

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

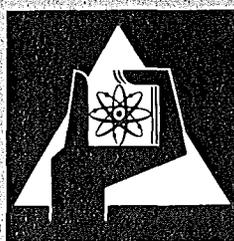
Mai 1973

KFK 1806

Institut für Radiochemie

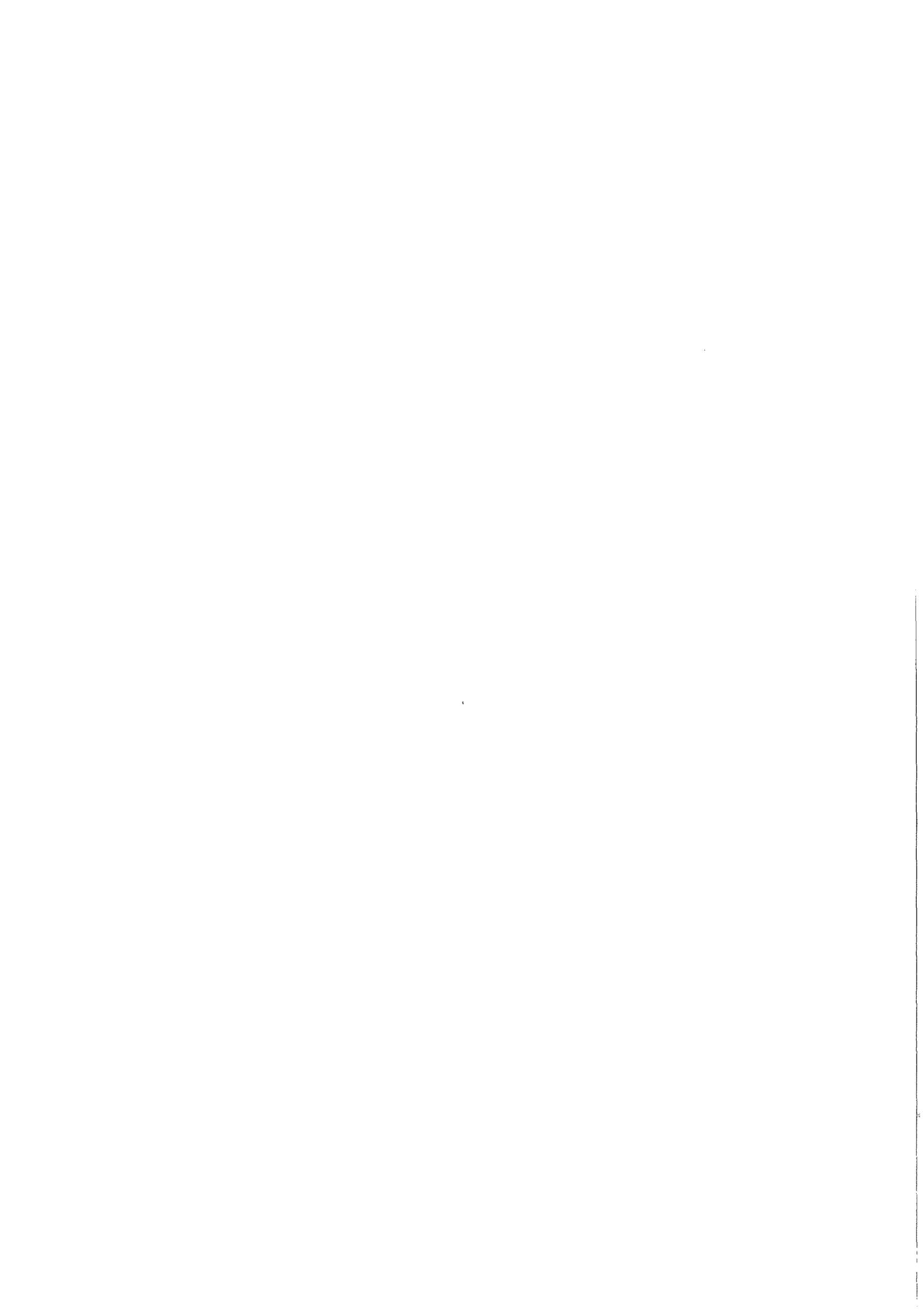
**Anregungsfunktionen für (α, xn) - und (α, pxn) -
Kernreaktionen mit Mo-Isotopen**

H.P. Graf



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1806

Institut für Radiochemie

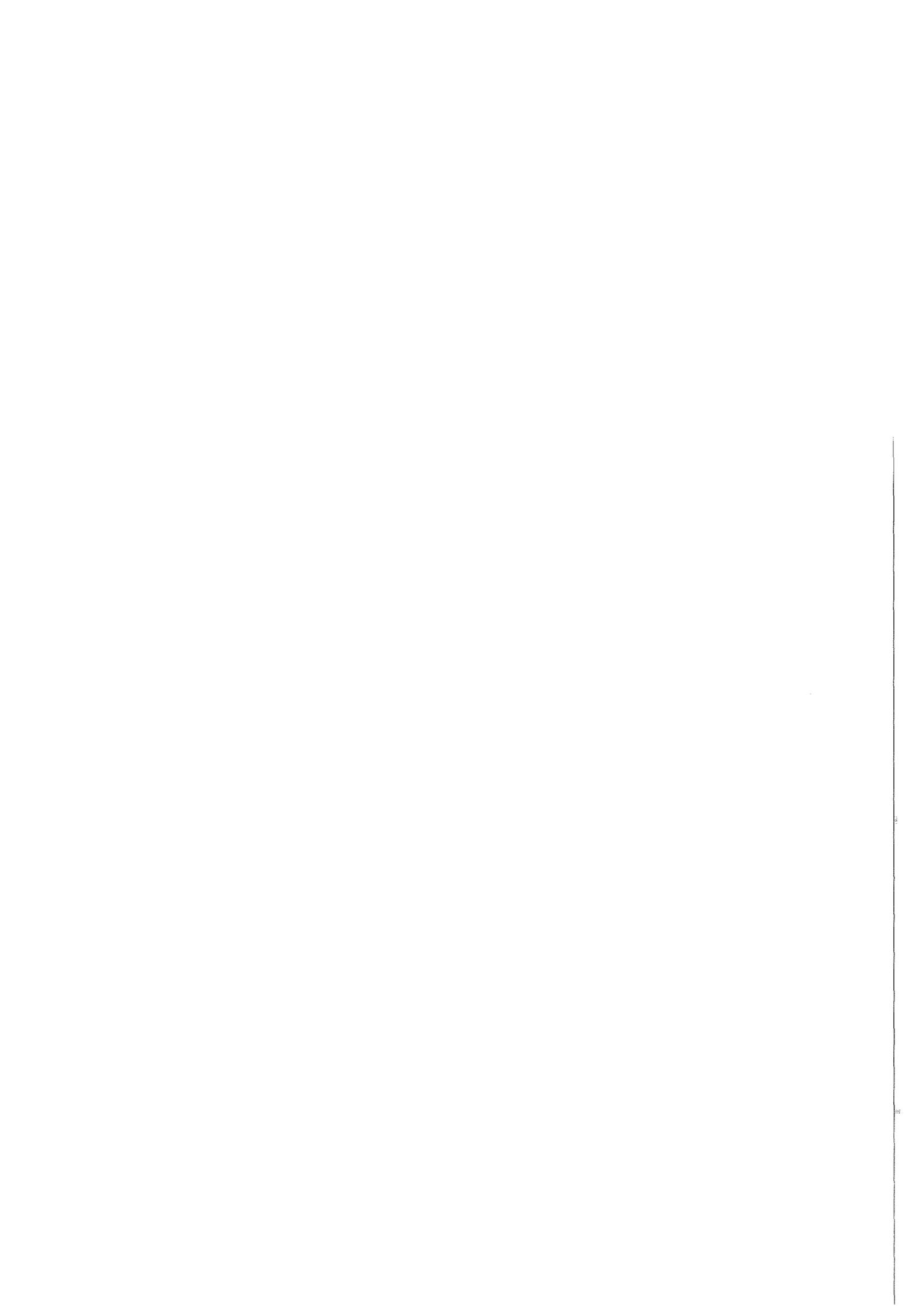
Anregungsfunktionen für (α, xn) - und (α, pxn) -
Kernreaktionen mit Mo-Isotopen *)

von

Hans-Peter Graf

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

*) Von der Fakultät für Chemie der Universität (T.H.)
Karlsruhe genehmigte Dissertation



Anregungsfunktionen für (α, xn) - und (α, pxn) -Kernreaktionen mit Mo-Isotopen

Zusammenfassung

Es wurden Anregungsfunktionen für $\text{Mo}(\alpha, xn)$ -Reaktionen $x = 1, 2, 3$ und $\text{Mo}(\alpha, pxn)$ -Reaktionen $x = 0, 1, 2$ experimentell bestimmt.

Als Target dienten Folien aus natürlichem Molybdän. In einigen Fällen wurden angereicherte Isotope in Pulverform zusammen mit Kupfer als Monitor bestrahlt.

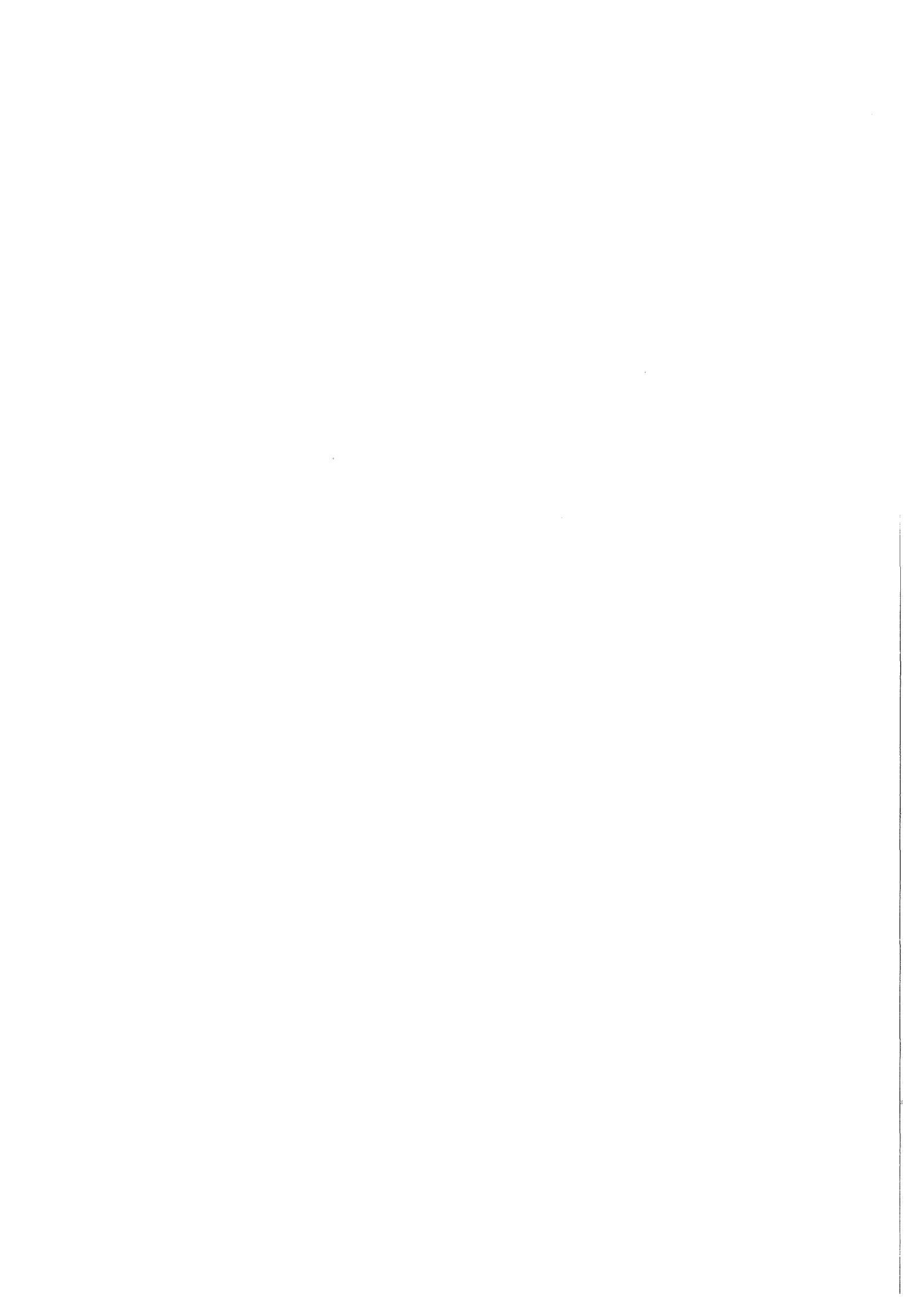
Der maximale Wirkungsquerschnitt σ_{\max} , eine der charakteristischen Größen von Anregungsfunktionen, wurde mit der Systematik für (α, xn) -Reaktionen verglichen. Weiter wurde die Übereinstimmung der experimentellen Ergebnisse mit Werten, die sich nach dem statistischen Modell errechnen, geprüft.

Excitation functions for (α, xn) - and (α, pxn) -reactions with Mo-isotopes

Abstract

Excitation functions for (α, xn) -reactions $x = 1, 2, 3$ and (α, pxn) -reactions $x = 0, 1, 2$ with Mo-isotopes were measured. Thin foils of natural Mo served as target. For some reactions enriched isotopes were irradiated using copper as a monitor.

The maximum cross-section σ_{\max} , representing one of the characteristic magnitudes of excitation functions is compared with the systematic of (α, xn) -reactions. Furthermore the experimental results were compared to calculations based on the statistical model.



Inhaltsverzeichnis

	Seite
Einleitung	1
1. Experimenteller Teil	2
1.1. Targetherstellung	3
1.2. Herstellung des Kupfermolybdat	4
1.3. Bestrahlungsanordnung	5
1.4. Strommessung	6
1.5. Energiebestimmung	6
1.6. Meßanordnung	6
1.7. Berechnung der absoluten Aktivitäten	7
2. Versuchsergebnisse	
2.1. Wirkungsquerschnitte	9
2.2. Anregungsfunktionen	10
2.2.1. $^{92}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{94}\text{Ru}$	12
2.2.2. $^{92}\text{Mo}(\alpha, pn)^{94}\text{Tc}^m$	15
2.2.3. $^{100}\text{Mo}(\alpha, p)^{103}\text{Tc}$	16
2.2.4. $^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{93}\text{Tc}^{m,g}$	17
2.2.5. $^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{95}\text{Tc}$ und $^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)^{95}\text{Ru}$	18
2.3. Fehlerbetrachtung	19
2.4. Numerische Werte für die Wirkungsquerschnitte	21
3. Theoretischer Teil	
3.1. Teilchenemissionswahrscheinlichkeiten des Compoundkerns	25
3.2. Die Systematik	27
3.3. Berechnung der Anregungsfunktionen	27
3.4. Diskussion der gemessenen Anregungsfunktionen	30
3.4.1. (α, n) -Anregungsfunktionen	30
3.4.2. (α, p) -Anregungsfunktionen	32
3.4.3. $(\alpha, 2n)$ - und $(\alpha, 3n)$ -Anregungsfunktionen	33
3.4.4. (α, pn) -Anregungsfunktionen	34
3.4.5. $(\alpha, p2n)$ -Anregungsfunktionen	35

	Seite
3.5. Vergleich des maximalen Wirkungsquerschnitts σ_{\max} mit der Theorie und der Systematik	36
3.5.1. (α, n)-Reaktionen	36
3.5.2. (α, p)-Reaktionen	37
3.5.3. ($\alpha, 2n$)-Reaktionen	39
3.5.4. (α, pn)-Reaktionen	40
3.5.5. ($\alpha, p2n$)-Reaktionen	41
Zusammenfassung	43
Literaturverzeichnis	44

Einleitung

Die Kenntnis der Wirkungsquerschnitte von Kernreaktionen in Abhängigkeit von der Projektilenergie, d.h. der Anregungsfunktion, ist z.B. in der Aktivierungsanalyse oder bei der Herstellung von Radionukliden von großer Bedeutung. Bei der großen Zahl möglicher Target-Projektilkombinationen ist es jedoch praktisch unmöglich, die Anregungsfunktionen aller Reaktionen experimentell zu bestimmen. Eine Reihe von Arbeiten befaßte sich deshalb damit, ein Verfahren zu entwickeln, welches gestattet, unbekannte Wirkungsquerschnitte mit ausreichender Genauigkeit abzuschätzen. Dazu ist jedoch die Kenntnis der Abhängigkeit der Form und der Höhe der Anregungsfunktionen von den Eigenschaften der Targetkerne notwendig. Lange und Münzel (1) untersuchten die Z-Abhängigkeit charakteristischer Größen der Anregungsfunktionen, wie maximaler Wirkungsquerschnitt, Lage des Maximums und Halbwertsbreite. Die Autoren gaben an, daß eine Genauigkeit von etwa einem Faktor 2 erreicht werden kann. Diese Angabe gilt jedoch nur für Kerne in der Nähe der Stabilitätslinie, da bei dieser Abschätzung der Einfluß von Neutronen- bzw. Protonenüberschuß nicht berücksichtigt wurde.

