige Erfassung der Kaskade bietet wegen der vergleichsweise großen Gesamtenergie die beste Unterscheidungsmöglichkeit von dem in Neutronenexperimenten unvermeidlichen Untergrund. Die Forderungen an eine zur Summation der Kaskade geeignete Detektoranordnung sind: Abdeckung des gesamten Raumwinkels von  $4\pi$  und  $100\%$   $\gamma$ -Nachweiswahrscheinlichkeit, sehr gute Zeitauflösung, sowie eine ausreichende Energieauflösung zur effektiven Unterscheidung zwischen Untergrund und echten Ereignissen. Dieses Konzept wurde mit dem am IK gebauten  $4\pi\text{ BaF}_2$ -Detektor [2] verwirklicht, der sich inzwischen in zahlreichen Experimenten bewährt hat.

Bei anderen Lösungen, die auf dem Nachweis eines einzelnen  $\gamma$ -Quants basieren, muss auf die (unbekannte) Multiplizität korri-



**Abb. 6:** Schematische Darstellung einer Ge-Clover Anordnung, die vier unabhängige Einzeldetektoren in einem gemeinsamen Kryostaten vereint. Im Experiment stehen sich zwei dieser Detektoren unmittelbar gegenüber, so dass die von der Messprobe emittierte  $\gamma$ -Strahlung in einem Raumwinkel von nahezu  $4\pi$  erfasst wird. Das zweidimensionale Spektrum im rechten Teil der Abbildung illustriert die Empfindlichkeit der Datenanalyse am Beispiel der Trennung einer Kaskade mit  $1465\text{ keV}$  Gesamtenergie (Peak im Zentrum) von der bekannten  $1461\text{ keV}$  Linie aus dem natürlichen  $^{40}\text{K}$ -Zerfall (schräge Linie).

giert werden, ein Verfahren, das erheblich größere systematische Fehler zur Folge hat. Dementsprechend soll das erfolgreiche Karlsruher Konzept für künftige Experimente an den Spallations-Neutronenquellen in Los Alamos und am CERN übernommen werden, nachdem in detaillierten Simulationsrechnungen gezeigt wurde, dass dieser Detektortyp auch für die etwas anderen Untergrundverhältnisse an diesen Beschleunigern geeignet ist [3].

Die Leistungsfähigkeit des Karlsruher  $4\pi$   $\text{BaF}_2$ -Detektors soll nachfolgend an zwei Beispielen vorgeführt werden. Beide Beispiele stellen jeweils die ersten erfolgreichen Experimente zur Bestimmung der betreffenden stellaren Neutroneneinfang-Querschnitte dar und ermögli-

chen damit eine neue Sicht auf die physikalischen Verhältnisse beim He-Brennen.

### Das Edelgas Xenon

Der Aufbau des  $4\pi$   $\text{BaF}_2$ -Detektors am Van-de-Graaff-Beschleuniger ist in der Abb. 7 skizziert. Die Neutronen werden beim Auftreffen des gepulsten Protonenstrahls auf das Lithium-Target innerhalb eines sehr kurzen Zeitintervalls von 0.7 ns erzeugt. Mit Hilfe des Kollimators wird das entstehende Neutronenfeld auf einen gut definierten Strahl reduziert, dessen Durchmesser zwischen 15 und 30 mm vorgegeben werden kann. Da die Energien  $E_n$  dieser Neutronen kontinuierlich zwischen etwa 3 keV und einer durch die Protonenenergie definierten Maximalenergie von 100

oder 225 keV verteilt sind, wird  $E_n$  für jedes nachgewiesene Ereignis aus der jeweiligen Flugzeit ermittelt. Dabei wird abhängig von der Neutronenenergie eine Auflösung zwischen 0,1 und 1% erreicht. Im aktuellen Fall der Xe-Isotope ist die Auflösung etwas schlechter, da die verwendeten Hochdruck-Gasproben aus Ti-Kugeln mit 0.2 mm Wandstärke und 10 mm Durchmesser für die Flugzeitmessung eine zusätzliche Unsicherheit bedeuten. Dies hat auf die Bestimmung der stellaren Werte jedoch keinen Einfluss, da diese ohnehin durch Faltung mit dem sehr breiten thermischen Spektrum ermittelt werden.

