

**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 5554

**Die stellaren  
Neutroneneinfang-  
querschnitte der  
radioaktiven Isotope  
 $^{155}\text{Eu}$  und  $^{163}\text{Ho}$**

**S. Jaag**  
Institut für Kernphysik

Januar 1995

---



Forschungszentrum Karlsruhe  
Technik und Umwelt  
Wissenschaftliche Berichte  
FZKA 5554

Die stellaren  
Neutroneneinfangquerschnitte  
der radioaktiven Isotope  
 $^{155}\text{Eu}$  und  $^{163}\text{Ho}$

Stefan Jaag

Institut für Kernphysik

Von der Fakultät der Universität Karlsruhe (TH) genehmigte  
Dissertation

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe  
1995

Als Manuskript gedruckt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0947-8620

# Zusammenfassung

Aufgabenstellung dieser Arbeit war es, die stellaren Neutroneneinfangquerschnitte von radioaktiven Verzweigungsisotopen auf dem s-Prozeß-Pfad mittels Aktivierungstechnik zu bestimmen sowie die entsprechenden Massengebiete hinsichtlich dieses Nukleosyntheseprozesses zu untersuchen.

Die Entscheidung fiel auf die Isotope  $^{155}\text{Eu}$  und  $^{163}\text{Ho}$ . Vorliegende Arbeit gliedert sich daher in drei Teile.

Der erste Teil der Arbeit enthält die Messungen am  $^{163}\text{Ho}$ . Eine von der ISOLDE Kollaboration zur Verfügung gestellte Mischprobe konnte mittels Röntgenfluoreszenz und Massenspektroskopie genau definiert werden. Die Bestrahlungen am Van de Graaff Beschleuniger ergaben neben dem stellaren Querschnittswert von  $^{163}\text{Ho}$

$$\langle \sigma(^{163}\text{Ho}) \rangle_{30\text{keV}} = 2125 \pm 95 \text{ mb}$$

auch den von  $^{162}\text{Er}$ . Im Rahmen dieser Analyse wurde ein Fitprogramm entwickelt, mit dem gemischte Multipletts aus Röntgen- und Gammalinien entfaltet werden können. Mit Hilfe dieses Programmes gelang es, die Linienintensitätswerte der  $^{164}\text{Ho}$ - und  $^{164m}\text{Ho}$ -Zerfälle neu zu bestimmen bzw. die bestehenden Unsicherheiten zu reduzieren.

Der zweite Teil widmet sich dem  $^{155}\text{Eu}$ . Mit Hilfe der Ionenaustauschchromatographie konnte eine  $^{154}\text{Sm}$ -Probe soweit gereinigt werden, daß aus ihr durch Erbrütung am Reaktor eine geeignete  $^{155}\text{Eu}$ -Probe hergestellt werden konnte. Mittels einer Langzeitaktivierung mit einem quasistellaren Neutronenspektrum am Van de Graaff Beschleuniger des Kernforschungszentrums Karlsruhe und der anschließenden  $^{156}\text{Eu}$ -Aktivitätsmessung mit einem  $175 \text{ cm}^3$  HPGe-Detektor konnte der stellare  $^{155}\text{Eu}$ -Querschnitt zu

$$\langle \sigma(^{155}\text{Eu}) \rangle_{30\text{keV}} = 1320 \pm 84 \text{ mb}$$

bestimmt werden. Auf diese Weise ergab sich auch eine wichtige Stützstelle für die theoretische Interpolation des Einfangquerschnitts des relevanten Verzweigungsisotops  $^{154}\text{Eu}$ .

Abschließend wurde das Massengebiet von Eu/Gd und Dy/Ho/Er hinsichtlich der Hauptkomponente des s-Prozesses betrachtet. Im Falle der Verzweigung am  $^{163}\text{Dy}/^{163}\text{Ho}$  konnte die Elektronendichte des stellaren Plasmas mit Hilfe der klassischen s-Prozeß-Näherung eingegrenzt werden. Als weiteres Ergebnis dieser Untersuchung wurde gefunden, daß ein aktuelles Sternmodell die Verhältnisse bei der Synthese des  $^{164}\text{Er}$  richtig beschreibt. Die Verzweigungen am  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{155}\text{Eu}$  wurden ebenfalls für beide Modelle diskutiert. Hier konnten jedoch keine wesentlich neuen astrophysikalischen Erkenntnisse gewonnen werden, da hierzu weitere Daten erforderlich sind, die zum Zeitpunkt der Fertigstellung der Arbeit noch nicht vorlagen.

# The stellar neutron capture cross sections of the unstable isotopes $^{155}\text{Eu}$ and $^{163}\text{Ho}$

## Abstract

Scope of this work was to determine the stellar neutron capture cross sections of unstable isotopes by the activation technique and to discuss the s-process nucleosynthesis in the corresponding mass regions.

The selected isotopes of interest were  $^{155}\text{Eu}$  and  $^{163}\text{Ho}$ . Therefore, the following thesis is divided into three parts.

The first part describes the measurements on  $^{163}\text{Ho}$ . The composition of a Ho/Er/Dy-sample, let by the ISOLDE collaboration, was characterized by X-ray fluorescence and mass spectroscopy. The neutron irradiations at the Van de Graaff accelerator resulted in the stellar neutron capture cross sections of the unstable isotope  $^{163}\text{Ho}$ ,

$$\langle \sigma(^{163}\text{Ho}) \rangle_{30\text{keV}} = 2125 \pm 95 \text{ mb},$$

and of the stable isotope  $^{162}\text{Er}$ . For the analysis a fit program was developed to unfold mixed X- and gamma-ray multiplets. With this program it was possible to determine the gamma-ray line intensities of the  $^{164\text{m}}\text{Ho}$  and  $^{164}\text{Ho}$  decays and/or to reduce their existing uncertainties.

The second part deals with  $^{155}\text{Eu}$ . By using the ion exchange technique a batch of isotopically enriched  $^{154}\text{Sm}$  was sufficiently purified to breed a suited  $^{155}\text{Eu}$  sample in a reactor. A long-time irradiation in a quasistellar neutron spectrum and the following activity counting with a  $175 \text{ cm}^3$  HPGe-detector gave the stellar neutron capture cross section,

$$\langle \sigma(^{155}\text{Eu}) \rangle_{30\text{keV}} = 1320 \pm 84 \text{ mb}.$$

This value is also important for the theoretical interpolation of the relevant cross section of the neighboring branch point isotope  $^{154}\text{Eu}$ .

Finally, the mass regions of Eu/Gd and Dy/Ho/Er were investigated with respect to the main component of the s-process. Using the classical s-process model for the analysis of the  $^{163}\text{Dy}/^{163}\text{Ho}$ -branching new limits for the electron density of the stellar plasma were derived. As a further result it was shown that a recent stellar model describes the conditions during the synthesis of  $^{164}\text{Er}$  properly. The branchings at  $^{154}\text{Eu}$  and  $^{155}\text{Eu}$  were discussed also for both models. In this case no substantial findings could be extracted since this analysis requires further data which were not available before this thesis was finished.

# Inhaltsverzeichnis

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einführung und Motivation</b>   | <b>3</b>  |
| 1.1      | Der s-Prozeß und Verzweigungen des Synthesepfads . . . . .   | 4         |
| 1.2      | Messung von Neutroneneinfangquerschnitten an radioaktiven Kernen . . . . .                               | 6         |
| 1.3      | Die Aktivierungstechnik am Van de Graaff – Beschleuniger . . . . .                                       | 7         |
| 1.4      | Aufgabenstellung dieser Arbeit . . . . .   | 8         |
| <b>2</b> | <b>Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von <math>^{163}\text{Ho}</math></b>                         | <b>9</b>  |
| 2.1      | Beschreibung des Einfangs am $^{163}\text{Ho}$ und der Zerfall des $^{164}\text{Ho}$ . . . . .           | 10        |
| 2.1.1    | Die zeitliche Häufigkeitsentwicklung während der Bestrahlung und<br>Messung . . . . .                    | 10        |
| 2.1.2    | Die Linienintensitäten im $^{163}\text{Ho}$ -Zerfall . . . . .   | 12        |
| 2.2      | Die Meßproben . . . . .  | 13        |
| 2.2.1    | Probe zur Querschnitts- und Röntgenfluoreszenzmessung . . . . .  | 14        |
| 2.2.2    | Probe zur Messung des Betaspektrums von $^{164}\text{Ho}$ und der Isotopen-<br>zusammensetzung . . . . . | 14        |
| 2.3      | Bestimmung der vorhandenen $^{163}\text{Ho}$ -Menge . . . . .  | 14        |
| 2.3.1    | Bestimmung der Elementzusammensetzung und der Ho-Menge . . . . .   | 15        |
| 2.3.2    | Bestimmung der Isotopenzusammensetzung . . . . .   | 16        |
| 2.4      | Bestimmung des stellaren Einfangquerschnitts von $^{163}\text{Ho}$ . . . . .                             | 18        |
| 2.4.1    | Bestrahlung am Van de Graaff-Beschleuniger . . . . .   | 18        |
| 2.4.2    | Ergebnisse und Diskussion . . . . .  | 19        |
| <b>3</b> | <b>Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von <math>^{155}\text{Eu}</math></b>                         | <b>26</b> |
| 3.1      | Anforderungen an Probe, Probenherstellung und Detektor . . . . .   | 27        |
| 3.1.1    | Probenmenge . . . . .  | 27        |
| 3.1.2    | Begleitaktivitäten . . . . .   | 27        |
| 3.1.3    | Probenherstellung . . . . .  | 28        |
| 3.1.4    | Detektor . . . . .   | 28        |
| 3.2      | Herstellung der $^{155}\text{Eu}$ -Probe . . . . .   | 29        |
| 3.2.1    | Trennung von Samarium und Europium . . . . .   | 29        |
| 3.2.2    | Reinigung des $^{154}\text{Sm}$ . . . . .  | 32        |
| 3.2.3    | Abtrennung des $^{155}\text{Eu}$ . . . . .   | 37        |
| 3.2.4    | Die Aktivierungsprobe . . . . .  | 38        |
| 3.2.5    | Die Bestimmung der vorhandenen $^{155}\text{Eu}$ -Menge . . . . .  | 38        |
| 3.3      | Bestimmung des stellaren Einfangquerschnitts von $^{155}\text{Eu}$ . . . . .                             | 41        |
| 3.3.1    | Bestrahlungen am Van de Graaff-Beschleuniger . . . . .   | 41        |
| 3.3.2    | Eichung des HPGe-Detektors . . . . .   | 43        |
| 3.3.3    | Bestimmung der $^{156}\text{Eu}$ -Aktivität . . . . .  | 46        |
| 3.3.4    | Ergebnisse und Diskussion . . . . .  | 48        |

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>4</b> | <b>Astrophysikalische Betrachtungen</b>  | <b>50</b> |
| 4.1      | Der klassische s-Prozeß und die $^{163}\text{Ho}/^{163}\text{Dy}$ -Verzweigung . . . . . | 50        |
| 4.2      | Das LMS-Modell . . . . .   | 54        |
| 4.2.1    | Die $^{163}\text{Ho}/^{163}\text{Dy}$ -Verzweigung . . . . .                             | 55        |
| 4.2.2    | Die $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ -Verzweigung . . . . .                             | 55        |
| <b>5</b> | <b>Ausblicke</b>   | <b>59</b> |
| 5.1      | Messungen an anderen instabilen Kernen . . . . .   | 59        |
| 5.2      | Astrophysikalische Aspekte . . . . .   | 59        |
| 5.2.1    | Dysprosium-, Holmium- und Erbiumisotope . . . . .  | 59        |
| 5.2.2    | Europium- und Gadoliniumisotope . . . . .  | 59        |
| <b>A</b> | <b>Das Monte Carlo Programm CASC</b>   | <b>61</b> |
| <b>B</b> | <b>Das Fitprogramm ANAMU</b>   | <b>63</b> |
|          | <b>Literaturverzeichnis</b>  | <b>66</b> |

# Kapitel 1

## Einführung und Motivation

Die Entstehung der chemischen Elemente im Universum ist ein weites Themengebiet und erstreckt sich von der primordialen Nukleosynthese während des Urknalls über Fusionsreaktionen und Elementumwandlungen während der Sternentwicklung bis hin zu Kernreaktionen durch kosmische Strahlung.

Eine gewisse Sonderstellung nehmen hierbei die schweren Elemente (mit einer Kernmasse größer als Eisen) ein. Mit dem Erreichen des Maximums der Bindungsenergie je Nukleon beim Eisen können diese Elemente nur noch unter Energieverlust gebildet werden und daher nicht mehr zu den energieproduzierenden Reaktionen im Sterninneren beitragen. Da auch auf Grund der übermächtigen Coulombabstoßung Reaktionen mit geladenen Partnern stark unterdrückt sind, erfolgt die Nukleosynthese der schweren Elemente nahezu ausschließlich durch Neutroneneinfangreaktionen.

Man unterscheidet zunächst zwischen zwei Neutroneneinfangprozessen, dem *r*- und dem *s*-Prozeß. Unter *s*-Prozeß versteht man Nukleosynthese durch *langsamen* Neutroneneinfang (*s* steht hier für das englische *slow*), wobei *langsam* die Zeitskala bezeichnet: der nach dem Neutroneneinfang entstehende neue Atomkern hat – sofern er instabil ist – im allgemeinen Zeit zu zerfallen und ein neues Element zu bilden, bevor er ein weiteres Neutron einfängt. Beim *r*-Prozeß (*r* steht für das englische *rapid*) sind im Gegensatz zum *s*-Prozeß die Neutroneneinfangzeiten sehr kurz. Deshalb werden jeweils sehr viele Neutronen eingefangen, bevor das entstandene Isotop zerfallen kann; man entfernt sich hierbei sehr weit vom Gebiet der stabilen Kerne.

Beide Prozesse treten nach heutigem Verständnis in den Endstadien der Sternentwicklung auf, der *s*-Prozeß in der AGB-Phase (Rote Riesen Sterne) und der *r*-Prozeß in Sternexplosionen. Die dabei entstandenen Elemente werden durch den Sternwind, bei der Abstoßung eines planetarischen Nebels oder mit der Supernova ins interstellare Medium zurückgemischt, wo sie als neues Ausgangsmaterial für künftige Sterngenerationen dienen, die dann wieder ihrerseits die Elementzusammensetzung verändern.

Die Synthese von Isotopen der schweren Elemente, die nicht durch Neutroneneinfangprozesse gebildet werden können, ist dem *p*-Prozeß zuzuschreiben, bei dem durch die teilweise Zerstörung bereits gebildeter, schwerer Elemente bei sehr hoher Temperatur

protonenreiche Kerne entstehen. Während r- und s-Prozeß je etwa 50 % der schweren Elemente erzeugen, ist der Anteil des p-Prozesses mit ca. 1% der Häufigkeiten sehr gering.

Aus den Elementhäufigkeiten und Isotopenzusammensetzungen der schweren Elemente, wie man sie im Kosmos beobachtet, kann man Rückschlüsse auf viele Vorgänge in Sternen und auf die chemische Evolution in unserer Galaxis ziehen.

Da alle diese Abläufe sehr stark von Kernreaktionen bestimmt sind, ist für das quantitative Verständnis astrophysikalischer Fragestellungen die genaue Kenntnis der entsprechenden kernphysikalischen Größen notwendig. Während die beim r-Prozeß beteiligten Kerne experimentellen Messungen meist unzugänglich sind, lassen sich die am s-Prozeß beteiligten, größtenteils stabilen Kerne im Labor untersuchen. Nicht zuletzt deshalb ist der s-Prozeß einer der am besten verstandenen Syntheseprozesse.

## 1.1 Der s-Prozeß und Verzweigungen des Synthesepfads

Betrachtet man den s-Prozeß-Verlauf in Abbildung 1 genauer, erkennt man, daß bei einer Neutronenbestrahlung so lange ungestört Neutroneneinfang stattfindet, bis ein instabiles Isotop erreicht wird. In der Regel ist dieses Isotop kurzlebig und zerfällt zu seinem Isobar des nächst schwereren Elements, das seinerseits wieder Neutronen einfangen kann. Die so gebildete Reaktionskette führt vom Eisen bis zum Wismut, dessen direkte Folgekerne den s-Prozeß-Pfad durch  $\alpha$ -Zerfall zum Blei zurücklenken.

Es gibt jedoch auf dem s-Prozeß-Pfad eine Reihe von instabilen Isotopen, deren Halbwertszeiten mit der Einfangzeit für Neutronen vergleichbar sind. Diese Kerne stellen Verzweigungen des Synthesepfads dar, was bedeutet, daß an diesen Stellen Betazerfall und Neutroneneinfang konkurrieren.

Für viele dieser Verzweigungsisotope unterscheidet sich die Halbwertszeit in der stellaren Umgebung von derjenigen im Labor. Diese Unterschiede ergeben sich durch die hohen Temperaturen und Dichten während des s-Prozesses. Durch die hohe Temperatur sind die Atome in dieser Umgebung fast vollständig ionisiert und niedrig liegende Kernzustände sind durch thermische Anregung zu einem gewissen Teil bevölkert. Haben diese angeregten Zustände auf Grund der Auswahlregeln vom Grundzustand abweichende Zerfallskonstanten, ergeben sich hieraus Veränderungen der Halbwertszeiten. Beim Zerfall durch Elektroneneinfang führt der hohe Ionisationsgrad der Atome zu einer Behinderung des Zerfalls, andererseits wird durch die hohe Elektronendichte des Plasmas der Elektroneneinfang aus dem Kontinuum ermöglicht. Die aus der hohen Dichte resultierende teilweise Entartung des Elektronengases führt dazu, daß Zerfälle durch Elektronenemission behindert und Zerfälle durch Positronenemission begünstigt werden. Weiterhin treten atomare Effekte in Erscheinung; durch den hohen Ionisationsgrad des Plasmas wird der Zerfall in gebundene Elektronenzustände (*bound state decay*) möglich, bei dem ein vom Kern emittiertes Elektron in der Atomhülle eingefangen wird. Die so gewonnene Bindungsenergie

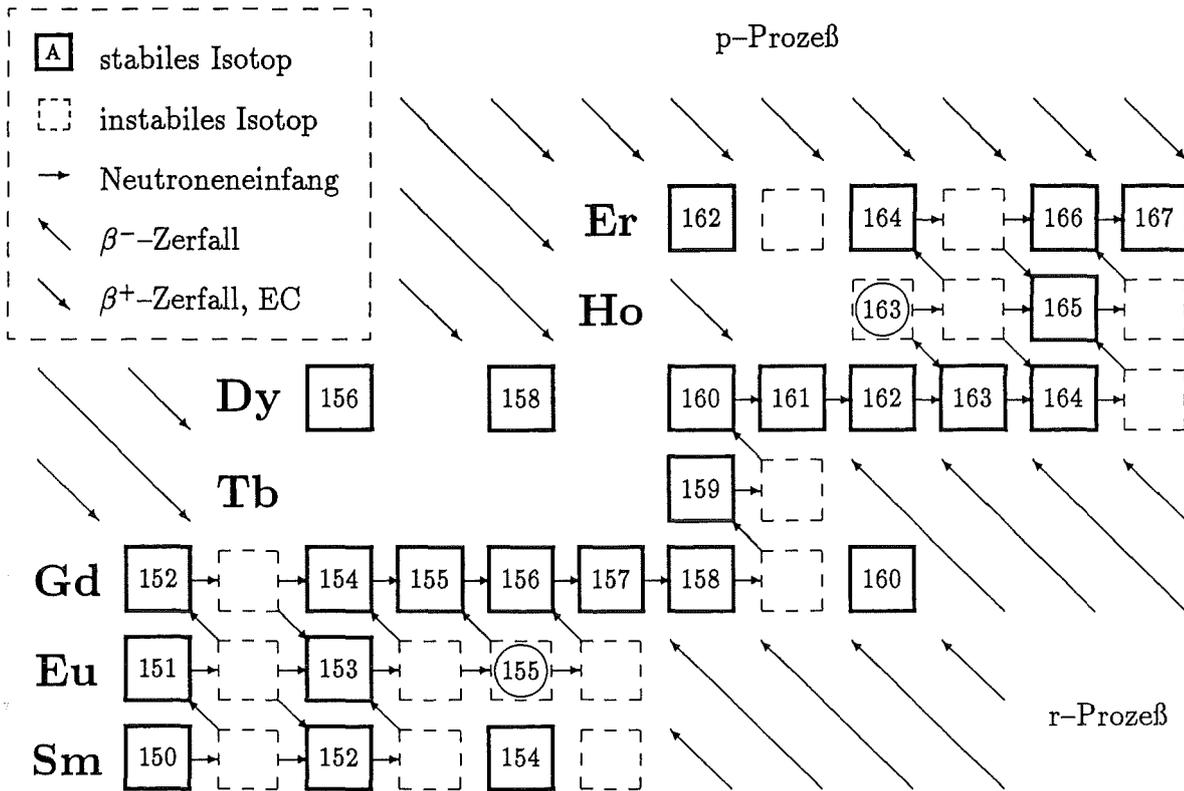


Abbildung 1: Der s-Prozesspfad im Bereich der Elemente Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er

kann diesen Zerfall beschleunigen oder, wie z.B. beim  $^{163}\text{Dy}$ , im Extremfall erst ermöglichen.

Da die Verzweigungen des s-Prozess-Pfades in unterschiedlicher Weise von den physikalischen Bedingungen beeinflusst werden, kann man aus den beobachteten Häufigkeiten der Isotope und den Eigenschaften der an den Verzweigungen beteiligten Kerne Rückschlüsse auf die relevanten Parameter Temperatur, Druck, Neutronendichte und Zeitdauer der Bestrahlung ziehen [Köp89].

Abbildung 1 zeigt auch, daß es Kerne gibt, die nicht vom s-Prozess erreicht werden können, z.B.  $^{160}\text{Gd}$ , das im r-Prozess gebildet wird, und  $^{162}\text{Er}$ , das beim p-Prozess entsteht. Natürlich besitzen auch fast alle übrigen Isotope Beiträge aus diesen Prozessen, wobei jedoch die p-Anteile häufig vernachlässigbar sind. Wichtige Ausnahmen stellen jedoch z.B. die Isotope  $^{152}\text{Gd}$ ,  $^{154}\text{Gd}$  und  $^{160}\text{Dy}$  dar, die gegen den r-Prozess geschützt sind und deshalb als Normierungspunkte für den s-Prozess verwendet werden können. Umgekehrt werden z.B.  $^{154}\text{Sm}$  und  $^{160}\text{Gd}$  vom s-Prozess nicht erreicht und können als reine r-Isotope betrachtet werden.

Der s-Prozess gehört zu den am besten verstandenen Nukleosyntheseprozessen. Man unterscheidet hierbei drei Komponenten, die sich verschiedenen stellaren Szenarien zuordnen

lassen und die durch unterschiedlich intensive Neutronenexpositionen charakterisiert sind [Köp89]: eine schwache Komponente, die hauptsächlich an der Synthese der Isotope mit  $A < 90$  beteiligt ist, eine sogenannte Hauptkomponente, die alle schweren Elemente bis zum Wismut erreicht und eine starke Komponente, die nötig ist, um die überhöhten Häufigkeiten von  $^{208}\text{Pb}$  und  $^{209}\text{Bi}$  zu erklären.

Da sich die vorliegende Arbeit mit den radioaktiven Verzweigungspunkten  $^{155}\text{Eu}$  und  $^{163}\text{Ho}$  beschäftigt, soll hier näher auf die Hauptkomponente eingegangen werden. Sie findet während des Heliumschalenbrennens in roten Riesensternen statt. In diesem Stadium wechseln sich kurze He-Brennphasen, in denen der s-Prozeß stattfindet, mit langen Pausen ab, in denen der Stern seinen Energiebedarf durch H-Brennen deckt. Bei jeder He-Brennphase werden bei Temperaturen zwischen 150 und 300 Mio. Grad Neutronen freigesetzt, wobei Neutronendichten bis zu  $10^9 \text{ cm}^{-3}$  für 3–50 Jahre erreicht werden. Während dieser Neutronenpulse wird das vorhandene Eisen teilweise in schwerere Elemente umgewandelt. Ein Teil dieses Materials wird danach aus der Syntheszone hinausgemischt und reichert sich in der konvektiven Hülle der Sterne an. Ein in der Zone verbleibender Teil wird im nächsten Puls erneut bestrahlt. In der Tat beobachtet man starke Anreicherungen von typischem s-Prozeß Material in der Photosphäre dieser Sterne, die anhand der charakteristischen Spektrallinien quantitativ untersucht werden können.

Während man früher noch auf das *klassische*, phänomenologische Modell [Köp89] zur Beschreibung des s-Prozesses angewiesen war, gibt es heute stellare Modelle, mit denen die im Sonnensystem beobachteten Häufigkeiten im wesentlichen richtig beschrieben werden können [Köp90, Gal88, Hol89].

Sehr wichtige kernphysikalische Größen bei der Untersuchung des s-Prozesses sind die stellaren Neutroneneinfangquerschnitte der beteiligten Isotope, besonders jedoch die der reinen s-Kerne, der Verzweigungsotope und der neutronenmagischen Kerne. Da die meisten experimentellen Methoden bei der Bestimmung von Einfangquerschnitten typischer Verzweigungsotope versagen (siehe Abschnitt 1.2), war man bisher auf theoretische Rechnungen [Har81, Hol76] angewiesen, die jedoch häufig Unsicherheiten von mehr als 50 % aufweisen.

## 1.2 Messung von Neutroneneinfangquerschnitten an radioaktiven Kernen

Prinzipiell gibt es drei experimentelle Möglichkeiten zur Bestimmung von stellaren Neutroneneinfangquerschnitten: Über den Nachweis der veränderten Isotopenzusammensetzung nach einer Neutronenbestrahlung, durch die direkte Beobachtung des Einfangereignisses mit Hilfe der prompt emittierten Gammaquanten oder durch die Beobachtung der bei einer Bestrahlung induzierten Aktivität.

Die erste Methode ist zwar die eleganteste, erweist sich für Messungen im astrophysikalisch interessanten *keV*-Bereich jedoch sehr schnell als unbrauchbar, da bei typischen

Konversionsraten von  $\approx 10^{-9}$  lediglich die Beschleunigermassenspektroskopie in der Lage wäre, derart feine Unterschiede zu messen. Faktisch ist es jedoch unmöglich, Proben mit der erforderlichen Isotopenreinheit herzustellen.

Da die meisten relevanten Verzweigungsisotope stabile Folgekerne haben (z.B.  $^{152}\text{Eu}$  und  $^{151}\text{Sm}$  in Abbildung 1) ist man für ihre Untersuchung auf die zweite Methode angewiesen. Hierbei ergeben sich Probleme mit der Eigenaktivität der Probe. Da bei solchen Messungen die erreichbaren Neutronenflüsse am Ort der Probe relativ gering sind, macht dies eine vergleichsweise große Probenmenge erforderlich. Die entsprechend hohen Eigenaktivitäten der Probe stellen nicht nur ein Risiko in der Handhabung dar, sondern führen auch dazu, daß die Detektoren überlastet werden und/oder der Untergrund für eine Messung zu hoch wird. Solche Messungen sind deshalb nur in einigen Fällen möglich, in denen die Energie der Strahlung gering ist und gut abgeschirmt werden kann und/oder aber die Halbwertszeit sehr groß ist. Beispiele dafür sind  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{193}\text{Pt}$ ,  $^{205}\text{Pb}$ , oder das bereits mit Moxon-Rae Detektoren untersuchte  $^{147}\text{Pm}$  [Ger92].

Die dritte Möglichkeit, solche Isotope mit Hilfe der Aktivierungsmethode zu untersuchen [Käp91], bietet insofern erhebliche Vorteile, als man mit vergleichsweise sehr kleinen Probenmengen auskommt, wodurch sich das Umgangsrisiko und die Schwierigkeit der Probenbeschaffung entscheidend reduzieren. Allerdings ist in diesem Fall die Anzahl der astrophysikalisch interessanten Kerne begrenzt, da auch der Folgekern des Verzweigungsisotops instabil sein muß. Außerdem müssen die folgenden Bedingungen erfüllt sein: die Halbwertszeit des Folgekerns muß relativ kurz sein, um bei den typischen Konversionsraten von  $\approx 10^{-9}$  noch eine ausreichende Zählratenstatistik zu erhalten, und die Zerfallspektren der beiden Kerne müssen sich stark unterscheiden, wobei der Folgekern deutlich höhere Energien aufweisen sollte als der einfangende Kern. Die Entscheidung über die Meßbarkeit muß jedoch immer im Einzelfall geprüft werden, da auch z.B. chemische Eigenschaften und die erforderliche Isotopenreinheit entscheidend sind.

Aus diesen Gründen sind für diese Methode nur eine begrenzte Anzahl von Isotopen geeignet, z.B.  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{135/137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{163}\text{Ho}$ ,  $^{171}\text{Tm}$  und  $^{179}\text{Ta}$ .

### 1.3 Die Aktivierungstechnik am Van de Graaff – Beschleuniger

Die am Karlsruher Van de Graaff Beschleuniger standardmäßig eingesetzte Neutronenproduktionsreaktion  $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  hat für astrophysikalische Untersuchungen, speziell für Aktivierungsmessungen, die günstige Eigenschaft, daß bei einer Protonenenergie von 1912 keV die entstehenden Neutronen aus kinematischen Gründen in einem Vorwärtskegel mit 120 Grad Öffnungswinkel kollimiert sind und ihr Spektrum ungefähr dem eines Maxwell-Spektrums bei  $kT = 25 \text{ keV}$  entspricht [Rat88], dem Energiebereich, in dem der s-Prozeß stattfindet. Man ist also in der Lage über eine relativ einfache Aktivierung den maxwellgemittelten, stellaren Einfangquerschnitt bei 25 keV zu bestimmen [Käp85].

Prinzipiell geht man so vor, daß eine geeignete Meßprobe gemeinsam mit einer Goldprobe bestrahlt und im Anschluß die induzierte Aktivität beider Proben bestimmt wird. Nimmt man an, daß der Querschnittsverlauf für Gold- und Meßprobe derselbe ist, was für nicht-neutronenmagische Kerne im allgemeinen zutrifft, entspricht das Ergebnis der Aktivierungsmessung dem Verhältnis der maxwellgemittelten Querschnitte. Ist die Abhängigkeit der Querschnitte von der Neutronenenergie bekannt, kann die entsprechende Korrektur auch quantitativ angegeben werden.