Röhm (2) gab ein verbessertes Abschätzungsverfahren für unbekannte maximale Wirkungsquerschnitte an, dessen Anwendbarkeit jedoch nur für (α, xn)-Reaktionen geprüft wurde. Er untersuchte die Abhängigkeit publizierter Daten von einer Variablen, welche einige Kerneigenschaften, z.B. die Bindungsenergien von Protonen und Neutronen erfaßt. Demzufolge sollte dieses Verfahren für neutronenreiche und neutronenarme Targetkerne gleichermaßen eine befriedigende Abschätzung unbekannter Wirkungsquerschnitte ermöglichen. Bislang lag jedoch nur wenig experimentelles Material vor, welches gestattet, diese Erwartungen zu bestätigen.

Mit den im ersten Teil dieser Arbeit gewonnenen Ergebnissen soll diese Lücke gefüllt und mit den Daten geprüft werden:

1. Läßt sich das Abschätzungsverfahren nach (2) auch für Targetkerne anwenden, die weit außerhalb der Stabilitätslinie liegen?

Zum Druck eingereicht am 4.5.1973

2. Erfasst das Verfahren die Änderung des Neutronen-Protonenverhältnisses innerhalb einer Isotopenreihe?
3. Es galt weitere Daten zu finden, welche gestatten, die Anwendbarkeit dieses Verfahrens auf Reaktionen mit Protonenemission zu prüfen.

1. Experimenteller Teil

Am Karlsruher Isochronzyklotron wurden die Anregungsfunktionen für Reaktionen von α -Teilchen mit verschiedenen Mo-Isotopen ermittelt. Die Wirkungsquerschnitte der Reaktionen des Typs (α, xn) $x = 1, 2, 3$ und (α, pxn) $x = 0, 1, 2$ wurden mittels Einzel-folienbestrahlungen bestimmt. Nur in wenigen Ausnahmefällen wurde die "stacked-foil-technique" angewendet.

Bestrahlt man Molybdänisotope mit α -Teilchen, so entstehen als Reaktionsprodukte Isotope der Elemente Ru, Tc und Mo.

Ru 93 52 s β^+	Ru 94 51,8 m ϵ γ 0,37; 0,89 ...	Ru 95 1,65 h ϵ β^+ 1,0; 1,3 ... γ 0,34; 1,09; 0,63 ...	Ru 96 5,51 α 0,27	Ru 97 2,9 d ϵ γ 0,22; 0,32 ...	Ru 98 1,87 α 4,37	Ru 99 12,72 α 6,12	Ru 100 12,62 α 5,48	Ru 101 17,07 α 1,23	Ru 102 31,61 β^- 0,2; 0,7 ... γ 0,50; 0,61 ...	Ru 103 39,5 d α 3,65	Ru 104 18,58
Tc 92 4,4 m β^+ 4,1 γ 1,54; 0,79; 0,33 ...	Tc 93 44 m 2,7 h ϵ γ 0,39 β^+ 2,65	Tc 94 53 m 4,9 h ϵ β^+ 0,8 ... γ 1,36; 1,52; 1,48 ...	Tc 95 60 d 20 h ϵ β^+ 2,5 ... γ 0,87; 0,58; 0,84 ...	Tc 96 52 m 4,3 d ϵ β^+ 0,8 ... γ 0,87; 0,70; 0,85 ...	Tc 97 91 d 2,6 · 10 ⁶ a ϵ β^+ 2,0 ... γ 0,77; 1,07 ...	Tc 98 1,5 · 10 ⁶ a β^- 0,3 γ 0,66; 0,77 α 2,6 ?	Tc 99 6,0 h 2,1 · 10 ⁶ a β^- 0,14 β^- 0,3 kein γ α obs 22	Tc 100 17 s β^- 3,4 ... γ 0,54; 0,60 ...	Tc 101 14 m β^- 1,3 ... γ 0,31; 0,55 ...	Tc 102 4,5 m 5,3 s β^- 2 ... 0,48 ... 0,63 ... 1,11 ... 2,19 ...	Tc 103 50 s β^- 2,2 ... 0,14; 0,34; 0,21
Mo 91 65 s 15,5 m β^+ 2,5 4,0 1,54 0,21	Mo 92 15,84 α < 0,006 + < 0,3 kein γ	Mo 93 6,9 h > 100 a ϵ 1,148; 2,69; 0,26	Mo 94 9,04 ϵ	Mo 95 15,72 α obs 14,5	Mo 96 16,53 α 1,2	Mo 97 9,46 α 2,2	Mo 98 23,78 α 0,15	Mo 99 66,7 h β^- 1,2 ... 0,74; 0,18; 0,78 ...	Mo 100 9,63 α 0,20	Mo 101 14,6 m β^- 0,7, 2,2 ... 0,59; 1,02; 0,51	Mo 102 11,5 m β^- 1,2

Abb. 1: Ausschnitt aus der Nuklidkarte (18)

Abb. 1 gibt einen Überblick über den in Betracht kommenden Bereich. Welche Nuklide im einzelnen zu erwarten sind, wird bestimmt durch die Schwellenenergie der betrachteten Reaktion. Sie ist für die gemessenen Reaktionen in Tabelle 3 angegeben (21).

1.1 Targetherstellung

Als Targetmaterial dienten blanke, geglühte Molybdänfolien (Reinheit 99,95 %) des Flächengewichtes $10,6 \text{ mg/cm}^2$. Diese Folien konnten zur Bestimmung der Anregungsfunktionen nur in Energiebereichen verwendet werden, in denen gewünschte Reaktionen nicht durch Reaktionen mit anderen Isotopen gestört werden. Dagegen mußten bei Projektilenergien, wo ein Produktkern durch verschiedene Reaktionen erzeugt wird, angereicherte Isotope bestrahlt werden. Die verwendeten getrennten Isotope ^{94}Mo , ^{95}Mo und ^{100}Mo (Hersteller: Oak Ridge National Laboratory) lagen in Pulverform vor.

Tab. 1: Isotopenhäufigkeit der verwendeten angereicherten Isotope

Isotop	^{94}Mo	^{95}Mo	^{100}Mo
^{92}Mo	0,87	0,28	0,53
^{94}Mo	93,9	0,65	0,18
^{95}Mo	2,85	96,41	0,29
^{96}Mo	1,04	1,57	0,34
^{97}Mo	0,40	0,37	0,28
^{98}Mo	0,75	0,57	0,96
^{100}Mo	0,22	0,15	97,42

Es waren nur mg-Mengen vorhanden, weshalb die Herstellung uniformer Targets, z.B. Folien, elektrolytische Abscheidung der Targetsubstanz auf einen Träger oder Elektrophorese nicht möglich war. Bestrahlt man aber Molybdän-Pulver, welches z.B. in ein Briefchen aus Aluminium eingeschlossen wurde, so ist es nicht möglich, Schichtdickenschwankungen auszuschließen. Deshalb kann über die Zahl der Molybdänatome, die dem Teilchenstrom ausgesetzt sind, nichts ausgesagt werden (vgl. Gl. 2). Wenn das Mo-Pulver nur eine kleine Fläche im Briefchen belegt, ist es zudem leicht möglich, daß der Teilchenstrom die Mo-Schicht nur teilweise trifft und daher das gemessene Stromintegral größer ist als die Ladung, von welcher die zu bestrahlende Substanz

wirklich durchsetzt wurde. Diese Schwierigkeit umgeht man, wenn man zusammen mit dem Molybdän einen Monitor bestrahlt, für den im interessierenden Energiebereich eine Anregungsfunktion genau bekannt ist (vgl. 2.1).

Gefordert wird, daß Target- und Monitorsubstanz homogen verteilt sind und in genau bekanntem Verhältnis vorliegen. Das wird am besten von einer chemischen Verbindung erfüllt. Da Kupfer sich als geeigneter Monitor erwies, wurde Kupfermolybdat als Targetmaterial benutzt, welches fein pulverisiert und dann in Briefchen aus 20 µm Reinstaluminium eingeschlossen wurde. Es wurden dünne CuMoO_4 -Schichten hergestellt, um einen unzulässig hohen Energieverlust der α -Teilchen im Targetmaterial auszuschließen. In Fällen, wo für das betrachtete Isotop bereits eine Anregungsfunktion bekannt war, konnte zur Bestimmung der Anregungsfunktion anderer Reaktionen das angereicherte Isotop allein bestrahlt werden und diente dabei selbst als Monitor.

1.2. Herstellung des Kupfermolybdats

Die getrennten Isotope ^{94}Mo und ^{95}Mo wurden an der Luft bei etwa 700°C zu MoO_3 oxidiert, feines CuO -Pulver im Verhältnis der Molgewichte eingewogen und mit dem MoO_3 mechanisch gut gemischt. Die Festkörperreaktion läuft im Ofen bei 650°C schnell ab. Mischen und Glühen wurden mehrmals wiederholt. Das entstandene CuMoO_4 wurde in $3n \text{ NH}_4\text{OH}$ gelöst, filtriert und das Lösungsmittel langsam verdampft. Der Rückstand zeigte die hellgrüne Farbe der CuMoO_4 -Kristalle.

Die Darstellung des CuMoO_4 wurde in Vorversuchen mit natürlichem Molybdän getestet. Eine Aktivierungsanalyse mehrerer Proben mit Hilfe der Reaktionen $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)^{95}\text{Ru}$ und $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)^{66}\text{Ga}$ zeigte, daß Cu und Mo homogen verteilt waren. Das Atomverhältnis beider Elemente betrug 1,01. Im Falle der getrennten Isotope ergab eine elektrolytische Kupfer- und gravimetrische Molybdänbestimmung der Kupfermolybdate ein Cu/Mo-Verhältnis von 1,02.

1.3. Bestrahlungsanordnung

Alle Bestrahlungen wurden mit α -Teilchen des Karlsruher Isochronzyklotrons durchgeführt. Im externen Strahl des Beschleunigers wird das Target zentral vom Teilchenstrom durchsetzt. Da dort Randstreuungen ausgeschlossen sind, lassen sich Versuche mit Folienpaketen, bestehend aus Mo-Folien und Al-Absorbern zur Energiereduzierung leicht durchführen. Nachteilig dabei ist, daß der Teilchenstrom von der α -Maximalenergie von 104 MeV auf die gewünschte Energie abgebremst werden muß. Je weiter aber die Energie reduziert wird, desto mehr spreizt sich die Energie auf. Zudem ergeben geringe Fehler im Flächengewicht der Folien und Absorber sowie Unsicherheiten der maximalen Teilchenenergie bei starker Energiereduzierung der α -Teilchen beträchtliche Ungenauigkeiten bei der Berechnung der Teilchenenergien in den einzelnen Folien. Der Vorteil der "stacked foil technique" mehrere Folien gleichzeitig bestrahlen zu können, wurde deshalb nur zur Herstellung der langlebigen Nuklide ^{103}Ru und $^{95}\text{Tc}^m$ ausgenutzt. Wegen der kleinen Wirkungsquerschnitte für die entsprechenden Reaktionen sind zur Erzeugung gut meßbarer Aktivitäten lange Bestrahlungszeiten erforderlich, die sich bei Einzelbestrahlungen um ein Vielfaches erhöhen würden. Um die oben erwähnten möglichen Fehler dieser Methode möglichst klein zu halten, wurden einige Wirkungsquerschnitte mittels Einzelfolienbestrahlungen bestimmt. Lagen diese Punkte nicht auf der nach der "stacked foil technique" gewonnenen Anregungsfunktion, wurde letztere bezüglich der Energie entsprechend korrigiert. Alle weiteren Bestrahlungen wurden intern durchgeführt. Dort können wegen Strahlstreuungen an den Folienrändern nur einzelne Folien bestrahlt werden. Im Gegensatz zum Folienpaket konnte jede Folie direkt nach Bestrahlungsende gemessen werden, wo kurzlebige Nuklide noch mit hoher Zählrate vorhanden waren. So konnte auch die Zahl der aufgenommenen Spektren erhöht werden. Abfallskurven und besonders Anstiege von Tochteraktivitäten ließen sich auf diese Weise genauer auswerten.

1.4. Strommessung

Bei allen Bestrahlungen von Folien aus natürlichem Molybdän wurde die aufgenommene Ladung mit Hilfe eines Elcon-Stromintegrators gemessen, der mit einem Faradaykäfig verbunden war. Der Meßfehler des Integrators ist kleiner 2 %. Bei Versuchen mit getrennten Mo-Isotopen wurde der Fluß indirekt über eine Monitorreaktion bestimmt. Welche Monitoranregungsfunktion im einzelnen verwendet wurde, ist in Tab. 3 angegeben (vgl. 2.1). Die Unsicherheit der verwendeten Monitoranregungsfunktionen wurde kleiner 10 % abgeschätzt.

1.5. Energiebestimmung

Alle angegebenen Projektilenergien stellen jeweils die Energie der einfallenden α -Teilchen im Laborsystem dar.

Bei internen Bestrahlungen ist die Teilchenenergie eindeutig durch den Bahnradius festgelegt. Die Energieabnahme der α -Teilchen in den einzelnen Folien der "stacks" sowie der Al-Verpackung der Pulvertargets wurde mit Hilfe der Reichweite-Energie-Tabelle von Williamson et al. (3) berechnet. Die Flächengewichte der Folien wurden aus der Fläche und dem Gewicht großer, unzerschnittener Folien bestimmt. Die Dickenschwankungen der Folien sind kleiner als 3 %.

1.6. Meßanordnung

Die erzeugten Aktivitäten wurden mit einem Ge(Li)-Detektor mit einem effektiven Volumen von 27 cm^3 gemessen. Dem Halbleiterkristall schloß sich ein ladungsempfindlicher Vorverstärker mit einer FET-Eingangsstufe an. An die dazwischen geschaltete Elektronik zur weiteren Verstärkung und Impulsformung war ein 4096-Kanal-Impulshöhenanalysator mit Magnetbandausgabeeinheit angeschlossen. Veränderungen in der Verstärkung (Temperatur- und Langzeitdriften) wurden durch einen Digitalstabilisator kompensiert. Die Auflösung der gesamten Meßanordnung betrug 2,8 keV (FWHM) bei einer Energie von 1,33 MeV.

1.7. Berechnung der absoluten Aktivitäten

Für Nuklide mit Halbwertszeiten von mehr als 20 Stunden wurde der Aktivitätsverlauf etwa 30 Tage lang verfolgt, für Nuklide kleinerer Lebensdauer mindestens 10 Halbwertszeiten lang. So konnte geprüft werden, ob der betrachtete Peak frei von Störaktivitäten war.

Die aufgenommenen Spektren wurden mit Hilfe verschiedener Rechenprogramme ausgewertet. Das Programm HUNTER (4) sucht die γ -Peaks im Spektrum auf, ermittelt das Peakintegral und dessen Fehler. ROFAB (5) ordnet anschließend die Peaks nach Energie und bereitet sie zur Weiterverarbeitung mit MARTIN (6) vor. Letzteres errechnet nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate die Abfallskurve, wobei die Halbwertszeiten der Nuklide aus der Literatur entnommen wurden. Die Aktivität am Bestrahlungsende wurde durch Extrapolation der Abfallskurven mit den in Tab. 2 aufgeführten Kerndaten errechnet. Der Photowirkungsgrad des Detektors für die entsprechenden γ -Energien wurde den Eichkurven von Röhm (2) entnommen. Er gibt hierfür einen Fehler von $\pm 2\%$ an.