In den Experimenten werden bis zu 9 Proben auf einem vertikal montierten Probenwechsler angeordnet und in Intervallen von ca. 15 min in die Messposition gefahren. Neben den eigentlichen Isotopen, deren Querschnitte bestimmt werden sollen – im angeführten Beispiel  $^{128}\text{Xe}$ ,  $^{129}\text{Xe}$  und  $^{130}\text{Xe}$ , enthält die Probenleiter eine Goldscheibe zur Messung des Neutronenflusses, eine Leerprobe zur Ermittlung des allgemeinen Untergrunds, sowie eine Streuproble aus Kohlenstoff oder  $^{208}\text{Pb}$  zur Erfassung des Untergrunds, der im Detektor durch gestreute Neutronen entsteht. Auf diese Weise können die entsprechenden Korrekturen experimentell ermittelt und damit sehr genau berücksichtigt werden [4].

Die bei Einfangereignissen in der Probe entstehenden  $\gamma$ -Kaskaden werden in den insgesamt 41  $\text{BaF}_2$ -Kristallen nachgewiesen, die zusammen eine geschlossene Kugelschale von 15 cm Dicke und 10 cm Innenradius ergeben.

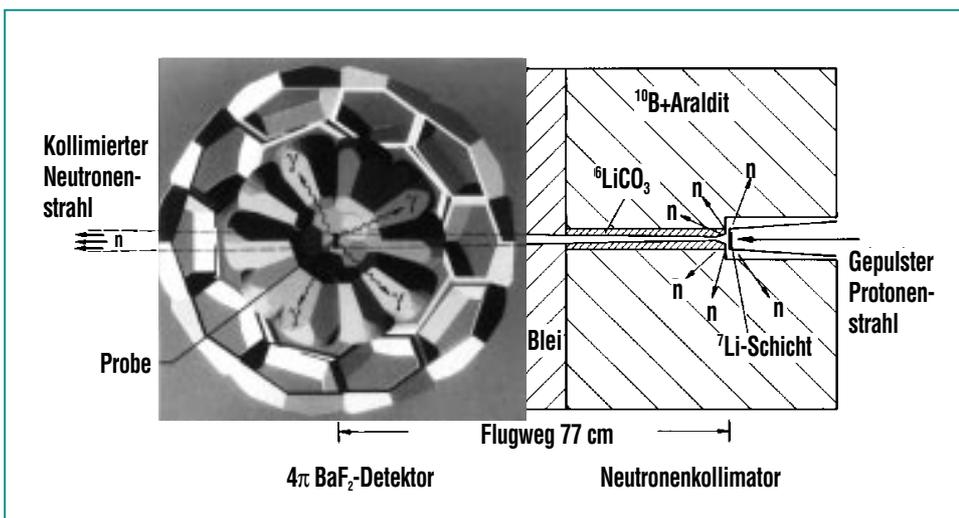
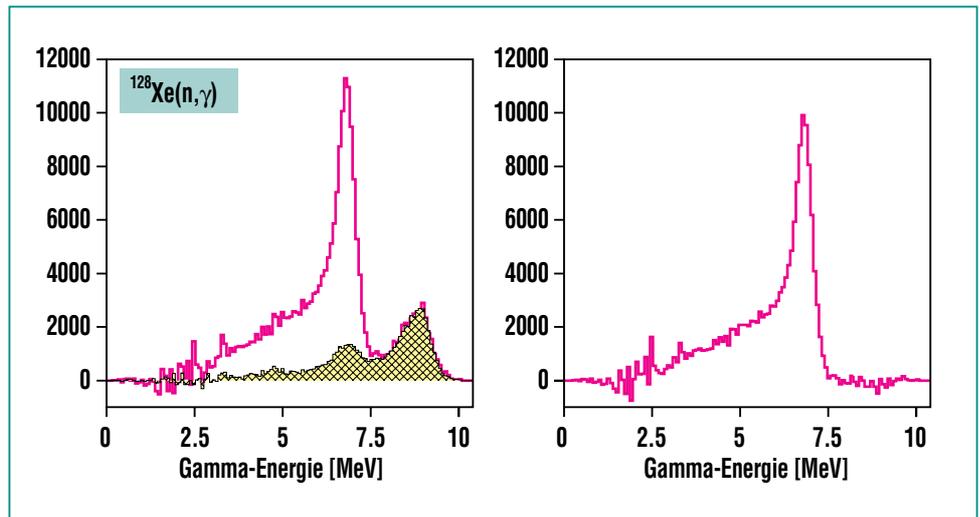