## 1.4 Aufgabenstellung dieser Arbeit

Themenstellung dieser Arbeit war es, die stellaren Neutroneneinfangquerschnitte von astrophysikalisch interessanten, radioaktiven Kernen (Verzweigungsisotopen) im  $keV$ -Bereich mittels der Aktivierungstechnik zu bestimmen. Von den im letzten Abschnitt erwähnten Beispielen wurden dafür die Isotope  $^{155}\text{Eu}$  und  $^{163}\text{Ho}$  ausgewählt.

Die Problemstellung beim  $^{155}\text{Eu}$  ist zum einen die sehr aufwendige Herstellung einer geeigneten Probe, die eine umfassende Einarbeitung in radiochemische Methoden erforderte (auch im Hinblick darauf, entsprechendes Fachwissen für weitere Isotope zu erwerben), und zum anderen die gezielte Entwicklung einer Meß- und Auswertetechnik zur Bestimmung der bei der Aktivierung erzeugten  $^{156}\text{Eu}$ -Aktivität.

Die Aufgabe der  $^{163}\text{Ho}$ -Messung bestand zuerst in der Definition der von der ISOLDE-Kollaboration zur Verfügung gestellten Probe und im folgenden in der Bestimmung der bei der Aktivierung erzeugten  $^{164}\text{Ho}$ -Aktivität, wobei die sehr schlecht bekannten Intensitäten der Kernübergänge im  $^{164}\text{Ho}$  das Hauptproblem waren.

Mit Hilfe dieser Ergebnisse sollten die entsprechenden Bereiche des  $s$ -Prozeß-Pfads unter Berücksichtigung der neu gefundenen Querschnitte für die verschiedenen Modelle diskutiert werden.

# Kapitel 2

## Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von $^{163}\text{Ho}$

$^{163}\text{Ho}$  ist eines der wenigen protonenreichen Isotope, die vom s-Prozeß erreicht werden. Grund hierfür ist die sehr geringe Energiedifferenz der Grundzustände von  $^{163}\text{Dy}$  und  $^{163}\text{Ho}$  von lediglich  $\approx 2.6 \text{ keV}$ , wodurch sich im stellaren Plasma für das auf der Erde stabile  $^{163}\text{Dy}$  zwei Zerfallsmöglichkeiten ergeben, der Zerfall über thermisch angeregte Zustände des  $^{163}\text{Dy}$  und, wegen der im Vergleich zur Energiedifferenz wesentlich höheren Bindungsenergie für K- oder L-Elektronen, der Zerfall in gebundene Elektronenzustände (*bound state decay*), bei dem das emittierte Elektron direkt in der hochionisierten Atomhülle eingefangen wird (siehe auch Abschnitt 1.1).

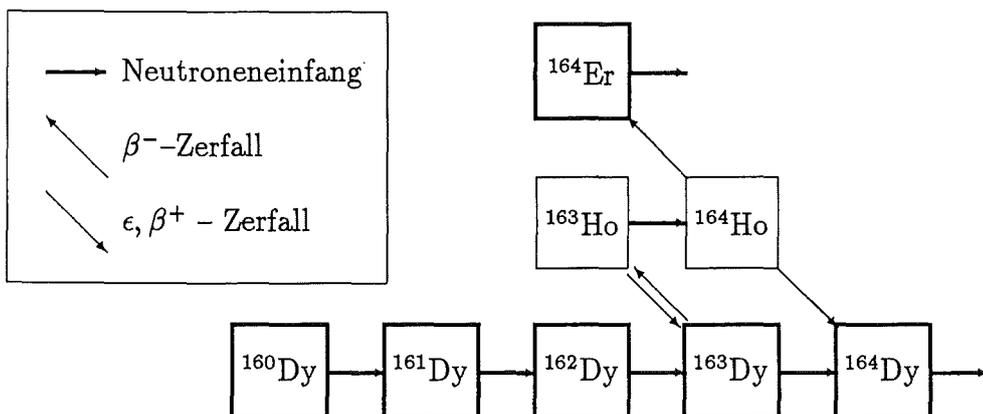


Abbildung 2: Die Verzweigung am  $^{163}\text{Dy}/^{163}\text{Ho}$ -Paar

Das so gebildete  $^{163}\text{Ho}$  kann ein weiteres Neutron einfangen (Abbildung 2), wodurch der Synthesepfad zum  $^{164}\text{Ho}$  und damit zum  $^{164}\text{Er}$  aufspaltet, dessen in der Natur beobachtete Häufigkeit tatsächlich relativ zu den anderen protonenreichen Isotopen in diesem

Massenbereich (z.B.  $^{162}\text{Er}$  und  $^{168}\text{Yb}$ ) deutlich überhöht ist und damit einen erkennbaren s-Prozeß-Anteil aufweist.

Die Intensität der Verzweigung zum  $^{164}\text{Er}$  ist außer von der Temperatur und der Neutronendichte auch sehr stark von der Elektronendichte (Massendichte) am Synthesort abhängig, weshalb man durch die Bestimmung des stellaren Neutroneneinfangquerschnitts von  $^{163}\text{Ho}$  Aufschlüsse über diesen Parameter des stellaren Plasmas erhält.

Theoretische Berechnungen geben für den stellaren 30 keV-Querschnitt  $\approx 2264$  mb [Har81] bzw.  $\approx 2880$  mb [Hol76] an.

## 2.1 Beschreibung des Einfangs am $^{163}\text{Ho}$ und der Zerfall des $^{164}\text{Ho}$

### 2.1.1 Die zeitliche Häufigkeitsentwicklung während der Bestrahlung und Messung

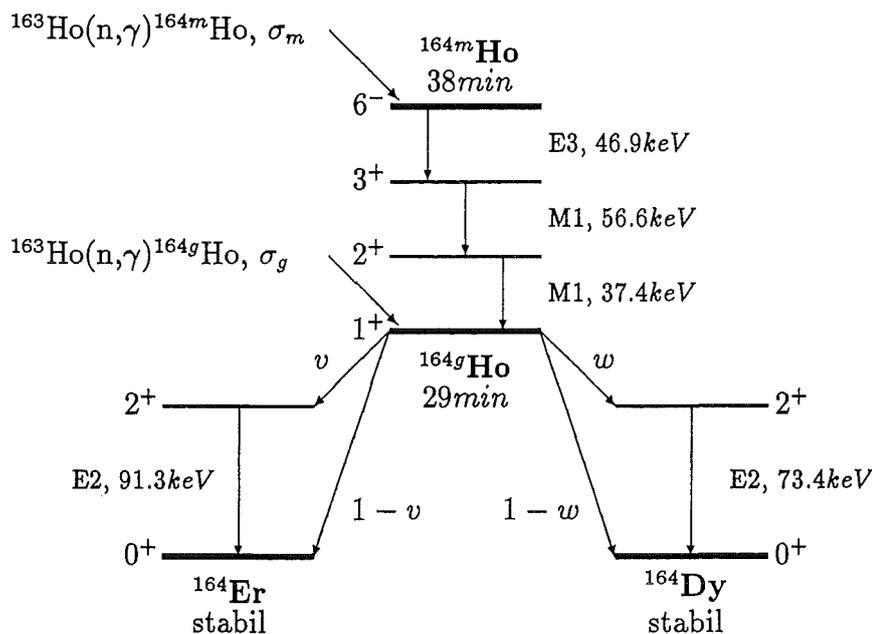


Abbildung 3: Zerfallsschema von  $^{164}\text{Ho}$

Der Neutroneneinfang am  $^{163}\text{Ho}$  erfolgt sowohl zum Isomer als auch zum Grundzustand von  $^{164}\text{Ho}$  (Abbildung 3). Die jeweiligen Einfangquerschnitte werden mit  $\sigma_m$  und  $\sigma_g$ , die Zerfallskonstanten mit  $\lambda_m$  und  $\lambda_g$  bezeichnet. Das Isomer zerfällt ausschließlich in den Grundzustand, welcher mit der Wahrscheinlichkeit  $g_\beta$  zum  $^{164}\text{Er}$  bzw. mit  $(1 - g_\beta)$  zum  $^{164}\text{Dy}$  zerfällt.

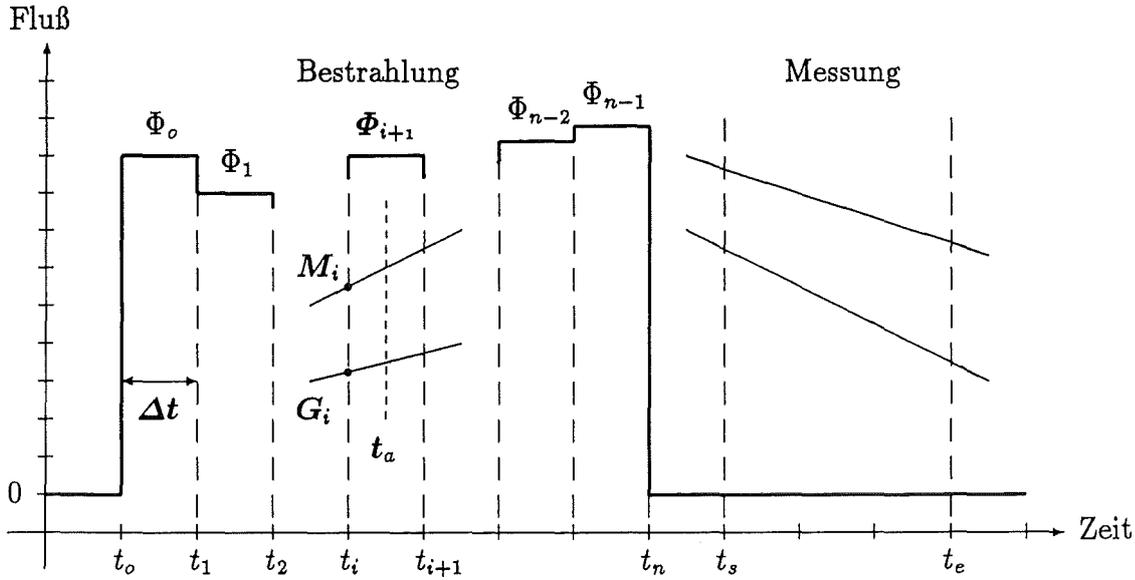


Abbildung 4: Schematischer Bestrahlungs- und Meßverlauf

Die Differentialgleichungen für die Häufigkeitsentwicklung von Isomer  $M(t)$  und Grundzustand  $G(t)$  zur Beschreibung des Vorgangs während einer Neutronenbestrahlung der Flußdichte  $\Phi(t)$  an  $N_o$   $^{163}\text{Ho}$ -Atomen lauten :

$$\begin{aligned}\frac{dM(t)}{dt} &= -\lambda_m M(t) + \sigma_m \Phi(t) N_o \\ \frac{dG(t)}{dt} &= -\lambda_g G(t) + \lambda_m M(t) + \sigma_g \Phi(t) N_o\end{aligned}$$

Die Lösung der Differentialgleichung für einen Zeitpunkt  $t_a$  in einem Intervall  $t_i < t_a < t_{i+1}$  (Abbildung 4) bei konstanter Neutronendichte  $\Phi_{i+1}$  und den Anfangsbedingungen  $G(t = t_i) = G_i$  und  $M(t = t_i) = M_i$  lautet :

$$\begin{aligned}M(t_a) &= M_i e^{-\lambda_m(t_a - t_i)} \\ &+ \sigma_m N_o \Phi_{i+1} \underbrace{\frac{1 - e^{-\lambda_m(t_a - t_i)}}{\lambda_m}}_{D_m(t_a - t_i)} \\ G(t_a) &= G_i e^{-\lambda_g(t_a - t_i)} \\ &+ \sigma_g N_o \Phi_{i+1} \underbrace{\frac{1 - e^{-\lambda_g(t_a - t_i)}}{\lambda_g}}_{D_g(t_a - t_i)} \\ &+ M_i \underbrace{\frac{\lambda_m}{\lambda_g - \lambda_m} (e^{-\lambda_m(t_a - t_i)} - e^{-\lambda_g(t_a - t_i)})}_{C_1(t_a - t_i)} \\ &+ \sigma_m N_o \Phi_{i+1} \underbrace{\left( \frac{1 - e^{-\lambda_g(t_a - t_i)}}{\lambda_g} - \frac{e^{-\lambda_m(t_a - t_i)} - e^{-\lambda_g(t_a - t_i)}}{\lambda_g - \lambda_m} \right)}_{C_2(t_a - t_i)}\end{aligned}$$

Da eine Bestrahlung jedoch nicht bei konstantem Neutronenfluß stattfindet, wird ihr Verlauf mit einem Vielkanalzähler aufgenommen und in  $n$  Intervalle  $i$  mit gleicher Breite  $\Delta t$ , in denen man den jeweiligen Fluß  $\Phi_{i+1}$  als konstant betrachtet (Abbildung 4), zerlegt. Es folgt so für den Zeitpunkt des Bestrahlungsendes  $M(t = t_n) = M_n$  und  $G(t = t_n) = G_n$ :

$$M_n = \sigma_m N_o D_m(\Delta t) \sum_{i=1}^n \Phi_i e^{-(n-i)\lambda_m \Delta t}$$

$$G_n = (\sigma_g D_g(\Delta t) + \sigma_m C_2(\Delta t)) N_o \sum_{i=1}^n \Phi_i e^{-(n-i)\lambda_g \Delta t} + \sum_{i=1}^n C_1(\Delta t) M_{i-1} e^{-(n-i)\lambda_g \Delta t}$$

Betrachtet man den Zeitraum zwischen dem Ende der Bestrahlung  $t_n$  und Beginn der Aktivitätsmessung  $t_s$  als Teil der Bestrahlung mit  $\Phi_i = 0$ , erübrigt sich bei der Berechnung die separate Betrachtung dieser Wartezeit und die Ausdrücke gelten analog (mit  $t_n = t_s$ ).

Die Anzahl der im Meßintervall von  $t_s$  bis  $t_e$  stattgefundenen Zerfälle  $N_m$  und  $N_g$  erhält man durch Integration der Differentialgleichungen unter Verwendung der oben gefundenen Lösungen für  $\Phi = 0$  und  $t_m = t_e - t_s$ :

$$N_m = M_s(1 - e^{-\lambda_m t_m})$$

$$N_g = G_s(1 - e^{-\lambda_g t_m}) + M_s \frac{\lambda_m \lambda_g}{\lambda_g - \lambda_m} \left( \frac{1 - e^{-\lambda_m t_m}}{\lambda_m} - \frac{1 - e^{-\lambda_g t_m}}{\lambda_g} \right)$$

Es ergeben sich hieraus letztlich die Zählraten  $Z_\gamma$  der im Detektor beobachteten Linien der Energie  $E_\gamma$  und der Intensität  $I_\gamma$  zu:

$$Z_\gamma = N_\gamma I_\gamma \epsilon_\gamma \frac{t_i}{t_e - t_s} K_\gamma C_\gamma P_\gamma$$

bei gegebener Ansprechwahrscheinlichkeit  $\epsilon_\gamma$  und tatsächlicher Meßzeit (*lifetime*)  $t_i$  des Detektors, Selbstabsorption in der Probe  $K_\gamma$  und des Korrekturfaktors für koinzident nachgewiesene Übergänge  $C_\gamma$  und *Pile-up*-Ereignisse  $P_\gamma$ . Mit  $N_\gamma$  wird die Anzahl stattgefundenen Zerfälle bezeichnet.

Wegen der Analogie des Zerfallsschemas gelten die Formeln für das Isomer  $^{164m}\text{Ho}$  ebenfalls für den Zerfall der als Referenz verwendeten Goldprobe.

## 2.1.2 Die Linienintensitäten im $^{163}\text{Ho}$ -Zerfall

Die für die Querschnittsbestimmung wichtigen Linienintensitäten  $I_\gamma$  der K-Röntgen- und Gammalinien lassen sich wegen der Einfachheit des Zerfallsschemas (Abbildung 3) direkt angeben

$$I_{\gamma, D_{\gamma K}} = (1 - g\beta) \left( P_{K, Ho} \omega_{K, Dy} + \frac{\alpha_{K, 71keV} \omega_{K, Dy}}{\alpha_{tot, 71keV} + 1} w \right)$$

$$I_{\gamma, Ho_K} = \frac{\alpha_{K, 56keV} \omega_{K, Ho}}{\alpha_{tot, 56keV} + 1}$$

$$\begin{aligned}
I_{\gamma,ErK} &= g_{\beta} v \frac{\alpha_{K,91keV} \omega_{K,Er}}{\alpha_{tot,91keV} + 1} \\
I_{\gamma,37keV} &= \frac{1}{\alpha_{tot,37keV} + 1} \\
I_{\gamma,56keV} &= \frac{1}{\alpha_{tot,56keV} + 1} \\
I_{\gamma,73keV} &= (1 - g_{\beta}) v \frac{1}{\alpha_{tot,73keV} + 1} \\
I_{\gamma,91keV} &= g_{\beta} w \frac{1}{\alpha_{tot,91keV} + 1},
\end{aligned}$$

wobei  $v$  und  $w$  die Verzweigungswahrscheinlichkeiten in die  $73keV$  bzw.  $91keV$  Niveaus des  $^{164}Dy$  und  $^{164}Er$  bezeichnen. Die Zahlenwerte (Tabelle 1) für die Röntgenfluoreszenzausbeuten  $\omega_K$  sind den Arbeiten von [Bam72] entnommen. Die Wahrscheinlichkeit für den Elektroneneinfang aus der K-Schale von Holmium,  $P_{K,Ho}$ , wurde entsprechend der Vorschrift [Bam77] aus den Daten für den Grundzustand und für das  $73keV$ -Niveau berechnet. Die beiden Ergebnisse unterschieden sich lediglich um 0.2%, weshalb nur ein Wert angegeben wurde. Die Faktoren für totale und K-Konversion,  $\alpha_{tot}$  und  $\alpha_K$ , wurden den Tabellen von [Rös78] entnommen. Wegen der in der Literatur mit großen Fehlern angegebenen Linienintensitäten wurden diese neu bestimmt (Abschnitt 2.4.2.2) bzw. überprüft.

**Tabelle 1:** Zahlenwerte der Konversionskoeffizienten, Fluoreszenzausbeuten und Einfangwahrscheinlichkeiten der verwendeten  $^{164}Ho$ -Zerfallskanäle

| Linie    | Übergang | $\alpha_{tot}$<br>$\pm 5\%$ | $\alpha_K$<br>$\pm 5\%$ | Element | $\omega_K$<br>$\pm 2\%$ | $P_K$<br>$\pm 3\%$ |
|----------|----------|-----------------------------|-------------------------|---------|-------------------------|--------------------|
| 37.3 keV | M1       | 7.75                        | 0.0                     | Dy      | 0.940                   | -                  |
| 45.9 keV | E3       | 4540.0                      | 0.0                     | Ho      | 0.943                   | 0.81               |
| 56.6 keV | M1       | 14.0                        | 11.7                    | Er      | 0.945                   | -                  |
| 73.4 keV | E2       | 9.09                        | 2.13                    |         |                         |                    |
| 91.3 keV | E2       | 4.23                        | 1.31                    |         |                         |                    |

## 2.2 Die Meßproben

Bei der verwendeten  $^{163}Ho$ -Probe handelt es sich um eine Holmiumfraktion, die zur Bestimmung der Neutrinomasse und der Halbwertszeit in Los Alamos aus einer in  $^{162}Er$

angereicherten Erbiumprobe erbrütet und bei ISOLDE in Genf chemisch aufbereitet wurde. Auf Grund der langen Bestrahlungsdauer von einem halben Jahr und der Tatsache, daß die Ausgangssubstanz auch  $^{164}\text{Er}$  enthielt, war in der Probe neben  $^{163}\text{Ho}$  auch  $^{165}\text{Ho}$  sowie eine Kontamination von  $^{166m}\text{Ho}$  vorhanden.

Die chemische Abtrennung des Holmiums erfolgte bei ISOLDE mittels Ionenaustauschchromatographie. Dabei wurde als Elutionsmittel  $\alpha$ -Hydroxy-Iso-Butyrat verwendet, weshalb die Probe als Ammonium- $\alpha$ -HIB-Komplex vorlag. Da solche Abtrennungen nicht unbedingt vollständig verlaufen, enthielt die uns überlassene Substanz neben Holmium auch noch Erbium und Dysprosium. Die genaue Zusammensetzung konnte von ISOLDE nicht angegeben werden. Eine Probeaktivierung am Van de Graaff Beschleuniger in Karlsruhe ergab jedoch, daß sie für die geplanten Messungen geeignet war.

### 2.2.1 Probe zur Querschnitts- und Röntgenfluoreszenzmessung

Um eine für Aktivierungsmessungen geeignete Ho-Probe zu erhalten, wurde die vorliegende Substanz in verdünnter Salpetersäure gelöst, im Trockenschrank getrocknet, mit 5 mg Graphitpulver vermischt und zwischen zwei Aluminiumfolien (1.5  $\mu\text{m}$  dick) in einem Preßwerkzeug bei 16 kN zu einer Tablette mit 5 mm Durchmesser und 7.8 mg Gewicht verpreßt. Die Tablette wurde mit einer Spur Sekundenkleber zwischen zwei Mylarfolien geklebt, welche auf einem Aluminiumring aufgespannt waren, wie er am Van de Graaff Beschleuniger standardmäßig für Aktivierungen eingesetzt wird.

Mit dieser Probe wurden ebenfalls die Röntgenfluoreszenzmessungen zur Bestimmung der Masse und der Elementzusammensetzung durchgeführt (siehe Abschnitt 2.4.2.2).

### 2.2.2 Probe zur Messung des Betaspektrums von $^{164}\text{Ho}$ und der Isotopenzusammensetzung

Im Zusammenhang mit der Neubestimmung der Linienintensitäten war es nötig, die Wahrscheinlichkeit für den  $\beta$ -Zerfall in das 91 keV-Niveau von  $^{164}\text{Er}$  zu bestimmen. Um eine möglichst dünne Probe zu gewinnen, wurde die Probe nach Abschluß aller anderen Messungen bei 1100° Grad im Platintiegel im Sauerstoffstrom zu Oxyd verglüht und anschließend in einem Tropfen Salpetersäure gelöst. Ein Teil dieser Lösung ( $\approx 50 \mu\text{g}$   $^{163}\text{Ho}$ ) wurde auf einer 0.75  $\mu\text{m}$  dicken Aluminiumfolie, auf der das Nitrat besonders gut haftet, eingetrocknet und mit derselben Folie abgedeckt. Diese Aluminiumfolie war ebenfalls auf einem Aluminiumring aufgespannt. Die Selbstabsorption kann bei dieser Anordnung im betrachteten Energiebereich vernachlässigt werden, so daß eine Messung des Betaspektrums in nahezu dem gesamten Raumwinkel möglich ist. Der verbleibende Teil der Lösung wurde zur Bestimmung der Isotopenzusammensetzung zurückbehalten.

## 2.3 Bestimmung der vorhandenen $^{163}\text{Ho}$ -Menge

Wegen der geringen Probenmasse, der niedrigen Strahlungsenergie und der unbekanntem Zusammensetzung konnte die Menge des vorhandenen Holmiums nicht mittels einfacher

Wägung oder über die Aktivität bestimmt werden. Es waren daher zwei Schritte notwendig, um die  $^{163}\text{Ho}$ -Masse zu bestimmen.

### 2.3.1 Bestimmung der Elementzusammensetzung und der Ho-Menge

Eine zerstörungsfreie Analyse der Aktivierungsprobe ist mittels der Methode der Röntgenfluoreszenz möglich. Dieses Verfahren wird von der Gruppe für Gammaskopie am IK3 eingesetzt. Bei der Anwendung dieser Methode wurde die gesamte Aktivierungsprobe einem kollimierten, sehr intensiven Röntgenstrahl ausgesetzt. Die so im Ho, Er und Dy induzierte, charakteristische Röntgenstrahlung der K-Schale wird ebenfalls kollimiert in rückwärtiger Richtung mit einem hochauflösenden Germaniumdetektor aufgenommen.

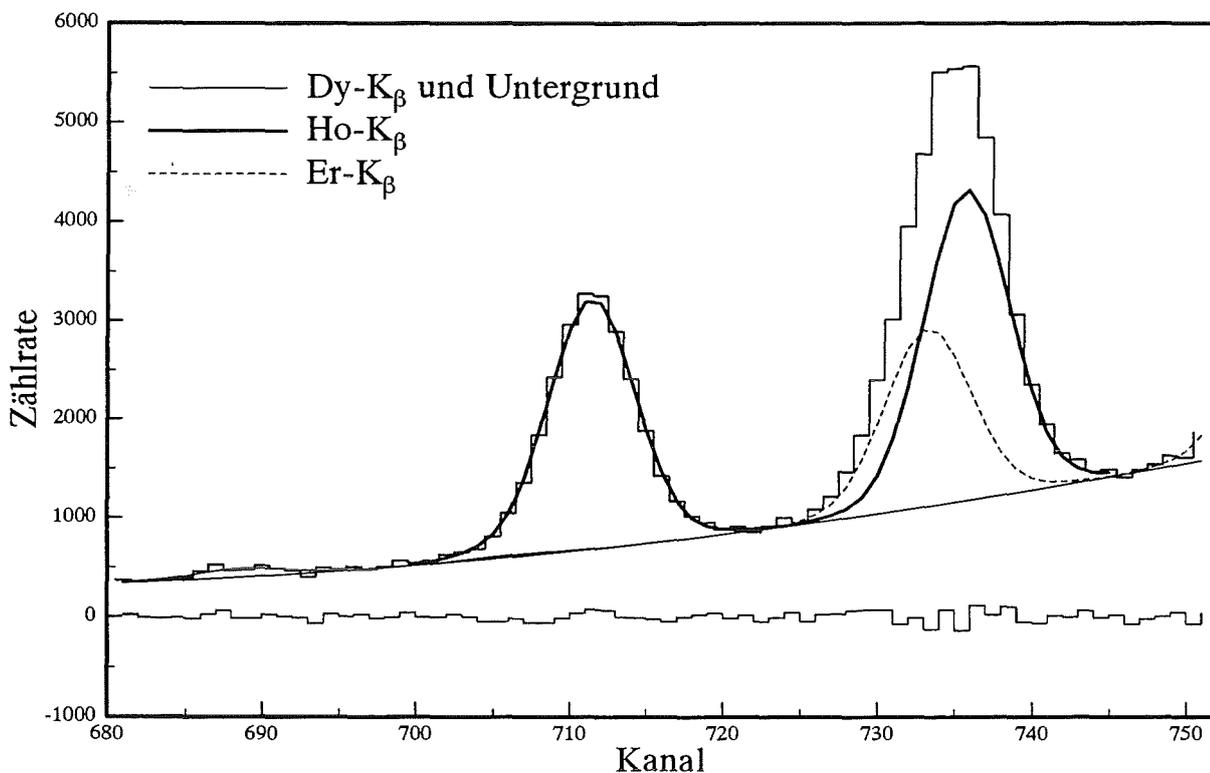


Abbildung 5: Induziertes Röntgenspektrum im Gebiet der Ho $_{K\beta}$ -Linien

Abbildung 5 zeigt das induzierte Röntgenspektrum im Bereich der Ho $_{K\beta}$ -Linien. Aus den Zählraten der verschiedenen Röntgenlinien lassen sich bei bekanntem Verlauf der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors, der Röntgenfluoreszenz der K-Schale und der Selbstabsorption in der Probe die relativen Häufigkeiten der vorhandenen Elemente sowie durch Vergleichsmessungen mit Proben bekannter Zusammensetzung die absoluten Probenmengen ermitteln. Die Auswertung der Ho/Er/Dy-K $_{\alpha,\beta}$ -Multipletts erfolgte mit dem im Anhang beschriebenen Programm ANAMU.

Insgesamt wurden 12 Eichproben, in gleicher Form wie die  $^{163}\text{Ho}$  Probe, jedoch mit unterschiedlichen Holmium- und Erbiumgehalten hergestellt und zweimal jeweils 2000 Sekunden gemessen.

Aus der Analyse der Multipletts ergab sich ein Atomverhältnis von 1.43 für Er/Ho, sowie 16 für Ho/Dy. Wegen der isolierten Stellung der Ho- $K_{\beta}$ -Linie wurde diese für die Relativmessungen der Holmiummassen verwendet. Der Mittelwert aller durchgeführten Messungen ergab eine Probenmenge von  $(8.29 \pm 0.12) \cdot 10^{17}$  Holmiumatomen.

### 2.3.2 Bestimmung der Isotopenzusammensetzung

Für die Bestimmung der vorhandenen  $^{163}\text{Ho}$ -Atome ist noch die Kenntnis des Isotopenverhältnisses  $^{163}\text{Ho}$  zu  $^{165}\text{Ho}$  nötig. Hierbei ergibt sich bei der vorliegenden Probe das Problem der Interferenz durch das eventuell vorhandene  $^{163}\text{Dy}$  (Abbildung 2), da wegen der sehr hohen chemischen Ähnlichkeit der Seltenen Erden eine Diskriminierung am Massentrenner selbst nicht möglich ist. Eine chemische Abtrennung des Dysprosiums wäre zum einen sehr aufwendig, zum anderen birgt sie die Gefahr, daß die Isotopen-Information hierbei durch Kontamination mit "natürlichem" Fremdholmium zerstört wird. Es läßt sich jedoch aus der von ISOLDE angegebenen Zusammensetzung des ursprünglichen Erbiums, der Bestrahlungsdauer und den thermischen Neutroneneinfangquerschnitten des bestrahlten Isotopengemischs abschätzen, daß der bei der Röntgenfluoreszenz beobachtete Dysprosium-Gehalt ausschließlich auf  $^{164}\text{Dy}$  zurückgeführt werden kann, das durch zweimaligen Neutroneneinfang am  $^{162}\text{Er}$  erzeugt und nicht abgetrennt wurde; in diesem Fall läge beim  $^{163}\text{Ho}$  keinerlei Interferenz durch  $^{163}\text{Dy}$  vor. Falls jedoch der Dy-Anteil eine andere Ursache hat, wäre es möglich, aus den im Massenspektrum beobachteten, interferenzfreien  $^{160}\text{Dy}$ - und  $^{161}\text{Dy}$ -Intensitäten sowie deren Verhältnis die Intensität des  $^{163}\text{Dy}$  zu berechnen oder aber abzuschätzen.