Tab. 2: Zusammenstellung der verwendeten Kerndaten

Nuklid	Halbwertszeit	γ -Energie des verw. Peaks (keV)	γ -Verzweigungsanteil	Lit.
^{95}Ru	99 m	336,4 1096,7 626,8	0,705 0,15 0,14	(7)
^{94}Ru	51,8 m	367,2	0,79	d.Arbeit
^{93}Tc m g	44 m 2,7 h	390/ $\alpha_K=0,31$ *) 1350	0,64 0,65	(8)
^{94}Tc m g	53 m 4,9 h	870,7 870,7 702,0	0,91 1,0 1,0	(9)
^{95}Tc m g	60 d 20 h	203,9 765,8	0,85 0,94	(10)
^{96}Tc m g	52 m 4,3 d	- 812,5	0,98 (I_γ) 0,89	(11)
^{101}Tc	14 m	306,7	0,90	(12)
^{102}Tc	4,35 m	475,2	0,88	(13)
^{103}Tc	50 s	136,0	-	(14)
^{103}Ru	39,6 d	497,2	0,89	(15)
^{97}Ru	2,9 d	215,2	0,87	(16)
^{67}Ga	78 h	184,6	0,24	(17)

*) α_K = Konversionskoeffizient

2. Versuchsergebnisse

2.1. Wirkungsquerschnitte

Bei Bestrahlungen von Targets, welche so dünn sind, daß die Projektile beim Durchgang keinen merklichen Energieverlust erfahren, errechnen sich die Wirkungsquerschnitte nach

$$\sigma(E_{\alpha}) = \frac{A_0(E_{\alpha})}{N \cdot I (1 - \exp(-\lambda \cdot t))} \quad (1)$$

$\sigma(E_{\alpha})$ = Wirkungsquerschnitt für α -Teilchen der Energie E_{α} (cm^2)

$A_0(E_{\alpha})$ = Aktivität am Bestrahlungsende für die α -Energie E_{α} (s^{-1})

N = Zahl der dem Strahl dargebotenen Targetatome pro cm^2

I = Projektilstrom (Teilchen $\cdot \text{s}^{-1}$)

λ = Zerfallskonstante des erzeugten Radionuklids (s^{-1})

t = Bestrahlungsdauer (s)

$(1 - \exp(-\lambda \cdot t))$ = Sättigungsfaktor

Die Größe N läßt sich aus der Targetdicke berechnen:

$$N = \frac{N_A \cdot \xi \cdot D}{B} \quad (2)$$

$N_A = 6,023 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$, Avogadro-Zahl

ξ = Isotopenhäufigkeit des zu bestrahlenden Elementes

B = Atomgewicht des bestrahlten Elements

D = Targetdicke in g/cm^2

Die Zahl der auf die Targetsubstanz auftreffenden Projektile pro Sekunde I kann aus der gesamten Ladung folgendermaßen berechnet werden:

$$I = \frac{Q}{z \cdot e \cdot t} \quad (3)$$

Q = Stromintegral (C)

z = Zahl der Elementarladungen pro Projektil

($z = 2$ für α -Teilchen)

e = Elementarladung ($1,6021 \cdot 10^{-19}$ C)

t = Bestrahlungsdauer (s)

Nicht jede Art von Targets gestattet, die aufgenommene Ladung direkt zu messen. Auch können oft keine uniformen Targets hergestellt werden, weshalb die Größe N nach Gl. 2 nicht bestimmt werden kann. In solchen Fällen lassen sich die Wirkungsquerschnitte mittels der Methode des vermischten Monitors bestimmen: Bestrahlt man zusammen mit dem Element für das die Wirkungsquerschnitte bestimmt werden sollen, einen Monitor, so gilt für diesen Gl. 1 entsprechend:

$$\sigma_M(E_\alpha) = \frac{A_{OM}(E_\alpha)}{N_M \cdot I_M (1 - \exp(-\lambda_M \cdot t))} \quad (4)$$

Index M = Monitor

Aus dem Quotient von Gl. (1) und (4) errechnet sich jetzt der gewünschte Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma(E_\alpha) = \frac{A_O(E_\alpha)}{A_{OM}(E_\alpha)} \cdot \frac{N_M \cdot I_M}{N \cdot I} \cdot \frac{(1 - \exp(-\lambda_M \cdot t))}{(1 - \exp(-\lambda \cdot t))} \cdot \sigma_M \quad (5)$$

Setzt man voraus, daß beide Komponenten im Target gut vermischt sind, dann gilt $I_M = I$, da sowohl die Monitoratome als auch die Atome des eigentlich zu bestrahlenden Elements dem gleichen Teilchenstrom ausgesetzt sind. Eine direkte Strommessung läßt sich somit umgehen. Berechnet man den Quotienten N_M/N unter Berücksichtigung von Gl. 2, so entfällt auch die Dickenmessung des Targets. Die Berechnung der gewünschten Wirkungsquerschnitte verlangt jetzt an Stelle des Stromintegrals und des Flächengewichtes des Targets nur noch die genaue Kenntnis der Monitoranregungsfunktion sowie die Kenntnis des Atomverhältnisses beider Elemente im Target. Die Messung der Aktivitäten wurde bereits in 1.7 beschrieben.

2.2. Anregungsfunktionen

Außer den Reaktionsschwellen ist aus Tab. 3 weiter zu entnehmen, welches Target und welche Monitorreaktion zur Bestimmung der entsprechenden Anregungsfunktion gewählt wurde.

Fehlt in der Spalte "Bemerkungen" eine nähere Erläuterung, so zeigte die Abfallskurve des ausgewerteten Peaks nur eine Kompo-

Tab. 3: Erläuterungen zur Art der Bestimmung der einzelnen gemessenen Anregungsfunktionen

Reaktion	Schwellen- energie	Störreaktion	Schwellen- energie der Störreaktion	Target	Monitor- Reaktion	Bemerkungen
$^{92}\text{Mo}(\alpha, n)^{95}\text{Ru}$	9,3	$^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)$	27,9	nat. Mo		-
$^{94}\text{Mo}(\alpha, n)^{97}\text{Ru}$	8,4	$^{95}\text{Mo}(\alpha, 2n)$	16,1	$\text{Cu}^{94}\text{MoO}_4$	$^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{68}\text{Ga}$	-
$^{100}\text{Mo}(\alpha, n)^{103}\text{Ru}$	4,8	-	-	nat. Mo	-	keine Störung durch die Tochter des ^{103}Tc
$^{92}\text{Mo}(\alpha, p)^{95}\text{Tc}^m_g$	5,9	$^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n)$	24,4	nat. Mo	-	Tochter des ^{95}Ru abgezogen
$^{98}\text{Mo}(\alpha, p)^{101}\text{Tc}$	6,9	$^{100}\text{Mo}(\alpha, p2n)$	21,7	nat. Mo ^{100}Mo	$^{100}\text{Mo}(\alpha, pn)^{102}\text{Tc}^m$	Anteil der Störreaktion abgezogen
$^{100}\text{Mo}(\alpha, p)^{103}\text{Tc}$	6,4	-	-	^{100}Mo	-	siehe Text
$^{92}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{94}\text{Ru}$	18,7	$^{94}\text{Mo}(\alpha, 4n)$	37,2	nat. Mo	-	siehe Text
$^{95}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{97}\text{Ru}$	16,1	-	-	$\text{Cu}^{95}\text{MoO}_4$	$^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{68}\text{Ga}$	-
$^{92}\text{Mo}(\alpha, pn)^{94}\text{Tc}^m_g$	16,2	$^{94}\text{Mo}(\alpha, p3n)$	34,7	nat. Mo	-	siehe Text
$^{94}\text{Mo}(\alpha, pn)^{96}\text{Tc}^g$	16,2	-	-	$\text{Cu}^{94}\text{MoO}_4$	$^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{68}\text{Ga}$	Summe von $^{96}\text{Tc}^{m+g}$ gemessen
$^{100}\text{Mo}(\alpha, pn)^{102}\text{Tc}^m$	14,1	-	-	nat. Mo	-	keine Störung durch die Tochter von ^{102}Mo
$^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{93}\text{Tc}^m_g$	25,2	$^{94}\text{Mo}(\alpha, p4n)$	43,8	nat. Mo	-	siehe Text, Beitrag des Isomers zum Grundzust. abgezogen
$^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{95}\text{Tc}^m_g$	24,4	-	-	$\text{Cu}^{94}\text{MoO}_4$ ^{94}Mo	$^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{68}\text{Ga}$ *)	siehe Text, Tochter des ^{95}Ru abgezogen
$^{95}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{96}\text{Tc}^m_g$	23,8	-	-	$\text{Cu}^{95}\text{MoO}_4$	$^{65}\text{Cu}(\alpha, p2n)^{68}\text{Ga}$	Summe von $^{96}\text{Tc}^{m+g}$ gemessen
$^{100}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{101}\text{Tc}$	21,7	-	-	^{100}Mo	$^{100}\text{Mo}(\alpha, pn)^{102}\text{Tc}^m$	keine Störung durch die Tochter des ^{101}Mo
$^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)^{95}\text{Ru}$	27,9	-	-	^{94}Mo	*)	siehe Text
$^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{67}\text{Ga}$	15,0	-	-	nat. Cu	-	-

*) bezogen auf die kumulativen Wirkungsquerschnitte $^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n) + (\alpha, 3n) \rightarrow \beta^+$

nente. Der Wirkungsquerschnitt wurde dann mit Hilfe der extrapolierten Kurve bestimmt. In den Fällen, wo sich der gesuchten Aktivität die Tochteraktivität überlagerte, wurde letztere unter Verwendung der entsprechenden Bateman-Gleichung von der Summenaktivität abgezogen. Für einige Reaktionen war der mögliche Störanteil der Tochteraktivität eines gleichzeitig erzeugten Nuklids so gering, daß er im gemessenen Summenaktivitätsverlauf als Anstieg nicht festgestellt werden konnte. Jene Anregungsfunktionen, für die in Tab. 3 auf den Text verwiesen wird, werden im folgenden behandelt:

2.2.1. $^{92}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{94}\text{Ru}$

Für die Anregungsfunktion $^{92}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{94}\text{Ru}$ konnten zunächst keine absoluten Werte für die Wirkungsquerschnitte angegeben werden, da für den Zerfall des ^{94}Ru Angaben über die γ -Verzweigungsanteile, d.h. die gemessenen γ -Quanten pro Zerfall in der Literatur fehlen. Um auch eine Aussage über die absoluten Wirkungsquerschnitte machen zu können, wurden für das Zerfallsschema des ^{94}Ru nach Eichler et al. (19) die γ -Verzweigungsanteile der γ -Linien bestimmt. Da das Zerfallsschema des Tochternuklids $^{94}\text{Tc}^m$ gut bekannt ist, lassen sich die gesuchten Größen aus den gemessenen Aktivitäten von Mutter und Tochter wie folgt er rechnen: In diesem speziellen Fall sind die Halbwertszeiten von Mutter und Tochter annähernd gleich ($T_1 \approx T_2 = T = 52\text{m}$). Deshalb gilt unter der Voraussetzung, daß zum Zeitpunkt $t = 0$ kein ^{94}Tc vorhanden ist, für den zeitlichen Aktivitätsverlauf der Tochter

(20)

$$A_2(t) = A_1(0) \cdot \lambda \cdot t \cdot e^{-\lambda t} \quad (6)$$

$A_1(0)$ = Aktivität der Mutter zum Zeitpunkt $t = 0$

$A_2(t)$ = Aktivität der Tochter zum Zeitpunkt t

λ = Zerfallskonstante

Index 1, 2 bezeichnet Mutter bzw. Tochter.

Die absolute Zerfallsrate errechnet sich nach

$$A(t) = \frac{1}{\epsilon \cdot V} \cdot Z(t) \quad (7)$$

Z = gemessene Impulsrate des entsprechenden γ -Peaks

ϵ = Photowirkungsgrad des Detektors für die gemessene γ -Linie

V = γ -Verzweigungsanteil der gemessenen γ -Linie.

Mit den Gleichungen 6 und 7 lassen sich die unbekanntenen γ -Verzweigungsanteile V_1 der jeweils betrachteten γ -Linie des Mutternuklids berechnen.

$$V_1 = \frac{Z_1(0)}{Z_2(t)} \cdot \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1} \cdot \lambda \cdot t \cdot e^{-\lambda \cdot t} \cdot V_2 \quad (8)$$

Die Zählraten $Z_1(0)$ und $Z_2(t)$ können gemessen werden, die Photowirkungsgraden ϵ_1 und ϵ_2 der gemessenen γ -Linien von Mutter bzw. Tochter lassen sich den Eichkurven des benutzten Detektors entnehmen. V_2 ist der γ -Verzweigungsanteil einer zweckmäßig gewählten Bezugs- γ -Linie der Tochter (möglichst hoher Intensität, nicht gestört durch γ -Linien anderer vorhandener Nuklide).

Bestrahlt wurde natürliches Mo mit α -Teilchen der Energie 30 MeV. Um die Voraussetzungen für die Gültigkeit von Gl. 6 zu erfüllen, mußte ^{94}Tc , das über die Reaktion $^{92}\text{Mo}(\alpha, \text{pn})^{94}\text{Tc}$ direkt gebildet wurde, chemisch abgetrennt werden. Sofort nach Bestrahlungsende wurde die Mo-Folie in verdünnter Salpetersäure mit einem Zusatz von Salzsäure aufgelöst. 1 ml RuCl_3 wurde als Trägerlösung, 5 ml Perchlorsäure (70 %) zur Oxydation des Ru der Lösung beigemischt. Ein Zusatz von 1 ml Phosphorsäure verhindert die Destillation von Molybdän. Ruthentetraoxyd konnte dann über eine Kaliumchloratlösung (Tc-Falle) destilliert und in einem Gemisch aus Natronlauge und Äthylalkohol aufgefangen werden. Dort werden möglicherweise noch vorhandene Spuren von Tc in Lösung gehalten und das Ruthentetraoxyd zu metallischem Ru reduziert, welches anschließend abfiltriert und gemessen wurde.

Der gemessene zeitliche Verlauf der Impulsrate $Z_2(t)$ der 871 keV γ -Linie des ^{94}Tc stimmte in der Form gut mit der nach Gl. 6 theoretisch errechneten Kurve überein, was beweist, daß am Ende der Destillation kein ^{94}Tc in der Meßprobe enthalten war. Die Ab-

fallskurven der γ -Zählraten $Z_1(t)$ zeigten für alle Peaks nur eine Komponente mit einer Halbwertszeit von 52 min. Die Größe $Z_1(0)$ wurde daraus durch Extrapolation zum Zeitpunkt des Endes der Destillation gewonnen. Die Destillierzeit von 90 sec. war kurz gegenüber der Halbwertszeit des ^{94}Ru .

Die von Eichler et al. (19) gefundenen γ -Linien konnten bestätigt werden. Die dort angegebenen relativen Intensitäten unterscheiden sich jedoch erheblich von den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit.

Tab. 4: Relative Intensitäten der γ -Peaks des ^{94}Ru

E_γ (keV)	Relative Intensität		γ -Verzweigungsanteil
	diese Arbeit	Eichler et al. (19)	
367,2	100	100	0,79
524,7	2,70	2,0	0,024
892,2	26,0	40	0,21

Die Impulsraten wurden für verschiedene Zeiten gemessen, die Verzweigungsanteile jeweils nach Gl. 8 berechnet und gemittelt.

Mit $V_2 = 91\%$ (9) für die häufigste Linie des ^{94}Tc , die 871 keV-Linie, ergaben sich für die Verzweigungsanteile um 8 % zu große Werte, da sich mit ihnen die Summe der EC-Verzweigungsanteile zu 108 % errechnete. Deshalb wird angenommen, daß der Wert $V_2 = 91\%$ zu groß ist. Rechnet man mit $V_2 = 85\%$, der Wert liegt innerhalb der Fehlergrenzen, so ergibt sich das verbesserte Zerfallsschema Abb. 2.

Unter der Annahme, daß beim Zerfall des ^{94}Ru kein Direktübergang in den Grundzustand stattfindet, lassen sich die Verzweigungsanteile allein aus den relativen γ -Intensitäten, also unabhängig von V_2 bestimmen. Die Rechnung bestätigte die oben angegebenen Werte.