Abb. 7: Der Aufbau des  $4\pi$   $\text{BaF}_2$ -Detektors am Van-de-Graaff-Beschleuniger. Die Neutronen werden beim Auftreffen des gepulsten Protonenstrahls auf das Lithium-Target innerhalb eines sehr kurzen Zeitintervalls von 0.7 ns erzeugt. Mit Hilfe des Kollimators wird das entstehende Neutronenfeld auf einen gut definierten Strahl reduziert, dessen Durchmesser zwischen 15 und 30 mm vorgegeben werden kann. Die bei Einfangereignissen in der Probe entstehenden  $\gamma$ -Kaskaden werden in den insgesamt 41  $\text{BaF}_2$ -Kristallen nachgewiesen, die zusammen eine geschlossene Kugelschale von 15 cm Dicke und 10 cm Innenradius ergeben.

Das  $\gamma$ -Spektrum von Einfangereignissen am  $^{128}\text{Xe}$  (Abb. 8) zeigt die erwartete Summenlinie bei der Bindungsenergie des eingefangenen Neutrons. Da die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors nur etwas über 90% beträgt und deshalb manche Kaskaden nur unvollständig erfasst werden, erscheint diese Linie zu kleineren Energien hin verwaschen. Dieser Anteil liegt jedoch bis auf einen sehr kleinen Bruchteil noch über der Schwelle, die in der Regel bei 1.5 MeV eingestellt wird. Dies bedeutet, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit für Einfangereignisse je nach untersuchtem Isotop zwischen 96 und 99% liegt. Der Untergrund durch Neutronen, die von der Probe in den Detektor gestreut werden, entsteht durch Einfangereignisse in den Barium-Isotopen des Szintillators und kann mit Hilfe einer Streuprobe aus Kohlenstoff korrigiert werden (schattierte Fläche).

Aufgrund der sehr hohen Nachweiswahrscheinlichkeit für Einfangereignisse und der experimentell detailliert abgesicherten Korrekturen der verschiedenen Untergrundanteile liefern Experimente mit dem  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektor konkurrenzlos genaue Ergebnisse, die gerade für die Analyse von Verzweigungen des Synthesepfads entscheidend sind. So konnte die Stärke der Verzweigung bei A=128 durch das gemessene Querschnittsverhältnis von  $^{128}\text{Xe}$  und  $^{130}\text{Xe}$  auf  $\pm 2\%$  bestimmt werden. Da sich an dieser Stelle der Reaktionspfad im Verhältnis von etwa 9:1 teilt, ist es offensichtlich, dass diese Genauigkeit für eine quantitative Interpretation unbedingt notwendig ist.



**Abb. 8:** Das  $\gamma$ -Spektrum von Einfangereignissen am  $^{128}\text{Xe}$  zeigt die erwartete Summenlinie bei der Bindungsenergie des eingefangenen Neutrons von 6.9 MeV. Da die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors nur etwas über 90% beträgt und deshalb manche Kaskaden nur unvollständig erfasst werden, erscheint diese Linie zu kleineren Energien hin verwaschen. Der Untergrund durch Neutronen, die von der Probe in den Detektor gestreut werden (schattierte Fläche), entsteht durch Einfangereignisse in den Barium-Isotopen des Szintillators und kann mit Hilfe einer Streuprobe aus Kohlenstoff korrigiert werden (rechtes Spektrum).

### Das $^{180}\text{Ta}$ -Rätsel

Die Entstehung von  $^{180}\text{Ta}$  gehört zu den hartnäckigsten Problemen der Nuklearen Astrophysik, denn lange Zeit schien keiner der in diesem Massenbereich wirksamen Synthesemechanismen dafür in Frage zu kommen. Bei diesem Fall handelt es sich sowohl um das seltenste, in der Natur vorkommende Isotop als auch um den einzigen Kern, der in einem isomeren Zustand stabil ist, während der Grundzustand mit einer Halbwertszeit von 8 h zerfällt.