Die massenspektrometrische Untersuchung der  $^{163}\text{Ho}$ -Probe wurde in der Analytikabteilung der Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe in Karlsruhe durchgeführt. Als erstes Ergebnis konnte sofort festgestellt werden, daß die Probe weder die Masse 160 noch 161 enthielt (was noch nicht zwingend  $^{163}\text{Dy}$  ausschließt). Während der Vorbereitungsmessungen wurde festgestellt, daß die drei Elemente am Massenspektrometer einen deutlich unterschiedlichen Intensitätsverlauf als Funktion der Zeit aufweisen. Die Analyse dieses Verlaufs der normierten, gemessenen Massenverhältnisse (Abbildung 6) zeigt folgende Probeneigenschaften:

- die Verhältnisse 163/165 sind zeitunabhängig, was heißt, daß keine  $^{163}\text{Dy}$ -Interferenz vorliegt;
- die Verhältnisse 162/165 und 166/165 zeigen einen identischen Verlauf, sind also ausschließlich auf Erbium zurückzuführen, was bedeutet, daß auch kein  $^{162}\text{Dy}$  vorhanden war;
- der Verlauf des 164/165-Verhältnisses zeigt entgegengesetzte Tendenz – die nachlassende  $^{164}\text{Dy}$ -Intensität überwiegt die des ansteigenden  $^{164}\text{Er}$ .

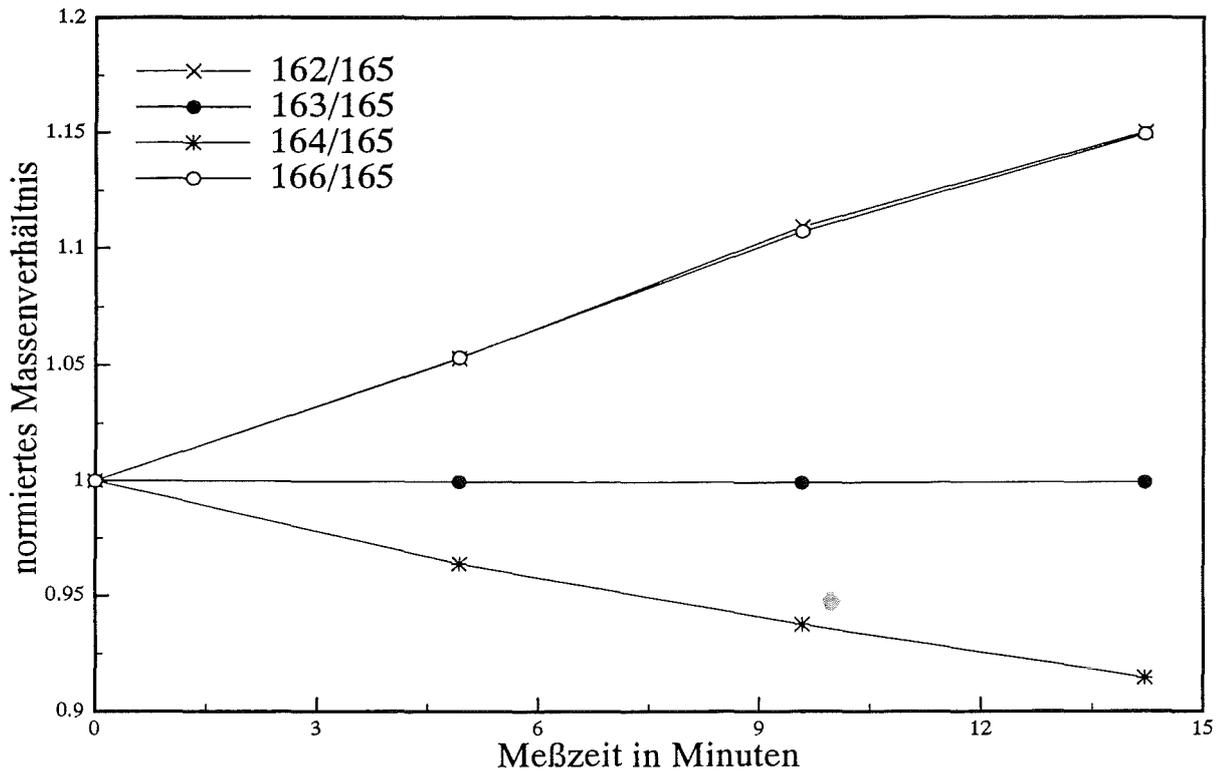


Abbildung 6: Normierte Massenverhältnisse als Funktion der Meßzeit

Dies bedeutet letztlich, daß das gemessene Massenverhältnis 163/165 tatsächlich das Verhältnis der Holmiumatome ist:

$$\frac{^{163}\text{Ho}}{^{165}\text{Ho}} = 3.954 \pm 0.003.$$

Weiter folgt, daß alles bei der Röntgenfluoreszenzmessung gefundene Dysprosium, wie eingangs angedeutet, ausschließlich  $^{164}\text{Dy}$  war. Die von ISOLDE gelieferte Probe wurde also vor der Bestrahlung von allen Dysprosiumanteilen gereinigt, während die Trennung nach der Bestrahlung lediglich auf Erbium optimiert war.

## Bonbon

Schaut man ganz genau hin, sieht man – im Bereich des Messfehlers – einen sehr leichten Abfall des 163/165-Verhältnisses ( $\approx 5 \cdot 10^{-5}/\text{min}$ ). Dieser kann auf den winzigen  $^{163}\text{Dy}$ -Anteil zurückgeführt werden, der aus dem Zerfall des  $^{163}\text{Ho}$  in den 9.5 Jahren seit der Erbrütung der Probe entstand. Aus den drei Zeitabhängigkeiten der Verhältnisse und dem bekannten Verhältnis  $^{164}\text{Er}$  zu  $^{164}\text{Dy}$  läßt sich dieser  $^{163}\text{Dy}$ -Anteil zu 0.14% der  $^{163}\text{Ho}$ -Menge berechnen. Dies entspricht einer  $^{163}\text{Ho}$ -Halbwertszeit von 4610 Jahren, in sehr guter Übereinstimmung mit dem Literaturwert von  $4570 \pm 30$  Jahren (z.B. [Kaw88])!

## 2.4 Bestimmung des stellaren Einfangquerschnitts von $^{163}\text{Ho}$

### 2.4.1 Bestrahlung am Van de Graaff-Beschleuniger

#### 2.4.1.1 Zur Querschnittsmessung

Es fanden insgesamt 12 Aktivierungen statt, 6 davon waren erfolgreich, die anderen mußten aus diversen Gründen verworfen werden. Die Probe befand sich zur Normierung des Neutronenflusses immer zwischen zwei Goldfolien und lag unmittelbar auf dem Neutronentarget, um maximalen Neutronenfluß zu erreichen.

Die jeweiligen Bestrahlungszeiten betragen 40 bzw. 60 Minuten bei einem Neutronenfluß von  $\approx 3 \cdot 10^9 \text{sec}^{-1} \text{cm}^{-2}$ . Der Verlauf des Neutronenflusses wurde mit einem in 1 m vom Neutronentarget entfernten  $^6\text{Li}$ -Glas-Detektor in Intervallen von einer Sekunde aufgenommen.

Die Auszählung der induzierten Aktivität erfolgte mit einem  $40 \text{cm}^3$  HPGe-Detektor. Bei drei Aktivierungen wurde die Probe zum Auszählen direkt auf das Berylliumfenster des Detektors gelegt. Wegen der höheren Ansprechwahrscheinlichkeit ermöglichte es diese Geometrie, den zeitlichen Verlauf der Linienintensitäten in 5 Meßintervallen zu je 10 Minuten mit besserer Statistik aufzunehmen. Diese Spektren wurden später für die Bestimmung der Halbwertszeiten verwendet.

Nach den übrigen drei Aktivierungen fand die Auszählung lediglich in einem einzigen Meßintervall von 1 h statt. Die Probe war hierbei  $\approx 8 \text{cm}$  von Detektor entfernt, um Korrekturen für koinzident nachgewiesene Quanten möglichst gering zu halten. Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors wurde für diesen Abstand mittels verschiedener Eichquellen bestimmt. Diese Spektren wurden einzeln zur Bestimmung des Neutroneneinfangquerschnitts sowie als Summenspektrum zur Überprüfung bzw. Neuberechnung der Linienintensitäten im  $^{164}\text{Ho}$ -Zerfall verwendet.

#### 2.4.1.2 Zum Betaspektrum von $^{164}\text{Ho}$

Auf Grund der geringen Probenmenge mußte ein sehr hoher Neutronenfluß erreicht werden, um am Endpunkt des Betaspektrums genügend Zählrate für die Trennung der zwei Spektrumsgruppen mit 860 keV und 950 keV Endpunktsenergie zu erhalten. Hierzu wurde für die Aktivierung ein Neutronentarget mit besonders dicker Lithiumschicht und eine Beschleunigerspannung von 2.2 MV verwendet. Damit lag die Protonenenergie deutlich über der Reaktionsschwelle für die  $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ -Reaktion, was eine wesentlich höhere Neutronenausbeute ergab. Zusätzlich wurde die Probe von Paraffinesteinen umgeben, um auch noch moderierte, rückgestreute Neutronen für die Aktivierung zu nutzen.

Die Bestrahlung erfolgte über vier Halbwertszeiten (2 h), das Betaspektrum wurde mit der am Institut standardmäßig eingesetzten  $4\pi$ -Si(Li)-Detektoranordnung gemessen (z.B.: [Sch90]).

## 2.4.2 Ergebnisse und Diskussion

Alle durchgeführten Auswertungen wurden durch die in der Probe vorhandenen Begleitisotope erschwert. So erlaubte es die  $^{166m}\text{Ho}$ -Kontamination nicht, die Erbium-Röntgenlinien mit in die Auswertungen einzubeziehen. Aus dem ebenfalls in der Probe vorhandenen  $^{162,164}\text{Er}$  entstehen bei der Aktivierung kurzlebige Isotope, die hauptsächlich Holmium-Röntgenstrahlung emittieren, so daß auch hier die Auswertung eingeschränkt war. Es konnte dafür jedoch der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von  $^{162}\text{Er}$  angegeben werden (Abschnitt 2.4.2.4).

Das HPGe-Spektrum im Bereich der  $K_\beta$ -Linien (Abbildung 7) zeigt, daß zur vollständigen Analyse die Entfaltung der überlappenden Röntgenmultipletts nötig ist, wobei erschwerend hinzukommt, daß innerhalb des  $K_\beta$ -Multipletts die  $56.6\text{ keV}$ -Linie des  $^{164m}\text{Ho}$ -Zerfalls liegt. Da die natürliche Linienbreite von Röntgenlinien schwerer Elemente im Vergleich zur Detektoraufösung nicht mehr vernachlässigbar ist, weisen diese, im Gegensatz zu Linien aus Kernübergängen, im Spektrum unterschiedliche Linienformen auf. Standardprogramme sind jedoch lediglich in der Lage, entweder Gamma- oder Röntgenmultipletts zu entfalten, weshalb eigens das im Anhang beschriebene Programm ANAMU entwickelt werden mußte, mit dem auch gemischte Multipletts bearbeitet werden können.

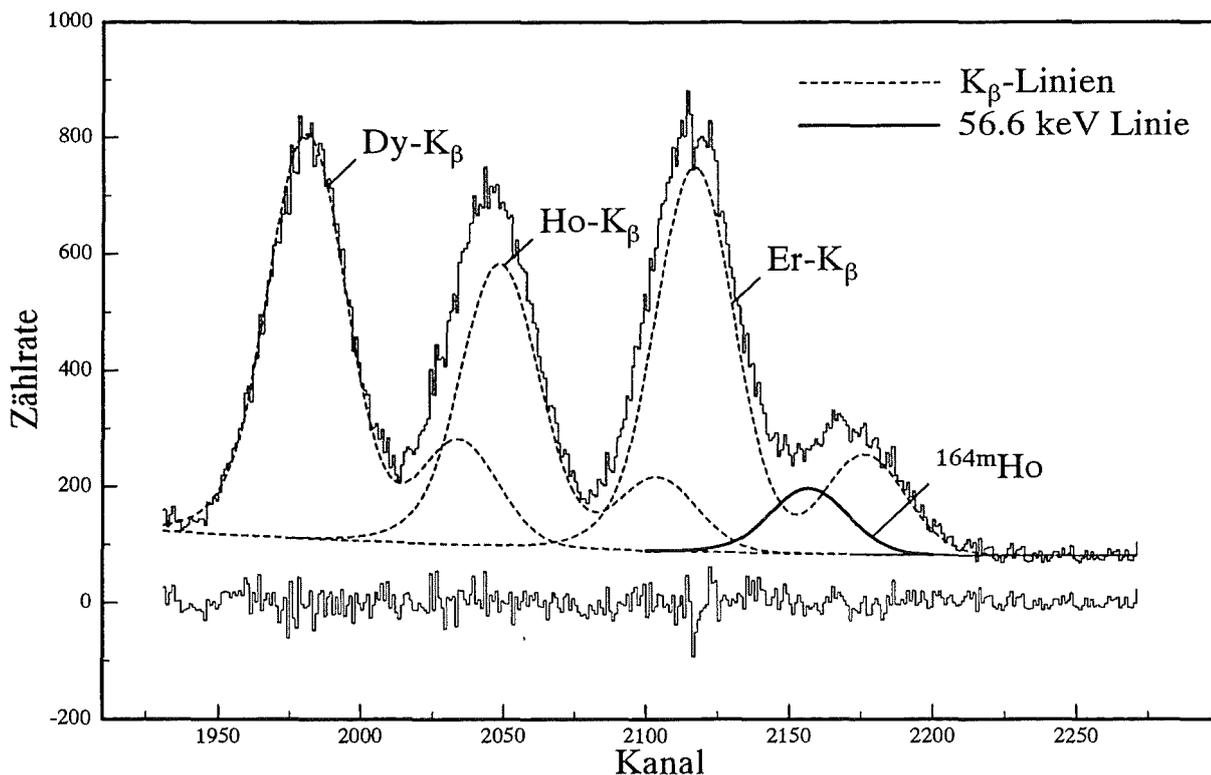


Abbildung 7: Dy/Ho/Er- $K_\beta$  Multiplett mit  $56\text{keV}$ -Linie

**Tabelle 2:** Zählraten und Parameter

| Linie   | $Z_\gamma$       | $K_\gamma$  | $\epsilon_\gamma \pm 2\%$ | $C_\gamma$ | $I_\gamma$          |
|---------|------------------|-------------|---------------------------|------------|---------------------|
| 37.3keV | $6113 \pm 122$   | 0.982       | 0.01437                   | 0.988      | $0.114 \pm 0.006$   |
| $Dy_K$  | $149374 \pm 448$ | $< 0.988 >$ | $< 0.01452 >$             | 0.995      | $0.547 \pm 0.016$   |
| 56.6keV | $3861 \pm 139$   | 0.985       | 0.01464                   | 0.998      | $0.0667 \pm 0.0033$ |
| 73.4keV | $5154 \pm 108$   | 0.986       | 0.01481                   | 0.989      | $0.0186 \pm 0.0007$ |
| 91.3keV | $6956 \pm 111$   | 0.991       | 0.01429                   | 1          | $0.0256 \pm 0.0008$ |

#### 2.4.2.1 Die Halbwertszeit des $^{164m}\text{Ho}$ -Isomers

Aus oben genanntem Grund verbleiben zur Bestimmung der Halbwertszeit des Isomers nur die 37.3 keV- oder die 56 keV-Linien. Die Analyse der 3 Meßreihen ergab mit  $38.7 \pm 1.3 \text{ min}$  eine im Vergleich mit dem in den *Nuclear Data Sheets* [Shu86] empfohlenen Wert von  $37.5_{-0.5}^{+1.5} \text{ min}$  etwas längere Halbwertszeit. Vergleicht man dieses Ergebnis jedoch mit dem Mittelwert aller in der Originalliteratur [Jør66, Set66, Pat71, Dro72, Kaj72] angegebenen Werten von  $38.5 \text{ min}$ , so zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Für die spätere Auswertung wurde  $t_{\frac{1}{2}} = 38.5 \pm 0.8 \text{ min}$  verwendet.

Wegen der geringen Unterschiede in der Halbwertszeit war die Statistik leider nicht ausreichend, um die Halbwertszeit des Grundzustands ebenfalls zu bestimmen. Hierfür wurde  $t_{\frac{1}{2}} = 29 \pm 1.0 \text{ min}$  verwendet [Shu86].

#### 2.4.2.2 Die Linienintensitäten im $^{164}\text{Ho}$ -Zerfall

Alle bisher durchgeführten Arbeiten (Literatur s.o.) bezüglich der Linienintensitäten im Zerfall des  $^{164}\text{Ho}$  wiesen grundsätzliche Meßprobleme auf und führten zum Teil zu sehr unterschiedlichen Ergebnissen. Gründe hierfür waren Detektoren mit geringer Energieauflösung, dicke Holmiumproben mit hoher Selbstabsorption bzw. stark vereinfachte Analysenmethoden. Die Literaturwerte streuen daher um über 10%, so daß einige Linienintensitäten im Rahmen dieser Arbeit neu bestimmt wurden.

Die in Tabelle 2 aufgeführten Zählraten  $Z_\gamma$  im Zerfallsspektrum wurden alle mit dem Programm ANAMU aus dem Summenspektrum der drei Querschnittsaktivierungen bestimmt. Beim  $K_\alpha$ -Multipllett wurden die  $\alpha_1$ - und  $\alpha_2$ -Linien einzeln gefittet. Beim  $K_\beta$ -Multipllett wurde von der Möglichkeit Gebrauch gemacht, genau bekannte Intensitätsverhältnisse (in diesem Fall der  $\beta_1$ - und  $\beta_2$ -Linien) vorzugeben (Abbildung 7), was die Anzahl der freien Parameter verringert, die Rechenzeit verkürzt und den Fehler reduziert.

Tabelle 2 zeigt die zugehörigen Detektor- und Probenparameter und nimmt die im folgenden vorgestellten Ergebnisse vorweg. Die Probenselbstabsorption  $K_\gamma = \prod_i K_{i,\gamma}$  aller darin enthaltenen Substanzen  $i$  (Ho/Er/C/Al/ $\alpha$ -HIB) wurden aus den Tabellen von [Sto70] berechnet :

$$K_{i,\gamma} = \frac{1 - e^{-\mu_i d_i}}{\mu_i d_i};$$

$\mu_i$  bezeichnet die totale Gammaabsorptionskonstante und  $d_i$  die Probendicke der Substanz  $i$ . Ein Fehler wurde aufgrund der minimalen Korrektur nicht angegeben. Die Detektoransprechwahrscheinlichkeit  $\epsilon_\gamma$  in diesem Energiebereich wurde mit den Eichquellen  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{57}\text{Co}$  und  $^{109}\text{Cd}$  bestimmt und ihr Verlauf mit der Funktion  $\epsilon(E) = \Omega e^{\alpha E^\beta} (1 - e^{-\gamma E^\delta})$  gefittet und interpoliert [Gal74]. Ihr relativer Fehler wurde vernachlässigt, ihr absoluter entsprechend den Fehlern der Eichquellen zu 2 % angenommen.

Die Korrekturfaktoren  $C_\gamma$  für koinzident nachgewiesene Übergänge (siehe Anhang A) liegen lediglich in der Größe der totalen Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors und können direkt angegeben werden. Die 91keV-Linie im Erbium besitzt keine koinzidenten Übergänge. Die Röntgenstrahlung aus der L- und allen höheren Schalen wurden wegen der hohen Selbstabsorption und der geringen Nachweiswahrscheinlichkeit nicht berücksichtigt. Koinzidenzeffekte zweiter Ordnung und Winkelkorrelationen wurden vernachlässigt. In diesem niedrigen Energiebereich kann für die totale Ansprechwahrscheinlichkeit  $\epsilon_{tot,\gamma}$  die Ansprechwahrscheinlichkeit der Linienenergie  $\epsilon_\gamma$  verwendet werden. *Pile-up*-Effekte wurden wegen der geringen Zählraten ebenfalls vernachlässigt.

**Die Intensitäten der 37keV- und 56keV-Linien** Aufgrund der Ho-Röntgen-Störaktivität des erzeugten  $^{163}\text{Er}$  konnte der K-Konversionsfaktor  $\alpha_K$  der 56 keV-Linie nicht überprüft werden. Damit konnten nur die gemessenen Zählraten der zwei Linien der Kaskade mit den sich aus den Konversionsfaktoren ergebenden Intensitäten verglichen werden. Man errechnet das Verhältnis

$$\frac{\left(\frac{Z_\gamma}{C_\gamma I_\gamma K_\gamma \epsilon_\gamma}\right)_{37\text{keV}}}{\left(\frac{Z_\gamma}{C_\gamma I_\gamma K_\gamma \epsilon_\gamma}\right)_{56\text{keV}}} = 1.048 \pm 0.041$$

Das Ergebnis ist im Rahmen seines Fehlers mit eins verträglich. Für die Linienintensität wurde daher, entsprechend dem Tabellenwerk für Konversionsfaktoren [Rös78], ein Fehler von 5 % angenommen.

Die sehr hoch konvertierte 46 keV-Linie derselben Kaskade des Isomers kann nicht nachgewiesen werden, ein in der Literatur [Shu86] vorgeschlagener schwacher E2 Übergang vom  $3^+$  ins  $1^+$  Niveau des  $^{164}\text{Ho}$  konnte weder widerlegt noch bewiesen werden.

**Die Verzweigungswahrscheinlichkeit ins 73 keV-Niveau des  $^{164}\text{Dy}$**  Von den insgesamt stattgefundenen Röntgenereignissen  $N_{DyK}$  entfällt ein Teil  $N_\alpha$  auf Röntgenquanten, die durch Konversion des Übergangs vom 73 keV-Niveau in den Grundzustand

erzeugt wurden.

$$N_{DyK \text{ bzw. } 73keV} = \left( \frac{Z_\gamma}{C_\gamma K_\gamma \epsilon_\gamma} \right)_{DyK \text{ bzw. } 73keV}$$

$$N_\alpha = \alpha_{K,73keV} \omega_{K,Dy} N_{73keV}$$

Damit ist die Anzahl der insgesamt stattgefundenen Zerfälle zum  $^{164}\text{Dy}$

$$N_\epsilon = \frac{N_{DyK} - N_\alpha}{P_{K,H_0} \omega_{K,Dy}}$$

und die Wahrscheinlichkeit für den Einfang in dessen  $73 \text{ keV}$ -Niveau

$$w = \frac{N_{73keV}(1 + \alpha_{tot,73keV})}{N_\epsilon} = 0.281 \pm 0.011$$

**Die Verzweigungswahrscheinlichkeit ins  $91 \text{ keV}$ -Niveau des  $^{164}\text{Er}$**  Für diesen Zahlenwert findet man in der Literatur [Shu86, Jør66, Set66, Pat71, Dro72, Kaj72] die größte Streuung, wobei im Allgemeinen weder die Meßmethode noch eine Fehlerabschätzung angegeben wurde. Der Wertebereich erstreckt sich von  $v = 0.24 \pm 0.043$  [Jør66] bis  $v = 0.38$  [Set66], wobei nur in letzterer Arbeit der Verlauf des Betaspektrums explizit herangezogen wird.

Abbildung 8 zeigt das mit den Si(Li)-Detektoren über eine Meßzeit von  $4400 \text{ sec}$  aufgenommene Betaspektrum. Auf Grund der hohen Zählrate kam es zu *Pile-up*-Effekten, welche die Untergrundbestimmung im Bereich der Endpunkte der zwei Spektrumsgruppen erschweren<sup>1</sup>. Für die Fitfunktion des Spektrums wurde daher mit konstanten, linearen, parabolischen, exponentiellen und "betaspektrumsförmigen" Untergrundsformen experimentiert und der Bereich der Auswertung auf  $E > 700 \text{ keV}$  beschränkt. Als weitere freie Parameter des Fits wurden die Intensitäten der Betagruppen und die Endpunktsenergie  $E_0$  der  $950 \text{ keV}$ -Gruppe verwendet. Die Energieauflösung des Detektorsystems wurde nicht berücksichtigt.

Die besten Fits, d.h. kleinsten  $\chi^2$ -Werte (mittleren, quadratischen Abweichungen), ergaben sich für exponentielle, parabolische und konstante Untergrundsformen, wobei die gefundenen Intensitätsverhältnisse und Endpunktsenergien sich nur geringfügig ( $\pm 2\%$ ) unterschieden. Abbildung 8 zeigt den Fitverlauf für eine exponentielle Untergrundfunktion. Die Mittelwerte der oben genannten, "besten" Fits betragen

$$v = 0.400 \pm 0.024$$

$$E_0 = 950 \pm 4 \text{ keV},$$

in recht guter Übereinstimmung mit den (ohne Fehlern angegebenen) Werten von [Set66] und [Pat71].

<sup>1</sup>Es wurde daher auch auf eine Kuriedarstellung verzichtet.

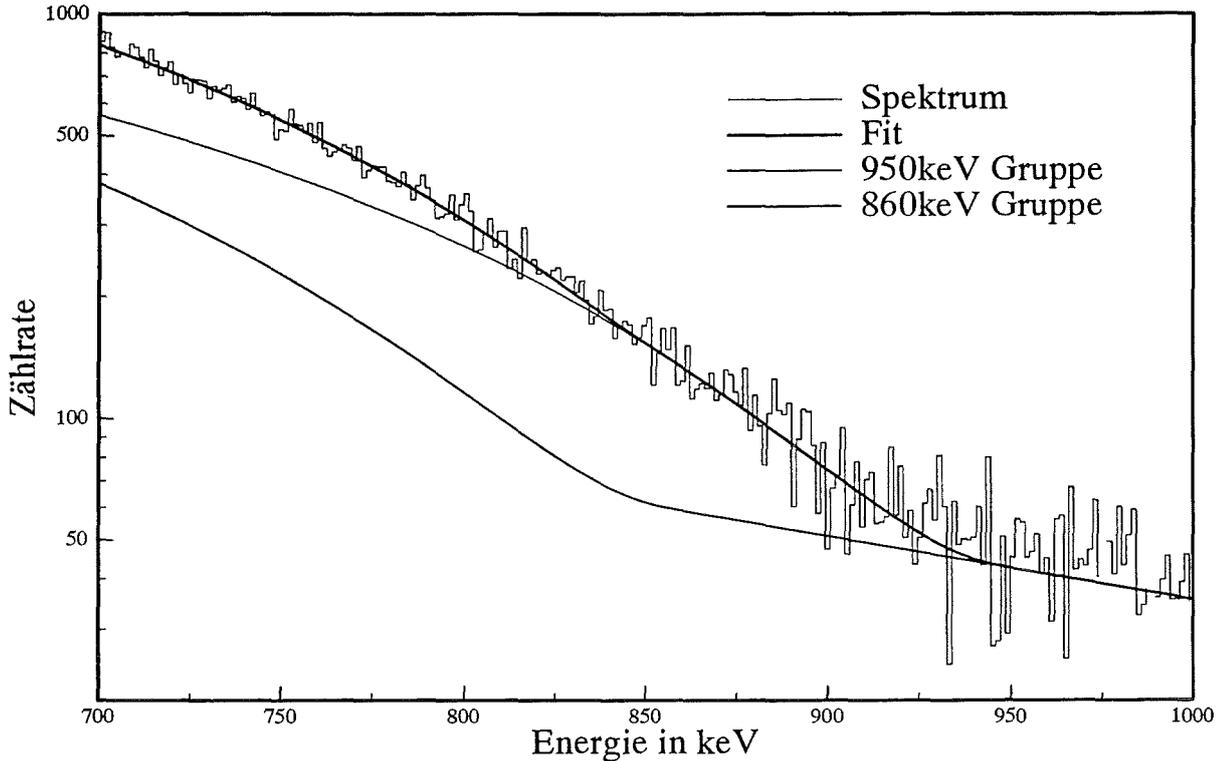


Abbildung 8: Betaspektrum von  $^{164}\text{Ho}$

**Die Intensitäten der 91 keV- und 73 keV-Linien** Aus dem totalen Konversionsfaktor  $\alpha_{tot,91\text{keV}}$  und der Verzweigungswahrscheinlichkeit  $\nu$  folgt die Anzahl der stattgefundenen  $\beta^-$ -Zerfälle  $N_\beta$  und so die Wahrscheinlichkeit  $g_\beta$  für diesen Zerfallskanal.

$$N_\beta = (1 + \alpha_{tot,91\text{keV}}) \frac{1}{\nu} \left( \frac{Z_\gamma}{K_\gamma \epsilon_\gamma} \right)_{91\text{keV}}$$

$$g_\beta = \frac{N_\beta}{N_\beta + N_\epsilon} = 0.334 \pm 0.017$$

Die Linienintensitäten ergeben sich nach den Formeln in Abschnitt 2.1.2 (siehe Tabelle 2).

Die Fehler wurden wegen der Komplexität der Ausdrücke größtenteils numerisch bestimmt. Sie sind besonders im Fall der 73 keV- und 91 keV-Linien auffällig niedrig, da sich die Fehler, speziell der Verzweigungswahrscheinlichkeit  $\nu$ , teilweise kompensieren.

### 2.4.2.3 Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von $^{163}\text{Ho}$

Wie in Abschnitt 2.4.1.1 erläutert, wurden nur drei der Aktivierungen für die Querschnittsbestimmung ausgewertet, hier mit -1-, -2- und -3- bezeichnet. Die Auswertung erfolgte nach den in 2.1 vorgestellten Gleichungen und mit den im letzten Abschnitt angegebenen Daten. Sie verlief in zwei Schritten: die Bestimmung des experimentellen Einfangquerschnitts ins Isomer  $\sigma_m$ , dann die des Querschnitts in den Grundzustand  $\sigma_g$ . Zur

Normierung des Neutronenflusses wurde der von [Rat88] angegebene Goldquerschnittswert  $\sigma_{Au} = 586 mb$  für das verwendete *quasistellare* Aktivierungsspektrum verwendet.

**Tabelle 3:** Einzelergebnisse der Querschnittsbestimmung für das Aktivierungsspektrum

| Linie                 | Querschnitt in mb |           |           | Linienmittel | Mittel                   |
|-----------------------|-------------------|-----------|-----------|--------------|--------------------------|
|                       | -1-               | -2-       | -3-       |              |                          |
| 37 keV                | 434 ± 23          | 428 ± 11  | 418 ± 17  | 426 ± 23     | $\sigma_m = 436 \pm 23$  |
| 56 keV                | 462 ± 37          | 461 ± 28  | 422 ± 29  | 448 ± 29     |                          |
| <i>Dy<sub>K</sub></i> | 1701 ± 10         | 1677 ± 8  | 1674 ± 8  | 1682 ± 50    | $\sigma_g = 1704 \pm 68$ |
| 73 keV                | 1744 ± 87         | 1628 ± 57 | 1834 ± 70 | 1727 ± 79    |                          |
| 91 keV                | 1848 ± 66         | 1707 ± 43 | 1656 ± 50 | 1722 ± 60    |                          |

Wie bei der Bestimmung der Linienintensitäten wurden die Fehler der Werte  $C_\gamma$  und  $K_\gamma$  vernachlässigt. Die in Tabelle 3 angegebenen Fehler der Einzelwerte beziehen sich nur auf die Zählraten, die Fehler der Linienmittel enthalten den Fehler der Linienintensitäten und die Fehler der Mittelwerte aller weiteren Fehlerquellen.