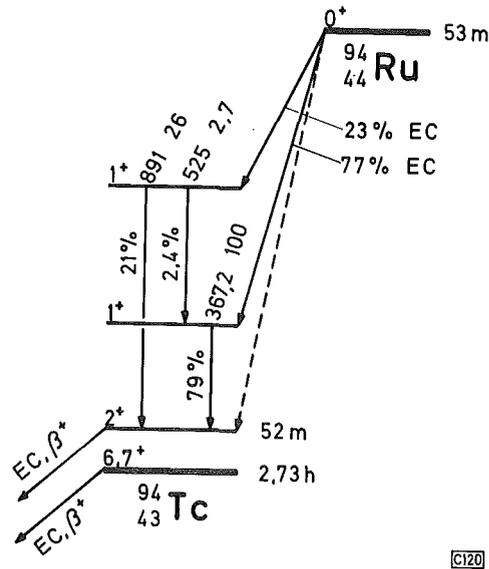


Abb. 2: Zerfallsschema des ^{94}Ru

2.2.2. $^{92}\text{Mo}(\alpha, \text{pn})^{94}\text{Tc}^{\text{m}}$

Abb. 2 zeigt, daß beim Zerfall des ^{94}Ru nur der metastabile Zustand des ^{94}Tc populierte wird. Dieser zerfällt nach Eichler et al. (19) nicht durch γ -Emission in den Grundzustand des ^{94}Tc , vielmehr führen alle Zerfälle direkt zu Niveaus des ^{94}Mo . Die 871 keV γ -Linie tritt sowohl beim Zerfall des metastabilen Zustandes (γ -Verzweigungsanteil 0,91) als auch beim Zerfall des Grundzustandes auf (γ -Verzweigungsanteil 1,0). Demzufolge setzt sich die Intensität der 871 keV γ -Linie, deren zeitlicher Verlauf gemessen wurde, aus 3 Komponenten zusammen: der Tochteraktivität $^{94}\text{Tc}^{\text{m}}$ des über die Reaktion $^{92}\text{Mo}(\alpha, 2\text{n})$ gebildeten ^{94}Ru sowie den direkt gebildeten Aktivitäten des $^{94}\text{Tc}^{\text{m}}$ und $^{94}\text{Tc}^{\text{g}}$. Um aus dem gemessenen zeitlichen Verlauf der Zählrate (Kurve 1, Abb. 3) den direkt gebildeten Anteil des 53-Minuten $^{94}\text{Tc}^{\text{m}}$ zu gewinnen, wurde zuerst der 4,9 h-Anteil des $^{94}\text{Tc}^{\text{g}}$ abgezogen (Kurve 2). Letzteren erhält man durch Extrapolieren jenes Teils der Abfallskurve, wo die $^{94}\text{Tc}^{\text{m}}$ -Aktivität bereits abgeklungen ist und der Abfall allein durch $^{94}\text{Tc}^{\text{g}}$ bestimmt wird. Von der resultierenden Differenzkurve (gestrichelte Kurve) wurde dann die Zählrate der Tochter des ^{94}Ru subtrahiert (Kurve 3). Ihr zeitlicher Verlauf läßt sich nach Gl. 6 berechnen. Da nach Gl. 7 die absolute Zerfallsrate $A(t)$ und die gemessene Impulsrate $Z(t)$ sich nur um einen konstanten Faktor

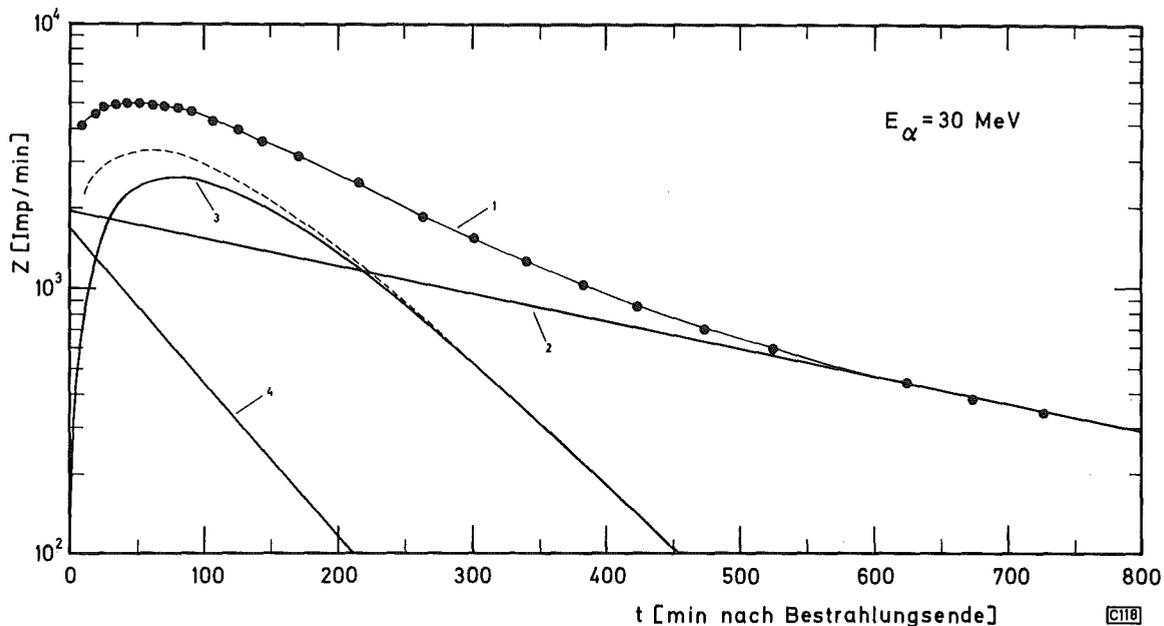


Abb. 3: Zeitlicher Verlauf der Zählrate der 871 keV γ -Linie des ^{94}Tc (Kurve 1) und Zerlegung in ihre Komponenten ($E_\alpha = 30$ MeV)

unterscheiden, zeigt in logarithmischer Darstellung die Größe $Z_2(t)$ die gleiche Kurvenform wie $A_2(t)$. Die Anfangszählrate der Mutter $Z_1(0)$ wurde graphisch bestimmt. Dazu wurde für einen beliebigen Wert $Z_1(0)$ der theoretische Kurvenverlauf aufgetragen. Diese Kurve wurde dann parallel solange verschoben (Änderung von $Z_1(0)$), bis die Kurvenpunkte, die sich aus der Differenz der obigen Restkurve und der Tochterzählrate ergaben, auf einer Geraden lagen, deren Steigung der Halbwertszeit des $^{94}\text{Tc}^m$ (52 min) (Kurve 4) entsprach. Die Extrapolation dieser Geraden auf den Zeitpunkt des Bestrahlungsendes ergab den Wert für die gesuchte Zählrate des direkt gebildeten $^{94}\text{Tc}^m$.

2.2.3. $^{100}\text{Mo}(\alpha, p)^{103}\text{Tc}$

Die Halbwertszeit des ^{103}Tc von 50 s ist sehr kurz. Das Ausschleusen der Targets mit Hilfe der Rohrpost ermöglichte jedoch, die bestrahlten Proben bereits 60 sec nach Bestrahlungsende, also nach etwas mehr als einer Halbwertszeit des ^{103}Tc zu messen. Bei Versuchen mit natürlichem Mo konnte im untersuchten Energiebereich von 10-35 MeV das gewünschte ^{103}Tc nicht nachgewiesen werden.

Erst mit Targets aus angereichertem ^{100}Mo des Flächengewichts 20 mg/cm^2 konnte soviel Aktivität des ^{103}Tc erzeugt werden, daß sich dessen intensivste γ -Linie von 136 keV deutlich vom Comptonuntergrund abhob.

Die gefundenen Peaks sind jedoch sehr schwach. Die aus dem Peakintegral bestimmten Aktivitäten weisen deshalb große Fehler auf, so daß damit die Berechnung der Anregungsfunktion nicht sinnvoll erschien. Um jedoch eine Abschätzung für den maximalen Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion zu geben, wurde für die α -Energie von $24 \pm 1 \text{ MeV}$, bei welcher die höchste Zählrate gemessen wurde, der Wirkungsquerschnitt ermittelt. Er errechnete sich für einen angenommenen γ -Verzweigungsanteil von $1,0$ zu $\sigma_{\text{max}} \approx 500 \text{ } \mu\text{b}$.

Im Zerfallsschema nach Hein (14) fehlen Angaben über die prozentualen Anteile der Zerfälle, die zu den einzelnen Niveaus führen. Um sicher zu sein, daß nicht ein großer Teil der Zerfälle des ^{103}Tc direkt zum Grundzustand führt und deshalb durch eine γ -Messung nicht erfaßt wird, wurde das Nuklid auch durch seine β^- -Strahlung nachgewiesen. Das bestrahlte Mo-Pulver wurde von der Al-Verpackung getrennt und die β^- -Abfallskurve mit einem Methan-Durchflußzähler gemessen. Der Untergrund des ebenfalls gebildeten ^{102}Tc und ^{101}Tc ist bei der Teilchenenergie von 24 MeV bereits sehr hoch. Deshalb konnte die schwache 50 sec Komponente des ^{103}Tc nur ungenau bestimmt werden. Mit ihr läßt sich der Wirkungsquerschnitt zu $\sigma_{\text{max}} < 1 \text{ mb}$ abschätzen.

2.2.4. $^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{93}\text{Tc}^{\text{m,g}}$

Das Nuklid $^{93}\text{Tc}^{\text{m,g}}$ wird nicht nur direkt über die Reaktion $^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)$ gebildet, sondern auch als Tochter des gleichzeitig über die Reaktion $^{92}\text{Mo}(\alpha, 3n)$ erzeugten ^{93}Ru . Es mußte deshalb geprüft werden, welchen Anteil die Tochteraktivität des ^{93}Ru an der gemessenen Summenaktivität hat. Dazu wurde bei der α -Energie von 42 MeV , für die der maximale Wirkungsquerschnitt der $(\alpha, 3n)$ -Reaktion zu erwarten ist, natürliches Mo mit Hilfe der Rohrpost bestrahlt. Die Probe konnte 60 sec nach Bestrahlungsende gemessen werden.

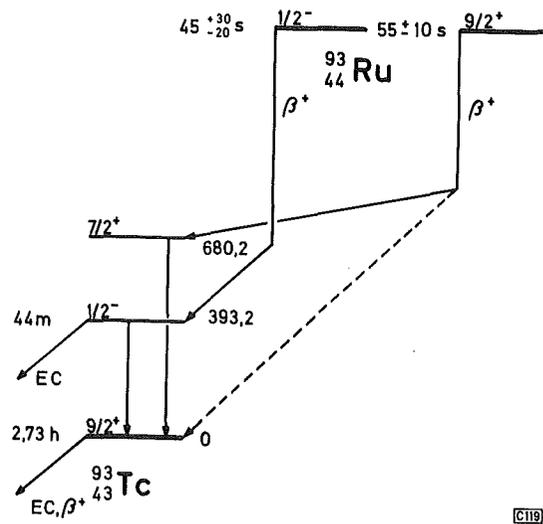


Abb. 4: Zerfallsschema des ^{93}Ru nach Doron (22)

Nach Doron (22) werden Grund- und Isomerenzustand des ^{93}Tc von je einem der beiden kurzlebigen ^{93}Ru populiert (Abb. 4). Demzufolge sollte man beim Zerfall sowohl des 44 min-Isomers als auch des 2,7 h-Grundzustandes des ^{93}Tc einen Aktivitätsanstieg beobachten, der jeweils der Nachbildung aus $^{93}\text{Ru}^m$ bzw. $^{93}\text{Ru}^g$ entspricht. Es konnte jedoch nur der Aktivitätsanstieg des $^{93}\text{Tc}^g$ beobachtet werden, der durch den Isomerenübergang verursacht wird. Deshalb kann angenommen werden, daß die Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{92}\text{Mo}(\alpha, 3n)^{93}\text{Ru}$ klein sind und die Tochteraktivität des ^{93}Ru bei der Bestimmung der $^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{93}\text{Tc}^{m+g}$ Anregungsfunktionen vernachlässigt werden kann.

2.2.5. $^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{95}\text{Tc}$ und $^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)^{95}\text{Ru}$

Erzeugt man durch α -Beschluß von $\text{Cu}^{94}\text{MoO}_4$ die langlebigen Nuklide $^{95}\text{Tc}^m$, $^{95}\text{Tc}^g$ und ^{68}Ga mit gut meßbarer Aktivität, so ist es nicht möglich, gleichzeitig auch die Nuklide kurzer Halbwertszeiten, insbesondere das 1,65 h- ^{95}Ru , zu messen. Denn letzteres hätte dann eine sehr hohe Aktivität und verursacht große Totzeiten des Detektors. Deshalb mußte vor Beginn der Messung eine Abklingzeit von etwa einem Tag eingeschoben werden. Nach dieser Zeit ist aber bereits alles ^{95}Ru und $^{95}\text{Tc}^g$ zerfallen, weshalb der Anteil der

^{95}Ru -Tochter an der $^{95}\text{Tc}^g$ -Aktivität nicht bestimmt werden konnte. Demzufolge wurden zunächst nur die kumulativen Wirkungsquerschnitte für die Bildung des $^{95}\text{Tc}^g$ ermittelt. Hierfür wurde die $^{65}\text{Cu}(\alpha, 2n)^{68}\text{Ga}$ -Anregungsfunktion als Monitor verwendet. Die so erhaltene Anregungsfunktion diente dann als Monitoranregungsfunktion für weitere Versuche, in denen das getrennte Isotop ^{94}Mo allein bestrahlt wurde. Hier wurde die Bestrahlungszeit kurz gewählt. Sofort nach Bestrahlungsende wurde das ^{95}Ru gemessen. Nachdem ^{95}Ru ganz zu $^{95}\text{Tc}^g$ zerfallen war, wurde dessen 20 h-Abfall verfolgt (Monitor). Aus dem 1,65 h- ^{95}Ru -Abfall konnte mit der kumulativen 20 h-Monitor-Aktivität die Anregungsfunktion der Reaktion $^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)^{95}\text{Ru}$ bestimmt werden. Aus der Differenz dieser beiden Aktivitäten unter Verwendung der entsprechenden Batemann Gleichung (20), wurden die Wirkungsquerschnitte für die $(\alpha, p2n)$ -Reaktion berechnet.

2.3. Fehlerbetrachtung

Die Fehler bei der Berechnung absoluter Wirkungsquerschnitte setzen sich im wesentlichen zusammen aus dem Meßfehler des integrierten Stromes, Schwankungen in der Targetdicke, Ungenauigkeiten für den absoluten Photopeak-Wirkungsgrad und dem Fehler der gemessenen Zählrate. Da bei Bestrahlungen von Folien sich Targetdicke und die vom Target aufgenommene Ladung sehr genau bestimmen lassen, können die Fehler der berechneten Wirkungsquerschnitte sehr klein gehalten werden. Zeigt zudem die Abfallskurve der ausgewerteten γ -Peaks nur eine Komponente, so läßt sich die Anfangszählrate aus der Mittelung mehrerer Meßpunkte mit guter Genauigkeit bestimmen. In diesen Fällen wurde aus den einzelnen Fehlern ein mittlerer quadratischer Fehler von 10 % abgeschätzt. Der Fehler für die σ -Werte erhöht sich jedoch auf etwa 15 % in jenen Fällen, in denen komplexe Abfallskurven graphisch oder rechnerisch in die einzelnen Komponenten zerlegt werden. Noch größere Ungenauigkeiten können sich dort ergeben, wo kleinere Zählraten von wesentlich größeren Zählraten abgezogen werden und mit ersteren die σ -Werte errechnet werden.

Die Foliendickenmessung und die direkte Strommessung lassen sich mittels eines Monitors (vgl. 2.1.) umgehen. In die Berechnung der Wirkungsquerschnitte geht bei dieser Methode jedoch direkt der Fehler der σ -Werte der Monitoranregungsfunktion ($\pm 10\%$) ein. Die Unsicherheit der so bestimmten Wirkungsquerschnitte lässt sich kleiner 18 % abschätzen.

Bei diesen Abschätzungen für die Fehler der Wirkungsquerschnitte wurden Fehler der Zerfallsdaten der entsprechenden Nuklide nicht berücksichtigt.