Das Diagramm der Reaktionsflüsse in Abb. 9 zeigt, dass  $^{180}\text{Ta}$  gegen die  $\beta$ -Zerfalls-Ketten aus den Gebieten der explosiven Nukleosynthese (r- und p-Prozesse) durch stabile Isobare abge-

schirmt ist. Lediglich der dem Stabilitätstal folgende Reaktionspfad des s-Prozesses lieferte durch den Zerfall eines schwach bevölkerten Isomers im  $^{180}\text{Hf}$  einen kleinen Beitrag zur beobachteten Häufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$ . Erst mit der von Takahashi und Yokoi [5] postulierten Verzweigung beim  $^{179}\text{Hf}$  – dieser Kern wird bei stellaren Temperaturen instabil! – wurde eine ergiebige Möglichkeit zur  $^{180}\text{Ta}$ -Produktion gefunden. Für eine quantitative Interpretation der resultierenden s-Häufigkeit fehlte jedoch bisher für  $^{180}\text{Ta}$  ein zuverlässiger (n, $\gamma$ )-Querschnitt.

Der Grund dafür, dass dieses wichtige Isotop nicht früher untersucht wurde, ist unmittelbar mit seiner Seltenheit verknüpft.

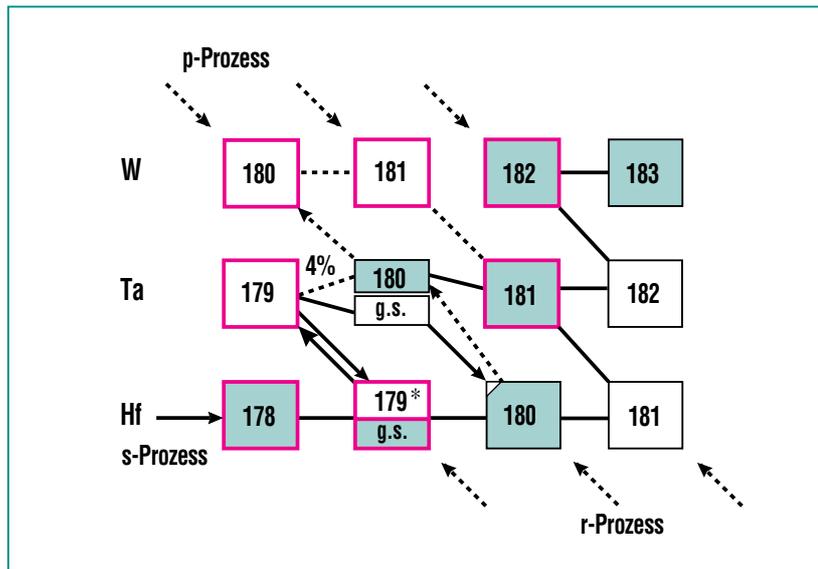


Abb. 9: Der Ausschnitt der Nuklidkarte zeigt die Schwierigkeit der Produktion von  $^{180}\text{Ta}$  unter stellaren Bedingungen. Die  $\beta$ -Zerfallsketten aus den Gebieten der explosiven Nukleosynthese werden durch stabile Isobare abgeschirmt, so dass r- und p-Prozesse nicht beitragen. Lediglich der Zerfall eines im s-Prozess schwach bevölkerten Isomers im  $^{180}\text{Hf}$  liefert einen kleinen Beitrag zur beobachteten Häufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$ . Erst mit der von Takahashi und Yokoi [5] postulierten Verzweigung beim  $^{179}\text{Hf}$  wurde eine ausreichend ergiebige Möglichkeit zur  $^{180}\text{Ta}$ -Produktion gefunden.