Da es sich bei dem Aktivierungsspektrum nur um ein *quasistellares* Spektrum handelt, das ungefähr einer Temperatur von 25 keV [Rat88] entspricht, muß der gefundene Wert noch auf den maxwellgemittelten Wert  $\langle \sigma \rangle_{kT}$  umgerechnet werden. Dieser wird durch den folgenden Ausdruck definiert und im Allgemeinen für eine Temperatur von 30 keV angegeben:

$$\langle \sigma \rangle_{kT} = \frac{\langle \sigma v \rangle}{v_T} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\int_0^\infty \sigma(E) E e^{-E/kT} dE}{\int_0^\infty E e^{-E/kT} dE}.$$

Mit  $E$  wurde die kinetische Energie im Schwerpunktsystem bezeichnet. Der Faktor  $2/\sqrt{\pi}$  resultiert aus der üblichen Normalisierungskonvention, nach welcher nicht die mittlere thermische Geschwindigkeit  $\langle v \rangle$ , sondern die wahrscheinlichste thermische Geschwindigkeit  $v_T = \sqrt{2kT/m}$  verwendet wird. Die Umrechnung geschieht unter der Annahme, daß der Querschnittsverlauf von Gold und  $^{163}\text{Ho}$  derselbe ist. Für diese Extrapolation wird ein systematischer Fehler von 2% veranschlagt. Der maxwellgemittelte Goldquerschnitt für eine Temperatur von 30 keV beträgt  $582 \pm 9 mb$  [Rat88]. Es ergibt sich letztlich

$$\langle \sigma(^{163}\text{Ho}) \rangle_{30\text{keV}} = 2125 \pm 95 mb$$

Der experimentelle Querschnitt liegt also recht nahe am theoretischen Wert von [Har81].

#### 2.4.2.4 Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von $^{162}\text{Er}$

Das p-Prozeß-Isotop  $^{162}\text{Er}$  ist zwar für den s-Prozeß nicht von Bedeutung, sein stellarer Querschnitt kann jedoch zur Überprüfung der Qualität theoretischer Rechnungen dienen und soll daher der Vollständigkeit halber hier mitangegeben werden.

Aus dem Konversionskoeffizient und der Zählrate der  $37\text{ keV}$ - und  $56\text{ keV}$ -Linie des  $^{164m}\text{Ho}$ -Zerfalls folgt der Anteil der  $\text{Ho}_K$ -Röntgenstrahlung aus den Zerfällen des ebenfalls bei der Aktivierung erzeugten  $^{163}\text{Er}$  und  $^{165}\text{Er}$ . Der  $^{165}\text{Er}$  Anteil ist aufgrund seiner Halbwertszeit gering und kann wegen des bekannten  $^{164}\text{Er}$ -Querschnitts [Bee84] abgezogen werden.

Der  $^{162}\text{Er}$ -, bzw.  $^{164}\text{Er}$ -Gehalt betrug vor der  $^{163}\text{Ho}$ -Erbrütung 25.8 %, bzw. 8.1 %. Da bei der  $^{163}\text{Ho}$ -Erbrütung die Isotopenverhältnisse nur geringfügig verändert wurden, kann auch bei der Aktivierungsprobe von diesen Werten ausgegangen werden (ein systematischer Fehler von 2 % wurde eingerechnet).

Das bei den Aktivierungen erzeugte  $^{163}\text{Er}$  hat eine Halbwertszeit von 75 min und zerfällt durch Elektroneneinfang zu 99.9 % in den Grundzustand des  $^{163}\text{Ho}$ . Im Zeitverhalten der  $\text{Ho}_K$ -Zählraten in den Aktivierungsspektren zur Halbwertszeitbestimmung konnte dieser Beitrag deutlich gezeigt werden; er beträgt ca. 50%.

Die Querschnittsbestimmung erfolgte nach derselben Methode wie für  $^{163}\text{Ho}$ . Tabelle 4 zeigt analog zu der des  $^{163}\text{Ho}$  die für das Aktivierungsspektrum gewonnenen Querschnittswerte.

Tabelle 4: Querschnittswerte für das Aktivierungsspektrum

| Linie         | Querschnitt in mb |               |               | Mittel                  |
|---------------|-------------------|---------------|---------------|-------------------------|
|               | -1-               | -2-           | -3-           |                         |
| $\text{Ho}_K$ | $1760 \pm 106$    | $1578 \pm 63$ | $1599 \pm 80$ | $\sigma = 1635 \pm 111$ |

Es folgt der maxwellgemittelte Neutroneneinfangquerschnitt

$$\langle \sigma(^{162}\text{Er}) \rangle_{30\text{keV}} = 1624 \pm 124\text{ mb}$$

Für die Extrapolation wurden wiederum 2 % systematischer Fehler addiert. Die theoretischen Arbeiten von [Hol76] und [Har81] sagten Werte von  $1534\text{ mb}$  und  $1670\text{ mb}$  voraus, in recht guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Ergebnis.

# Kapitel 3

## Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von $^{155}\text{Eu}$

Mit  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{155}\text{Eu}$  trifft der s-Prozeß-Pfad auf zwei direkt aufeinanderfolgende Verzweigungsisotope (siehe Abbildung 1 bzw. 9). Beide Kerne zeigen eine starke Temperaturabhängigkeit ihrer Zerfallskonstanten, weshalb die Analyse der zugehörigen Verzweigungen im Hinblick auf die s-Häufigkeiten der Isotope  $^{154}\text{Gd}$  und  $^{155}\text{Gd}$  genaue Aufschlüsse über diesen Parameter des stellaren Plasmas erlaubt.

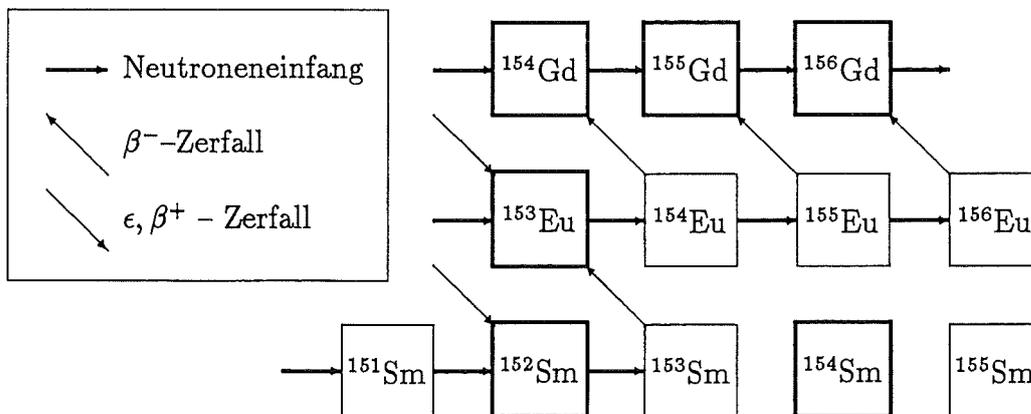


Abbildung 9: Der s-Prozeß-Pfad im Bereich der Verzweigungen beim  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{155}\text{Eu}$

Während es sich bei  $^{154}\text{Gd}$  um einen reinen s-Kern handelt, der durch  $^{154}\text{Sm}$  gegen den r-Prozeß geschützt ist, sind in den solaren  $^{155}\text{Gd}$ -Häufigkeiten auch r-Prozeßbeiträge enthalten, die in diesem Massengebiet die s-Anteile um ein Vielfaches übersteigen. Da diese r-Beiträge zum  $^{155}\text{Gd}$  mit hohen Unsicherheiten behaftet sind bzw. erst aus den s-Häufigkeiten bestimmt werden, erschwert dies eine Temperaturanalyse der Verzweigung

am  $^{155}\text{Eu}$ , solange keine reinen s-Häufigkeiten für alle Gd-Isotope, z.B. als Isotopenanomalien in Meteoriten, gefunden werden.

Die Bestimmung des Einfangquerschnitts von  $^{155}\text{Eu}$  liefert jedoch einen Stützpunkt für die theoretische Interpolation des sehr wichtigen  $^{154}\text{Eu}$ -Querschnitts. Theoretische Arbeiten [Har81, Hol76] geben für  $^{155}\text{Eu}$  einen stellaren 30 keV-Einfangquerschnitt von 2088 mb bzw. 1730 mb an.

## 3.1 Anforderungen an Probe, Probenherstellung und Detektor

Die Anforderungen an die benötigte Meßprobe und Meßtechnik ergeben sich aus einer Vielzahl von kernphysikalischen und chemischen Zwängen sowie der Sicherheit des Experimentators.

### 3.1.1 Probenmenge

Mit dem Van de Graaff Beschleuniger am IK3 lassen sich quasistellare Neutronenspektren mit Flüssen am Ort der Aktivierungsprobe von ca.  $3 \cdot 10^9 \text{ sec}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  erzeugen. Dies führt bei einer Bestrahlungsdauer von 15 Tagen (Halbwertszeit des  $^{156}\text{Eu}$ ) und dem zu erwartenden Querschnitt von 2000 mb zu einer Konversionsrate von ca.  $8 \cdot 10^{-9}$ .

Wegen der Eigenaktivität der Probe müssen die zur  $^{156}\text{Eu}$ -Aktivitätsbestimmung verwendeten Linien deutlich über der höchstenergetischen Linie (105 keV) des  $^{155}\text{Eu}$  liegen. Die stärkste für diese Messung in Frage kommende  $^{156}\text{Eu}$ -Linie hat eine Energie von 811 keV und besitzt eine Linienintensität von  $I_\gamma = 10\%$ . Da weiterhin zur Aktivitätsbestimmung ein Germaniumdetektor notwendig ist, um Gammalinien von eventuell störenden Begleitaktivitäten diskriminieren zu können, lassen sich in diesem Energiebereich lediglich Ansprechwahrscheinlichkeiten von wenigen Prozent erreichen. Strebt man also bei einer Meßzeit von 30 Tagen (entspricht der doppelten Halbwertszeit von  $^{156}\text{Eu}$ ) einen statistischen Fehler von 1% an, was einer untergrundfreien Zählrate von 10 000 Ereignissen entspricht, benötigt man eine  $^{155}\text{Eu}$ -Probenmenge von mindestens  $4 \cdot 10^{14}$  Atomen. Dies entspricht einer  $^{155}\text{Eu}$ -Aktivität von 48  $\mu\text{Ci}$ , mit der auch gefahrlos längere Zeit radiochemisch umgegangen werden kann.

### 3.1.2 Begleitaktivitäten

Um bei diesen geringen Linienzählraten tatsächlich einen kleinen statistischen Fehler zu erreichen, dürfen die Untergrundzählraten im Bereich der  $^{156}\text{Eu}$ -Linien nicht zu groß werden. Dies ist praktisch gleichbedeutend damit, daß die Meßprobe nach ihrer Herstellung, bzw. nach der Aktivierung keine langlebigen Fremdisotope aufweisen darf, deren Linienenergien die des  $^{156}\text{Eu}$  überschreiten. Selbstverständlich muß der Detektor gegen natürliche Radioaktivität gut abgeschirmt sein, wobei hauptsächlich das  $^{40}\text{K}$  wegen seiner

hochenergetischen 1460 keV-Linie unterdrückt werden muß.

Die Atomkerne der Seltenen Erden sind in dem zu untersuchenden Gebiet deformiert und besitzen bei gerader bzw. ungerader Kernmasse sehr ähnliche Spektren! Dies bedeutet für die angestrebte Probe, daß möglichst keine dieser Begleitaktivitäten vorhanden oder bei der Bestrahlung erzeugt werden dürfen. Unbedingt zu vermeiden sind daher  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  und natürlich auch  $^{156}\text{Eu}$  selbst.

### 3.1.3 Probenherstellung

Die obengenannten Forderungen führen zusammen mit der Stellung des Isotops in der Nuklidkarte zu folgender Produktionsmethode :

Eine möglichst große Menge hochangereichertes, chemisch reines  $^{154}\text{Sm}$  wird im Reaktor kurze Zeit bestrahlt und die erzeugten  $^{155}\text{Eu}$ -Atome werden anschließend chemisch abgetrennt.

Eine kurze Bestrahlungszeit bei großer Probenmenge wird durch zwei Umstände erzwungen : Der riesige, thermische Neutroneneinfangquerschnitt von  $^{155}\text{Eu}$  bewirkt, daß bei einer zu langen Bestrahlung durch doppelten Neutroneneinfang eine hohe Kontamination von  $^{156}\text{Eu}$  erzeugt wird, die evtl. über Jahre abklingen müßte, bevor die Einfangquerschnittsmessung möglich wäre. In käuflichem, isopenreinem  $^{154}\text{Sm}$  ist immer noch, wenn auch in geringen Mengen,  $^{152}\text{Sm}$  enthalten, das über doppelten Neutroneneinfang zu einer  $^{154}\text{Eu}$ -Kontamination führen würde.

Wegen der sehr hohen chemischen Ähnlichkeit der Seltenen Erden befanden sich in dem käuflich erworbenen  $^{154}\text{Sm}_2\text{O}_3$  nach wie vor Begleitelemente im Promillebereich – in diesem Fall Cer, Praseodym, Neodym, Europium und Gadolinium. Während die bei einer Aktivierung erzeugten Cer- und Gadoliniumisotope wegen der geringen Übergangsenergien unkritisch sind, stellt Europium ein ernstes Problem dar (siehe oben). Obwohl sein Anteil lediglich 0.013% an der Gesamtmasse betrug, würden die bei der Herstellung des  $^{155}\text{Eu}$  daraus erzeugten Aktivitäten die entsprechenden  $^{156}\text{Eu}$ -Linien vollständig überdecken. Abschätzungen des resultierenden Untergrundes ergaben, daß vor der eigentlichen  $^{155}\text{Eu}$ -Erbrütung im Reaktor unbedingt mehr als  $\approx 99\%$  des Europiums entfernt werden mußten. Wie später gezeigt, werden die Gd-, Ce- und anderen Verunreinigungen auf diese Weise ebenfalls entfernt.

### 3.1.4 Detektor

Um mit dem für die  $^{156}\text{Eu}$ -Aktivitätsmessungen zur Verfügung stehenden  $175\text{ cm}^3$ -Germaniumdetektor im Energiebereich  $E > 800\text{ keV}$  noch Ansprechwahrscheinlichkeiten von zwei bis fünf Prozent zu erreichen, muß sich die Probe direkt auf dem Detektorfenster befinden. Dies hat folgende Konsequenzen:

Erstens : Ohne zusätzliche Abschirmmaßnahmen beträgt die Ansprechwahrscheinlichkeit für die  $^{155}\text{Eu}$ -Eigenaktivität über 30 %, was einer Detektorzählrate von schätzungsweise

500 000 Ereignissen je Sekunde entspricht, eine Zählrate, die kein normales Datenaufnahmesystem verarbeiten kann und die zu gewaltigen *Pile-up*- und Totzeiteffekten führt.

Zweitens : Durch die hohe Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors kommt es zu sogenannten Kaskaden-Summations-Effekten. Dies bedeutet, daß mehrere Photonen einer Zerfallskaskade gleichzeitig nachgewiesen werden; die Intensität einer Linienzählrate ergibt sich also nur aus der Analyse des gesamten Zerfallsspektrums (siehe Anhang A), wobei nicht nur die Linien-, sondern auch die totale Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors eingehen.

## 3.2 Herstellung der $^{155}\text{Eu}$ -Probe

### 3.2.1 Trennung von Samarium und Europium

Europium und Samarium, beides Seltene Erden gehören, zur dritten Nebengruppe der chemischen Elemente. Charakteristisch ist bei diesen Lanthaniden die Auffüllung der f-Elektronen der 4. Schale, welche innerhalb der bereits teilweise aufgefüllten 5. und 6. Schale liegt und ihre sehr hohe chemische Ähnlichkeit zur Folge hat<sup>1</sup>. Diese besonderen Eigenschaften machten sie zu einem eigenen Arbeitsgebiet der Chemie, noch bevor sie zu technischer Bedeutung gelangten<sup>2</sup>.

Die erste Aufgabe zur Herstellung einer geeigneten Bestrahlungsprobe besteht, wie im letzten Kapitel erläutert, zunächst darin, das angereicherte  $^{154}\text{Sm}$  von Europiumresten zu reinigen. In einem zweiten Schritt wird dann das bei der Bestrahlung am Reaktor erzeugte  $^{155}\text{Eu}$  vom  $^{154}\text{Sm}$  abgetrennt. Eine Beschäftigung mit allen Aspekten der möglichen Trennmethode für Seltene Erden würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen, weshalb nur auf die in diesem Zusammenhang wichtigen Gesichtspunkte eingegangen werden kann. Eine Sammlung aller Methoden findet sich in [Gme83].

Sehr grob kann man zwei wichtige Methoden der Trennung unterscheiden: Die Methode der selektiven Reduktion und die Ionenaustauschchromatographie.

#### 3.2.1.1 Selektive Reduktion

Das Prinzip der selektiven Reduktion beruht auf den unterschiedlichen Oxidationspotentialen von  $\text{Eu}^{3+}$  und  $\text{Sm}^{3+}$  und der unterschiedlichen Löslichkeit ihrer zwei- und dreiwertigen Verbindungen. Beide Ionen sind in wässriger Lösung in der Regel dreifach geladen, können jedoch in Kontakt mit Reduktionsmitteln in ihren zweifach geladenen Zustand überführt werden. Bildet einer der beiden eine unlösliche Verbindung, kann diese ausgefällt und abfiltriert werden.

---

<sup>1</sup>So wurde Lutetium als ihr letztes Mitglied erst in diesem Jahrhundert entdeckt. Vor der Entwicklung der Ionenaustauschchromatographie benötigte man zur Herstellung einer 99 prozentigen Thulium-Probe durch Umkristallisationsprozesse 10 Jahre [Bau74].

<sup>2</sup>Wichtige Beiträge zur Chemie der Seltenen Erden gehen auf die Wiederaufarbeitung von Spaltprodukten in Reaktorbrennstäben zurück.

Die Wahl des Reduktionsmittels hängt von seinem Oxidationspotential ab, im allgemeinen wird Natrium oder Zink verwendet. Zink liegt mit seinem Potential genau zwischen Europium und Samarium, es vermag daher zwar Europium zu reduzieren, nicht aber das Samarium. Das Natrium hingegen reduziert im Normalfall beide Ionen, es ist also nötig die Reduktion des Samariums, z.B. durch die Bildung von Citratkomplexen, zu unterdrücken [Nov92].

Als unlösliche Verbindungen werden z.B.  $\text{Sm}(\text{OH})_3$  oder  $\text{EuSO}_4$  verwendet, deren zwei- bzw. dreiwertiger Gegenspieler gut löslich ist. Eine weitere Möglichkeit ist die Bildung von Europiumamalgam bei der Reduktion an Natriumamalgam. Das Europium wird z.B. mit  $\text{HCl}$  aus dem Quecksilber entfernt [Mün65, Mal88].

Die Vorteile dieser Methode sind die recht schnelle Trennung und die relativ problemlose Handhabung, ein Nachteil ist jedoch, daß unter Luftabschluß gearbeitet werden muß, da Sauerstoff die zweiwertige Form sofort wieder zur dreiwertigen oxidieren würde. Die hier angestrebte Reinigung des Sm ist jedoch mit dieser Technik grundsätzlich nicht durchführbar. Der Grund liegt im Mengenverhältnis Sm/Eu, da eine zu hohe Konzentration von nicht reduzierbaren, dreiwertigen Seltenen Erden die Reduktion unterdrückt [Nov63], so daß sich die angestrebte Reinheit nicht erreichen läßt. Für die Abtrennung des erbrüteten  $^{155}\text{Eu}$  wäre sie einsetzbar, würde aber eine geeignete Trägersubstanz für die Fällung des Europium erfordern.

### 3.2.1.2 Ionenaustauschchromatographie

Ionenaustauscher sind feste Stoffe, die aus einer Lösung positive oder negative Ionen aufnehmen und im Austausch dafür eine äquivalente Menge anderer Ionen abgeben können. Je nach Vorzeichen des austauschbaren Ions unterscheidet man zwischen Kationen- und Anionenaustauschern.

Wenn ein Ionenaustauscher, der nur Ionen der Sorte A enthält in Kontakt mit einer Lösung, die nur Ionen der Sorte B enthält, gebracht wird, verlassen A-Ionen den Austauscher und B-Ionen werden absorbiert. Dieser Ionenaustausch ist nicht unbedingt vollständig; das entstehende Austauschgleichgewicht ist von vielen Parametern abhängig, z.B. von der Art des Lösungsmittels und des Austauschers, der Temperatur und vor allem von der Ionensorte. Dieser letzte Aspekt wird als Selektivität bezeichnet und bewirkt letztendlich den Trenneffekt. Zur Objektivierung wurde der Verteilungskoeffizient  $K_D$  definiert, er gibt das Verhältnis der Menge B-Ionen im Austauscher zur Menge in der Lösung an. Will man zwei Substanzen B und C trennen, ist das Verhältnis der Verteilungskoeffizienten  $\alpha = K_B/K_C$  wichtig, es wird als Trennfaktor bezeichnet. Eine andere wichtige Größe ist die Kapazität, sie gibt an wieviel Ionen der Austauscher überhaupt absorbieren kann.

Für die verschiedenen Einsatzgebiete wurden unterschiedliche Austauscher gefunden und entwickelt, man unterscheidet so zwischen mineralischen, synthetischen anorganischen

Austauschern, Austauscher auf Kunstharz- oder Kohlebasis und flüssigen Ionenaustauschern<sup>3</sup>. Bei den verwendeten Lösungsmitteln herrscht ähnliche Vielfalt, grob betrachtet gibt es Austausch mit wässrigen, gemischt wässrigen und nicht wässrigen Lösungen. Eine gute Einführung geben [Dor70] und [Hel59], hinsichtlich der Seltenen Erden findet man in [Gme83] viele Anregungen.

Für Trennungen wird häufig eine Absorptionssäule verwendet, die mit körnigem Austauschermaterial gefüllt ist. In die Säule wird die Lösung eingeleitet, deren Zusammensetzung sich auf dem Weg durch die *Packung* durch Ionenaustausch verändert. Das Prinzip der chromatographischen Verfahren besteht darin, die Unterschiede in den Wanderungsgeschwindigkeiten verschiedener Stoffe zur Trennung auszunutzen. Die Wanderungsgeschwindigkeit ist in guter Näherung dem Verteilungskoeffizienten proportional. Bei der im folgenden verwendeten Verdrängungschromatographie wird das zu trennende Gemisch in der obersten Austauscherschicht absorbiert und dann mit einem geeigneten Reagens eluiert. Die Ionen ordnen sich dann entsprechend der Reihenfolge ihrer Selektivität in Banden und erscheinen nacheinander im Ablauf. In wie weit sich diese eluierten Banden überschneiden, also wie gut die Trennung verläuft, ist nicht nur vom Trennfaktor, sondern auch von der Fließgeschwindigkeit des Eluens, der Korngröße und der Kapazität des Austauschermaterials abhängig. Eine umfassende theoretische Betrachtung für sehr geringe Konzentrationen der auszutauschenden Stoffe findet sich z.B. in [Glü55, Dor70].

Analytisch finden sich die folgenden Ausdrücke für die Elutionsmenge bis zum Erreichen des Maximums einer Bande

$$V_{max} = 2\pi r^2 L(K_{Db} + f).$$

Der Überlapp zweier gaußförmiger Banden folgt aus ihrer Breite

$$dV = V_{max} \sqrt{2/n},$$

$n = L/H$  bezeichnet die Anzahl der *theoretischen Böden* und errechnet sich aus der Höhe eines Bodens  $H$  und der Säulenlänge  $L$ .

Der Begriff des *theoretischen Bodens* wurde von [Glü55] eingeführt und seine Höhe errechnet sich nach folgendem Ausdruck :

$$H = 4r + \left( \frac{0.142 r^2 F K_{Db}}{(D_m(K_{Db} + f)^2)} + \frac{0.226 r^2 F K_{Db}^2}{D(1 + 70r F)(K_{Db} + f)^2} \right)$$

wobei :

- r - Kornradius der Austauschersubstanz in *cm* ;
- $K_{Db}$  - Verteilungskoeffizient in der Austauscherpackung (ca.  $0.3 K_D$ );
- f - Bruchteil des Lösungsmittelvolumens in der Packung (ca. 0.4);
- F - Fließgeschwindigkeit in  $ml/cm^2$ ;
- $D_m$  - Diffusionskoeffizient in der Austauscherphase (ca.  $10^{-6} cm^2/sec$ );
- D - Diffusionskoeffizient der flüssigen Phase (ca.  $10^{-5} cm^2/sec$ );
- L - Säulenlänge in *cm*

---

<sup>3</sup>selbst vor Olivenkernen wurde kein Halt gemacht

Man erreicht also einen kleinen Überlapp bei geringer Fließgeschwindigkeit, kleiner Korngröße, hohen Diffusionskonstanten und großer Säulenlänge.

In der Regel wird heute zur Trennung der Seltenen Erden ein stark saurer Kationenaustauscher (meist der Sorte DOVEX) mit  $\alpha$ -Hydroxy-Iso-Butanol als Lösungsmittel verwendet, wobei die Trennfaktoren durch Variation der Konzentration während der Elution verbessert werden [Cho56, Smi56, Far67, Bey84]. Wegen der großen Probenmengen, die in dieser Arbeit eingesetzt werden müssen, wurde jedoch eine andere Methode gewählt, da die Handhabung und Beschaffung von  $\alpha$ -HIB im großen Umfang problematisch ist.

Die Seltenen Erden bilden anionische Nitratkomplexe, mit denen sich in sauren, gemischt wässrigen Lösungen mit stark basischen Anionenaustauschern Verteilungskoeffizienten und Trennfaktoren erreichen lassen, die denen der oben genannten Methode mit Kationenaustauschern entsprechen. Im Laufe der Entwicklung dieser Trennungstechnik ([Kor64] und dort aufgeführte Referenzen) wurde die ursprüngliche Methode, bei welcher mit einer Mischung aus Alkoholen und Salpetersäure gearbeitet wurde, durch den Einsatz von neutralen Nitraten verbessert [Mol66, Mol67a, Mol67b]. Die besten Ergebnisse, speziell für Makro-Mikro-Separationen bei Sm/Eu/Gd konnten mit einem Elutionsgemisch aus Methanol, Wasser und Ammoniumnitrat als komplexbildende Verbindung mit dem Anionenaustauscher der Sorte AMBERLITE IRA 400 erreicht werden. Die nachstehend beschriebene Trennung folgte der in [Mol67b] beschriebenen Reinigung einer Gadoliniumprobe.

## 3.2.2 Reinigung des $^{154}\text{Sm}$

### 3.2.2.1 Materialien

**Der Austauscher** AMBERLITE IRA 400 CG ist ein stark basischer Anionenaustauscher, chemisch handelt es sich um ein Styrol-Divinyl-Kopolimerisat mit einer tertiären Ammoniumgruppe als aktivem Zentrum, an dem die Absorption des auszutauschenden Anions stattfindet (Abbildung 10).

Die verwendete Körnung des Austauscherharzes betrug 200–400 mesh (40–80  $\mu\text{m}$ ), da eine kleine Korngröße die Oberfläche und so die Absorptionsgeschwindigkeit erhöht. Die Kapazität des Austauschers beträgt 2.4 *mval*, womit für die zu trennende Menge von 1.8 g ungefähr 200 g Austauscher benötigt werden. Eine weitere Erhöhung dieser Menge würde zwar die Bandenbreite verringern (letzter Abschnitt), jedoch den Trennvorgang sehr verlängern. Die große Oberfläche der Austauscherkörner hat einen sehr hohen Strömungswiderstand zur Folge, so daß das Elutionsmittel unter erhöhtem Druck durch das Harzbett gepumpt werden muß. In Anlehnung an [Mol67b] wurde ein Durchfluß von ca. 9 *ml/min* angestrebt. Es zeigte sich, daß dieser Wert nicht unterschritten werden durfte, um eine Blasenbildung des Elutionsgemisches an der großen Oberfläche (ca. 34  $\text{m}^2$ ) des Austauschers zu verhindern. Die unterhalb eines gewissen Drucks bzw. Durchflußmenge entstehenden Blasen führen zu Kanalbildungen und zerstören den Trenneffekt.

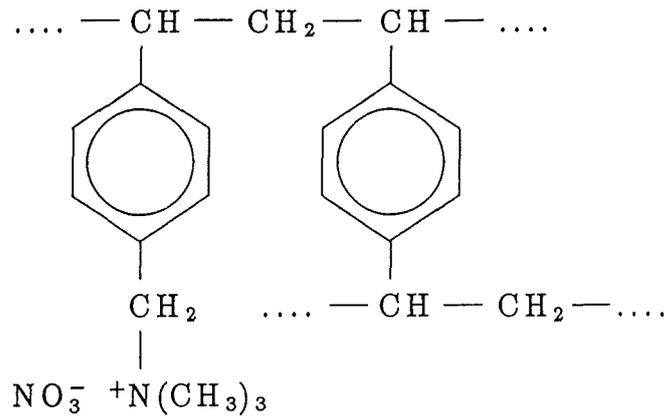


Abbildung 10: Chemischer Aufbau des Styrol-Divinyl-Kopolimerisats aus dem der Ionenaustauscher AMBERLITE IRA 400 CG besteht

**Das Elutionsmittel** In den für diese Trennungsmethode grundlegenden Arbeiten wurden systematisch die Verteilungskoeffizienten diverser Lanthaniden für verschiedene Nitrate, Nitrat- und Methanolkonzentrationen bei unterschiedlichen Temperaturen bestimmt. Die Abbildungen 11 zeigen exemplarisch die Verteilungskoeffizienten einiger Seltener Erden für ein Gemisch aus 80 % Methanol und Wasser mit Ammoniumnitrat als Komplexbildner als Funktion der  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  Konzentration.