Die abgeschätzten Fehler für die Anregungsfunktionen sind in Tab. 5 angegeben.

Tab. 5: Geschätzte Fehler der gemessenen Anregungsfunktionen

Reaktion	(α, n)			$(\alpha, 2n)$		$(\alpha, 3n)$	(α, p)		
Tg-Kern*	^{92}Mo	^{94}Mo	^{100}Mo	^{92}Mo	^{95}Mo	^{94}Mo	^{92}Mo	^{92}Mo	^{98}Mo
Pr-Kern	^{95}Ru	^{97}Ru	^{103}Ru	^{94}Ru	^{97}Ru	^{95}Ru	$^{95}\text{Tc}^g$	$^{95}\text{Tc}^m$	^{101}Tc
Fehler [%]	± 10	± 18	± 10	± 10	± 18	± 20	± 15	± 10	± 15

Reaktion	(α, pn)				$(\alpha, p2n)$					
Tg-Kern*	^{92}Mo	^{92}Mo	^{94}Mo	^{100}Mo	^{92}Mo	^{92}Mo	^{94}Mo	^{94}Mo	^{95}Mo	^{100}Mo
Pr-Kern	$^{94}\text{Tc}^g$	$^{94}\text{Tc}^m$	^{96}Tc	$^{102}\text{Tc}^m$	$^{93}\text{Tc}^g$	$^{93}\text{Tc}^m$	$^{95}\text{Tc}^g$	$^{95}\text{Tc}^m$	^{96}Tc	^{101}Tc
Fehler [%]	± 10	± 20	± 18	± 10	± 15	± 20	± 25	± 18	± 18	± 15

* Tg = Targetkern

Pr = Produktkern

2.4. Numerische Werte für die Wirkungsquerschnitte

In den folgenden Tabellen sind die numerischen Werte der gemessenen Wirkungsquerschnitte angegeben.

Die entsprechenden Anregungsfunktionen sind in den Abbildungen 6 - 10 dargestellt.

Reaktion	(α,n)			Reaktion	(α,2n)		Reaktion	(α,3n)	
	Tg-Kern Pr-Kern	⁹² Mo ⁹⁵ Ru	⁹⁴ Mo ⁹⁷ Ru		¹⁰⁰ Mo ¹⁰³ Ru	Tg-Kern Pr-Kern		⁹² Mo ⁹⁴ Ru	⁹⁵ Mo ⁹⁷ Ru
E _α =10,8									
12,0	6,0	11	64						
13,0			87						
14,0	58	96							
15,0			89						
15,6	246								
16,0		470							
17,0	443	686	75						
18,0	532	702							
18,8			56	E _α =18,4		125			
20,0	574	654		19,0	4				
20,5			43	20,0	18				
21,0	554			20,4	25				
22,5			30	20,6		430			
23,2	332			21,0	37				
23,6		400		21,6		665			
24,8			24	22,0	82				
26,0	143			23,2	152				
26,8		160		23,4	177				
27,0	104			24,8		1085			
28,1			18	26,0	324				
28,7	68			27,0	394				
29,7		86		28,0	382	1293	E _α =29,8	8	
30,0	50		15	30,0	397		33,0	41	
33,0		56		31,0		1050	36,0	173	
36,0		39		33,0	322		39,0	544	
39,0		31		33,9		700	42,0	514	
42,0		25		34,3	316		45,0	451	
46,0		22		35,0	262		48,0	397	
50,0		20		36,1		392	51,0	332	
56,0		17		37,0	205		55,0	221	
59,0		12		38,0	162	267	59,0	120	
				41,0	87	162			
				44,0		120			
				48,0		83			
				52,0		67			
				56,0		45			
				60,0		37			

*) Tg = Target
Pr = Produkt

Reaktion	(α,p)			Reaktion	(α,pn)				
	Tg-Kern Pr-Kern	$^{92}_{95}\text{Mo}$ $^{92}_{95}\text{Tc}^g$	$^{92}_{95}\text{Mo}$ $^{92}_{95}\text{Tc}^m$		$^{98}_{101}\text{Mo}$ $^{98}_{101}\text{Tc}$	Tg-Kern Pr-Kern	$^{92}_{94}\text{Mo}$ $^{92}_{94}\text{Tc}^g$	$^{92}_{94}\text{Mo}$ $^{92}_{94}\text{Tc}^m$	$^{94}_{96}\text{Mo}$ $^{94}_{96}\text{Tc}$
$E_\alpha = 12,0$	0,9								
13,0		1							
14,0	8	3							
15,0		11							
17,0	90	28	0,5						
18,0		29	1,5	$E_\alpha = 18,0$	2				
18,8		32		19,0	7				
20,0	212		8	20,0	29	4,8			
20,4		30		20,6			4		
21,0			10	22,0	107				
22,0		26	12	23,2	191	24		0,8	
22,5		25		23,7			48		
23,0	195			25,0				6,8	
24,0			14	25,8				8,4	
24,8		17		26,0	340			11	
26,0	111		14	26,8			122		
27,0	81			27,0	401	44		17	
28,0		9	13	28,0				20	
30,0			11	30,0	520	44	237	27	
31,5		5		33,0	527	34	280	36	
32,0			9	35,0	462			32	
34,0			7	36,1			240		
36,0			5	37,0	365	17		31	
38,0			3,5	38,0	354			32	
				39,1			169	30	
				41,0	211			28	
				42,0	180		129		
				44,0				23	
				47,0			105	17	
				50,0			82		
				56,0			70		
				59,0			54		

Reaktion	(α,p2n)						Reaktion	Monitor (α,2n)
	Tg-Kern Pr-Kern	⁹² Mo ⁹³ Tc _g	⁹² Mo _m ⁹³ Tc _m	⁹⁴ Mo ⁹⁵ Tc _g	⁹⁴ Mo _m ⁹⁵ Tc _m	⁹⁵ Mo ⁹⁶ Tc		
							E _α =18,4	20
							21,8	480
							24	750
E _α =25,8						8	26,7	897
26,1	27						29,0	840
26,8						11	30,8	755
27,9					3,3	16	33,0	615
29,8			14,0				36,0	438
30,0		1,7				25	38,0	309
30,2	40						43,0	145
31,4					18	31	46,1	108
33,0	112	6,4	37,0			45	52,0	63
34,0				4,2	50		60,0	41
34,5		8,7				57		
35,0	212							
36,0			108	14,0	139	75		
37,0	351	17						
38,0		22			240	128		
39,0			320	41				
40,0	550							
40,2		25				130		
41,0	610	24			323			
42,0			445					
42,1				45				
43,2						145		
44,0	628	21			358			
45,0			475					
46,0								
46,2						154		
47,0	630	16		46				
48,0			520		322			
50,0	571	12,5		39		129		
51,0			545					
52,0					254			
55,0	410	9,5	525			140		
56,0				14,5	180			
60,0					138			

3. Theoretischer Teil

Im nun folgenden Teil sollen die gemessenen Anregungsfunktionen diskutiert und die Reaktionen gleichen Typs miteinander verglichen werden. Außerdem soll gezeigt werden, wie die gemessenen maximalen Wirkungsquerschnitte als eine der charakteristischen Größen von Anregungsfunktionen einerseits mit der Systematik, andererseits mit der Theorie übereinstimmen. Deshalb wird in den Kap. 3.1 bis 3.3 zunächst die Systematik kurz beschrieben und der Rechengang bei der Ermittlung der Anregungsfunktionen nach dem statistischen Modell erläutert:

3.1. Teilchenemissionswahrscheinlichkeiten eines Compoundkerns

Für die Protonen- bzw. Neutronenemissionswahrscheinlichkeit kann man vereinfacht schreiben:

$$W_n = \frac{\Gamma_n}{\Gamma_n + \Gamma_p} = \frac{\Gamma_n/\Gamma_p}{1 + \Gamma_n/\Gamma_p} \quad (9)$$

$$W_p = 1 - W_n \quad (10)$$

W_n = relative Emissionswahrscheinlichkeit für Neutronen

Γ_n = Neutronen-Emissionswahrscheinlichkeit

Γ_p = Protonen-Emissionswahrscheinlichkeit

W_p = relative Emissionswahrscheinlichkeit für Protonen

Bei diesen Gleichungen wurde angenommen, daß nur Neutronen und Protonen emittiert werden und die Emissionswahrscheinlichkeit für andere Teilchen wie z.B. ^4He , ^3He und d vernachlässigt werden kann. Diese Annahme wird von Dostrovsky (23) bestätigt.

Zur Berechnung der Neutronen- bzw. Protonenemissionswahrscheinlichkeit wurde von Weißkopf (24) eine Gleichung angegeben. Unter Einführung einiger Näherungen wurde von Röhms (2) folgender Ausdruck für das Verhältnis beider Emissionswahrscheinlichkeiten abgeleitet:

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_p} = \exp(\chi) \quad (11)$$

χ ist gegeben durch:

$$\chi = \sqrt{\frac{a}{E_{CN}^*}} \cdot (BE_p + CB_p - BE_N - \delta) \quad (12)$$

- a = Niveaudichteparameter
- E_{CN}^* = Anregungsenergie des Compoundkerns
- BE_p = Bindungsenergie des letzten Protons
- BE_N = Bindungsenergie des letzten Neutrons
- CB_p = Coulombschwelle für p-Emission
- δ = Paarungsenergieterm

Setzt man Gl. 11 in Gl. 9 ein, so errechnet sich die Neutronenemissionswahrscheinlichkeit zu:

$$W_n = \frac{\exp(\chi)}{1 + \exp(\chi)} \quad (13)$$

Für die Protonenemissionswahrscheinlichkeit kann mit Gl. 10 dann geschrieben werden:

$$W_p = \frac{1}{1 + \exp(\chi)} \quad (14)$$

Man sieht aus Gl. 13 und Gl. 14, daß die Emissionswahrscheinlichkeiten nur noch von der Größe χ , also im wesentlichen von der Bindungsenergie des letzten Neutrons und Protons sowie der Coulombschwelle abhängen. Die einzelnen Größen in Gl. 12 wurden folgendermaßen errechnet:

Die Variablen BE_p und BE_n wurden mit Hilfe der Massenexzesse (21) berechnet. Die Coulombschwelle für Protonen wurde unter Verwendung der klassischen Formel und des Wertes $r_0 = 1,4$ fm bestimmt. Die Größe E_{CN}^* stellt in den folgenden Betrachtungen die Anregungsenergie des Compoundkerns an der Stelle des Maximums der betrachteten Anregungsfunktion dar. Sie errechnet sich als die Summe der Energie des α -Teilchens im Schwerpunktsystem an der Stelle des Maximums und der Bindungsenergie dieses Teilchens im Targetkern.

Die Größe des Niveaudichteparameters ist mit großen Unsicherheiten behaftet, so daß sie in vielen Fällen als adjustierbare Größe betrachtet wurde. Experimentell bestimmte Werte für a in Abhängigkeit von der Nukleonenzahl (25) zeigten, daß der allgemeine Verlauf

etwa $A/10$ entspricht. Dieser Wert wurde bei den folgenden Berechnungen verwendet. Weiter mußte berücksichtigt werden, daß die Niveaudichte noch davon abhängt, ob die Neutronen- bzw. Protonenzahl der bei der Reaktion entstehenden Produktkerne geradzahlig oder ungeradzahlig sind. Der Paarungsenergieterm δ korrigiert die Niveaudichte derart, daß die Anregungsenergie in der Niveaudichteformel (2) für einen fiktiven Grundzustand berechnet wird, welcher um die Paarungsenergie höher bzw. niedriger liegt, je nach dem ob es sich um einen gg- oder uu-Kern handelt. Für δ gilt nach (26):

$$\begin{aligned} \delta &= 0 \text{ für } u, g\text{- und } g, u\text{-Produktkerne} \\ \delta &= \pm \text{const}/A^{1/2} \text{ für } g, g\text{- bzw. } u, u\text{-Produktkerne} \end{aligned}$$

3.2. Die Systematik

Die Arbeiten von Röhms (2) und Münzel (6) liefern ein Verfahren, unbekannte Wirkungsquerschnitte für Reaktionen des Typs $(, xn)$ mit guter Näherung abzuschätzen. Diese Systematik basiert auf dem Parameter α . Wie in 3.1 gezeigt wurde, sollte die Neutronen- bzw. Protonenemissionswahrscheinlichkeit nur von dieser Größe abhängen. Da α wesentliche Eigenschaften der Targetkerne erfaßt, wurde die Abhängigkeit der maximalen Wirkungsquerschnitte von diesem Parameter untersucht. Dazu wurde von den Autoren einer großen Zahl veröffentlichter Anregungsfunktionen der maximale Wirkungsquerschnitt entnommen und über dem entsprechenden Wert α für das Maximum der betrachteten Anregungsfunktion aufgetragen. Durch die so erhaltenen Punkte wurde visuell eine Kurve gelegt. Von dieser glatten Kurve weichen die experimentellen Werte für den maximalen Wirkungsquerschnitt um $\pm 30\%$ ab.

In ähnlicher Weise konnte auch die Lage des Maximums und die Halbwertsbreite der gemessenen Kurven systematisch erfaßt werden.

3.3. Berechnung der Anregungsfunktionen

Um die experimentell gewonnenen Ergebnisse mit der Theorie vergleichen zu können, wurden die Anregungsfunktionen auch berechnet. Dazu wurde ein Computerprogramm von Blann (27) verwendet, welches mit Hilfe des statistischen Modells die relative Emissionswahrscheinlichkeit für Neutronen, Protonen und α -Teilchen berechnet.

Das Rechenprogramm basiert auf der Formel nach Weißkopf (24) für die Berechnung der Emissionswahrscheinlichkeiten.

Bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte wird angenommen, daß die Reaktionen für alle Anregungsenergien über den Compoundkernmechanismus ablaufen.

Blann (28) zeigte, daß mit steigender Anregungsenergie ein Teil der angeregten Kerne bereits vor Erreichen des Energiegleichgewichtes Nukleonen verdampft. Dieser Anteil liegt jedoch für Mo bis zu Anregungsenergien von 40 MeV unter 10 % und wurde deshalb nicht berücksichtigt.

Bei der Durchführung der Rechnungen wurde als Eingabegröße für den Niveaudichteparameter $A/10$ gewählt (vgl. 3.1). Außerdem müssen die relativen Nukleonenverdampfungswahrscheinlichkeiten nach dem statistischen Modell mit dem Bildungsquerschnitt für den Compoundkern multipliziert werden. Für letzteren wird in der Literatur allgemein Gl. 15 angegeben.

$$\sigma_c = \pi R^2 \left(1 - \frac{E_{\text{Coul}}}{E_{\text{Kin}}} \right) \quad (15)$$

σ_c = Bildungsquerschnitt für den Compoundkern
 E_{Coul} = Coulombschwelle
 E_{Kin} = Projektilenergie
 R = Kernradius

$$R = r_0 \cdot A^{1/3} \quad (16)$$

A = Nukleonenzahl

Experimentell erhält man den Bildungsquerschnitt für den Compoundkern dadurch, daß man für einen gegebenen Targetkern und gegebenes Projektil die Summe der Wirkungsquerschnitte aller möglichen Reaktionen bildet. Die Teilchenemissionswahrscheinlichkeit hat für diese Summe den Wert 1.

Bei schweren Kernen wird σ_c praktisch durch den Spaltquerschnitt wiedergegeben, da gegenüber der Spaltung andere Reaktionen vernachlässigt werden können.

Mit Gl. 15 errechnet sich ein zu flacher Anstieg von σ_c mit steigender Projektilenergie, wie der Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen zeigt.