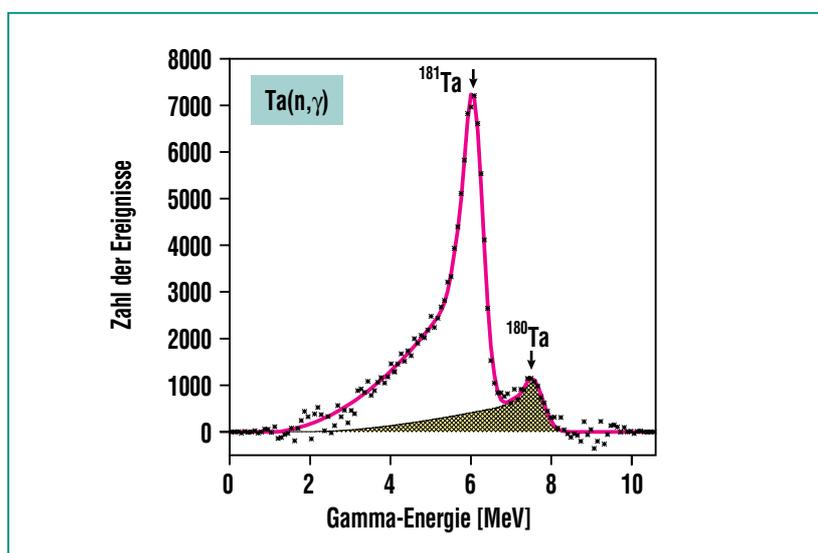


Abb. 10: Das  $\gamma$ -Spektrum von Neutroneneinfangereignissen aus der angereicherten Tantalprobe. Trotz des geringen  $^{180}\text{Ta}$ -Anteils von nur 5.5% konnten die Ereignisse in  $^{180}\text{Ta}$  (schraffierter Bereich) eindeutig von der dominanten  $^{181}\text{Ta}$ -Komponente separiert werden.

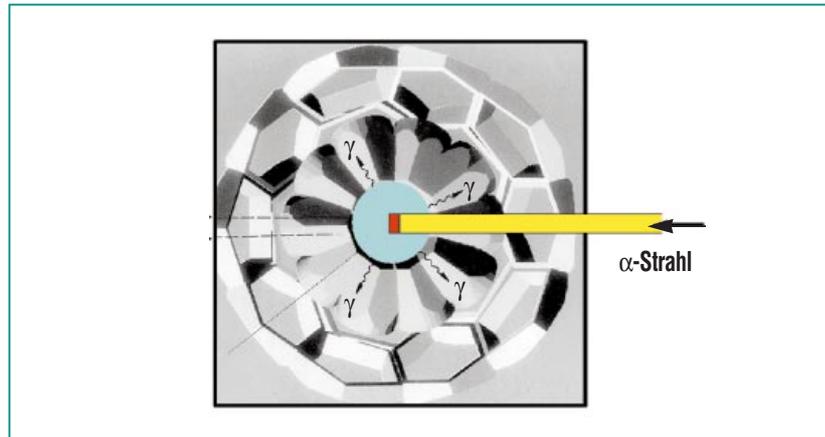
Da der Anteil von  $^{180}\text{Ta}$  am natürlich vorkommenden Ta nur 0.012% beträgt und dieses Element einen sehr hohen Schmelzpunkt hat, ist die Ausbeute bei elektromagnetischen Anreicherungsverfahren relativ gering. Der gesamte Weltvorrat an angereichertem Tantal bestand deshalb lediglich aus einer Gesamtmenge von 150 mg Oxydpulver mit einem  $^{180}\text{Ta}$ -Anteil von nur 5.5%, d.h. diese Probe bestand aus einer Mischung von 8 mg  $^{180}\text{Ta}$  und 142 mg  $^{181}\text{Ta}$ . Damit war klar, dass diese Probe keinem der traditionellen Messverfahren zugänglich war.

An diesem Punkt waren es Simulationsrechnungen mit Hilfe eines detailgetreuen Computermodells für den gesamten  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektor [3], mit deren Hilfe ein experimenteller Lösungsweg gefunden wurde. Aufgrund der Simulationen konnte die entsprechende Messung dank der guten Auflösung des Detektors und der zuverlässigen Untergrundkorrekturen so weit optimiert werden, dass es trotz des dominanten  $^{181}\text{Ta}$ -Anteils in der Tat gelang, die Signatur der Einfangereignisse im  $^{180}\text{Ta}$  eindeutig zu identifizieren [6]. Der aus dem Spektrum der Abb. 10 abgeleitete Querschnitt ist um einen Faktor zwei kleiner als theoretische Vorhersagen erwarten ließen. Entsprechend liefert die Verzweigung beim  $^{179}\text{Hf}$  nun eine deutlich höhere  $^{180}\text{Ta}$ -Ausbeute. Dies wird durch erste Modellrechnungen bestätigt, wonach das gesamte  $^{180}\text{Ta}$  im s-Prozess entstanden sein könnte.