Da die Diffusionskoeffizienten in den Phasen mit der Temperatur zunehmen, bietet sich

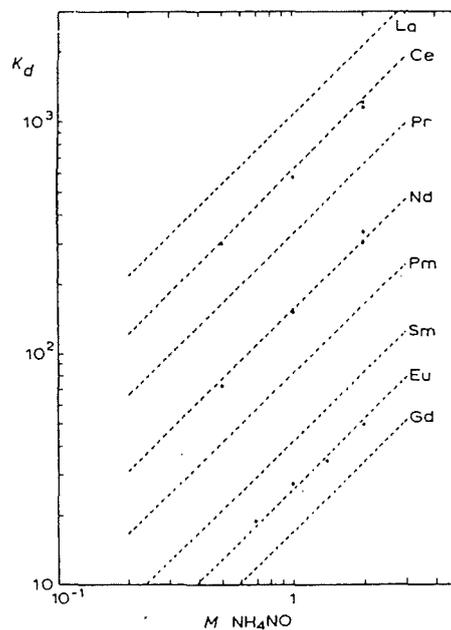


Abbildung 11: Veränderung des Verteilungskoeffizienten  $K_D$  verschiedener Seltener Erden als Funktion der  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  Konzentration bei  $20^\circ\text{C}$  (aus [Mol67a]).

die Möglichkeit durch Erwärmung der Austauscherpackung die Anzahl der theoretischen Böden zu erhöhen und damit die Bandenbreite zu verringern. Durch die Verwendung des Ammoniumnitrats wird der Dampfdruck der Lösung hinreichend erniedrigt, so daß Betriebstemperaturen bis zu  $50^{\circ} C$  zulässig sind.

In Anlehnung an [Mol67b] wurde letztendlich ein Elutionsgemisch aus 80% Methanol, 20% Wasser, 1.5 N Ammoniumnitrat und 0.01 N Salpetersäure gewählt. Die Temperatur beim Trennvorgang betrug  $50^{\circ} C$ .

**Die Austauschersäule** Abbildung 12 zeigt den verwendeten Aufbau. Die Glassäule hat einen Mantel, durch den auf  $50^{\circ} C$  erwärmtes Wasser gepumpt wird und ist von beiden Seiten mit Teflonfritten verschlossen. Das Harzbett wird durch einen verschiebbaren Stempel von oben fixiert. Das Elutionsmittel wird von unten nach oben gepumpt, damit entstehende Blasen entweichen können. Im Zulauf befindet sich ein Blasenabscheider, damit im Elutionsmittel oder in der Zuleitung vorhandene Blasen nicht in die Säule gelangen. Alle Teile, die mit dem aggressiven, heißen Methanolgemisch in Berührung kommen, bestehen aus beständigem ISOVERSINIC, TEFLON oder Glas.

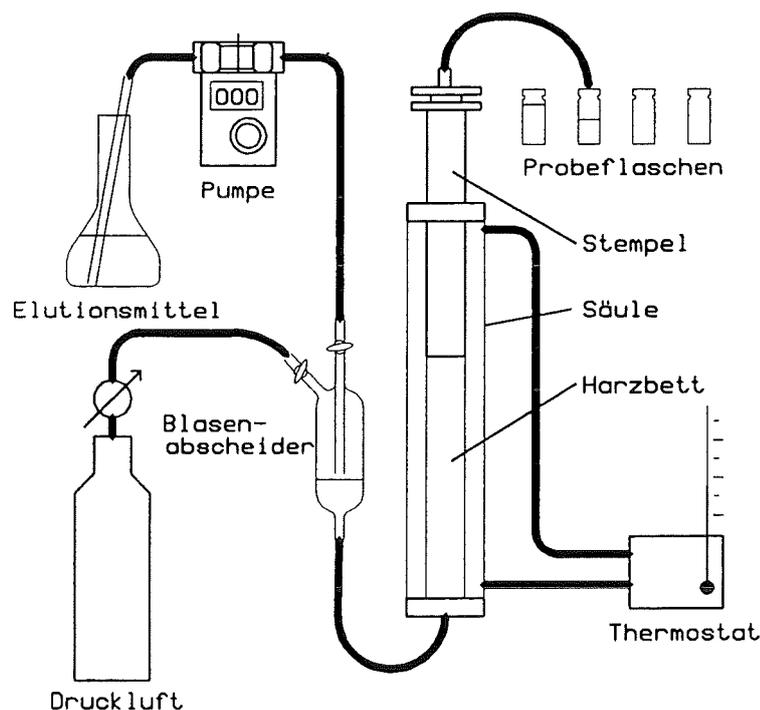


Abbildung 12: Verwendeter Aufbau für die Trennungen

### 3.2.2.2 Die Vorbereitungen

**Die Austauscherpackung** Das Austauscherharz AMBERLITE IRA 400 CG kann in Chloridform in der gewünschten Korngröße vom Chemiehandel bezogen werden. Vor dem Einfüllen in die Austauschersäule muß das neue Harz ca. 24 Stunden in destilliertem Wasser quellen, wobei es sein Volumen nahezu verdoppelt. Außerdem müssen Harzmehl und grobe Körner entfernt werden, Verunreinigungen, die durch Transport und Herstellung bedingt sind.

Da bei der Trennung mit Nitratkomplexen gearbeitet wird, muß auch das Harz in die Nitratform überführt werden. Dies geschieht mit verdünnter Salpetersäure, die in Flußrichtung von unten nach oben durch das Harzbett gepumpt wird. Der Abfluß wird mit Silbernitrat auf Chlorid getestet, das einen weißen, unlöslichen Niederschlag bildet. Ist kein Chlorid mehr nachweisbar, wird solange mit Wasser gespült (ca. 1 Liter), bis wiederum alles  $\text{HNO}_3$  entfernt ist. Nach kräftigem Umrühren wird der gesamte Vorgang nochmals wiederholt.

Vor der Trennung muß zuerst das Wasser entfernt werden, indem man von oben nach unten mit Methanol spült. Dieser Vorgang ist abgeschlossen, wenn man im Ausfluß keine Schlierenbildung mehr beobachtet. Nun kann das Elutionsmittel, jetzt wieder von unten nach oben, eingefüllt werden. Erst wenn dabei keine Blasenbildung mehr auftritt, wird die Säule vorsichtig geschlossen und mit dem oberen Stempel das aufgeschwemmte Harz auf die untere Fritte gedrückt, ohne jedoch den Durchfluß zu stoppen. Das endgültige Volumen des Harzbettes betrug  $280 \text{ cm}^3$ .

**Das Elutionsmittel** Zur Herstellung des Elutionsmittels werden  $120 \text{ g NH}_4\text{NO}_3$  in  $400 \text{ ml}$  destilliertem Wasser gelöst und in einem Meßzylinder mit Methanol auf 2 Liter aufgefüllt. Die  $0.01 \text{ N}$  Salpetersäure wird dem voraussichtlich benötigten Volumen von 8 Liter erst kurz vor Elutionsbeginn zugesetzt, um eine Veresterung des Methanols zu vermeiden.

**Das Samarium** Für die Trennung wurden  $1.8 \text{ g}$  angereichertes  $^{154}\text{Sm}_2\text{O}_3$  am Reaktor des DKFZ-Heidelberg für 90 Sekunden bei  $10^{12}$  Neutronen  $\text{s}^{-1}\text{cm}^{-2}$  bestrahlt. Die so erzeugten Isotope  $^{153}\text{Sm}$  und  $^{155}\text{Eu}$  dienen als *Tracer*, mit denen sich der Verlauf der Trennung mit Hilfe eines Germaniumdetektors beobachten läßt.

Das bestrahlte  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  wird in  $\text{HNO}_3$  gelöst, anschließend getrocknet, mit Wasser gewaschen, nochmals getrocknet und in  $20 \text{ ml}$  Elutionsmittel gelöst.

### 3.2.2.3 Die Trennung

Das vorbereitete Gemisch aus  $^{154}\text{Sm}(\text{NO}_3)_3$  und Elutionsmittel wurde mit einem spitz zulaufenden Glasrohr eingesaugt und in die Säule gepumpt. Der Ablauf der Säule wurde in  $3 \text{ min}$  Intervallen in Probegläser abgefüllt. Diese Fraktionen wurden sofort mit einem Germaniumdetektor auf die *Tracer*-Isotope untersucht. Der Durchfluß betrug ca.

9.25 ml/min<sup>4</sup>. Nach ca. 6 Stunden (2200 ml) konnte erstmals Europium nachgewiesen werden; Abbildung 13 zeigt den gesamten Elutionsverlauf, wie er aus den Aktivitäten von <sup>153</sup>Sm und <sup>155</sup>Eu in den einzelnen Fraktionen bestimmt wurde.

Da die Sm-Menge bei der Trennung im Vergleich mit der Kapazität des Austauschers nicht mehr vernachlässigt werden kann, weicht der gefundene Elutionsverlauf in Abbildung 13 deutlich von dem im Abschnitt über Ionenaustauschchromatographie vorgestellten gaußförmigen Verlauf ab. Nur im Falle von Eu lassen sich die für diese Trennung charakteristischen Parameter angeben. Der Verteilungskoeffizient betrug:  $K_D \approx 37$  und die Anzahl der theoretischen Böden:  $n \approx 500$ .

Nach 3725 ml (ca. 7 Stunden) wurde die Elution gestoppt und das noch in der Säule vorhandene Samarium mit destilliertem Wasser ausgewaschen. Das Ende des Auswaschens erkennt man, wenn im Ausfluß mit Ammoniak kein Samariumhydroxid mehr ausgefällt werden kann.

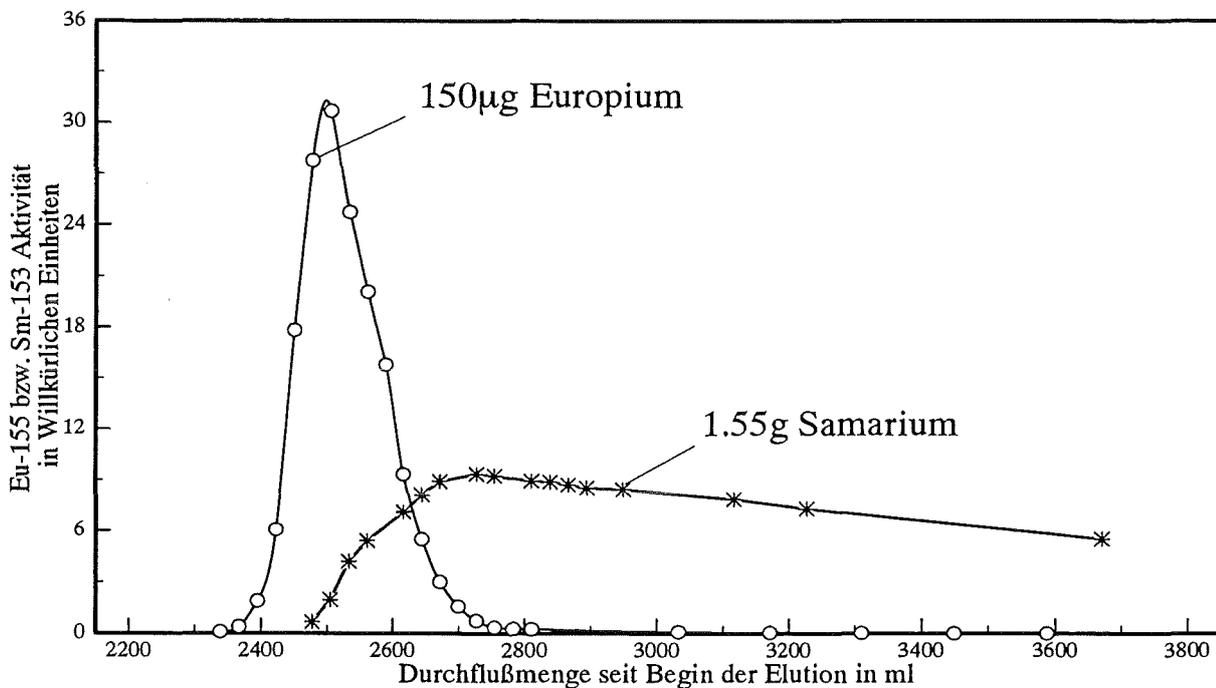


Abbildung 13: Elutionsverlauf bei der Reinigung des Samariums

### 3.2.2.4 Die Rückgewinnung des Samariums

Das ausgewaschene, gelöste Samariumnitrat wurde mit einem Überschuß von Oxalsäure gefällt und abfiltriert. Das so entstandene Oxalat wurde in einem Tiegel bei 1000° C zu Oxyd verglüht, in HNO<sub>3</sub> gelöst, auf 27 ml aufgefüllt und, wie bei den Fraktionen vorher,

<sup>4</sup>Die Durchflußmenge verringert sich im Verlauf der Elution, da die Elastizität des Pumpenschlauchs nachläßt.

die Aktivität bestimmt. Aus der Aktivität folgen die Samarium- und Europiumkonzentrationen der gereinigten Substanz :  $0.55 \text{ g } ^{154}\text{Sm}$  bei  $2.15 \cdot 10^{-7} \text{ g Eu}$ . Es konnten also 99.7 % des ursprünglich vorhandenen Europiumanteils von 0.013 % entfernt werden.

Damit entsprach die so erhaltene Substanz den eingangs diskutierten Reinheitsanforderungen. Sie wurde nochmals getrocknet, zu Oxyd verglüht und in ein Reagenzglas eingeschmolzen, da nur die Oxyde bei der anschließenden Bestrahlung im Reaktor stabil sind.

Auf Grund der abfallenden Verteilungskoeffizienten als Funktion der Kernladungszahl der Seltenen Erden wurden zusammen mit dem Europium auch die "schwereren" Seltenen Erden abgetrennt, die als Verunreinigungen in der Ausgangssubstanz vorhanden waren.

### 3.2.2.5 Erbrütung des $^{155}\text{Eu}$

Die Erbrütung des  $^{155}\text{Eu}$  erfolgte wieder im Reaktor des DKFZ in Heidelberg. Mit der vorhandenen Menge von  $0.55 \text{ g } ^{154}\text{Sm}$ , einem maximalen Neutronenfluß von  $10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  und einem thermischen Wirkungsquerschnitt von  $^{154}\text{Sm}$  von  $8.7 \text{ b}$  ergibt sich zur Erbrütung von ca.  $10^{15}$  Atomen  $^{155}\text{Eu}$  eine Bestrahlungsdauer von 90 Minuten. Da hierbei durch doppelten Neutroneneinfang auch  $^{156}\text{Eu}$  erzeugt wird, muß die Probe anschließend ca. 230 Tage abklingen, bevor eine Querschnittsmessung am Van de Graaff Beschleuniger möglich ist.

### 3.2.3 Abtrennung des $^{155}\text{Eu}$

Um eine möglichst dünne  $^{155}\text{Eu}$ -Probe zu erhalten, war ursprünglich eine trägerfreie Abtrennung des Europiums durch selektive Reduktion geplant. Diese wurde zwar erfolgreich getestet, aber zugunsten der bereits eingespielten Trennung durch Ionenaustausch aufgegeben. Dies hat mehrere Gründe. Die durch Tiegelabrieb, Glührückstände der Oxalsäure und andere Verunreinigungen "verschmutzte" Probe wies nach der Bestrahlung am DKFZ neben den erwarteten Europiumisotopen auch diverse andere langlebige Kontaminationen wie  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{124}\text{Sb}$  und  $^{65}\text{Zn}$  auf, die wegen ihrer hochenergetischen Gammalinien störend waren. Wegen ihrer hohen Selektivität gewährleistet die Ionenaustauschchromatographie, daß diese Kontaminationen bei einer Europiumabtrennung automatisch mitentfernt werden, was im Falle der Reduktion ohne aufwendige Vorversuche nicht von vornherein erwartet werden kann. Weiterhin sind auf Grund der Aktivierung alle beim Ionenaustausch eingeschleppten Verunreinigungen bekannt, wohingegen die durch eine andere Methode erzeugten Verunreinigungen erst untersucht werden müßten.

Der Nachteil der Eu-Abtrennung durch Ionenaustausch ist, wie der Überlapp der beiden Banden in Abbildung 13 zeigt, daß auch nach mehreren Trennvorgängen immer eine endliche Menge Samarium in der Probe verbleibt. Allerdings beeinträchtigt ihr Anteil die  $^{156}\text{Eu}$ -Messungen nicht wesentlich, da bei der Bestrahlung am Van de Graaff Beschleuniger daraus lediglich die Isotope  $^{153}\text{Sm}$  und  $^{155}\text{Sm}$  entstehen, die wegen ihrer geringen Strahlungsenergie, bzw. kurzen Halbwertszeit, unkritisch sind.

Auf Grund der ansteigenden Verteilungskoeffizienten werden bei dieser Trennung die "leichten" Seltenen Erden wie Cer oder Neodym beseitigt.

Die Trennung erfolgte also nach dem im letzten Abschnitt beschriebenen Verfahren. Wegen der mittlerweile eingetretenen Alterung des Austauschers konnten allerdings die ursprünglichen Trennfaktoren nicht mehr erreicht werden. Die letztlich abgetrennte  $^{155}\text{Eu}$ -Fraktion wog  $0.214\text{ g}$  und bestand daher hauptsächlich aus  $\text{Sm}_2\text{O}_3$ . Auf eine weitere Anreicherung wurde verzichtet. Da das Verglühen des Oxalats im Kontrollbereich erfolgen mußte, stand hierfür kein Sauerstoffstrom zur Verfügung. Dadurch gelang die Umwandlung zum Oxyd nicht vollständig, sondern nur zu 90%, ein Wert der mehrfach reproduziert werden konnte und für den im folgenden 2 % Fehler angenommen werden.

### 3.2.4 Die Aktivierungsprobe

Die  $0.214\text{ g}$   $\text{Sm}_2\text{O}_3$  mit der  $^{155}\text{Eu}$ -Fraktion wurde in einem Preßwerkzeug bei  $25\text{ kN}$  zu einer Tablette von  $6\text{ mm}$  Durchmesser und  $1.65\text{ mm}$  Dicke verpreßt, wobei  $0.014\text{ g}$  Substanz verloren gingen. Die Tablette wurde zu ihrem Schutz in ein Graphittöpfchen mit  $0.3\text{ mm}$  Wandstärke eingeklebt, das für die Aktivierungen mit einer dünnen Kunststoffolie auf einen Haltering aus Aluminium aufgespannt war. Der Vorteil dieser Umhüllung ist, daß wegen der hohen Reinheit von Graphit die Erzeugung von Fremdaktivitäten bei der späteren Bestrahlung ausgeschlossen werden kann. Sowohl der Aluminiumring als auch der Kleber und der Kunststoff wurden in einer Probeaktivierung auf störende Begleitelemente untersucht, wobei sich zeigte, daß für die spätere  $^{156}\text{Eu}$ -Aktivitätsmessung der Aluminiumring wegen seines Mangananteils unbedingt entfernt werden mußte. Die Selbstabsorption dieses Aufbaus beträgt im relevanten Energiebereich der  $^{156}\text{Eu}$ -Linien ( $E > 800\text{ keV}$ ) nur wenige Prozent.

Bezüglich der Eigenaktivität von  $^{155}\text{Eu}$  war die Selbstabsorption allerdings so groß, daß mit ihrer Bestimmung bis zum Abschluß aller anderen Messungen gewartet werden mußte, da die Probe dafür wieder zerstört werden mußte. Die Ergebnisse dieser Bestimmung werden aber bereits im nächsten Abschnitt vorweggenommen.

### 3.2.5 Die Bestimmung der vorhandenen $^{155}\text{Eu}$ -Menge

Die in der Probe vorhandene Anzahl der  $^{155}\text{Eu}$ -Kerne wurde nach drei unterschiedlichen Verfahren bestimmt. Hierzu stehen zwei bzw. drei geeignete Gammalinien zur Verfügung (Tabelle 5), deren Intensitäten mit einem systematischen Fehler von 2 % angegeben [Lee87] sind. Für die Messungen wurde ein geeichter  $40\text{ cm}^3$  Reinstgermaniumdetektor verwendet, dessen Ansprechwahrscheinlichkeit entsprechend der Genauigkeit der zur Verfügung stehenden Eichquellen auf 2 % genau bekannt war. Zusammen mit dem Fehler der  $^{155}\text{Eu}$ -Halbwertszeit  $t_{1/2} = 4.68 \pm 0.04\text{ y}$  [Lee87] läßt sich die Probenmenge auf ca. 3 % genau definieren.

**Tabelle 5:** Verwendete  $^{155}\text{Eu}$ -Linien, zugehörige Linienintensitäten und Ansprechwahrscheinlichkeiten

| Linie     | $I_\gamma \pm 2\%$  | $\epsilon_\gamma \pm 2\%$ |
|-----------|---------------------|---------------------------|
| 60.0 keV  | $0.01214 \pm 0.001$ | 0.015                     |
| 86.5 keV  | $0.328 \pm 0.0$     | 0.01495                   |
| 105.3 keV | $0.2184 \pm 0.0033$ | 0.01416                   |

### 3.2.5.1 Verfahren 1

Das erste Verfahren bestand in der Bestimmung der Eigenaktivität der Aktivierungsprobe selbst. Wegen der hohen Aktivität erreichte die Detektorzählrate  $10\,400\text{ sec}^{-1}$ . Die daher notwendigen *Pile-up*-Korrekturen wurden mit Hilfe eines Pulsers bzw. einer  $^{57}\text{Co}$ -Eichquelle bestimmt. Die Selbstabsorption der Probe und ihrer Ummantelung wurde aus den Absorptionsquerschnitten [Sto70] der beteiligten Elemente errechnet. Die Fehler dieser Querschnitte werden mit 3% angegeben. Da auch die Probenmasse nur auf ca. 2% bekannt war, ergibt sich mit diesem Verfahren ein Gesamtfehler von ca. 4% (siehe Tabelle 6 und 7).

**Tabelle 6:** Korrekturfaktoren für Selbstabsorption, *Pile-up* und Totzeit bei der Aktivitätsbestimmung nach Verfahren 1

| Linie     | $K_\gamma \pm 4\%$ | $P_\gamma \pm 0.2\%$ | Totzeitkorrektur |
|-----------|--------------------|----------------------|------------------|
| 60.0 keV  | 0.1663             | 0.8831               | 0.903            |
| 86.5 keV  | 0.3902             | 0.8831               | 0.903            |
| 105.3 keV | 0.5416             | 0.8831               | 0.903            |

### 3.2.5.2 Verfahren 2

Um den durch die Selbstabsorption erzeugten Fehler zu vermeiden, wurde die gesamte Aktivierungsprobe in 10 ml verdünnter Salpetersäure gelöst und aus einem winzigen Tropfen hiervon eine dünne  $^{155}\text{Eu}$ -Eichquelle hergestellt. Diese Eichquelle wurde, nachdem ihre Aktivität bestimmt war, zusammen mit 0.18 g natürlichem  $\text{Sm}_2\text{O}_3$  aufgelöst

und in einem Meßzylinder auf 250 ml verdünnt. Nachdem die gelöste Aktivierungsprobe ebenfalls in einem identischen Meßzylinder verdünnt wurde, läßt sich die Gesamtaktivität der beiden Flüssigkeiten durch eine Relativmessung ermitteln<sup>5</sup>. Eventuelle Unterschiede in der Selbstabsorption der beiden Glasgefäße konnten anhand der Zählratenverhältnisse der 86 keV und 105 keV-Linie im Bereich der Meßfehler von 2 % ausgeschlossen werden. Die 60 keV-Linie wurde wegen ihrer geringen Intensität nicht verwendet.

### 3.2.5.3 Verfahren 3

Um neben der Selbstabsorption auch den *Pile-up*-Effekt zu unterbinden, wurden der Probenlösung mit einer Mikropipette sechs Fraktionen zwischen 15  $\mu$ l und 35  $\mu$ l entnommen und daraus dünne <sup>155</sup>Eu-Quellen hergestellt. Aus deren Aktivität und dem Volumenverhältnis zur gesamten Lösung ergibt sich die ursprüngliche Probenmenge.

Tabelle 7 enthält die ungewichteten Mittelwerte und die Fehler dieser Messungen. Der Fehler entspricht im wesentlichen der Meßgenauigkeit der Pipette von ca.  $\pm$  3 %.

Tabelle 7: Ergebnisse der unterschiedlichen <sup>155</sup>Eu-Aktivitätsbestimmungen

| Linie       | <sup>155</sup> Eu Kerne in 10 <sup>14</sup> Atomen |                 |                 | Mittelwerte     |
|-------------|--|-----------------|-----------------|-----------------|
|             | -1-  | -2-             | -3-             |                 |
| 60.0 keV    | 3.48 $\pm$ 0.14                                    | -               | -               | 3.48 $\pm$ 0.31 |
| 86.5 keV    | 3.32 $\pm$ 0.13                                    | 3.33 $\pm$ 0.08 | 3.28 $\pm$ 0.10 | 3.31 $\pm$ 0.06 |
| 105.3 keV   | 3.45 $\pm$ 0.14                                    | 3.43 $\pm$ 0.09 | 3.42 $\pm$ 0.11 | 3.43 $\pm$ 0.08 |
| Endergebnis |  |                 |                 | 3.36 $\pm$ 0.13 |

### 3.2.5.4 Ergebnis und Diskussion

Die in Tabelle 7 zusammengefaßten Ergebnisse beziehen sich auf einen Referenzzeitpunkt<sup>6</sup>. Die zu den verschiedenen Verfahren gehörenden Fehler enthalten noch nicht die in Tabelle 5 angegebenen Beiträge, da diese allen Messungen gemeinsam sind. In der Spalte mit den Mittelwerten sind die Fehler entsprechend reduziert. Das Endergebnis in der letzten Zeile entspricht dem gewichteten Mittelwert und berücksichtigt den aufgerundeten Gesamtfehler aller aufgeführten Fehlerquellen.

<sup>5</sup>Nachdem alle verwendeten Arbeitsgeräte auf <sup>155</sup>Eu-Kontaminationen untersucht wurden, konnten die Verluste auf einen Bruchteil von  $1.5 \cdot 10^{-5}$  der ursprünglichen Probenmenge eingeschränkt werden.

<sup>6</sup>Referenzzeitpunkt : 21. Nov. 1993, 11 Uhr (Beginn der <sup>156</sup>Eu-Aktivitätsmessung)

Wie Tabelle 7 zeigt, liegen die Ergebnisse der verschiedenen Verfahren für jede der drei Gammalinien wesentlich näher beisammen, als es ihre Einzelfehler vermuten lassen. Es zeigt sich leider auch, daß im Widerspruch zu den angegebenen Fehlern die anhand der 105 keV-Linie bestimmte  $^{155}\text{Eu}$ -Menge bei allen Messungen ca. 4 % höher liegt als man mit der 86 keV-Linie findet, eine Differenz, die also nur auf einen Fehler in der Ansprechwahrscheinlichkeit oder in den Linienintensitäten zurückzuführen ist. Da sich der Ursprung dieser Diskrepanz nicht aufklären ließ, wurde der Mittelwert beider Messungen als Endergebnis verwendet.

Das Endergebnis zeigt außerdem, daß bei der Bestrahlung am DKFZ ungefähr dreimal weniger  $^{155}\text{Eu}$  erzeugt wurde als beabsichtigt war (Abschnitt 3.2.2.5). Diese Beobachtung deckt sich auch mit den Intensitäten der in der Probe vorhandenen  $^{152/154}\text{Eu}$ -Kontaminationen und deutet darauf hin, daß die spezifizierten Daten für die Bestrahlung im Reaktor nicht eingehalten wurden!

### 3.3 Bestimmung des stellaren Einfangquerschnitts von $^{155}\text{Eu}$

#### 3.3.1 Bestrahlungen am Van de Graaff-Beschleuniger

Die Bestrahlung am Van de Graaff Beschleuniger dauerte, inklusive der kurzen Unterbrechungen für den Wechsel verbrauchter Neutronentargets, 17 Tage. Um einen möglichst hohen Neutronenfluß zu erreichen, war die Probe direkt auf dem Target montiert. Die 0.03 mm bzw. 0.02 mm dicken Goldfolien, die an Vorder- und Rückseite der Probe befestigt waren, wurden zur Normierung des Neutronenflusses alle zwei Tage durch neue Folien ersetzt und ihre Aktivität über die 411.9 keV-Linie des  $^{198}\text{Au}$  mit einem geeichten Reinstgermaniumdetektor bestimmt. Da der zeitliche Verlauf des Neutronenflusses während der Bestrahlung nicht konstant ist, wurde er mit einem 1.1 m vom Target entfernten  $^6\text{Li}$ -Glas-Detektor aufgenommen. Aus dem Verlauf des Neutronenflusses (Abbildung 14) wurde auf die bereits während der Aktivierung zerfallenen Kerne und den genauen Verlauf ihrer Erzeugung korrigiert. Die mathematische Behandlung dieser Korrektur wurde bereits im Abschnitt 2.1 behandelt und mußte hier nur hinsichtlich des  $^{155}\text{Eu}$ -Zerfalls und dessen Neuerzeugung durch  $^{154}\text{Sm}(n,\gamma)^{155}\text{Sm}(\beta^-)^{155}\text{Eu}$  erweitert werden<sup>7</sup>.