Wie in Abb. 5 am Beispiel von α -Teilchenreaktionen mit ^{30}Zn und ^{239}Pu zu sehen ist, wird die Abhängigkeit von σ_c von der Projektilenergie wesentlich besser durch Gl. 17 beschrieben:

$$\sigma_c = \pi R^2 \operatorname{th}\left(\frac{E_{\text{Kin}}}{E_{\text{Coul}}} - 1\right) \quad (17)$$

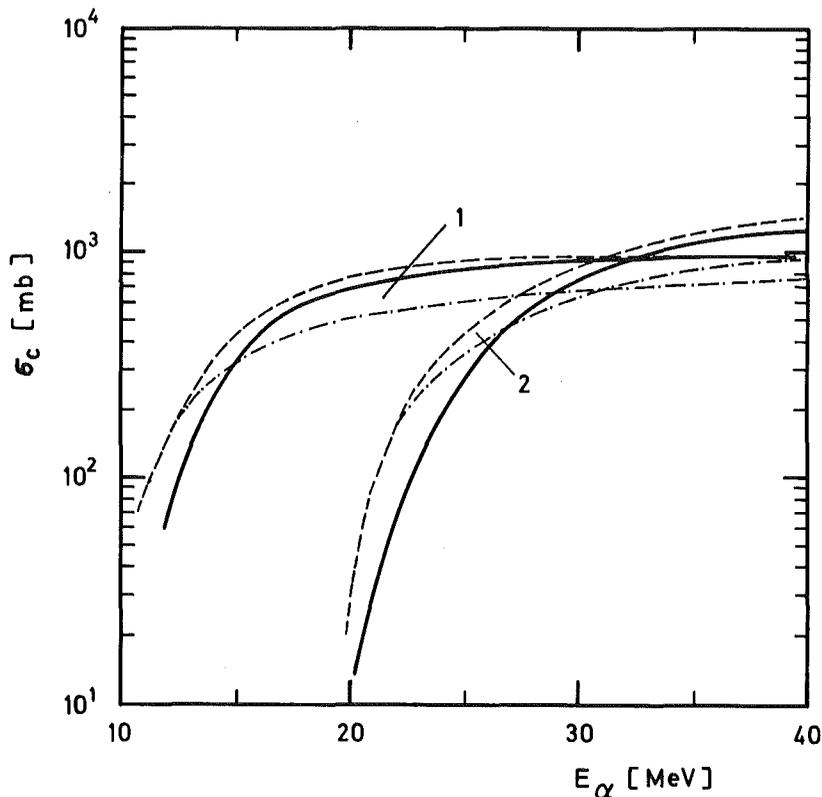


Abb. 5: Vergleich des experimentellen Bildungsquerschnitts für den Compoundkern (—) mit den Näherungen nach Gl. 15 (-.-.-.-) und Gl. 17 (-----). Kurven 1: $^{30}\text{Zn}(\alpha, \dots)$, Kurven 2: $^{239}\text{Pu}(\alpha, f)$

Mit dieser Näherung wurden die theoretischen absoluten Wirkungsquerschnitte berechnet. Dabei wurde der geometrische Querschnitt mit dem Wert $r_0 = 1,4$ fm bestimmt. Für die Coulombschwellen in Gl. 15 und Gl. 17 wurde nicht der klassisch errechnete Wert eingesetzt, denn dieser gibt, wie in 3.4 gezeigt wird, den realen Reaktionsbeginn nicht gut wieder. Als effektive Coulombschwelle

wurde deshalb der Wert 10 MeV angenommen. Dieser Wert entspricht dem mittleren Reaktionsbeginn der (α, n) -Reaktionen an Mo.

3.4. Diskussion der gemessenen Anregungsfunktionen

Die Coulombschwelle innerhalb der stabilen Mo-Isotopenreihe ändert sich nur geringfügig, da die Ladungszahl konstant ist und die Nukleonenzahl nur wenig ansteigt. Für α -Teilchen errechnet sich nach der klassischen Formel ($r_0 = 1,4$ fm) die Coulombschwelle im Laborsystem zu 14,6 MeV für das neutronenarme ^{92}Mo und zu 14,3 MeV für das neutronenreichste stabile Isotop ^{100}Mo . Wie aus Tab. 3 zu entnehmen ist, sind die Schwellenenergien aller Kernreaktionen, bei denen mehr als ein Teilchen emittiert wird, größer oder etwa gleich der Coulombschwelle. Daraus folgt, daß der Reaktionsbeginn für diese Reaktionen vom Coulombwall unbeeinflusst bleibt und in erster Näherung durch die Schwellenenergie der Reaktion bestimmt wird. Die (α, n) - bzw. (α, p) -Reaktionen sind energetisch zwar bereits unterhalb der Coulombschwelle möglich, es ist aber zu erwarten, daß für diese Reaktionen allein der Coulombwall für die niederenergetische Flanke der Anregungsfunktionen verantwortlich ist.

3.4.1. (α, n) -Anregungsfunktionen

Wie in Abb. 6 zu sehen ist, beginnen alle 3 radiochemisch bestimmbaren Mo (α, n) -Anregungsfunktionen bereits unterhalb der oben angegebenen Energie für die Coulombschwelle. Münzel (6) konnte zeigen, daß die effektiven Coulombschwellen generell kleiner sind als jene, die sich mit $r_0 = 1,4$ fm nach der klassischen Formel errechnen, und daß sie in erster Näherung linear von der Kernladungszahl Z abhängen ($E_{\text{Coul eff}} \sim 0,2 Z$ [MeV] für α -Teilchen). Dies läßt sich möglicherweise damit erklären, daß in der entsprechenden Formel zu kleine Kernradien gewählt wurden. Zudem ist ein Tunneln der Projektile durch den Coulombwall zu erwarten, was ebenfalls die Reaktionsschwelle erniedrigt.

Mit einem Wert $r_0 = 1,7$ fm stimmen die klassisch errechneten Coulombschwellen gut mit den experimentellen Werten für den Beginn der Reaktionen $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)$ und $^{94}\text{Mo}(\alpha, n)$ überein, nicht jedoch für die $^{100}\text{Mo}(\alpha, n)$ -Reaktion. Für letztere wäre ein Wert von 2,1 fm in die Formel zur Berechnung der Coulombschwelle einzusetzen,

ein Wert, der extrem hoch liegt.

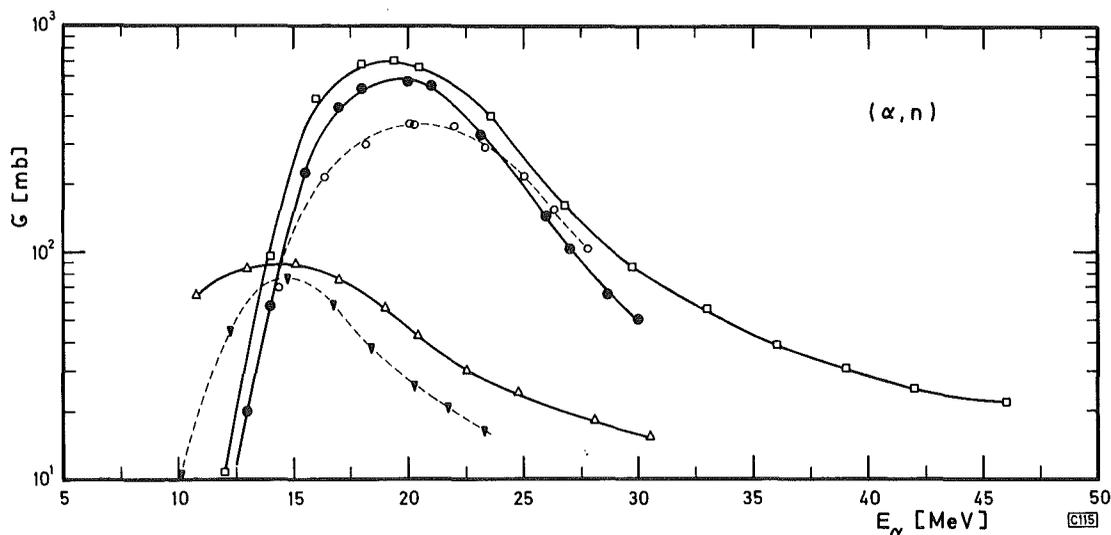


Abb. 6: Experimentell bestimmte Anregungsfunktionen für Mo(α, n)-

- Reaktionen.
- | | | | | |
|-----|---|-------|---|------|
| ●—● | $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)^{95}\text{Ru}$ | ○---○ | $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)^{95}\text{Ru}$ | (29) |
| □—□ | $^{94}\text{Mo}(\alpha, n)^{97}\text{Ru}$ | ▼---▼ | $^{100}\text{Mo}(\alpha, n)^{103}\text{Ru}$ | (29) |
| △—△ | $^{100}\text{Mo}(\alpha, n)^{103}\text{Ru}$ | | | |

Das gut ausgeprägte Maximum der Anregungsfunktionen $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)$ und $^{94}\text{Mo}(\alpha, n)$ sowie der gesamte Kurvenverlauf unterstützen die Annahme, daß im gemessenen Energiebereich die Reaktionen hauptsächlich über die Bildung eines Compoundkerns ablaufen.

Das Maximum der $^{100}\text{Mo}(\alpha, n)$ -Anregungsfunktion verläuft wesentlich flacher als das der beiden anderen Kurven. Zudem ist der maximale Wirkungsquerschnitt dieser Anregungsfunktion beträchtlich kleiner. Das ist zweifellos nicht darauf zurückzuführen, daß die Protonenemission als Konkurrenzreaktion auftritt, da für sie nur ein maximaler Wirkungsquerschnitt von etwa 1 mb ermittelt wurde (vgl. 2.2.3). Dagegen kann die $^{100}\text{Mo}(\alpha, 2n)$ -Reaktion eine Konkurrenzreaktion darstellen, da sie bereits bei einer Energie von etwa 11 MeV möglich ist.

In Abb. 6 sind zum Vergleich als gestrichelte Kurven die Ergebnisse von Esterlund (29) eingetragen. Die Übereinstimmung der maximalen Wirkungsquerschnitte der $^{100}\text{Mo}(\alpha, n)$ -Reaktion ist gut. Die geringen Abweichungen liegen innerhalb der Fehlergrenzen.

Die relativ großen Unterschiede der σ_{\max} -Werte der $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)$ Reaktionen sind darauf zurückzuführen, daß zur Berechnung der Aktivitäten verschiedene Kerndaten verwendet wurden. Werden die Ergebnisse von Esterlund entsprechend korrigiert, dann zeigen beide Kurven gute Übereinstimmung im Maximum.

3.4.2. (α, p) -Anregungsfunktionen

Die gemessenen (α, p) -Anregungsfunktionen sind in Abb. 7 dargestellt. Außerdem sind die von Esterlund (29) ermittelten Kurven gestrichelt eingetragen.

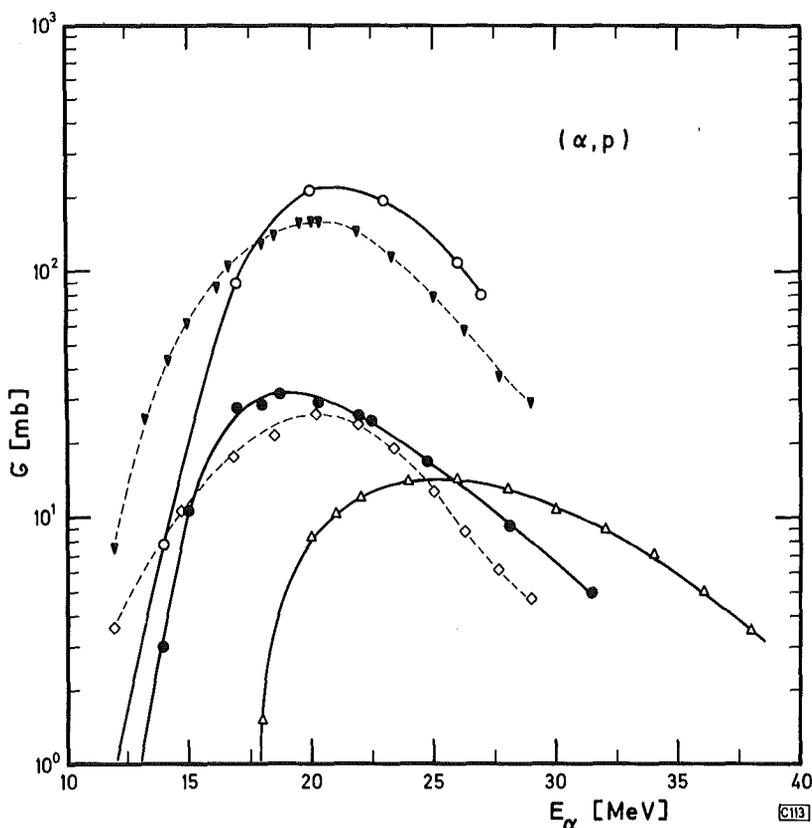


Abb. 7: Experimentell bestimmte Anregungsfunktionen für $\text{Mo}(\alpha, p)$ -Reaktionen

○—○	$^{92}\text{Mo}(\alpha, p)^{95}\text{Tc}^g$	▼---▼	$^{92}\text{Mo}(\alpha, p)^{95}\text{Tc}^g$	(29)
●—●	$^{92}\text{Mo}(\alpha, p)^{95}\text{Tc}^m$	◇---◇	$^{92}\text{Mo}(\alpha, p)^{95}\text{Tc}^m$	(29)
△—△	$^{98}\text{Mo}(\alpha, p)^{101}\text{Tc}$			

Die in dieser Arbeit gewonnenen Anregungsfunktionen der Reaktionen $^{92}\text{Mo}(\alpha, p)^{95}\text{Tc}^{g, m}$ beginnen bereits etwa 2 MeV unterhalb der theoretischen Coulombschwelle. Die effektive Coulombschwelle liegt etwa 5 MeV über der Schwellenenergie dieser Reaktion. Diese Energie entspricht etwa der Coulombschwelle für das austretende Proton. Aus dem statistischen Modell ergibt sich, daß der Einsatz der (α, p) -Reaktionen mit zunehmender Neutronenzahl der Targetkerne zu höheren Energien verschoben wird. Für ^{98}Mo gilt demzufolge, daß die Protonenemission erst oberhalb einer Projektilenergie von etwa 16 MeV möglich ist. Tatsächlich setzt die $^{98}\text{Mo}(\alpha, p)$ -Reaktion erst oberhalb dieses Wertes ein, obwohl sie energetisch bereits bei α -Teilchen-Energien von 7 MeV möglich wäre.

Für die $^{100}\text{Mo}(\alpha, p)^{103}\text{Tc}$ -Anregungsfunktion konnte wegen der kleinen Wirkungsquerschnitte nur der maximale Wirkungsquerschnitt und die Lage des Maximums bestimmt werden (vgl. 2.2.3). Das Maximum dieser Anregungsfunktion liegt bei etwa 24 MeV, also an der gleichen Stelle wie das Maximum der $^{98}\text{Mo}(\alpha, p)^{101}\text{Tc}$ -Anregungsfunktion. Da für beide Reaktionen nach dem statistischen Modell sich Reaktionsschwellen von etwa 16 bzw. 17 MeV errechnen und die Lage des Maximums beider Anregungsfunktionen etwa übereinstimmen, kann man annehmen, daß auch ihre Kurvenform ähnlich ist.

3.4.3. $(\alpha, 2n)$ - und $(\alpha, 3n)$ -Anregungsfunktionen

Mit Mo-Isotopen lassen sich radiochemisch nur zwei $(\alpha, 2n)$ -Anregungsfunktionen bestimmen. Die Form beider Kurven stimmt gut überein, weil beide Reaktionen nach dem gleichen Reaktionsmechanismus ablaufen. Der Beginn dieser Anregungsfunktionen stimmt gut mit der Schwellenenergie der betrachteten Reaktion überein.

Ein Vergleich der Kurven der $^{92}\text{Mo}(\alpha, xn)$ -Reaktionen zeigt, daß die Halbwertsbreite der Kurven mit steigendem x schnell anwächst. Die Halbwertsbreite der (α, n) - und $(\alpha, 2n)$ -Reaktion zeigt sehr gute Übereinstimmung mit dem neuesten Stand der Systematik von Anregungsfunktionen (6). Die Anregungsfunktion der Reaktion $^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)$ weist dagegen eine etwa um 3 MeV zu große Halbwertsbreite auf. Ihr maximaler Wirkungsquerschnitt von 540 mb stimmt dagegen gut mit dem mit Hilfe der Systematik abgeschätzten Wert überein.