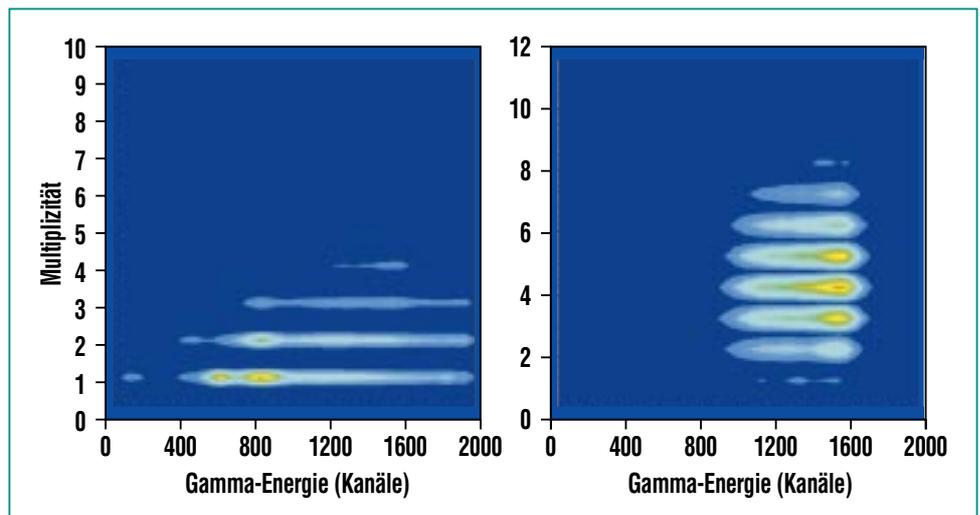
## Reaktionen mit geladenen Teilchen

Außer für Neutronenreaktionen eignen sich die beschriebenen Messverfahren auch zur Untersuchung der extrem kleinen Querschnitte von  $\alpha$ -induzierten Reaktionen, die sowohl zum Verständnis der Energieerzeugung beim He-Brennen als auch der Neutronenquellen notwendig sind. Diese Querschnitte können bis zu einer Milliarde mal kleiner sein als für Neutronenreaktionen, da bei stellaren Energien die Coulomb-Abstoßung dominiert.

Das Beispiel der Abb. 11 zeigt eine Modifikation des  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektors zur Messung der  $(\alpha, n)$ -Reaktionen an <sup>13</sup>C und <sup>22</sup>Ne, den Hauptneutronenquellen für den s-Prozess. Für diese Untersuchungen wurde der Teilchenstrahl bis ins Zentrum des Detektors geführt. Die in den Reaktionen entstehenden Neutronen werden in einem Paraffinkonverter moderiert und in dem beigemischten Kadmimpulver eingefangen. Dieser Umbau des  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektors zum Neutronennachweis wurde ebenfalls durch sorgfältige Simulationsrechnungen vorbereitet. Der rechte Teil der Abb. 12 zeigt, dass sich die Multiplizität und Energieverteilung von neutroneninduzierten Ereignissen deutlich vom allgemeinen Untergrund unterscheidet. Dadurch wird im Experiment eine hervorragende Empfindlichkeit erreicht, die es erlaubt, den Querschnitt bis zu sehr tiefen Energien auszumessen.



**Abb. 11:** Der Umbau des  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektors zum empfindlichen Nachweis von  $(\alpha, n)$  Reaktionen bei sehr niedrigen Energien. Der Teilchenstrahl wird bis zum Zentrum des Detektors geführt, wo die im <sup>13</sup>C-Target (rot) entstehenden Neutronen in einer Kugel aus einem Paraffin/Kadmium-Gemisch (blau) moderiert und durch Einfang an Cd nachgewiesen werden.



**Abb. 12:** Die charakteristische Signatur von Neutroneneinfangereignissen im Kadmium (rechts) unterscheidet sich in Multiplizität und Energie deutlich vom Untergrund (links).

## Status und Ausblick

Eine vollständige Sammlung aller vorliegenden Daten über stellare Neutroneneinfang-Querschnitte und eine daraus erstellte Kompilation von empfohlenen Werten, die unlängst am IK angefertigt wurde [7], zeigt folgendes Bild:

- Für diejenigen Kerne, die ausschließlich dem s-Prozess zugeschrieben werden können (reine s-Kerne), ist die geforderte Genauigkeit von  $\pm 1\%$  durch Messungen mit dem Karlsruher  $4\pi$  BaF<sub>2</sub>-Detektor erst etwa zur Hälfte erfüllt.