Die Dicke der Probe (einschließlich der Graphitumhüllung) betrug 2.25 mm, was bei einer so engen Geometrie zu einem deutlichen Abfall des Neutronenflusses über das Volumen der Probe führt. Das Verhältnis der in den Goldfolien induzierten Aktivitäten zwischen Vorder- und Rückseite war  $v = 2.06$ . Da wegen der Strahldivergenz nicht nur die Neutronenflußdichte, sondern auch die Form des Neutronenspektrums eine Funktion

---

<sup>7</sup>Diese kleine (0.25 %) Korrektur wurde numerisch durchgeführt

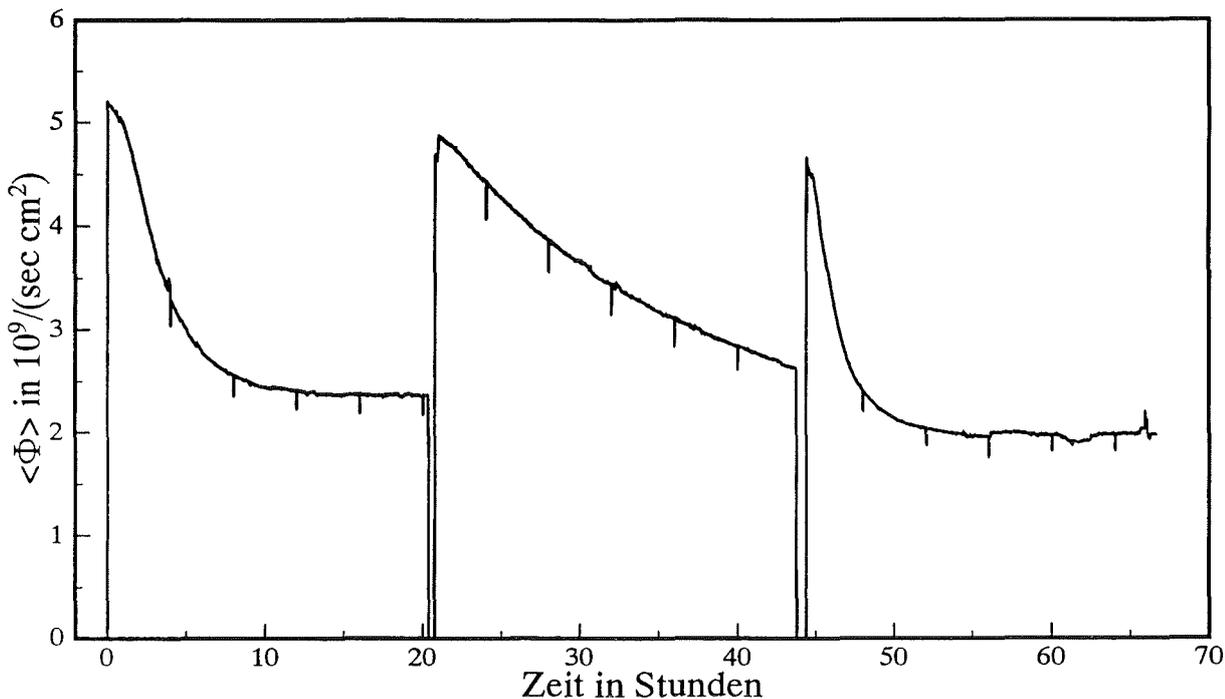


Abbildung 14: Zeitabhängigkeit des Neutronenflusses während der Bestrahlung für drei verschiedene Lithiumtargets. Die kammartigen Einschnitte entstehen während der Zwischenspeicherung der Daten, sind vom Flußverlauf unabhängig und vernachlässigbar.

des Targetabstands ist [Rat88], ändert sich der über dieses Spektrum gemittelte Einfangsquerschnitt geringfügig :

$$\overline{\sigma(\vec{r})} = \int_E \Phi(E(\vec{r}), \vec{r}) \sigma(E) dE.$$

Um aus der in den Goldfolien induzierten Aktivität auf den mittleren Neutronenfluß in der Probe schließen zu können, wurde ein Gold-Sandwich hergestellt. Dieses Gold-Sandwich hatte dieselben Abmessungen wie die  $^{155}\text{Eu}$ -Probe, bestand aber im Inneren aus 11 einzelnen  $0.03\text{ mm}$  dicken Goldscheibchen mit  $6\text{ mm}$  Durchmesser<sup>8</sup>. Das Gold-Sandwich wurde 12 Stunden lang bestrahlt. Das über die einzelnen Scheibchen gemittelte Produkt aus Flußdichte und Querschnitt  $\overline{\Phi\sigma}(d)$  ergibt sich aus deren spezifischer Aktivität. Es ist zu beachten, daß der Verlauf  $\sigma(d)$  als Funktion des Targetabstands nicht bekannt zu sein braucht, da bei dieser Aktivierungsmessung davon ausgegangen werden kann, daß der Querschnittsverlauf von Gold und  $^{155}\text{Eu}$  derselbe ist, man also den Ausdruck zur Berechnung der in der Probe induzierten Aktivität vereinfachen kann :

$$dN \sim \int_d \overline{\Phi\sigma}(x) dx = \langle \sigma \rangle \int_d f(x) \Phi(x) dx = \langle \sigma \rangle \langle \Phi \rangle .$$

<sup>8</sup>Auf eine Analyse in radialer Richtung wurde verzichtet, da sich die Ansprechwahrscheinlichkeit der zur Aktivitätsmessung verwendeten Detektoren über den Probendurchmesser nicht nachweisbar verändert (nächster Abschnitt)

Dabei wird die Abstandsabhängigkeit des Querschnitts durch den Faktor  $f(x)$  repräsentiert.

Unter der Annahme eines mittleren Goldeinfangquerschnitts von  $\langle \sigma_{Au} \rangle = 586 \text{ mb}$  [Rat88] ergibt sich bei der  $^{155}\text{Eu}$ -Aktivierung ein mittlerer Neutronenfluß von  $\langle \Phi \rangle = 3 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ , der jedoch durch Alterung des Neutronentargets um über einen Faktor zwei schwankte (Abbildung 14). Für die Normierung des mittleren Neutronenflusses wurde in Anlehnung an die Detektoreichung und die Zählraten der Goldfolien ein Fehler von 2% veranschlagt.

### 3.3.2 Eichung des HPGe-Detektors

Um die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors zu optimieren, mußte die Probe möglichst nahe am Germaniumkristall ausgezählt werden. Wegen der hohen Eigenaktivität der Probe war jedoch eine zusätzliche Abschirmung durch ein 0.5 mm dickes Goldblech notwendig. Gold hat neben seiner hohen Dichte den Vorteil, daß die Absorptionskante der K-Schale mit 80.5 keV nur leicht unterhalb der intensivsten  $^{155}\text{Eu}$ -Linie von 86.5 keV liegt, also maximale Absorption erreicht wird. Zum Schutz gegen die natürliche Radioaktivität wurde der gesamte Detektor mit einer mindestens 7.5 cm dicken Bleiabschirmung umgeben. So konnte im Meßintervall  $E > 200 \text{ keV}$  die integrale Untergrundrate auf  $1.5 \text{ sec}^{-1}$  gesenkt werden.

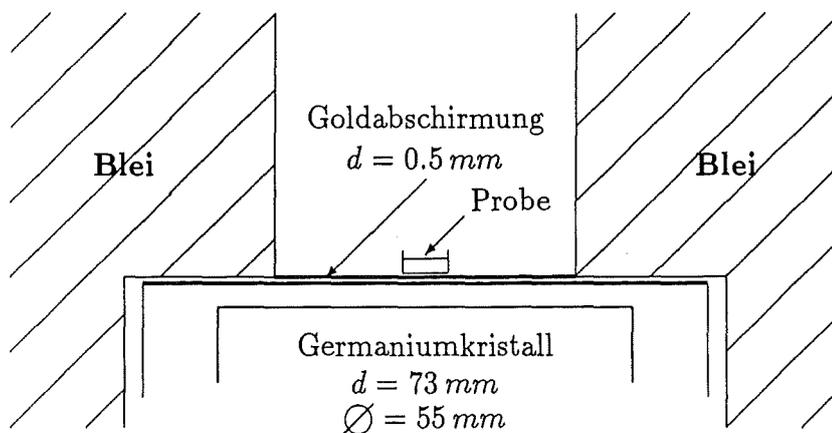


Abbildung 15: Aufbau zur Aktivitätsbestimmung von  $^{156}\text{Eu}$

Auf Grund der sehr engen Meßgeometrie, der damit verbundenen hohen Detektoransprechwahrscheinlichkeit und der relativ großen Probendicke kommt es zu zwei Effekten, die bei der Eichung und der Aktivitätsbestimmung berücksichtigt werden müssen.

### 3.3.2.1 Ausdehnung der Probe

Auf Grund der Probendicke ist nicht nur die Ansprechwahrscheinlichkeit, sondern auch die Anzahl der in einem Volumenelement erzeugten  $^{156}\text{Eu}$ -Kerne und die zugehörige Korrektur für Selbstabsorption eine Funktion des Abstands. Die Variation der Ansprechwahrscheinlichkeit über das Probenvolumen wurde mit einer  $^{152}\text{Eu}$ -Eichquelle bestimmt. Während im Energieintervall  $E > 200 \text{ keV}$  keine signifikante Variation in radialer Richtung feststellbar war, zeigte sich in longitudinaler Richtung eine Differenz von maximal  $\pm 1\%$ . Diese Ergebnisse und der mit dem Goldsandwich im letzten Abschnitt beschriebene Neutronenflußverlauf als Funktion des Targetabstands (welcher der  $^{156}\text{Eu}$ -Verteilung in der Probe entspricht) sowie den Resultaten der Selbstabsorptionsrechnungen für die einzelnen Probenschichten zeigen, daß die mittlere Ansprechwahrscheinlichkeit nur ein bis zwei Promille über derjenigen des Probenmittelpunktes liegt. Daher wurden der Verlauf der Ansprechwahrscheinlichkeit für einen Abstand von  $1 \text{ mm}$  über dem Goldabsorber bestimmt und keinerlei weiteren Korrekturen angebracht.

### 3.3.2.2 Der Kaskadensummationseffekt

Im Vergleich zum Probenvolumen ist das Auftreten von Kaskadensummationseffekten weitaus wichtiger und kann zur Verfälschung der beobachteten Linienzählraten führen: Da radioaktive Zerfälle häufig über mehrere Zwischenzustände des Tochternuklids stattfinden, besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit, daß mehrere Gammaquanten ein und der selben Kaskade im Detektor gleichzeitig gemessen werden. Die entsprechenden Korrekturterme können, je nach Kernübergang, weit über der totalen Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors liegen. Aus diesem Grund wurde das im Anhang A und [Jaa93a] beschriebene Monte-Carlo-Programm CASC entwickelt, das aus dem Verlauf der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors für beliebige Zerfallsschemata die den einzelnen Linien zugehörigen Korrekturfaktoren errechnet.

Dazu war es notwendig, neben der Ansprechwahrscheinlichkeit für einzelne Linien auch die totale Detektoransprechwahrscheinlichkeit<sup>9</sup> zu bestimmen. Auch in diesem Zusammenhang erwies sich der Goldabsorber als großer Vorteil, da niederenergetische Gamma- und Röntgenstrahlung nicht berücksichtigt werden mußte. Damit war es möglich, die totale und die Linienansprechwahrscheinlichkeit für die teilweise monoenergetischen Eichquellen  $^{241}\text{Am}$  ( $59 \text{ keV}$ ),  $^{109}\text{Cd}$  ( $88 \text{ keV}$ ),  $^{139}\text{Ce}$  ( $165 \text{ keV}$ ),  $^{113}\text{Sn}$  ( $391 \text{ keV}$ ),  $^{137}\text{Cs}$  ( $662 \text{ keV}$ ),  $^{54}\text{Mn}$  ( $835 \text{ keV}$ ) und  $^{65}\text{Zn}$  ( $1115 \text{ keV}$ ), aber auch von  $^{57}\text{Co}$  ( $122 \text{ keV}$  und  $136 \text{ keV}$ ) ohne weitere Kaskadenkorrekturen zu bestimmen.

Aus dem so gewonnenen, ersten Verlauf der Ansprechwahrscheinlichkeit folgen für eine Vielzahl von weiteren Übergängen aus Mehrlinienpräparaten wie  $^{152}\text{Eu}$  ( $121 \text{ keV}$  bis  $1408 \text{ keV}$ ),  $^{88}\text{Y}$  ( $898 \text{ keV}$ ,  $1836 \text{ keV}$  und  $2734 \text{ keV}$ ) und  $^{228}\text{Th}$  (z.B.:  $583 \text{ keV}$  und  $2614 \text{ keV}$ ) bereits die Korrekturfaktoren, bzw. es lassen sich aus der Abweichung des gemessenen vom interpolierten Wert Ansprechwahrscheinlichkeiten errechnen.

---

<sup>9</sup>Unter totaler Ansprechwahrscheinlichkeit versteht man die Linienansprechwahrscheinlichkeit einschließlich der zugehörigen Compton- und Röntgen-Anteile

Es folgt so zum Beispiel die totale Ansprechwahrscheinlichkeit der  $1836\text{ keV }^{88}\text{Y}$ -Linie aus ihrer Wirkung auf die  $898\text{ keV }^{88}\text{Y}$ -Linie, deren Linienanspechwahrscheinlichkeit aus der Interpolation der Meßpunkte von  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  bekannt ist (vergleiche Abbildung 22 in Anhang A). Andererseits läßt sich der Kaskadensummationskorrekturfaktor für die  $2734\text{ keV }^{88}\text{Y}$ -Linie aus den Ansprechwahrscheinlichkeiten der beiden über das Zwischen-niveau stattfindenden Gammaübergänge errechnen. Weitere solche Linienpaare finden sich ebenfalls im  $^{152}\text{Eu}$ , wodurch der gesamte, benötigte Energiebereich abgedeckt werden konnte.

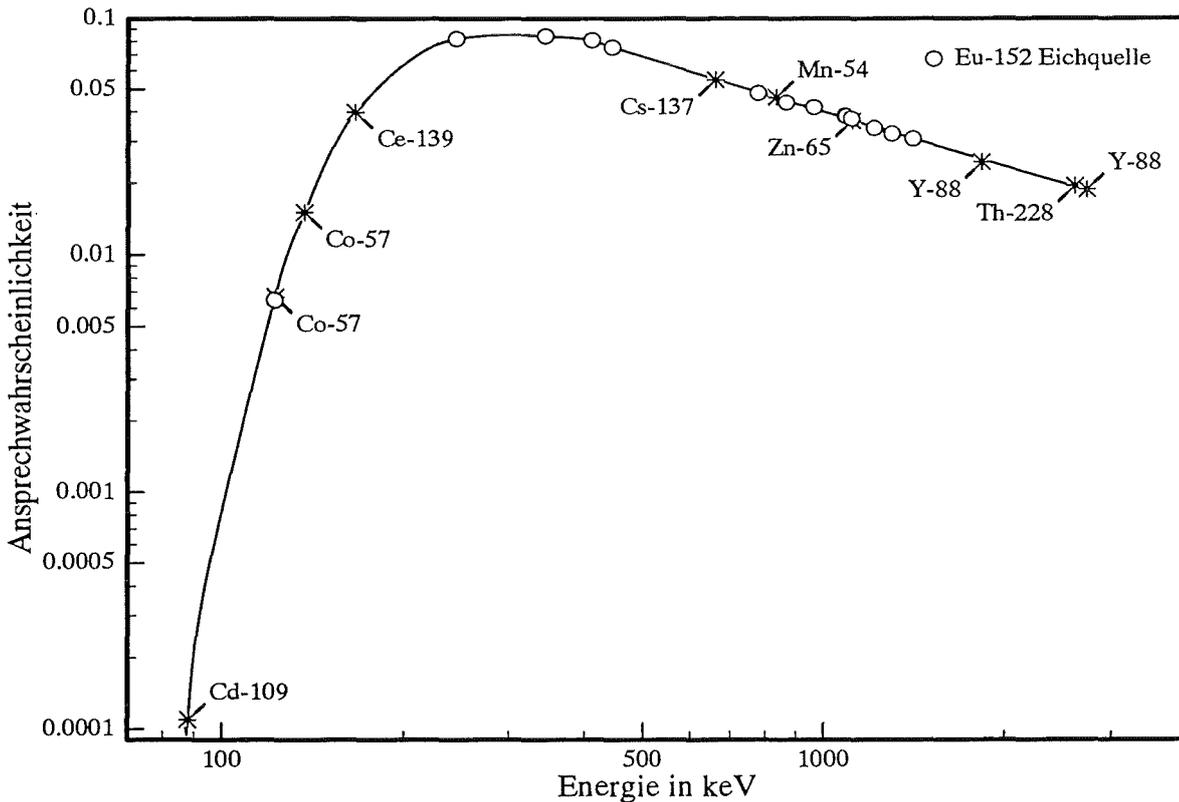


Abbildung 16: Verlauf der Ansprechwahrscheinlichkeit des verwendeten HPGe-Detektors

Die Zerfallsschemata für die Korrekturrechnungen wurden der jeweils aktuellsten Ausgabe der *Nuclear Data Sheets* entnommen. Der Fehler in den Berechnungen der Kaskadensummationseffekte wird im folgenden generell mit  $\pm 1\%$  veranschlagt, da die Fehler der Korrekturfaktoren lediglich in Höhe der totalen bzw. Linienansprechwahrscheinlichkeiten der entsprechenden Gammaquanten gewichtet werden. Abbildung 16 zeigt die gewonnenen Resultate für die wichtigsten der im Text angesprochenen Linien. Der Vergleich der Datenpunkte von monoenergetischen Präparaten, die mit einem Stern gekennzeichnet wurden, mit denen des Mehrlinienpräparats  $^{152}\text{Eu}$  zeigt die sehr gute Konsistenz dieser Ergebnisse.

### 3.3.3 Bestimmung der $^{156}\text{Eu}$ -Aktivität

Im direkten Anschluß an die Bestrahlung wurde mit der Aufnahme des Probenspektrums begonnen, die insgesamt 29 Tage andauerte; die Konversion erfolgte in ein Spektrum mit 8192 Kanälen. Da die integrale Zählrate im gesamten Spektrum mit  $2500\text{ sec}^{-1}$  relativ hoch war, wurde, um die Totzeit des Datenaufnahmesystems zu verringern, die Ansprechschwelle des ADCs auf  $200\text{ keV}$  erhöht. Die verbleibende Zählrate von  $8.44\text{ sec}^{-1}$  war hauptsächlich auf die  $^{152/154}\text{Eu}$ -Kontamination der Probe zurückzuführen. Dies unterstreicht die Notwendigkeit der Reinigung des Samariums vor der  $^{155}\text{Eu}$ -Erbrütung.

Um langzeitliche Schwankungen der Meßelektronik korrigieren und sich vom zeitlichen Abfall der verwendeten  $^{156}\text{Eu}$ -Linien überzeugen zu können, wurde das aufgenommene Spektrum alle vier Stunden abgespeichert. Obwohl sich die Verstärkung während der Meßzeit lediglich um  $\pm 0.03\%$  veränderte, wurden für alle 173 Einzelspektren eine Energieeichung durchgeführt und die Spektren vor der Summation entsprechend umgerechnet (*geschiftet*). Das erste Spektrum nach der Bestrahlung wurde nicht in die Auswertung miteinbezogen, da in diesem Meßintervall noch die kurzlebige  $^{155}\text{Sm}$ -Aktivität aus dem Neutroneneinfang am  $^{154}\text{Sm}$ , überwog.

Abbildung 17 zeigt das erhaltene Summenspektrum aller 172 Einzelspektren; es enthält

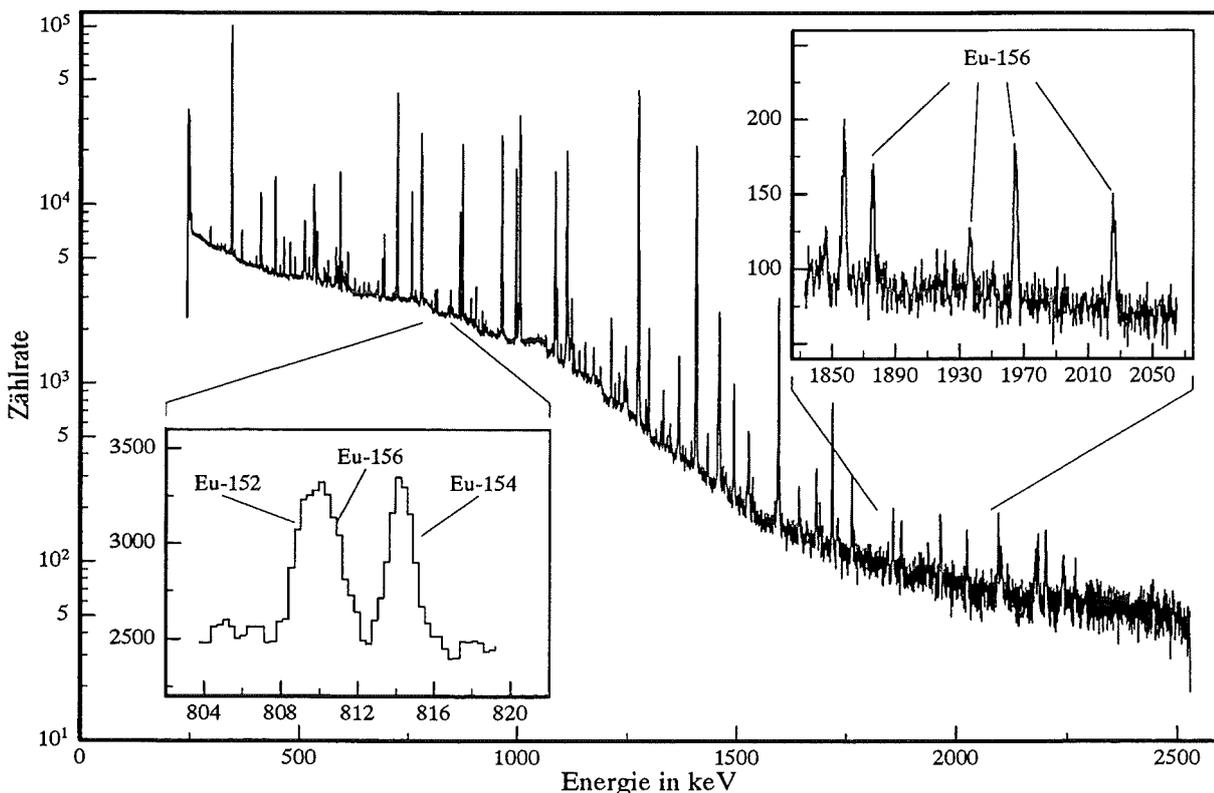


Abbildung 17: HPGe-Spektrum der  $^{155}\text{Eu}$ -Probe nach der Bestrahlung am V.d.G. (Meßzeit : 688 Stunden).

über 200 Linien. Diese sind hauptsächlich auf  $^{152}\text{Eu}$  und  $^{154}\text{Eu}$  und ihre *Pile-up*-Linien mit  $^{155}\text{Eu}$  und der in der Goldabschirmung induzierten Röntgenstrahlung zurückzuführen. Weiterhin finden sich in ihm die charakteristischen Linien der natürlichen Strahlungsquellen : Folgekerne aus den Zerfällen von Radon, Thorium und Uran, sowie  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$ . Außerdem wurden geringe Aktivitäten von  $^{182}\text{Ta}$  und  $^{122/124}\text{Sb}$  gefunden, die von minimalen Probenkontaminationen herrühren.

Insgesamt gäbe es beim  $^{156}\text{Eu}$ -Zerfall 23 Übergänge mit einer Intensität von über einem Prozent, jedoch konnten viele der zugehörigen Linien, besonders die mit hoher Intensität im Intervall zwischen  $811\text{ keV}$  und  $1366\text{ keV}$  nicht für die Auswertung verwendet werden, da sie von Untergrundlinien überlagert wurden. Tabelle 8 enthält die Aufstellung der zur Auswertung herangezogenen Linien, ihre zugehörigen Intensitäten  $I_\gamma$  und Detektordaten sowie die aus dem Summenspektrum ermittelten Zählraten.

Tabelle 8: Intensitäten und Zählraten von den zur Aktivitätsbestimmung verwendeten  $^{156}\text{Eu}$ -Linien

| Linie               | $I_\gamma$ [Hel86]<br>$\pm 8.2\%$ | $I_\gamma$ [Bro86]<br>$\pm 4.9\%$ | $\varepsilon_\gamma$<br>$\pm 2\%$ | $P_\gamma$<br>$\pm 0.2\%$ | $C_\gamma$<br>$\pm 1\%$ | Linieninhalt<br>$Z_\gamma$ |
|---------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|---------------------------|-------------------------|----------------------------|
| $646.3\text{ keV}$  | $0.06279 \pm 0.00027$             | $0.070 \pm 0.003$                 | 0.05442                           | 0.975                     | 0.813                   | $2596 \pm 117$             |
| $811.8\text{ keV}$  | $0.09700 \pm 0.0004$              | 0.102                             | 0.04556                           | 0.975                     | 0.811                   | $3155 \pm 117$             |
| $1079.2\text{ keV}$ | $0.04589 \pm 0.00018$             | $0.048 \pm 0.004$                 | 0.03645                           | 0.976                     | 0.977                   | $1342 \pm 64$              |
| $1876.9\text{ keV}$ | $0.01512 \pm 0.00012$             | $0.0169 \pm 0.0007$               | 0.02367                           | 0.98                      | 1.724                   | $614 \pm 38$               |
| $1937.6\text{ keV}$ | $0.01944 \pm 0.00014$             | $0.021 \pm 0.001$                 | 0.02317                           | 0.98                      | 1.011                   | $367 \pm 32$               |
| $1965.9\text{ keV}$ | $0.03870 \pm 0.00019$             | $0.0412 \pm 0.0017$               | 0.02295                           | 0.98                      | 1.147                   | $926 \pm 42$               |
| $2026.6\text{ keV}$ | $0.03272 \pm 0.00016$             | $0.0347 \pm 0.0014$               | 0.02250                           | 0.98                      | 1.001                   | $623 \pm 36$               |
| $2097.8\text{ keV}$ | $0.03809 \pm 0.00018$             | $0.0419 \pm 0.0015$               | 0.02199                           | 0.98                      | 1.036                   | $793 \pm 31$               |
| $2180.9\text{ keV}$ | $0.02142 \pm 0.00013$             | $0.0239 \pm 0.001$                | 0.02144                           | 0.98                      | 1.017                   | $415 \pm 32$               |
| $2186.8\text{ keV}$ | $0.03485 \pm 0.00017$             | $0.039 \pm 0.004$                 | 0.02140                           | 0.98                      | 1.012                   | $637 \pm 29$               |
| $2269.9\text{ keV}$ | $0.01030 \pm 0.00008$             | $0.0110 \pm 0.0004$               | 0.02088                           | 0.98                      | 1.012                   | $201 \pm 20$               |

Die *Pile-up*-Korrekturfaktoren  $P_\gamma$  für die einzelnen Linien wurden bereits bei der Detektoreichung mit einem Pulser bestimmt und betragen je nach Energie zwischen 2.5 % und 2 %. Die Korrekturfaktoren für Kaskadensummationseffekte  $C_\gamma$  wurden mit dem Programm CASC (Anhang A) berechnet; sie waren im allgemeinen recht gering und erreichten nur im Fall der  $1877\text{ keV}$ -Linie einen Wert von 72 %. Die in Tabelle 8 aufgeführten Werte der Detektoransprehwahrscheinlichkeit  $\varepsilon_\gamma = \varepsilon_\gamma \cdot K_\gamma$  enthalten bereits die Selbstabsorptionskorrekturen, die mit Hilfe der Tabellen von [Sto70] berechnet wurden.

Da sich bei der Auswertung ein deutlicher Unterschied zwischen den in den *Nuclear Data*

*Sheets* [Hel86] und den im Tabellenwerk von [Bro86] aufgeführten Linienintensitäten ergab, wurden hier beide Quellen angegeben und verwendet.

Es errechnen sich für den Referenzzeitpunkt, den 21. Nov. 1993, 11 Uhr, d.h. für den Beginn der Datenaufnahme, die folgenden Werte für die Zahl der in der Probe erzeugten  $^{156}\text{Eu}$ -Kerne. Die hierzu verwendeten Formeln wurden bereits im Kapitel über den Holmiumquerschnitt vorgestellt.

$$N(^{156}\text{Eu}) = \begin{cases} (1.275 \pm 0.108) \cdot 10^6 & \text{nach [Hel86]} \\ \text{bzw.} \\ (1.188 \pm 0.066) \cdot 10^6 & \text{nach [Bro86]} \end{cases}$$

Die Diskrepanz, die auf die Linienintensitätswerte der beiden Referenzen zurückgeht, wird durch die beiden systematischen Fehler abgedeckt. Es fällt jedoch auf, daß (die hier nicht aufgeführten) Einzelergebnisse für die verschiedenen Linien bei Verwendung der Datensätze aus [Bro86] eine wesentlich geringere Streuung aufweisen als es mit den Intensitäten von [Hel86] der Fall ist.

Im Folgenden wird das gewichtete Mittel<sup>10</sup>

$$N(^{156}\text{Eu}) = (1.21 \pm 0.06) \cdot 10^6$$

für die Querschnittsbestimmung verwendet.

### 3.3.4 Ergebnisse und Diskussion

Aus den in den letzten Abschnitten aufgeführten Daten ergibt sich für das verwendete quasistellare Neutronenspektrum ein Querschnittsverhältnis von

$$\frac{\langle \sigma(^{155}\text{Eu}) \rangle}{\langle \sigma(^{197}\text{Au}) \rangle} = \begin{cases} 2.39 \pm 0.23 & \text{nach [Hel86]} \\ \text{bzw.} \\ 2.22 \pm 0.16 & \text{nach [Bro86].} \end{cases}$$

Aus dem stellaren 30 keV-Querschnitt von Gold [Rat88] folgt so der stellare  $^{155}\text{Eu}$ -Querschnitt seines Grundzustands. Das wieder aus beiden Werten gewichtete Mittel lautet

$$\langle \sigma(^{155}\text{Eu}) \rangle_{30 \text{ keV}} = 1320 \pm 84 \text{ mb.}$$

Wie bei der  $^{163}\text{Ho}$ -Messung wurde für die Extrapolation auf 30 keV ein systematischer Fehler von 2% berücksichtigt. Der gefundene Querschnitt liegt somit deutlich unter den theoretisch berechneten Werten von [Har81] bzw. [Hol76], die Querschnitte von 2088 mb bzw. 1730 mb angeben.

---

<sup>10</sup>Die Gewichtung erfolgte über die systematischen Fehler der beiden verwendeten Referenzen. Die anderen Fehlerquellen wurden getrennt behandelt.

Auf Grund mehrerer tiefliegender Kernniveaus im  $^{155}\text{Eu}$ , die in der stellaren Umgebung ebenfalls besetzt werden, muß davon ausgegangen werden, daß sich der tatsächliche, stellare Einfangquerschnitt von  $^{155}\text{Eu}$  vom gemessenen Wert unterscheidet. Die zugehörigen Korrekturen wurden von [Har81] und [Hol76] berechnet, widersprechen sich jedoch. Während [Har81] einen Anstieg des Querschnitts um  $131\text{ mb}$  errechnet, findet [Hol76] in stellarer Umgebung eine leichte Abnahme um  $34\text{ mb}$ . Angesichts des Widerspruchs und der hohen Diskrepanz wurde der experimentelle Wert nicht weiter korrigiert.

Der zusammenfassende Vergleich der experimentellen Ergebnisse für  $^{162}\text{Er}$ ,  $^{163}\text{Ho}$  und  $^{155}\text{Eu}$  mit den bisherigen theoretischen Arbeiten von [Hol76] und [Har81] ergibt ein widersprüchliches Bild. Während die Werte für  $^{162}\text{Er}$  und  $^{163}\text{Ho}$  gut übereinstimmen, zeigt die Diskrepanz beim  $^{155}\text{Eu}$ , daß die Zuverlässigkeit globaler Rechnungen mit dem statistischen Modell selbst im Massenbereich zwischen magischen Neutronenschalen, wo die Voraussetzung hoher Niveaudichte gut erfüllt ist, nicht gesichert ist.