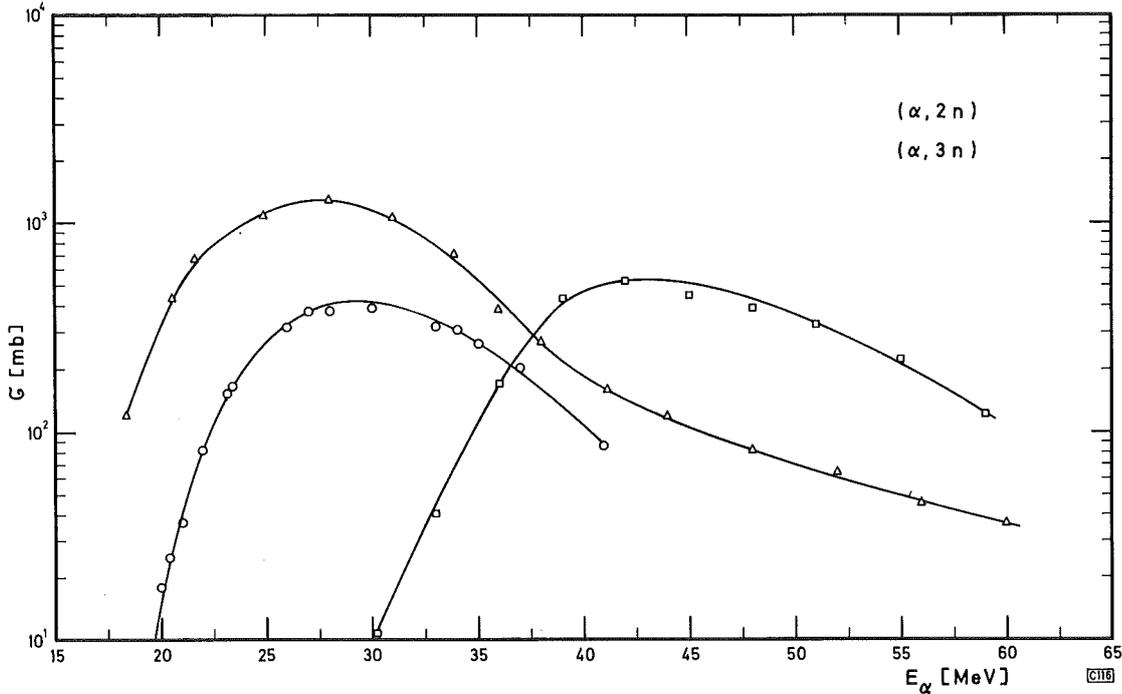


Abb. 8: Experimentell bestimmte Anregungsfunktionen für Mo(α,2n)- und Mo(α,3n)-Reaktionen

- $^{92}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{94}\text{Ru}$
- △—△ $^{95}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{97}\text{Ru}$
- $^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)^{95}\text{Ru}$

3.4.4. (α,pn)-Anregungsfunktionen

Mit Ausnahme der $^{100}\text{Mo}(\alpha, pn)^{102}\text{Tc}^m$ -Reaktion beginnen alle anderen gemessenen Anregungsfunktionen des Typs (α,pn) etwa 4 MeV oberhalb der Schwellenenergie für die entsprechende Reaktion. Diese Verschiebung des Reaktionsbeginns entspricht etwa der Coulombschwelle für das austretende Proton.

Die Anregungsfunktion $^{100}\text{Mo}(\alpha, pn)^{102}\text{Tc}^g$ konnte wegen der kurzen Halbwertszeit des $^{102}\text{Tc}^g$ ($T = 5,3$ s) nicht bestimmt werden.

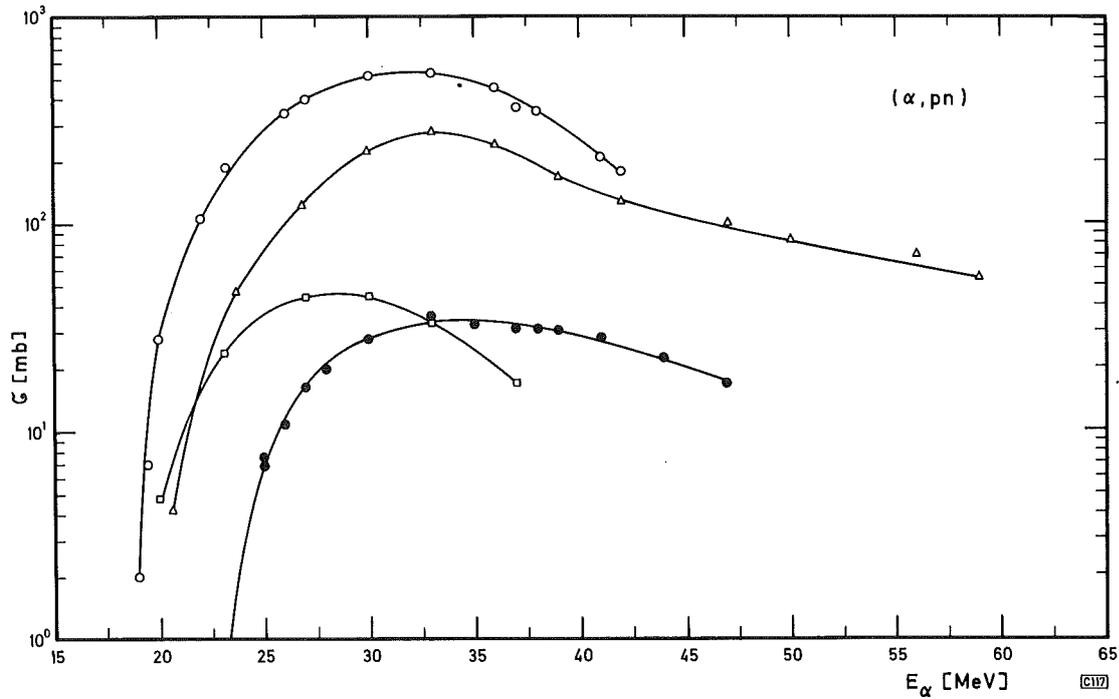
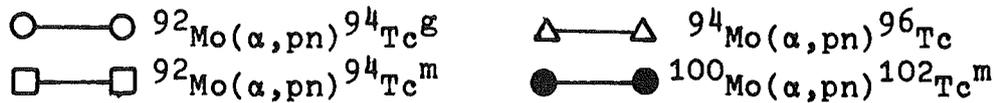


Abb. 9: Experimentell bestimmte Anregungsfunktionen für Mo(α ,pn)-Reaktionen



3.4.5. (α ,p2n)-Anregungsfunktionen

Im Vergleich zu den (α ,xn)-, (α ,p)- und (α ,pn)-Anregungsfunktionen zeigen die (α ,p2n)-Anregungsfunktionen einen flacheren Anstieg. Extrapoliert man die niederenergetischen Flanken der $^{92}\text{Mo}(\alpha, \text{p2n})^{93}\text{Tc}^g$ bzw. $^{100}\text{Mo}(\alpha, \text{p2n})^{101}\text{Tc}^m$ -Anregungsfunktionen, so ergeben sich Reaktionsbeginne, die möglicherweise unter der Reaktionsschwelle liegen. Dies könnte auf die Emission von Deuteronen zurückzuführen sein. Die Reaktionsschwelle für (α ,pd)-Reaktionen liegt um die Bindungsenergie des Deuterons von etwa 2 MeV niedriger.

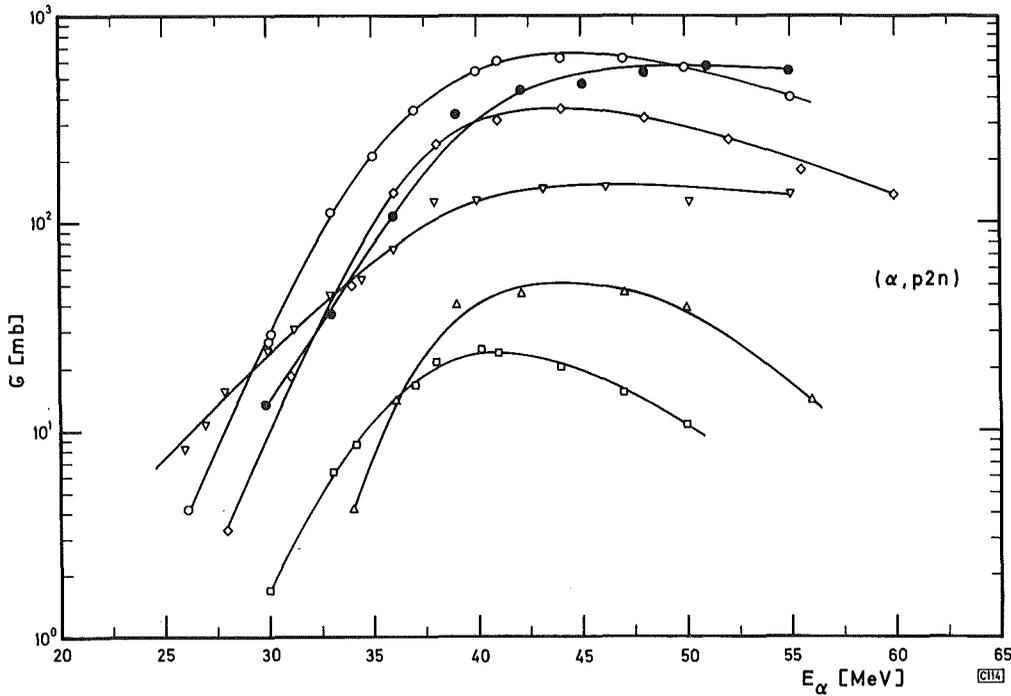


Abb. 10: Experimentell bestimmte Anregungsfunktionen für Mo(α , p2n)-Reaktionen

- | | | | |
|-----|---|-----|---|
| ○—○ | $^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{93}\text{Tc}$ | □—□ | $^{92}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{93}\text{Tc}$ |
| ●—● | $^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{95}\text{Tc}^g$ | △—△ | $^{94}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{95}\text{Tc}^m$ |
| ◇—◇ | $^{95}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{96}\text{Tc}$ | ▽—▽ | $^{100}\text{Mo}(\alpha, p2n)^{101}\text{Tc}^m$ |

3.5. Vergleich des maximalen Wirkungsquerschnitts σ_{\max} mit der Theorie und der Systematik

3.5.1. (α , n)-Reaktionen

Nach der Systematik sollten für α -Werte größer als 2 die maximalen Wirkungsquerschnitte mit steigendem α abnehmen (Abb. 11). Da innerhalb einer Isotopenreihe die Bindungsenergie des letzten Protons wächst und die Bindungsenergie des letzten Neutrons abnimmt und die Maxima der (α , n)-Reaktionen in erster Näherung bei gleicher Anregungsenergie zu finden sein sollten, wird der Wert für α zur neutronenreichen Seite hin größer. Demnach sollten auch für konstantes Z die maximalen Wirkungsquerschnitte abnehmen.

Die Messungen zeigen nicht den erwarteten Trend. Zwar stimmen die σ_{\max} -Werte für den neutronenärmsten und neutronenreichsten Targetkern sehr gut mit der Systematik überein, jedoch weicht σ_{\max} für

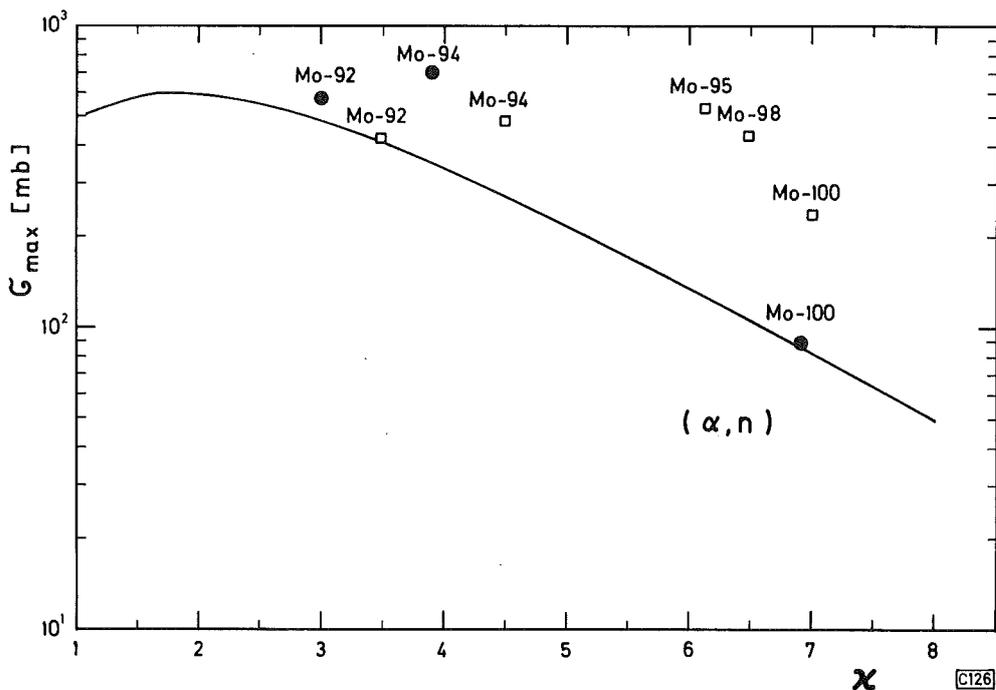


Abb. 11: x -Abhängigkeit von σ_{\max} für (α, n) -Reaktionen der Mo-Isotope
 — Systematik
 □ Theorie
 ● experimentelle Werte

die $^{94}\text{Mo}(\alpha, n)$ -Reaktion um den Faktor 2 von der Systematik ab. Beim Vergleich der Meßwerte mit der Theorie zeigt es sich, daß die Theorie den Anstieg des maximalen Wirkungsquerschnitts der $^{92}\text{Mo}(\alpha, n)$ - zur $^{94}\text{Mo}(\alpha, n)$ -Reaktion gut wiedergibt. Auch der Abfall der σ_{\max} -Werte für die (α, n) -Reaktionen mit schweren Mo-Isotopen wird durch die Theorie bestätigt. Allerdings ist die Abnahme der Wirkungsquerschnitte mit steigendem x geringer als experimentell gefunden wurde.

3.5.2. (α, p) -Reaktionen

Für die als Compoundkerne entstandenen Ru-Isotope nimmt die Bindungsenergie des letzten Protons mit steigender Neutronenzahl von 7,35 MeV für das ^{96}Ru auf 10,6 MeV für das ^{104}Ru zu (30). Demzufolge sollten die Wirkungsquerschnitte für Protonenemission für die schweren Mo-Isotope rasch abnehmen.

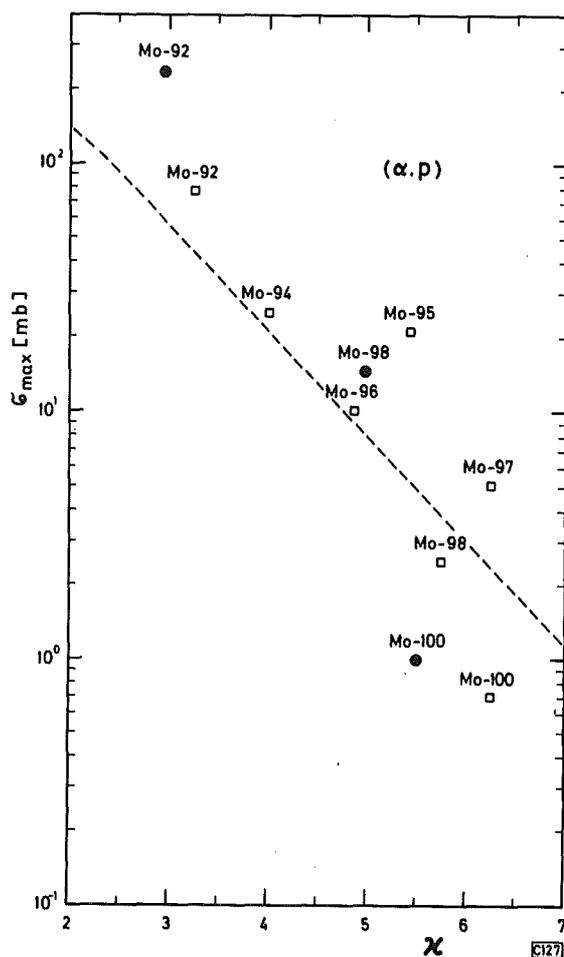


Abb. 12: Abhängigkeit der maximalen Wirkungsquerschnitte von α für (α, p) -Reaktionen
 ● gemessene Werte
 □ theoretische Werte
 --- nach Gl. 18

Sowohl die Messungen als auch die Berechnungen mit Hilfe des statistischen Modells zeigen, daß bei einer Änderung von α um nur 3 Einheiten die maximalen Wirkungsquerschnitte um 2 Größenordnungen abnehmen. Die experimentellen und berechneten σ_{\max} -Werte weichen allerdings erheblich voneinander ab. Möglicherweise wird in dem Rechenprogramm von Blann die Protonenemission dadurch unterschätzt, daß der Coulombwall für das austretende Proton zu hoch angesetzt wurde.