- Dasselbe gilt auch für die übrigen stabilen Kerne zwischen Fe und Bi, für die eine Genauigkeit von 3-5% anzustreben ist.
  - Für die wichtigen Querschnitte der instabilen Kerne an Verzweigungspunkten des Synthesepfads ist die Lage noch sehr unbefriedigend, da es bis auf vier Ausnahmen noch keine experimentellen Werte gibt. Wegen der technischen Schwierigkeiten solcher Untersuchungen stellt dieses Gebiet eine besondere Herausforderung dar.
  - Die Querschnitte der leichten Elemente von C bis Fe wurden lange vernachlässigt. Als Folge davon gibt es in diesem Massenbereich nur wenige zuverlässige Messungen. Seit jedoch die Bedeutung dieser Kerne als Neutronengifte sowie für das Verständnis der in Meteoriten entdeckten Isotopenanomalien erkannt wurde, gibt es einen dringenden Bedarf für eine deutliche Verbesserung dieser Situation.
  - Ein äußerst interessanter Aspekt ergibt sich aus der Tatsache, dass die effektiven stellaren Querschnitte im Massenbereich  $A > 150$  sich in vielen Fällen von experimentellen Labordaten unterscheiden können. Dieser Unterschied – der in Ausnahmefällen auch einige reine s-Kerne betrifft – kommt dadurch zustande, dass unter den Bedingungen des stellaren Plasmas niedrigliegende Kernzustände bereits merklich bevölkert sind. Die Neutroneneinfangquerschnitte dieser angeregten Kerne können durchaus von den im Labor gemessenen Werten abweichen. Ihr Beitrag zum effektiven stellaren Querschnitt wird zwar mit Hilfe theoretischer Argumente ermittelt, deren Zuverlässigkeit muss jedoch für wichtige Isotope durch experimentelle Querschnitte für inelastische Neutronenstreuung verbessert werden. Diesen Korrekturen, die bis zu 20% betragen können, kommt wegen der zunehmend genaueren, experimentellen  $(n,\gamma)$ -Querschnitte wachsende Bedeutung zu. Die im Zusammenhang mit diesem Problem wichtigen Streudaten fehlen jedoch noch nahezu vollständig.
- Angesichts des unverminderten Bedarfs an experimenteller Information sind die angesprochenen Fortschritte auf dem Gebiet der Messmethoden und der Bau von intensiven Neutronenquellen an verschiedenen großen Beschleunigern besonders wichtig. Mit diesen Entwicklungen können in absehbarer Zeit vor allem Messungen von bisher schwer zugänglichen Reaktionen realisiert werden, so dass die unsicheren, theoretischen Raten ersetzt oder zumindest durch Teilergebnisse deutlich verbessert werden.

## Literatur

- [1] H. Beer, G. Rupp, F. Voss, F. Käppeler, *Ap. J.* 379, 420 (1991);  
H. Beer, P.V. Sedyshev, W. Rochow, P. Mohr, H. Oberhummer, *Phys. Rev. C* (im Druck)
- [2] K. Wisshak, K. Guber, F. Käppeler, J. Krisch, H. Müller, G. Rupp, F. Voss, *Nucl. Instr. Meth. A292*, 595 (1990)
- [3] M. Heil, R. Reifarh, M.M. Fowler, R.C. Haight, F. Käppeler, R.S. Rundberg, E.A. Seabury, J.L. Ullmann, J.B. Wilhelmy, K. Wisshak, *Nucl. Instr. Meth. A459*, 229 (2001)
- [4] R. Reifarh, F. Käppeler, F. Voss, K. Wisshak, *Nucl. Phys.* (im Druck)
- [5] K. Takahashi, K. Yokoi, *Atomic Data Nucl. Data Tables* 36, 375 (1987)
- [6] K. Wisshak, F. Voss, C. Arlandini, M. Heil, F. Käppeler, M. Kricka, F. Becvar, *Nucl. Phys.* (im Druck)
- [7] Z.Y. Bao, H. Beer, F. Käppeler, F. Voss, K. Wisshak, *Atomic Data Nucl. Data Tables* 76, 70 (2000)