# Kapitel 4

## Astrophysikalische Betrachtungen

### 4.1 Der klassische s-Prozeß und die $^{163}\text{Ho}/^{163}\text{Dy}$ -Verzweigung

Die Häufigkeitsentwicklung  $N_i(t)$  von Atomkernen während eines Nukleosyntheseprozesses kann durch einen Satz von gekoppelten Differentialgleichung beschrieben werden.

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = - \sum_k \lambda_{i \rightarrow k} N_i(t) + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j(t)$$

wobei mit  $\lambda_{i \rightarrow k}$  sind die Übergangsraten des Kerns  $i$  zum Kern  $k$  bezeichnet sind. Bei der Betrachtung des s-Prozesses brauchen jedoch im Allgemeinen nur die stellaren Zerfallskonstanten und Neutroneneinfangraten berücksichtigt zu werden. Ersetzt man in diesen Differentialgleichungen die Zeit durch den zeitintegrierten Neutronenfluß  $d\tau = n_n v_T dt$ , läßt sich das Gleichungssystem für  $(\sigma N)_i$ , das Produkt aus maxwellgemitteltem Neutroneneinfangquerschnitt  $\sigma_i$  und Häufigkeit  $N_i$  des  $i$ -ten Kerns, in Matrixschreibweise darstellen

$$\frac{d(\sigma \vec{N})}{d\tau} = \mathbf{M} (\sigma \vec{N}) + \vec{e}_1 \sigma_1 (\sigma N)_o$$

ein Ausdruck, der sich analytisch im allgemeinen Fall nicht lösen läßt. Der Index  $o$  steht hierbei für den Ausgangskern der Betrachtung und  $\vec{e}_1 = (1, 0, 0 \dots 0)^T$  für den ersten Einheitsvektor.

Das klassische s-Prozeßmodell macht nun die vereinfachende Annahme [War76], daß Neutronendichte  $n_n$ , thermische Neutronengeschwindigkeit  $v_T$  (d.h. Temperatur) und Elektronendichte  $n_e$  (d.h. Massendichte) während der Nukleosynthese konstant sind. Hierdurch werden die Halbwertszeiten, Neutroneneinfangraten und so die Matrix  $\mathbf{M}$  zeitunabhängig und die Gleichung ist analytisch lösbar.

Genauere Untersuchungen zeigen jedoch, daß zur Beschreibung der in der Natur beobachteten Isotopenhäufigkeiten der schweren Elemente nicht ein einziger s-Prozeß ausreicht, sondern drei s-Komponenten benötigt werden [Köp89]. Eine schwache Komponente, welche nur zur Synthese im Bereich  $A < \approx 90$  beiträgt, eine starke Komponente, die nur

wesentliche Beiträge zu Blei und Wismut liefert, sowie die Hauptkomponente, welche das Gros der schweren Elemente erzeugt.

Für die Hauptkomponente führt jedoch nicht eine einzige Bestrahlung, sondern erst eine Bestrahlungsverteilung der Form  $\rho(\tau) \sim e^{-\tau/\tau_0}$  zu den beobachteten Isotopenhäufigkeiten [War76, Káp89]. Die mit dieser Verteilung integrierte Lösung für das  $i$ -te Isotop lautet

$$(\sigma N)_i = (\sigma N)_0 \sigma_1 \prod_{j=1}^n \frac{A_{ij}}{\frac{1}{\tau_0} - \beta_j}$$

und zeigt, daß die Verhältnisse  $\frac{(\sigma N)_i}{(\sigma N)_0}$  vom Ausgangskern unabhängig sind. Die Konstanten  $\beta_j$  sind die Eigenwerte der Matrix  $\mathbf{M}$  und die  $A_{ij}$  die Matrixelemente ihrer Eigenvektorenmatrix  $\mathbf{A}$  unter der Normierungsbedingung  $\mathbf{A}^{-1} \vec{e}_1 = \mathbf{1}$ .

Falls also der Kern  $i$  nur von einem Vorgängerisotop  $i-1$  erreicht wird, reduziert sich die Matrixgleichung auf

$$\frac{d(\sigma N)_i}{d\tau} = -\alpha \sigma_i (\sigma N)_i + \gamma \sigma_i (\sigma N)_{i-1}.$$

Die Konstanten  $\alpha$  und  $\gamma$  ergeben sich aus den Reaktionsraten  $\lambda_\beta$  und  $\lambda_n$  bei der Umformung der Differentialgleichungen. Es folgt so der Ausdruck für eine Propagatorgleichung

$$(\sigma N)_i = (\sigma N)_{i-1} \gamma \frac{1}{\alpha + \frac{1}{\tau_0 \sigma_i}}.$$

Bei mehreren Vorgängern müssen lediglich die entsprechenden Anteile addiert werden. Erhält ein Kern auch Beiträge von seinen Nachfolgeisotopen, wie hier z.B. das  $^{163}\text{Dy}$  aus den Elektroneneinfangreaktionen des  $^{163}\text{Ho}$  (Abbildung 2), so muß, um den zugehörigen Propagator zu finden, entweder das aus den Propagatoren gefundene Gleichungssystem oder die entsprechende Matrixgleichung gelöst werden.

Im Falle des  $^{163}\text{Dy}/^{163}\text{Ho}$ -Paares ergibt sich das folgende Differentialgleichungssystem

$$\frac{d}{d\tau} \begin{pmatrix} (\sigma N)_1 \\ (\sigma N)_2 \\ (\sigma N)_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{1-f_\beta} \sigma_1 & \frac{f_\epsilon}{1-f_\epsilon} \sigma_1 & 0 \\ \frac{f_\beta}{1-f_\beta} \sigma_2 & -\frac{1}{1-f_\epsilon} \sigma_2 & 0 \\ 0 & g_\beta \sigma_3 & -\sigma_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (\sigma N)_1 \\ (\sigma N)_2 \\ (\sigma N)_3 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \sigma_1 (\sigma N)_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

wobei aus Platzgründen die Indices  $0, 1, 2$  und  $3$  für die Isotope  $^{162}\text{Dy}$ ,  $^{163}\text{Dy}$ ,  $^{163}\text{Ho}$  und  $^{164}\text{Er}$  verwendet wurden.

$f_\beta = \lambda_\beta / (\lambda_\beta + \lambda_n)^{(^{163}\text{Dy})}$  ist die Wahrscheinlichkeit für den  $\beta^-$ -Zerfall des  $^{163}\text{Dy}$ ,  $f_\epsilon = \lambda_\epsilon / (\lambda_\epsilon + \lambda_n)^{(^{163}\text{Ho})}$  die für den Elektroneneinfang des  $^{163}\text{Ho}$  zurück zum  $^{163}\text{Dy}$  und  $g_\beta = \lambda_\beta / (\lambda_\beta + \lambda_\epsilon)^{(^{164}\text{Ho})}$  die im vorletzten Kapitel eingeführte Wahrscheinlichkeit für  $\beta^-$ -Zerfall des  $^{164}\text{Ho}$ . Der Einfangquerschnitt des  $^{164}\text{Ho}$  wurde wegen der kurzen Halbwertszeit des Isotops vernachlässigt.

Es folgen hieraus die Propagatorgleichungen für  $^{163}\text{Dy}$ ,  $^{163}\text{Ho}$  und  $^{164}\text{Er}$

$$\begin{aligned}
 (\sigma N)_{^{163}\text{Dy}} &= (\sigma N)_{^{163}\text{Dy}} \frac{\sigma_1 \tau_o (1 + \tau_o \frac{\sigma_2}{1-f_\epsilon})}{1 + \tau_o (\frac{\sigma_1}{1-f_\beta} + \frac{\sigma_2}{1-f_\epsilon}) - \tau_o^2 (\frac{f_\beta \sigma_2}{1-f_\beta} \frac{f_\epsilon \sigma_1}{1-f_\epsilon} - \frac{\sigma_1}{1-f_\beta} \frac{\sigma_2}{1-f_\epsilon})} \\
 (\sigma N)_{^{163}\text{Ho}} &= (\sigma N)_{^{163}\text{Dy}} \frac{f_\beta}{1-f_\beta} \frac{1}{\frac{1}{1-f_\epsilon} + \frac{1}{\tau_o \sigma_2}} \\
 (\sigma N)_{^{164}\text{Er}} &= (\sigma N)_{^{163}\text{Ho}} g_\beta \frac{1}{1 + \frac{1}{\tau_o \sigma_3}}
 \end{aligned}$$

Die mit den neuesten Kerndaten durchgeführten Analysen der Hauptkomponente für den gesamten Synthesepfad (Programm SPEED.CLASS [Bee85]) ergeben für die Parameter des stellaren Plasmas die folgenden Zahlenwerte [Käp93, Wis93] :

$$\begin{aligned}
 n_n &= (3.8 \pm 0.6) \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3} \\
 kT &= 29 \pm 5 \text{ keV} \\
 \tau_o &= (0.297 \pm 0.009) \sqrt{kT/30\text{keV}} \text{ mb}^{-1}
 \end{aligned}$$

Als weitere Eingangsdaten für die Analyse der  $^{163}\text{Ho}/^{163}\text{Dy}$ -Verzweigung zum  $^{164}\text{Er}$  werden die Halbwertszeiten der beteiligten, instabilen Kerne als Funktion der Temperatur und Elektronendichte benötigt, diese wurden der Arbeit von [Tak87] entnommen. Die stellaren Einfangquerschnitte entstammen [Bao87] bzw. dieser Arbeit.

Als Ausgangskern der Berechnungen wurde der reine s-Kern  $^{160}\text{Dy}$  gewählt, aus dessen solarer Häufigkeit [And89] sich die des  $^{164}\text{Er}$  ergeben sollte. Von diesen beiden solaren Häufigkeiten müssen zuvor jedoch noch ihre (sehr geringen) p-Prozess-Anteile abgezogen werden, diese wurden durch lineare Interpolation aus den Häufigkeiten der reinen p-Kerne<sup>1</sup>  $^{156}\text{Dy}$ ,  $^{162}\text{Er}$  und  $^{168}\text{Yb}$  angenähert.

Auf Grund der starken Elektronendichteabhängigkeit der stellaren Zerfallskonstanten von  $^{163}\text{Dy}$ ,  $^{163}\text{Ho}$  und  $^{164}\text{Ho}$  (Abbildung 18) erwartet man aus der Verzweigungsanalyse genauere Aufschlüsse über diesen Parameter des stellaren Plasmas. Abbildung 19 zeigt die Kurvenscharen für verschiedene Elektronendichten, mit denen der solare  $(\sigma N)$ -Wert des  $^{164}\text{Er}$  erreicht wird. Innerhalb der Fehler der anderen Parameter  $n_n$  und  $kT$  (gestrichelte Linien) läßt sich der zulässige Parameterbereich zu  $10 \cdot 10^{26} < \approx n_e < \approx 30 \cdot 10^{26} \text{ cm}^{-3}$  eingrenzen, wobei die Temperaturabhängigkeit wesentlich ausgeprägter ist als die Abhängigkeit von der Neutronendichte. Die Analyse zeigt ebenfalls, daß für zu tiefe Temperaturen  $kT < \approx 16\text{keV}$  unrealistisch niedrige Elektronendichten nötig wären, um eine ausreichende  $^{164}\text{Er}$ -Menge zu erzeugen. Dies ist in erster Linie auf die Halbwertszeit von  $^{163}\text{Dy}$  zurückzuführen, die um über drei Größenordnungen variiert (Abbildung 18).

Leider mußte bei der Analyse festgestellt werden, daß der in dieser Arbeit neu bestimmte stellare Querschnittswert von  $^{163}\text{Ho}$  keinerlei Auswirkungen auf die  $^{164}\text{Er}$ -Häufigkeit hat.

<sup>1</sup>Beim  $^{158}\text{Dy}$  handelt es sich nicht um einen reinen p-Kern, da auch  $^{157}\text{Gd}$  im stellaren Plasma instabil ist.

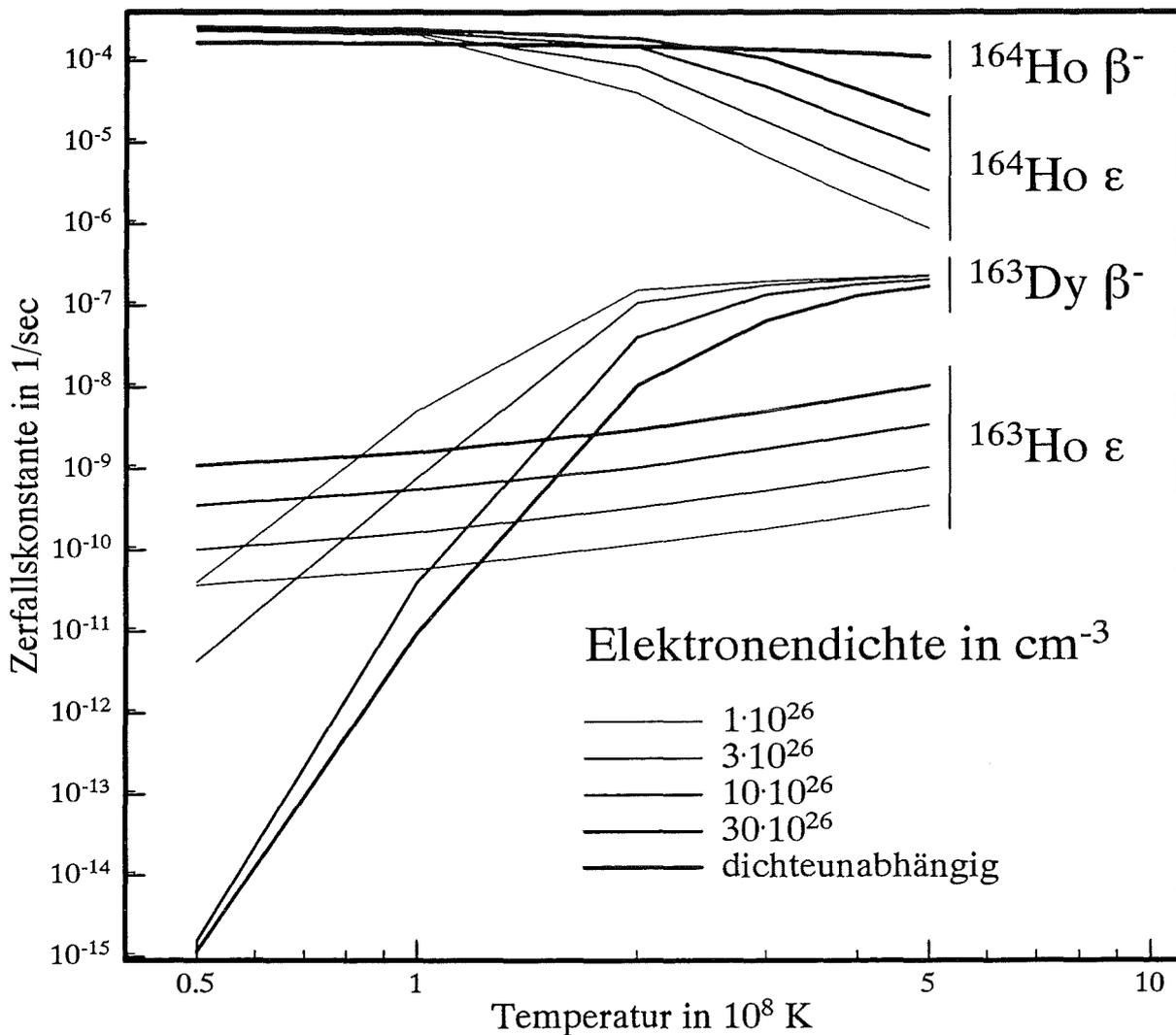


Abbildung 18:  $n_e$ - und  $kT$ -Abhängigkeit der Zerfallskonstanten

Grund hierfür ist, daß die Rückverzweigung vom  $^{163}\text{Ho}$  zum  $^{163}\text{Dy}$  lediglich  $\approx 1\%$  beträgt und so für einen weiten Querschnittbereich unwichtig ist – man kann  $^{163}\text{Ho}$  sogar als stabil betrachten! Die bisherige Überbewertung dieses Einfangquerschnitts ist auf einen alten, grob falschen Wert der  $^{163}\text{Ho}$ -Halbwertszeit zurückzuführen, der auch heute noch mit  $\approx 33$  Jahren in der Literatur zu finden ist. Die entscheidende Verzweigung für die  $^{164}\text{Er}$ -Erzeugung ist also ausschließlich die beim  $^{163}\text{Dy}$ !

Ein weiterer Effekt der Verzweigung am  $^{163}\text{Dy}$  ist jedoch, daß im Anschluß an die Neutronenbestrahlung das gebildete  $^{163}\text{Ho}$  zerfällt und so wesentlich zur s-Häufigkeit von  $^{163}\text{Dy}$  beiträgt. Wegen der unterschiedlichen Querschnitte der beiden Isotope ergibt sich auch hieraus die Möglichkeit, die oben genannten stellaren Parameter einzugrenzen. Da in solarem Material jedoch die s-Anteile von  $^{163}\text{Dy}$  durch r-Prozeß-Anteile überlagert sind, ist man für diese Art der Analyse auf reine s-Häufigkeiten angewiesen, wie sie sich z.B. in

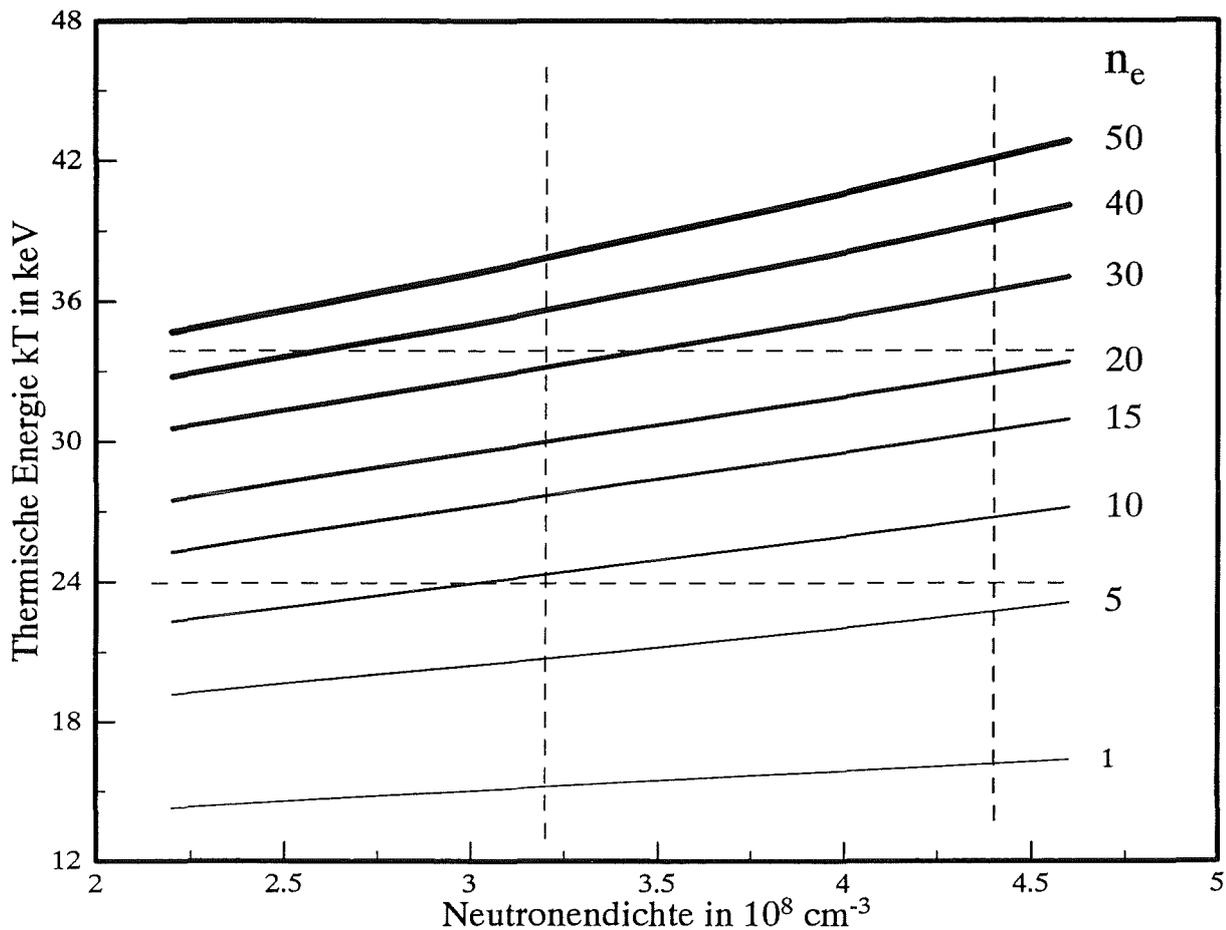


Abbildung 19: Parameterstudie zum solaren ( $\sigma N$ )-Wert von  $^{164}\text{Er}$ . Die Elektronendichte  $n_e$  ist in Einheiten von  $10^{26} \text{ cm}^{-3}$  angegeben.

Isotopenanomalien von SiC-Körnern in manchen Meteoriten finden. Vorläufige Ergebnisse auf diesem Gebiet [Ric94] zeigen eine deutliche Unterproduktion des  $^{163}\text{Dy}$ . Dies läßt erwarten, daß der neu gefundene  $^{163}\text{Ho}$ -Querschnitt auf diesem Weg doch einen wichtigen Beitrag zum Verständnis der Nukleosynthese in diesem Massengebiet leistet.

## 4.2 Das LMS-Modell

LMS steht für den englischen Ausdruck *low mass star* und bezeichnet Sterne mit geringer Masse  $1 M_{\odot} < M < 3 M_{\odot}$ . Wie in der Einführung angedeutet, gibt es LMS-Modelle für Sterne geringer Metallizität  $Z \approx 5 \cdot 10^{-3}$ , die in der Lage sind, die solaren Häufigkeitsmuster der schweren Elemente richtig zu beschreiben [Käp90, Gal88, Hol89]. Die s-Prozeß-Synthese erfolgt in diesen Modellen während des gepulsten Heliumschalenbrennens, der AGB (*asymtotic giant branch*) Phase der Sternentwicklung, zwischen dem Kohlenstoff-Sauerstoff-Kern und der Wasserstoffschale des Sterns. Abbildung 20 zeigt im oberen Diagramm den Verlauf der Neutronendichte als Funktion der Pulsdauer während einer solchen Helium-Brennphase. Der erste Neutronenteilpuls ist auf die  $^{13}\text{C}(\alpha, n)$  Reaktion

zurückzuführen, die Temperatur liegt bei  $12 \text{ keV}$ . Nachdem das über die  $^{12}\text{C}(p,\gamma)^{13}\text{N}(\beta^+)$  Reaktion erzeugte  $^{13}\text{C}$  verbraucht ist, klingt die Neutronendichte ab, um gegen Ende des Helimpulses, wenn die Temperatur auf ca.  $26 \text{ keV}$  steigt, für einen kurzen Zeitraum über die  $^{22}\text{Ne}(\alpha,n)$  Reaktion noch einmal anzusteigen. Die Elektronendichte bei diesen Prozessen liegt bei  $10^{27} \text{ cm}^{-3}$  bis  $10^{28} \text{ cm}^{-3}$ , also in einem Bereich, der der klassischen Analyse der  $^{163}\text{Ho}/^{163}\text{Dy}$ -Verzweigung entspricht.

Um die jeweilig aktuellsten Neutronenprofile [Gal93] dieser Modelle für Berechnungen verwenden zu können, wurde das Computerprogramm NETZ [Jaa90] und [Jaa91] entwickelt. Es verwendet als Eingabedaten den Verlauf der Neutronendichte, Temperatur und Elektronendichte während des s-Prozesses und berechnet aus den Kerndaten der beteiligten Isotope die resultierenden Häufigkeiten.

#### 4.2.1 Die $^{163}\text{Ho}/^{163}\text{Dy}$ -Verzweigung

Abbildung 20 zeigt im mittleren Teil die Häufigkeitsentwicklung der Isotope  $^{163}\text{Dy}$ ,  $^{163}\text{Ho}$  und  $^{164}\text{Er}$  während eines solchen Neutronendoppelpulses. Man sieht am Verlauf des  $^{164}\text{Er}$  deutlich die bereits bei der klassischen Analyse festgestellte Tatsache, daß während des ersten Teilpulses, wenn die Temperatur noch gering ist, kaum eine Verzweigung am  $^{163}\text{Dy}$  erfolgt, sondern daß das vorhandene  $^{164}\text{Er}$  zerstört wird, bevor es bei der höheren Temperatur im zweiten Teilpuls gebildet wird. Ausschlaggebend für die im Stern produzierten Häufigkeiten sind die Ausbeuten am Ende eines Helimpulses, da dieses Material in die Wasserstoffhülle gemischt wird und mit dem Sternenwind und bei der abschließenden Abstoßung eines planetarischen Nebels ins interstellare Medium zurückgemischt wird.

Inwieweit das stellare Modell die solaren  $^{164}\text{Er}$ -Häufigkeiten zu reproduzieren vermag, verdeutlicht Abbildung 21; es zeigt die vom Stern produzierten Überhäufigkeiten<sup>2</sup>. Man sieht, daß alle mit o gekennzeichneten reinen s-Kerne im Massenbereich  $A > 90$  im wesentlichen dieselben Überhäufigkeiten besitzen, das stellare LMS-Modell also die solaren s-Häufigkeitsverhältnisse richtig beschreibt. Die gekennzeichnete  $^{164}\text{Er}$ -Überhäufigkeit liegt mit diesen gleichauf, was den vorwiegenden s-Charakter dieses Isotops bestätigt.

#### 4.2.2 Die $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ -Verzweigung

Im unteren Teil der Abbildung 20 ist die Häufigkeitsentwicklung der Isotope  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Gd}$  und  $^{155}\text{Gd}$  festgehalten. Tabelle 9 enthält die über einen Puls integrierten Reaktionsflüsse der unterschiedlichen s-Prozeß-Reaktionen. Sie verdeutlicht die Verzweigung am  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{155}\text{Eu}$ , zeigt jedoch auch, daß diejenige am  $^{155}\text{Eu}$  wesentlich geringer ist. Grund hierfür ist die Tatsache, daß die Zerfallskonstante des  $^{154}\text{Eu}$  stärker mit der Temperatur abfällt als die des  $^{155}\text{Eu}$ , die erst ab ca. 400 Mio. Kelvin ( $35 \text{ keV}$ ) unter die Neutroneneinfangrate sinkt und so zur dominierenden Komponente wird. Die Zahlenwerte in Tabelle 9

<sup>2</sup>Unter Überhäufigkeiten versteht man das Verhältnis aus den im Stern produzierten zu den solaren Häufigkeiten.

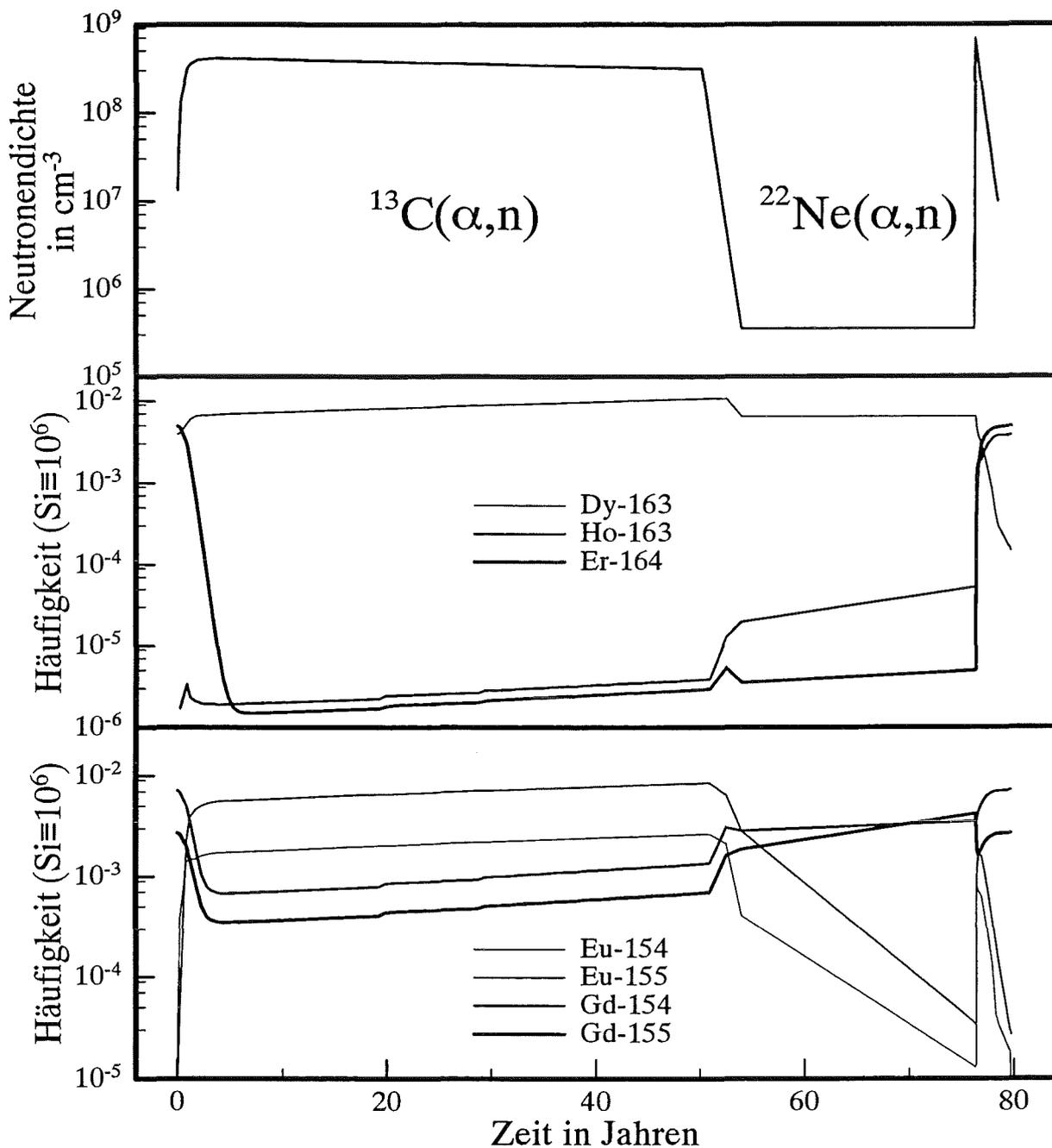


Abbildung 20: Verlauf der Neutronendichte während eines Helimpulses, nach [Gal93] (oben), Häufigkeitsentwicklung von <sup>163</sup>Dy, <sup>163</sup>Ho und <sup>164</sup>Er (mitte) und Häufigkeitsentwicklung von <sup>154</sup>Eu, <sup>155</sup>Eu, <sup>154</sup>Gd und <sup>155</sup>Gd (unten) während einer Episode der He-Schalenbrennens.

sind auf die Siliziumhäufigkeiten in der Syntheszone normiert und können daher nicht direkt mit den solaren Häufigkeiten verglichen werden.