Nimmt man an, daß der Bildungsquerschnitt für den Compoundkern für alle Mo-Isotope konstant und gleich dem geometrischen Querschnitt (1,2 barn) ist, dann läßt sich mit Gl. 14 die α -Abhängigkeit

des maximalen Wirkungsquerschnitts näherungsweise berechnen:

$$\sigma_{\max}(\chi) = \sigma_c \frac{1}{1 + \exp(\chi)} \quad (18)$$

Diese Abhängigkeit ist in Abb. 12 als gestrichelte Kurve eingezeichnet.

Man sieht, daß mit der Näherung Gl. 18 für Mo-Isotope mit gerader Nukleonenzahl und mittlere χ -Werte gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der exakten Berechnung nach dem statistischen Modell erreicht wird. Für kleine bzw. große χ -Werte steigen die maximalen Wirkungsquerschnitte jedoch schneller an bzw. nehmen stärker ab, als durch Gl. 18 wiedergegeben wird.

3.5.3. $(\alpha, 2n)$ -Reaktionen

Nach der Systematik steigen die maximalen Wirkungsquerschnitte der $(\alpha, 2n)$ -Reaktionen bis zu einem χ -Wert von etwa 4 an und bleiben dann konstant. Diese Abhängigkeit von χ zeigen auch die berechneten Wirkungsquerschnitte für die $(\alpha, 2n)$ -Reaktionen der Mo-Isotope (Abb. 13).

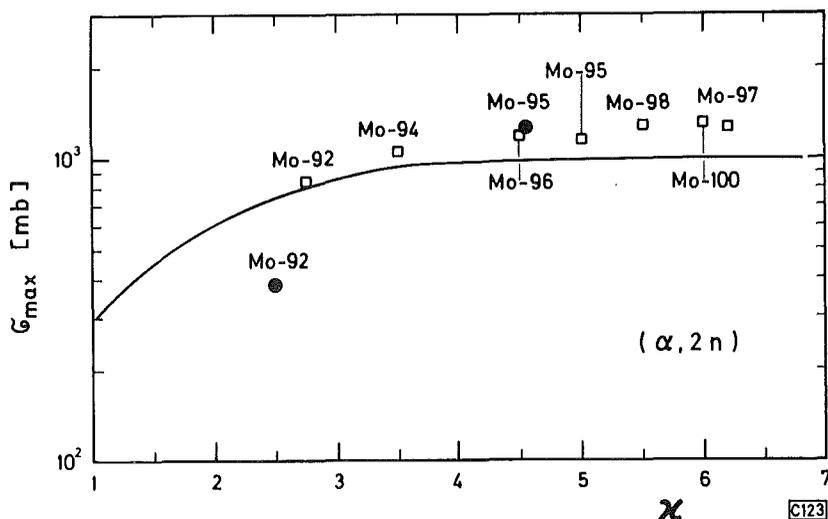


Abb. 13: χ -Abhängigkeit von σ_{\max} für die $(\alpha, 2n)$ -Reaktionen der Mo-Isotope

- Systematik
- experimentelle Werte
- Theorie

Die Übereinstimmung der theoretischen Wirkungsquerschnitte mit der Systematik ist erstaunlich gut. Weniger gute Übereinstimmung mit der Theorie und der Systematik zeigen die experimentell bestimmten σ_{\max} -Werte. Zwar weicht der maximale Wirkungsquerschnitt der $^{95}\text{Mo}(\alpha,2n)$ -Reaktion nur 20 % vom theoretischen Wert und 30 % von der Systematik ab, dagegen ist der für die Reaktion $^{92}\text{Mo}(\alpha,2n)$ gefundene Wert erheblich kleiner.

Nach der Theorie ist zu erwarten, daß die Emission zweier Neutronen häufiger ist als die eines Protons und Neutrons. Das Experiment ergibt jedoch einen kleineren maximalen Wirkungsquerschnitt für die $^{92}\text{Mo}(\alpha,2n)$ -Reaktion als für die entsprechende (α,pn) -Reaktion. Dies ist insofern überraschend, als die $(\alpha,2n)$ -Reaktion zu einem neutronenmagischen Kern führt. Als Erklärung für diesen Effekt kann man heranziehen, daß sowohl in der Berechnung der Größe α als auch in der Berechnung der Emissionswahrscheinlichkeiten nach dem statistischen Modell nur gerade - ungerade Effekte berücksichtigt wurden, der Einfluß von Schaleneffekten dabei jedoch unberücksichtigt blieb. Diesem Effekt kann man in der Rechnung dadurch begegnen, daß in der Niveaudichteformel der Paarungsenergieterm δ (vgl. 3.1.) durch ein δ_{magisch} ersetzt wird ($\delta_{\text{magisch}} > \delta$). Die kleinere Niveaudichte bewirkt eine kleinere Emissionswahrscheinlichkeit und somit kleinere Wirkungsquerschnitte für die $^{92}\text{Mo}(\alpha,2n)$ -Reaktion. Gleichzeitig ergeben sich für die Größe α kleinere Werte.

Durch diese Änderung würde die Anpassung von Experiment bzw. Theorie an die Systematik wesentlich verbessert.

3.5.4. (α,pn) -Reaktionen

Was in 3.5.2. über die (α,p) -Reaktionen gesagt wurde, gilt sinngemäß auch für die (α,pn) -Reaktionen, d.h. die Wirkungsquerschnitte sollten mit steigender Neutronenzahl der Mo-Isotope rasch abnehmen. Wirkungsquerschnitte für diesen Reaktionstyp konnten nur für geradzahlige Massenzahlen A bestimmt werden. Verbindet man die gemessenen Werte und die berechneten Werte für gerades A in Abb.14 mit je einer Geraden, so ergibt sich etwa die gleiche Neigung.

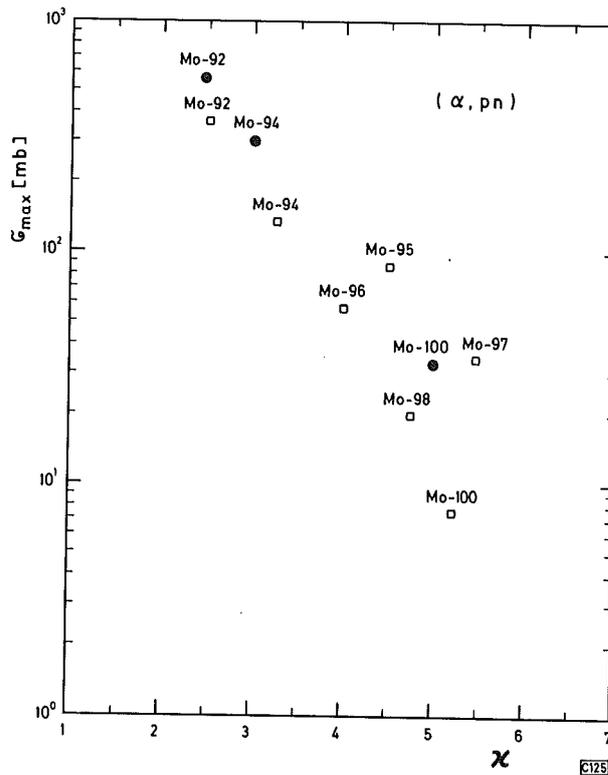


Abb. 14: χ -Abhängigkeit von σ_{\max} für (α, pn) -Reaktionen der Mo-Isotope ● experimentelle Werte, □ Theorie

Die Lage der Maxima der gemessenen und theoretisch berechneten Anregungsfunktionen stimmen für diese Reaktionen gut überein, denn die entsprechenden χ -Werte unterscheiden sich nur geringfügig.

3.5.5. $(\alpha, p2n)$ -Reaktionen

Die $(\alpha, p2n)$ -Reaktionen werden für alle Mo-Isotope gegenüber der (α, pn) -Reaktion bevorzugt. Die gemessenen maximalen Wirkungsquerschnitte nehmen mit steigendem χ langsamer ab als die gerechneten σ_{\max} -Werte.

Dies ist möglicherweise darauf zurückzuführen, daß für diesen Reaktionstyp Direktreaktionen und Pre-equilibriumemission mit der Compoundkernbildung konkurrieren. Sie werden vom statistischen Modell nicht erfaßt.

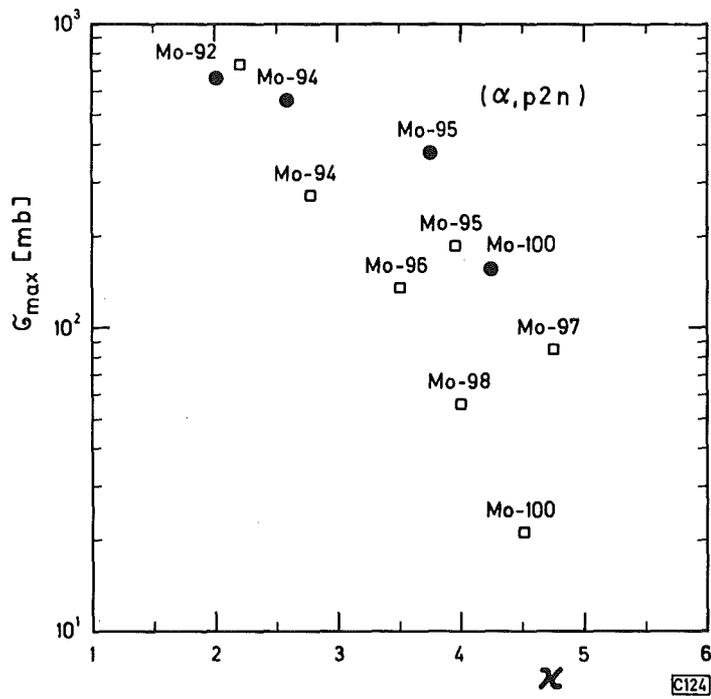


Abb. 15: χ -Abhängigkeit von σ_{\max} der $(\alpha, p2n)$ -Reaktionen für Mo-Isotope ● experimentelle Werte, □ Theorie

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden insgesamt 20 Anregungsfunktionen gemessen. Ein Vergleich einiger Ergebnisse mit bereits publizierten Daten zeigte, daß bei Verwendung gleicher Kerndaten die Übereinstimmung befriedigend ist. Um auch die $^{92}\text{Mo}(\alpha, 2n)^{94}\text{Ru}$ -Anregungsfunktion bestimmen zu können, wurden die γ -Verzweigungsanteile für das Zerfallsschema des ^{94}Ru ermittelt.

Ein Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der bis jetzt vorliegenden Systematik wurde für (α, xn) -Reaktionen am Beispiel einer charakteristischen Größe von Anregungsfunktionen, dem maximalen Wirkungsquerschnitt σ_{max} , durchgeführt.

Die Ergebnisse dieser Arbeit haben gezeigt, daß für (α, xn) -Reaktionen das Verfahren nach (6) eine gute Abschätzung unbekannter maximaler Wirkungsquerschnitte erlaubt. Weiter konnte gezeigt werden, daß die Systematik nicht auf Targetkerne nahe der Stabilitätslinie beschränkt ist, sondern einen Neutronen- bzw. Protonenüberschuß der Targetkerne berücksichtigt. Selbst innerhalb einer Isotopenreihe wird die Änderung maximaler Wirkungsquerschnitte von dem beschriebenen Verfahren gut erfaßt. Abweichungen von der Systematik sind jedoch für Reaktionen zu erwarten, deren Produktkern eine magische Neutronen- bzw. Protonenzahl aufweist.

Der Vergleich der Messungen mit der Theorie zeigte, daß die Rechnungen mit Hilfe des statistischen Modells die tatsächlichen Gegebenheiten nur grob wiedergeben. Die einfache Version des verwendeten Modells gibt zwar die allgemeinen Tendenzen zu erkennen, vermag aber Feinheiten nicht wiederzugeben.

Verbesserungen ließen sich dadurch erzielen, daß die Eingabedaten so gewählt werden, daß Experiment und Theorie bestmögliche Übereinstimmung zeigen.

Der Vergleich von Theorie und Experiment blieb in dieser Arbeit auf $\text{Mo}(\alpha, ypxn)$ -Reaktionen, ($y = 0, 1, x = 0, 1, 2, 3$) beschränkt. Um generelle Aussagen über die Verwendbarkeit theoretischer Ergebnisse machen zu können, müßte der Vergleich auf eine große Zahl publizierter Daten erweitert werden. Dies würde jedoch den Rahmen dieser Arbeit übersteigen.

Literaturverzeichnis

- (1) J. Lange und H. Münzel, Institut für Radiochemie,
Kernforschungszentrum Karlsruhe, KFK 767, Mai 1968
- (2) H.F. Röhm, Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum
Karlsruhe, KFK 1447, August 1971
- (3) C.F. Williamson, J.P. Boujot and J. Picard,
"Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements
for Charged Particles of Energy 0,05 to 500 MeV",
Report No. CEA-R 3402, Saclay (1966)
- (4) U. Jäger, Private Mitteilung
- (5) H.F. Röhm, Private Mitteilung
- (6) H. Münzel, Private Mitteilung
- (7) J.A. Pinston, E. Monnard and A. Moussa, J. de Phys. 29
(1968) 257
- (8) G.B. Vingiani, S. Monaro, R.A. Ricci and R. van Lieshout,
Nuovo Cimento 23 (1962) 729
- (9) J.H. Hamilton, K.F.G. Löbner, A.R. Sattler and R. van Lieshout,
Physica 30 (1964) 1802
- (10) G. Chilosi, E. Eichler, N.K. Aras, Nucl. Phys. A123 (1969) 326
- (11) S.K. Basu and A.P. Patro, Nucl. Phys. A171 (1971) 231
- (12) N.K. Aras, P. Fettweis, G. Chilosi, Nucl. Phys. A169 (1971) 209
- (13) H.A.M. Hussein, Zeitschrift für Physik 230 (1970) 358
- (14) W.W. Hein, IS-T-391 (1970) 45
- (15) W.H. Zoller, E.S. Macias, M.B. Perkal, W.B. Walters,
Nucl. Phys. A130 (1969) 293
- (16) G. Graeffe, Nucl. Phys. A127 (1969) 334
- (17) A. Li.-Scholz and H. Bakhru, Phys. Rev. 177 (1969) 1629

- (18) W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig und H. Münzel,
Nuklidkarte, 3. Auflage 1968
- (19) E. Eichler, G. Chilosi, N.R. Johnson, Phys. Lett. 24B (1967)
140
- (20) W. Seelmann-Eggebert, J. Flegenheimer, G. Pfennig,
KFK-117, Zweite Auflage (Juli 1965)
- (21) K. Keller, J. Lange, H. Münzel, Landolt-Börnstein,
Neue Serie Band I/5a, Q-Werte und Anregungsfunktionen von
Kernreaktionen, Springer-Verlag (1973)
- (22) T.A. Doron, W.A. Lanford, Journal of Inorganic Nuclear
Chem. 34 (1972) 443
- (23) F. Dostrovsky, P. Rabinowitz, Phys. Rev. 111 (1958) 1659
- (24) V.F. Weisskopf, Phys. Rev. 52 (1937) 295
- (25) H. Baba, Nucl. Phys. A159 (1970) 625
- (26) W.D. Myers and W.J. Swiatecky, University of California,
Lawrence Radiation Laboratory Report, UCRL-11980, May 1965
- (27) M. Blann, Computerprogramm zur Berechnung der Nukleonenver-
dampfungswahrscheinlichkeiten nach dem statistischen
Modell, private Mitteilung
- (28) M. Blann and A. Mignerey, Pre-equilibrium-decay at moderate
excitations and the hybrid model, Nucl. Phys. A186 (1972)245
- (29) R.A. Esterlund and B.D. Pate, Nucl. Phys. 69 (1965) 401
- (30) A.H. Wapstra and N.B. Gove, Nuclear Data Sheets, Vol. 9,
Nr. 4-5 (July 1971)