Tabelle 10 zeigt die mit dem LMS-Modell gewonnenen Gd-Häufigkeiten im Vergleich zu

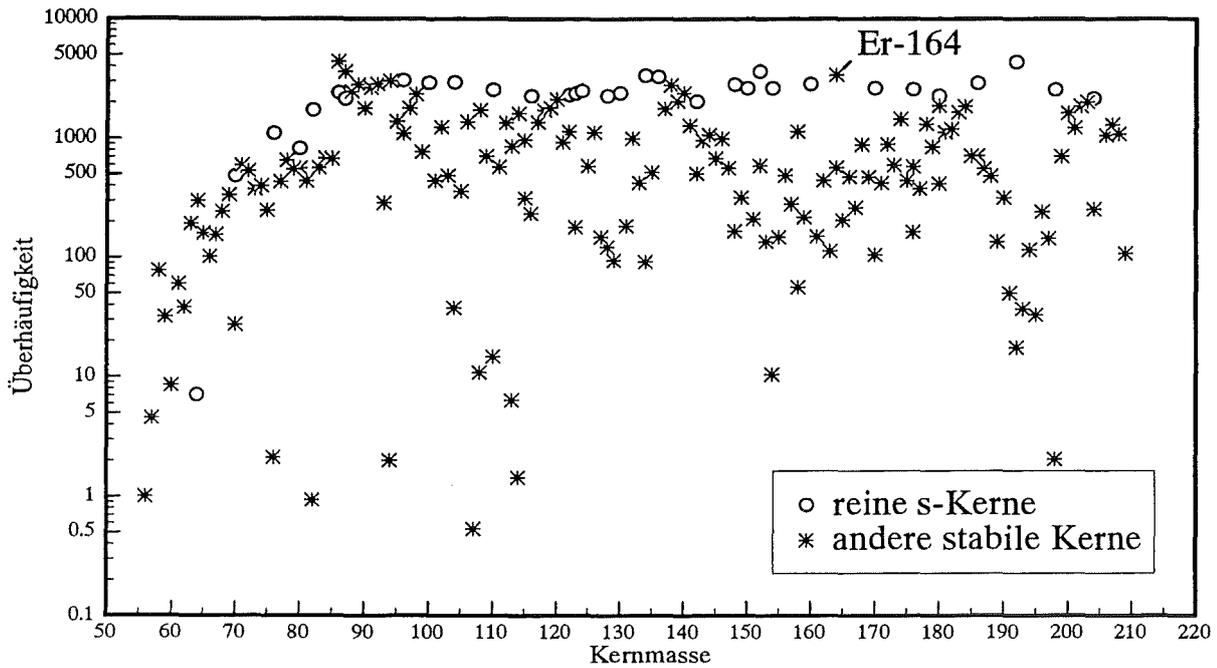


Abbildung 21: Überhäufigkeiten der schweren Elemente als Funktion der Kernmasse

ihren solaren Werten [And89] und den mit dem klassischen Modell gewonnenen Daten. Es zeigt sich, daß mit dem LMS-Modell der reine s-Kern  $^{154}\text{Gd}$  sehr genau reproduziert wird, wohingegen das Isotop  $^{152}\text{Gd}$  stark überproduziert wird. Dieses Ergebnis sollte jedoch wegen der mit großen Fehlern behafteten Kerndaten der Verzweigungsotope  $^{151}\text{Sm}$

Tabelle 9: Pulsintegrierter Reaktionsfluß

| Reaktion                    | über einen Puls integrierter Reaktionsfluß<br>( $N_{LMS}(\text{Si}) \equiv 10^6$ ) |
|-----------------------------|--|
| $^{154}\text{Gd}(n,\gamma)$ | 156.5  |
| $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$ | 242.3  |
| $^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ | 1497.9   |
| $^{154}\text{Eu}(\beta^-)$  | 152.7  |
| $^{154}\text{Eu}(\beta^+)$  | 0.8  |
| $^{155}\text{Eu}(n,\gamma)$ | 1426.2   |
| $^{155}\text{Eu}(\beta^-)$  | 87.4   |

und  $^{152}\text{Eu}$  nicht überbewertet werden. Die Tabelle zeigt ebenfalls, daß wegen des hohen r-Prozeß-Anteils von  $^{155}\text{Gd}$  (ca. 95 %) im solaren Material die Verzweigung am  $^{155}\text{Eu}$  nicht interpretiert werden kann.

**Tabelle 10:** Häufigkeiten der Gd-Isotope. Die p-Prozeß-Anteile wurden der Arbeit von [Sto93] entnommen.

| Isotop            | solare Häufigkeit<br>$N_{\odot}$ | LMS-Modell<br>$N_{LMS}$ | klass. Modell<br>$N_s$ | r-Prozeß<br>$N_r$ |
|-------------------|----------------------------------|-------------------------|------------------------|-------------------|
| $^{152}\text{Gd}$ | 0.00066                          | 0.000881                | 0.000399               | (33 % p-Anteile)  |
| $^{154}\text{Gd}$ | 0.00719                          | 0.00721                 | 0.00687                | (5 % p-Anteile)   |
| $^{155}\text{Gd}$ | 0.0488                           | 0.00273                 | 0.00372                | 0.0461            |
| $^{156}\text{Gd}$ | 0.0676                           | 0.0125                  | 0.0131                 | 0.0551            |
| $^{157}\text{Gd}$ | 0.0516                           | 0.00548                 | 0.00543                | 0.0461            |
| $^{158}\text{Gd}$ | 0.0820                           | 0.0354                  | 0.0345                 | 0.0466            |

Eine weiterer interessanter Unterschied der beiden Modelle ist, daß sich nicht nur am  $^{152}\text{Gd}$ , sondern auch am  $^{154}\text{Gd}$  die berechneten Häufigkeiten unterscheiden, wohingegen die Übereinstimmung bei den anderen Isotopen sehr gut ist. Diese Tatsache erlaubt es, die beiden Modelle hinsichtlich dieser Aussagen zu bewerten, sollten einmal reine s-Häufigkeitsdaten zur Verfügung stehen.

Die große Bedeutung des in dieser Arbeit gefundenen Querschnitts liegt in der Möglichkeit damit den theoretischen Querschnitt des  $^{154}\text{Eu}$  zu verbessern und so die Temperaturanalyse der  $^{154}\text{Eu}$ -Verzweigung wesentlich zu verfeinern. Diese theoretischen Arbeiten, auf der Grundlage einer *lokalen Parametersystematik*, werden derzeit in Zusammenarbeit mit ENEA Bologna [Ref94] durchgeführt. Die Berechnungen basieren unter anderem auf einem genauen Kenntnis von Einfangquerschnitten im untersuchten Kernmassenbereich. Gerade der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von  $^{155}\text{Eu}$  stellt daher einen wichtigen Beitrag dar, da er die *Interpolation* der relevanten Parameter erlaubt. Da zum Zeitpunkt der Fertigstellung dieser Arbeit die neuen Berechnungen noch nicht vorlagen, wurde auf eine erneute Analyse verzichtet; eine zum jetzigen Zeitpunkt aktuelle Untersuchung findet sich in [Sto93].

# Kapitel 5

## Ausblicke

### 5.1 Messungen an anderen instabilen Kernen

Wie bereits eingangs erwähnt, ist die Anzahl der mit der Aktivierungstechnik meßbaren Verzweigungsisotope beschränkt. Am Institut für Kernphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe sind Querschnittsbestimmungen an den weiteren möglichen Kandidaten  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  und  $^{179}\text{Ta}$  geplant.

Auf Grund der relativ begrenzten, chemischen Möglichkeiten an einem physikalischen Institut ist die Zusammenarbeit mit (Radio-)Chemikern oder Gruppen wie ISOLDE von Vorteil, die entsprechende Proben zur Verfügung stellen.

### 5.2 Astrophysikalische Aspekte

#### 5.2.1 Dysprosium-, Holmium- und Erbiumisotope

Von kernphysikalischer Seite ist dieses Massengebiet nun hinreichend abgedeckt, um alle s-Prozeß-Aspekte untersuchen zu können. Vielversprechend sind hier die Ergebnisse der Messungen von Dy-Isotopenanomalien in Meteoriten, die, wie in 4.1 angesprochen, interessante Einblicke hinsichtlich der Häufigkeit von  $^{163}\text{Dy}$  versprechen und damit eine wichtige Ergänzung zu der hier vorgestellten Analyse liefern, die sich auf die  $^{164}\text{Er}$ -Häufigkeit bezog.

#### 5.2.2 Europium- und Gadoliniumisotope

Wie im letzten Kapitel erwähnt, müssen neue Informationen über den  $^{154}\text{Eu}$ -Querschnitt abgewartet werden, um die Analyse der  $^{154}\text{Eu}$ -Verzweigung verbessern zu können. Derzeit werden in Zusammenarbeit mit ENEA Bologna verbesserte Rechnungen auf der Grundlage einer detaillierten *lokalen Parametersystematik* durchgeführt, mit deren Hilfe ein zuverlässiger  $^{154}\text{Eu}$ -Querschnitt bestimmt werden soll. In naher Zukunft werden darüber hinaus auch die mit dem  $4\pi\text{-BaF}_2$ -Detektor des IK3 gemessenen Gadoliniumquerschnitte

zur Verfügung stehen, was dann eine wesentlich exaktere Betrachtung ermöglicht.

Arbeiten hinsichtlich der in Kapitel 3 angedeuteten Isotopenanomalien in Meteoriten im Bereich der Gadoliniumisotope, die für die direkte Analyse der Verzweigung am  $^{155}\text{Eu}$  nötig sind, versprechen in naher Zukunft keine Ergebnisse [Ric94], da diesbezügliche Messungen noch unverstandene Interferenzen aufweisen. Eine Erweiterung der Betrachtungen in dieser Richtung ist also erst auf längere Sicht zu erwarten.

Im Hinblick auf die große Diskrepanz zwischen der solaren  $^{152}\text{Gd}$ -Häufigkeit und dem mit dem klassischen und mit dem LMS-Modell berechneten Werten erscheint es notwendig, die Kerndaten der Verzweigungsisotope  $^{151}\text{Sm}$  und  $^{152}\text{Eu}$  ebenfalls zu überprüfen, wobei hier die Zerfallskonstanten, hauptsächlich die des  $^{151}\text{Sm}$ , eine wesentlich wichtigere Rolle spielen als die Neutroneneinfangquerschnitte. Es konnte mit dem Programm NETZ gezeigt werden, daß im LMS-Modell in erster Linie die Temperatur während des zweiten Neutronenpulses den entscheidenden Einfluß auf die Überproduktion des  $^{152}\text{Gd}$  hat. Deshalb ergibt sich mit dieser Verzweigung die Möglichkeit einer verfeinerten Analyse des Temperaturverlaufs am Ende der jeweiligen He-Brennphase im AGB-Stadium.

# Anhang A

## Das Monte Carlo Programm CASC

Erfolgt ein radioaktiver Zerfall über mehrere Zwischenzustände des Tochternuklids, so besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit, daß mehrere Gammaquanten ein und derselben Kaskade in einem Detektor gleichzeitig gemessen werden. Dieser, von der Zählrate unabhängige, Effekt heißt *cascade summing*. Durch ihn können Linienzählraten, speziell bei hoher Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors, stark verfälscht werden, er muß also zum Erreichen einer hohen Meßgenauigkeit, z.B. bei Eichungen, immer miteinbezogen werden.

Während diese Korrektur bei 'einfachen' Zerfällen direkt angegeben werden kann, muß sie bei komplexen Zerfällen numerisch bestimmt werden. CASC ist ein Monte-Carlo-Programm zur Bestimmung der entsprechenden Korrekturfaktoren für die einzelnen Linien einer Kaskade.

Die verschiedenen Störungen sollen hier für den vereinfachten  $^{88}\text{Y}$ -Zerfall (Abbildung 22) erläutert werden.

**summing out** : Wird gleichzeitig z.B. zur  $898\text{keV}$ -Linie die  $1836\text{keV}$ -Linie nachgewiesen, so erscheint das Ereignis bei einer höheren Energie – es wird aus der  $898\text{keV}$ -Linie hinaussummiert.

**summing in** : Werden die  $898$  und  $1836\text{keV}$ -Linie gleichzeitig gemessen, so erscheint das Ereignis bei einer Energie von  $2734\text{keV}$ , ohne daß ein direkter Übergang vom  $2734\text{keV}$ -Niveau in den Grundzustand stattgefunden hätte.

Bei dieser Betrachtung dürfen Röntgenquanten und Betastrahlung nicht ausgeschlossen werden, da auch sie koinzident mit der Gammaskaskade auftreten. Bei jedem Übergang besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit für innere Konversion, das damit verbundene Röntgenquant kann ebenfalls *summing out* hervorrufen. Beim Zerfall durch Elektroneneinfang wird evtl. ebenfalls ein Röntgenquant frei und führt so zu denselben Effekten wie bei innerer Konversion.

CASC berechnet für einen gewählten Zerfall, bei gegebener Energieabhängigkeit der Ansprechwahrscheinlichkeit, für gewünschte Übergänge die Beiträge von *summing in* und *summing out*. Eine ausführliche Beschreibung des Programms findet sich in einem eigens

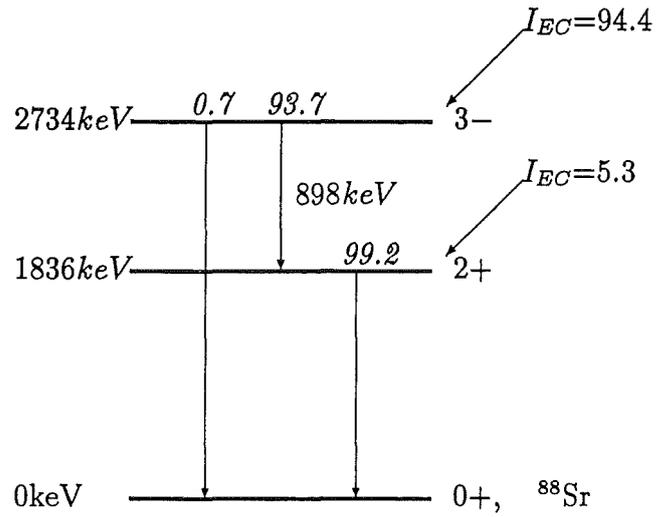


Abbildung 22: Vereinfachtes Zerfallsschema von  $^{88}\text{Y}$

darüber angefertigten Primärbericht [Jaa93a]; in diesem werden auch die Einflüsse von Winkelkorrelationseffekten, Elektronen- und Positronenstrahlung diskutiert.

# Anhang B

## Das Fitprogramm ANAMU

Auch bei hochauflösenden Halbleiterdetektoren ergibt sich oft das Problem überlappender Gammalinien in einem Spektrum  $S(E)$ . Ist jedoch die Linienform bekannt, in erster Näherung eine Gaußverteilung, läßt sich ein solches Multiplett numerisch entfalten. Mathematisch handelt es sich hierbei um ein nichtlineares Fitproblem mit mehreren Parametern, für das in der einschlägigen Literatur (z.B.: [Bev69]) viele Lösungsmöglichkeiten angeboten werden.

Neben dem Linienverlauf  $\Phi(E)$  und der Intensität  $I$  enthält auch der Multiplettuntergrund  $U(E)$  Parameter, die an das gemessene Spektrum angepaßt werden müssen. Es gibt viele Arbeiten auf diesem Gebiet, die sich mit unterschiedlichen Ansätzen für diese Verlaufsfunktionen beschäftigen, eine gute Übersicht findet sich in [Deb88].

Auf Grund der hohen Auflösung von Halbleiterdetektoren muß zwischen Gammalinien aus Kernübergängen und Röntgenlinien unterschieden werden. Letztere weisen eine natürliche Linienbreite  $\Gamma$  auf, die bei schwereren Kernen im Vergleich zur Detektorauflösung  $\Theta$  nicht vernachlässigbar ist. Im Spektrum ergibt sich die Linienform als Faltungsintegral aus der Linienform für monoenergetische Linien  $D(E)$  und der Lorentzverteilung der Röntgenlinie

$$\Phi(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} D(E - E') \frac{\Gamma}{2\pi} \frac{1}{E'^2 + \frac{1}{4}\Gamma^2} dE'.$$

Näherungen oder analytische Ausdrücke für dieses Integral finden sich z.B. in [Wil71], [Gun77] oder [Sch69].

Nun sind zwar mehrere verschiedene Programmpakete für Spektrumsanalysen zugänglich, bzw. käuflich, jedoch ist bis auf das Programmpaket GRPANL [Gun77] keines in der Lage, gemischte Multipletts aus Röntgen- und Gammalinien zu entfalten. Der Versuch, GRPANL an das am Institut verwendete Datenaufnahmesystem anzupassen, wurde nach kurzer Zeit verworfen, da wegen vieler grundlegender Unterschiede, hauptsächlich bei systemspezifischen Aufrufen, eine Neuentwicklung einfacher erschien !

Zwecks Kompatibilität mit dem am IK3 eingesetzten Softwarepaket SAMPO [Rou69] wurde in dieser Arbeit die dort verwendete Form einer monoenergetischen Linie der Energie

$E_o$  übernommen,

$$D(E) = \begin{cases} I e^{t_l(2E-2E_o+t_l)/2\Theta^2} & : E < E_o - t_l \\ I e^{-(E-E_o)^2/2\Theta^2} & : \text{sonst} \\ I e^{t_r(2E-2E_o+t_r)/2\Theta^2} & : E > E_o + t_r \end{cases}$$

Die Linienparameter  $t_r$  und  $t_l$  werden als rechts- bzw. linksseitiges *Tailing* bezeichnet und beschreiben das am hoch- und niederenergetischen Ende von der Gaußverteilung abweichende Verhalten der Linienform. Als Untergrundfunktion  $U(E)$  wurde ein Polynom beliebigen Grades  $n$  verwendet<sup>1</sup>:  $U(E) = \sum_{j=0}^n a_j E^j$ . Dieser Ansatz führt für ein Multiplett von  $m$  Linien zu  $(6 \cdot m + n + 1)$  freien Parametern<sup>2</sup>.

Da für jeden neuen Iterationsschritt des Fitvorgangs auch erneut das oben genannte Faltungsintegral jeder Linie bestimmt werden muß und die nichtlinearen Fitalgorithmen auch Matrixinversionen enthalten, stößt man recht schnell an die Grenzen der Rechengenauigkeit und Rechenzeit. Es wurde daher entschieden, das gesamte Fitproblem zu linearisieren; die nichtlinearen Parameter  $t_r$ ,  $t_l$  und  $\Theta$  sowie die Energieeichung des Detektorsystems werden den von SAMPO erzeugten Kalibrierungsdaten entnommen<sup>3</sup>; Tabellen der natürlichen Linienbreiten  $\Gamma$  von K-Röntgenlinien finden sich z.B. bei [Kra79].

Das linearisierte Problem ( $a_{n+i}$  steht für die Intensität der Linie  $i$ ).

$$I(E) = \sum_{j=0}^n a_j E^j + \sum_{i=1}^m a_{n+i} \Phi(E)_i$$

läßt sich nach den gängigen Regressionsalgorithmen [Bev69] lösen: Die Forderung nach minimaler Fehlerquadratsumme

$$\frac{d}{d a_i} \chi^2 = \frac{d}{d a_i} \sum_E (S(E) - I(E))^2 = 0$$

führt zu einem Gleichungssystem mit  $(m + n + 1)$  linearen Gleichungen, dessen Lösung die Parameter  $a_i$  ergeben.

Zur Analyse von Multipletts mit bekannten Intensitätsverhältnissen der einzelnen Linien, z.B.  $\beta_1/\beta_2$  Röntgenintensitäten eines Elements, wurde in ANAMU die Möglichkeit eingebaut, mehrere Linien lediglich mit einem einzigen Intensitätsparameter zu versehen und so auch bei schlechter Statistik oder genau aufeinanderliegenden Linien noch gute Ergebnisse zu erhalten.

Alle in dieser Arbeit bestimmten Linienzählraten, auch die von Einzellinien, wurden mit ANAMU berechnet und, soweit möglich, mit SAMPO Ergebnissen verglichen. Im Bereich

<sup>1</sup>SAMPO verwendet  $n = 2$ , was sich jedoch bei schwierigen Untergrundverhältnissen als nicht ausreichend erwies.

<sup>2</sup>Die freien Parameter einer Linie sind:  $I, \Gamma, E_o, t_r, t_l$  und  $\Theta$ .

<sup>3</sup>SAMPO enthält ein Fitprogramm, das diese Parameter für einzelne Eichlinien bestimmen kann.

von Röntgenlinien erwies sich hierbei wegen der komplexeren Struktur ein Untergrundpolynom dritter Ordnung als am besten geeignet.

Eine ausführlichere Beschreibung des Programms findet sich in einem eigens dafür angefertigten Primärbericht [Jaa93b].

# Literaturverzeichnis

- [And89] E. Anders & N. Grevesse,  
Geochim. Cosmochim. Acta, 53 (1989) 197
- [Bao87] Z.Y. Bao & F. Käppeler,  
Atomic Data & Nuclear Data Tables, 36 (1987) 411
- [Bam77] W. Bambynek *et al.*,  
Rev. Mod. Phys., 49 (1977) 77
- [Bam72] W. Bambynek *et al.*,  
Rev. Mod. Phys., 44 (1972) 716
- [Bau74] Mehr Wissen über Chemie  
(Aulis Verlag Deubner & Co KG : Köln, 1974)
- [Bee84] H. Beer *et al.*,  
Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, Knoxville,  
(AIP Conference Proceedings No. 125 : New York, 1984) 778
- [Bee85] H. Beer *et al.*,  
Phys. Rev. C, 32 (1985) 738
- [Bev69] P.R. Bevington,  
Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences  
(McGraw-Hill Book Company : New York, 1969)
- [Bey84] G.J. Beyer & H.L. Ravn,  
3. Int. Meeting on Nuclear Analytical Methods, Dresden 1983  
Proceedings of the Meeting, ZfK 524 (1984) 520

- [Bro86] E. Browne & R.B. Firestone,  
Table of Radioactive Isotopes,  
(John Wiley & Sons : New York, 1986)
- [Cho56] G.R. Chopin & R.J. Silva,  
J. Inorg. Nucl. Chem., 3 (1956) 153
- [Deb88] K. Debertin & R.G. Helmer,  
Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors,  
(North Holland : Amsterdam, 1988)
- [Dor70] K. Dorfner,  
IONENAUSTAUSCHER  
(Walter de Gruyter & CO : Berlin, 1970)
- [Dro72] G. Droste & W. Pessra,  
Z. Physik, 252 (1972) 300
- [Far67] J.P. Faris,  
J. Chromatog., 26(1967) 323
- [Gal74] W.J. Gallagher & S.J. Cippola,  
Nucl. Instr. & Meth., 122 (1974) 405
- [Gal88] R. Gallino *et al.*,  
Ap. J., L45 (1988) 334
- [Gal93] R. Gallino,  
persönliche Mitteilungen
- [Ger92] Th. Gerstenhöfer,  
Dissertation, KfK 5180, 1993
- [Glü55] E. Glückauf,  
Trans. Farad. Soc., 51 (1955) 34

- [Gme83] Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry,  
Rare Earth Elements, Part D 6  
(Springer : Berlin, 1983)
- [Gun77] R. Gunnik,  
Nucl. Instr. & Meth., 143 (1977) 145
- [Har81] M.J. Harris,  
Astrophys. Space. Sci., 77 (1981) 357
- [Hel59] F. Helfrich,  
IONENAUSTAUSCHER, Band 1, Struktur, Herstellung, Theorie,  
(Verlag Chemie GmbH : Weinheim, 1959)
- [Hel86] R.G. Helmer,  
Nuclear Data Sheets, 49 (1986) 383
- [Hol76] J.A. Holmes *et al.*,  
Atomic Data & Nuclear Data Tables, 18 (1976) 305
- [Hol89] D. Hollowell & I. Iben,  
Ap. J., 340 (1989) 966
- [Jaa90] S. Jaag,  
Diplomarbeit, KfK (1990)
- [Jaa91] S. Jaag,  
KfK/IK3, unveröffentlichter Bericht (1991)
- [Jaa93a] S. Jaag,  
KfK/IK3, unveröffentlichter Bericht (1993)
- [Jaa93b] S. Jaag,  
KfK/IK3, unveröffentlichter Bericht (1993)
- [Jør66] M.H. Jørgensen *et al.*,  
Nucl. Phys., 84 (1966) 569

- [Kaj72] H. Kaji *et al.*,  
Radiochem. Radioanal. Letters, 10 (1972) 151
- [Käp85] F. Käppeler *et al.*,  
Ap. J., 291 (1985) 319
- [Käp89] F. Käppeler *et al.*,  
Rep. Prog. Phys., 52 (1989) 945
- [Käp90] F. Käppeler *et al.*,  
Ap. J., 354 (1990) 630
- [Käp91] F. Käppeler *et al.*,  
KfK/IK3, unveröffentlichter Bericht (1991)
- [Käp93] F. Käppeler *et al.*,  
Ap. J., 410 (1993) 370
- [Kaw88] O. Kawakami *et al.*,  
Phys. Rev. C, 38 (1988) 1875
- [Kor64] J. Korkisch,  
Mikrochim. Acta, 5 (1964) 1
- [Kra79] M.O. Krause & J.H. Oliver,  
J. Phys. Chem. Ref. Data, 8 (1979) 329
- [Lee87] M.A. Lee,  
Nuclear Data Sheets, 50 (1987) 563
- [Mal88] H.P. Malan & H. Münzel,  
Radiochimica Acta, 5 (1966) 21
- [Mol66] F. Molnar *et al.*,  
Radiokhimiya, 8 (1966) 183

- [Mol67a] F. Molnar *et al.*,  
J. Chromatog., 26 (1967) 215
- [Mol67b] F. Molnar *et al.*,  
J. Chromatog., 26 (1967) 225
- [Mün65] H. Münzel & E. Gantner,  
Radiochimica Acta, 4 (1965) 119
- [Nov63] A.F. Novgorodov *et al.*,  
Radiokhimiya, 8 (1966) 347
- [Nov92] A.F. Novgorodov,  
persönliche Mitteilungen
- [Pat71] B.P. Pathak & S.K. Mukherjee,  
Nucl. Phys., A 160 (1971) 618
- [Rat88] W. Ratynski & F. Käppeler,  
Phys. Rev. C, 37 (1988) 595
- [Ref94] G. Reffo,  
persönliche Mitteilungen
- [Ric94] S. Richter & U. Ott,  
persönliche Mitteilungen
- [Rös78] F. Rösler *et al.*,  
Atomic Data & Nuclear Data Tables, 21 (1978) 1
- [Rou69] J.T. Routti & S.G. Prussin,  
Nucl. Instr. & Meth., 72 (1969) 125
- [Sch69] C.W. Schulte *et al.*,  
Nucl. Instr. Meth., 174 (1980) 549

- [Sch90] W. Schanz,  
Diplomarbeit, KfK 1990
- [Set66] B. Sethi & S.K. Mukherjee,  
Nucl. Phys., 85 (1966) 227
- [Shu86] E.N. Shurshikov,  
Nuclear Data Sheets, 47 (1986) 433
- [Smi56] H.L. Smith & D.C. Hoffmann,  
J. Inorg. Nucl. Chem., 3 (1956) 243
- [Sto70] E. Storm & H.I. Israel,  
Nuclear Data Tables, A7 (1970) 565
- [Sto93] H. Stoll,  
Diplomarbeit, KfK (1993)
- [Tak87] K. Takahashi & K. Yokoi,  
Atomic Data & Nuclear Data Tables, 37 (1987) 375
- [War76] R.A. Ward *et al.*,  
Ap. J. Suppl., 31 (1976) 33
- [Wil71] D.H. Wilkinson,  
Nucl. Instr. & Meth., 95 (1971) 259
- [Wis93] K. Wisshak *et al.*,  
Ap. J., 48 (1993) 1401

# Danksagungen

Erster Dank gilt Herrn Prof. Dr. Schatz für die Ermöglichung dieser Arbeit sowie Herrn Prof. Dr. Zeitniz für die Übernahme des Koreferats.

Besonderer Dank gilt Herrn Dr. Käppeler, der immer ein offenes Ohr für meine Probleme und Fragen hatte.

Ebenfalls ganz besonderer Dank gilt Herrn Rupp, ohne dessen unvergleichliches Talent in der Materialbeschaffung wohl viele Dinge einen unglücklichen Verlauf genommen hätten.

Der Van de Graaff Mannschaft und den Werkstudenten möchte ich dafür danken, daß sie den Beschleuniger während meiner langen Meßzeiten am Leben erhalten haben.

Bei Herrn Prof. Dr. von Ammon möchte ich mich für die Unterstützung beim Einstieg in die Radiochemie und die Überlassung eines Arbeitsplatzes im IHCh bedanken, bei Herrn Dr. Ravn und Herrn Dr. Beyer für die unkonventionelle Überlassung der  $^{163}\text{Ho}$ -Probe, bei Herrn Dr. Ottmar und Herrn Eberle für die Ermöglichung und Unterstützung der Röntgenfluoreszenzmesungen sowie bei Herrn Dr. Berg, Herrn Dr. Stollenwerk und Herrn Kohl für die schnelle und kompetente Bestimmung der Isotopenzusammensetzung und bei Herrn Hoffmann dafür, daß er in nicht mal einer Woche eine 200 kg Bleiabschirmung herbeigezaubert hat. Weiterer Dank gilt auch Herrn Theis, der immer schnell herausfand, warum der Computer nicht so läuft wie er sollte.

Auch allen nicht persönlich genannten sei gemeinsam mein Dank für die hervorragende Arbeitsatmosphäre und Unterstützung ausgesprochen.